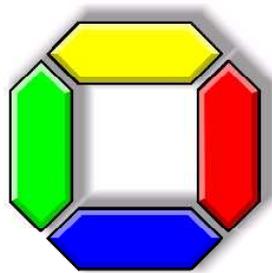


Untersuchung schneller Strukturänderungen mit Hilfe ultrakurzer Röntgenimpulse

Dissertation zur
Erlangung der Doktorwürde
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Universität Duisburg-Essen



von
Christian Blome
aus Essen

Juli 2003

Untersuchung schneller Strukturänderungen mit Hilfe ultrakurzer Röntgenimpulse

Dissertation zur
Erlangung der Doktorwürde
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Universität Duisburg-Essen

von
Christian Blome
aus Essen

Juli 2003

Gutachter:
Prof. Dr. D. von der Linde
Prof. Dr. M. Horn-von Hoegen

Vorsitzender:
Prof. Dr. L. Schäfer

Tag der mündlichen Prüfung: 20. November 2003

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	V
1 Einleitung	1
1.1 Einführung und Motivation	1
1.2 Gliederung	4
1.3 Zusammenfassung der Ergebnisse	6
1.4 Erzeugung kurzer Röntgenimpulse	8
1.4.1 Laser-Plasma-Röntgenquellen	8
1.4.2 Alternative Methoden	11
2 Röntgenquelle der Universität Essen	15
2.1 Aufbau und Konstruktion der Röntgenquelle	15
2.2 Torisch gebogener Röntgenspiegel	18
2.3 Charakterisierung der Röntgenquelle	27
3 Experimente mit hoher Zeitauflösung	33
3.1 Erweiterung des Versuchsaufbaus	33
3.2 Experimente an dünnen Germaniumschichten	44
3.2.1 Laserinduziertes Schmelzen von Halbleitern	44
3.2.2 Zeitaufgelöste Messungen	48
3.3 Experimente an dünnen Wismutschichten	64
3.3.1 Struktureigenschaften und optische Phononen	64
3.3.2 Zeitaufgelöste Messungen	73
4 Zusammenfassung und Ausblick	96
5 Anhang	106
5.1 Röntgendetektion	106
5.2 Auswertungssoftware	111
5.3 Winkelkalibrierung der Wismutexperimente	115
5.4 Fehleranalyse	116
5.5 Materialdaten	121
Literaturverzeichnis	127

Danke

Lebenslauf mit Publikationsliste

Abbildungsverzeichnis

1	Hochaufgelöstes Aluminiumspektrum	8
2	Brillanz unterschiedlicher Quellen	13
3	Aufbau und Konstruktion der Röntgenquelle	16
4	Aufbau zur 1:1-Abbildung mit einem Röntgenspiegel	19
5	Fokus des Si (311)-Spiegels aus Jena, aufgenommen mit Ti-K α	20
6	Abweichung vom <i>Bragg</i> winkel über eine torische Fläche	21
7	Aufnahme der Topografie des Si (311)-Spiegels aus Jena	22
8	Röntgenbeugungskurve von Si (311)	23
9	Hochaufgelöstes Spektrum der Ti-Quelle	25
10	Röntgenemission <i>vs.</i> Zeitverzögerung im Vorverstärker	28
11	Ti-K α -Photonen und Untergrund <i>vs.</i> Position der Linse und Ti-K α - Fluß <i>vs.</i> Laserenergie	30
12	Spezieller Treibermodus der Röntgen-CCD-Kamera	31
13	Histogramm des Ti-K α -Röntgenflusses	32
14	Strahlenverläufe vor der Vakuumkammer	35
15	Abbildung des Aufbaus innerhalb der Vakuumkammer für das Anrege- Abfrage-Experiment	37
16	Schematische Darstellung der Kommunikationswege der eingesetzten Computer	38
17	Zeitverschmierung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls	39
18	Auswertung einer Röntgenbeugungskurve	41
19	Berechnete Beugungskurve einer 170 nm Ge (111)-Schicht	42
20	Zeitaufgelöste Mikroskopie an einer Si-Oberfläche während des Schmel- zens	45
21	Zeitaufgelöste Reflektivität eines weißen Spektrums und Abnahme der zweiten Harmonischen an einer GaAs-Oberfläche	46
22	Bindungsenergie pro Si-Atom <i>vs.</i> Phononenauslenkung	47
23	Zeitaufgelöste Reflektivitätskurve einer 170 nm Ge (111)-Schicht be- obachtet für 0,1, 0,2 und 0,4 J/cm ²	50
24	Faltung einer <i>Gauß</i> funktion mit einer zeitaufgelösten Reflexionskurve	52
25	Zeitaufgelöste Röntgenbeugungskurven von Ge (111) für verschiedene Verzögerungszeiten, Anregefluenz 0,2 J/cm ²	53
26	<i>Debye-Waller</i> -Faktor für die Reflexe von Ge (111) und (400)	54

27	Isochores Heizen und adiabate Entspannung bei der Laserwechselwirkung.	57
28	Entstehung von verschiedenen akustischen Störungen nach Thermalisierung der optischen Energie.	59
29	Vernachlässigung der lateralen Effekte bei thermischer Ausdehnung .	60
30	Abbildung der fcc-Struktur von Bi	65
31	Röntgenbeugungskurve von Bi, aufgenommen mit einer Cu-K α -Röntgenröhre	66
32	Potentialverlauf zur Erklärung der DECP-Theorie (schematisch) . . .	67
33	Optisches Anrege-Abfrage-Experiment an Bi	69
34	Normierter Röntgenstrukturfaktor von Bi <i>vs.</i> Phononenamplitude für hkl = (111) und hkl = (222)	71
35	Berechnete Beugungskurven einer 50 nm Bi-Schicht in den Beugungsrichtungen (111) und (222)	74
36	Faltung einer Phononenoszillation mit dem Röntgenimpuls	76
37	Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung auf Bi (222) mit der Energiedichte 6 mJ/cm ² bis 30 ps	78
38	Reduzierung des Beugungsvermögens von Bi (111) und (222) durch den <i>Debye-Waller</i> -Faktor und durch thermische Ausdehnung	80
39	Modulationsamplitude der Faltung einer cos-Funktion mit einem <i>Gauß</i> -impuls	81
40	Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung auf Bi (111) mit einer Energiedichte von 6 mJ/cm ² bis 2 ps	82
41	Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung auf Bi (111) mit einer Energiedichte von 10 mJ/cm ² bis 40 ps	84
42	Änderung des Beugungsvermögens auf Grund der thermischen Ausdehnung	86
43	Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung auf Bi (222) mit einer Energiedichte von 15 mJ/cm ² bis 40 ps	87
44	Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung auf Bi (111) mit einer Energiedichte von 15 mJ/cm ² bis 50 ps	89
45	Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung auf Bi (222) mit einer Energiedichte von 20 mJ/cm ² bis 70 ps	91
46	Röntgenbeugungskurven für Bi (222) bei einer Anregung von 20 mJ/cm ² und Bi (111) bei einer Anregung von 15 mJ/cm ²	93

47	Maximum der Phononenamplitude in Bi (222) <i>vs.</i> Fluenz des Anregimpulses	94
48	Reflektivitätsabnahme der Röntgenbeugung an Bi (111) <i>vs.</i> Fluenz bei einer festen Zeitverzögerung von <i>ca.</i> 600 fs	95
49	Röntgenbeugungskurve Ge (400)-Schicht	99
50	Abweichung vom <i>Bragg</i> winkel über eine torische Fläche	100
51	Aufnahme der Topographie des Ge A Spiegels aus Jena	101
52	Fokus des Röntgenspiegels Ge A aus Jena aufgenommen mit Ti-K α .	102
53	Normierter Röntgenstrukturfaktor von Bi <i>vs.</i> Phononenamplitude für höhere Beugungsordnungen	103
54	Funktionsweise von rückseitig beleuchteten CCD-Kameras	106
55	Beispiel zur Methode des Photocounting	109
56	Aufnahme eines Strahlenschadens	110
57	Hauptfenster Auswertungsprogramm	112
58	Hauptfenster Auswertungsprogramm	113
59	Beugungslinie, erstellt mit dem Auswertungsprogramm	114
60	Winkelkalibrierung der Röntgen-CCD-Kamera	115
61	Fehleranalyse für die Experimente an Wismutschichten	117
62	Abfolge der Aufnahmen bei den Experimenten an Bi-Schichten	118
63	Anzahl der Photonen in den Normierungsbildern für die Experimente an Bi-Schichten	120
64	Schallgeschwindigkeit <i>vs.</i> Temperatur in Ge und Si (111)	122
65	Kompressionsmodul <i>vs.</i> Temperatur in Ge und Si	122
66	Linearer Ausdehnungskoeffizient <i>vs.</i> Temperatur von Ge und Si . . .	123
67	Druckerhöhung <i>vs.</i> Temperatur bei konstantem Volumen in Ge	124
68	Uniaxiale thermische Ausdehnung <i>vs.</i> Temperatur für Ge und Si (111)	124

1 Einleitung

1.1 Einführung und Motivation

Wichtige Elementarprozesse in der Natur finden auf einer charakteristischen Zeitskala, welche durch die Schwingungsperiode eines Moleküls von *ca.* 100 fs vorgegeben ist, statt. Im optischen Bereich sind Experimente mit einer Zeitauflösung von einigen 10 fs (Femtosekunde, $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) als attraktive Technik zur Untersuchung schneller Vorgänge in der Physik, Chemie und Biologie seit den 80er Jahren etabliert [25, 69, 70]. Mit dieser hohen Zeitauflösung ist es möglich, optische Eigenschaften einer Probe – auf der natürlichen Zeitskala von atomaren Vorgängen – zu beobachten.

Zur Durchführung der optischen Experimente mit fs-Zeitauflösung wurde die Methode der Anrege-Abfrage Technik entwickelt. Bei dieser Technik wird ein kurzer Laserimpuls in zwei Impulse, einen Anregeimpuls und einen schwachen Abfrageimpuls, aufgeteilt. Der Anregeimpuls löst eine gewünschte photoinduzierte Reaktion auf einer Probenoberfläche aus, der zweite Laserimpuls trifft zeitlich verzögert auf die Probe und testet die Änderung der optischen Eigenschaften, wie zum Beispiel die Änderung der Reflektivität oder nichtlineare optische Eigenschaften.

Die Stärke dieser Technik liegt in der natürlichen Synchronisation der beiden Laserimpulse; die Zeitverzögerung wird einfach über eine Laufzeitdifferenz zwischen den Laserimpulsen eingestellt. Ein weiterer Vorteil ist die erreichbare zeitliche Auflösung, die im wesentlichen durch die Impulsdauer des verwendeten Lasersystems gegeben ist. Es werden heute ultrakurze¹ Laserimpulse mit einer Zeitdauer von nur 5 fs erzeugt [81].

Da der optische Abfrageimpuls mit den Valenz- und Leitungsbandelektronen der Probe wechselwirkt, werden nur elektronische Eigenschaften untersucht; es werden aber keine direkten Informationen über Strukturänderungen gewonnen. Strukturempfindliche Aussagen können nur indirekt über die häufig nicht eindeutige Interpretation der Meßergebnisse gemacht werden [75, 76].

Ein wichtiges Ziel ist daher die Erweiterung dieser bekannten Technik in den Röntgenbereich [63]. Die kurzen Wellenlängen der harten Röntgenstrahlung im Å-Bereich (*Ångström*, $1 \text{ Å} = 10^{-10} \text{ m}$) erlauben eine direkte Untersuchung der Materie auf

¹Unter dem Begriff „ultrakurz“ werden im weiteren Vorgänge auf einer Zeitskala unterhalb von 1 ps (Pikosekunde, $1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$) bezeichnet.

der Längenskala der Atome. Die charakteristische Längenskala der atomaren Struktur wird durch den *Bohrradius* von $0,5 \text{ \AA}$ wiedergegeben. Typische Atomabstände in Kristallen liegen bei einigen *Ångström*. Wird der atomare Aufbau durch Streuexperimente untersucht, so braucht man zur atomaren Auflösung Wellenlängen in der Größenordnung der Atomdurchmesser. Da Röntgenstrahlung primär mit kernnahen Elektronen wechselwirkt, erhält man direkt struktursensitive Informationen. Beugungsexperimente liefern zum Beispiel die Positionen der Atome in einem Kristall (Fernordnung). Absorptionsmessungen an den charakteristischen Absorptionskanten (z. B. EXAFS (engl.: extended X-ray absorption fine structure), XANES (engl.: X-ray absorption near edge structure), NEXAFS (engl.: near edge X-ray absorption fine structure)) liefern Informationen über die chemische Zusammensetzung einer Probe sowie Bindungsabstände, Bindungswinkel und Bindungsenergien (Nahordnung).

Kombiniert man folglich die Röntgenstrahlung mit einer hohen zeitlichen Auflösung im subps-Bereich (Sub-Pikosekunde) durch ultrakurze Röntgenimpulse oder schnelle Detektoren, so wird die faszinierende Möglichkeit realisierbar, extrem schnelle chemische Reaktionen, Phasenübergänge, Oberflächenreaktionen und schnelle biologische Prozesse in Echtzeit zu verfolgen². Kurze Röntgenimpulse im ps-Bereich sind bis heute die Domäne von Großforschungseinrichtungen, wie die Synchrotronquelle an der Advanced Photon Source³, die European Synchrotron Radiation Facility⁴, das Stanford Linear Accelerator Center⁵ und das Deutsche Elektronen Synchrotron⁶. Auch die geplanten Freien-Elektronen-Laser (FEL), die Röntgenblitze im fs-Bereich erzeugen werden, sind auf Grund der notwendigen mehrere km-langen Beschleunigerstrecken sowie den hohen Kosten zu den Großforschungseinrichtungen zu zählen.

Aber bereits heute ist es möglich, Röntgenimpulse im subps-Bereich mit Hilfe von hochintensiven fs-Laserimpulsen in kleineren Laboratorien herzustellen. Die Hochtemperaturplasmen, die bei der Wechselwirkung von fs-Laserimpulsen mit Festkörperoberflächen entstehen, emittieren kurze inkohärente Röntgenblitze [47]. Da die Eigenschaften des entstehenden Plasmas wesentlich von den Laserparametern (Impulsdauer τ , Intensität I und Laserwellenlänge λ) abhängen, konnte durch die „Chirped Pulse Amplification“ Technik (CPA 1985) – ein neuer Bereich der Laser-Plasma-

²Ist wiederum die Reaktion schneller als die Dauer der Röntgenimpulse, so ist es möglich, eine obere Schranke für die Impulsdauer der erzeugten Röntgenblitze zu geben.

³APS, Argonne, Illinois, USA

⁴ESRF, Grenoble, Frankreich

⁵SLAC, Menlo Park, Kalifornien, USA

⁶DESY, Hamburg, Deutschland

Wechselwirkung – erschlossen werden [3, 87]. Solche Systeme sind imstande, ultrakurze Lichtimpulse mit Impulsdauern unter 100 fs zu erzeugen und zu verstärken. Im Laserfokus wird eine Intensität von bis zu 10^{20} W/cm² und Impulsleistung bis zu 100 TW (Terrawatt, 1 TW = 10^{12} W) erreicht [50]. Die verstärkten fs-Laserimpulse eröffnen einen ganz neuen Bereich der Wechselwirkung. Sie können die Energie in ein Festkörpertarget transferieren, bevor eine signifikante Ausdehnung der entstehenden Plasmawolke stattfindet. Dies steht im Gegensatz zur Wechselwirkung mit Impulsdauern im ns-Bereich (Nanosekunde, 1 ns = 10^{-9} s), bei denen der Hauptteil des Laserimpulses mit einer expandierten Plasmawolke wechselwirkt. Es entstehen neue nichtlineare Absorptionsmechanismen, die zu einer Beschleunigung der Elektronen in Richtung des kalten Targetmaterials hinter dem Plasma führen. Diese beschleunigten Elektronen können dann im kalten Material $K\alpha$ -Strahlung erzeugen, analog zu den Erzeugungsmechanismen in einer konventionellen Röntgenröhre. Da die Mechanismen, die den „Elektronenjet“ in das Material bewirken, nur so lange existieren wie der Laser wirkt, liegt die Impulsdauer des Röntgen- $K\alpha$ -Blitzes in der Größenordnung der Impulsdauer des Lasers. Die Erzeugung dieser heißen Elektronen und die Optimierung der Quellen sind Gegenstand aktueller Forschung.

In dieser Arbeit wird mittels zeitaufgelöster Röntgenbeugungsexperimente gezeigt, daß die verwendete Laser-Plasma-Röntgenquelle eine Impulsdauern von unter 300 fs besitzt. Zum Vergleich sei hier angeführt, daß schnelle Röntgen-Schmierbild-Kameras (engl.: streak camera) eine Zeitauflösung von 2 ps erreichen [36].

Mit Laser-Plasma-Röntgenquellen ist es möglich, die Vorteile der optischen Anrege-Abfrage-Experimente in den Röntgenbereich zu übertragen. Dazu wird ein starker Laserimpuls in zwei Impulse aufgeteilt: ein schwacher Anregeimpuls, der wieder die gewünschte photoinduzierte Änderung auf der Probenoberfläche hervorruft, und ein zweiter starker Laserimpuls, der auf einer Festkörperoberfläche ein röntgenemittierendes Plasma erzeugt. Durch geeignete Röntgenoptiken wird die inkohärente Röntgenstrahlung aus einem bestimmten Raumwinkelbereich auf die Probe fokussiert. Die zeitliche Verzögerung wird – wie im optischen Experiment – durch eine Laufzeitdifferenz zwischen den beiden Laserimpulsen erzeugt. Folglich ist auch die photoinduzierte Reaktion wieder zeitlich exakt zum Röntgenimpuls synchronisiert. Die $K\alpha$ -Energie der Strahlung kann durch Wechsel des Targetmaterials beliebig gewählt werden.

1.2 Gliederung

In dem *Kapitel 1.3 Zusammenfassung der Ergebnisse* wird ein Überblick über die erzielten Meßergebnisse und die erreichte Zeitauflösung in den Experimenten gegeben. Die daraus resultierenden Veröffentlichungen werden am Ende des Kapitels zusammengestellt. Die Veröffentlichungen informieren in verkürzter Form über die erreichten Resultate.

In dem *Kapitel 1.4 Erzeugung kurzer Röntgenimpulse* folgt ein kurzer Überblick über die einzelnen Forschungsaktivitäten zur Erzeugung kurzer Röntgenimpulse. Dadurch wird zum einen der Stand der Technik, insbesondere in den Großforschungseinrichtungen erklärt, zum anderen ist es möglich, die hier entwickelte Laser-Plasma-Röntgenquelle in ihrer Leistungsfähigkeit einzuordnen. Hierbei beschränkt sich die Zusammenfassung auf Röntgenquellen, deren Impulsdauern unter einigen 10 ps liegen. Im Kontrast zu den Großforschungseinrichtungen gibt es eine Anzahl kleiner, effizienter Laboratorien an Universitäten, welche Röntgenquellen entwickelt haben, die bereits heute zeitaufgelöste Experimente im subps-Bereich demonstrieren. Diese Quellen basieren hauptsächlich auf Laserplasmen. Die einzelnen Gruppen favorisieren verschiedene Targetmaterialien und arbeiten mit unterschiedlichen Konstruktionsentwürfen für die Quelle.

In dem *Kapitel 2.1 Aufbau und Konstruktion der Röntgenquelle* wird die selbstentwickelte Titan-K α -Quelle genauer beschrieben. Die zur Detektion der Röntgenstrahlung verwendete wassergekühlte Röntgenkamera wird im Anhang unter *5.1 Röntgendetektion* vorgestellt. Um den Röntgenfluß auf der Probe zu erhöhen, werden im *Kapitel 2.2 Torisch gebogener Röntgenspiegel* und im *Kapitel 4 Zusammenfassung und Ausblick* Möglichkeiten zur Fokussierung von inkohärenter Röntgenstrahlung vorgestellt. Im *Kapitel 2.3 Charakterisierung der Röntgenquelle* werden verschiedene Parameter zur Optimierung der Quelle vorgestellt. Die Optimierung der Röntgenquelle konnte nicht simultan zu den zeitaufgelösten Messungen betrieben werden, da zum einen nicht genügend Experimentatoren, zum anderen eine zweite vollständig ausgestattete Experimentier-Vakuumkammer mit Detektoren nicht zur Verfügung standen. Nachdem der Röntgenfluß der Quelle intensiv genug war, wurde die Entscheidung getroffen, den Schwerpunkt dieser Arbeit auf die Demonstration zeitaufgelöster Experimente zu legen. Dazu werden zwei Experimente durchgeführt, die im *Kapitel 3 Experimente mit hoher Zeitauflösung* näher vorgestellt werden.

Im *Kapitel 3.1 Erweiterung des Versuchsaufbaus* werden die Änderungen des experimentellen Aufbaus – von den statischen Experimenten zur Erzeugung der Röntgenstrahlung zu den zeitaufgelösten Experimenten – beschrieben. Es werden ebenfalls die notwendigen Justageprozeduren sowie die Auswertung an Hand der Beugungslinie von Germanium (Ge) erklärt. Auf weitere Erklärungen technischer Natur wird dann in den folgenden Kapiteln verzichtet, diese konzentrieren sich auf die experimentellen Resultate und auf die Physik.

Bei dem im *Kapitel 3.2 Experimente an dünnen Germaniumschichten* beschriebenen ersten Experiment handelt es sich um einen Beitrag zum Themenkomplex „nicht-thermisches Schmelzen von Halbleitern“. In dieser Arbeit wird der Phasenübergang von der Fest- in die Flüssigphase von hochangeregten Ge-Schichten mit der Methode der Röntgenbeugung zeitaufgelöst verfolgt und anschließend diskutiert. Im *Kapitel 3.3 Experimente an dünnen Wismutschichten* wird das zweite Experiment beschrieben. Es demonstriert erstmals Röntgenbeugung an einer optischen Phononenmode (A_{1g}-Mode) in Wismut (Bi) mit einer Zeitauflösung von deutlich unter 500 fs. Da der geometrische Strukturfaktor durch die Phononenauslenkung moduliert wird, ist es möglich, die Gitterschwingung durch Abnahme und Zunahme der Röntgenreflektivität zu verfolgen.

Im Anhang ist neben der Charakterisierung der röntgenempfindlichen CCD-Kamera eine kurze Beschreibung der selbstgeschriebenen Auswertungssoftware für die Kamerabilder unter *5.2 Auswertungssoftware* zu finden. Die für einige Abschätzungen verwendeten Materialdaten von Germanium und Silizium (Si) sind im Anhang unter *5.4 Materialdaten* zusammengestellt.

1.3 Zusammenfassung der Ergebnisse

Es konnte eine Laser-Plasma basierte Röntgenquelle mit einer Photonenenergie von 4,5 keV (Kiloelektronenvolt, $1 \text{ keV} = 10^3 \text{ eV}$), die der Titan- $K\alpha$ -Linie entspricht, realisiert werden. Diese Röntgenquelle kann Meßzeiten von einigen Tagen ohne Unterbrechung zur Verfügung stellen. Die durchgeführten zeitaufgelösten Experimente weisen auf eine obere Schranke der Impulsdauer der Röntgenstrahlung von *ca.* 300 fs hin. Durch einen torisch gebogenen Röntgenspiegel kann die inkohärente Röntgenstrahlung – aus dem vor dem Target liegenden Halbraum – auf einen Fokussdurchmesser von *ca.* 80 μm (Mikrometer, $1 \mu\text{m} = 10^{-6} \text{ m}$) fokussiert werden. Im Fokus wird ein Röntgenfluß von *ca.* $2 \cdot 10^4$ Photonen pro Laserimpuls gemessen.

Im ersten Teil der Experimente wurden dünne einkristalline Ge(111)-Oberflächen auf einem Si-Substrat (111) mit intensiven Laserimpulsen von 120 fs Dauer bestrahlt. Erfolgt die Anregung unterhalb einer bestimmten Energieschwelle, so kann der Laserimpuls als schnelle Wärmequelle betrachtet werden. Oberhalb dieser Schwelle findet eine neue Art der Umwandlung statt. Die Zeitdauer, in der der Phasenübergang in die metallisch-flüssige Phase stattfindet, wurde bisher mit optischen Methoden auf einer Zeitskala von wenigen 100 fs beobachtet. In der vorliegenden Arbeit wird die Dynamik der ausgelösten Strukturänderung mit Hilfe zeitaufgelöster Röntgenbeugung verfolgt. Es konnte für Anregefluenzen zwischen 0,1-0,4 J/cm^2 ein schneller Phasenübergang von der Fest- in die Flüssigphase – welche durch ein geringeres Beugungsvermögen ausgezeichnet ist – auf einer 300 fs Zeitskala nachgewiesen werden. Diese Zeitskala läßt bereits auf ein nichtthermisches Schmelzen schließen. Die Zeitskala des thermischen Schmelzens wird maßgeblich durch den Austausch von Energie zwischen dem angeregten elektronischen System und den Gitterphononen bestimmt, diese findet typischerweise auf einer ps-Zeitskala statt. Würde das gemessene, reduzierte Beugungsvermögen durch den *Debye-Waller*-Faktor erklärt werden, so liegt die benötigte Temperatur um einen Faktor zwei über der Temperatur, die aus der eingestrahlten Laserenergie abgeschätzt wird.

Eine detaillierte Auswertung der Meßdaten ergibt bei einer Anregung mit 0,2 J/cm^2 , daß der Film auf der kurzen Zeitskala von 300 fs über eine Tiefe von *ca.* 40 nm geschmolzen ist. Die daraus resultierende nötige Schmelzfrontgeschwindigkeit von *ca.* 10^5 m/s ist nicht vereinbar mit der maximal möglichen Geschwindigkeit, die durch die Schallgeschwindigkeit von einigen 1000 m/s gegeben ist. Dies läßt die Vermutung zu, daß es sich um einen homogenen Schmelzprozeß handelt.

Nach dem nichtthermischen Schmelzen breitet sich eine Schmelzfront mit der Geschwindigkeit von *ca.* 850 m/s aus. Aus den Winkelverschiebungen der Röntgen-

beugungskurven lassen sich Temperaturen und Drücke in der flüssigen Ge-Schicht, in der darunterliegenden festen, angeregten Ge-Schicht und in dem Si-Substrat abschätzen. Teile dieser Arbeit sind in den Referenzen [7, 14, 78, 41] veröffentlicht worden.

In einem weiteren Experiment ist durch einen kurzen Laserimpuls die A1g-Phononenmode in einer dünnen, einkristallinen Wismutschicht angeregt worden. Da die Gitterschwingung zur Modulation der Beugungseffizienz der Bi-Schicht führt, kann mit zeitaufgelöster Röntgenbeugung die zeitliche Auslenkung verfolgt und mit dem theoretisch berechneten Strukturfaktor als Funktion der Phononenamplitude verglichen werden. Daraus folgten Phononenamplituden – in Abhängigkeit der Anregefluenz – bis zu *ca.* 10% des nächsten Nachbarabstandes. Die aus den Meßdaten gewonnene Phononenfrequenz von 2,65 THz zeigt eine deutliche Rotverschiebung im Vergleich zur Phononenfrequenz im nicht angeregten Wismut von 2,92 THz. Ebenfalls gaben die Winkelverschiebungen der Beugungskurven wieder Aufschluß über den Druck und die Temperatur in dem angeregten Film. Teile dieser Arbeit sind in [77] publiziert worden.

1.4 Erzeugung kurzer Röntgenimpulse

1.4.1 Laser-Plasma-Röntgenquellen

Wenn ein Laserimpuls auf eine Metalloberfläche fokussiert wird, absorbiert das Target die Laserenergie innerhalb einer Skintiefe von *ca.* 10 nm [8]. Überschreitet die Energiedichte im Fokus die Ionisationsschwelle, so entsteht ein Plasma, von dem aus ein inkohärenter „Röntgenblitz“ in den vor dem Target liegenden Halbraum emittiert wird. Typische Werte für die Ionisationsschwelle von Festkörpern liegen bei $10^{12} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [40, 26].

Abb. 1 zeigt ein hochaufgelöstes Röntgenspektrum eines lasererzeugten Plasmas auf einer Aluminiumoberfläche (Kernladungszahl $Z = 13$). Die Aufnahme entstand vor einigen Jahren an einem Farbstofflasersystem am Institut für Laser- und Plasma-physik der Universität Essen. Die Wellenlänge des Lasers betrug 620 nm, die Impulsdauer 80 fs. Der Laser stellte moderate 3 mJ an Energie zur Verfügung. Zur Auflösung der einzelnen spektralen Komponenten wurde ein *von-Hamos*-Spektrometer eingesetzt [96].

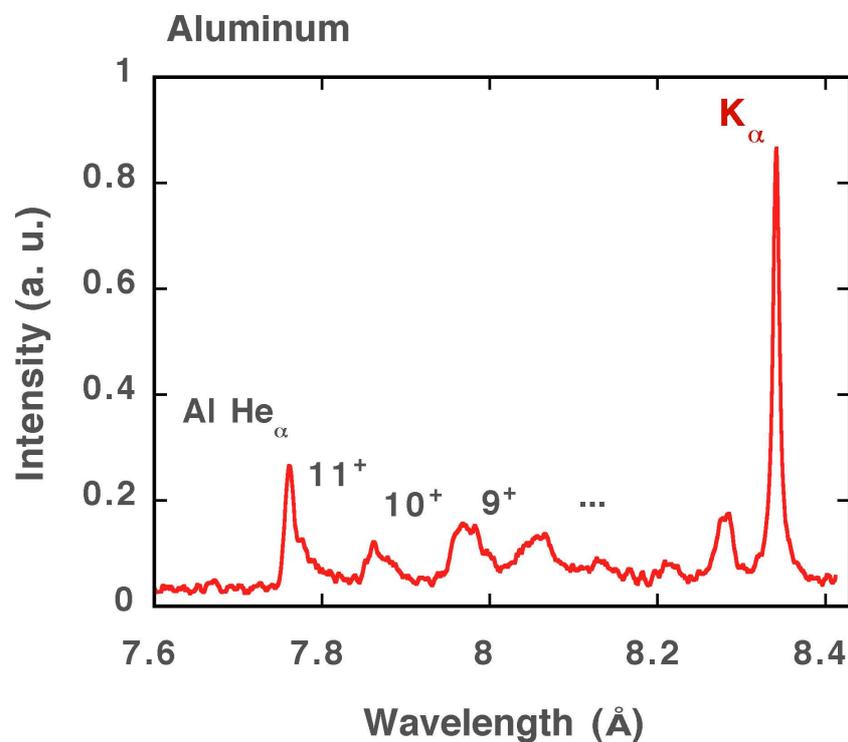


Abb. 1: Hochaufgelöstes Röntgenspektrum, aufgenommen mit einem *von-Hamos*-Spektrometer. Als Targetmaterial wurde eine Al-Oberfläche verwendet. Die Laserenergie betrug *ca.* 3 mJ und die Impulsdauer 80 fs bei einer Wellenlänge von 620 nm.

Es ist eine Anzahl von Linien zu erkennen, welche identifiziert werden konnten als Linienstrahlung von hochangeregten Ionen aus dem Plasma. Die im Spektrum dominierende Al-K α -Linie kann nur durch nichtangeregte Atome außerhalb der Plasmaschicht emittiert werden. Die Al-K α -Photonen besitzen eine Energie von 1,49 keV, was einer Wellenlänge von 8,34 Å entspricht [94].

Die Impulsdauer der Plasmastrahlung hängt von der Lebensdauer des Plasmas ab. Die Lebensdauer wird bestimmt durch das Ansteigen der Elektronentemperatur im Plasma, welche im Zeitbereich der Laserimpulsdauer liegt, und durch die Abkühlzeit, d. h. wie schnell die Elektronen ihre Energie an die Umgebung abgeben können. Der Energieverlust wird durch die Wärmeleitung und durch die Expansion des Plasmas in die Umgebung bestimmt. Die Abkühlung ist ein langsamer Prozeß auf einer Zeitskala im ps-Bereich. Beeinflußt wird die Zeitdauer durch die Stärke des Dichte- und Temperaturgradienten. Diese Strahlungsart ist somit für Röntgenexperimente mit fs-Zeitauflösung **nicht** geeignet [1].

Die K α -Strahlung entsteht nicht im heißen Plasma, sondern entsteht hinter der Plasmaschicht und wird durch Elektronen erzeugt, welche durch das Laserfeld beschleunigt werden. Übersteigt die Laserintensität die Schwelle von 10^{15} W/cm², werden im Plasma Elektronentemperaturen von einigen 100 eV erreicht. Die Energiedissipation der Laserstrahlung durch Elektron-Ion-Stöße kann vernachlässigt werden, da die Stoßfrequenz mit der Elektronentemperatur abnimmt [26]. In Experimenten wird trotzdem ein Absorptionsgrad von über 50 % gemessen, die damit verbundene „stoßfreie Absorption“ wird in verschiedenen alternativen Theorien zu erklären versucht. Dabei unterscheiden sich die Theorien durch verschiedene experimentelle Ausgangssituationen. Die wichtigsten Modelle sind:

- Resonanzabsorption: Dieses Modell ist gültig für p-polarisierte Laserstrahlung und Plasmaskalenlängen von $L \geq \lambda_{\text{Laser}}$. Die Plasmaskalenlänge L ist über die Plasmadichte n_e definiert: $L = n_e / (\nabla n_e)$ [91, 4].
- Vakuumheizen oder *Brunel*-Absorption: Dieses Modell ist gültig für steile Dichtegradienten [9, 91, 4], im Gegensatz zur Resonanzabsorption.

Die Modelle haben die Gemeinsamkeit, daß während der Wechselwirkung des Lasers mit der Plasmaoberfläche hochenergetische Elektronen entstehen. Diese Elektronen werden in das Plasma hineinbeschleunigt und können dort in Analogie zu einer konventionellen Röntgenröhre Linienstrahlung erzeugen. Diese Strahlung existiert nur für die Zeitdauer des Laserimpulses und einer zeitlichen Verlängerung, welche durch die Flugdauer der schnellen Elektronen durch das Targetmaterial gegeben ist.

Ein weiterer Vorteil ist die räumliche Auflösung der Röntgenquelle, welche von der Größe der emittierenden Oberfläche abhängt. Die emittierende Fläche wird in der Größenordnung des Laserfokusses von *ca.* 10 μm liegen. Außerdem ist der Röntgenimpuls exakt synchronisiert mit photoinduzierten Vorgängen, welche durch denselben Laserstrahl ausgelöst werden können.

Das Interesse an diesen kurzen $\text{K}\alpha$ -Röntgenimpulsen hat dazu geführt, daß die unterschiedlichsten Targetmaterialien verwendet wurden. So wurden beispielsweise in Arbeiten der Laser-Gruppe am Laboratoire d'Optique Appliquée⁷ die Materialien Kalzium, Aluminium und Eisen untersucht [4, 60, 62]. Die gemessenen Quelldurchmesser betragen um die 10 μm ; bei einer Laserwiederholrate von 10 Hz wurden pro Impuls $3 \cdot 10^8$ $\text{K}\alpha$ -Photonen erzeugt.

In der Arbeit von *Rischel et al.* [56] wird erstmals von einem zeitaufgelösten Röntgenbeugungsexperiment mit einer fs-Plasmaquelle berichtet. Als Röntgenlinie wurde $\text{Si-K}\alpha$ verwendet. Das Target wurde mit einem Laserimpuls von 130 fs Impulsdauer und 15,5 mJ ionisiert. Durch einen zweiten zeitverzögerten Laserimpuls wurde ein *Langmuir-Blodgett*-Film angeregt. Vergleicht man die Röntgenbeugungskurven mit und ohne Anregung, so sind bereits nach 500 fs deutliche Änderungen in der Struktur der Kurven zu beobachten.

Die Arbeitsgruppe von *Wilson et al.* an der Universität Kalifornien, San Diego hat eine Kupferröntgenquelle entwickelt. Ein Laserimpuls von 30 fs Impulsdauer und mit einer Energie von 75 mJ wird auf einen umlaufenden Kupferdraht fokussiert. Dies hat gegenüber den sonst üblichen Planartargetkonzepten den Vorteil, daß Meßzeiten von mehreren Stunden realisierbar werden. Die Quelle emittiert $4 \cdot 10^9$ $\text{Cu-K}\alpha$ Photonen pro Impuls und sr. Diese Arbeitsgruppe hat zeitaufgelöste Messungen mit einer Zeitauflösung von einigen 10 ps bei verschiedenen Fragestellungen realisiert [13, 59, 73].

⁷Laboratoire d'Optique Appliquée, LOA, Palaiseau, Frankreich

1.4.2 Alternative Methoden

Zur Zeit werden verschiedene Methoden diskutiert, um aus langen Synchrotronröntgenimpulsen kurze Stücke „herauszuschneiden“. Bei einer Technik wird der lange Impuls an zwei Kristallen nacheinander gebeugt. Währenddessen werden durch kurze Laserimpulse in den Kristallen zeitlich versetzte, reversible Phasenänderungen ausgelöst, welche die Effizienz der Röntgenbeugung beeinflusst [37]. Eine ähnliche Methode ist die Modulation des langen Impulses durch Beugung an kohärenten, akustischen Phononen [10]. Die Phononen führen zu einer zeitlichen Modulation des Röntgenimpulses. Es wurde bereits gezeigt, daß Phononen in InSb durch einen kurzen Laserimpuls eingeschaltet werden können [42].

Andere Ideen basieren auf der direkten Wechselwirkung von relativistischen Elektronenpaketen mit kurzen Laserimpulsen. Im wesentlichen wirkt dabei das Laserfeld wie ein periodisch wechselndes Magnetfeld (Wiggler). Die Wigglerperiode entspricht dabei der Laserwellenlänge. Von *Schoenlein et al.* wurden durch *Thomsonstreuung* harte Röntgenimpulse erzeugt [39, 66, 68]. Dazu wurde ein Laserimpuls mit einer zeitlichen Dauer von 100 fs und einer Energie von 100 mJ unter 90° in einen relativistischen Elektronenstrahl (50 MeV) fokussiert. Es entstand ein 300 fs langer Röntgenimpuls bei einer Wellenlänge von 30 keV (0,4 Å). Der Photonenfluß betrug $5 \cdot 10^4$ Photonen. Die Quelle kann bei einer Wiederholrate von 2 Hz arbeiten, die Abstrahlrichtung ist kollimiert in einen Winkel von 7,9 mrad (Milliradian, $1 \text{ mrad} = 10^{-3} \text{ rad}$). Ein Vorteil der Quelle ist, daß die Röntgenwellenlänge durch die Elektronenenergie direkt einstellbar ist.

Ein weiterer Vorschlag aus dieser Arbeitsgruppe besteht darin, einem relativistischen Elektronenpaket (Bunchlänge 30 ps, Elektronenenergie 1,5 GeV, (Gigaelektronenvolt, $1 \text{ GeV} = 10^9 \text{ eV}$)) eine Zeitstruktur auf einer fs-Zeitskala aufzuprägen [66, 67, 102]. Das Elektronenpaket bewegt sich dabei durch einen Wiggler und wechselwirkt mit einem kurzen Laserimpuls (bisherige Versuche mit 100 fs, 400 µJ), der kollinear zum Elektronenpaket in den Wiggler eingeschossen wird. Anschaulich besteht die Wechselwirkung durch die Beschleunigung bzw. Verzögerung der Elektronen je nach Phasenlage des elektrischen Feldes am Eingang des Wigglers. Damit die Wechselwirkung stattfinden kann, müssen spezielle Bedingungen erfüllt sein. Unter der richtigen Voraussetzung wird eine Energiemodulation der Elektronen auf einem Teilstück des langen Elektronenpakets bewirkt. Das Teilstück besitzt eine Länge in der Größenordnung des Laserimpulses. Die energiemodulierten Elektronen können durch eine dispersive Anordnung von Magneten von den restlichen Elektronen räumlich getrennt werden. Die kurzen Elektronenimpulse werden nochmals abgelenkt und

erzeugen dabei Synchrotronstrahlung. Die Quelle arbeitet bei einer Wiederholrate mit bis zu 100 kHz. Die Eigenschaften der Quelle sind abhängig von den verwendeten Eigenschaften des Wignlers, des Lasers und der Ablenkmagnete. So ergeben Berechnungen mit einem Laser von 25 fs Impulsdauer, 100 μ J Energie bei einer Wiederholrate von 20 kHz einen Röntgenfluß bei einer Photonenenergie von 2 keV von 10^5 Photonen/s in 0,1 % der Bandbreite in einem Abstrahlwinkel von 1 mrad. Die beschriebene Methode ist unter dem Namen „Electron Slicing“ bekannt geworden [66, 67].

Alle Bemühungen, effiziente Röntgenquellen bereit zu stellen, gipfeln in den Ausgaben für die Entwicklung des Freien-Elektronen-Lasers (FEL) [17]. Da für einen Röntgenlaser keine Spiegel existieren, die eine Rückkopplung des Röntgenlichts in den Laser bewirken, wird der Freie-Elektronen-Laser ein „single-pass“ System sein. Die Verstärkung im FEL basiert auf dem SASE (engl.: self amplification of spontaneous emission) Prinzip. Ähnlich wie beim „Electron Slicing“ wird ein relativistisches, langes Elektronenpaket in einen Undulator geschickt. Das einzelne Elektron wechselwirkt mit der anfänglich spontanen Emission anderer Elektronen. Diese Wechselwirkung bewirkt wiederum ein Beschleunigen oder Verzögern des Elektrons. Ist der Undulator lang genug, werden aus den anfänglich räumlich statistisch verteilten Elektronen kleine Pakete in äquidistanten Abständen geformt. Unter den richtigen Voraussetzungen entspricht dieser Abstand der Wellenlänge, die die Elektronenpakete emittieren. Die Wellenzüge superponieren bei jeder Undulatorperiode in Phase, was zu einem intensiven Röntgenblitz führt. Durch den relativistischen *Dopplereffekt* ist zudem die Strahlrichtung in Vorwärtsrichtung stark gebündelt. In der letzten Ausbauphase soll beispielsweise der FEL am TESLA-Projekt Photonenenergien zwischen 200 eV und 12,4 keV erzeugen können [55]. Der Röntgenfluß wird dabei $10^{12} - 10^{14}$ Photonen pro Impuls betragen, die Pulsdauer beträgt um die 100 fs. Die geplante Wiederholrate liegt bei 510 Hz. Theoretische Berechnungen zeigen eine Divergenz des XFEL-Strahls von *ca.* 1 μ rad.

Um diese völlig unterschiedlichen Quellen vergleichen zu können, wurde die Brillanz b eingeführt [43]. Diese ist definiert durch

$$b = \frac{dn_{0,1\%}(x, y, \theta, \psi, h\nu)}{dxdy d\Omega dt}. \quad (1)$$

Durch $dn_{0,1\%}$ werden die emittierten Photonen innerhalb der Bandbreite von 0,1 %, zentriert um die Photonenenergie $h\nu$ angegeben. Diese Anzahl wird normiert auf die Fläche der Quelle $dxdy$ im Punkt (x, y) und normiert auf den Raumwinkel

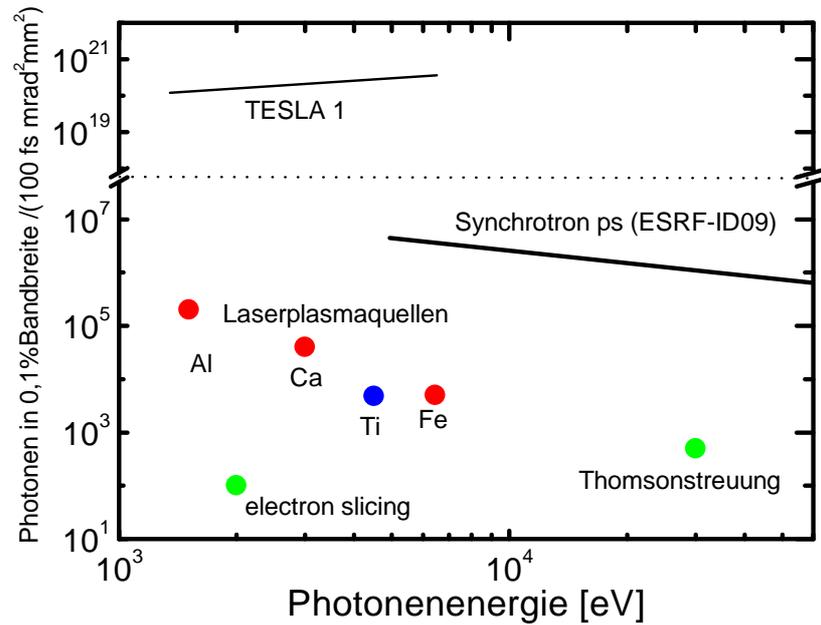


Abb. 2: Brillanz unterschiedlicher Quellen.

$d\Omega$, welcher durch die Winkel (θ, ψ) aufgespannt wird, sowie auf das Zeitintervall dt . Die Definition der Brillanz ist jedoch mit Vorsicht zu behandeln. Es werden Quellen bevorzugt, welche eine möglichst kurzen Röntgenimpuls abstrahlen. Werden allerdings schnelle Detektoren verwendet, welche den zu beobachtenden Prozeß in einem Durchgang zeitlich auflösen, wird ein langer Röntgenimpuls gebraucht. Ebenfalls werden Quellen mit kleiner Abstrahlfläche und möglichst kleinem Abstrahlwinkel favorisiert, dies bedeutet eine hohe räumliche Auflösung. Es hat jedoch keinen Sinn, Experimente mit höherer Auflösung als die der Detektoren durchzuführen. Abb. 2 zeigt die Brillanz für unterschiedliche Quellen. Die roten Datenpunkte sind mit der Laserplasmaquelle am LOA gemessen worden. Es wurde nur die $K\alpha$ -Strahlung der unterschiedlichen Materialien berücksichtigt. Der blaue Datenpunkt wurde aus den Daten der Titan- $K\alpha$ -Röntgenquelle am Institut für Laser- und Plasmaphysik der Universität Essen errechnet. Die grünen Datenpunkte sind die Werte für Thomsonstreuung und die Methode des Electron Slicing. Die verschiedenen genannten Institute benutzen alle Titan-Saphir-Lasersysteme mit unterschiedlichen Parametern (Impulslänge, maximale Energie), daher ist ein direkter Vergleich sehr schwierig. Hinzu kommt, daß die Laserplasmaquellen durch verschiedene Prozeduren (Defokussierung, Vorimpulse), welche später beschrieben werden, optimiert werden können. Die Brillanzen der Laserplasmaquellen liegen trotzdem alle im Bereich von zwei Größenordnungen. Unter der Voraussetzung, daß die drei Datenpunkte am LOA unter ähnlichen Laserbedingungen entstanden sind, ist die Tendenz zu

erkennen, daß mit höherer Kernladungszahl die Röntgenemission abnimmt. Theoretische Berechnungen unterstützen diese Tendenz [53]. In [53] werden Rechnungen durchgeführt, die zeigen, daß die optimale Laserintensität I_{opt} für die Erzeugung von $K\alpha$ -Photonen mit der Kernladungszahl Z wie $I_{opt} = 7 \cdot 10^9 Z^{4,4} \text{ W/cm}^2$ skaliert. In einem weiteren Schritt wird auch gezeigt, daß trotz optimaler Intensität der Röntgenfluß mit der Kernladungszahl abnimmt. Die theoretischen Berechnungen werden in zwei Schritten durchgeführt. Der erste Schritt simuliert die Laserplasmawechselwirkung und ergibt die Elektronengeschwindigkeitsverteilung als Funktion der Zeit. Diese Berechnung wird mit einem PIC-Programm (engl.: particle in cell simulation) durchgeführt. Im zweiten Schritt wird die Geschwindigkeitsverteilung dazu benutzt, um mit einer *Monte-Carlo*-Simulation die Anzahl der Röntgenphotonen als Funktion der Zeit zu berechnen. Das Ergebnis der Berechnungen ist somit nicht nur die Gesamtzahl der Photonen pro Laserimpuls, sondern auch der zeitliche Verlauf ihrer Entstehung. Ein weiteres Ergebnis der Simulationen ist, daß subps-Röntgenimpulse nur bei Folientargets mit Stärken von etwa $2 \mu\text{m}$ entstehen können. Folientargets haben den Vorteil, daß die Elektronenreichweite im Target beschränkt ist. Nach dem Hindurchtreten der schnellen Elektronen durch die Folie entsteht keine weitere Röntgenstrahlung, und die Emission ist somit zeitlich eingeschränkt. Bei den bisher durchgeführten Röntgenbeugungsexperimenten wurde die Strahlung aber immer mit Hilfe von Festkörpertargets erzeugt. Nahezu alle Gruppen konnten subps-Zeitaufösungen bei ihren Experimenten nachweisen. Arbeiten mit einer Si-Quelle haben die Gruppen [23, 24, 61] durchgeführt. Die hier verwendete Titanquelle führte zu den Veröffentlichungen [14, 78]. Mit Hilfe der *Thomsonstreuung* wurden zeitaufgelöste Experimente an InSb durchgeführt [16]. Resultate von Beugungsexperimenten mit einer Kupferquelle mit einer Zeitauflösung von einigen ps wurden in [13, 73] veröffentlicht.

2 Röntgenquelle der Universität Essen

2.1 Aufbau und Konstruktion der Röntgenquelle

Die ersten Schritte zur Entwicklung einer fs-Röntgenquelle am Institut für Laser- und Plasmaphysik an der Universität Essen wurden vom Autor durchgeführt [6]. Da Ti-K α eine Wellenlänge von 4,5 keV bzw. 2,75 Å besitzt, wurde es als Targetmaterial verwendet. Mit dieser Wellenlänge ist es nach der *Bragg*gleichung

$$2 g_{hkl} \sin \theta_B = \lambda \quad (2)$$

noch möglich, *Bragg*beugungen an Halbleitern wie Si, Ge, GaAs und auch an Bi durchzuführen. In (2) ist g_{hkl} der Abstand der beugenden Ebenen, das Tupel (hkl) die *Miller*'schen Indizes der Netzebenenschar, θ_B der *Bragg*winkel und λ die Wellenlänge der Röntgenstrahlung. Geht man zu kleineren Gitterabständen über, so muß eine kürzere Wellenlänge gewählt werden, damit die aus der *Bragg*gleichung abgeleitete Bedingung $\lambda \leq 2 g_{hkl}$ erfüllt ist.

Eine systematische Untersuchung anderer Materialien mit höherer Kernladungszahl und somit mit kürzerer Wellenlänge wurde an der entwickelten Quelle noch nicht durchgeführt⁸.

Die Titanoberfläche wird im Fokus des Lasers bei jedem Impuls irreversibel zerstört und muß daher kontinuierlich durch eine intakte Oberfläche ersetzt werden. Bei dem „planaren Targetkonzept“ wird eine Metallschicht auf einem XY-Verschieber durch den Fokus bewegt. Die realisierbare Meßzeit ist abhängig von der Größe der verwendeten Verschieber und von der Wiederholrate des Lasers. Steht eine Oberfläche von 5 × 5 cm zur Verfügung, ergeben sich Meßzeiten von wenigen Stunden bei einer Wiederholrate des Lasers von 10 Hz [6]. Ein weiterer Nachteil ergibt sich dadurch, daß die Mechanik der XY-Verschieber sehr groß ist und dadurch nicht alle *Bragg*geometrien im Experiment realisierbar sind. Um Meßzeiten von mehreren Stunden bis zu einigen Tagen zu ermöglichen, ist im Rahmen dieser Arbeit ein „Drahttarget“ entwickelt und in der universitätseigenen Werkstatt angefertigt worden. Bei diesem Konzept wird ein Metalldraht kontinuierlich durch den Fokus des Lasers bewegt. Die Meßzeit ist abhängig von der Länge des Drahtes und beträgt bei 500 m typischerweise eine Woche. Die Idee, einen Draht als Target zu verwenden, wurde [59] entnommen.

⁸Ausnahme ist hier das Material Kupfer [6, 32].

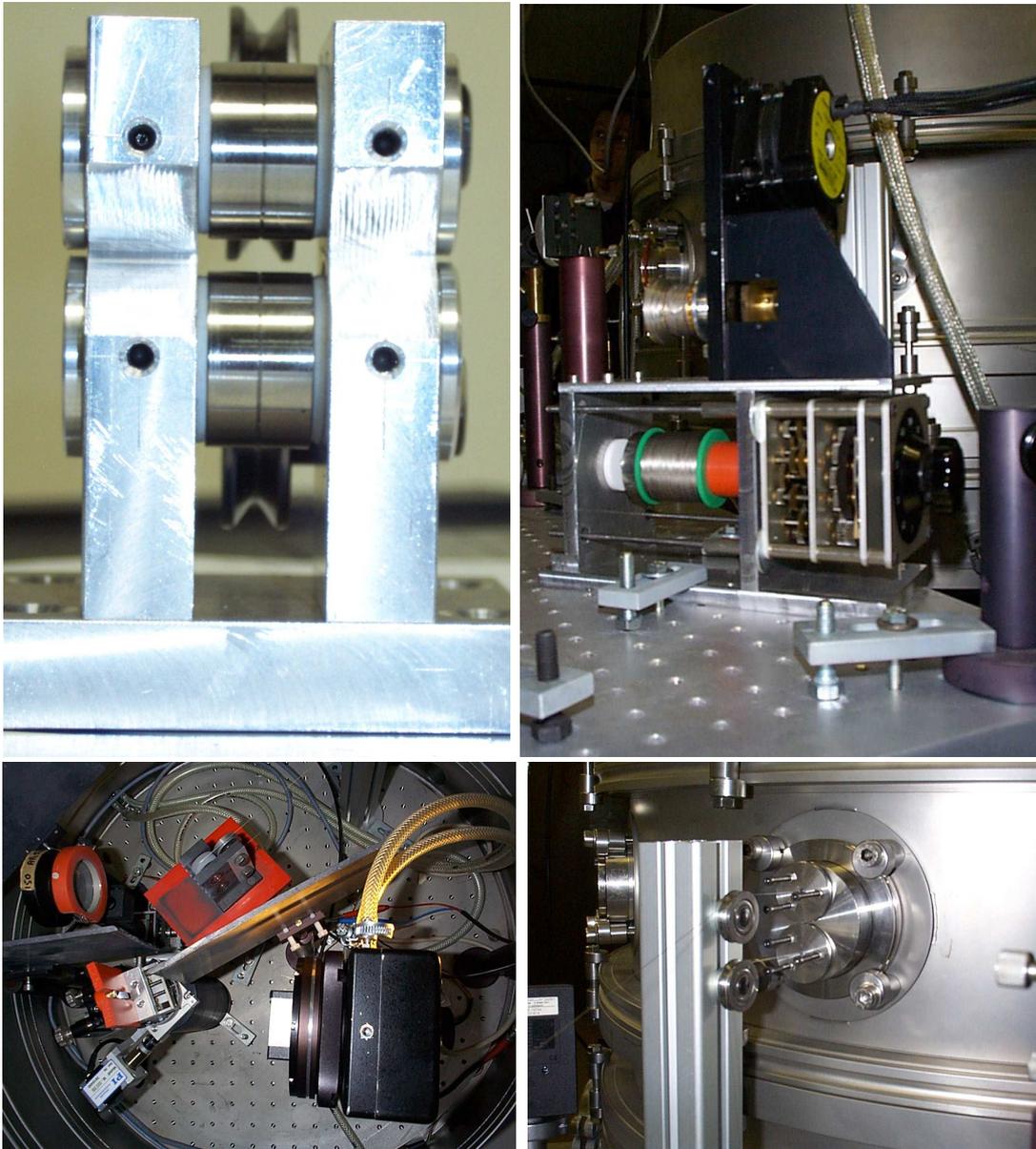


Abb. 3: Aufbau und Konstruktion der Röntgenquelle.

Das obere linke Bild in *Abb. 3* zeigt eine bereits verbesserte Version des Drahttargets. Der Draht wird über zwei konische Rollen geführt, jede Rolle ist durch vier Kugellager stabilisiert. Die Kugellager werden durch Schutzkappen vor Staub geschützt. Dies hat sich als notwendig herausgestellt, da bei der Laserwechselwirkung feiner Titanstaub (ablatiertes Material, engl.: debris) erzeugt wird. Die erzielte Positionsgenauigkeit des Drahtes im Fokus wurde mit Hilfe eines Mikroskopobjektivs ausgemessen. Der im Durchmesser $250\ \mu\text{m}$ starke Titandraht wird mit einer Präzision von $\pm 5\ \mu\text{m}$ durch den Fokus geführt.

Im linken unteren Bild wird die röntgenemittierende Fläche durch den Röntgenspiegel im Verhältnis 1:1 auf die Kamera abgebildet. Der abbildende Röntgenspiegel ist auf einem Rotationstisch montiert und in einer optischen Spiegelhalterung befestigt. Das Dreieck zwischen Drahttarget, Röntgenspiegel und Detektor entspricht einem $2f$ -Aufbau, wobei f die Brennweite des Röntgenspiegels ist. Dies bedeutet, daß der Quellpunkt 1:1 in die Detektorebene abgebildet wird. Die Physik des Röntgenspiegels wird in dem folgenden Kapitel 2.2 *Torisch gebogener Röntgenspiegel* näher erläutert. Außerdem ist die Quarzlinse mit der Brennweite von 150 mm zur Fokussierung der Laserstrahlung zu sehen. Diese wird durch eine 8 μm dünne Mylarfolie vor dem ablatierten Titanstaub geschützt.

Der Titandraht wird von außen in die Vakuumkammer eingefädelt. Rechts unten ist die Drahtdurchführung in die Vakuumkammer zu erkennen. Der Draht verläuft durch kleine Bohrungen in Teflonbuchsen. Die Bohrungen haben einen Durchmesser von 300 μm , die Teflonbuchsen werden durch Platten zusammengedrückt und dichten den Zwischenraum ab. Die Experimente finden alle im Grobvakuum bei 10^{-3} mbar statt, da zum einen die Reichweite der $K\alpha$ -Strahlung in Luft nur wenige cm beträgt [38], zum anderen weil der fokussierte Laserimpuls in Luft einen Durchbruch erzeugen würde. Das Bild rechts oben zeigt die Bremse und den Motor des Drahttargets. Mit der Bremse wird die Spannung des Drahts stufenweise fein dosiert. Ist der Draht zu schwach gebremst, ist die Position des Drahts im Fokus nicht stabil.

Da bei den späteren Beugungsexperimenten mehrere Winkel sehr exakt eingestellt werden mußten, ist die Experimentierplattform innerhalb der Vakuumkammer vollständig von dieser entkoppelt worden. Die Plattform ist direkt mit dem optischen Tisch verbunden. Wird die Kammer abgepumpt und verformt sich dabei, kann sich die Plattform nicht mitbewegen.

Die Experimentatoren werden vor der Röntgenstrahlung durch eine geschlossene Bleihaube, welche über die Mimik gestülpt wird, geschützt. Die Bleihaube besitzt jeweils für den Laserimpuls und als Ausgang für die Röntgenstrahlung ein geeignet dimensioniertes Loch. Zur weiteren Abschirmung werden Bleirohre an den Ausgängen der Bleikammer verwendet. Über und unter den Röhren sitzen starke Permanentmagnete, welche schnelle Elektronen am Austreten aus der Bleikammer hindern. Diese Maßnahmen reduzieren sekundäre Strahlung, welche sich beim Experiment als störender Untergrund bemerkbar machen würde. Die Experimentatoren tragen zur Dosisüberwachung Röntgenfilme, auch ein tragbares Dosimeter zur Online-Überwachung wurde angeschafft.

2.2 Torisch gebogener Röntgenspiegel

Zur Fokussierung der inkohärenten Röntgenstrahlung – aus dem Halbraum vor dem Target – wird ein torisch gebogener Si-Spiegel verwendet. Diese Art von Spiegel wird von der Arbeitsgruppe um *Prof. Förster* an der Universität Jena gefertigt [46, 92, 93]. Gebogene Kristalle haben den Vorteil gegenüber anderen Methoden der Fokussierung von keV-Röntgenstrahlung (z. B. Zonenplatten oder Geräte, die unter streifendem Einfall funktionieren), daß sie große Raumwinkelbereiche abdecken können und eine hohe Effizienz besitzen. In diesem Kapitel sollen die Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Spiegels vorgestellt werden. Im *Kapitel 4 Zusammenfassung und Ausblick* wird dies nocheinmal kurz aufgegriffen, da es Bemühungen gibt, einen effizienteren und für das Einsatzgebiet flexibleren Spiegel herzustellen.

Die Oberfläche des gebogenen Si-Wafers ist in (311)-Richtung orientiert⁹. Damit der Wafer gebogen und in der entsprechend gewünschten Form fixiert werden kann, wird dieser zuvor auf 70 μm gedünnt. Der Spiegel besitzt eine benutzbare Höhe von 16 mm und eine Ausdehnung in der horizontalen Dispersionsebene von 5 mm. Die Funktionsweise des Röntgenspiegels beruht darauf, durch Biegen der Kristallebenen die *Braggbedingung* (2) auf einer möglichst großen Fläche zu erfüllen und gleichzeitig die Strahlung zu fokussieren. Bei dem hier verwendeten Si(311)-Spiegel sind die Kristallebenen parallel zur torisch gebogenen Oberfläche. Die torische Form wird beschrieben durch einen horizontalen Krümmungsradius R_h und einen vertikalen Krümmungsradius R_v .

Im folgenden wollen wir uns auf die Verwendung des Röntgenspiegels in der Geometrie für eine 1:1-Abbildung beschränken. Es sind auch Geometrien zur Vergrößerung und Verkleinerung möglich [46]. Um eine 1:1-Abbildung der Oberfläche der Quelle zu erhalten, wird die Quelle, der Detektor und der Kristall auf dem *Rowlandkreis* angeordnet. Der Durchmesser des *Rowlandkreises* entspricht dem horizontalen Krümmungsradius, wie es in *Abb. 4* dargestellt ist. Wie in der Optik beim „2*f*-Aufbau“ müssen die Abstände Quelle-Spiegel und Spiegel-Detektor gerade $2f$ betragen, wobei f der Brennweite entspricht. Jeder Krümmungsradius ist mit je einer Brennweite verknüpft, d. h. für die vertikale Richtung ergibt sich eine Brennweite f_v und für die horizontale Richtung eine Brennweite f_h .

⁹Ein Dreitupel stellt im weiteren Text immer die *Millerschen* Indizes dar.

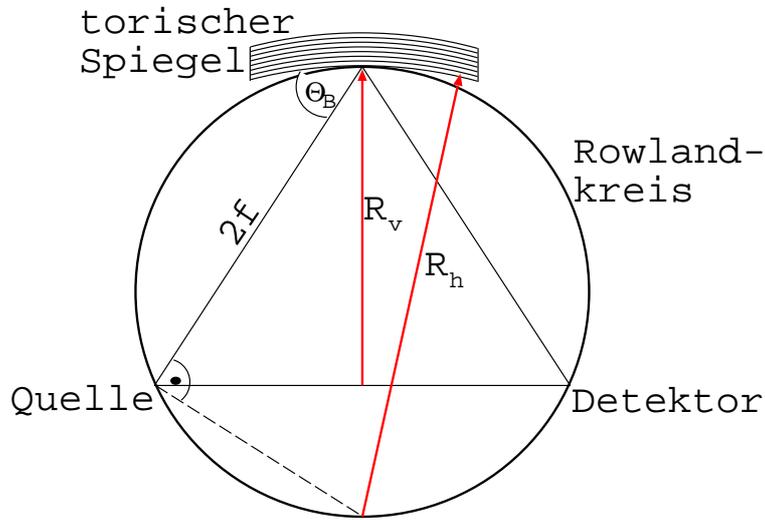


Abb. 4: Aufbau zur 1:1-Abbildung der Quelloberfläche mit einem Röntgenspiegel. Quelle, Röntgenspiegel und CCD-Kamera sind auf dem *Rowlandkreis* angeordnet.

Die Abhängigkeit der Brennweiten von den Krümmungsradien und dem *Bragg*winkel θ_B des verwendeten Materials ergibt sich aus *Abb. 4*:

$$f_h = \frac{R_h}{2} \sin \theta_B \quad f_v = \frac{R_v}{2 \sin \theta_B} \quad (3)$$

Werden die Krümmungsradien so angepaßt, daß die Foki zusammenfallen, ergibt sich eine Brennweite f und eine eindeutige Punkt-zu-Punkt Abbildung. Ist die Bedingung nicht erfüllt, erhält man einen horizontalen und vertikalen Fokus und in folgedessen liegen die Abbildungsebenen räumlich getrennt hintereinander. Folgende Tabelle faßt die Eigenschaften des Spiegels zusammen:

Titan-K α_1	4,51 keV	[57]
θ_B	57,084°	[65, 64]
R_h	149,79 mm	[95]
R_v	106,39 mm	[95]
f_h	62,87 mm	
f_v	63,37 mm	

Tab. 1: Eigenschaften des Si (311)-Spiegels, hergestellt durch die Arbeitsgruppe von *Prof. Förster*, Universität Jena. In der rechten Spalte stehen die Referenzen aus denen die Konstanten entnommen wurden. Der *Bragg*winkel ist mit dem Softwareprogramm XOP (engl.: x-ray oriented programs) berechnet worden.

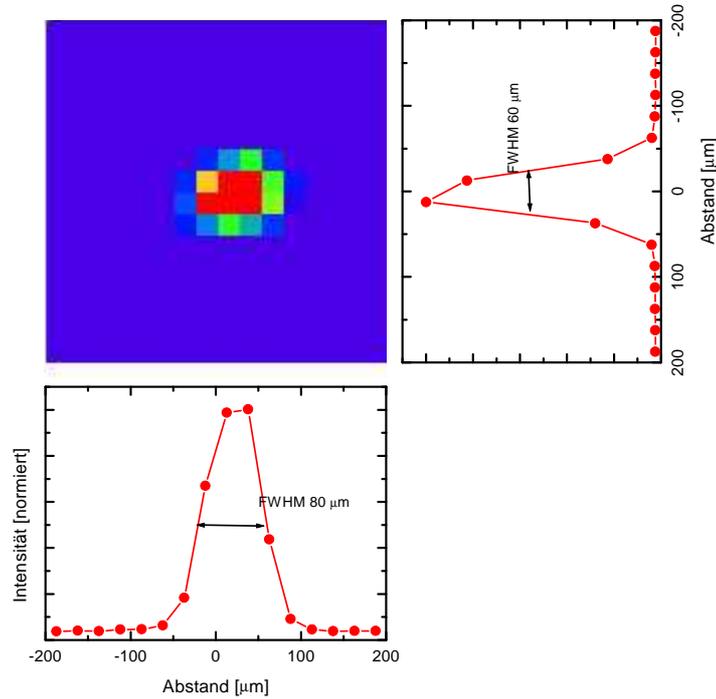


Abb. 5: Fokus des Si(311)-Spiegels aus Jena, aufgenommen mit Ti-K α -Strahlung.

Im Experiment wird die 1:1-Abbildung mit Hilfe einer Schablone justiert. Die Abstände können auf $\pm 0,5$ mm eingehalten werden. Daß die Foki nicht perfekt aufeinander abgestimmt sind (siehe *Tab. 1*), ist auf Grund der Justagegenauigkeit nicht weiter von Belang. Zur Justage des *Bragg*winkels wird vom Draht gestreutes Laserlicht verwendet. Der Röntgenspiegel wird so gedreht, daß das Licht zurück auf die Quelle fällt. Wird der Röntgenspiegel nun um $90^\circ - \theta_B$ gedreht, so steht der Spiegel im *Bragg*winkel. Der Winkel wird während des Betriebs der Quelle nachjustiert bis der Röntgenfluß maximal ist. Hierzu ist der Spiegel auf einem Drehteller mit Schrittmotor montiert. Die Auflösung des Motors beträgt 10^{-3}° . Die Röntgenkamera kann an die Stelle des optischen Fokus gestellt werden und ist in Richtung des Röntgenspiegels motorisiert. Mit der Freiheit, die Kamera durch den Fokus bewegen zu können, kann der kleinste Fokusdurchmesser gesucht werden. Damit keine Strahlenschäden in dem CCD-Chip der Kamera entstehen, wird zur Aufnahme des Fokus der Röntgenfluß erniedrigt (siehe: Strahlenschaden auf der Kamera im Anhang *5.1 Röntgendetektion*). *Abb. 5* zeigt den aufgenommenen Röntgenfokus, die Halbwertsbreite beträgt *ca.* $70 \mu\text{m}$ FWHM (engl.: full with half maximum). Durch die Motorisierung der Kamera ist es möglich zu bestimmen, wie sich die *Rayleigh*länge (Fokallänge) verhält. Der Fokusdurchmesser ist innerhalb von $\pm 0,5$ mm unempfindlich gegen Verschiebung.

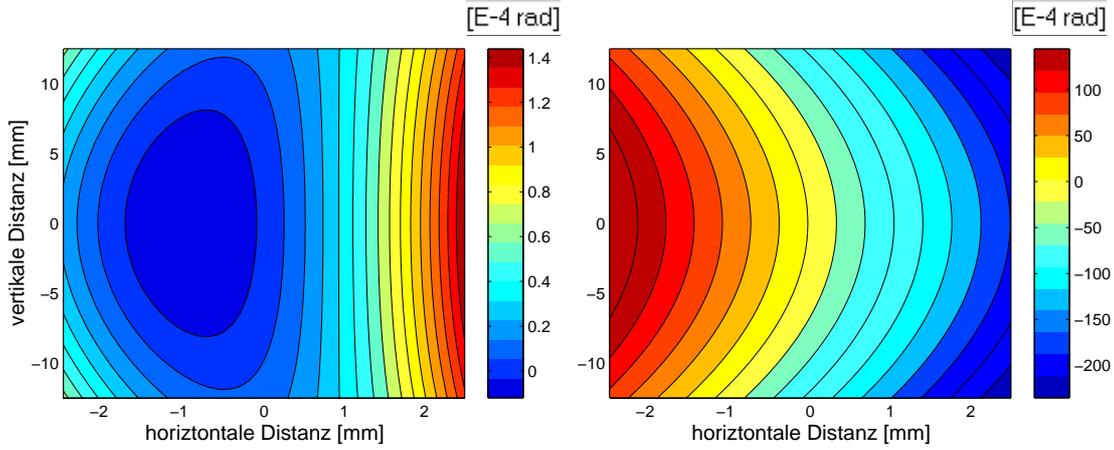


Abb. 6: Linke Seite: Variation des *Bragg*winkels über die torische Oberfläche des Si (311)-Spiegels – in der Geometrie für die 1:1-Abbildung.
Rechte Seite: Zum Vergleich ist der Torus durch eine Ebene ersetzt worden.

Um einen möglichst effizienten Spiegel zu erhalten, sollte die Variation des Winkels über die Oberfläche $\Delta\theta_{geo}$ kleiner sein als die natürliche Linienbreite der verwendeten Röntgenstrahlung ΔE . Ist die Variation des Winkels lokal stärker, ist die *Bragg*bedingung für andere Wellenlängen erfüllt. Sind diese aber im einfallenden Spektrum nicht vorhanden, so tragen diese Stellen nicht zur Beugung bei. Die natürliche Linienbreite kann mit Hilfe des totalen Differentials der *Bragg*gleichung (2) in Winkeleinheiten umgerechnet werden:

$$\left| \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \right| = \left| \frac{\Delta E}{E} \right| = \left| \frac{\Delta\theta}{\tan\theta_B} \right| \quad (4)$$

Die natürliche Linienbreite der Titan- $K\alpha$ -Strahlung liegt im Bereich von $|\Delta E/E| \approx 4 \cdot 10^{-4}$ [57], es ergibt sich eine Winkelvariation von $\Delta\theta_{Linie} = 6,2 \cdot 10^{-4}$ rad. Es wurde ein *Matlab*programm geschrieben, welches die Variation des *Bragg*winkels über die Oberfläche beliebig gekrümmter Kristallspiegel in verschiedenen Geometrien berechnen kann. Für die folgenden Berechnungen und Abschätzungen wird eine gemittelte Brennweite von $\bar{f} = 63,12$ mm verwendet. Für den Fall der 1:1-Abbildung mit dem Torus zeigt die Abb. 6 links die Abweichung vom *Bragg*winkel über der Oberfläche, rechts ist zum Vergleich der Torus durch eine Ebene ausgetauscht worden. Im Falle des Torus beträgt die maximale geometrische Abweichung $\Delta\theta_{geo} \approx 1,5 \cdot 10^{-4}$ rad, im Falle der Ebene beträgt die Abweichung zwei Größenordnungen mehr.

Aus dieser Betrachtung folgt, daß die geometrische Variation $\Delta\theta_{geo}$ um einen Faktor 4 kleiner als die natürliche Linienbreite $\Delta\theta_{Linie}$ ist. Die Bedingung, daß die Ände-

rung des *Bragg*winkels über der Oberfläche klein sein soll, ist somit erfüllt. Aus der Ti-K α -Linie schneidet der Kristall einen spektralen Bereich von $\Delta E \approx 0,5$ eV heraus.

Später wird gezeigt, daß der Röntgenspiegel als Spektrometer benutzt werden kann. In einem untersuchten Winkelbereich von 15 min ist nur die K α_1 - und K α_2 -Linie messbar. Wird die Kamera idealisierter Weise direkt hinter dem Röntgenspiegel aufgestellt, bedeuten belichtete Bereiche des Kamerabildes die Erfüllung der *Bragg*-bedingung (2) für die Ti-K α -Linie. Unbelichtete Flächen hingegen weisen auf Bereiche des Spiegels hin, welche fehlerhaft gekrümmt sind. Die Homogenität des Bildes spiegelt die Topografie des Spiegels wider. In *Abb. 7* ist die Topografie des Si (311) gemessen worden. Bemerkenswert ist die sehr homogene Intensitätsverteilung.

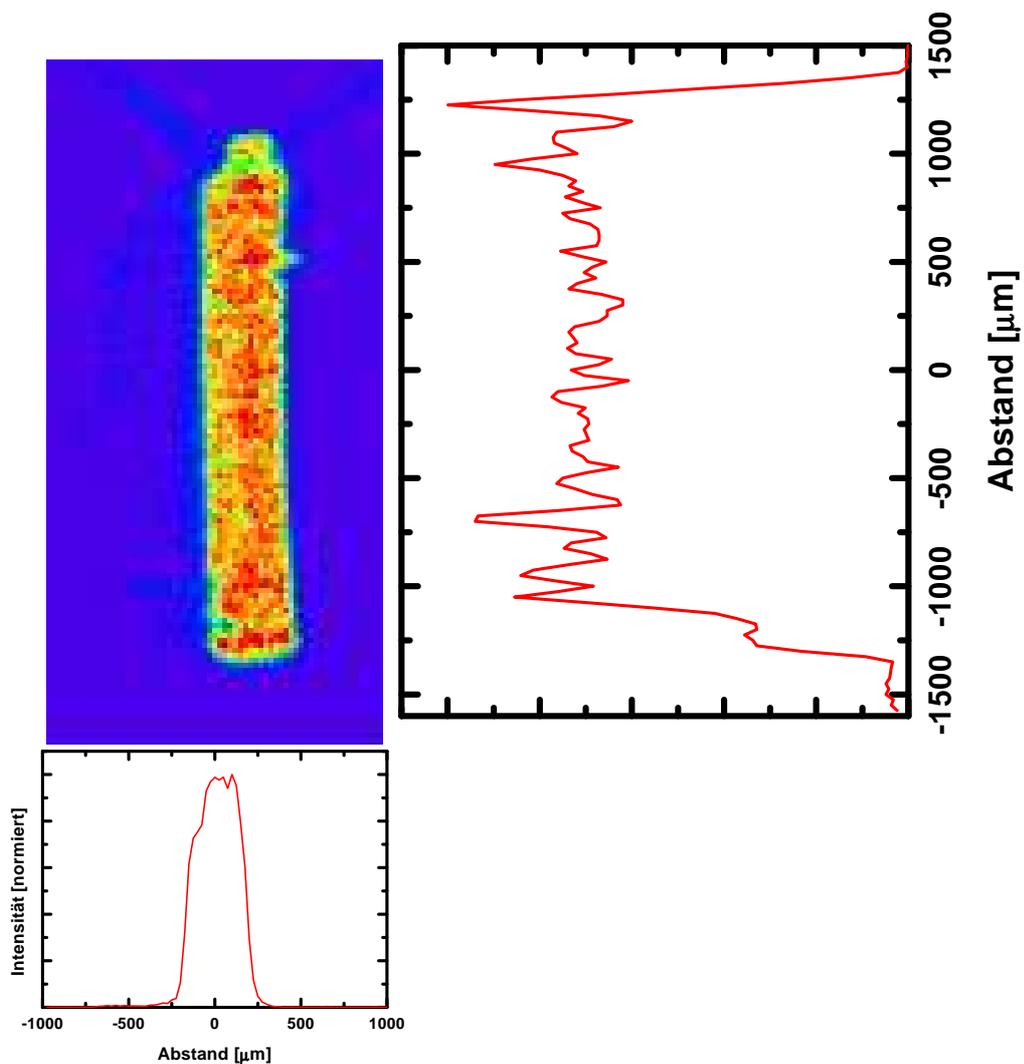


Abb. 7: Aufnahme der Topografie des Si (311)-Spiegels aus Jena.

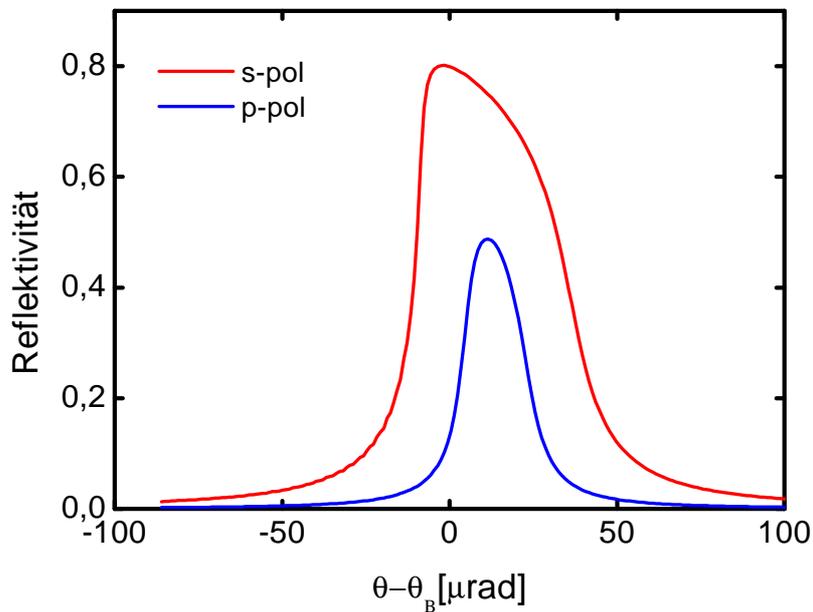


Abb. 8: Röntgenbeugungskurve von Si(311) berechnet mit XOP. Der Kristall besitzt eine Stärke von $50 \mu\text{m}$

Da die $K\alpha$ -Photonen auf eine größere Fläche verteilt werden, kann der Röntgenfluß ohne Gefahr für die CCD-Kamera erhöht werden. Mit der Kalibrierung der Röntgenkamera, die im Anhang 5.1 *Röntgendetektion* vorgestellt wird, kann die Anzahl der detektierten Photonen berechnet werden. Der Röntgenfluß betrug in der Abb. 7 typische $2 \cdot 10^4$ Photonen/Laserimpuls. Das Bild wurde nach den Optimierungsmethoden, die im Kapitel 2.3 *Charakterisierung der Röntgenquelle* vorgestellt werden, aufgenommen. Die Intensität des Lasers betrug im Fokus einige 10^{16} W/cm^2 .

Betrachtet man eine Drehung des Röntgenspiegels um einen Winkel $\Delta\theta_B$, so erhält man bei fester Wellenlänge die Beugungskurve des Spiegels. Eine zusätzliche experimentelle Bedingung ist, daß der Spiegel nur auf einem kleinen Stück ausgeleuchtet wird, so daß die Variation des *Bragg*winkels über die Oberfläche keine Rolle spielt. Der gebogene Si-Wafer hat eine Stärke von $70 \mu\text{m}$ und kann im gebogenen Zustand mit einem ebenen dicken Kristall verglichen werden [88]. Abb. 8 zeigt die berechnete Beugungskurve eines $50 \mu\text{m}$ starken ebenen Si(311)-Kristalls. XOP (engl.: x-ray oriented programs) [65, 64] ist in der Lage, die Eindringtiefen von beliebigen Photonenenergien in verschiedene ebene Kristalle zu berechnen. Die Eindringtiefe von Ti- $K\alpha$ in einen ebenen Si(311)-Kristall beträgt *ca.* $15 \mu\text{m}$.

Die Halbwertsbreite θ_{RC} der s-polarisierten Röntgenbeugungskurve (engl.: rocking curve) beträgt 46,38 μrad , die der p-polarisierten Kurve 20,22 μrad . Die geometrische Variation des *Bragg*winkels über der Oberfläche bei festem Winkel ist somit um einen Faktor ≈ 5 größer als die Beugungskurve des Spiegels. Aus diesen Daten läßt sich zusammenfassen:

- Für einen effizienteren Röntgenspiegel ist es besser, wenn die Breite der Röntgenbeugungskurve größer ist als die Variation des *Bragg*winkels über der Oberfläche.
- Da die Röntgenbeugungskurve eine stärkere Reflektivität für s-Polarisation besitzt, ist die Strahlung im Fokus teilweise polarisiert. Maßgebend für die Reflektivität ist die integrierte Reflektivität, da durch die Variation des *Bragg*winkels über der Oberfläche alle Winkel angeboten werden. Die integrierte Reflektivität erhält man durch Integration der Beugungskurven in *Abb. 8*. Die integrierte Reflektivität für s-Polarisation beträgt 43,74 μrad , die für p-Polarisation beträgt 12,62 μrad . Das Verhältnis von s- zu p-Polarisation ist 1:0,3.

Wird der Spiegel gedreht, arbeitet dieser als Spektrometer. Als obere Abschätzung für die Energieauflösung kann die Halbwertsbreite der s-polarisierten Röntgenbeugungskurven verwendet werden. Die Halbwertsbreite entspricht einer Energieauflösung von $|\Delta E/E| \approx 3 \cdot 10^{-5}$. Die Spin-Bahn-Aufspaltung der Linien $K\alpha_1$ und $K\alpha_2$ haben folgende Eigenschaften:

Linie	Energie [keV]	FWHM [eV]
Ti- $K\alpha_1$	4,51084	1,87
Ti- $K\alpha_2$	4,504486	2,34

Tab. 2: Aufspaltung der $K\alpha$ -Energien [57].

Durch Drehen des Röntgenspiegels kann das Spektrum durchgefahen werden. Die Kamera steht dabei außerhalb des Fokus. Jeder Meßpunkt in *Abb. 9* ist eine Mittelung über 20 Aufnahmen. Sehr gut ist die Aufspaltung der Linien zu sehen (die grobe Methode der Pulshöhenanalyse vgl. *Abb. 55* im Anhang konnte dies nicht leisten). Rechnet man die Energien der $K\alpha$ -Linien aus *Tab. 2* in die entsprechenden *Bragg*winkel um, so besitzen die Linien einen Abstand von 7,5 min. Die Interpolation in *Abb. 9* weist denselben Abstand auf.

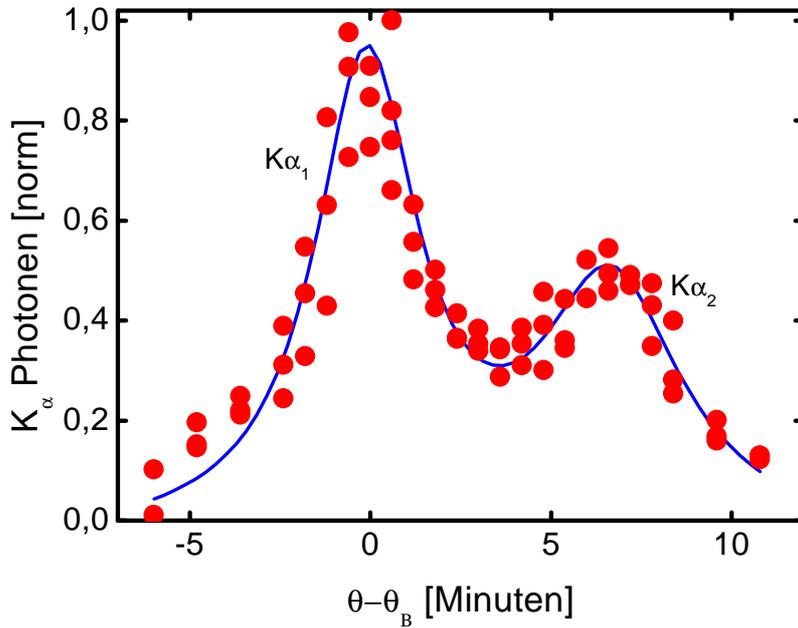


Abb. 9: Hochauflöstes Spektrum der Ti-K α -Quelle. Die Meßdaten sind durch Änderung des Einfallswinkels auf den Si (311)-Spiegel entstanden. Deutlich ist die Aufspaltung in die K α_1 und K α_2 -Linie zu erkennen.

Aus einer Pulshöhenanalyse ist bekannt, daß die Röntgenquelle $\approx 10^8$ Photonen/sr bei einer Laserenergie von 30 mJ emittiert [6]. Mit der folgenden Abschätzung kann aus diesem Röntgenfluß auf die Anzahl der zu erwartenden Photonen im Fokus des Röntgenspiegels geschlossen werden [46].

$$N_{ref} = N_L \frac{A \sin \theta_B}{(2f)^2} \frac{\lambda R_{int}}{\Delta \lambda \tan \theta_B} \quad (5)$$

In dieser Gleichung bedeutet N_{ref} die Anzahl der gebeugten Photonen vom Röntgenspiegel. Der Wert N_L ist die Anzahl der Photonen, die von der Quelle in einem Raumwinkel von 1 sr emittiert werden. Der erste Multiplikant in der Gleichung stellt den Raumwinkel dar, den der Röntgenspiegel in der 1:1 Geometrie abdeckt. Dabei ist A die Fläche des Röntgenspiegels und $A \sin \theta_B$ die effektive Fläche, die in den Raumwinkel eingeht. Im zweiten Multiplikant steht die integrierte Reflektivität R_{int} , die Wellenlänge der Strahlung λ sowie ihre natürliche Breite $\Delta \lambda$. Wird die integrierte Reflektivität über s- und p- Polarisation gemittelt, so erhält man für die Ti-K α -Linie $N_{ref} \approx 5 \cdot 10^{-5} N_L$. Mit dem zuvor gemessenen Röntgenfluß ergibt dies $5 \cdot 10^3$ theoretisch gebeugte Photonen vom Röntgenspiegel. In Abb. 11 (Kapitel 2.3) wird bei einer Laserenergie von ebenfalls 30 mJ eine Anzahl von $\approx 7 \cdot 10^3$ gebeugten Photonen vom Röntgenspiegel gemessen.

Die Anzahl der gemessenen Photonen liegt in derselben Größenordnung wie die der theoretisch abgeschätzten.

Wird im Fokus des Röntgenspiegels eine kristalline Probe plaziert, so ist im allgemeinen die Röntgenbeugungskurve der Probe wesentlich schmaler als der angebotene Winkelbereich von $\approx 2,5^\circ$, der vom Röntgenspiegel angeboten wird. Da die Beugungskurve des Spiegels *Abb. 8* außerdem wesentlich schmaler ist als die der hier verwendeten Proben *Abb. 19* und *35*, ergibt sich, daß der gebeugte Strahl der Beugungskurve der Probe entspricht.

2.3 Charakterisierung der Röntgenquelle

Die Betrachtung der Eigenschaften der Röntgenquelle stellt eine Arbeit für sich dar. Dieses Kapitel ist eine kurze Zusammenfassung der Themen, die später weiter bearbeitet werden könnten. Sobald feststand, daß der Röntgenfluß hoch genug für zeitaufgelöste Experimente war, wurde die Charakterisierung und die Verbesserung der Röntgenquelle eingestellt und der Umbau für die Beugungsexperimente durchgeführt. Für die Meßdaten in diesem Kapitel wurde die Kamera in der Aufnahmeposition für eine Topografie belassen.

Eine wichtige Problemstellung bei der Laser-Plasmawechselwirkung ist der Einfluß von Vorplasmen. Entsteht im Lasersystem ein unkontrollierter Vorimpuls und wird dieser im Verstärkersystem über die Ionisationsschwelle des Targetmaterials verstärkt, so wechselwirkt der Hauptimpuls des Lasers mit einem expandierten Plasma. Die Wechselwirkung zwischen einem intensiven Laserimpuls mit einer Oberfläche mit Festkörperdichte unterscheidet sich aber grundlegend von der Wechselwirkung eines Laserimpulses mit einem expandierten Plasma. Dies konnte in Experimenten mit künstlich erzeugten Vorimpulsen nachgewiesen werden [60, 4, 101].

Bei der Entstehung von Vorimpulsen in fs-Lasersystemen ist die ASE (engl.: amplified spontaneous emission) von entscheidender Bedeutung [20]. Die ASE entsteht beim Verstärkungsprozeß im Lasersystem¹⁰. Der zu verstärkende 120 fs lange Laserimpuls bei der Wellenlänge von 800 nm wird vor der ersten Verstärkung auf eine Zeitdauer von ≈ 200 ps gestreckt. In der ersten Verstärkerstufe wird die Energie des Laserimpulses um 6 Größenordnungen vom nJ-Bereich (Nanojoule, $1 \text{ nJ} = 10^{-9} \text{ J}$) in den mJ-Bereich verstärkt. Das Verstärkermedium Ti:Saphir wird mit einem Nd:Yag Lasersystem, dem „Pumplaser“, bei einer Wellenlänge von 532 nm angeregt. Die Impulsdauer des Pumplasers beträgt 10 ns. Bei jedem Pumpimpuls wird das angeregte Material von dem zu verstärkenden Impuls achtmal durchlaufen. Da der Pumpimpuls um zwei Größenordnungen länger ist, ist das aktive Medium bereits vor und noch nach dem eigentlichen Verstärkungsprozeß invertiert. Auf der ns-Zeitskala wird die spontane Emission, die das invertierte Material durchläuft, effektiv verstärkt. Im Leistungsverstärker – die zweite Verstärkerstufe – wird der Laserimpuls nochmals

¹⁰Die hier beschriebene Entstehungsweise der ASE ist von allgemeiner Natur und nicht spezifisch für das verwendete Lasersystem. Werden jedoch im weiteren Zahlenwerte angegeben, so beziehen sich diese auf das verwendete 10 Hz Ti:Sa-Lasersystem am Institut für Laser- und Plasmaphysik der Universität Essen. Da während dieser Arbeit die Laserenergie nach Kompression von 30 mJ auf 200 mJ vergrößert worden ist, beziehen sich die Zahlenwerte auf die letzte Ausbaustufe.

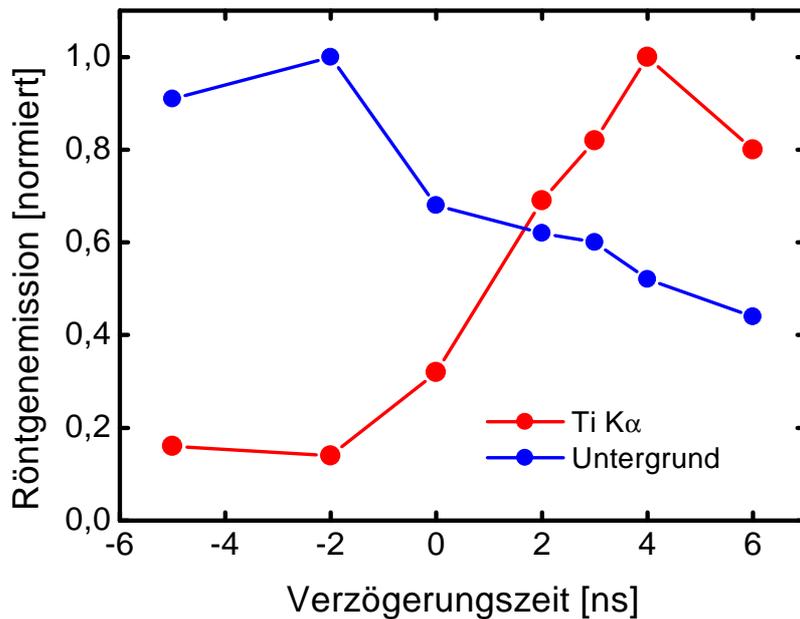


Abb. 10: Röntgenemission der $K\alpha$ -Photonen und der harten Untergrundstrahlung als Funktion der Zeitverzögerung zwischen dem 800 nm Laserimpuls aus dem Laseroszillator und dem 532 nm Pumpstrahl aus dem Nd:Yag Laser im ersten Vorverstärker.

um einen Faktor 100 verstärkt.

Die mitverstärkte spontane Emission macht sich als langer ns-Impuls bemerkbar. Ist die Verstärkung groß genug, kann die führende Flanke der ASE im Experiment bereits zu einem Plasma führen. Erreicht der Hauptimpuls einige Zeit später das Target, wechselwirkt der Hauptimpuls mit einem ausgedehnten Plasma. Es ist also wichtig, daß der Hauptimpuls zeitlich der ASE vorausläuft oder die ASE erst gar nicht entsteht. Die ASE wird durch verschiedene Maßnahmen minimiert:

- Durch eine geschickte Anordnung von Pockelszellen und Polarisatoren zwischen den Verstärkerstufen (Pulsselektion).
- Durch Einsetzen von Blenden. Da die ASE eine andere Divergenz als der Hauptimpuls aufweist, ist es möglich die spontane Emission auszublenden.
- Durch die kontrollierte zeitliche Verschiebung des Hauptimpulses zu den Pumpimpulsen im Vor- und Hauptverstärker.

Die beiden ersten Methoden sind fest im Lasersystem eingebaut, die zeitliche Verzögerung muß während des Experiments kontrolliert werden. Im Idealfall erreicht der 800 nm Hauptimpuls das aktive Medium bereits während die Besetzungsinversion entsteht und fragt diese nahezu vollständig ab. Der Pumplaser ist elektronisch mit

dem 800 nm Hauptimpuls synchronisiert; es besteht die Möglichkeit, die Synchronisation zeitlich zu verschieben. Indem der zeitliche Verlauf der Impulse mittels einer schnellen Diode auf einem Oszilloskop dargestellt wird, kann die zeitliche Verzögerung kontrolliert werden. In *Abb. 10* wurde der Pumpimpuls zum Hauptimpuls verzögert. Mit Hilfe des Röntgenspiegels wurde die $K\alpha$ -Emission gemessen. Da der $K\alpha$ -Emissionskegel vom Röntgenspiegel räumlich begrenzt ist, konnte auf der CCD-Kamera zusätzlich der Untergrund, welcher durch Sekundärstrahlung entsteht, bestimmt werden. Bei einer Zeitverzögerung von 4 ns auf dem Oszilloskop ist eine deutliche Abnahme der Untergrundstrahlung zu erkennen, hingegen bildet die $K\alpha$ -Emission ein Maximum aus. Jeder Meßpunkt wurde bis zu 20 mal gemittelt.

Im Gegensatz zu den beschriebenen unkontrollierten Vorimpulsen, kann aber auch künstlich ein Vorimpuls erzeugt werden. Dazu wird aus dem verstärkten Laserimpuls ein Teil räumlich getrennt und zeitlich zum Hauptimpuls verschoben. In der Diplomarbeit des Autors [6] wurde ein Experiment realisiert mit solch einem definierten Vorimpuls. Ein kleiner Spiegel im Strahlengang spaltete den Laserstrahl in zwei Strahlen auf. Die beiden Strahlen wurden auf den Draht fokussiert und räumlich übereinandergelegt. Gemessen wurde die $K\alpha$ -Ausbeute gegen die Zeitverzögerung. In dem Hauptstrahl war eine Energie von 25 mJ, in dem Vorimpuls betrug die Energie 2 mJ. Bei einer Zeitverzögerung von 5 ps trat ein um den Faktor 7 größerer Röntgenfluß auf. Dieses Resultat favorisiert das Modell der Resonanzabsorption [91, 4], da kein steiler Dichtegradient mehr existiert. Für Si- $K\alpha$ wird von einem ähnlichen Ergebnis berichtet [4]. Es trat bei einer Zeitverzögerung von 9 ps ein um den Faktor 7 größerer Röntgenfluß auf. Da für die späteren Beugungsexperimente ebenfalls eine Verzögerungsstrecke aufgebaut werden mußte, und es während der zeitaufgelösten Experimente nicht möglich war, in einer angemessenen Zeit zwei Strecken zu justieren und zu kontrollieren, wurde die Verzögerungsstrecke für die Plasmaerzeugung durch eine Quarzplatte ersetzt. Die Platte ist in der Mitte durchbohrt, so daß der Laserimpuls dort ungehindert hindurchtreten kann. Der Hauptteil des Strahls jedoch muß durch die Platte hindurch und erfährt eine zeitliche Verzögerung. Die Verzögerung ist abhängig von der Stärke der Platte und vom Brechungsindex. Das Loch in der Mitte bestimmt, wieviel Energie im Vorimpuls enthalten ist.

Eine weitere einfache Methode zur Optimierung der Quelle ist das Verschieben der Linse und somit eine Änderung der Intensität. Befindet sich der Draht exakt im Fokus, wird mehr harte Strahlung und störender Untergrund erzeugt. Die Linse wird

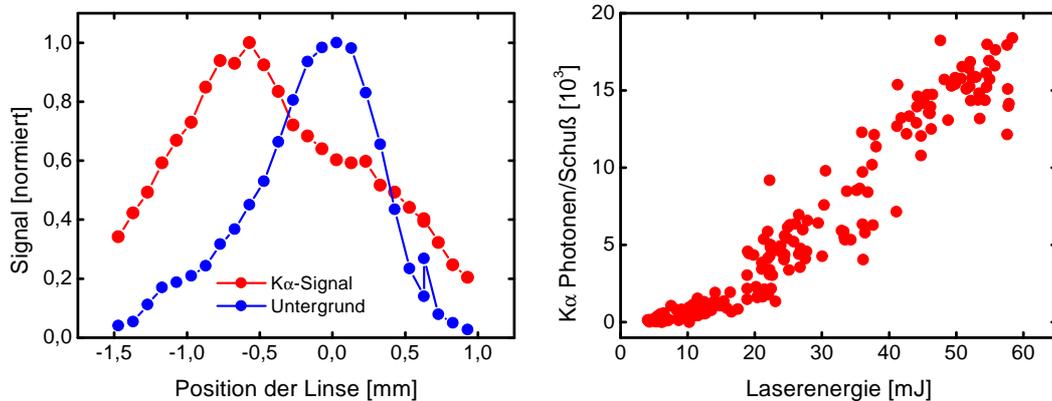


Abb. 11: Auf der linken Seite ist die Anzahl der Ti-K α -Photonen und der Untergrund gegen die Position der Linse aufgetragen. Die optimale Arbeitsposition der Linse ist nicht die optimale Fokussierung des Lasers auf den Draht. Die rechte Seite zeigt die Abhängigkeit des Röntgenflusses von der Laserenergie.

in Richtung des Drahtes motorisiert und während des Experiments definiert verschoben. Die linke Darstellung in Abb. 11 zeigt die Abhängigkeit der K α -Ausbeute von der Linsenposition. Das Experiment wurde bei einer Laserenergie von 60 mJ durchgeführt; die einzelnen Datenpunkte wurden mehrmals gemittelt. Gleichzeitig wird auf jedem Bild der Anteil der Untergrundstrahlung ausgemessen. Für die Untergrundstrahlung ist die Kurve nahezu symmetrisch. Im Fokus ergibt sich ein maximaler Untergrund, außerhalb des Fokus fällt dieser schnell ab. Die Meßkurve für die K α -Erzeugung zeigt eine maximale Photonenausbeute, wenn der Fokus 1 mm hinter dem Draht (negative Linsenposition) liegt. Zu beiden Seiten fällt die Kurve wiederum ab. Ähnliche Ergebnisse wurden in [22] publiziert. Bei der optimalen Linsenposition für 60 mJ wurde im Anschluß daran die Laserenergie variiert. Ausgewertet wurde der Röntgenfluß der K α -Emission. Die Meßkurve ist in Abb. 11 rechts dargestellt. Es fand keine Mittelung der Meßwerte stand. Die Impuls-zu-Impuls Schwankungen werden im nächsten Experiment untersucht. Die K α -Emission nimmt monoton mit der Laserenergie zu. Der Laser liefert aktuell bis zu 200 mJ¹¹. Wird die Meßkurve linear extrapoliert, ergibt sich ein K α -Fluß von $\approx 4 \cdot 10^4$ Photonen pro Laserimpuls.

Um eine Statistik über die Impuls-zu-Impuls Schwankungen zu erhalten, wurde ein Verfahren angewandt, das mehrere Röntgenblitze gleichzeitig mit der Kamera aufnimmt und auswertet. Dazu wurde die Kamera mit dem Laser synchronisiert und mit 0,01 s belichtet. Während die Kamera zum Verschieben und Auslesen der

¹¹Stand Juli 2003

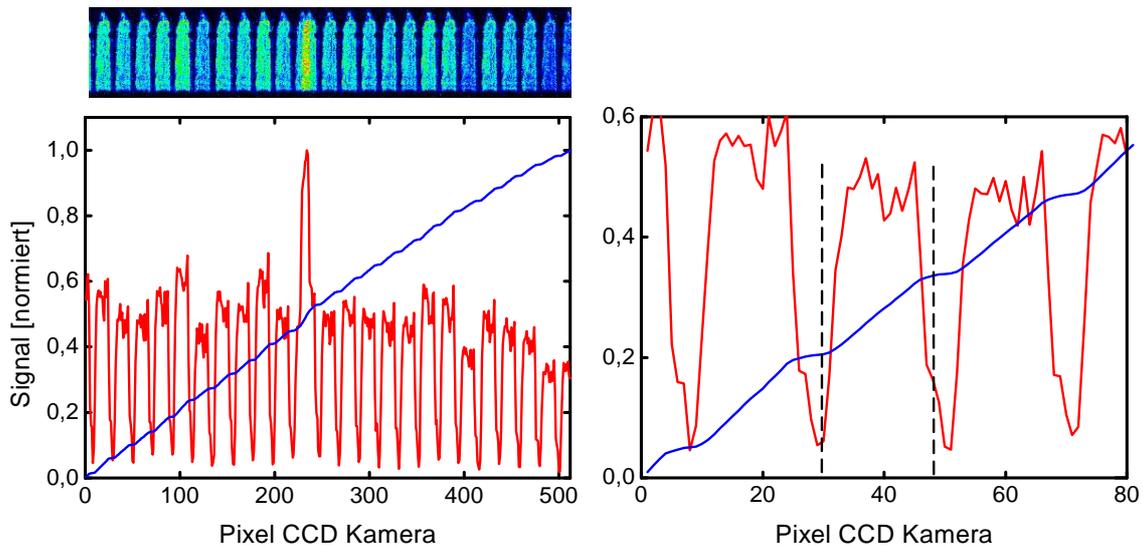


Abb. 12: Das obere Bild zeigt einen Ausschnitt der Röntgenkamera. Dargestellt ist die Topografie des Röntgenkristalls aus Si (311). Da die Kamera während des Auslesens mit 10 Hz belichtet wurde, sind mehrere Spots auf einem Bild zu erkennen. Diese Technik wurde bei Statistikproblemen angewandt, um mehrere Schüsse hintereinander aufnehmen zu können. Im unteren Bild links sind die Pixelwerte vertikal aufsummiert. Die blaue Kurve zeigt das Integral über die rote Kurve. Auf der rechten Seite ist ein vergrößerter Ausschnitt der Funktion dargestellt.

Pixel ungefähr 2 s braucht, erzeugt der Laser kontinuierlich mit 10 Hz Röntgenstrahlung. In der linken Darstellung von Abb. 12 ist zu sehen, daß eine scheinbar räumlich getrennte Mehrfachbelichtung in der Ausleserichtung der Kamera stattfindet. Zu sehen ist wieder die Topografie. Da die Kamera getriggert ist, liegen die einzelnen „Spots“ bei jeder Belichtung an denselben Stellen. Jeder einzelne Spot in der Abbildung enthält wiederum $2 \cdot 10^4$ Photonen. Im unteren Bild von Abb. 12 zeigt die rote Kurve die vertikale Aufsummierung über das Kamerabild. Die blaue Kurve ist das Integral über die rote Kurve. Auf der rechten Seite ist ein Teilstück vergrößert dargestellt. Die blaue Kurve besteht aus äquidistanten Treppen, diese sind proportional zur Anzahl der detektierten Photonen. Das Histogramm Abb. 13 zeigt die Auswertung¹² von 350 einzelnen Topografien. Zu sehen ist wiederum ein Maximum bei $2 \cdot 10^4$ Photonen/Laserimpuls. Die Breite der Kurve beträgt *ca.* $\pm 25\%$.

¹²Automatisiert durch ein *Matlab*programm.

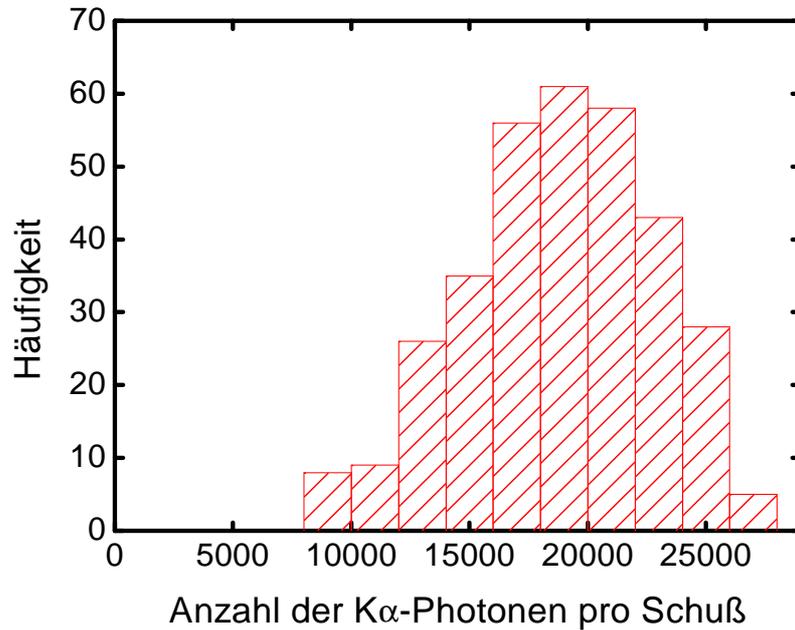


Abb. 13: Auswertung von einigen hundert Aufnahmen, wie sie in Abb. 12 zu sehen sind. Das entstandene Histogramm zeigt eine mittlere Röntgenausbeute von *ca.* $2 \cdot 10^4$ Photonen pro Impuls. Die Halbwertsbreite der Kurve beträgt *ca.* $\pm 25\%$.

Es wurde mit verschiedenen Methoden versucht, eine Normierung zwischen dem Röntgenfluß und einer anderen physikalischen Größe herzustellen. Die K α -Emission wurde auf folgende Eigenschaften normiert:

- Laserenergie bei 800 nm (siehe Abb. 11).
- Laserenergie der zweiten Harmonischen bei 400 nm.
- mittels einem röntgenempfindlichen Phosphor auf die globale Röntgenemission.

Leider sind diese Versuche bisher nicht zur Zufriedenheit verlaufen. Weitere Versuche zur Normierung erfolgen in der Diplomarbeit [32].

Da bei dem ersten Teil der „Experimente an dünnen Germaniumschichten“ sich eine natürliche Normierungsmöglichkeit ergab, ist die Schwankungsbreite in diesem Experiment nicht von Interesse. Bei den Experimenten auf Bi-Schichten fällt diese natürliche Normierung leider weg, und die Meßpunkte müssen, um den Fehler niedrig zu halten, entsprechend oft gemittelt werden. Im Anhang unter 5.4 *Fehleranalyse* befindet sich eine entsprechende Diskussion der Meßgenauigkeit für die Experimente an den Bi-Schichten.

3 Experimente mit hoher Zeitauflösung

3.1 Erweiterung des Versuchsaufbaus

Für die Experimente wird die Röntgenquelle, wie sie in Kapitel 2.1 beschrieben wurde, verwendet. Es folgt eine genauere Beschreibung der Erweiterung des Versuchsaufbaus für zeitaufgelöste Messungen sowie der Justageprozedur und der Auswertung der Beugungslinien. In den *Kapiteln 3.2 Experimente an dünnen Germaniumschichten* und *3.3 Experimente an dünnen Wismutschichten* wird dann auf eine genauere Beschreibung der Umbauten verzichtet.

Die Eindringtiefe der Ti-K α Strahlung beträgt für Ge und Bi in der (111) Geometrie einige μm [65]. Da die Absorptionstiefe des optischen Anregimpulses für Ge *ca.* 200 nm und für Bi *ca.* 20 nm beträgt [73, 33], ergibt sich die Schwierigkeit bei der Untersuchung von laserinduzierten Phasenumwandlungen mit Röntgenimpulsen, daß die angeregte Schichtstärke viel kleiner als die Eindringtiefe der Röntgenstrahlung ist. Dies bedeutet, daß die Signaländerung auf Grund der Phasenumwandlung extrem klein ist und das stärkere Signal vom nicht angeregten Material stammt. Um das Signal von angeregtem und nicht angeregtem Material unterscheiden zu können, werden spezielle Proben verwendet¹³ [29, 30]. Bei diesen Proben wächst eine dünne einkristalline Schicht Ge bzw. Bi mit einer speziellen Technik auf einem Si-Substrat. Die Oberflächenorientierung der Schichten stimmt mit der Orientierung des Si-Substrats (111) überein. Es wird auf dem Si-Wafer zuerst eine Art „Spülmittel“ (engl.: surfactant) aufgetragen, welches die Oberflächenspannung herabsetzt. Dieses „Spülmittel“ hat die besondere Eigenschaft, immer auf der zuletzt aufgewachsenen Kristallschicht zu schwimmen. Mit dieser Methode können großflächige perfekte Kristallscheiben erzeugt werden (Oberflächenrauigkeit rms 0,3 nm, Dichte der Versetzungen $< 10^8 \text{ cm}^{-3}$ [29, 30]). Bereits nach wenigen Atomlagen wächst die Kristallschicht mit ihrer natürlichen Gitterkonstanten. Die Proben sind eine Schlüsselkomponente für die Röntgenexperimente. Sie ermöglichen die gleiche Schichtstärke mit Röntgenstrahlung abzufragen, welche auch nur tatsächlich optisch angeregt wird. Für die Experimente an den Ge-Schichten besitzt die Schicht eine Stärke von 170 nm, für die Experimente an den Bi-Schichten wird eine Stärke von 50 nm verwendet. Für die Experimente stehen Kristallscheiben von 2 und 3 Zoll Durchmesser zur Verfügung.

¹³Diese Proben wurden von der Arbeitsgruppe um Herrn *Prof. Horn-von Hoegen*, Universität Essen, und Herrn *Dr. Kammler*, Universität Hannover, zur Verfügung gestellt.

Ein weiterer Vorteil der dünnen Kristallschichten ist, daß die Näherung für kinematische Röntgenbeugung benutzt werden kann [98]. Die Näherung besagt, wenn der Kristall mit der Schichtdicke d wesentlich dünner als die Eindringtiefe β der Röntgenstrahlung ist, dann ist die Anzahl der gebeugten Photonen I_{Probe} näherungsweise proportional zur Stärke des Kristalls:

$$d \ll \beta \quad \Rightarrow \quad I_{Probe} \propto d. \quad (6)$$

Von dieser Näherung wird in den Experimenten für verschiedene Abschätzungen Gebrauch gemacht.

Der optische Anregeimpuls wird vor der Vakuumkammer über einen 5% Teilerspiegel ausgekoppelt. Da der Laserstrahl einen 1/e-Durchmesser von 45 mm besitzt, gibt es nach dem Teilerspiegel die Möglichkeit, unter Verwendung eines Teleskops den Strahldurchmesser des Anregeimpulses um einen Faktor drei zu verkleinern. Bei Experimenten, die nicht soviel Energie benötigen, wird das Teleskop durch eine Blende ersetzt. Über einen Retroreflektor auf einer motorisierten Verschiebebühne wird der Anregeimpuls durch eine zusätzliche Wegstrecke zeitlich zum Röntgenimpuls verzögert. Eine zusätzliche Wegstrecke von 1 μm bedeutet eine Zeitverzögerung von 3,33 fs. Die Energie im Anregeimpuls kann durch eine Kombination von $\lambda/2$ Platte und Polarisator kontinuierlich geregelt werden. Der Anregeimpuls ist auf der Probe wieder p-polarisiert. Der Strahl wird mit einer Linse mit der Brennweite $f=1$ m, die vor dem Eingangsfenster der Vakuumkammer steht, auf die Probe fokussiert. In einem Diagnosestrahl wird die Energie des Anregeimpulses durch eine kalibrierte Photodiode überwacht. Ebenso wird im Diagnosestrahl die Strahlage kontrolliert. Die Größe des Fokus wird durch eine acht Bit CCD-Kamera in einer Referenzebene zur Probe während des Experiments kontrolliert. Die Strahlengänge vor der Vakuumkammer werden in *Abb. 14* schematisch wiedergegeben.

Das eigentliche Experiment befindet sich in der Vakuumkammer, in der auch die Röntgenstrahlung erzeugt wird. Dies ist notwendig, da die Transmission von Titan- $K\alpha$ durch 10 cm Luft unter Normalbedingung etwa 0,5 beträgt [38].

Da je nach Anregungsintensität, die später beobachteten Effekte nicht vollständig reversibel sind, d. h. die Probenoberfläche nach jedem Laserimpuls beschädigt wird, wird die Probe auf einen motorisierten XY-Verschieber befestigt. Zur Einstellung des genauen *Bragg*winkels wird der gesamte Probenmanipulator zusätzlich auf einen motorisierten Rotationstisch mit Skala gestellt.

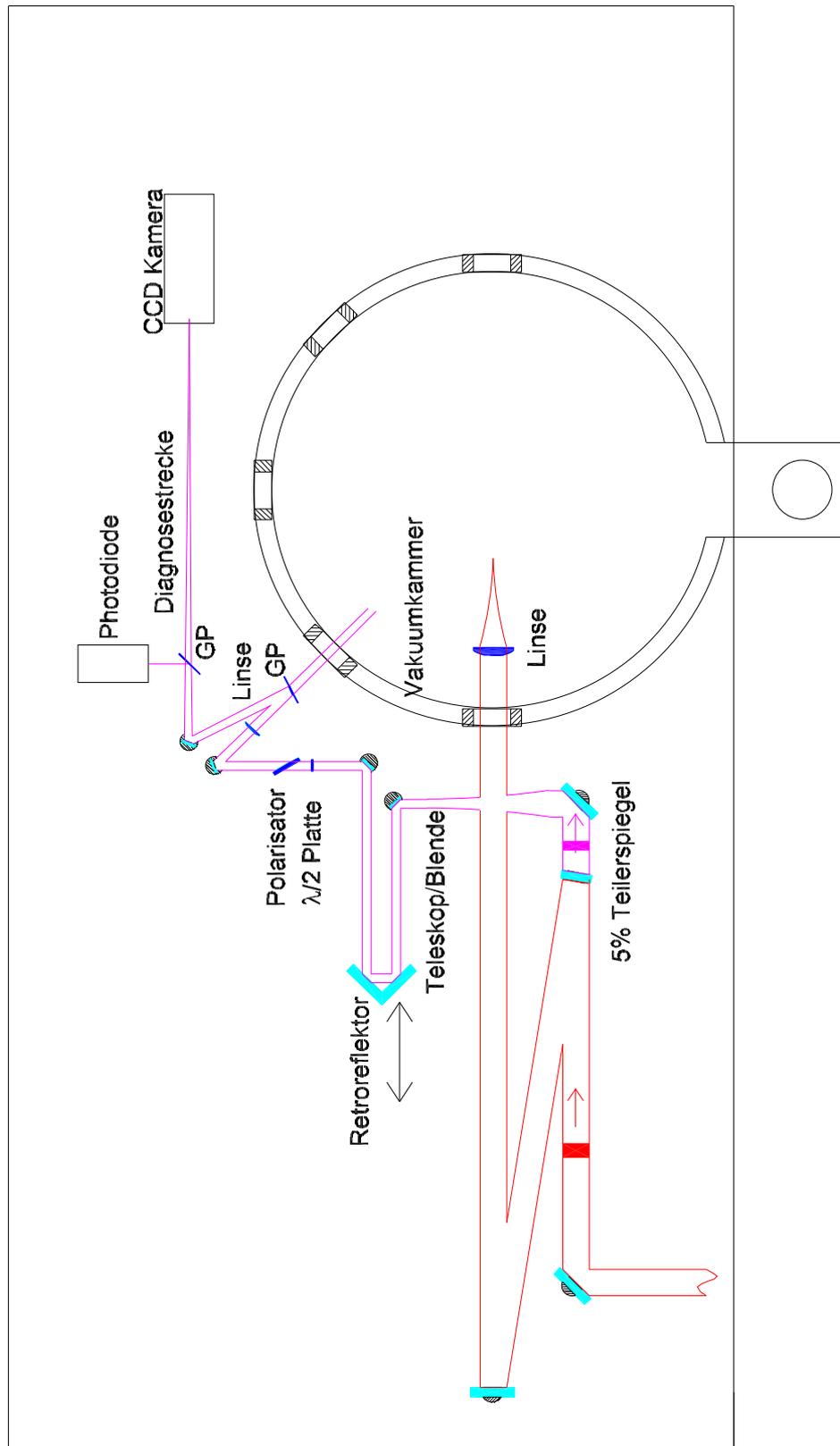


Abb. 14: zeigt den Strahlenverlauf vor der Vakuumkammer. Aus dem Laserimpuls (rot markiert) wird ein Teil zur Anregung abgespaltet. Über die Retroreflektorstrecke wird eine variable zusätzliche Wegstrecke eingeführt. Über einen Glasplattenreflex (GP) wird ein Teil des Anregimpulses in die Diagnosestrecke eingekoppelt.

Die Probe befindet sich exakt über dem Rotationsmittelpunkt, damit beim Drehen der Probe die Entfernung zwischen Probe und Röntgenspiegel nicht geändert wird. Der Weg der Röntgenstrahlung wird optisch vorjustiert; dazu wird das gestreute Laserlicht vom Titandraht ausgenutzt. Das gestreute Licht wird über den Röntgenspiegel fokussiert. Durch optische Abbildungen wird die Probe in den optischen Fokus gestellt und fixiert. Durch Drehen der Probe wird das gestreute Licht über den Röntgenspiegel auf die Quelle zurückreflektiert. Durch Drehen des Rotationstisches um den Winkel $90^\circ - \theta_B$ wird der *Bragg*winkel θ_B der Probe eingestellt. *Tab. 3* gibt die *Bragg*winkel für Ge(111) und für das Substrat Si(111) an. In der *Tab. 9* im *Kapitel 3.3.1 Struktureigenschaften und optische Phononen* sind die *Bragg*winkel für die Bi-Probe zusammengefaßt.

Linie	Energie [keV]	Ge (111) θ_B [°]	Si (111) θ_B [°]
Titan-K α_1	4,51	24,884	25,999

Tab. 3: Braggwinkel für Ge und Si in der Beugungsrichtung (111) [65].

Da der Röntgenkristall einen horizontalen Öffnungswinkel von *ca.* $2,5^\circ$ anbietet, sind bei exakter Justage sowohl die Si(111) als auch die Ge(111) Linie in der Röntgenbeugungskurve zu sehen (*Abb. 18*). Dies ist bei den Bi-Proben nicht mehr der Fall, da der Winkelunterschied zwischen Bi(111) und Si(111) zu groß ist. Die Röntgenkamera wird so positioniert, daß das gestreute Licht von der Probe auf den Eingang der Röntgenkamera fällt. Damit der divergente Röntgenkonus von der CCD-Kamera ganz erfaßt wird, wird der Abstand zwischen Probe und Röntgenkamera klein gehalten. *Abb. 15* zeigt einen Blick in die geöffnete Vakuumkammer.

Während einer Belichtung fährt der Probenverschieber ein Rechteck mäanderförmig ab, so daß immer eine frische Stelle zur Anregung zur Verfügung steht. Damit es an den Umkehrpunkten und am Ende des Rechtecks nicht zu Mehrfachbeschuß der Probe kommt, wird dort jeweils der Laser ausgeschaltet¹⁴. Durch einen Steuerimpuls wird die Belichtung der Kamera zu Beginn eines Rechtecks ausgelöst. Der Computer merkt sich die Startkoordinaten des Rechtecks, so daß es möglich ist, das gleiche Areal mehrfach abzutasten. Mit dieser Möglichkeit wird vor jeder transient angeregten Belichtung die gleiche Fläche ohne Anregung als Normierungsbild auf-

¹⁴Dazu wird die Steuerung der *Pockelszellen* manipuliert. Die *Pockelszellen* trennen optisch den Vorverstärker vom Hauptverstärker.

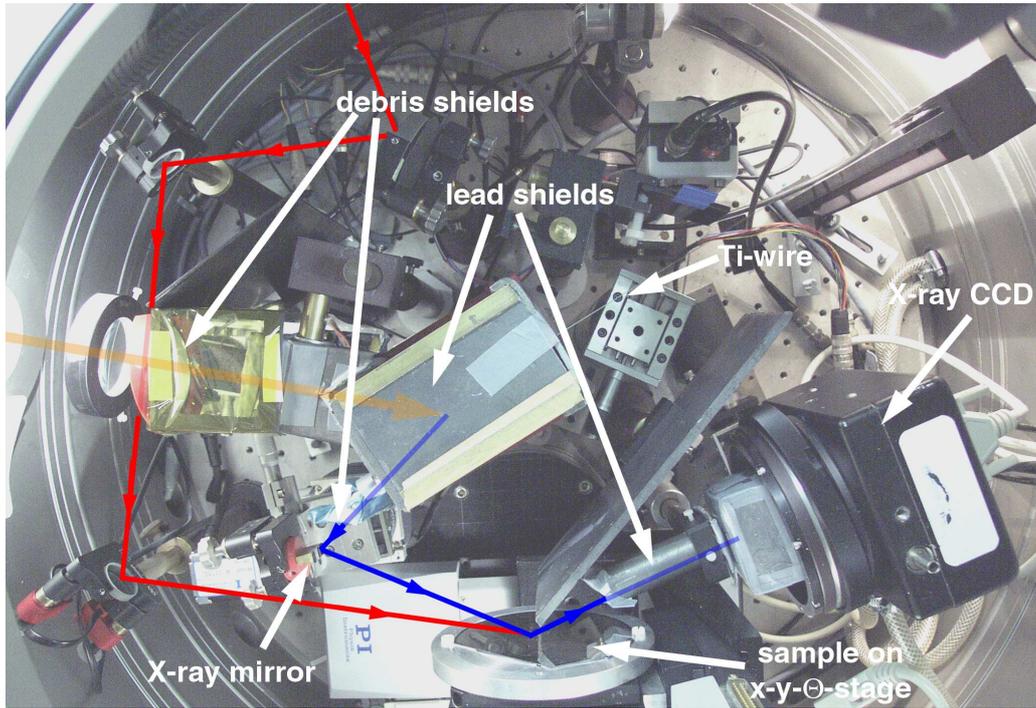


Abb. 15: Aufbau innerhalb der Vakuumkammer für das Anrege-Abfrage-Experiment. Zu sehen ist die Strahlführung des Anregeimpulses (rote Linie). Der gelb markierte Pfeil, der über der Bleihaube endet, zeigt den Weg des intensiven Laserimpulses, der die Röntgenstrahlung erzeugt. Die blauen Pfeile, die über der Bleikammer beginnen, zeigen den Weg der Röntgenstrahlung. Im unteren Teil des Bildes ist der Probenmanipulator mit Rotationsstisch zu sehen. Nicht auf dem Bild ist das Objektiv, das die Probenoberfläche abbildet. Dies ist normalerweise auf dem kleinen Verschieber, welcher unter dem Titandraht steht, befestigt. Hinter dem Verschieber steht eine CCD-Kamera zur Aufnahme des Bildes der Oberfläche.

genommen. Das hat den Sinn, daß die Oberflächenqualität an Hand der Ge- bzw. Bi-Röntgenlinie vor jedem Meßpunkt überprüft werden kann.

Zum anderen können bei den Ge-Experimenten durch Normierung auf die Si-Linie des nicht angeregten Bildes Schwankungen im Röntgenfluß unterdrückt werden. Dies ist möglich, da die Reflektivität der Si-Linie auch während der Anregung kaum geändert wird. Sind $I_{Ge,un gep}$, $I_{Bi,un gep}$ die detektierten Photonen in der nicht angeregten Ge bzw. Bi-Linie, $I_{Si,un gep}$ die Photonen in der nicht angeregten Si-Linie und $I_{Ge, gep}$, $I_{Si, gep}$ und $I_{Bi, gep}$ die Photonen in den angeregten Linien, dann ergibt sich die normierte Reflektivität R aus:

$$R_{Ge} = \frac{I_{Ge, gep}}{I_{Ge, un gep}} \frac{I_{Si, un gep}}{I_{Si, gep}} \quad R_{Bi} = \frac{I_{Bi, gep}}{I_{Bi, un gep}}. \quad (7)$$

Da bei den Bi-Experimenten die Möglichkeit zur Normierung nicht gegeben ist, wird im *Anhang 5.4 Fehleranalyse* eine gesonderte Diskussion der Meßgenauigkeit gegeben.

Die gesamte Datenerfassung (Mäander abfahren, Anfangsposition merken, Größe des Rechtecks, Laser ein- und ausschalten, Kamera starten) wird zentral von einem Computer mit der Laborsoftware „Labview“ von *National Instruments* gesteuert. Die Kamera wird von einem weiteren Rechner ausgelesen. Die aufgenommenen Bilder werden sofort an einem separaten Computer ausgewertet und die Photonenzahl in den Röntgenlinien sowie die Reflektivitätsänderung bestimmt. Hierzu wurde unter dem Programm „Matlab“ der Firma *MathWorks Inc.* eine auf das Problem maßgeschneiderte Software entworfen. *Abb. 16* zeigt schematisch die Kommunikationswege der benutzten Computer. Die sofortige Auswertung ist zwingend notwendig, da die Reflektivitätsänderungen in der Nähe der Zeitverzögerung „0“ klein werden können und somit die Gefahr besteht, den Zeitnullpunkt auf einer Skala von wenigen 10 fs nicht exakt bestimmen zu können.

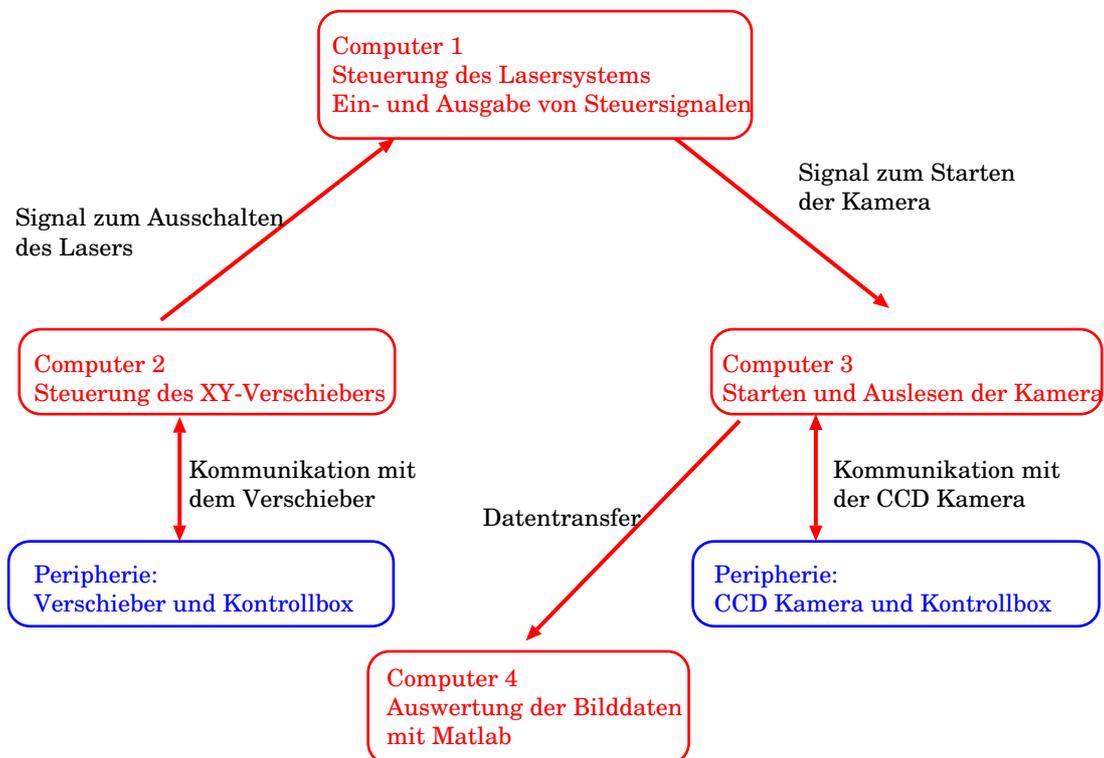


Abb. 16: Schematische Darstellung der Kommunikationswege der eingesetzten Computer.

Der Anregeimpuls sollte mit dem Röntgenimpuls einen möglichst kleinen Winkel bilden, da sonst die Zeitverzögerung zwischen den Impulsen zu einer Funktion des Ortes über den Strahlquerschnitt wird. In *Abb. 17* ist dieser Sachverhalt dargestellt. Der blaue Strahl stellt den Abfrageimpuls (Röntgenimpuls) und der rote den Anregeimpuls dar, beide schließen den Winkel γ ein. Der Winkel θ in der Skizze entspricht dem *Bragg*winkel θ_B im Experiment.

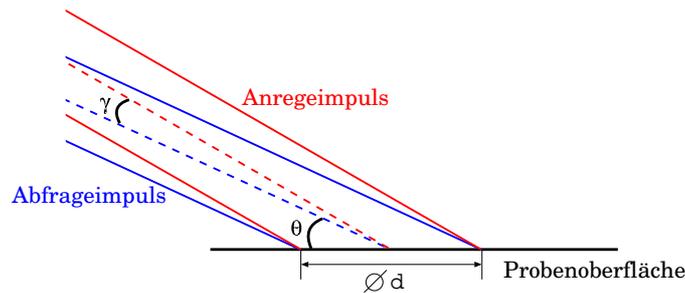


Abb. 17: Zeitverschmierung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls auf Grund eines Winkels zwischen den beiden Impulsen.

Die Zeitverschmierung über der angeregten Probenoberfläche ergibt sich aus der Differenz der unterschiedlichen Wegstrecken δs der Strahlen bis zur Probenoberfläche. Auf der linken Seite der Skizze *Abb. 17* erreichen beide Strahlen die Oberfläche gleichzeitig, auf der rechten Seite kommt der Anregeimpuls vor dem Abfrageimpuls. Die Laufzeitdifferenz Δt beträgt:

$$\Delta t = \frac{\delta s}{c} \approx d \frac{\cos(\theta) - \cos(\theta + \gamma)}{c} \quad (8)$$

wobei d der Durchmesser des Abfrageimpulses und c die Lichtgeschwindigkeit ist. Der realisierte Winkel zwischen den beiden Impulsen betrug bei den Experimenten *ca.* 5° , der Durchmesser des Röntgenimpulses betrug $80 \mu\text{m}$, der Anregeimpuls hatte einen Durchmesser von *ca.* $250 \mu\text{m}$. Auf Grund des *Bragg*winkels sind die beiden Foki auf der Probe elliptisch verzerrt (die lange Achse um einen Faktor $1/\sin(\theta_B)$). Dies entspricht einer Zeitverschmierung für alle Experimente von *ca.* 25 fs .

Für die Planung von späteren Experimenten sei hier auf die Möglichkeit hingewiesen, bei einer festen Zeitverzögerung mit einer einzigen Aufnahme eine Zeitabhängigkeit über einige 100 fs aufzunehmen. Mit einem Spiegel oder Beugungsgitter werden die Wellenfronten des optischen Anregeimpulses gekippt. Die Probenoberfläche wird – senkrecht zur Dispersionsebene – großflächig mittels einer Zylinderlinse angeregt. Senkrecht zur Dispersionsebene entsteht durch die Wellenfrontverkipfung eine zeit-

liche Verzögerung entlang der Probenoberfläche. Diese kann mit dem divergenten Röntgenimpuls (ohne Röntgenoptik) abgefragt werden. Diese Methode wurde von *Synnergren et al.* zur zeitaufgelösten Röntgenbeugung ausgenutzt [86].

Der Überlapp des Anregeimpulses mit dem Röntgenimpuls wird optisch vorjustiert. Dazu wird der Anregeimpuls mit Hilfe einer Abbildung der Probenoberfläche mit dem optischen Fokus des Röntgenspiegels übereinandergelegt. Zur Einstellung des Zeitnullpunkts wird die Probe aus dem Strahlengang herausgefahren und ein nicht-linearer Kristall am Ort des Überlapps plaziert. Wird die Verzögerungszeit durchgefahren, entsteht bei der Verzögerungszeit „0“ ein Maximum an zweiter Harmonischen in der Kreuzkorrelation. Der Zeitnullpunkt kann in Abhängigkeit der Dicke des nichtlinearen Kristalls auf *ca.* 200 fs vorjustiert werden. Da die Kristallebenen des Röntgenspiegels nicht exakt parallel zur Oberfläche des Spiegels verlaufen, liegen der optische Fokus des Röntgenspiegels und der Röntgenfokus nicht perfekt übereinander; somit ist eine Nachjustage mit Röntgenstrahlung unumgänglich. Durch Erhöhen der Energie im Anregeimpuls wird ein Loch in der dünnen Kristallschicht erzeugt, dieses ist in der optischen Abbildung der Probenoberfläche zu erkennen. Ist der Überlapp gut justiert und liegen Röntgenfokus und Anregeimpuls übereinander, so verschwindet die Röntgenbeugungskurve der Kristallschicht vollständig. Bleibt ein Teil der Beugungskurve übrig, so muß der Anregeimpuls entsprechend verschoben werden. Eine Nachjustage des Anregeimpulses ist bei geschlossener Vakuumkammer möglich, da der letzte Spiegel des Anregeimpulses mit Piezomotoren verstellbar ist. Diese Nachjustage hat sich als recht mühsam erwiesen, und es wird vorgeschlagen, den letzten Spiegel gegen einen absolut positionierbaren auszutauschen. Ist der Versatz zwischen optischem Fokus und Röntgenfokus bekannt, so ist durch die absolute Positionierbarkeit garantiert, daß diese Stellung später immer wieder angefahren werden kann. Das Loch in der Kristallschicht kann durch Abtasten der Probenoberfläche mit Röntgenstrahlung ausgemessen werden, indem der XY-Verschieber absolut verschoben wird. Somit ergibt sich eine natürliche Skalierung der Abbildung der Probenoberfläche. Ebenso kann durch das Vermessen eines Lochs die Größe des Röntgenfokusses bestimmt werden, ohne die Probe gegen die Kamera austauschen zu müssen.

Im weiteren wird die Bestimmung der integrierten Reflektivität aus den Kamerabildern erläutert. Wie bereits bei der Berechnung der Reflektivität aus (7) erklärt wurde, existieren zu jeder Zeitverzögerung zwei Aufnahmen, eine bei nicht angeregter und eine bei angeregter Probe. Die linke Seite von *Abb. 18* zeigt einen Ausschnitt einer Aufnahme einer Ge-Beugungslinie bei nicht angeregter Probe.

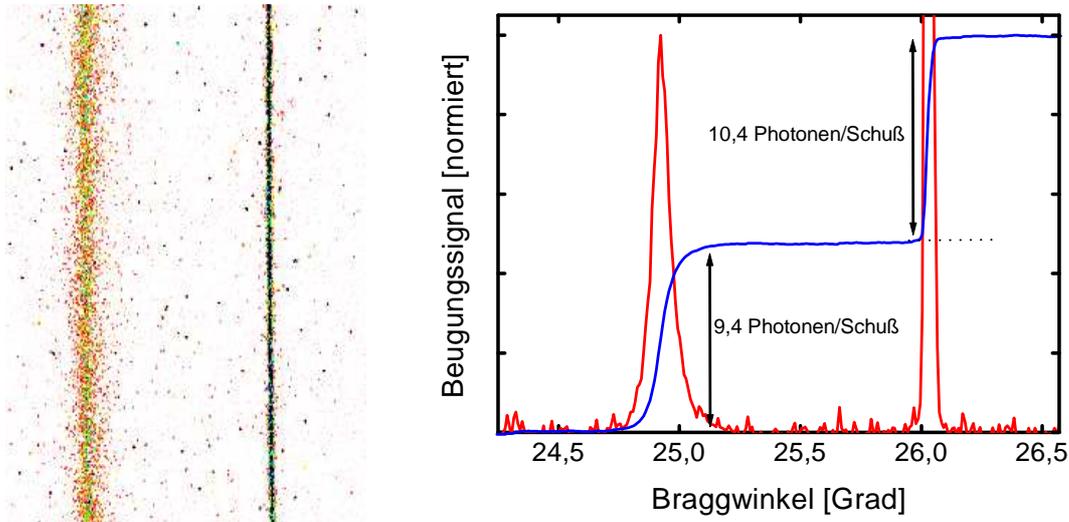


Abb. 18: Auswertung einer Röntgenbeugungskurve von 170 nm Ge(111) auf Si(111). Die linke Seite zeigt einen Ausschnitt der CCD-Kamera. Die breite Linie ist die Ge-Linie, die schmale Linie erhält man vom Si-Substrat. Die rote Kurve rechts im Bild erhält man nach vertikalem Aufaddieren der Pixelwerte. Die blaue Kurve ist das Integral über die Beugungskurve. Die Aufnahme entstand mit einer Belichtungszeit von 70 s, bei einer Laserwiederholrate von 10 Hz. Die Energie des Laserimpulses zur Erzeugung der Röntgenstrahlung betrug 80 mJ.

Deutlich zu erkennen ist die breite Ge-Linie und die schmale Si-Linie. Die Breiten der Beugungskurven werden durch die Filmstärken bestimmt. Tragen viele Kristallebenen zum Beugungssignal bei, wird die Linie schmaler. Auf der rechten Seite von Abb. 18 sind die Werte der Pixel vertikal aufaddiert. Die grüne Kurve ist das Integral über die rote Kurve. Die Höhe der Stufen in dieser Funktion ist proportional zu der Anzahl der gebeugten Photonen pro Laserimpuls. Die Proportionalitätskonstante setzt sich aus der Belichtungszeit des Bildes, der Wiederholrate des Lasers und dem Kalibrierfaktor (siehe *Anhang 5.1*) zusammen. Somit ist eine Umrechnung in eine Anzahl von detektierten Röntgenphotonen möglich. In Abb. 18 wurde die Anzahl der Photonen pro Laserimpuls in der Ge-Linie mit 9,4 bestimmt; die schmale Si-Linie wird aus 10,4 Photonen pro Laserimpuls gebildet. Mit dem bereits vorgestellten Software-Paket XOP [65, 64] ist es möglich, Röntgenbeugungskurven in Abhängigkeit der Schichtdicke zu berechnen. Abb. 19 zeigt die berechnete Röntgenbeugungskurve mit Titan-K α von einer 170 nm starken Ge-Schicht in der Beugungsrichtung (111). Aus dieser Kurve lassen sich einige Abschätzungen herleiten. Die Halbwertsbreite (FWHM) ist sofort ablesbar, diese ist für p- und s-polarisierte Röntgenstrahlung nahezu gleich.

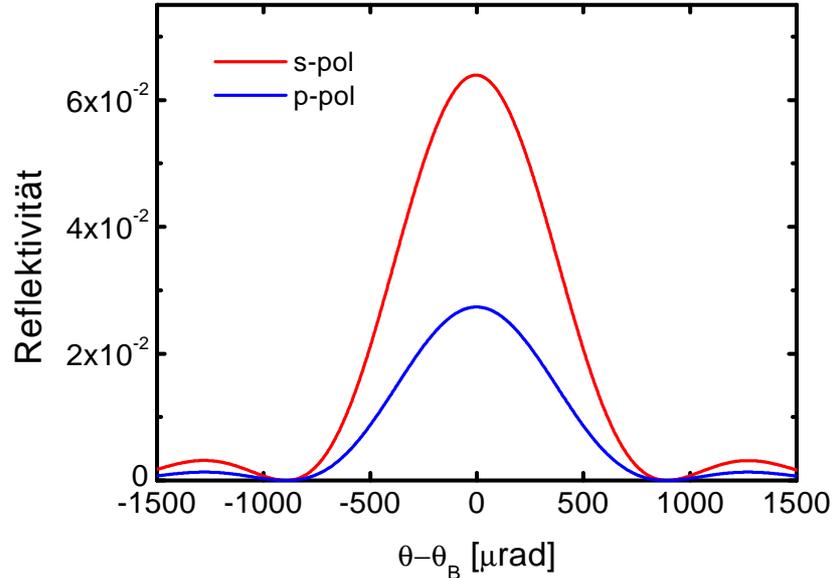


Abb. 19: Berechnete Röntgenbeugungskurve für eine 170 nm starke Ge(111)-Schicht bei der Wellenlänge für Ti-K α .

Für die Beugungsexperimente ist es wichtiger, die integrierte Reflektivität R_{int} zu ermitteln. Aus der Berechnung ergibt sich folgende Tabelle:

Ge(111)	R_{int} [μrad]
s-pol	55,44
p-pol	23,44

Tab. 4: Integrierte Reflektivitäten für eine 170 nm starke Ge-Schicht in (111)-Richtung.

Werden $2 \cdot 10^4$ Photonen im Röntgenfokus gleichmäßig über den horizontalen Öffnungswinkel des Röntgenspiegels von $2,5^\circ$ verteilt und wird das Verhältnis 1:0,3 von s- zu p-polarisiertem Anteil im Röntgenfokus berücksichtigt, kann die Anzahl der gebeugten Photonen auf *ca.* 20 pro Laserimpuls abgeschätzt werden. Im Experiment mußte der Abstand Kamera-Probe auf Grund des großen XY-Verschiebers so groß gewählt werden, daß die gebeugte Linie nicht mehr komplett vom CCD-Chip erfaßt wurde. Um alle gebeugte Photonen zu erhalten, muß die Zahl der detektierten Photonen von 9,4 (Abb. 18) mit dem Faktor $\approx 1,7$ multipliziert werden. Dieser Faktor ergibt sich aus dem Abstand zwischen Probe und CCD-Chip sowie dem vertikalen Öffnungswinkel des Röntgenspiegels. Die Gesamtzahl gebeugter Photonen ist somit *ca.* 16, dieser Wert liegt in der Größenordnung der abgeschätzten gebeugten Photonen von 20. Um die Anzahl der Photonen bereits während der Messung schnell

berechnen zu können, wurde in der programmierten Auswertungssoftware die Berechnung der Höhe der Stufen automatisiert. Die einzelnen Menüpunkte der Software sind im *Anhang 5.2 Auswertungssoftware* beschrieben.

Nach Fertigstellung dieser Arbeit konnte von der Firma *Roperscientific* eine neue CCD-Kamera PI•LCX1300 erworben werden, welche eine lichtempfindliche Fläche von 27×26 mm besitzt. Mit dieser sollte es möglich sein, sämtliche Photonen zu detektieren. Ein weiterer Vorteil der neuen Kamera ist die hohe QE von *ca.* 80 % [58].

3.2 Experimente an dünnen Germaniumschichten

3.2.1 Laserinduziertes Schmelzen von Halbleitern

Um den später experimentell beobachteten Effekt des ultraschnellen Schmelzens thematisch einordnen zu können, wird vorab eine kurze Darstellung der Resultate von bereits durchgeführten Experimenten und theoretischen Arbeiten gegeben. Für eine Vertiefung in die Thematik wird auf die angegebenen Referenzen verwiesen.

Wenn die Photonenenergie des optischen Anregimpulses größer ist als die Bandlücke des Halbleiters, ist der primäre Effekt der Bestrahlung mit Laserlicht die Anregung von Elektronen ins Leitungsband. Die Erzeugung eines solchen Elektron-Loch Plasmas (angeregte Festphase) ist verantwortlich für die Gitterinstabilitäten, die zum ultraschnellen Schmelzen (Phasenänderung) führen. Die massive Anregung von Elektronen aus bindenden Valenzbandzuständen in antibindende Leitungsbandzustände – durch einen kurzen intensiven Laserimpuls – führt zu einer Minderung der kovalenten Bindungskräfte. Überschreitet die angeregte Festphase die kritische Ladungsträgerdichte von $N_{krit} \approx 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, verhält sich das Material wie eine Flüssigkeit [15]. Der Phasenübergang ist dann auf der Zeitskala von typischen Phononenfrequenzen (einige 100 fs) zu beobachten.

Erreicht die Dichte des Elektron-Loch Plasmas nicht die kritische Dichte für das ultraschnelle Schmelzen, so finden verschiedene Elementarprozesse auf unterschiedlichen Zeitskalen statt [85]. Nach der Anregung des Elektron-Loch Plasmas wird die Energieverteilung der Ladungsträger durch Streuprozeße der Ladungsträger untereinander und der Anregung von Phononen bestimmt. Innerhalb von einigen wenigen ps geben die Ladungsträger durch Anregung von Phononen ihre Energie an das Kristallgitter ab [12]. Im letzten Schritt thermalisieren die unterschiedlichen Phononenmoden auf einer ps-Zeitskala und führen zur Erwärmung des Gitters.

Die Wechselwirkung von ps-Laserimpulsen mit Festkörpern kann durch ein solch thermisches Modell beschrieben werden; die Laserimpulse wirken im wesentlichen als schnelle Heizquelle. Im Gegensatz dazu können fs-Laserimpulse das elektronische System massiv anregen, ohne daß während der Laserwechselwirkung ein merkliches Aufheizen des Gitters stattfindet. In dieser Situation sagt das thermische Modell wiederum einen Phasenübergang auf einer ps-Skala voraus. Durch optische Methoden können die elektronischen Eigenschaften der angeregten Probe zeitaufgelöst auf einer fs-Skala gemessen werden. Die Resultate mit fs-Laserimpulse legen nahe, daß das Schmelzen auf einer subps-Zeitskala stattfindet. Die benötigte hohe Zeitauflösung im

fs-Bereich wurde bisher nur durch optische und somit für die Strukturaufklärung indirekte Verfahren erreicht. *Abb. 20* und *21* zeigen Beispiele optischer Methoden und sind den Referenzen [75, 76] entnommen. *Abb. 20* zeigt eine optisch vergrößerte Abbildung einer Si-Oberfläche. Der Laserimpuls wird in einen Anrege- und Abfrageimpuls geteilt. Durch eine kontrollierbare Zeitverzögerung zwischen den Impulsen kann mit Hilfe des optischen Abfrageimpulses die Reflektivität der Probe zu verschiedenen Zeiten gemessen werden. Mittels der Abbildung ist es möglich, die Reflektivität auch orts aufgelöst zu beobachten.

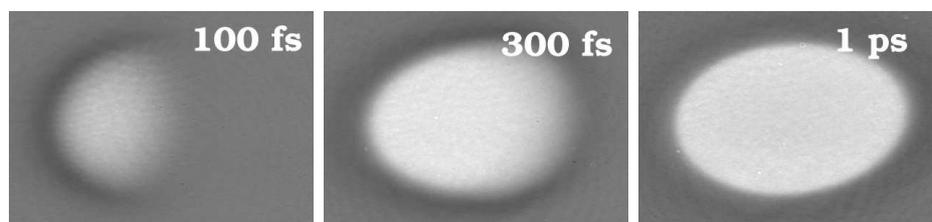


Abb. 20: Zeitaufgelöste Mikroskopie einer Si-Oberfläche während des Schmelzens.

Der Abfrageimpuls fällt unter einem Winkel auf die Probenoberfläche, so daß es zu einer Zeitverschmierung entlang der Horizontalen kommt. Dies ist der Grund, warum in der *Abb. 20* für 300 fs nur ein Teil der Probe angeregt ist, erkennbar an der erhöhten Reflektivität. Die stärkere Reflektivität kann interpretiert werden als Phasenübergang des Materials in eine metallische Flüssigkeit. Der Phasenübergang findet auf einer Zeitskala von wenigen 100 fs statt.

Das linke Bild in *Abb. 21* zeigt die Reflektivität einer angeregten Si-Schicht als Funktion der Wellenlänge zu verschiedenen Zeiten. Das verwendete spektrale Kontinuum wurde dabei durch Selbstphasenmodulation des Anregeimpulses erzeugt. Das gemessene Spektrum bei der Verzögerungszeit -120 fs stimmt mit dem theoretischen Spektrum der Festphase (gekennzeichnet mit „sol.“) überein. Für späte Verzögerungszeiten ähnelt der Verlauf des gemessenen Spektrums dem Spektrum der Flüssigphase (Kurve gekennzeichnet mit „liq.“). Dieser Übergang findet ebenfalls innerhalb von 300 fs statt.

Das rechte obere Bild in *Abb. 21* zeigt das Verschwinden der zweiten Harmonischen von einem GaAs Kristall¹⁵. Die Quelle der zweiten Harmonischen ist die induzierte nichtlineare Polarisierung. Die Erzeugung ist eine strukturempfindliche Metho-

¹⁵Beleuchtet man einen geeigneten Kristall mit einem intensiven kurzen Laserimpuls, so kann in Reflektionsrichtung ein frequenzverdoppelter optischer Impuls – die zweite Harmonische – beobachtet werden.

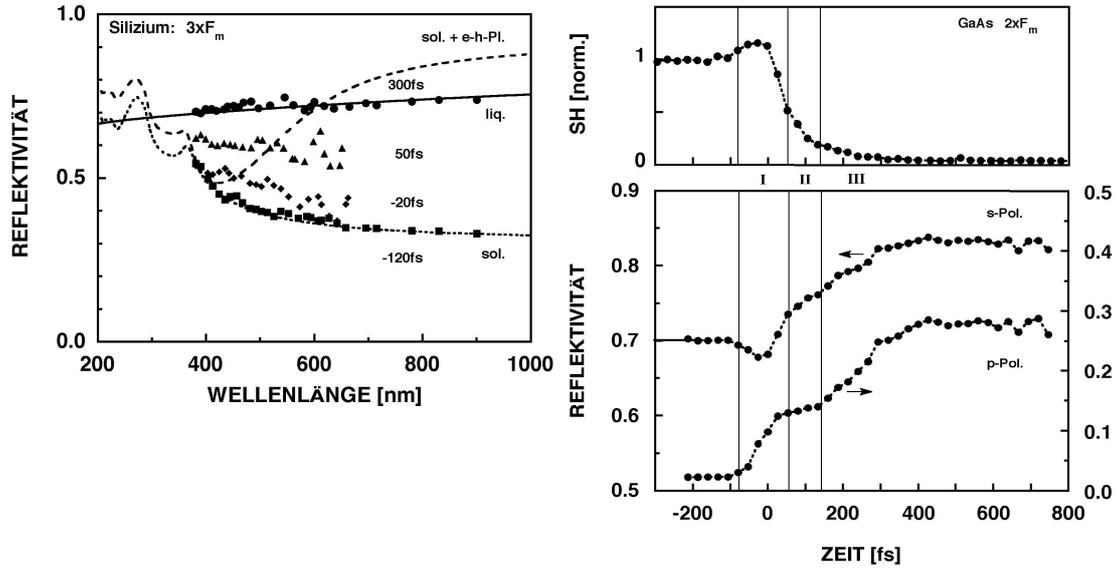


Abb. 21: Die linke Seite zeigt die zeitaufgelöste Reflektivität eines spektralen Kontinuums auf einem Si-Kristall.

Rechts ist das Verschwinden der zweiten Harmonischen bei Anregung eines GaAs Kristalls zu sehen.

de, da sich die Struktur- und Symmetrieeigenschaften des Materials im Tensor der nichtlinearen Suszeptibilität widerspiegeln. Für nicht inversionssymmetrische Kristalle (z. B. GaAs) verschwindet der Volumenbeitrag der nichtlinearen Suszeptibilität nicht, jedoch verschwindet diese beim Übergang zu inversionssymmetrischen Geometrien (z. B. isotrope Flüssigkeiten). Der Übergang zur Flüssigkeit ist also gekennzeichnet durch eine Abnahme der Erzeugung der zweiten Harmonischen. Simultan war es möglich, die Reflektivität der Probe bei der Wellenlänge der Fundamentalen des Lasers zu messen (Abb. 21 unteres Bild). Die Zeitskala der Phasenänderung zeigt hier ein ähnliches Verhalten wie bei Si. Die Schwelle für das ultraschnelle Schmelzen auf GaAs wurde mit einer Fluenz von 150 mJ/cm^2 bestimmt¹⁶. Unterhalb dieser Schwelle findet das normale thermische Schmelzen auf einer Zeitskala von einigen 10 ps statt. Auch für die Kristalle Indiumantimonid und Germaniumantimonid [80], Graphit [74] und Diamant [31] wird von ähnlichen experimentellen Resultaten berichtet.

Theoretische Arbeiten von Stampfli und Bennemann [82, 83] haben in Rechnungen den Zusammenhang zwischen Gitterstabilität und Ladungsträgerkonzentration für Si untersucht. Ihre Theorie führt zu einer notwendigen Schwellenkonzentration von

¹⁶Die Stärke der Anregung wird durch die Flächendichte der eingestrahlt Energie charakterisiert (Fluenz). Die SI-Einheit der Fluenz ist $[\text{J/m}^2]$.

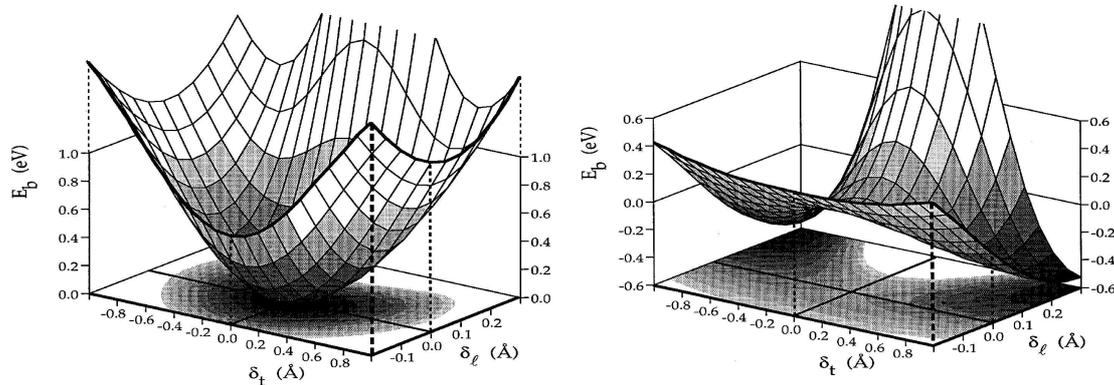


Abb. 22: Bindungsenergie E_b pro Atom in Si vs. Phononenauslenkung $\delta_{l,t}$ berechnet von Stampfli et al. [82, 83]. Das linke Bild zeigt die Bindungsenergie ohne Anregung eines Elektron-Loch Plasmas. Die ideale Diamantstruktur (keine Auslenkung) besitzt ein Minimum der anziehenden Energie. Das rechte Bild zeigt die Energieverteilung bei existierendem Elektron-Loch Plasma. In dieser Rechnung sind 15 % der Valenzelektronen ins Leitungsband angeregt. Das vorher stabile Minimum ist nun ein Sattelpunkt.

$1,5 \cdot 10^{22}$ Elektron-Loch Paare/cm³. Diese Konzentration reicht aus, um Instabilitäten zu induzieren, die zum ultraschnellen Schmelzen führen. Den Autoren war es möglich, die Bindungsenergie pro Atom als Funktion der transversalen und longitudinalen Phononenamplitude und als Funktion der Plasmadichte zu berechnen. Das Ergebnis dieser Rechnungen ist in Abb. 22 zu sehen. Das linke Bild zeigt die Bindungsenergie E_b im nicht angeregten Zustand als Funktion der Phononenamplitude. Im rechten Bild ist die Energie bei einer Elektron-Loch Konzentration von $3 \cdot 10^{22}$ 1/cm³ berechnet worden. Die Rechnung ohne Anregung zeigt erwartungsgemäß, daß die Atome in ihrer Ruhelage im Kristallgitter ein stabiles Minimum im effektiven Potential bei $\delta_l = 0$ und $\delta_t = 0$ annehmen. Bei der massiven Anregung zeigt die Rechnung aber, daß sich die Ursprungslage in einen instabilen Sattelpunkt verwandelt. Dadurch verwandeln sich die zuvor bindenden Kräfte in antibindende, sich abstoßende Kräfte. Stampfli und Bennemann zeigen, daß unter dem Einfluss der abstoßenden Kräfte die Atome nach 100 fs eine Versetzung von 1 Å durchführen (bei einem Bindungsabstand von 2,35 Å). Dies bedeutet, daß auf Grund des abstoßenden Potentials die Atome kinetische Energie gewinnen. Dies kann als direkte Aufheizung des Gitters interpretiert werden, ohne daß Elektron-Phonon-Stöße Energie an das Gitter übertragen müssen.

3.2.2 Zeitaufgelöste Messungen

Als Vorbereitung auf die Beugungsexperimente wurde in einem optischen Anrege-Abfrage-Experiment die Schmelzschwelle von Ge bestimmt. Es wurde eine Schwelle für die Fluenz von $F_{Sch}=0,050 \text{ J/cm}^2$ für p-polarisiertes Licht bei einem Einfallswinkel von 80° gemessen¹⁷. Dieser Winkel entspricht dem des Anregeimpulses im Röntgenexperiment. Um in den Bereich des extrem schnellen, nicht thermischen Schmelzens zu gelangen, wurden die Experimente bei Fluenzen von mindestens $2 F_{Sch}$ durchgeführt. Bei dem optischen Vorexperiment konnte durch Reflexionsmessung die Zeitskala der Phasenumwandlung bestimmt werden. Die Änderung der Reflektivität durch die Umwandlung von der Festphase in die Flüssigphase, welche eine höhere Reflektivität besitzt, findet innerhalb von 250 fs statt. Wird die Energie im Ge-Film schnell gleichverteilt, kann die gemessene Schmelzschwelle durch die Materialdaten verifiziert werden. Für diese und folgende Abschätzungen werden die Abkürzungen aus *Tab. 5* durchgehend verwendet.

Materialdaten Germanium	Symbol
Schmelztemperatur	$T_{M,Ge}$
spezifische Wärme (sol)	$c_{sol,Ge}$
Absorptionskoeffizient (sol @ 800 nm)	$1/\alpha_{sol,Ge}$
Schallgeschwindigkeit (sol)	$v_{sol,Ge}$
Dichte (sol)	$\rho_{sol,Ge}$
Kompressionsmodul (sol)	$B_{sol,Ge}$
lin. Ausdehnungskoeffizient (sol)	$\beta_{sol,Ge}$
latente Wärme	$L_{M,Ge}$
spezifische Wärme (liq)	$c_{liq,Ge}$
Schallgeschwindigkeit (liq)	$v_{liq,Ge}$
Kompressionsmodul (liq)	$B_{liq,Ge}$
lin. Ausdehnungskoeffizient (liq)	$\beta_{liq,Ge}$
Wärmeleitfähigkeit	$\eta_{sol,Ge}$

Tab. 5: Zusammenfassung der verwendeten Abkürzungen physikalischer Eigenschaften von Ge in verschiedenen Phasenzuständen (sol – Festkörper, liq – Flüssigkeit).

¹⁷die optischen Daten wurden von Herrn *Dr. Sokolowski-Tinten*, Universität Essen bestimmt.

Die Werte für die Materialdaten sind im Anhang in *Tab. 13* zusammengefaßt. Die temperaturabhängigen Werte von $v_{sol,Ge}$, $B_{sol,Ge}$ und $\beta_{sol,Ge}$ sind im Anhang in den *Abb. 64, 65* und *66* dargestellt. Die Schallgeschwindigkeit $v_{sol,Ge}$ bezieht sich im weiteren Text immer auf eine longitudinale Welle mit Ausbreitungsrichtung senkrecht zu den (111)-Ebenen. Sei F_{ein} die einfallende Flächenenergiedichte, F_{dep} die absorbierte Energiedichte, d die Ge-Filmstärke und R die Reflektivität der Ge-Schicht, so gilt folgende einfache Abschätzung:

$$F_{dep} = (1 - e^{-d\alpha_{sol,Ge}})(1 - R)F_{ein} . \quad (9)$$

Der Term $(1 - R)F_{ein}$ beschreibt die Nettoenergiedichte, die nach Reflexion an der Oberfläche im Material verbleibt. Der erste Term $(1 - e^{-d\alpha_{sol,Ge}})$ beschreibt nach dem *Beerschen Gesetz*, welcher Anteil der Energie bis zur Tiefe d absorbiert worden ist. Die Reflektivität bei einer Wellenlänge von 800 nm und einem Einfallswinkel von 80° beträgt *ca.* 0,03. An der Schmelzschwelle gilt:

$$F_{dep} = dc_{sol,Ge}(T_M - T_R) \quad (10)$$

wobei $T_R = 300$ K die Raumtemperatur ist. Setzt man (9) in (10) ein, erhält man eine Gleichung für die einfallende Energiedichte F_{ein} , die benötigt wird, um die Schmelzschwelle zu erreichen. Mit den angegebenen Materialdaten aus dem Anhang und der Filmstärke von 170 nm ergibt sich $F_{ein} = 0,056$ J/cm². Dieser Wert stimmt mit dem gemessenen nahezu überein.

Abb. 23 zeigt die gemessene Änderung der Reflektivität der Röntgenstrahlung für drei verschiedene Anregefluenzen. Das obere Bild zeigt den Verlauf auf einer Zeitskala bis zu 30 ps, während das untere Bild die Änderung innerhalb der ersten ps zeigt. Jeder Meßpunkt konnte auf Grund des nichtreversiblen Charakters des Experiments und der beschränkten Oberfläche nur einmal gemessen werden. Die Belichtungszeit betrug für ein Bild 70 s, bei einer Laserwiederholfrequenz von 10 Hz. Die Anzahl der Photonen pro Laserimpuls betrug *ca.* 9. Die Fehlerbalken von $\pm 3\%$ wurden dadurch ermittelt, daß exemplarisch ein Meßpunkt wiederholt gemessen und die Standardabweichung berechnet wurde. Der Fehler ist trotz der hohen Schwankungsbreite der einzelnen Röntgenimpulse (siehe *Abb. 13*) sehr moderat ausgefallen, da die Si-Linie zur Normierung ausgenutzt werden konnte. Die erste Auffälligkeit bei allen Kurven ist die schnelle Abnahme der Beugungseffizienz in den ersten 100 fs.

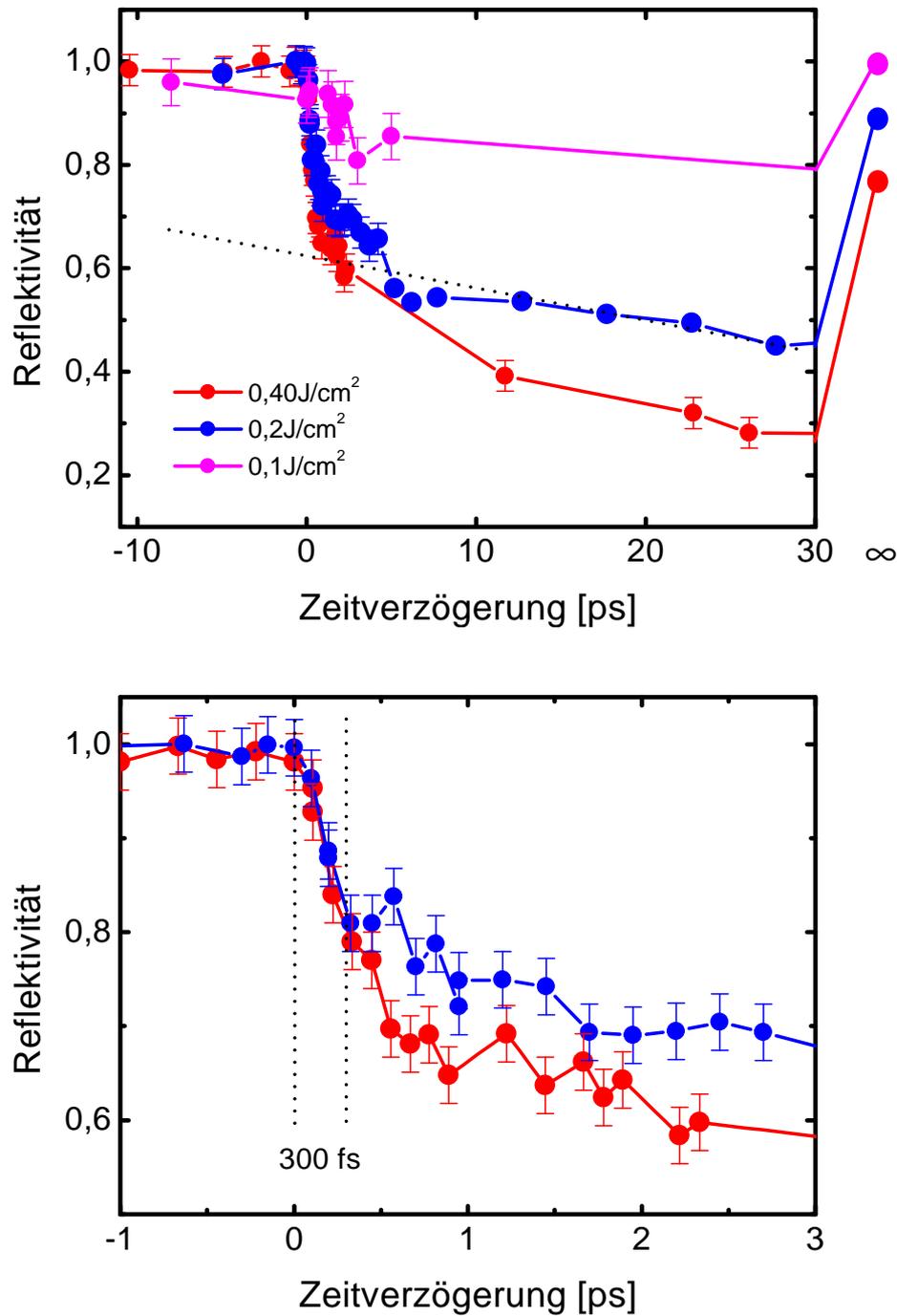


Abb. 23: Das obere Bild zeigt die gemessene Abnahme der Beugungseffizienz als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Röntgenimpuls und Anregimpuls. Die Daten sind für drei verschiedene Anregefluenzen 0,1, 0,2 und 0,4 J/cm² aufgenommen worden. Die gestrichelte schwarze Linie zeigt die Schmelzfrontgeschwindigkeit von 850 m/s für das thermische Schmelzen. Das untere Bild zeigt die extrem schnelle Abnahme auf einer fs-Zeitskala für die beiden höheren Energiedichten. Eine signifikante Reduktion der Reflektivität um 20 % findet unterhalb von 300 fs statt.

Für die Meßkurve bei einer mittleren Anregefluenz von $0,2 \text{ J/cm}^2$ fällt die Beugungseffizienz innerhalb der ersten 300 fs auf *ca.* 80 % ab. Nach diesem schnellen Abfall folgt eine langsame Abnahme, die auf einer Zeitskala bis über 100 ps hinaus mit Röntgenbeugung verfolgt wurde. Die Beugungseffizienz nimmt bei sehr späten Zeitpunkten wieder zu. Indem ein zuvor angeregtes Gebiet noch einmal ohne Anregeimpuls mit Röntgenstrahlung abgetastet wird, wurde exemplarisch für jede Fluenz ein Meßpunkt bestimmt, der in *Abb. 23* mit „ ∞ “ gekennzeichnet ist. Es wird eine Erholung der Effizienz bei allen Fluenzen gemessen, das bedeutet, daß die Ge-Schicht teilweise wieder epitaktisch (d. h. einkristallin) aufwächst.

Die beobachtete schnelle Abnahme ist ein Indiz dafür, daß ein Teil des Kristallfilms nicht-thermisch schmilzt. Das geschmolzene Volumen kann nicht mehr zur Beugung beitragen. Mit der kinematischen Näherung für Röntgenbeugung (6) kann die aufgeschmolzene Schichttiefe abgeschätzt werden¹⁸. Ist d_{liq} die aufgeschmolzene Schichtdicke, die nicht mehr zur Röntgenbeugung beiträgt, so ergibt sich aus der Proportionalität (6) die integrierte Reflektivität:

$$R_{int} \approx \frac{d - d_{liq}}{d}. \quad (11)$$

Die gemessene reduzierte Reflektivität von $R_{int} = 0,8$ bedeutet somit, daß eine nicht thermisch geschmolzene Schicht von *ca.* 40 nm existiert. Die erforderliche Schmelzfrontgeschwindigkeit (unter der Voraussetzung, daß die Oberfläche einen bevorzugten Nukleationskeim darstellt) wäre somit *ca.* 10^5 m/s und damit mehr als eine Größenordnung über der Schallgeschwindigkeit von Ge. Da die Schallgeschwindigkeit aber die Geschwindigkeit der Phasengrenze limitiert, ist dies ein Indiz dafür, daß es sich nicht um einen heterogenen Schmelzprozeß mit einer propagierenden Phasengrenze handeln kann [54]. Die spätere langsame Abnahme der Reflektivität wird mit dem klassischen thermischen Schmelzen erklärt. Die Schmelzfront (d. h. die Phasengrenze flüssig-fest) bewegt sich in die noch feste Ge-Schicht hinein. Mit dem Wachsen der flüssigen Schicht wird die Beugung weiter reduziert. Die Schmelzfrontgeschwindigkeit kann aus der Steigung der Meßdaten zu späten Zeitpunkten abgeschätzt werden. Dazu wird die gemessene Reflektivitätsänderung – mit Hilfe der kinematischen Näherung für Röntgenbeugung – in eine Schichtdickenänderung umgerechnet. Beispielsweise zeigt die eingezeichnete Tangente im oberen Bild von *Abb. 23* eine Schmelzfrontgeschwindigkeit von *ca.* 850 m/s für die Fluenz von $0,2 \text{ J/cm}^2$.

¹⁸Die Näherung ist gültig, da die Eindringtiefe von Ti-K α in der Geometrie für *Bragg*beugung an Ge (111) $0,66 \mu\text{m}$ für den s-polarisierten und $1,02 \mu\text{m}$ für den p-polarisierten Anteil beträgt [84].

Setzt man einen *gaußförmigen* Röntgenimpuls in der Zeit und eine instantane Antwort des Materials auf die Anregung (*Heavysidefunktion*) voraus, so läßt sich aus der Faltung der beiden Funktionen eine obere Grenze für die Dauer der Röntgenimpulse abschätzen. Hierzu wird die Halbwertsbreite des *gaußförmigen* Impulses auf den schnellen Abfall der Meßdaten in *Abb. 23* angepaßt. In *Abb. 24* sind als Beispiel die Meßdaten für die Anregefluenz $0,4 \text{ J/cm}^2$ bis zur Zeitverzögerung von 1 ps vergrößert dargestellt. Die blaue und grüne Funktion sind numerisch berechnete Faltungen einer *Gaußkurve* mit den Halbwertsbreiten von FWHM 250 fs bzw. 350 fs mit einer modifizierten *Heavysidefunktion*. Die Modifizierung besteht lediglich darin, daß die *Heavysidefunktion* am Zeitnullpunkt von der Reflektivität 1 auf 0,6 (und nicht wie üblich auf 0) springt. Diese Maßnahme ist notwendig, damit die Reflektivität der Meßdaten im langsamen Bereich anschließen. Die angepaßten Funktionen geben den Abfall der Meßdaten in diesem Bereich gut wieder – bis auf einen Ausreißer bei *ca.* 0,5 ps.

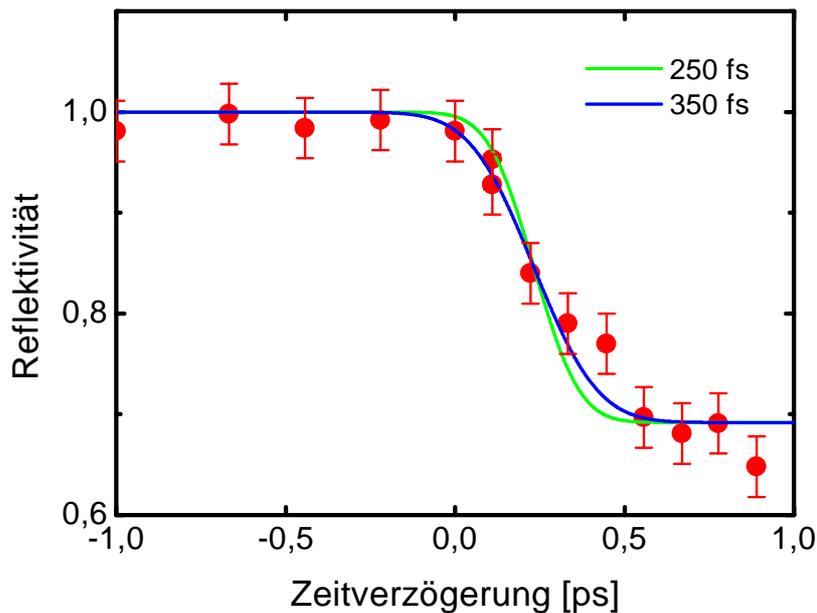


Abb. 24: Faltung einer *Gaußfunktion* mit einer modifizierten Sprungfunktion. Die rote Kurve entsteht bei der Faltung mit einer Halbwertsbreite FWHM von 250 fs, die grüne mit einer Halbwertsbreite FWHM von 350 fs. Die gemessenen Daten sind aus *Abb. 23* entnommen mit der Fluenz $0,4 \text{ J/cm}^2$.

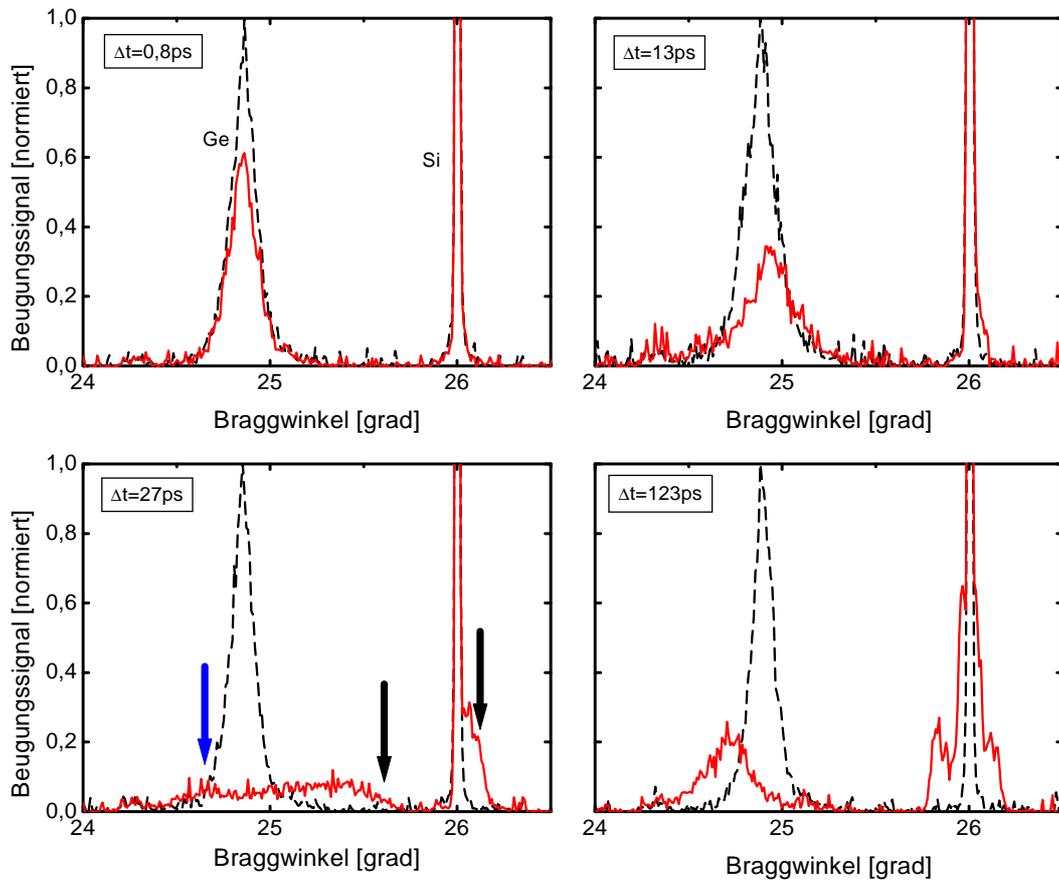


Abb. 25: Exemplarisch werden hier zeitaufgelöste Röntgenbeugungskurven für die Energiedichte von $0,2 \text{ J/cm}^2$ gezeigt. Die gestrichelte schwarze Linie ist jeweils das Normierungsbild. Die rot eingezeichnete Linie ist die gemessene Beugungskurve mit transienter Anregung.

Abb. 25 zeigt exemplarisch einige Röntgenbeugungsprofile bei verschiedenen Verzögerungszeiten Δt für die Fluenz $0,2 \text{ J/cm}^2$. Die schwarzen Kurven sind jeweils die aufgenommenen Röntgenbeugungskurven ohne Anregung der Probe und die roten Kurven mit Anregung der Probe. Die erste Auffälligkeit ist, daß die angeregte Röntgenbeugungskurve bei $\Delta t = 0,8 \text{ ps}$ keine Winkelverschiebung und keine Änderung in der Form im Vergleich zur Normierungskurve aufweist, aber bereits eine Reduzierung der Beugungseffizienz auf *ca.* 70% stattgefunden hat. Hieraus ergibt sich ein weiteres Indiz für das nichtthermische Schmelzen zu frühen Zeiten. Würde diese Reduzierung durch thermisches Aufheizen des Gitters erklärt werden, so könnte die Reduktion durch den klassischen *Debye-Waller*-Faktor beschrieben werden [98]. Daß dies nicht der Fall ist, liegt zum einen an der Zeit, die die Elektronen brauchen, um ihre Energie an das Gitter weiterzugeben. Die typische Zeitskala für die Anregung

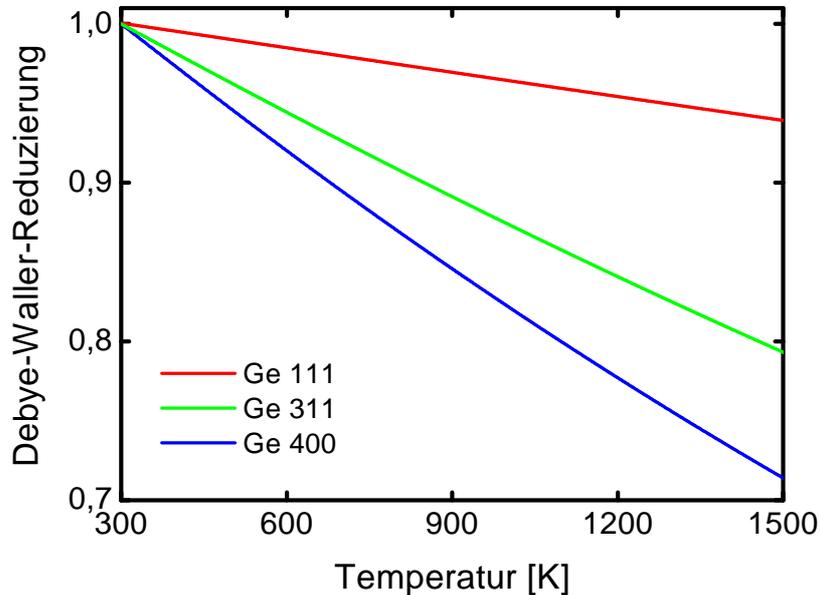


Abb. 26: Reduzierung des Beugungsvermögens durch den *Debye-Waller*-Faktor für die Reflexe von Ge (111) und (400).

von Phononen beträgt einige ps. Zum anderen ist die Stärke der beobachteten Abnahme für einen klassische *Debye-Waller*-Faktor zu groß. Der *Debye-Waller*-Faktor kann nach den Referenzen [34, 98] abgeschätzt werden. In Abb. 26 ist die Reduzierung des Beugungsvermögens auf Grund des *Debye-Waller*-Faktors als Funktion der Temperatur für unterschiedliche Ge-Reflexe berechnet worden¹⁹. In die Abschätzung geht die *Debye*-Temperatur T_D , die Wellenlänge der Röntgenstrahlung, der *Bragg*-winkel und die Atommasse ein. Die Materialkonstanten sind in Tab. 13 zusammengefaßt. Für die gemessene Beugungseffizienz des Ge (111)-Reflex von 70 % müßte die Temperatur über 6700 K betragen. Diese Temperatur ist um einen Faktor 2 größer als die Temperaturerhöhung, die aus der deponierten Laserenergie berechnet werden kann. Um diese Temperatur abzuschätzen, werden die Abkürzungen aus Tab. 5 weiterverwendet. In die Abschätzung gehen folgende Vereinfachungen ein:

- Wärmeleitung wird vernachlässigt.
- Während der Laserwechselwirkung entsteht ein stark absorbierendes Elektronen-Loch-Plasma. Die dadurch begründete Änderung der Absorptionskonstante während der Laserbestrahlung wird nicht berücksichtigt [79].

¹⁹Der *Debye-Waller*-Faktor für die anderen Ge-Reflexe wird noch einmal in dem Kapitel 4 Zusammenfassung und Ausblick benötigt.

- Die in den einzelnen Phasen (flüssige Ge-Schicht, feste Ge-Schicht, feste Si-Schicht) deponierte Energie soll sich gleichmäßig in diesen verteilen.

Die Energiedichte F_{ein} sei wieder die einfallende Energiedichte, F_{liq} und F_{sol} seien die Energiedichten, die in der flüssigen Ge-Schicht und im festen Ge deponiert worden sind. Analog zu (9) ergibt sich hier:

$$F_{liq} = (1 - R)F_{ein}(1 - e^{-\alpha_{sol,Ge}d_{liq}}) \quad (12)$$

$$F_{sol} = (1 - R)F_{ein}(e^{-\alpha_{sol,Ge}d_{liq}} - e^{-\alpha_{sol,Ge}d}). \quad (13)$$

Die Temperaturen in der Flüssigphase T_{liq} und in der Festphase T_{sol} ergeben sich in Analogie zu Gleichung 10:

$$T_{liq} = \frac{1}{c_{liq,Ge}} \left(\frac{F_{liq}}{d_{liq}} - c_{sol,Ge}(T_M - T_R) - L_{M,Ge} \right) + T_M \quad (14)$$

$$T_{sol} = \frac{1}{c_{sol,Ge}} \left(\frac{F_{sol}}{d - d_{liq}} \right) + T_R. \quad (15)$$

Das Einsetzen der Schichtdicken $d_{liq} = 40$ nm und $d = 170$ nm, der Materialkonstanten und einer Fluenz von $0,2$ J/cm² ergibt eine Temperatur in der Flüssigphase von $T_{liq} = 3370$ K und eine stark überhitzte Festphase von $T_{sol} = 3250$ K. Wie bereits vermerkt, sind diese Temperaturen um einen Faktor 2 kleiner als die aus der *Debye-Waller* Abschätzung. Vollständigkeitshalber soll an dieser Stelle auch die Temperatur im Si-Substrat abgeschätzt werden. Die Materialdaten, die hierzu benötigt werden, sind im Anhang in *Tab. 14* zusammengefaßt. Es werden folgende Abkürzungen für die Materialeigenschaften von Si verwendet:

Materialdaten Silizium	Symbol
spezifische Wärme (sol)	$c_{sol,Si}$
Absorptionskoeffizient (sol @ 800 nm)	$1/\alpha_{sol,Si}$
Schallgeschwindigkeit (sol)	$v_{sol,Si}$
Kompressionsmodul (sol)	$B_{sol,Si}$
lin. Ausdehnungskoeffizient (sol)	$\beta_{sol,Si}$

Tab. 6: Zusammenfassung der verwendeten Abkürzungen physikalischer Eigenschaften von Si in verschiedenen Phasenuständen (sol – Festkörper, liq – Flüssigkeit).

Die deponierte Energie im Si-Substrat F_{Si} wird analog zu den vorherigen Gleichungen beschrieben durch:

$$F_{Si} = (1 - R_{Ge})e^{-\alpha_{sol,Ge}d}(1 - R_{Ge-Si})F_{ein}(1 - e^{-\alpha_{sol,Si}d_{Si}}) \quad (16)$$

$$\approx (1 - R_{Ge})e^{-\alpha_{sol,Ge}d}(1 - R_{Ge-Si})F_{ein}. \quad (17)$$

Die Näherung der letzten Exponentialfunktion ergibt sich aus der Größenordnung der Argumente. $R_{Ge-Si} \approx 0,11$ ist die Reflektivität am Übergang von Ge-Si. Die Temperatur T_{Si} ergibt sich aus:

$$T_{Si} = F_{Si} \frac{\alpha_{sol,Si}}{c_{sol,Si}} + T_R. \quad (18)$$

Die Rolle der absorbierenden Schichtstärke übernimmt hier wegen $1/\alpha_{sol,Si} \ll d_{Si}$ der Absorptionskoeffizient. Durch Einsetzen der Materialparameter ergibt sich eine Temperatur von $T_{Si} \approx 550$ K.

Die einzelnen Schichten stehen unter hohem Druck. Unter der flüssigen Ge-Schicht befindet sich eine intakte, heiße, unter Druck stehende kristalline Schicht aus Ge. Aus den Temperaturen ist es ebenso möglich, die Drücke in den einzelnen Schichten abzuschätzen. Dazu wird im folgenden ein Modell verwendet, was in *Abb. 27* skizziert ist. Da die Zeit während der Laserwechselwirkung für eine Expansion des Materials nicht ausreicht, wird das Material isochor, d. h. bei konstantem Volumen $dV = 0$ aufgeheizt. Im pV -Diagramm ist dieser Vorgang durch die vertikale Isochore verdeutlicht²⁰. Der Volumenausdehnungskoeffizient γ ist mit dem linearen Ausdehnungskoeffizient β durch die Gleichung $\gamma \approx 3\beta$ verknüpft²¹. Das totale Differential des Druckes $p(T, V)$ lautet:

$$dp = \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_V dT + \left(\frac{\partial p}{\partial V} \right)_T dV. \quad (19)$$

²⁰Die nachfolgende Entspannung des Materials ist in *Abb. 27* als Adiabate gezeichnet worden. Der adiabatische Charakter wird in den folgenden Abschätzungen nicht benötigt. Es sei jedoch noch eine Begründung für die nahezu adiabatische Expansion, d. h. ohne Wärmeaustausch gegeben: Das Temperaturgefälle, das sich über eine Länge von l , erstreckt baut sich auf einer typischen Zeitskala von $\tau = \frac{l^2 \rho_{sol,Ge} v_{sol,Ge}}{\eta_{sol,Ge}}$ ab. Für eine typische Skalenlänge von 100 nm ergibt sich eine thermische Relaxationszeit für Ge von $\tau \approx 5$ ns. Folglich ist der Wärmeaustausch auf der hier untersuchten Zeitskala von ≈ 100 ps vorerst nicht entscheidend.

²¹Dehnt sich ein Würfel mit der Kantenlänge L auf die neue Kantenlänge $L + \delta$ aus, so ändert sich das Volumen um ΔV . Es ergibt sich $(L + \delta)^3 = V + \Delta V$. Ist die Ausdehnung $\delta \ll L$, so können Terme in höherer Ordnung von δ vernachlässigt werden. Mit dem linearen Ausdehnungskoeffizienten β wird δ zu: $\delta = \beta L \Delta T$. Es ergibt sich $\Delta V/V = 3\beta \Delta T + O(\delta^2) \approx \gamma \Delta T$.

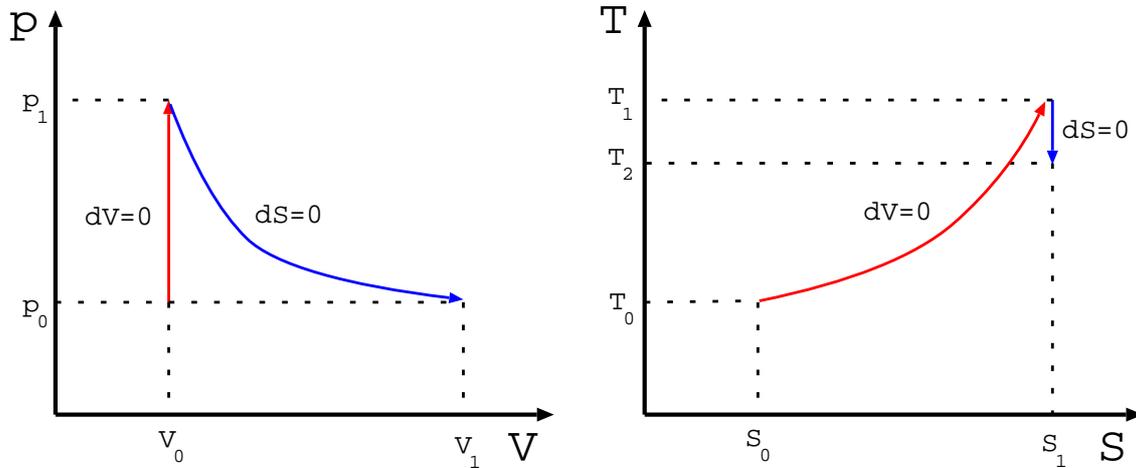


Abb. 27: Isochores Heizen bei der Laserwechselwirkung und anschließende adiabatische Entspannung des Materials.

Die Indizes an den partiellen Ableitungen bedeuten jeweils, daß die Variable konstant zu belassen ist. Kann die Volumenausdehnung vernachlässigt werden, so fällt der zweite Term in (19) weg. Mit der Definition des Volumenausdehnungskoeffizienten bei konstantem Druck p und der isothermen Kompressibilität κ :

$$3\beta = \frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial T} \right)_p \quad \kappa = \frac{1}{B} = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial p} \right)_T \quad (20)$$

wird in Standardwerken der Thermodynamik die Beziehung zwischen hydrostatischem Druck und Temperaturerhöhung bei konstantem Volumen aus (19) und (20) hergeleitet [100]:

$$dp = \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_V dT = 3\beta B dT \quad (21)$$

Zur Integration werden die Interpolationen der Materialparameter B und β aus den Abb. 65 und 66 (im Anhang) verwendet. Die Materialkonstanten sind in Abhängigkeit der Temperatur im expandierten Zustand (also bei $p = 0$) gemessen worden, so daß die Druckabhängigkeit bei der Integration vernachlässigt werden muß²². Die Integration wird vom Druck $p = 0$ bei Rautemperatur $T_R \approx 300$ K bis zum gesuchten

²²Da die intakte Ge-Schicht in einem extrem überhitzten Phasenzustand vorliegt, gibt es für diesen Bereich keine gesicherten Meßdaten für β , B und die Schallgeschwindigkeit. Die Werte können nur aus den bekannten Meßdaten extrapoliert werden. Die Funktionen, die die genäherten Werte beschreiben, haben keinen Anspruch auf Richtigkeit in diesem Extrembereich der Materie; so sind die hier berechneten Drücke nur Richtwerte.

Druck $p(T)$ bei der Tempertatur T durchgeführt:

$$\Rightarrow p(T) = \int_{T_R}^T 3\beta B dT. \quad (22)$$

Der Druck in der flüssigen Ge-Schicht kann unter Verwendung der Materialparameter B_{liq} und β_{liq} in der Flüssigphase aus *Tab. 13* abgeschätzt werden. Die numerisch ausgewertete Integration ist in *Abb. 67* im Anhang abgebildet. *Tab. 7* faßt die abgeschätzten Temperaturen und Drücke zusammen.

Schicht	Temperatur	Druck
flüssiges Ge	3 370 K	≈ 10 GPa
festes Ge	3 250 K	≈ 5 GPa
festes Si	550 K	$\approx 0,3$ GPa

Tab. 7: Abgeschätzte Temperaturen und Drücke, die sich ergeben, wenn die eingestrahlte Fluenz von $0,2 \text{ J/cm}^2$ zu Grunde gelegt wird.

Das Druckprofil ist schematisch in *Abb. 28* dargestellt. Aus diesem anfänglichen Druck- und Spannungsprofil entwickelt sich eine Vielzahl von verschiedenen akustischen Störungen. Um die Druckunterschiede in den einzelnen Schichten auszugleichen, muß von den Grenzflächen $\text{Ge}_{liq-sol}$ und $\text{Ge}_{sol-Si_{sol}}$ eine Kompressionswelle in den Bereich mit niedrigerem Druck und eine Expansionswelle in den Bereich mit höherem Druck propagieren. Da sich das Material an der Oberfläche $\text{Ge}_{vac-liq}$ auch zur Vakuumseite ausdehnt, entsteht an der Oberfläche eine Verdünnungswelle, die in das Material hineinläuft. Das untere Bild in *Abb. 28* verdeutlicht die unterschiedlichen akustischen Wellen. Effekte senkrecht zur Oberflächennormalen können auf Grund der Dimensionen vernachlässigt werden. Die mit Röntgenstrahlung abgefragte Fläche ist wesentlich kleiner als die angeregte. Die Verdünnungswellen – welche senkrecht zum Normalenvektor (lateral) propagieren – beeinflussen das abgefragte Gebiet erst zu Zeiten von $t = s/v$, wobei v die Schallgeschwindigkeit parallel zu den (111)-Ebenen ist und s die Wegstrecke bis zum abgefragten Gebiet. Bei der Wegstrecke s ist zu beachten, daß die Flecken auf der Probe durch den *Bragg*winkel in der Horizontalen gestreckt sind. Für die kürzere vertikale Achse beträgt s ungefähr $80 \text{ }\mu\text{m}$ ²³. Die Schallgeschwindigkeit beträgt einige 1000 m/s . Es ergeben sich somit Laufzeiten von einigen 10 ns . Für die längere Achse sind die Laufzeiten entspre-

²³ $(250 - 80)/2 \text{ }\mu\text{m}$, $250 \text{ }\mu\text{m}$ ist der Durchmesser des Anregeimpulses, $80 \text{ }\mu\text{m}$ der Durchmesser des Röntgenfokusses.

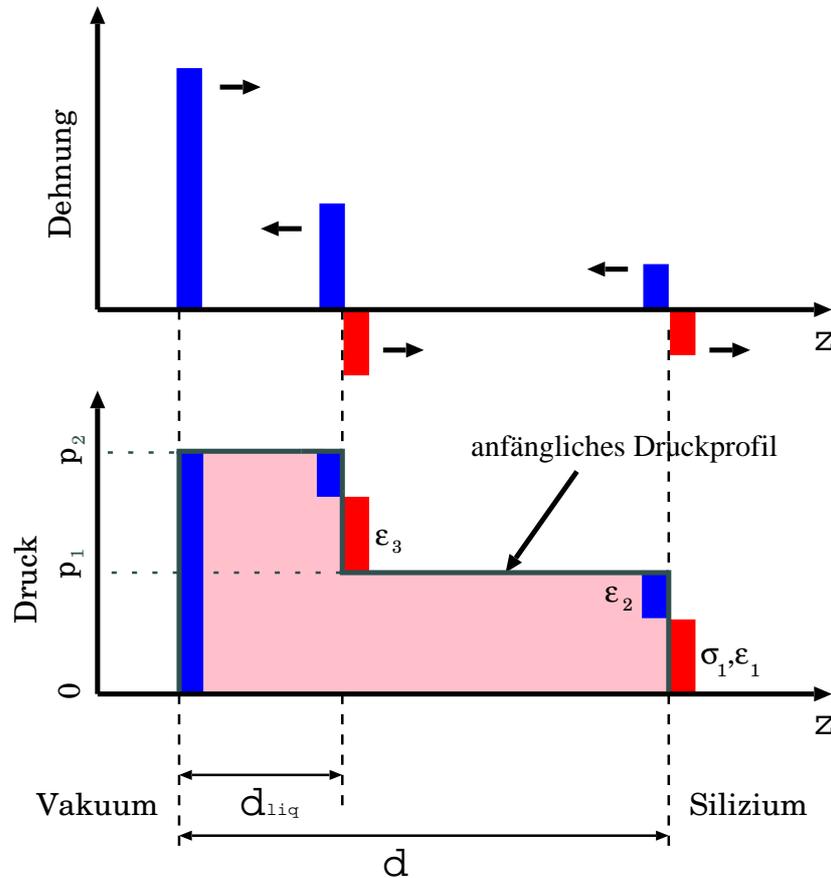


Abb. 28: Entstehung von verschiedenen akustischen Störungen nach Thermalisierung der optischen Energie. Die Propagationsrichtung der Welle ist parallel zur Oberflächennormalen. Die blauen Amplituden besitzen eine positive Dehnung und sind somit Expansionswellen; die roten Amplituden stellen Kompressionswellen dar. Die eingezeichneten Pfeile verdeutlichen die Ausbreitungsrichtung der Wellen. d_{liq} ist die ultraschnell aufgeschmolzene Ge-Schicht von 40 nm und d die Stärke der Ge-Schicht von 170 nm.

chend länger. Abb. 29 verdeutlicht diesen Sachverhalt noch einmal. Auf Grund der Laufzeitdifferenzen ist nicht zu erwarten, daß in dem hier betrachteten Zeitbereich laterale Effekte auftreten. Zudem werden laterale Effekte nach dieser Laufstrecke abgedämpft sein, so daß diese nicht mehr das abgefragte Volumen beeinflussen können. Auf Grund der *Bragg*bedingung ist es nur möglich, Effekte in Richtung des Normalenvektors der beugenden Ebenen (hkl) zu vermessen²⁴. Der wichtigste Punkt dieser Betrachtung ist, daß die „Seitenwände“ des abgefragten Volumens starr sind, und eine Ausdehnung (engl.: strain) nur in Richtung der Oberflächennormalen stattfinden kann (uniaxiale Dehnung).

Die einzelnen akustischen Störungen beeinflussen sich nicht für Zeiten, die kürzer

²⁴in dieser Arbeit also immer in Richtung der Oberflächennormalen.

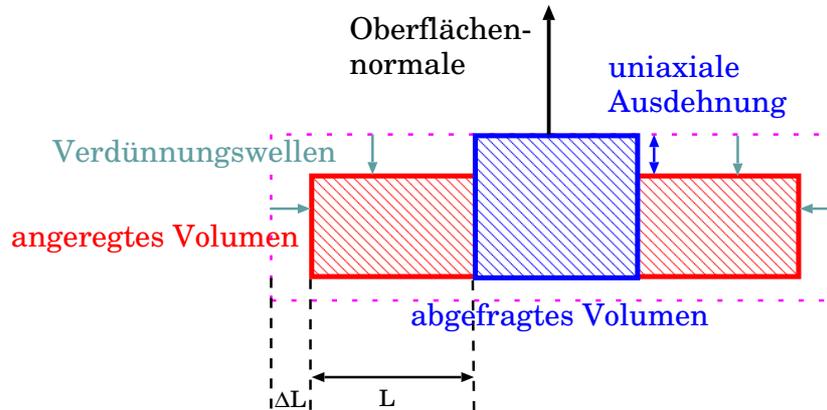


Abb. 29: Effekte senkrecht zur Oberflächennormalen können auf Grund der Dimensionen vernachlässigt werden. Das angeregte Volumen, hier rot gezeichnet, soll sich gleichmäßig zu allen Seiten ausdehnen. Die Verdünnungswellen – mit der Propagationsrichtung senkrecht zur Oberfläche – treffen wegen der Abstände in den mit Röntgenstrahlung abgefragten Bereich (blau markiert) viel später auf als die Wellen, welche an der Oberfläche entstehen und in das Material hineinlaufen. Da das Material an der Seite des abgefragten Gebiets vorerst unbeeinflusst bleibt, kann eine Ausdehnung nur in Richtung der Oberflächennormalen stattfinden.

sind, als die, die die Störung benötigt, um eine Phasenschicht zu durchlaufen (für die intakte Ge-Schicht von 130 nm und der Schallgeschwindigkeit für die Festphase beträgt die Zeit *ca.* 23 ps). Da die akustische Impedanz an der Grenzfläche $\text{Ge}_{\text{sol}}\text{-Si}_{\text{sol}}$ nicht angepaßt ist, werden die akustischen Wellen an dieser Grenzfläche reflektiert. Durch die Superposition von einfallender Welle und reflektierter Welle wird die Situation mit zunehmender Zeit komplizierter. Im weiteren zeitlichen Verlauf werden die Wellen gedämpft, bis sie zum Stillstand kommen.

Die ersten meßbaren Effekte sollten also eine Kompression der heißen aber noch intakten Ge-Schicht sowie schwächere Kompression der Si-Schicht sein. Durch die Änderung des Netzebenenabstandes wird sich die Röntgenbeugungskurve zu anderen *Bragg*winkeln verschieben. Bildet man das Differential d/dg auf beiden Seiten der *Bragg*gleichung (2), so entsteht:

$$\varepsilon = \frac{\Delta g}{g} = -\frac{1}{\tan \theta_B} \Delta \theta. \quad (23)$$

Dies bedeutet, daß eine gemessene Änderung des *Bragg*winkels $\Delta \theta$ die Folge eines geänderten Netzebenenabstandes Δg ist. Aus den verschobenen Beugungskurven läßt sich die relative Änderung des Netzebenenabstandes (bzw. die Dehnung) $\varepsilon = \Delta g/g$

berechnen. Folgende Vorzeichenkonventionen werden durchgehend verwendet:

$$\Delta\theta \begin{cases} < 0 \rightarrow \Delta g/g > 0 & \text{Expansion} \\ > 0 \rightarrow \Delta g/g < 0 & \text{Kompression.} \end{cases} \quad (24)$$

Die Röntgenbeugungskurve für die frühe Verzögerungszeit von 13 ps in *Abb. 25* zeigt in der Tat eine Kompression²⁵. Im Vergleich zum Normierungsbild ist deutlich zu erkennen, daß die Ge-Linie zu größeren *Bragg*winkeln verschoben ist. In der Si-Linie ist ebenfalls eine schwächere Schulter in derselben Richtung zu erkennen. Die unterschiedlichen Stärken der Effekte sind dadurch zu erklären, daß der Druck in den vorderen Schichten wesentlich größer ist, da die optische Energie bis zu einer Tiefe von *ca.* 40 bis 50 nm deponiert wurde. Zu erwarten ist, daß die Verdünnungswelle von der Oberfläche die intakte Ge-Schicht nach einer Zeit $t > d_{liq}/v_{liq} \approx 15$ ps beeinflusst. Die Verdünnungswelle ist in der Beugungskurve für 27 ps zu beobachten (blauer Pfeil in *Abb. 25*). Es entsteht bei kleineren *Bragg*winkeln ein neues Seitenband in Koexistenz mit dem bereits bestehenden bei höheren *Bragg*winkeln. Die Form der Beugungskurve bedeutet, daß im Ge komprimierte wie expandierte Bereiche gleichzeitig existieren.

Es folgt eine qualitativere Auswertung der Verschiebung der Beugungskurven in *Abb. 25* bei 27 ps. In den folgenden Abschätzungen werden für die einzelnen Schichten die Indizes aus *Abb. 28* verwendet.

Die transiente Spannung σ (die Druckamplitude der Welle) ergibt sich aus der Definition der Schallgeschwindigkeit für Festkörper und dem *Hookschen* Gesetz (im weiteren wird auf die *Millerschen* Indizes verzichtet):

$$\text{Schallgeschwindigkeit: } v = \sqrt{\frac{B}{\rho}} \quad \text{Hooksches Gesetz: } \sigma = B\varepsilon \quad (25)$$

$$\rightarrow \sigma = \rho v^2 \varepsilon. \quad (26)$$

Der schwarze Pfeil über der Si-Linie in *Abb. 25* kennzeichnet eine gemessene Dehnung von $\varepsilon_1 = -0,005$ im Si. Mit den Materialparametern von Si aus dem Anhang und (26) ergibt sich eine Druckamplitude von $\sigma_1 = 1$ GPa. Der zweite schwarze Pfeil über der Ge-Linie kennzeichnet eine Dehnung von $\tilde{\varepsilon} = -0,02$, dies entspricht einer

²⁵Es sei darauf hingewiesen, daß hier ein rein akustischer Effekt gemessen wird. Würde es sich um einen thermischen Effekt handeln, würde dies bedeuten, daß eine Temperaturerhöhung eine Kompression zur Folge hätte.

Druckamplitude von $\tilde{\sigma} = 3,3$ GPa. Da das Beugungsprofil von Ge bereits aus expansiven und kompressiven Anteilen besteht, wird die anfängliche Druckamplitude größer gewesen sein, als die hier gemessene.

Im nächsten Schritt wird der absolute Druck in den einzelnen Schichten berechnet. Für eine Kompressions- bzw. Verdünnungswelle die von einem Gebiet l nach k läuft gilt allgemein:

$$\varepsilon_{l \rightarrow k} = (p_k - p_l) \frac{1}{(\rho_k v_k + \rho_l v_l) v_k} . \quad (27)$$

Angenommen, daß das Si-Substrat unter dem anfänglichen Druck $p = 0$ steht, läßt sich mit (27) und der gemessenen Kompression ε_1 der absolute Druck in der festen Ge-Schicht auf $p_1 = 2,4$ GPa abschätzen. Danach läßt sich mit (27) ebenso die Dehnung der Verdünnungswelle ε_2 , die von der Si-Ge Grenzfläche in das feste Ge propagiert, berechnen. Es ergibt sich $\varepsilon_2 = 8,4 \cdot 10^{-3}$. Mit Hilfe der gemessenen Kompression $\tilde{\varepsilon} = -0,02$ – die bereits eine Überlagerung von expansiven und kompressiven Anteilen ist – läßt sich die Dehnung der anfänglichen Kompressionswelle ε_3 , die von der flüssigen Ge-Schicht in das feste Ge hineinläuft, abschätzen:

$$\tilde{\varepsilon} = \varepsilon_2 + \varepsilon_3 . \quad (28)$$

Mit $\varepsilon_3 = -28,4 \cdot 10^{-3}$ und dem bekannten Druck p_1 im festen Ge, ergibt sich mittels (27) der anfängliche Druck im flüssigen Ge-Film von 9,4 GPa.

Da hier das anfängliche Druckprofil abgeschätzt wurde, können mit Hilfe von (21) die Temperaturen im Ge berechnet werden (siehe Integration *Abb. 67* im Anhang). Es ergibt sich folgende zusammenfassende Tabelle der gemessenen Drücke und Temperaturen:

Schicht	Temperatur	Druck
flüssiges Ge	3240 K	9,4 GPa
festes Ge	1800 K	2,4 GPa

Tab. 8: Abgeschätzte Temperaturen und Drücke mit Hilfe der Verschiebungen in den Röntgenbeugungskurven für die Fluenz von $0,2 \text{ J/cm}^2$.

Der Vergleich zwischen den *Tab. 8* und *7* zeigt, daß die Werte in der Größenordnung übereinstimmen. Der Temperaturunterschied zwischen gemessenen und mit Hilfe der

Laserfluenz abgeschätzten Werten beträgt für die flüssige Ge-Schicht lediglich 4%. Für die feste Ge-Schicht ergibt sich jedoch, daß die abgeschätzten Werte um einen Faktor 2 größer sind als der aus der Messung der Dehnung. Eine Fehlerquelle hierbei ist die Nichtbeachtung der Wärmeleitung bei der Abschätzung mit Hilfe der Laserfluenz. Auf Grund der extremen Temperaturgradienten, kann es zu einer nicht zu vernachlässigenden Aufheizung der Si-Schicht kommen.

In der Beugungskurve für 123 ps in *Abb. 25* sind die akustischen Störungen ausgeklungen, und es wird angenommen, daß die Ge-Schicht im thermisch expandierten Zustand (also bei $p = 0$) vorliegt. Das bedeutet die Verschiebung der Beugungskurve zu kleineren *Bragg*winkeln, wie es in der gemessenen Kurve auch zu sehen ist. Die Verschiebung der Beugungskurve von Ge zeigt eine Änderung der Gitterkonstanten von $\epsilon_{th} \approx 0,008$. Eine uniaxiale, thermische Ausdehnung in der (111)-Richtung eines kubischen Kristalls ist wie folgt mit der Temperatur verknüpft [34]:

$$d\epsilon_{th} = \frac{3B\beta}{v_{111}^2\rho}dT. \quad (29)$$

Die Integration erstreckt sich hier von der Dehnung $\epsilon_{th} = 0$ bei der Raumtemperatur $T_R = 300$ K bis zur gemessenen thermischen Ausdehnung $\epsilon_{th}(T)$ bei der gesuchten Temperatur T. Die durchgeführte Integration ist im Anhang in *Abb. 68* abgebildet. Es ergibt sich für die gemessene Dehnung in der Ge-Schicht eine Temperatur von *ca.* 1 100 bis 1 200 K. Dieser Wert liegt in der Nähe der Schmelztemperatur. Daraus folgt, daß flüssiges und festes Ge sich im Gleichgewicht befinden. In der Si-Linie sind deutlich expansive und kompressive Anteile zu erkennen.

3.3 Experimente an dünnen Wismutschichten

3.3.1 Struktureigenschaften und optische Phononen

Ziel der durchgeführten Experimente an Wismutschichten ist die erste zeitaufgelöste Messung einer kohärenten Gitterschwingung („optische A_{1g} -Mode“) mit der Methode der zeitaufgelösten Röntgenbeugung mit subps-Zeitauflösung. Die Methode der Röntgenbeugung ist für dieses Experiment geeignet, da die Gitterschwingung die Beugungseffizienz als Funktion der Phononenamplitude – und somit in der Zeit – moduliert. Zu Beginn dieses Kapitels wird die Struktur von Bi diskutiert. Das ist notwendig, um die *Bragg*winkel berechnen und die Änderung der Beugungseffizienz durch die optische A_{1g} -Mode abschätzen zu können. Im Anschluß daran wird beschrieben, durch welche Mechanismen die Schwingung angeregt wird. An dieser Stelle wird auf die sogenannte DECP-Theorie zurückgegriffen (engl.: displacive excitation of coherent phonons). Diese ist für Halbmetalle und Halbleiter mit A_1 -Symmetrie entwickelt worden [44, 99]. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Ideen der Theorie beschrieben, für tiefergehende Betrachtungen sei auf die angegebenen Referenzen verwiesen. Da das Phononenfeld auch die Reflektivität in optischen Anrege-Abfrage-Experimenten moduliert, werden Resultate dieser Experimente, durchgeführt von anderen Arbeitsgruppen [19, 27, 99], zusammengefaßt. Das ermöglicht einen Vergleich der gemessenen Phononenamplituden und Phononenfrequenzen zwischen optischem Experiment und Röntgenexperiment.

In kristalliner Form kommt Bi in der A7 oder α -Arsen Struktur vor. Die *Bravais* Einheitszelle von Bi kann durch eine leichte rhomboedrische Verformung der fcc-Struktur (engl.: face-centered-cubic) abgeleitet werden. *Abb. 30* zeigt die Struktur mit einigen Details, die wie folgt erläutert werden. Die geometrischen Daten wurden mit Hilfe der Literaturwerte [33] berechnet: Die Winkel zwischen den primitiven Vektoren (rot eingezeichnet) würden bei einem echten fcc-Gitter jeweils 60° betragen. Durch die rhomboedrische Störung beträgt der Winkel $57,23^\circ$, und die Vektoren haben eine Länge von $4,746 \text{ \AA}$. Die Verbindungslinien, die den Kubus beschreiben (schwarz gestrichelte Linien), stehen nicht exakt rechtwinklig aufeinander wie in der fcc-Struktur, sondern der Winkel ist $87,53^\circ$. Die Kantenlänge des Kubus beträgt $6,572 \text{ \AA}$, die Raumdiagonale beträgt $R = 11,862 \text{ \AA}$. In *Abb. 30* symbolisieren die schwarzen Punkte Gitterpunkte, die zur *Bravais* Zelle gehören, und die blauen Punkte Gitterpunkte, welche zur primitiven rhomboedrischen Zelle gehören. Die primitive Basis des Gitters besteht aus je zwei Wismutatomen, die fast um die Hälfte der

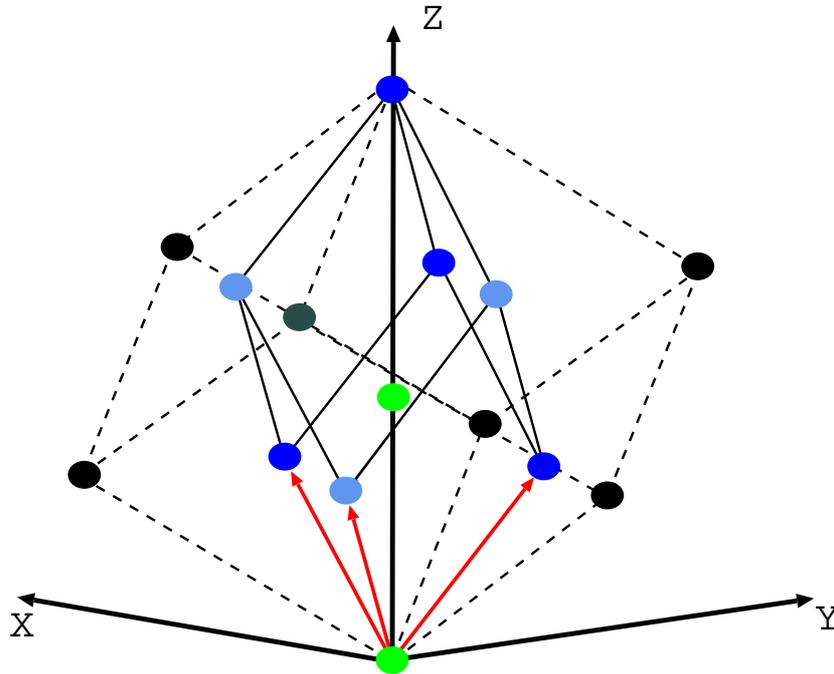


Abb. 30: fcc-Struktur von Bi. Die roten Vektoren spannen die primitive rhomboedrische Einheitszelle auf.

Raumdiagonale $(0, 468 R)$ gegeneinander versetzt sind. Beispielsweise stellen die grünen Punkte zwei Atome dar, deren Gitterpunkt sich im Ursprung des Koordinatensystems befindet. Der nächste Nachbarabstand ist z. B. gegeben durch den Abstand zwischen dem zweiten Atom in der Basis, das sich auf der Hälfte der Raumdiagonale befindet, und einem Atom, das sich im Zentrum einer der unteren Seitenflächen des Kubus befindet. Der nächste Nachbarabstand beträgt $3,072 \text{ \AA}$. Die Beschreibung der (111) -Ebenen ist in den beiden Systemen fcc-Zelle oder rhomboedrische primitive Einheitszelle äquivalent. Der (111) -Ebenenabstand beträgt $d_{111} = 3,954 \text{ \AA}$. Um die Struktureigenschaften zu überprüfen, wurde eine Röntgenbeugungskurve mit einer kommerziellen Cu-Röntgenröhre Abb. 31 aufgenommen. Mit den bisher gegebenen Daten ist es möglich, aus der Bragggleichung (2) die Beugungswinkel zu bestimmen. Tab. 9 ergibt sich für die Ti- $K\alpha$ - und Cu- $K\alpha$ -Energien. Die berechneten Zahlenwerte aus Tab. 9 für Cu- $K\alpha$ und den gemessenen Winkeln aus Abb. 31 stimmen überein. Hier sei bereits auf das Problem hingewiesen, daß der angebotene Winkelbereich des Röntgenspiegels nicht mehr ausreicht, um die Si-Linie und die Bi-Linie gleichzeitig zu beugen. Damit ist eine Normierung des Röntgenflusses nicht mehr möglich, wie das bei den Schmelzexperimenten auf den Si-Ge Proben der Fall war.

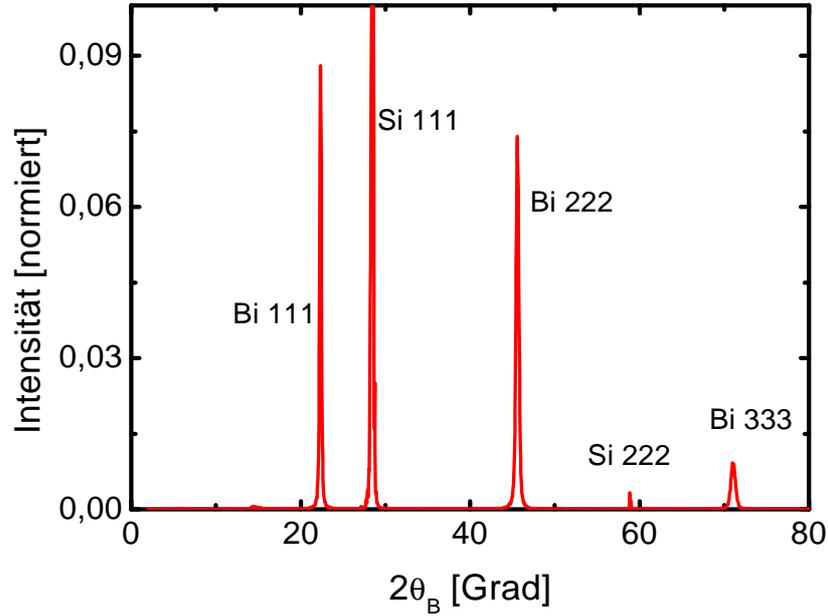


Abb. 31: Röntgenbeugungskurve von Bi, aufgenommen mit einer Cu-K α -Röntgenröhre. Das Maximum des Si (111)-Peaks ist auf 1 normiert.

Linie	Energie [keV]	Si (111) [°]	Si (222) [°]	Bi (111) [°]	Bi (222) [°]
Ti-K α_1	4,510	26,000	61,251	20,342	44,047
Ti-K α_2	4,504	26,040	61,403	20,373	44,127
Cu-K α_1	8,048	14,221	29,428	11,234	22,931
Cu-K α_2	8,028	14,257	29,509	11,262	22,991

Tab. 9: Berechnete Braggwinkel θ_B für Bi und Si in der Beugungsrichtung (111) und (222).

Als optische A_{1g} -Mode wird eine longitudinale Gitterschwingung entlang der Raumdiagonale (in Abb. 30 die z-Achse) bezeichnet. Bei der Oszillation ändert sich der Abstand der beiden Atome in der Basis. Eine besondere Eigenschaft der Mode ist, daß die Schwingung die Kristallsymmetrie nicht beeinflußt. Die rhomboedrische Verzerrung der fcc-Struktur wird stabilisiert durch den *Peierls-Jones-Mechanismus* [49]. Die Abweichung von der perfekten fcc-Struktur ist für den Kristall energetisch günstiger. Durch die Verzerrung öffnet sich eine Energielücke unterhalb der *Fermi*-fläche. Die Energielücke hat ein Absenken der Elektronenenergien unterhalb der Energielücke zur Folge, was wiederum die Gesamtenergie des Kristalls absenkt. Dieser Mechanismus kann durch äußere Einflüsse wie Druck, Temperatur oder durch optische Anregung des elektronischen Systems leicht gestört werden [71, 99].

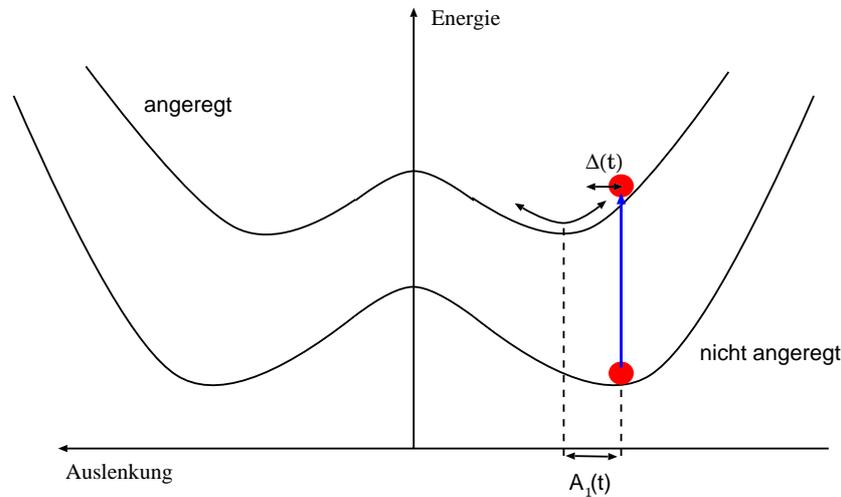


Abb. 32: Skizze zur Erklärung der DECP-Theorie. Das Atom ruht vor der Anregung in einer Potentialmulde. Durch die Anregung verschiebt sich die Gleichgewichtslage, und die vorherige Position wird zu einem Umkehrpunkt einer Oszillation.

Durch diese Störung ändert sich insbesondere der Gleichgewichtsabstand der beiden Wismutatome in der Basis. Ähnlich wie beim ultraschnellen Schmelzen ist auch in dem DECP-Modell die Quelle der Instabilität die Beeinflussung des elektronischen Systems. Das durch einen kurzen Laserimpuls angeregte elektronische System kommt auf einer Zeitskala in ein Gleichgewicht, die kurz ist, verglichen mit der Zeit, die die Atome brauchen, um durch Bewegung auf die neuen Potentiale zu reagieren. Aus diesem Grunde verschieben sich die Gleichgewichtskordinaten als Funktion der Zeit, ohne daß die trägen Atome darauf reagieren können. Folgen die Atome der neuen Gleichgewichtskordinate, findet ein „senkrechter“ Übergang im Potentialbild, ähnlich wie bei dem *Franck-Condon-Prinzip* statt²⁶ [99]. Abb. 32 skizziert diesen Sachverhalt, die Richtung der Auslenkung entspricht der z-Achse in Abb. 30. Vor der Anregung ruht das Atom in einer Potentialmulde. Die Gleichgewichtskordinate $A_1(t = 0)$ fällt mit der Auslenkung $X = 0$ zusammen. Ändert sich das Potential, verschiebt sich die Gleichgewichtslage, so daß die vorherige Gleichgewichtslage zu einem Umkehrpunkt einer Oszillation wird.

²⁶Ein wichtiger Unterschied zum *Franck-Condon-Prinzip* bei der Molekülanregung sei noch herausgestellt: Bei dem *Franck-Condon-Prinzip* ist die Amplitude der Schwingung durch das Prinzip selbst festgelegt. Eine stärkere Anregung bedeutet somit eine größere Anzahl an Molekülen, die an einer Schwingung teilnehmen. In der DECP-Theorie hingegen bedeutet eine stärkere Anregung, daß die Schwingungsamplitude zunimmt. Das konnte durch die optischen Anrege-Abfrage Experimente verifiziert werden.

Wird das Potential harmonisch genähert, so läßt sich die Auslenkung durch eine einfache Differentialgleichung (DGL) beschreiben:

$$\frac{d^2}{dt^2}X(t) + 2 \cdot \gamma \frac{d}{dt}X(t) + \omega_0^2 X(t) = \omega_0^2 A_1(t) \quad (30)$$

$$\text{Anfangsbedingungen: } X(t=0) = 0 \quad \frac{d}{dt}X(t=0) = 0. \quad (31)$$

Die linke Seite der DGL beschreibt die freie Schwingung mit Dämpfung, die rechte Seite ist eine äußere Kraft, die das Phonon treibt. Im nicht angeregten Bi ist diese Kraft nicht vorhanden. Die plötzliche Veränderung der Gleichgewichtskoordinate $A_1(t)$ bedeutet, daß eine zeitabhängige Kraft sprunghaft eingeschaltet wird. Eine der Aufgaben der DECP-Theorie ist die korrekte Beschreibung der zeitabhängigen Änderung der Gleichgewichtskoordinate und somit der äußeren Kraft. Vernachlässigt man die Zeitabhängigkeit der Koordinate $A_1(t)$, so ist die wirkende Kraft konstant und die DGL läßt sich analytisch lösen. Ohne Reibung, d. h. $\gamma = 0$, ist die Lösung äußerst einfach. Sie lautet für $t > 0$: $X(t) \propto 1 - \cos(\omega_0 t)$. Lösungen mit zeitlich veränderlicher Gleichgewichtskoordinate sind wesentlich aufwendiger [28]. Beispielsweise findet man in [99] eine Diskussion der Lösung, wenn die Gleichgewichtskoordinate durch $A_1(t) \propto n(t)$ beschrieben wird. Wobei $n(t)$ die Anzahl der Elektronen beschreibt, die optisch in das Leitungsband angeregt worden sind. Die Funktion $n(t)$ ist wiederum abhängig von der Laserleistung sowie der zeitlichen Form des optischen Anregeimpulses.

Bei optischen zeitaufgelösten Messungen wird die Reflektivität durch die Mode moduliert. Unter der stark vereinfachenden Annahme²⁷, daß nur die Phononenbewegung $X(t)$ zur Reflektivitätsmodulation $\Delta R/R$ beiträgt, kann dies mittels der realen und der imaginären Dielektrizitätskonstante $\epsilon_{1,2}$ ausgedrückt werden [99, 19]:

$$\frac{\Delta R}{R} = \left\{ \frac{\partial R}{\partial \epsilon_1} \frac{\partial \epsilon_1}{\partial X(t)} + \frac{\partial R}{\partial \epsilon_2} \frac{\partial \epsilon_2}{\partial X(t)} \right\} \frac{X(t)}{R} \quad (32)$$

Um aus einer gemessenen optischen Reflektionsmodulation die Amplitude einer Gitterschwingung abschätzen zu können, gehen somit viele unbekannt Funktionen ein, welche im folgenden nocheinmal zusammengefaßt werden:

- Annahme über das Potential in der die Schwingung der Atome stattfindet (harmonische Näherung, anharmonische Potentiale, ...).

²⁷Tragen weitere Effekte zur Reflektionsmodulation bei, wie z. B. Änderung der Elektronendichte $n(t)$ im Leitungsband oder daß die Elektronen der oszillatorischen Bewegung der Kerne folgen, so muß (32) entsprechend geändert werden.

- Beschreibung der Dämpfung der Schwingung (in (30) ist diese beispielsweise proportional zur Geschwindigkeit)
- Beschreibung der externen Kräfte als Funktion der Zeit
- Lösung der DGL (30) zur Bestimmung von $X(t)$
- Messung der Dielektrizitätskonstanten

Somit sind optische Methoden zur Bestimmung der Phononenamplitude indirekt und nur bedingt geeignet. Röntgenexperimente benötigen diese Annahmen nicht und erlauben daher eine direkte Bestimmung der Amplitude. Optische Anrege-Abfrage-Experimente an Bi mit fs-Zeitauflösung wurden von zahlreichen Arbeitsgruppen durchgeführt [19, 27, 99]. Die Energiedichten zur Anregung wurden dabei im Bereich von einigen $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ bis zu einigen mJ/cm^2 variiert. Die Modulation der Reflektivität konnte bei allen Arbeiten mit einer Frequenz von *ca.* 3 THz beobachtet werden. Dabei traten Variationen der Reflektivität $\Delta R/R$ in der Größenordnung von maximal 10^{-2} auf. Eine sehr ausführliche Arbeit, die einen großen Bereich an Anregungsenergien abdeckt, stammt von *M. Hase et al.* [27]; dieser Arbeit wurde *Abb. 33* entnommen. Die optischen Messungen sind auf polykristallinen Proben durchgeführt worden. Auf der linken Seite sind die beobachteten Modulationen der Reflektivität zu sehen. Es sei nochmal auf die Zunahme der Modulationsamplitude bei stärkerer Anregung hingewiesen.

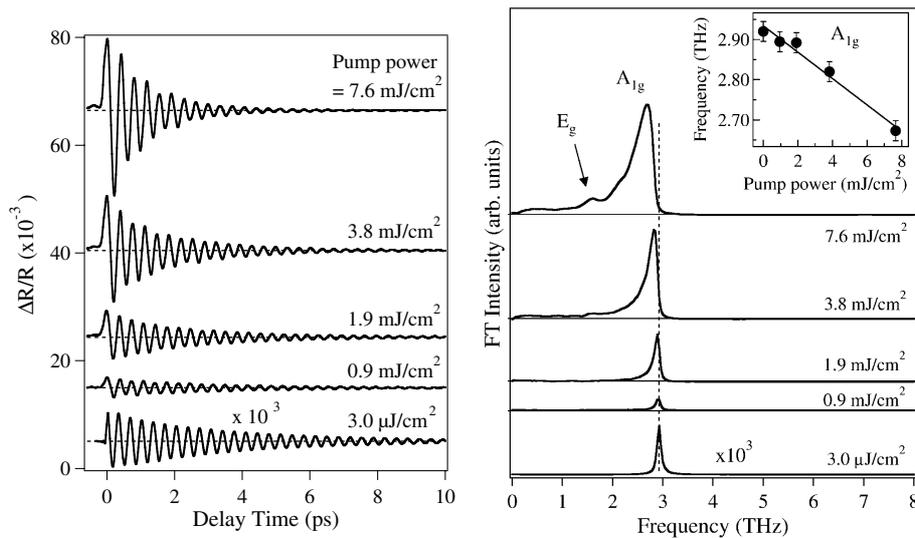


Abb. 33: Optisches Anrege-Abfrage-Experiment an Bi. Die Daten stammen von *Hase et al.* [27].

Auf der rechten Seite der *Abb. 33* ist das Frequenzspektrum zu sehen. Die Phononenfrequenz in nichtangeregtem Bi beträgt $\nu_{1g} = 2,92$ THz. Die Änderung der Frequenz bei stärkerer Anregung ist darauf zurückzuführen, daß das Potential, in dem die Schwingung stattfindet, „aufweicht“, und die Frequenz dadurch abnimmt, wie es in *Abb. 32* für die Potentialkurve unter Anregung dargestellt ist. Die maximale gemessene Reflektionsänderung entspricht einer Phononenamplitude von $0,13 \text{ \AA}$. Ähnliche Resultate auf einkristallinem Bi werden von *DeCamp et al.* vorgestellt [19]. Es wurde eine Reflektivitätsmodulation um 1 % beobachtet, was auf eine Phononenamplitude von $0,1 \text{ \AA}$ schließen läßt. *DeCamp et al.* konnten nachweisen, daß die Modulationsamplitude der Reflektivität in einem großen Bereich linear mit der Fluenz ist. Ebenso war es möglich, die Aufweichung der Frequenz in Abhängigkeit der Fluenz zu messen.

Da die Anzahl der gebeugten Photonen im Röntgenexperiment vom geometrischen Strukturfaktor S_{hkl} abhängt, ist das nächste Ziel, diesen Faktor als Funktion der Auslenkung X aus der Ruhelage der beiden Atome in der Basis zu berechnen. Zur Beschreibung wird die gebräuchlichere fcc-Einheitszelle benutzt. Die drei Vektoren \vec{t}_i ($i = 1, 2, 3$) spannen die primitive rhomboedrische Einheitszelle auf. Benutzt man diese Vektoren, um die Positionen \vec{a}_j ($j=1\dots 8$) aller Atome innerhalb der fcc-Zelle zu beschreiben, so sind diese durch:

$$\vec{a}_1 = (0, 0, 0) \quad \vec{a}_2 = \vec{t}_1 \quad \vec{a}_3 = \vec{t}_2 \quad \vec{a}_4 = \vec{t}_3 \quad (33)$$

$$\vec{a}_5 = \vec{a}_1 + \vec{h} \quad \vec{a}_6 = \vec{t}_1 + \vec{h} \quad \vec{a}_7 = \vec{t}_2 + \vec{h} \quad \vec{a}_8 = \vec{t}_3 + \vec{h} \quad (34)$$

gegeben. Der Vektor \vec{h} ist ein Hilfsvektor, der die Position des zweiten Atoms in der Basis beschreibt. Der Vektor \vec{h} hat die Richtung der z -Achse und die Länge $l=(0,468 + X)R$, daraus folgt:

$$\vec{h} = (0, 468 + X) (\vec{t}_1 + \vec{t}_2 + \vec{t}_3). \quad (35)$$

Die Abstandsänderung X wird dabei in Einheiten der Raumdiagonalen gemessen. Die Vorzeichenkonvention ist so beschaffen, daß $X < 0$ bedeutet, daß der Abstand der Basisatome kleiner als der Gleichgewichtsabstand ist. Der Strukturfaktor ist gegeben durch die Summe [89, 98]:

$$S_{hkl} = f_{Bi} \sum_{j=1}^8 e^{-i(h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3) \cdot \vec{a}_j}. \quad (36)$$

In dieser Gleichung ist f_{Bi} der Atomformfaktor, tabelliert in [2]. Die Vektoren \vec{b}_i spannen den reziproken Gitterraum auf. Die Vektoren \vec{b}_i und \vec{t}_i stehen senkrecht aufeinander und sind auf bekannte Weise normiert $\vec{b}_i \cdot \vec{t}_k = 2\pi\delta_{i,k}$ ($i, k = 1, 2, 3$). Das Symbol $\delta_{i,k}$ steht für das *Kronecker*-Symbol. Durch Einsetzen der bereits angegebenen Atompositionen \vec{a}_j wird der Strukturfaktor zu einer Funktion der *Millerschen* Indizes h, k, l und des Abstandes X . Die Anzahl der gebeugten Photonen ist proportional zum Quadrat des Strukturfaktors $|S_{hkl}|^2$. Durch einfaches Ausmultiplizieren können analytische Ausdrücke für den (111)- und (222)-Reflex gewonnen werden. Zur einfacheren Interpretation werden diese Ausdrücke im Gleichgewichtsabstand $X = 0$ auf 1 normiert:

$$|S_{111}|^2 \propto \frac{1 + \cos(6\pi(0,468 + X))}{1 + \cos(6\pi \cdot 0,468)} \quad |S_{222}|^2 \propto \frac{1 + \cos(12\pi(0,468 + X))}{1 + \cos(12\pi \cdot 0,468)}. \quad (37)$$

Abb. 34 zeigt die grafische Darstellung des normierten Strukturfaktors als Funktion der Auslenkung für den (111)- und (222)-Reflex²⁸.

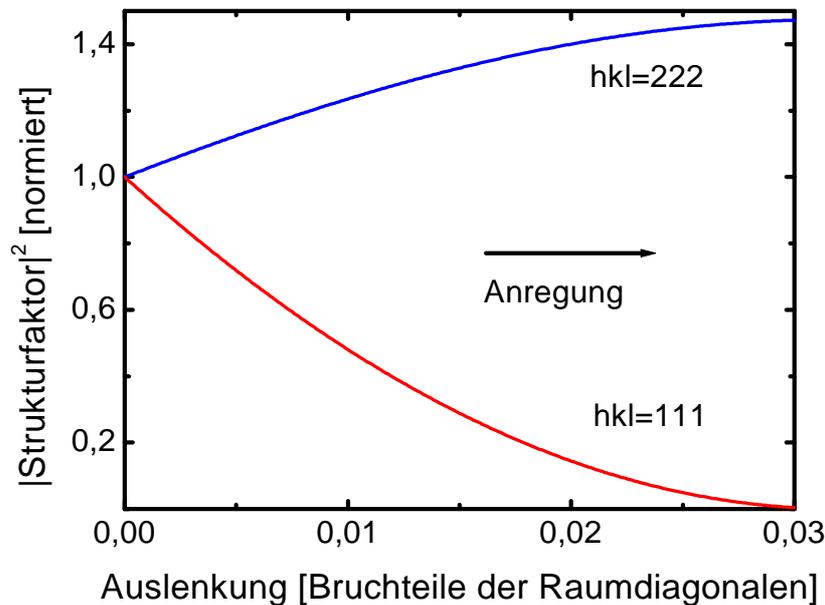


Abb. 34: $|S_{hkl}|^2$ berechnet für die Wismutstruktur in den Beugungsrichtungen (111) und (222) als Funktion der Phononenamplitude. Die Abszisse ist in Bruchteilen der Raumdiagonalen von $R = 11,862 \text{ \AA}$ unterteilt. Die Auslenkung 0 ist der Gleichgewichtszustand der Elementarzelle ohne Anregung.

²⁸Im weiteren wird der quadrierte Strukturfaktor $|S_{hkl}|^2$ immer in der normierten Form, wie in Abb. 34 dargestellt, verwendet.

Die DECP-Theorie kann die Phase der Oszillation vorhersagen. Beim Anschwingen des Phonons wird der Abstand zwischen den beiden Basisatomen zuerst vergrößert, d. h. $X > 0$. Die *Abb. 34* läßt erkennen, daß der Reflex in (222)-Richtung mit zunehmender Phononenamplitude an Intensität gewinnt, wohingegen der (111)-Reflex abnimmt. Die Auslenkung $X = 0,032$ ist besonders ausgezeichnet, da in dieser Position der Abstand zwischen den Basisatomen gerade die Hälfte der Raumdiagonalen beträgt. Für diese Auslenkung nimmt der Reflex in (222)-Richtung ein Maximum an, wohingegen der Reflex in (111)-Richtung vollständig verboten ist. Im weiteren ist interessant, daß die Größe der zu erwartenden Effekte in den beiden Beugungsrichtungen erheblich unterschiedlich sind. Aus energetischen Gründen wird der Fall $X < 0$ im Experiment nicht vorkommen.

3.3.2 Zeitaufgelöste Messungen

Zu Beginn des Kapitels wird der experimentellen Aufbau sowie die Auswertung für die Experimente an Bi kurz erläutert. Es werden zuerst die Resultate bei niedriger und dann bei hoher Anregungsenergie dargestellt und jeweils die zeitaufgelösten Reflexionskurven in den Beugungsrichtungen (111) und (222) bei ähnlichen Anregungsenergien gegenübergestellt. Im Anschluß folgt jeweils eine Diskussion der Meßdaten. Aus diesen lassen sich, ähnlich wie bei dem Schmelzexperiment, Temperaturen, Drücke und Phononenamplituden abschätzen. Eine Fehleranalyse der Meßdaten befindet sich im Anhang.

In Vorexperimenten hat sich gezeigt, daß die maximal verwendete Energiedichte von 20 mJ/cm^2 erst nach einigen 1000 Laserimpulsen zur Zerstörung der Wismutschicht führt. Es wurde beobachtet, daß sich die Defekte mit der Zeit akkumulieren und dadurch die Beugungseffizienz verringert wird. Es wurde beschlossen, das Target nicht mehr kontinuierlich abzufahren, sondern eine frische Oberfläche erst dann anzufahren, wenn eine Zerstörung der Oberfläche anhand einer optischen Abbildung sowie durch eine verringerte Beugungseffizienz erkennbar war. Durch dieses Verfahren wird die benötigte Probenoberfläche kleiner, und die bisher verwendete große drei-Zoll-Verschiebebühne konnte gegen eine kleinere, handlichere ausgetauscht werden.

Die Kontrolle der Oberfläche mit Röntgenstrahlung bedeutet keinen zusätzlichen Aufwand, da wieder vor jedem transient angeregten Bild ein Normierungsbild aufgenommen wurde. Eine Normierung des Röntgenflusses ist nicht mehr möglich, da der angebotene Winkelbereich des Röntgenspiegels nicht mehr ausreicht, um die Bi- und die Si-Linie gleichzeitig zu beugen. Zur Berechnung der Reflektivität wird *Gleichung (7)* benutzt.

Um die Anzahl der gebeugten Photonen im Experiment abschätzen zu können, wurde mit XOP die Beugungskurve *Abb. 35* einer 50 nm starken Wismutschicht berechnet. Diese Schichtstärke fand auch in den Experimenten Verwendung. Die integrierten Reflektivitäten ergeben sich aus folgender Tabelle:

Bi (111)	R_{int} [μrad]	FWHM [$^\circ$]	Bi (222)	R_{int} [μrad]	FWHM [$^\circ$]
s-pol	13,22	0,15	s-pol	21,91	0,2
p-pol	7,6	0,15	p-pol	0,024	0,2

Tab. 10: Integrierte Reflektivität einer 50 nm starken Bi-Schicht.

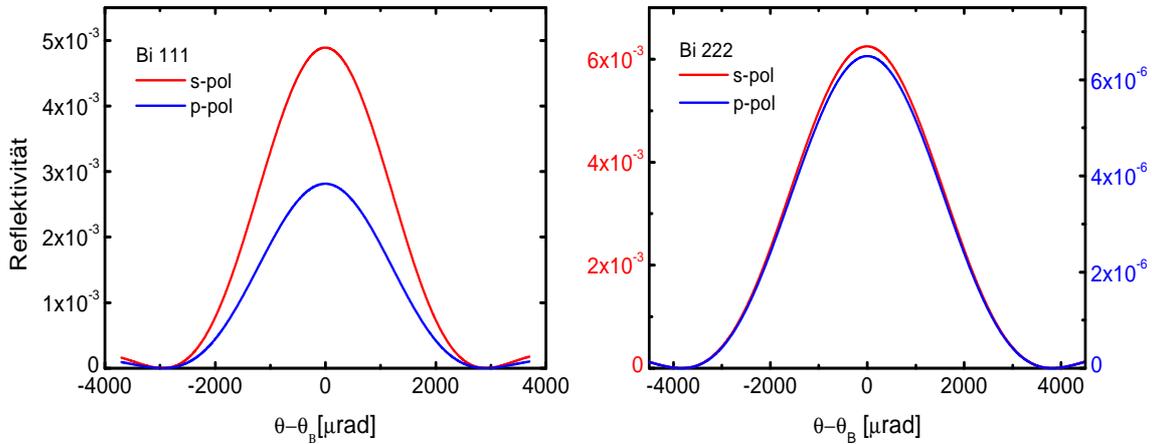


Abb. 35: Berechnete Röntgenbeugungskurven für eine 50 nm starke Wismutschicht in (111) und (222)-Beugungsrichtung.

Die extrem niedrige Reflektivität für den p-polarisierten Anteil in der (222)-Richtung kann anschaulich durch den fast rechten Winkel zwischen dem Einfallswinkel und dem Ausfallswinkel des Röntgenimpulses erklärt werden (Tab. 9). Diese Geometrie entspricht dem *Brewsterwinkel* für Röntgenstrahlung: Fällt ein p-polarisierter Röntgenstrahl unter einem *Bragg*-winkel von 45° auf den Kristall, werden die Elektronen auf Trajektorien parallel zur Richtung des gebeugten Strahls gezwungen. Die Abstrahlrichtung der bewegten Ladung ist jedoch senkrecht zur Bewegungsrichtung, das reduziert die Intensität des gebeugten Strahls.

Auf Grund des kleineren Probenverschiebers konnte die Entfernung zwischen der Bi-Probe und der CCD-Kamera so klein gewählt werden, daß die Beugungslinie den Chip der Kamera gerade ausfüllt. Im Gegensatz zu den Experimenten mit den Ge-Proben können alle gebeugte Photonen direkt detektiert werden. Wird das Verhältnis von s- zu p-Polarisation im Röntgenfokus von 1:1,3 berücksichtigt, und werden die $2 \cdot 10^4$ Photonen im Fokus gleichmäßig auf den Öffnungswinkel des Röntgenspiegels verteilt, ergeben sich für den (111)-Reflex der Bi-Probe 6 gebeugte Photonen pro Laserimpuls. Für die (222)-Richtung ergeben sich 9 gebeugte Photonen. Die Experimente in (111)-Richtung wurden im Mittel mit *ca.* 7 Photonen durchgeführt. Dieser Wert lag erwartungsgemäß in der Nähe des theoretisch abgeschätzten. Die Experimente in (222)-Richtung wurden mit *ca.* 10 Photonen durchgeführt, auch hier lag der gemessene Wert sehr nahe am abgeschätzten. Die Belichtungszeit betrug bei den Beugungsexperimenten zwischen 120 und 150 s, bei einer Wiederholrate des Lasers von 10 Hz.

Da die Phononen direkt durch die Anregung des elektronischen Systems getrieben werden, wird eine Schichtdicke zur Änderung der Röntgenbeugung beitragen, die durch die Eindringtiefe des Lichts bestimmt ist. Die verbleibende Schicht liefert einen konstanten Beitrag zur Reflektivität. Die Eindringtiefe wird ungefähr dem inversen Extinktionskoeffizienten α^{-1} des linearen Absorptionsgesetzes entsprechen²⁹. Für eine Wellenlänge von 800 nm werden Werte für die Eindringtiefe zwischen $\alpha^{-1} = 16$ und 22 nm angegeben [33]. Zur Vereinfachung soll im weiteren das Absorptionsprofil in der Tiefe als homogen angenommen werden, das bedeutet insbesondere, daß die Phononenamplitude im angeregten Bereich überall gleich sein soll. Es ergibt sich mit der kinematischen Näherung für Röntgenbeugung die integrierte Reflektivität zu

$$R_{int} = \frac{I_{Bi,gep}}{I_{Bi,ungep}} = \frac{\alpha^{-1} |S_{hkl}|^2 + (d - \alpha^{-1})}{d}. \quad (38)$$

Der Zähler ist proportional zu der Anzahl der gebeugten Photonen von der Wismutschicht während der Anregung. Wobei der erste Summand im Zähler sich auf die Schichtstärke bezieht, die durch die Modulation des Strukturfaktors beeinflusst wird. Der zweite Summand kommt durch die ungestörte Beugung der verbleibenden Schicht ($d - \alpha^{-1}$) zustande. Der Nenner ist proportional zu der Anzahl der Photonen von der Wismutschicht ohne Anregung. Der Bruch entspricht somit (7). Für die Beugungsrichtung (111) beträgt die Eindringtiefe für s- bzw. p-polarisierte Titan- $K\alpha$ Strahlung 6 μm bzw. 8 μm , für die Beugungsrichtung (222) ergibt sich 2 μm bzw. 60 μm [84]. In den hier vorgestellten Experimenten beträgt die Stärke der Wismutschicht $d = 50$ nm. Somit ist die Bedingung für kinematische Röntgenbeugung nach (6) erfüllt. Ohne Auslenkung, d. h. $|S_{hkl}|^2 = 1$ ergibt (38) eine Reflektivität von 1. Wird eine Reflektivitätsänderung ΔR auf Grund einer Phononenbewegung im Experiment gemessen, so liefert nur der erste Summand aus (38) einen Beitrag zur Änderung:

$$\Delta R = \frac{\alpha^{-1}}{d} \Delta(|S_{hkl}|^2) \quad \Rightarrow \quad \Delta(|S_{hkl}|^2) \approx 2,27 \dots 3,13 \cdot \Delta R. \quad (39)$$

In diesen Gleichungen bedeutet $\Delta(|S_{hkl}|^2)$ die Abweichung von $|S_{hkl}|^2$ von 1. Wird im Experiment die Reflektivitätsänderung ΔR bestimmt, so ist es möglich, mit (39) die Änderung von $|S_{hkl}|^2$ zu berechnen. Durch Vergleich mit *Abb. 34* kann dann die zugehörige Amplitude bestimmt werden. Die hier diskutierte theoretische Re-

²⁹Die angeregte Schichtstärke wird voraussichtlich durch die Absorptionskonstante unterschätzt. Bei der massiven Anregung durch fs-Impulse sind Diffusionseffekte nicht vernachlässigbar.

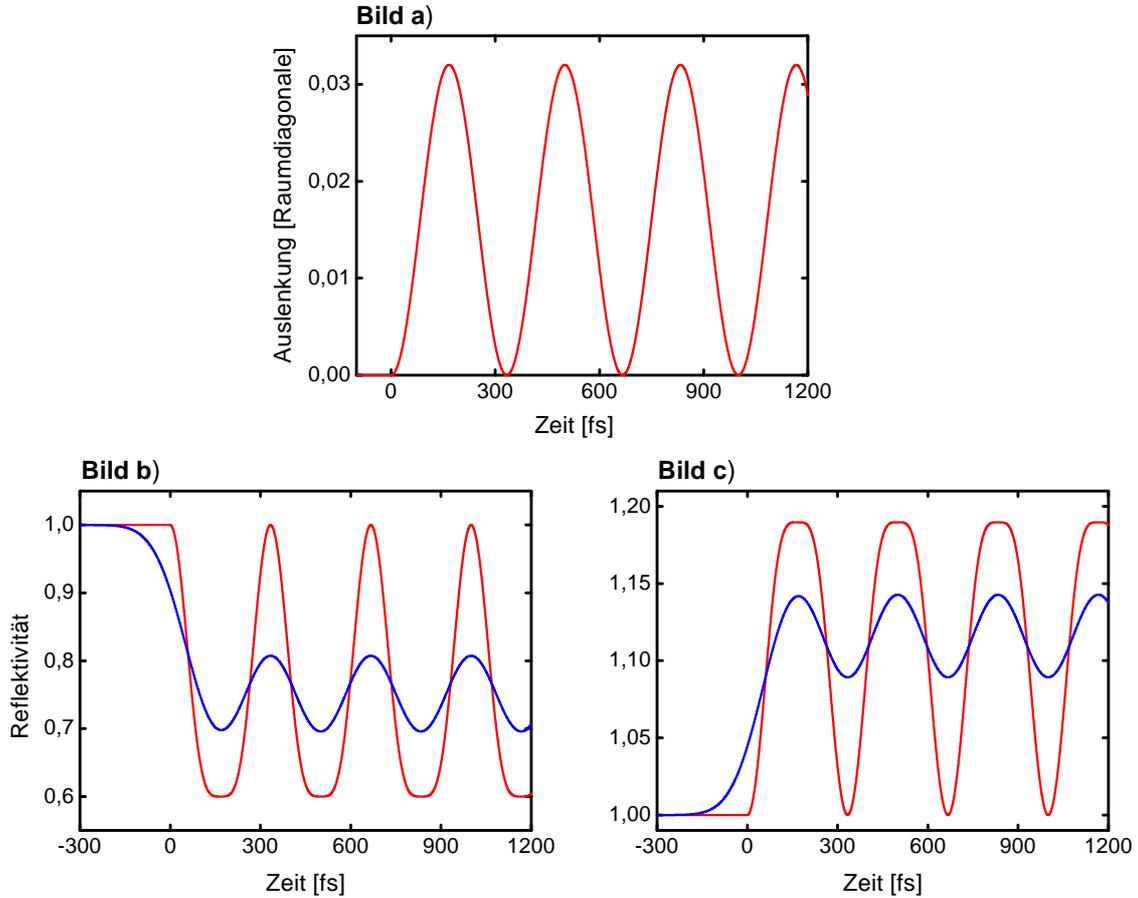


Abb. 36: Das Bild a) zeigt den Verlauf der Phononenoszillation als Funktion der Zeit. Die rote Kurve in Bild b) ist der berechnete Verlauf der Reflektivität in (111)-Richtung. Bild c) zeigt den Verlauf in (222)-Richtung. Die blaue Kurve ist jeweils die Faltung eines 200 fs *Gauß*impulses mit der berechneten Reflektivität.

flektivität erhält man im Experiment nur mit einem idealisierten infinitesimal kurzen Röntgenimpuls. Die beobachtete Reflektivität im realen Experiment ist eine Faltung aus der hier diskutierten theoretischen Reflektivität mit dem Röntgenimpuls. Die diskutierten Formeln können als Beispiel auf die statische Lösung der DGL (30) angewendet werden. *Abb. 36 a)* zeigt die Auslenkung, beschrieben durch $X(t) = A/2 (1 - \cos(2\pi\nu_{1g}t))$. Die Amplitude von $A = 0,032$ ³⁰ wurde gewählt, weil so die maximale Modulation des Strukturfaktors im weiteren eingeht. Die Frequenz beträgt $\nu_{1g} = 3$ THz. Mit der Bewegungsgleichung $X(t)$ läßt sich zu jedem Zeitpunkt der normierte Strukturfaktor mit (37) berechnen. Hieraus läßt sich wiederum die theoretische Reflektivität als Funktion der Zeit mit (38) ableiten. Die rote Kurve in *Abb. 36 b)* zeigt die Reflektivität in (111)-Richtung, die Funktion in *Abb. 36 c)* die

³⁰In Einheiten der Raumdiagonalen von 11,862 Å.

Reflektivität in (222)-Richtung. Als angeregte Schichtstärke wurde $\alpha^{-1} = 20$ nm und $d = 50$ nm eingesetzt. In *Abb. 34* ist zu erkennen, daß $|S_{hkl}|^2$ bei den Extremwerten der Amplitude flacher verläuft, das spiegelt sich in den Kurven für die theoretische Reflektivität in *Abb. 36* in den Umkehrpunkten wider. Die Reflektivität muß dann allerdings noch mit dem Röntgenimpuls gefaltet werden. Dies führt zu einer Minderung der Reflexionsmodulation und der zeitlichen Auflösung, wie die blauen Kurven in *Abb. 36 b)* und *c)* zeigen. Als zeitlicher Verlauf des Röntgenimpulses wurde ein *Gauß*impuls mit einer vollen Halbwertsbreite von $\text{FWHM}=200$ fs gewählt. Ein kurzer Röntgenimpuls führt im Gegensatz dazu, daß die Oszillationen besser aufgelöst und somit die Amplituden größer werden.

Die erste zeitaufgelöste Messung wurde in der (222)-Richtung durchgeführt. Die Energiedichte zur Anregung betrug 6 mJ/cm^2 , die Meßkurve zeigt *Abb. 37*. Jeder Meßpunkt wurde mehrmals wiederholt und gemittelt (siehe *Anhang 5.4 Fehleranalyse*), die Belichtungszeit betrug 2,5 min bei einer Laserwiederholrate von 10 Hz. In dem oberen Bild ist die Reflektivität auf einer langen Zeitskala zu sehen (rote Kurve). Die blauen Datenpunkte repräsentieren die Dehnung, welche sich aus der Winkelverschiebung der Beugungskuve ergibt (siehe Gleichung 23)³¹. Die Hauptfehlerquelle bei der Berechnung der Dehnung ist die Bestimmung der Schwerpunkte der Röntgenbeugungskurven. Auf Grundlage der Diskussion des Struktur factors (*Abb. 34*) wird ein Anwachsen der Reflektivität erwartet. In der Tat ist die erste Auffälligkeit, daß die Reflektivität im Zeitintervall zwischen 0 und 2 ps größer als 1 ist. Das gemessene Reflektivitätsmaximum beträgt 1,7. Eine signifikante Dehnung setzt ab einer Zeitverzögerung von 4 ps ein, verbunden mit einer Reduktion der Beugungseffizienz um 5 %. Die Reflektivität nimmt ab einer Verzögerung von *ca.* 25 ps einen nahezu konstanten Wert von $R \approx 0,85$ an. Die gemessene maximale Dehnung von $\Delta g/g \approx 0,75$ % läßt sich nach (29) in eine Temperatur umrechnen. Hier kann jedoch die Temperaturabhängigkeit der Materialkonstanten nicht berücksichtigt werden, da keine Literaturwerte vorliegen. Die Integration (29) zur Bestimmung der Temperatur wird somit zu einer Geradengleichung

$$T = \frac{v_{sol,Bi}^2}{3B_{sol,Bi}\beta_{sol,Bi}}\epsilon(T) + T_R. \quad (40)$$

³¹Hinweis: Skala für $\Delta g/g$ befindet sich jeweils auf der rechten Seite der Abbildungen, Vorzeichenkonvention $\Delta g/g > 0$ bedeutet Expansion.

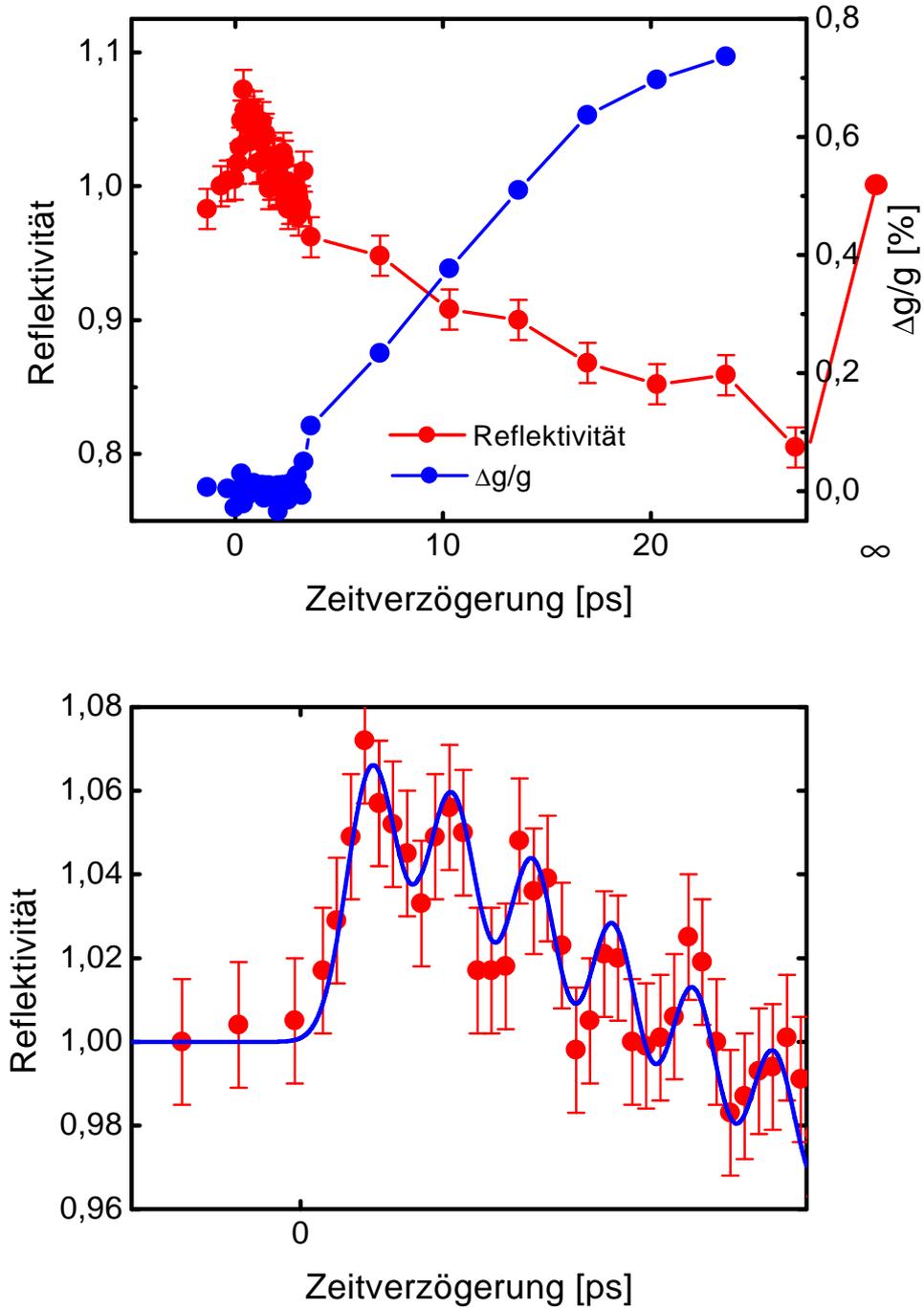


Abb. 37: Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung an einer Wismutprobe in (222)-Richtung bei einer Anregung von 6 mJ/cm^2 . Die blauen Meßpunkte ergeben sich bei einer Auswertung der Verschiebung der Röntgenbeugungskurven.

Tab. 11 faßt die Materialkonstanten bei einer Temperatur von 300 K zusammen. Es kann davon ausgegangen werden, daß die abgeschätzte Temperatur bei gemessener Ausdehnung eine obere Schranke bildet, wenn die Materialkonstanten bei Raumtemperatur in (40) verwendet werden. Die Begründung kann nur phänomenologisch durch eine Analyse der Steigung (Koeffizient vor der Dehnung $\epsilon(T)$) gegeben werden. Mit steigender Temperatur wird der Kristall „weicher“. Alle Arten von Kompressibilitäten (v , B , usw.) werden kleiner. Daher wird weniger Druck benötigt, um eine bestimmte Volumenänderung herbeizuführen. Der Bruch v^2/B ist somit in erster Näherung konstant. Gleichzeitig wird β bei steigender Temperatur größer. Die nötige Temperaturerhöhung, um eine bestimmte Volumenänderung durchzuführen, wird dadurch geringer.

Materialdaten Wismut	Symbol	
Schmelztemperatur	$T_{m,Bi}$	545 K
Schallgeschwindigkeit (sol) (111)	$v_{sol,Bi}$	$1,97 \cdot 10^3$ m/s
Dichte (sol)	$\rho_{sol,Bi}$	$9,8 \cdot 10^3$ kg/m ³
Kompressionsmodul (sol)	$B_{sol,Bi}$	$3,26 \cdot 10^{10}$ Pa
lin. Ausdehnungskoeff. (sol)	$\beta_{sol,Bi}$	$1,685 \cdot 10^{-5}$ 1/K
Eindringtiefe @800 nm	α^{-1}	14...22 nm

Tab. 11: Zusammenfassung der verwendeten Materialparameter für Bi. Die Daten sind der Referenz [33] entnommen.

Werden in der Steigung temperaturabhängige Materialkonstanten eingesetzt, wird die Steigung mit zunehmender Temperatur kleiner³². Die gemessene maximale Dehnung von $\Delta g/g \approx 0,75\%$ entspricht nach (40) einer absoluten Temperatur von 475 K. Die abgeschätzte obere Grenze der Temperatur liegt deutlich unter dem Schmelzwert von Bi. Dies bedeutet, daß die Reflexionsreduzierung zu späten Zeiten nicht mehr durch einen Schmelzvorgang gedeutet werden kann. Eine mögliche Erklärung beruht auf der Erwärmung des Kristallgitters. Die Beugungseffizienz in Abhängigkeit der Temperatur wird durch den *Debye-Waller*-Effekt beschrieben. In Abb. 38 ist die Reduktion durch den *Debye-Waller*-Faktor als Funktion der Temperatur berechnet worden [34, 98]. Wird die gemessene Reduktion des Beugungsvermögens von 15% mit dem *Debye-Waller*-Faktor aus Abb. 38 verglichen, so erhält man eine

³²Vergleiche hierzu auch das Verhalten von Ge und Si, Abb. 66 im Anhang.

Temperatur von 470 K. Diese Temperatur stimmt sehr gut mit der abgeschätzten Temperatur aus der gemessenen Dehnung von 475 K überein.

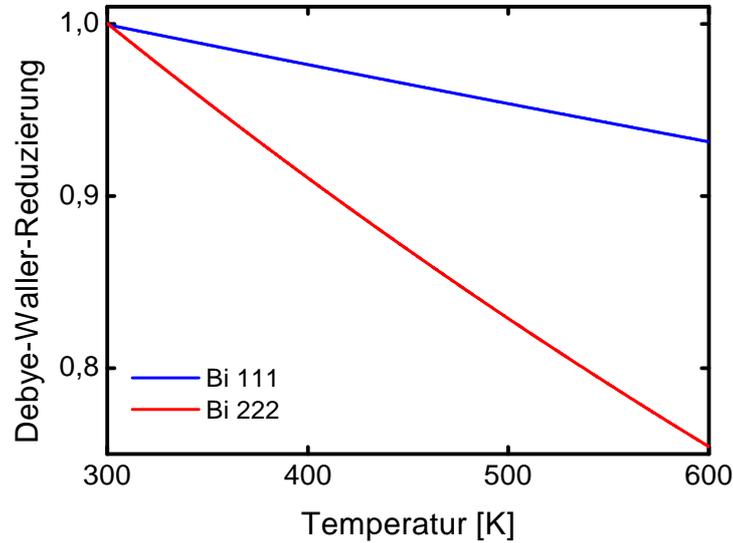


Abb. 38: Reduzierung des Beugungsvermögens durch den *Debye-Waller*-Faktor für die Reflexe von Bi (111) und (222).

Das untere Bild in *Abb. 37* zeigt einen vergrößerten Ausschnitt von dem interessanten Zeitbereich, in welchem die Reflektivität größer als 1 ist. Auffallend ist, daß die Datenpunkte als Funktion der Zeit eine Oszillation beschreiben. Wird eine Interpolation (blaue Kurve) durch die Messpunkte gelegt, so sind deutlich 6 vollständige Perioden einer Oszillation innerhalb der Fehlerbalken zu erkennen. Die Frequenz der Interpolation beträgt 2,1 THz; die Frequenz im nichtangeregten Bi beträgt 2,92 THz (*Kapitel 3.3.1*). Die Rotverschiebung kann mit dem „Aufweichen“ des Potentials, in dem die Atome die Oszillationen durchführen, erklärt werden. Bei starker optischer Anregung verläuft das Potential flacher als im Fall ohne Anregung (siehe auch *Abb. 32*). Die gemessene Frequenz entspricht einer Periodendauer von *ca.* 470 fs. Die Verschiebung der Frequenz konnte auch in optischen Anrege-Abfrage Experimenten nachgewiesen werden. Die optischen Daten aus *Abb. 33* zeigen eine Frequenz von 2,65 THz bei einer Energiedichte von 8 mJ/cm². Die hier festgestellte Frequenzverschiebung ist wesentlich größer. Die Umrechnung der ersten Reflexionsmodulation von $\Delta R \approx 7\%$ in eine Änderung des Strukturfaktors ergibt mit (39):

$$\Delta(|S_{222}|^2) = 2,27 \dots 3,13 \cdot 0,07 \approx 0,16 \dots 0,22. \quad (41)$$

Diese Werte bedeuten nach *Abb. 34* eine Phononenamplitude zwischen 0,077 und

0,11 Å. Da die bereits im Kapitel 3.2.2 abgeschätzte Röntgenimpulsdauer von *ca.* 300 fs in der Größenordnung der Periodendauer liegt, muß der Wert für die Phononenamplitude noch entfaltet werden. Die Null-Lage der Oszillation wird durch den neuen Gleichgewichtsabstand bestimmt (siehe *Abb. 39 links*). Bei der Abtastung der Reflektivität mit einem idealisierten deltaförmigen Röntgenimpuls, würde die Reflektivität nach jeder Periode wieder auf 1 zurückgehen. Wird die Amplitude der Reflektivität von der Null-Lage aus gemessen, so ist die Amplitude in negativer Richtung genauso groß wie die Amplitude in positiver Richtung³³.

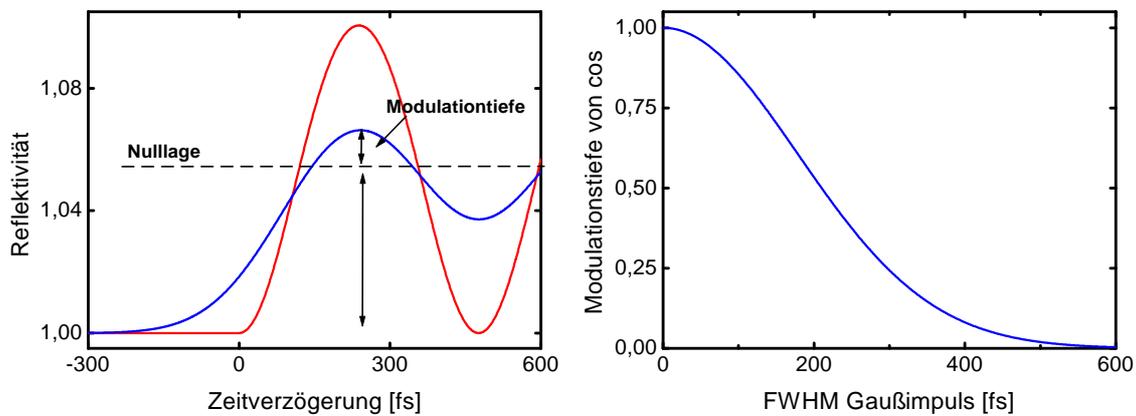


Abb. 39: Modulationstiefe der Faltung zwischen einer *cos*-Funktion und einem *Gauß*impuls mit der Halbwertsbreite FWHM.

Dieser Fall ist in *Abb. 39 links* durch die rote Kurve dargestellt. Die Messung der Reflektivität mit einem zeitlich ausgedehnten Röntgenimpuls führt zu einer Verschlechterung des Kontrastverhältnisses, dies ist in *Abb. 39 im linken Bild* durch die blaue Kurve dargestellt. Das Niveau der gemessenen Null-Lage aus *Abb. 37* bei der ersten Periode befindet sich bei *ca.* 1,053. Da die entfaltete Reflektivität zur Null-Lage symmetrisch ist, beträgt die entfaltete Reflektivität *ca.* 1,11. Dies bedeutet eine Änderung des Strukturfaktors von

$$\Delta(|S_{222}|^2) = 2,27...3,13 \cdot 0,11 \approx 0,25...0,34. \quad (42)$$

Die Änderung des Strukturfaktors resultiert in eine Amplitude zwischen 0,13 und 0,19 Å. Aus der Verschlechterung des Kontrastverhältnisses kann ebenso durch eine einfache Rechnung die Impulsdauer des Röntgenimpulses abgeschätzt werden. Wird eine Kosinusfunktion mit einem infinitesimal kurzen *Gauß*impuls gefaltet, ent-

³³Dies gilt für kleine Amplituden, d. h. in einem Bereich, wo die Funktion $|S_{hkl}|^2$ *Abb. 34* linearisiert werden kann.

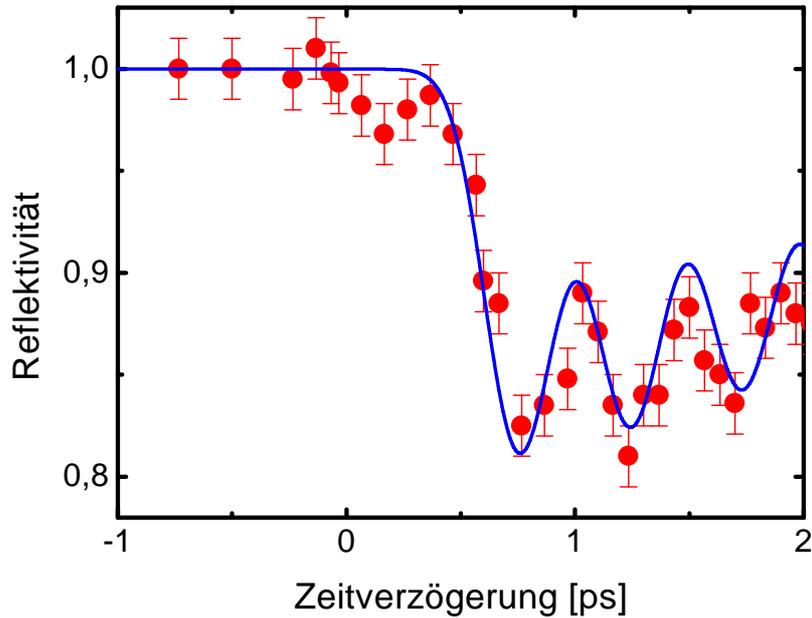


Abb. 40: Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung an einer Wismutprobe in (111)-Richtung bei einer Anregung von 6 mJ/cm^2 . Die Anregung wurde so gering gewählt, daß sich 2 Perioden der Phononenschwingung ausbreiten können.

steht wieder dieselbe Kosinusfunktion mit der Modulationstiefe von 1 (von 0 nach 1, bzw. von 0 nach -1). Wird die Halbwertsbreite des *Gauß*impulses kontinuierlich vergrößert und jeweils die Modulationstiefe der Faltung berechnet, entsteht die Funktion in Abb. 39 rechts. Dargestellt ist die Modulationstiefe in Abhängigkeit der Halbwertsbreite des *Gauß*impulses. Die Kosinusfunktion, die zur Faltung verwendet wurde, hat dabei die gemessene Frequenz von 2,1 THz. Wird die gemessene Modulationstiefe von *ca.* 0,014 (Abb. 37) ins Verhältnis zur Null-Lage gesetzt, ergibt sich ein Wert von $0,014/0,053 = 0,26$. Dies entspricht nach Abb. 39 einer Impulsdauer von 290 fs.

Um die Interpretation der vorherigen Messung zu stärken, wurde eine weitere Messung mit der Anregungsenergie von 6 mJ/cm^2 in (111)-Richtung durchgeführt. Abb. 40 zeigt das Verhalten auf der kurzen Zeitskala bis zu einer Zeitverzögerung von 2 ps. Zu sehen sind zwei Perioden der Oszillation; die Interpolation besitzt eine Frequenz von 2,05 THz. Dieser Wert zeigt gute Übereinstimmung mit der Messung in (222)-Richtung. Die Reflexionsmodulation von $\Delta R \approx -0,19$ entspricht einer Änderung von:

$$\Delta(|S_{111}|^2) = 2,27 \dots 3,13 \cdot (-0,19) = -0,43 \dots -0,6. \quad (43)$$

Das bedeutet eine Phononenamplitude von etwa $0,1-0,14 \text{ \AA}$. Die Null-Lage der Oszillation liegt bei $R \approx 0,85$. Die entfaltete Reflektivität beträgt somit *ca.* $0,7$.

Mit der Entfaltung ergibt sich eine Änderung des Strukturfaktors um

$$\Delta(|S_{111}|^2) = 2,27...3,13 \cdot (-0,3) = -0,68... - 0,94. \quad (44)$$

Dies entspricht einer Phononenamplitude von $0,17$ bis $0,29 \text{ \AA}$. Wenn auf eine Entfaltung der Reflektivitäten verzichtet wird, wird die Phononenamplitude um einen Faktor von *ca.* 2 unterschätzt. Wird die gemessene Modulationstiefe von $0,041$ ins Verhältnis zur Null-Lage der Oszillation gesetzt, ergibt sich $0,28$. Das entspricht nach *Abb. 39* einer Röntgenimpulsdauer von 285 fs . Die abgeschätzten Röntgenimpulsdauern aus den Messungen in (111) sowie in (222) -Richtung stimmen sehr gut überein. Auch sind die berechneten Werte der Phononenamplituden im Rahmen der Genauigkeit konsistent.

Im weiteren stellt sich die Frage nach dem Verhalten der Amplitude und der Frequenz bei stärkerer Anregung. Auch soll das Verhalten bei massiver Anregung über der Schmelzschwelle hinaus untersucht werden. Für die folgende Messung in (111) -Richtung wurde eine Fluenz von 10 mJ/cm^2 verwendet. Die zeitaufgelöste Meßkurve zeigt *Abb. 41*. Die roten Meßpunkte zeigen wieder das Verhalten der gemessenen Reflektivität, im oberen Bild *Abb. 41* für den langen Zeitbereich bis zu 40 ps ; im unteren Bild ist diese Meßkurve noch einmal vergrößert dargestellt für den Zeitbereich bis zu 2 ps . Im oberen Bild wurde zusätzlich die relative Dehnung $\Delta g/g$ nach (23) für jeden Meßpunkt berechnet. Ähnlich wie bei der Messung mit niedriger Energiedichte in (111) -Richtung ist auch hier ein schneller Abfall der Reflektivität zu beobachten. Die Reflektivität fällt innerhalb von 500 fs auf $R \approx 0,53$. Dann steigt die Reflektivität innerhalb von 5 ps auf $R \approx 0,75$. Dieses Verhalten bildet auf der langen Zeitskala ein aperiodisches Verhalten dem keine Oszillationen in der Reflektivität folgen. Nach dieser Spitze in der Reflektivität fängt die Dehnung bei einer Zeitverzögerung von 7 ps an; vorher ist keine thermische Ausdehnung festzustellen. Das Maximum der Dehnung beträgt *ca.* $1,5 \%$, was nach (40) einer maximalen Temperatur von *ca.* 640 K entspricht. Die Temperatur liegt über dem Schmelzpunkt von Bi. Die Reflektivität bleibt ab einer Zeitverzögerung von *ca.* 10 ps nahezu konstant bei $R \approx 0,83$, dieses entspricht nach (11) einer durchgeschmolzenen Schicht von 10 nm . Der Meßpunkt, welcher mit „ ∞ “ gekennzeichnet ist, wurde durch Überprüfung der Reflektivität nach optischer Anregung der Schicht bestimmt;

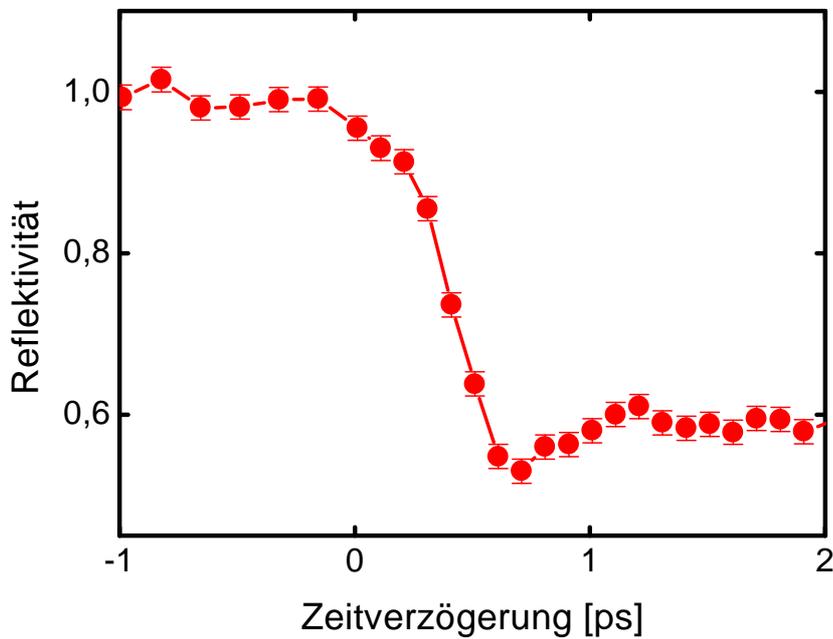
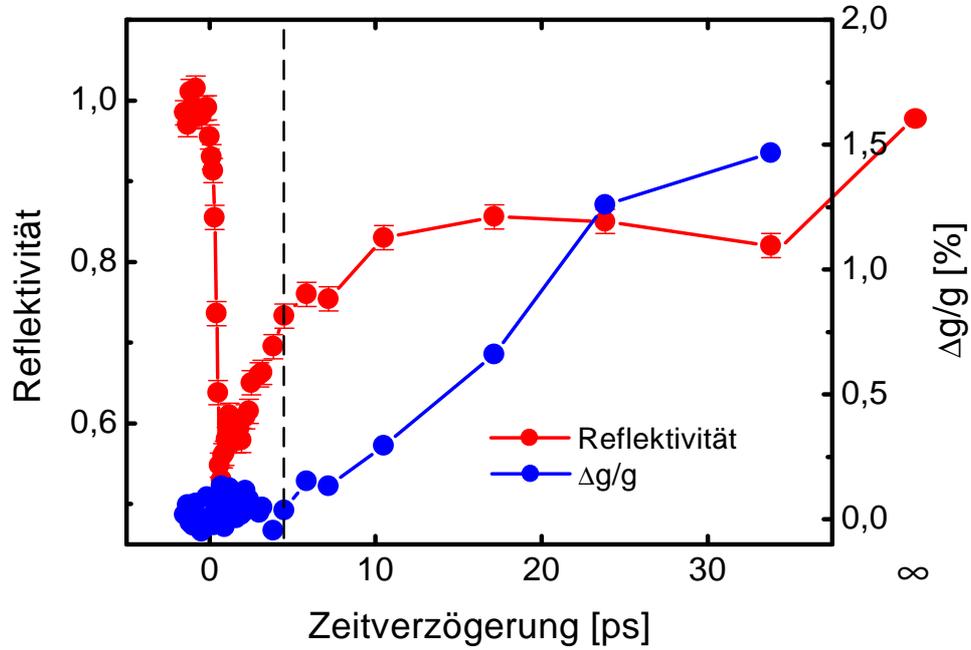


Abb. 41: Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung an einer Wismutprobe in (111)-Richtung bei einer Anregung von 10 mJ/cm^2 . Die blauen Meßpunkte ergeben sich bei einer Auswertung der Verschiebung der Röntgenbeugungskurven.

die Reflektivität beträgt dort wieder 1. Dies bedeutet, daß die Wismutschicht epiktaktisch vollständig wieder aufwächst.

Wird die erste schnelle Reflektivitätsabnahme auf $R \approx 0,53$ zu frühen Zeiten durch eine Phononbewegung hervorgerufen, ergibt sich mit (39):

$$\Delta(|S_{111}|^2) \approx 2,27 \dots 3,13 \cdot (0,53 - 1) \approx -1,07 \dots -1,47. \quad (45)$$

Die Änderung von $-1,07$ liegt im Bereich der maximal möglichen Änderung von -1 (siehe *Abb. 34*)³⁴. Die damit verbundene maximale Phononenamplitude beträgt *ca.* $0,4 \text{ \AA}$. Ein Entfalten der Meßdaten ist nicht nötig, da im Vergleich zu der Röntgenimpulsdauer die Reflektivitätsänderung auf einer langen Zeitskala stattfindet.

Für das Anwachsen der Reflektivität um 30 % ab einer Zeitverzögerung von 3 ps schlägt der Autor folgende Interpretation vor: Der erste Teil des Anstieges bis zur Einsetzung der Dehnung (gekennzeichnet durch die gestrichelte Linie), kann durch die Relaxation der Elektronen und die damit verbundene Rückkehr der gestörten Gleichgewichtslage zur Ursprungslage erklärt werden. Die Reflektivität wächst in diesem Bereich von $R \approx 0,53$ um *ca.* 20 % auf $R \approx 0,75$. Wenn die Dehnung einsetzt, wird die Reflektivität weiter erhöht, jedoch geschieht dies nun wesentlich langsamer. Dieser neue Bereich läßt sich mit der thermischen Expansion des Gitters erklären. Die Expansion übt einen zusätzlichen Einfluß auf den Strukturfaktor aus. Wie bereits (*Kapitel 3.2.2*) in den Experimenten zum Schmelzen von Germanium erörtert, kann die thermische Ausdehnung senkrecht zum Normalenvektor der Oberfläche vernachlässigt werden (siehe *Abb. 29*). In dem hier vorgeschlagenen Modell wird die Ausdehnung des Gitters durch eine Streckung der Elementarzelle von Bi (*Abb. 30*) in Richtung der Raumdiagonalen bzw. z-Achse beschrieben, wobei allerdings der Abstand der 2-atomigen Basis selbst konstant belassen wird. Unter dieser Annahme kann – analog zu den *Gleichungen* (34) bis (36) – der normierte Strukturfaktor als Funktion der thermischen Ausdehnung berechnet werden. Die Berechnung führt zu *Abb. 42*. Die beschriebene Streckung führt dazu, daß das zweite Atom der Basis (welches sich in der Nähe der Hälfte der Raumdiagonalen befindet) sich immer weiter vom Zentrum der fcc-Zelle entfernt. Dies führt zu einem gegensätzlichen Verhalten des Strukturfaktors, der aus der Phononbewegung berechnet wurde (siehe *Abb. 34*). Bei der hier beschriebenen thermischen Ausdehnung wird der Reflex in (222)-Richtung schwächer, und der Reflex in (111)-Richtung nimmt zu. Die gemessene

³⁴Werte von $\Delta(|S_{111}|^2)$ außerhalb von $[-1;1,4]$ bedeuten, daß die angeregte Schichtstärke in (39) unterschätzt wurde.

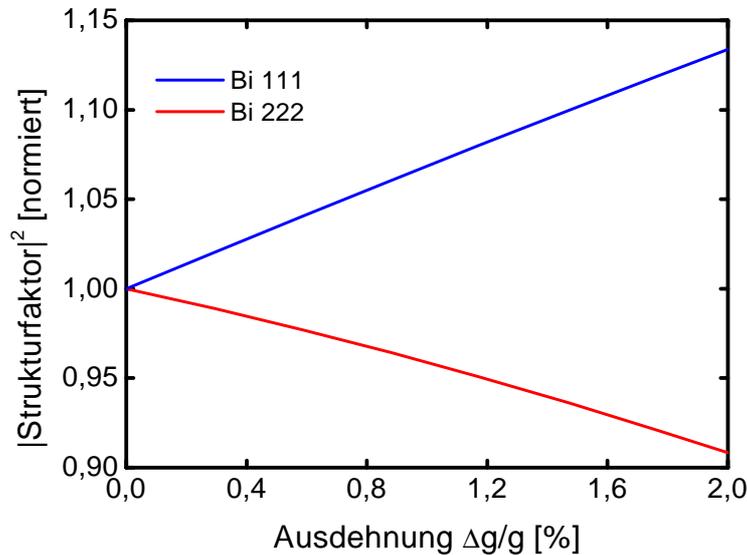


Abb. 42: Änderung des Beugungsvermögens auf Grund der thermischen Ausdehnung.

ne maximale Dehnung von $\Delta g/g$ von 1,5 % bedeutet einen Anstieg der Reflektivität nach Abb. 42 um *ca.* 10 %. Die Reflektivität nimmt ab Einsetzen der Dehnung um *ca.* 8 % von $R \approx 0,75$ auf $R \approx 0,83$ zu.

Eine weitere Meßkurve entstand bei einer Energiedichte von 15 mJ/cm^2 in der Beugungsrichtung (222). Erwartet wurde nun ein gegenläufiges Verhalten zur zuvor gemessenen Kurve in (111)-Richtung, also eine positive Spitze zu frühen Zeiten. Abb. 43 oben zeigt die gemessene Kurve bis zu einer Verzögerung von 40 ps, das untere Bild ist wieder ein vergrößerter Ausschnitt bis zu 3 ps. In der Tat wird wieder ein aperiodes Verhalten beobachtet, diesmal jedoch mit einer Reflektivität > 1 über ein Zeitintervall von 2 ps. Die maximale Zunahme in der Reflektivität um $\Delta R = 0,11$ entspricht nach (39) einer Phononenamplitude zwischen 0,1 und 0,18 Å. Die gemessene Dehnung von mehr als einem Prozent entspricht einer maximalen Temperatur von 540 K. Dieser Wert ist identisch mit der Schmelztemperatur von Bi. Die Reflektivität zu späten Zeiten ist wieder konstant und beträgt $R \approx 0,65$. Dies entspricht nach (11) einer geschmolzenen Schichtstärke von *ca.* 17 nm. Dieser Wert liegt im Bereich der Absorptionstiefe des Lichts. Wenige ps nachdem die Reflektivität auf der absteigenden Flanke wieder $R=1$ erreicht hat, setzt die Dehnung ein. Trägt diese zur Modifikation des Strukturfaktors bei, wird der Reflex bei einer gemessenen Dehnung von 1 % nach Abb. 42 um 5 % schwächer.

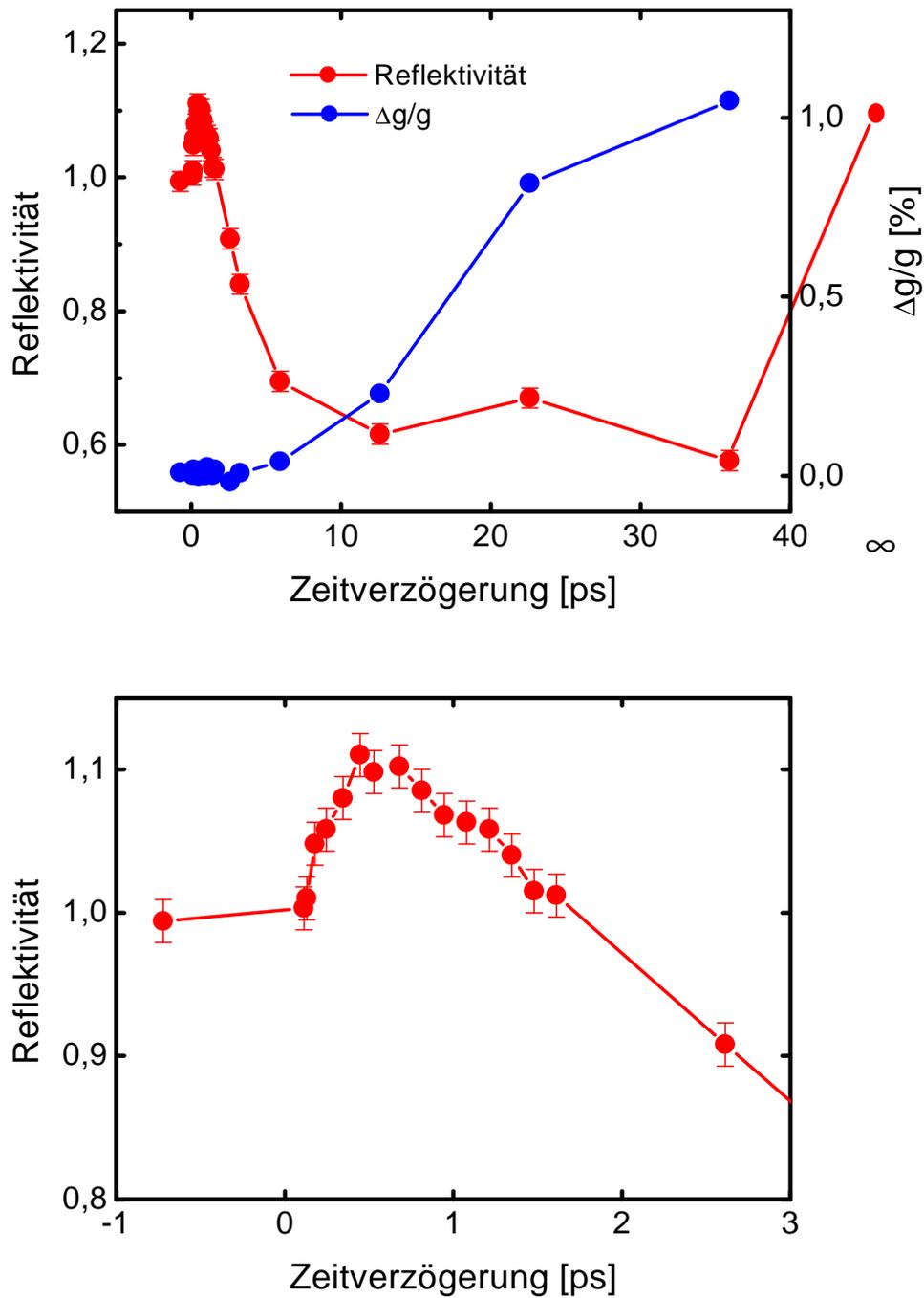


Abb. 43: Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung an einer Wismutprobe in (222)-Richtung bei einer Anregung von 15 mJ/cm^2 . Die blauen Meßpunkte ergeben sich bei einer Auswertung der Verschiebung der Röntgenbeugungskurven.

Die Energiedichte zur Anregung wurde auf 15 mJ/cm^2 vergrößert und eine zeitaufgelöste Meßkurve in (111)-Richtung aufgenommen. *Abb. 44* faßt die Meßergebnisse zusammen: Das obere Bild zeigt den Zeitbereich bis zu 50 ps , im unteren Bild ist diese Meßkurve noch einmal für den Zeitbereich bis zu 4 ps vergrößert dargestellt. Es wird das gleiche globale Verhalten wie bei der (111)-Messung mit 10 mJ/cm^2 festgestellt. Es ist ein schneller Abfall der Reflektivität auf $R \approx 0,43$ zu beobachten. Im unteren Bild ist zu erkennen, daß diese Abnahme innerhalb von 2 ps stattfindet, dann steigt die Reflektivität innerhalb von 4 ps auf $R \approx 0,57$. Die Dehnung wird messbar, und die Zunahme der Reflektivität verlangsamt sich. Dieses Verhalten bildet auf der langen Zeitskala wieder die bereits bekannte „negative Spitze“ zu frühen Zeiten. Die thermische Expansion fängt bei einer Zeitverzögerung von 8 ps an, vorher ist keine Ausdehnung festzustellen. Ab einer Zeitverzögerung von 20 ps ist die Reflektivität bei $R \approx 0,65$ nahezu konstant. Auf der kurzen Zeitskala erkennt man Details der negativen Spitze. So ist ein kurzes Plateau von 300 fs in der Nähe der Zeitverschiebung um 1 ps zu erkennen, gefolgt von einem weiteren Abfall auf $R \approx 0,45$. Bei einer Zeitverschiebung von 2 ps steigt die Reflektivität um 10% an, bis sich die Zunahme bei der Zeitverzögerung von 4 ps verlangsamt³⁵.

Der Meßpunkt, welcher mit „ ∞ “ gekennzeichnet ist, wurde durch Überprüfung der Reflektivität nach optischer Anregung der Schicht bestimmt; die Reflektivität beträgt dort wieder 1 . Bei einer Verzögerungszeit von *ca.* 50 ps steigt die relative Dehnung auf einen Wert von *ca.* $1,3\%$. Schätzt man mit (40) und *Tab. 11* die Temperatur ab, so ergibt sich eine maximale Temperatur von $T \approx 600 \text{ K}$. Diese liegt über der Wismut Schmelztemperatur von 545 K , somit kann das langgestreckte Plateau wieder als Schmelzen gedeutet werden. Mit dieser Interpretation läßt sich die gemessene Reflektivität von $R \approx 0,65$ zu späten Zeiten in eine geschmolzene Schichtdicke umrechnen. Mit (11) ergibt sich eine geschmolzene Schichtdicke von *ca.* 18 nm , dieser Wert liegt im Bereich der Eindringtiefe des Lichts. Wird die erste schnelle Reflektivitätsabnahme auf $R \approx 0,45$ zu frühen Zeiten durch ein Phonon hervorgerufen, ergibt sich mit (39):

$$\Delta(|S_{111}|^2) \approx 2,27 \dots 3,13 \cdot (0,45 - 1) \approx -1,25 \dots -1,72. \quad (46)$$

Die Änderung von $-1,25$ ist signifikant kleiner als die maximal mögliche Änderung von -1 (*Abb. 34*). Eine Änderung von $|S_{hkl}|^2$ um einen Wert ≤ -1 kann durch

³⁵Da die Datenpunkte auf der kurzen Zeitskala alle sehr nahe beieinanderliegen und es keine Ausreißer gibt, werden die Details in der Spitze als „echt“ angesehen.

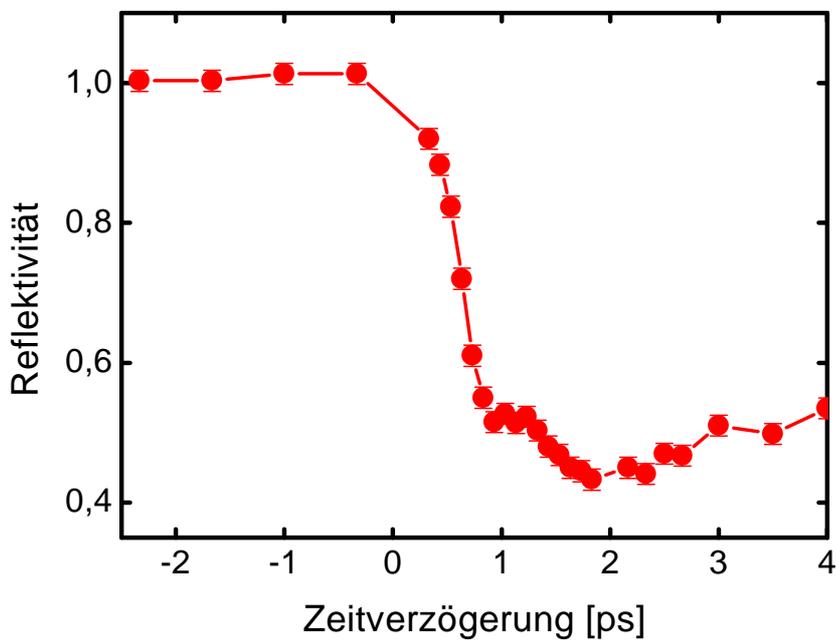
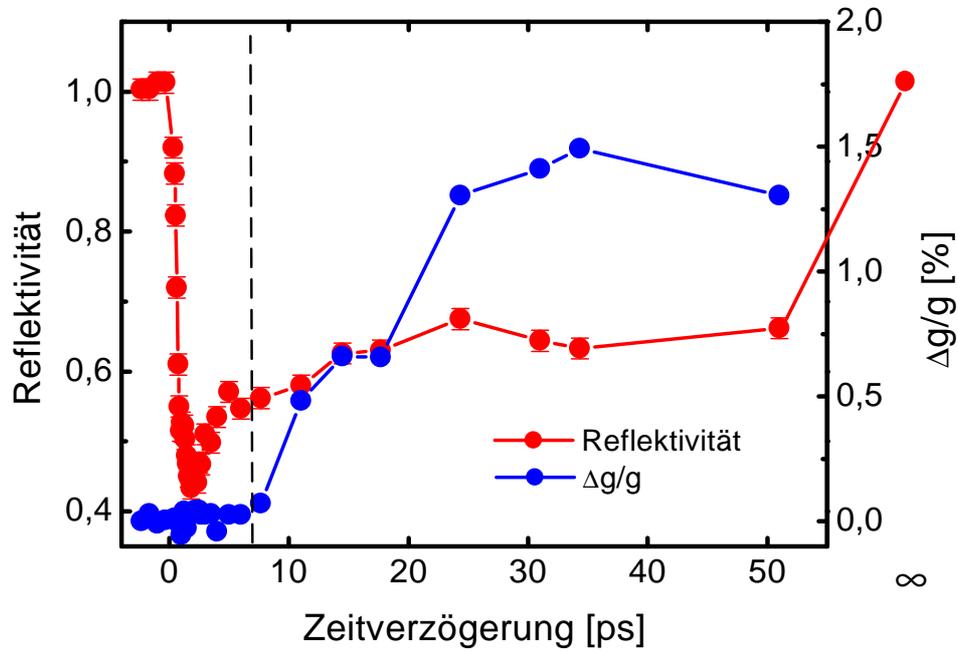


Abb. 44: Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung an einer Wismutschicht in (111)-Richtung bei einer Anregung von 15 mJ/cm^2 . Die blauen Meßpunkte ergeben sich bei einer Auswertung der Verschiebung der Röntgenbeugungskurven.

die Unterschätzung der angeregten Schichtstärke α^{-1} erklärt werden. Die maximale Änderung des Strukturfaktors läßt auf eine Phononenamplitude von *ca.* 0,4 Å schließen. Ein Entfalten der Meßdaten mit der Röntgenimpulsdauer ist wiederum nicht notwendig, da die Reflektivität in der Umgebung von $R \approx 0,45$ nur langsamen Änderungen unterworfen ist im Vergleich zur abgeschätzten Röntgenimpulsdauer von 300 fs (*Kapitel 3.2.2*). Die abgeschätzte Amplitude ist wesentlich größer als die in den optischen Experimenten nachgewiesene von *ca.* 0,13 Å.

Wird das Anwachsen der Reflektivität in der Spitze von $R \approx 0,43$ auf $R \approx 0,57$ bis zum Einsetzen der Dehnung wieder durch die Relaxation des Gleichgewichtspunktes erklärt, so läßt sich der weitere Anstieg wieder durch die thermische Expansion interpretieren. Nach Beginn der Dehnung wächst die Reflektivität um 8 % auf den konstanten Wert von $R \approx 0,65$. Nach *Abb. 42* bedeutet die gemessene Dehnung von 1,5 % einen Anstieg der Reflektivität um 10 %.

Eine weitere Meßkurve wurde in der (222)-Richtung bei einer Energiedichte von 20 mJ/cm² aufgenommen. *Abb. 45* zeigt das zeitliche Verhalten der Reflektivität. Das obere Bild stellt einen langen Zeitbereich bis zu 80 ps dar, das untere zeigt einen Ausschnitt auf einer kurzen Zeitskala. Erwartet wird wieder ein starkes Anwachsen der Reflektivität und ein aperiodisches Verhalten. Das grobe Verhalten der Reflektivität wurde bereits vorhergesagt. Die Reflektivität nimmt zu frühen Zeiten stark zu, das Maximum liegt bei einer Erhöhung um etwa 20 %. Die Reflektivität ist über einen Zeitbereich von etwa 1,5 ps größer als 1. Auf der absteigenden Flanke – bei einer Zeitverzögerung von *ca.* 1 ps – bildet sich ein kurzes Plateau aus. Ab einer Zeitverschiebung von 1,5 ps nimmt die Reflektivität innerhalb von 15 ps auf $R = 0,4$ stetig ab. Dort bleibt die Reflektivität über einen sehr langen Zeitraum konstant. Die geschmolzene Schicht, die sich auf Grund dieser Reflektivität ergibt, beträgt *ca.* 30 nm. Wieder wurde die Reflektivität nach Anregung der Schicht überprüft, der Meßpunkt ist mit „∞“ gekennzeichnet, das Ergebnis ist mit der vorherigen Messung konsistent, und die Reflektivität geht auf 1 zurück. Mit der maximalen Reflektivitätsänderung von $\Delta R \approx 0,2$ ergibt sich eine Änderung nach (39) von $\Delta(|S_{222}|^2)$:

$$\Delta(|S_{222}|^2) \approx 2,27 \dots 3,13 \cdot 0,2 \approx 0,45 \dots 0,63. \quad (47)$$

Die Phononenamplitude liegt diesmal im Bereich der maximalen Änderung von $|S_{222}|^2$. Aus *Abb. 34* kann eine Phononenamplitude von etwa 0,3 Å bis 0,4 Å entnommen werden. Die thermische Dehnung fängt bei *ca.* 5 ps an, also nach der Überhöhung der Reflektivität. Die maximale Dehnung beträgt *ca.* 1,25 %.

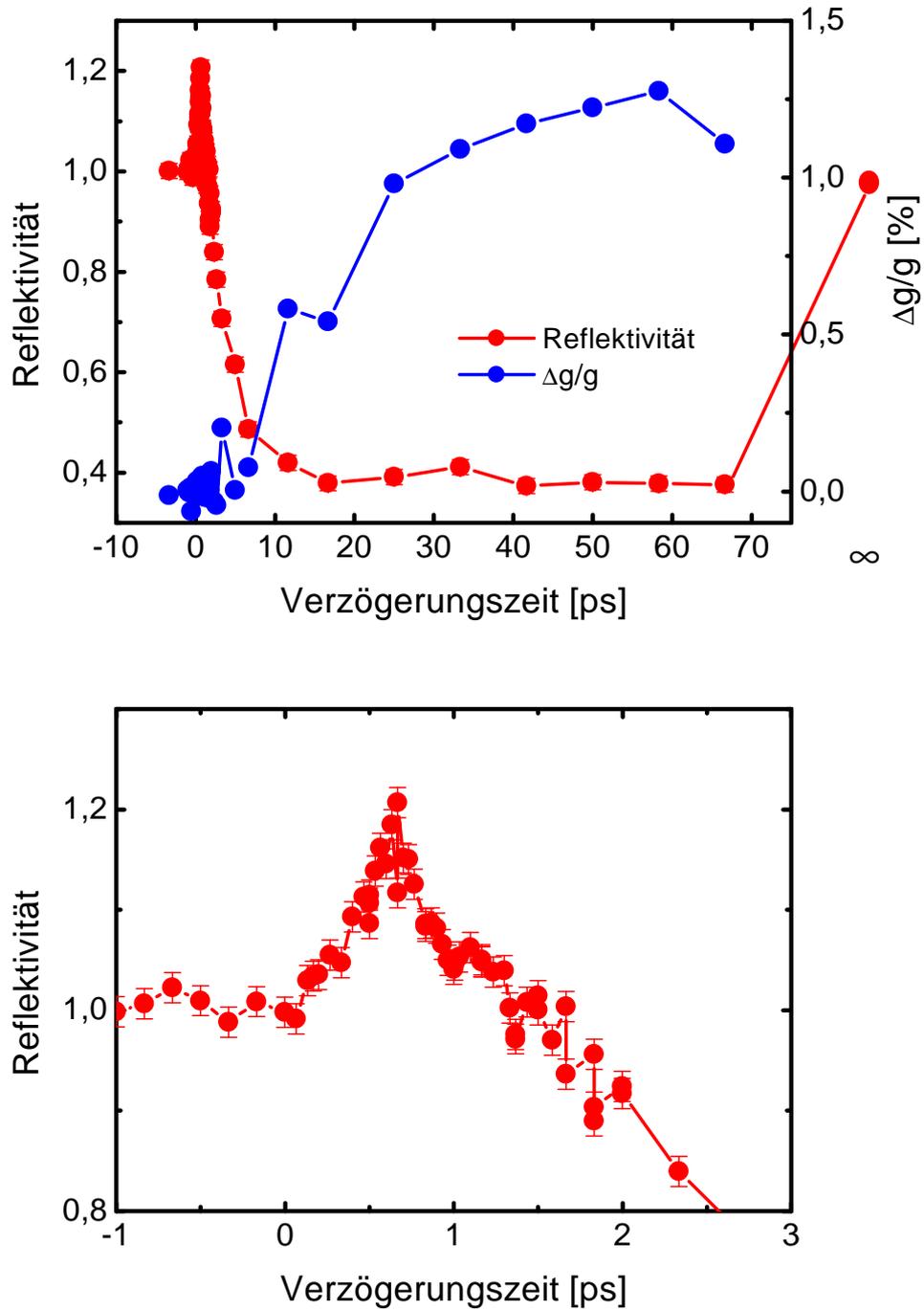


Abb. 45: Zeitaufgelöste Röntgenreflexionsmessung an einer Wismutprobe in (222)-Richtung bei einer Anregung von 20 mJ/cm^2 . Die blauen Meßpunkte ergeben sich bei einer Auswertung der Verschiebung der Röntgenbeugungskurven.

Die damit verbundene absolute Temperatur beträgt nach (40) $T = 590$ K und bestätigt noch einmal die Idee des Schmelzens zu späten Verzögerungszeiten. Ein direkter Vergleich der Meßkurven in den Beugungsrichtungen (111) und (222) bei verschiedenen Energiedichten kann nicht durchgeführt werden, da bisher die Absorption der Laserstrahlung in Abhängigkeit des Einfallswinkels noch nicht bestimmt wurde.

Das *Lindemann*-Kriterium [11] sagt den Phasenübergang Fest-Flüssig vorher, wenn die rms-Amplitude (engl.: root-mean-square) der thermischen Oszillation *ca.* 10 % des Nächsten-Nachbarabstandes überschreitet. Der Nächste-Nachbarabstand in Bi wurde bereits in der Darstellung der Kristallstruktur erwähnt und beträgt *ca.* 3,1 Å. Die abgeschätzten Amplituden bei hohen Energiedichten (15 bzw. 20 mJ/cm²) sind demnach $\geq 10\%$ des Nächsten-Nachbarabstandes. Allerdings sei angemerkt, daß es sich hier um eine kollektive Bewegung handelt, in dem alle Atome in Phase an der Oszillation teilnehmen. Bei der Herleitung des *Lindemann*-Kriteriums wird eine ungeordnete Bewegung betrachtet. Ebenso ist darauf hinzuweisen, daß bei den abgeschätzten Phononamplituden bei starker Anregung ein Übergang von der deformierten fcc-artigen Struktur in die fcc-Struktur stattfindet.

Zur Illustration werden Beugungskurven der Experimente in (111) und (222)-Richtung bei hoher Energiedichte gegenübergestellt. In *Abb. 46* sind zu jedem der Experimente je zwei Beugungskurven zu frühen und zu späten Zeitverzögerungen exemplarisch dargestellt. Die roten Kurven sind gemessene Beugungsprofile während der transienten Anregung. Die schwarz-gestrichelten Kurven sind die zugehörigen Normierungsbilder, deren Maxima jeweils auf 1 normiert wurden. Auf der linken Seite sind die Beugungsbilder der (222)-Reflexion abgebildet. Bei der kleinen Zeitverzögerung von 0,53 ps ist zu beobachten, daß die Reflektivität bei transienter Anregung im Vergleich zum Normierungsbild zunimmt, wohingegen auf der rechten Seite die (111)-Reflexion zu frühen Zeiten stark abnimmt. Man beachte insbesondere, daß beide Kurven im Vergleich zu ihrer Normierungskurve keinerlei Winkelverschiebung aufweisen; zu späten Zeiten jedoch treten Winkelverschiebungen auf. In den unteren Bildern beträgt die Dehnung für die (111)-Kurve $\Delta g/g \approx 1,3\%$, und für die (222)-Kurve wird eine Dehnung von $\Delta g/g \approx 1,2\%$ berechnet.

Eine weitere Frage ist, wie weit die erste Reflektivitätsänderung zu frühen Zeiten und somit die Phononamplitude getrieben werden kann. Um die Abhängigkeit zwischen Phononenamplitude und Fluenz zu erhalten, wurde eine Kalibrierkurve in (222)-Richtung aufgenommen. Hierzu wurde die Zeitverzögerung auf das zuvor gemessene Maximum von *Abb. 45* eingestellt. Durch leichte Veränderung der Zeitverschiebung

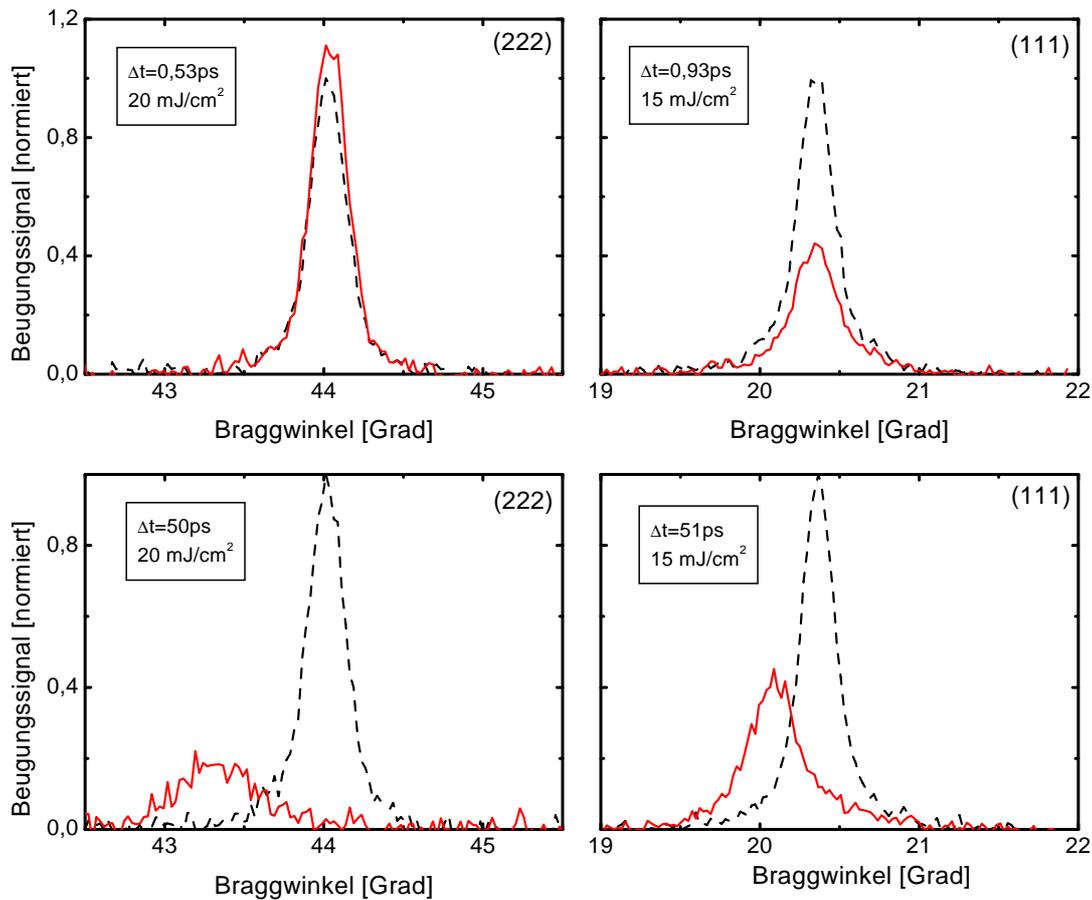


Abb. 46: Auf der linken Seite sind Röntgenbeugungskurven von Bi in der (222)-Richtung bei einer Anregung von 20 mJ/cm^2 dargestellt. Auf der rechten Seite sind gemessene Beugungskurven von Bi in der (111)-Richtung bei einer Anregung von 15 mJ/cm^2 abgebildet. Die roten Beugungskurven sind während der transienten Anregung aufgenommen, während die schwarzen Kurven die zugehörigen Normierungsbilder darstellen.

wurde grob überprüft, ob das Maximum noch an derselben Stelle lag und leichte Korrekturen vorgenommen. Abb. 47 zeigt die Meßkurve. Die maximale Reflektivität von etwa 1,2 aus Abb. 45 konnte nicht mehr verifiziert werden. Die Abweichung ist darin begründet, daß zum einen der Überlapp zwischen Röntgenimpuls und Anregungsimpuls zwischen den beiden Meßtagen nicht perfekt übereinstimmten, zum anderen verschiebt sich auch die Zeitskala durch Nachjustage der Strahlengänge. Die Meßkurve zeigt ein fast lineares Verhalten zwischen den Fluenzen 5 und 11 mJ/cm^2 .

Bei niedrigeren Fluenzen geht die Reflektivität auf 1 zurück, bei höheren Fluenzen gehen die Meßpunkte in eine Sättigung über. Die maximale Reflektivität beträgt $R \approx 1,12$. Während der Messung blieb die Zeitverzögerung konstant. Wenn sich das Maximum für unterschiedliche Fluenzen zeitlich verschiebt, ist dies ebenfalls eine

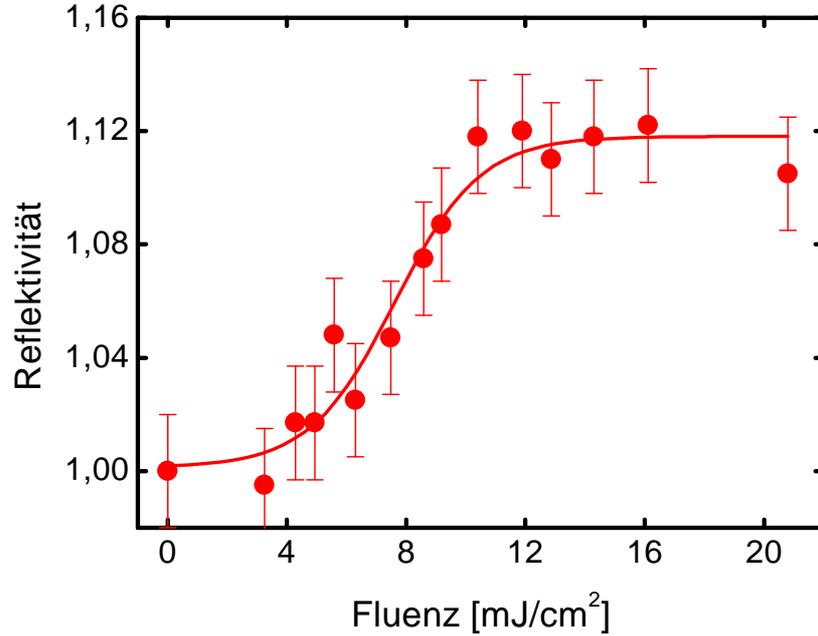


Abb. 47: Messung der Phononenamplitude in Abhängigkeit der Fluenz des Anregeimpulses. Die Messung wurde bei einer Zeitverzögerung von *ca.* 0,7 ps durchgeführt.

Fehlerquelle und kann hier nicht berücksichtigt werden. Die Reflektivitätszunahme von $\Delta R \approx 0,12$ entspricht nach (38) einer Änderung von $|S_{222}|^2$:

$$\Delta(|S_{222}|^2) = 2,27 \dots 3,13 \cdot 0,12 \approx 0,27 \dots 0,38. \quad (48)$$

Dies entspricht nach Abb. 34 einer Phononenauslenkung von etwa 0,14 – 0,22 Å. Mit dergleichen Methode wurde eine Eichung in der Beugungsrichtung (111) durchgeführt, das Resultat zeigt Abb. 48. Aus historischen Gründen wurde eine Schichtstärke von 90 nm verwendet. Um die Zeitverzögerung des absoluten Minimums zu bestimmen, erfolgte zuvor ein Anrege-Abfrage-Experiment (ohne Abbildung). Bei der Verzögerung des Minimums wurde die Kalibrierung durchgeführt. Die Meßkurve zeigt ein ähnliches Verhalten wie in der (222)-Beugungsrichtung. Die Reflektivität nimmt in einem Bereich zwischen 3 und 8 mJ/cm² nahezu linear ab. Bei höheren Energiedichten geht die Kurve in eine Sättigung über, dort beträgt die Reflektivität $R = 0,67$. Auf Grund der geänderten Schichtstärke muß bei der Abschätzung der maximalen Amplitude der Multiplikant in (39) entsprechend geändert werden.

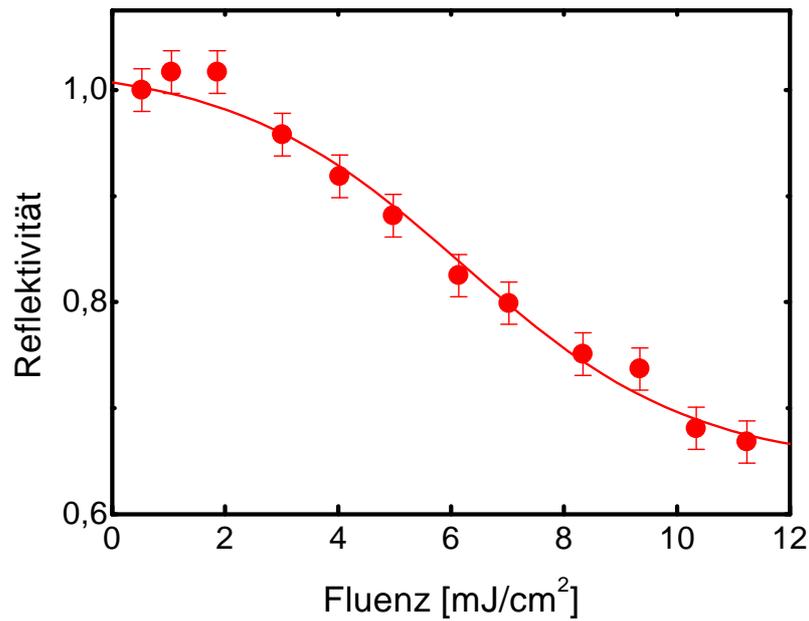


Abb. 48: Reflektivitätsabnahme der Röntgenbeugung an Bi(111) vs. Fluenz bei einer festen Zeitverzögerung von *ca.* 600 fs. Die Filmdicke im Experiment betrug 90 nm.

Die Reflexionsänderung auf $R \approx 0,67$ bedeutet eine Änderung des Struktur factors um:

$$\Delta(|S_{111}|^2) = 4,09 \dots 5,63 \cdot (0,67 - 1) = -1,35 \dots -1,9. \quad (49)$$

Auch hier wird wieder die Anregetiefe unterschätzt. Wird die maximal mögliche Änderung zu Grunde gelegt, ergibt sich durch Vergleich mit Abb. 34 eine Amplitude von *ca.* 0,4 Å.

4 Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung

Im ersten Teil dieser Arbeit wird der Aufbau einer Röntgenquelle diskutiert, basierend auf einem Laserplasma. Die Quelle wurde entwickelt, um zeitaufgelöste Röntgenbeugungsexperimente mit fs-Zeitauflösung durchführen zu können. Aus der Anwendung heraus ergeben sich eine Vielzahl von Konstruktionskriterien, die die Quelle zu erfüllen hat. Das Laserplasma wird auf einem umlaufenden Titandraht erzeugt, und zwar mit Hilfe des 10-Hz-Titan-Saphir-Lasersystems des Instituts für Laser- und Plasmaphysik der Universität Essen. Durch die Verwendung eines beliebig langen Drahts können Meßzeiten von mehreren Stunden realisiert werden. Der Laser lieferte in der letzten Ausbauphase dieser Arbeit eine Energie von 200 mJ nach Kompression, bei einer Impulsdauer von 100 fs und einer Wellenlänge von 800 nm. Zur Erzeugung der Ti-K α -Röntgenstrahlung bei einer Energie von 4,5 keV werden die Laserimpulse auf den Draht fokussiert und Intensitäten von maximal 10^{18} W/cm² erzielt. Die Elektronen werden im Fokus direkt vom Laserfeld beschleunigt und erzeugen bei der Wechselwirkung mit dem Material charakteristische, inkohärente Röntgenstrahlung in Form von sehr kurzen Röntgenblitzen. Die Impulsdauer der so erzeugten Strahlung liegt weit unterhalb einer Pikosekunde. Die härtere Strahlung wird durch geeignete Bleiabschirmungen soweit unschädlich gemacht, daß eine gekühlte, röntgenempfindliche CCD-Kamera in der Nähe der Quelle betrieben werden kann. Elektronenstrahlen werden durch starke Magnetfelder abgelenkt.

Im zweiten Teil der Arbeit wird demonstriert, wie die inkohärente Röntgenstrahlung mittels eines torisch gebogenen Röntgenspiegels – bestehend aus Si(311) – auf eine zu untersuchende Probe fokussiert werden kann. Mit dem gebogenen Kristall konnte die Strahlung der Ti-K α -Quelle auf *ca.* 80 μ m fokussiert werden [41]. Gegenüber Experimenten mit unfokussierter Strahlung wird dadurch eine Verbesserung des Röntgenflusses um zwei Größenordnungen erreicht.

Die fokussierten Röntgenimpulse stehen dann den eigentlichen Anwendungen zur Verfügung. So konnten Anrege-Abfrage-Experimente realisiert werden, die zeitaufgelöste *Bragg*-beugung auf einer fs-Zeitskala demonstrieren. Bei dieser Technik wird ein Teil des Laserimpulses zur optischen Anregung einer Probe abgespalten und zeitlich zum röntgenerzeugenden Laserimpuls verzögert. Mit der zeitlich exakt synchronisierten Röntgenstrahlung kann der zeitliche Verlauf der Beugungsintensität verfolgt werden. Mit dieser Methode konnte der direkte Übergang eines laserbestrahlten Ma-

terials von der Fest- in die Flüssigphase auf einer fs-Zeitskala beobachtet werden. Als Proben wurden dünne, einkristalline Ge-Schichten (111) auf einem Si-Substrat (111) verwendet. Es wurde nachgewiesen, daß es sich bei dem beobachteten Schmelzvorgang um einen nicht-thermischen, durch elektronische Hochanregung ausgelösten Phasenübergang handelt [78], und beobachtet, daß der Phasenübergang von der Fest- in die Flüssigphase innerhalb von 300 fs stattfindet. Durch Entfalten der Meßdaten kann die Länge des Röntgenimpulses auf *ca.* 250-300 fs abgeschätzt werden. Aus der Winkelverschiebung der Beugungsprofile lassen sich Drücke, Temperaturen sowie die thermische Expansion des Materials abschätzen.

In einem weiteren zeitaufgelösten Experiment wurde die kohärente A_{1g}-Phononenmode durch Röntgenbeugung verfolgt. Die Kristallschwingung läßt sich durch einen kurzen Laserimpuls anregen. Die Effizienz der *Bragg*beugung wird durch das Phonon moduliert. Durch Berechnung des Strukturformfaktors als Funktion der Auslenkung des Phonons lassen sich die Amplituden durch die *Bragg*beugung messen. Es wurden Experimente in den Beugungsrichtungen (111) und (222) durchgeführt. Beide Richtungen zeigen übereinstimmend eine Phononenfrequenz von ungefähr 2,1 THz. Bei massiver Anregung entstehen Amplituden von 10 % des nächsten Nachbarabstandes. Die Stärke der Amplitude erfüllt das *Lindemann*-Kriterium für die Schmelzschwelle [11]. Aus den Winkelverschiebungen konnte eine Temperatur abgeschätzt werden, die über dem Schmelzpunkt von Bi liegt.

Die Meßdaten beider Experimente dokumentieren erstmals die Beobachtung schneller Strukturänderungen mit Hilfe zeitaufgelöster Röntgenbeugungsexperimente mit subs-Zeitauflösung. Die hier vorgestellten Meßdaten und Interpretationen führten zu folgenden Veröffentlichung [7, 14, 78, 41].

Ausblick

Zu Beginn werden technische Verbesserungsvorschläge zusammengefaßt, darauf folgt eine Beschreibung zukünftiger Forschungsvorhaben, die auf der Methode der zeitaufgelösten Röntgenspektroskopie aufbauen.

Bei den vorgestellten zeitaufgelösten Experimenten wurde die Zeitskala so verschoben, daß der eintretende Effekt den Zeitnullpunkt markiert. Ein ständiges Umbauen, um mit einer Kreuzkorrelation vor jeder Messung den absoluten Zeitnullpunkt zu bestimmen, war durch die limitierte Kapazität von Meßzeit und Experimentatoren nicht möglich. Durch einen hereinklappbaren Spiegel in den Röntgenstrahlengang kann der Umbau umgangen werden. Der Spiegel würde den Anregestrahl sowie das gestreute Licht vom Röntgenspiegel zu einem nichtlinearen Kristall reflektie-

ren. Dazu müßte ein Röntgenspiegel mit langer Brennweite entwickelt werden, um den Platz zwischen Röntgenspiegel und Probenverschieber hinreichend zu vergrößern. Für die Röntgenexperimente würde der Spiegel einfach aus dem Strahlengang herausgeklappt. Ein weiterer Vorteil, der sich aus einem langbrennweitigen Röntgenspiegel ergäbe, wäre die Modularisierung des Versuchsaufbaus. In einer kleinen, handlichen und schnell abpumpbaren Vakuumkammer würde die Röntgenerzeugung durchgeführt und die erzeugte Röntgenstrahlung über Helium gefüllte Ballons zu dem langbrennweitigen Röntgenspiegel geführt. Der Röntgenspiegel kann somit in der Luft stehen und kann einfach justiert werden. Auch die Röntgenbeugung an der Probe kann dann in Luft durchgeführt werden. Die Röntgenkamera verfügt bereits über die Option eines Vakuumaufsatzes mit einem Berylliumfenster, so daß die Strahlung detektiert werden kann. Ein Vorteil wäre das geringere Volumen, das zur Erzeugung der Röntgenstrahlung abgepumpt werden müßte. Ein weiterer Vorteil wäre, daß die Kamera nicht mehr aufgewärmt werden müßte, wenn die Vakuumkammer zur Strahlerzeugung geöffnet wird. Die Geometrie des zur Zeit verwendeten Si (311)-Spiegels (*Tab. 1* und *Abb. 4*) läßt dies auf Grund der relativ kleinen Abstände zwischen den einzelnen Komponenten nicht zu. Wenn mehr Platz zwischen den einzelnen Komponenten vorhanden wäre, könnten auch bessere Möglichkeiten zur Strahlüberwachung, wie z. B. Objektive mit CCD-Kameras in den Aufbau integriert werden.

In Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von *Prof. Förster*, Universität Jena, sind zwei langbrennweitige Ge-Spiegel entwickelt worden (im weiteren bezeichnet mit **Ge A** und **Ge B**). Der gebogene Ge-Wafer besitzt die Orientierung (100), wobei der *Braggreflex* der (400)-Ebenen für die Beugung verwendet wird.

Ge (400)-Spiegel	Ge A	Ge B
R_h [mm]	296,9	541,6
R_v [mm]	278,2	511,13
f_h [mm]	144,26	263,15
f_v [mm]	143,14	262,99
vertikale Abmessung [mm]	30	40
horizontale Abmessung [mm]	6	20

Tab. 12: Eigenschaften der Ge(400)-Spiegel, hergestellt durch die Arbeitsgruppe von *Prof. Förster*, Universität Jena.

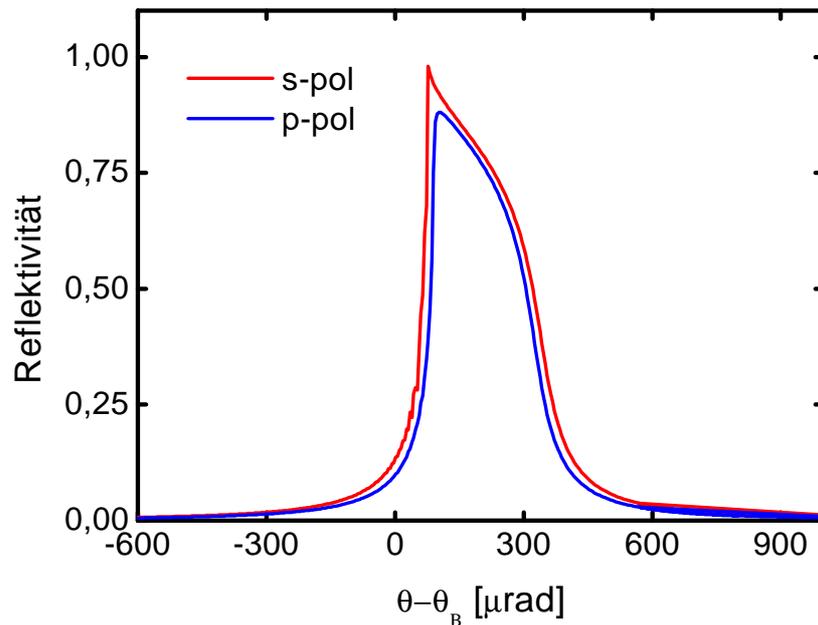


Abb. 49: Röntgenbeugungskurve eines ebenen Ge (400)-Kristalls, berechnet mit XOP [65, 64]. Die Berechnung wurde für einen Kristall mit einer Stärke von 50 μm durchgeführt.

Der *Bragg*winkel für Ti-K α -Strahlung beträgt 76,35°. Die Eigenschaften der Spiegel sind in *Tab. 12* zusammengefaßt, die Abkürzungen wurden in *Kapitel 2.2* eingeführt. Der Arbeitsabstand $2f$ des Spiegels Ge **A** ist ungefähr zweimal so groß wie der des Si (311)-Spiegels, der Arbeitsabstand des Spiegels Ge **B** ist viermal so groß. Beide Ge-Spiegel besitzen eine wesentlich größere Fläche als der Si-Spiegel. Auf Grund des größeren Arbeitsabstandes macht sich dies im Raumwinkel allerdings nicht bemerkbar. Die Vorteile der Spiegel sind nicht nur die längeren Arbeitsabstände, sondern auch die größere integrierte Reflektivität. Für einen flachen Ge-Kristall zeigt *Abb. 49* die Beugungskurve. Die integrierte Reflektivität von Ge für die s-Polarisation beträgt 277,87 μrad und ist somit mehr als 40mal so stark verglichen mit der Reflektivität von Si (311). Für den p-polarisierten Anteil ergibt sich eine Reflektivität von 239 μrad , die 20mal stärker ist als die von Si (311). Für den Fall der 1:1-Abbildung ist die Variation des *Bragg*winkels über der Oberfläche für beide Spiegel in *Abb. 50* berechnet worden. Hier ist anzumerken, daß die Halbwertsbreite von ca. 240 μrad der Beugungskurve breiter ist – im Gegensatz zum Si (311)-Spiegel – als die Variation des *Bragg*winkels über der Oberfläche. Das bedeutet, daß bei festem Winkel die gesamte Fläche der Spiegel zur Beugung beiträgt. Werden die Ge-Spiegel als Spektrometer verwendet, ist die Auflösung auf Grund der breiteren Röntgenbeugungskurve schlechter als bei dem Si (311)-Spiegel.

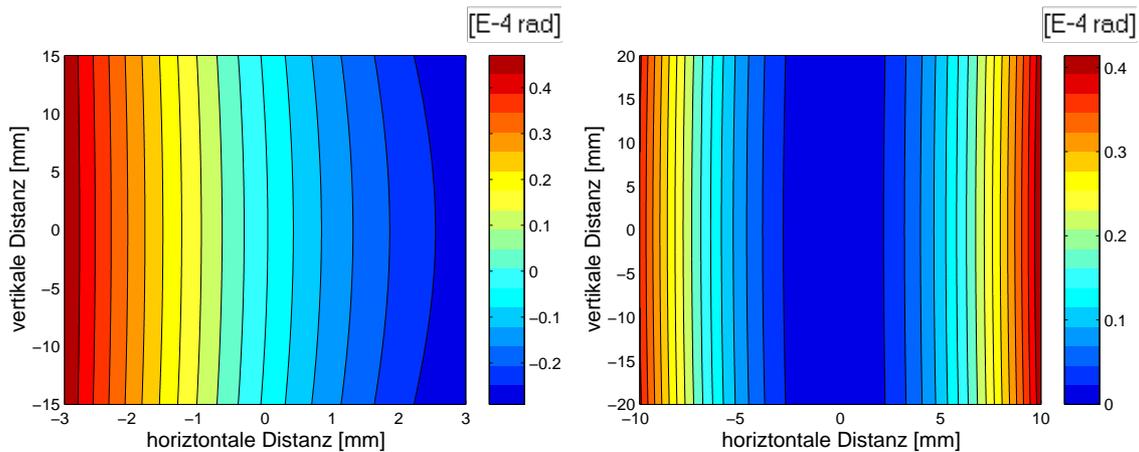


Abb. 50: Links: Variation des *Bragg*winkels über die torische Oberfläche des Ge-Spiegels **A** in der Geometrie für die 1:1-Abbildung.

Rechts: Variation des *Bragg*winkels über die torische Oberfläche des Ge-Spiegels **B** in der Geometrie für die 1:1-Abbildung.

Die ersten Prototypen weisen noch schwerwiegende Probleme auf. Beispielsweise zeigt Abb. 51 die Topographie des kleineren Spiegels Ge **A**. Im Vergleich zur Topographie des Si (311)-Spiegels (Abb. 7) ist die Verteilung nicht homogen. Es bilden sich zwei Gebiete (dunkelblaue Flächen) mit besonders starker Reflektivität heraus. Um diese Gebiete bilden sich Stellen, die nicht zur Beugung beitragen. Am Rand ist die Fläche ausgefranst. Die Topographie spiegelt die unzureichende Oberflächenqualität wider. Die Ursache wird im Herstellungsprozeß der Spiegel vermutet. Die momentane klassische Prozedur ist:

1. Orientieren und Schneiden des zu biegenden Wafers.
2. Mechanisches Dünnen und Polieren der Waferscheibe auf *ca.* 70 μm .
3. Ansprenge n der Waferscheibe auf einem torisch geformten Glassubstrat. Das Glassubstrat ist ein Negativ der späteren torischen Fläche.
4. Aufkleben des angesprengten Wafers auf eine Metallform. Die Metallform ist ein Positiv des Glassubstrats und ist mit einem Epoxykleber gefüllt.
5. Nach Aushärten des Klebers wird das formgebende Glassubstrat gelöst, und der Wafer behält die Form bei. Das torische Glassubstrat kann wiederverwendet werden.

Für die Qualität der Spiegel ist insbesondere die Oberflächenqualität nach dem Herunterdünnen sowie das Übertragen des angesprengten Wafers auf die Metallform

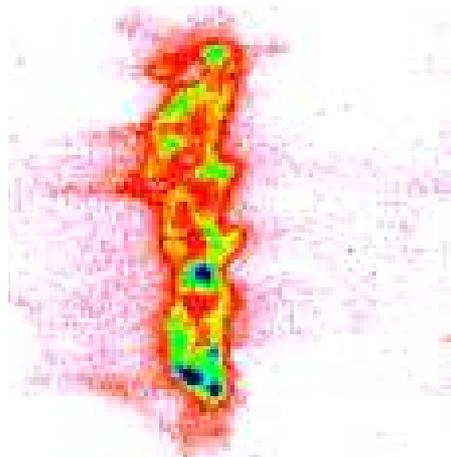


Abb. 51: Aufnahme der Topographie des Ge A Spiegels. Die Topographie ist mit der $Ti-K\alpha$ -Quelle entstanden und stark kontrastverstärkt.

von Bedeutung. Das bisherige mechanische Dünnen kann durch neuere Methoden aus der Halbleiterindustrie ersetzt werden (Plasmaätzen, chemisch-mechanisches Polieren). Es wurden bereits gedünnte hochwertige GaAs-Wafer erworben, allerdings ist noch nicht bekannt, wie genau die Netzebenen orientiert sind. Das Übertragen des gebogenen Wafers auf die Metallform kann übergangen werden, indem der Wafer direkt an ein positiv-geformtes Glassubstrat angesprengt wird. Die Realisierung dieser Idee ist aktueller Stand der Forschung. Abb. 52 zeigt den Fokus des Spiegels Ge A. Der Fokusdurchmesser ist 2–3mal größer als beim Si (311)-Spiegel. Zudem sind die „Füße“ wesentlich ausgeprägter als bei dem Si-Spiegel. Die Form des Fokus ist – trotz der schlechten Topographie – bereits für Experimente geeignet. Ein kleines Nebenmaxima ist in Abb. 52 rechts oben vom Hauptmaximum zu erkennen. Für den Spiegel Ge B sind die Topographie und der Fokus unzureichend (ohne Abbildung), der Spiegel ist für Experimente nicht verwendbar.

Die neuen Möglichkeiten, die die zeitaufgelöste Röntgenspektroskopie bietet, werden zu einer Vielzahl von neuen, wegweisenden Experimenten führen. Neben der Weiterführung der bereits erfolgreichen Untersuchungen an den Bi-Schichten, sollen hier zusätzlich geplante Experimente vorgestellt und skizziert werden. Diese Experimente werden innerhalb des neu gegründeten Sonderforschungsbereichs 1884 „Energiedissipation an Oberflächen“ sowie im Schwerpunktsbereich 1134 der *Deutschen Forschungsgemeinschaft* gefördert.

Bei der Weiterführung der Experimente an Bi-Schichten könnte eine Änderung der verwendeten Wellenlänge der Röntgenstrahlung in Erwägung gezogen werden.

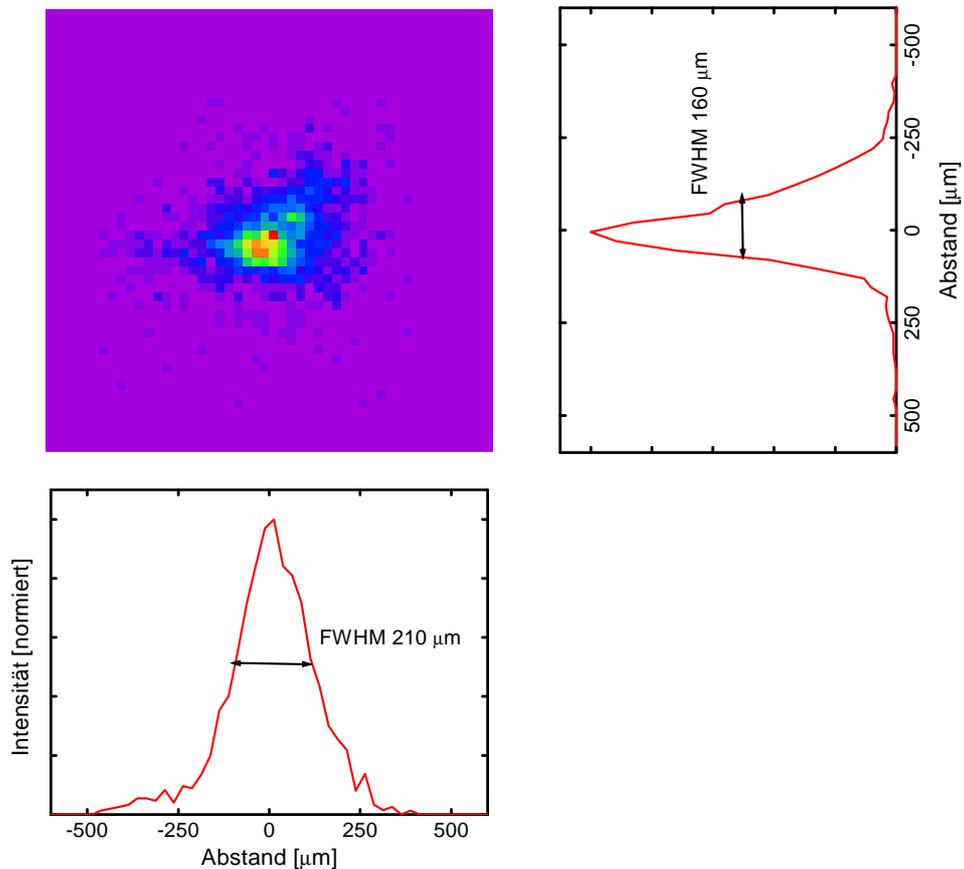


Abb. 52: Fokus des Röntgenspiegels Ge A aus Jena. Die Aufnahme wurde mit der Ti-K α -Quelle durchgeführt.

Abb. 53 zeigt den normierten Strukturfaktor für höhere Beugungsordnungen, analog zur Berechnung in Abb. 34. Aus Abb. 53 ist erkenntlich, daß die höheren Ordnungen wesentlich empfindlicher auf die Phononauslenkung reagieren. Um das *Bragg*-gesetz (2) für die gegebenen Ebenenabstände zu erfüllen, muß die Strahlung entsprechend hart sein. Für die Beugung an den (666)-Ebenen wird Röntgenstrahlung mit einer Photonenenergie von ca. 9,5 keV benötigt. Für die Beugung an den (444)-Ebenen nur 6,5 keV, dies wäre mit Cu-K α -Strahlung von ca. 8 keV möglich.

Wie bereits in Kapitel 3.2.2 angedeutet, ist es mit der zeitaufgelösten Röntgenbeugung möglich, die zeitliche Änderung des *Debye-Waller*-Faktors zu messen und daraus die momentane mittlere Auslenkung der Gitterbausteine zu bestimmen. Der *Debye-Waller*-Faktor beschreibt die Erniedrigung der Beugungseffizienz, bei Erwärmung eines Kristalls. Diese Größe ist ein Maß für den Austausch von Energie zwischen den Elektronen und dem Kristallgitter. In Abb. 26 (Kapitel 3.2.2 *Zeitaufgelöste Messungen*) wurde der *Debye-Waller*-Faktor für die Reflexe von Ge(111),

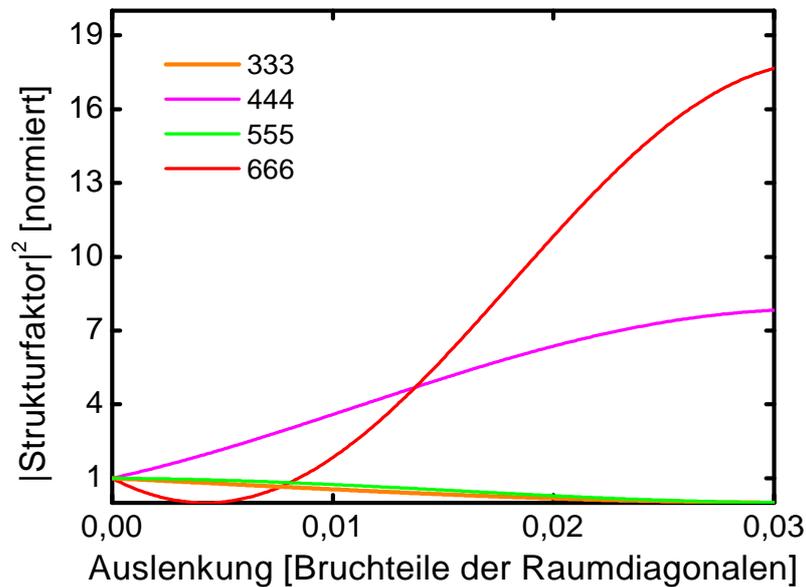


Abb. 53: $|S_{hkl}|^2$ berechnet für die Wismutstruktur in höheren Ordnungen der Beugungsrichtung (111) als Funktion der Phononenamplitude. Die Abszisse ist in Bruchteilen der Raumdiagonale von $R = 11,862 \text{ \AA}$ unterteilt. Die Auslenkung 0 ist der Gleichgewichtszustand der Elementarzelle ohne Anregung.

Ge(311) und Ge(400) unter Verwendung der Ti-K α -Linie berechnet [34, 98]. Die Ge(400) Beugungsrichtung zeigt eine besonders starke Abhängigkeit von der Temperatur des Kristalls. Um von den zur Verfügung stehenden Ge(111)-Schichten einen (400)-Reflex zu erhalten, wird auf die asymmetrische *Bragg*beugung zurückgegriffen. Dadurch wird es möglich, daß es möglich ist, durch geschicktes Wählen des *Bragg*winkels sowie die Orientierung des Wafers um die Oberflächennormalen die Netzebenen für die Beugungsrichtung (400) auszurichten. Erste asymmetrische *Bragg*reflexe sind im Rahmen einer Diplomarbeit [32] an der Ti-K α -Quelle bereits beobachtet worden. Der (311)-Reflex ist ebenso durch geschicktes Wählen der Orientierung verwendbar. Hier ergibt sich noch ein weiterer Vorteil: mit dem Winkelbereich, der von dem Ge-A Spiegel angeboten wird, lassen sich die beiden *Bragg*reflexe Ge(111) und Ge(311) gleichzeitig detektieren. Ein weiteres Projekt ist die Bestimmung des Beitrags zur inelastischen Röntgenbeugung verschiedener Phononenmoden. Da die inelastische Röntgenbeugung wesentlich schwächer ist als die elastische, muß hierzu der Röntgenfluß und die Meßgenauigkeit noch erheblich verbessert werden. Die Streuung von Röntgenphotonen hat wesentliche Vorteile gegenüber der *Raman*streuung, d. h. der inelastischen Streuung von sichtbarem Licht an Phononen. Für den Frequenzbereich des sichtbaren Lichts ergibt sich der maxi-

male Wellenzahlübertrag durch $2k_0 \approx 10^{-3} \text{ \AA}$, wobei $k_0 = 2\pi/\lambda$ die Wellenzahl des einfallenden Lichts ist. Der Wellenzahlübertrag entspricht *ca.* 1/1000 eines reziproken Gittervektors. Mit der *Raman*-Streuung werden nur Gitterschwingungen in der Nähe des Zentrums der *Brillouin*-Zone erfaßt. Mit der inelastischen Streuung von Röntgenphotonen im keV-Bereich können Wellenzahlen in der Größenordnung der Gittervektoren übertragen werden. Somit ergibt sich die Möglichkeit, auch kurzwellige Phononen zu beobachten.

In der konventionellen Phononenspektroskopie mit Synchrotronstrahlung ergeben sich durch die Linienbreite der Röntgenstrahlung weitreichende Probleme. Die typischen Energien von Phononen liegen im Bereich von $\Delta E = 1 \text{ meV}$ bis einige 10 meV. Um die Energien der Phononen auflösen zu können, muß die Bandbreite der Strahlung durch Monochromatoren entsprechend eingeschränkt werden ($\Delta E/E = 1 \text{ meV/keV} = 10^{-6}$). Die Anforderungen an die Monochromatoren (bzgl. Spannungsfreiheit und Bandbreite) ist entsprechend hoch. Auch läßt der Röntgenfluß durch die Dispersion um einige Größenordnungen nach. Mit den neuen ultrakurzen Röntgenimpulsen lassen sich – rein theoretisch – auf eine sehr interessante Weise die Phononen untersuchen [35, 42]. Statt energieaufgelöst zu messen, wird die inelastisch gestreute Intensität zeitaufgelöst beobachtet. Das bedeutet eine Messung außerhalb des eigentlichen *Bragg*peaks. Beobachtet werden Oszillationen in der Reflektivität. Dabei entspricht die *Fourier*transformation dem Frequenzspektrum der Phononen.

Ein weiteres spannendes Gebiet der Physik – das durch zeitaufgelöste Röntgenbeugung zugänglich wird – ist die Beobachtung von Schockwellen. Um die Struktur der Materie unter extremen Hochdruckbedingungen zu studieren, wird mit Hilfe eines kurzen, intensiven Laserimpulses eine Schockwelle erzeugt. Diese Schockwelle komprimiert das Material für eine sehr kurze Zeitspanne auf einen Druck von einigen *Gigapascal*. Das Material kann dabei seine Struktur und seine Eigenschaften ändern, so nimmt beispielsweise Diamant unter hohem Druck metallische Eigenschaften an. Die zeitaufgelöste Röntgenbeugung ergibt noch die zusätzliche Information, mit welcher Geschwindigkeit die Schockwelle in das Material hineinpropagiert und auf ihrem Weg gedämpft wird. Auch wird im Rahmen der Solitonwellen-Theorie die Entwicklung von Intensitätsprofilen von Schockwellen untersucht. Die bisher verwendeten Ge- und Bi-Schichten werden für diese Experimente mit einem stark absorbierenden, wenige Nanometer dünnen Metallfilm versehen. Der fokussierte Laserimpuls erzeugt ein Mikroplasma, und durch die plötzlich ansteigende Temperatur kommt es zu einer explosionsartigen Ausdehnung des Metallfilms. Am Ort des Fokus ent-

steht eine Schockwelle, die in die einkristalline Schicht hineinpropagiert. Mittels der zeitaufgelösten Röntgenbeugung kann diese Schockwelle untersucht werden.

Die herausragende Bedeutung ultrakurzer Röntgenimpulse und ihre Anwendung wird durch die zahlreichen finanziellen Förderungen durch die *Deutsche Forschungsgemeinschaft* und internationale Kooperationen deutlich.

Der Autor beweist mit diese Arbeit, daß ultrakurze Röntgenimpulse aus lasererzeugten Plasmen schon heute zeitaufgelöste Röntgenbeugung im fs-Bereich zuläßt. Der freie Elektronenlaser wird in ferner Zukunft zu weiteren Entwicklungen und neuartigen Experimenten in den Naturwissenschaften – insbesondere auf dem Gebiet der Physik – führen.

5 Anhang

5.1 Röntgendetektion

Zur Detektion der Röntgenstrahlung stand eine röntgenempfindliche CCD-Kamera (engl.: charge coupled device) zur Verfügung. Die Funktionsweise einer CCD-Kamera vereint die Vorteile der Fotodiode mit denen des Films. Das Auslesen der zweidimensionalen Informationen kann sofort im Labor geschehen. Die Weiterverarbeitung und Auswertung der Daten kann parallel zum Experiment stattfinden. Weiterer Vorteil von CCD-Kameras ist die Kombination von guter räumlicher Auflösung, niedrigem thermischen Rauschen, guter Linearität und hoher Quanteneffizienz (QE).

Zur Detektion der Röntgenstrahlung wird eine für den Röntgenbereich von 0,2 bis 30 keV empfindliche CCD-Kamera³⁶ eingesetzt. Die QE des Chips (Tektronix TK512 B) wird im spektralen Bereich von $\lambda = 260\text{--}1080\text{ nm}$ spezifiziert [52]. Für den keV-Bereich (Titan- $K\alpha$ entspricht 4,5 keV bzw. 0,27 nm [21, 94]) existieren keine Herstellerangaben. In der Literatur findet man Angaben für das Nachfolgemodell (Tektronix TK1024 B) [5]. Für diesen Chip beträgt die QE 65% bei einer Röntgenenergie von 4,5 keV. Die Modelle unterscheiden sich im wesentlichen in der Pixelgröße. Der Chip der hier verwendeten Kamera besteht aus einer Matrix von 512×512 Pixel, wobei jedes Pixel eine Größe von $27 \times 27\ \mu\text{m}$ hat. Das Nachfolgemodell hat eine Pixelgröße von $24 \times 24\ \mu\text{m}$.

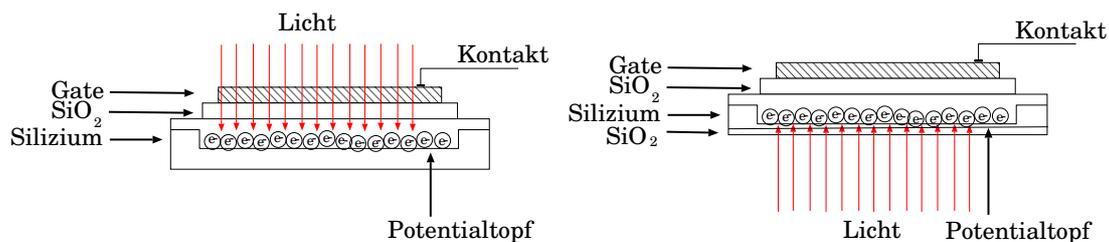


Abb. 54: Links ist ein frontseitig belichtetes Pixel abgebildet. Das einfallende Photon muß erst die Gatestruktur und die Siliziumdioxidschicht durchqueren, bevor es zur Detektion gelangt. Dieses Verfahren führt zu höheren Verlusten durch Reflexion und Absorption. Rechts: Bei einem rückseitig belichteten Pixel läßt sich dies durch einen gedünnten Chip verhindern. Abbildungen nach [90].

³⁶Hersteller: *Princeton Instruments*

Jedes einzelne Pixel ist ein lichtempfindlicher Metall-Isolator-Halbleiter-Kondensator. Der Chip wird rückseitig beleuchtet. Bei frontseitig belichteten Chips muß auf Grund der Bauweise der Lichtstrahl die Gatestruktur des Chips und eine Siliziumdioxidschicht durchqueren. Der Siliziumdioxidschicht folgt die eigentliche Siliziumschicht, in der die ausgelösten Elektronen in Potentialtöpfen gesammelt und gehalten werden. Die Potentialtöpfe werden durch Anlegen einer Spannung an das Gate geformt. Um Verluste der Photonen durch Absorption und Reflexion an der Siliziumdioxidschicht zu vermindern, werden gedünnte Chips verwendet. Diese werden rückseitig durch eine gedünnte Siliziumschicht belichtet. In *Abb. 54* sind die beiden unterschiedlichen Funktionsweisen skizziert. Die Siliziumschicht wird durch Ätzen auf Dicken von 10 bis 15 μm heruntergedünnt. Die Photonen müssen nur noch die natürliche Siliziumdioxidschicht mit einer Dicke von *ca.* 10 nm durchdringen. Für den UV-Bereich wird diese mit einer Antireflexschicht versehen. Die gesammelten Ladungen werden sukzessiv durch lokale Veränderungen der Potentiale in benachbarte Pixel weitergeschoben und letztendlich einem Ausgangsverstärker zugeführt und ausgelesen.

Zur Minimierung des Dunkelstroms kann der Chip durch ein *Peltier*-Element bis auf $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ heruntergekühlt werden; die Abwärme wird durch ständige Wasserzufuhr abgeführt. Das bedeutet, daß die Umgebung des Chips evakuiert werden muß, um die Bildung von Eiskristallen (bzw. Kondenswasser) auf dem Chip zu verhindern. Vor dem Belüften der Vakuumkammer ist darauf zu achten, daß die Kamera die Umgebungstemperatur angenommen hat, da eindringende Feuchtigkeit aus der Luft ebenfalls zu Eiskristallen auf dem Chip führen würde. Die Glasabdeckung, die den CCD-Chip schützt, wurde gegen eine 30 μm dünne Berylliumfolie ausgetauscht. Die Folie absorbiert gestreutes Laser- und Laborlicht, die $\text{K}\alpha$ -Strahlung kann jedoch ungehindert hindurchtreten. Die Transmission von Photonen mit 4,5 keV durch 30 μm Beryllium beträgt $T = 0,97$ [38].

Die Kamera wurde über einen 16-bit-Analog-Digital-Wandler ausgelesen. Gesteuert wurde das System von einem PC, welcher auch die grafische Darstellung der aufgenommenen Daten übernimmt. Den einzelnen Pixeln werden je nach Belichtungsstärke Zahlenwerte zwischen 0 und 64 000 zugeordnet. Da die mitgelieferte Software³⁷ nur bedingt funktionsfähig war, wurden viele Funktionen³⁸ vom Autor programmiert. Das hatte den Vorteil, daß die selbstgeschriebene Software auf die Problemstellung der Experimente zugeschnitten werden konnte.

³⁷Winview

³⁸in Matlab

Ein einzelnes Photon erzeugt eine bestimmte Anzahl von Elektron-Loch-Paaren im Chip. Die Anzahl hängt von der Energie E_{Ph} des Photons und von der mittleren Energie E_{EL} ab, welche aufgebracht werden muß, um ein Elektron-Loch-Paar zu erzeugen. Der Literaturwert E_{EL} für Si beträgt $E_{EL} = 3,62$ eV [45]. Somit ist die Gesamtzahl der erzeugten Ladungsträger für ein detektiertes Photon gegeben durch $N_e = E_{Ph}/E_{EL}$. Der Analog-Digital-Wandler gibt für ein belichtetes Pixel einen Wert k an den Computer weiter, der proportional zur Anzahl der erzeugten Elektronen ist. Der Hersteller spezifiziert, daß $k = 1$ gerade 6,3 Elektronen entspricht. Somit ist die Gesamtzahl der detektierten Ladungsträger $N_e = 6,3k$. Durch Gleichsetzen ergibt sich eine Kalibrierung der Kamera, die den „ k -Wert“ mit der Energie eines einzelnen Photons verknüpft:

$$k \cdot 6,3 \cdot 3,62 \cdot 10^{-3} [\text{keV}] = E_{Ph}. \quad (50)$$

Für die Photonenenergie von 4,5 keV ergibt sich $k \approx 197$. Diese Kalibrierung ermöglicht nun zwei Möglichkeiten:

- Wird die Kamera so kurz belichtet bzw. einer so schwachen Strahlungsquelle ausgesetzt, daß jedes Pixel höchstens einmal von einem Photon getroffen wird, kann (50) direkt angewendet werden. Jedes einzelne Pixel stellt einen kleinen Detektor dar, der dieser Gleichung gehorcht. Wird dann das Histogramm über den gesamten Chip erstellt, d. h. wird die Häufigkeit ausgezählt, wie oft ein bestimmter k -Wert bzw. E_{Ph} vorkommt, so erhält man das Spektrum der Quelle. Die Statistik wird umso besser, je mehr Pixel zur Verfügung stehen. Bei der hier verwendeten Kamera stehen bereits 262 144 kleine Photodetektoren auf einem Chip zur Verfügung. Diese einfache und preiswerte Methode ist unter dem Begriff „Pulshöhenanalyse“ verbreitet.
- Ist die zu detektierende Röntgenstrahlung monochromatisch (wie es im Experiment der Fall war), kann die Gesamtzahl der detektierten Photonen bestimmt werden, auch wenn die Pixel mehrfach von einigen Photonen belichtet werden. Wird die Summe Σ über alle belichteten Pixel bestimmt, so erhält man die Gesamtzahl der detektierten Photonen durch die Division Σ/k .

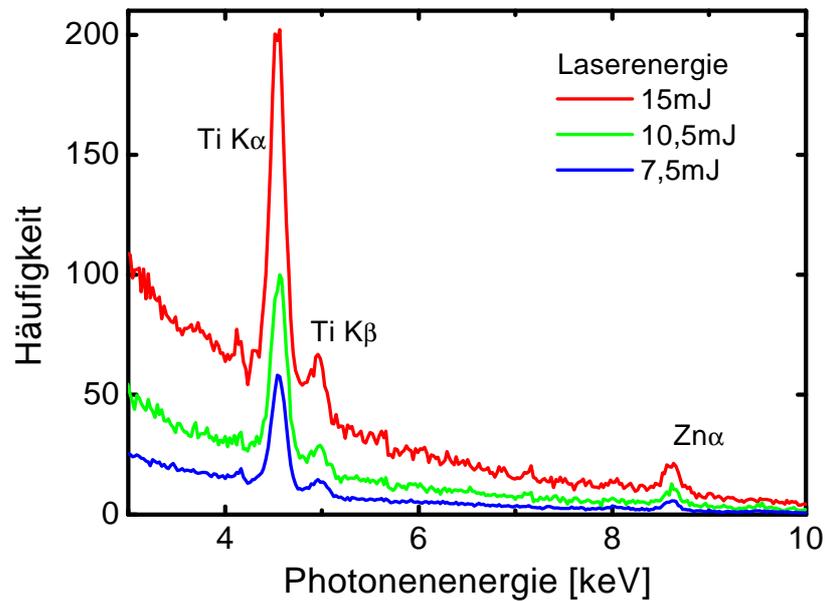


Abb. 55: Beispiel zur beschriebenen Methode des Photocounting.

Abb. 55 zeigt ein Beispiel für den Fall des Photocounting [6]. Die Quelle der Röntgenstrahlung ist in diesem Fall ein Laserplasma, welches auf einem mit Titan beschichteten planaren Glasträger erzeugt wurde. Die Anzahl der emittierten Photonen wurde bei einer Laserenergie von 15 mJ/cm^2 mit *ca.* $2 \cdot 10^7$ Photonen pro Laserschuß und sr bestimmt. Zur Verwendung der Kamera soll noch ein Warnhinweis gegeben werden: Nach zahlreichen Justagearbeiten am Röntgenspiegel (*Kapitel 2.2*) traten die ersten Strahlendefekte auf dem CCD-Chip auf. Die Strahlenschäden akkumulierten sich mit der Zeit, bis sie deutlich als lokal erhöhter Dunkelstrom erkennbar waren. Abb. 56 ist ein aktuelles Bild ohne Beleuchtung, welches sich bei einer Belichtungszeit von 5 min und einer Temperatur von $-30 \text{ }^\circ\text{C}$ ergibt. Der Dunkelstrom ist an den hellen Stellen um den Faktor 3 bis 5 gegenüber dem Hintergrund erhöht.

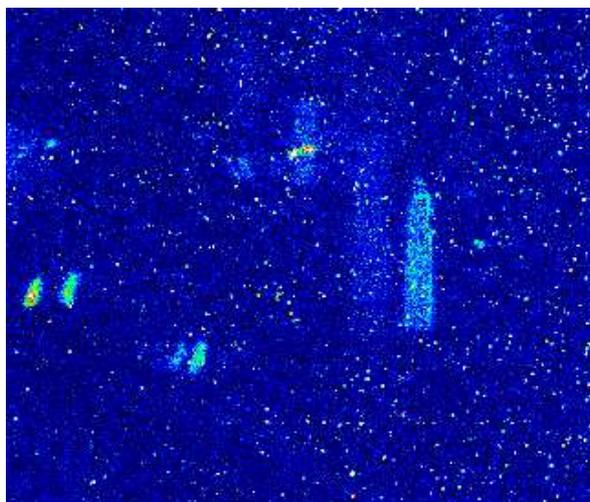


Abb. 56: Akkumulierter Strahlenschaden auf der CCD-Kamera. Die Belichtungszeit betrug 5 min, der Chip wurde heruntergekühlt auf $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$.

5.2 Auswertungssoftware

Die Auswertungssoftware wurde in der Programmiersprache *Matlab 6.0 Release 12* der Firma *MathWorks* erstellt. Da *Matlab* eine Interpretersprache ist, muß zur Ausführung der Auswertungssoftware *Matlab* selbst auf dem Rechner installiert sein. *Matlab* ist erhältlich für alle gängigen Betriebssysteme wie *Windows* und *Linux*.

Abb. 57 zeigt das Hauptfenster der Anwendung. Mit den Schaltern „Parameter alte Kamera“ bzw. „Parameter neue Kamera“ kann der Kameratyp TEK 512 B (alte Kamera), die in dieser Arbeit verwendet wurde, oder PI•LCX1300 (neue Kamera) gewählt werden. Die beiden Kameras unterscheiden sich insbesondere in den Konstanten die zur Normierung (50) benötigt werden. Zusätzlich lassen sich für beide Kameratypen unterschiedliche Auswertungsbereiche auf dem Chip definieren. Die Auswertungsbereiche sowie die Normierungsfaktoren werden in einem separaten File abgespeichert. Mit dem Schalter „lade spe“ wird ein abgespeichertes Bild im spe-Format geladen. Informationen zum Aufbau des Bildformats finden sich in [51]. Das geladene Bild zeigt einen Reflex von einer Wismutschicht mit einer Belichtungszeit von 10 Minuten. In der Mitte des Bildes und am linken Bildrand sind die Strahlenschäden zu erkennen. Je nach Geometrie des Experiments können die gemessenen Beugungslinien stark verbogen sein (*Kosselkegel* [24]) oder verlaufen leicht schräg durch das Bild. Mit den Schaltern „Untergrund“ läßt sich ein Untergrundbild von dem bereits geladenen Bild subtrahieren, und mit dem Schalter „gerade biegen“ lassen sich die Beugungslinien verbiegen. In der *Abb. 57* wurden beide Optionen verwendet. Wie zu erkennen ist, sind die Strahlenschäden verschwunden, und die Beugungslinie verläuft vertikal durch das Bild. Der Schalter „entferne cosmic“ dient zur Entfernung von kosmischer Strahlung mittels einer Filterfunktion. Die Funktion „Bild Info“ liest aus der spe-Datei die Belichtungszeit aus. Die restlichen Funktionen dienen zur spaltenweise Aufsummierung der Pixelwerte, um dann die Anzahl der Photonen mit dem Schalter „Integration“ und den Schwerpunkt der Beugungskurve mit dem Schalter „Schwerpunkt“ zu bestimmen.

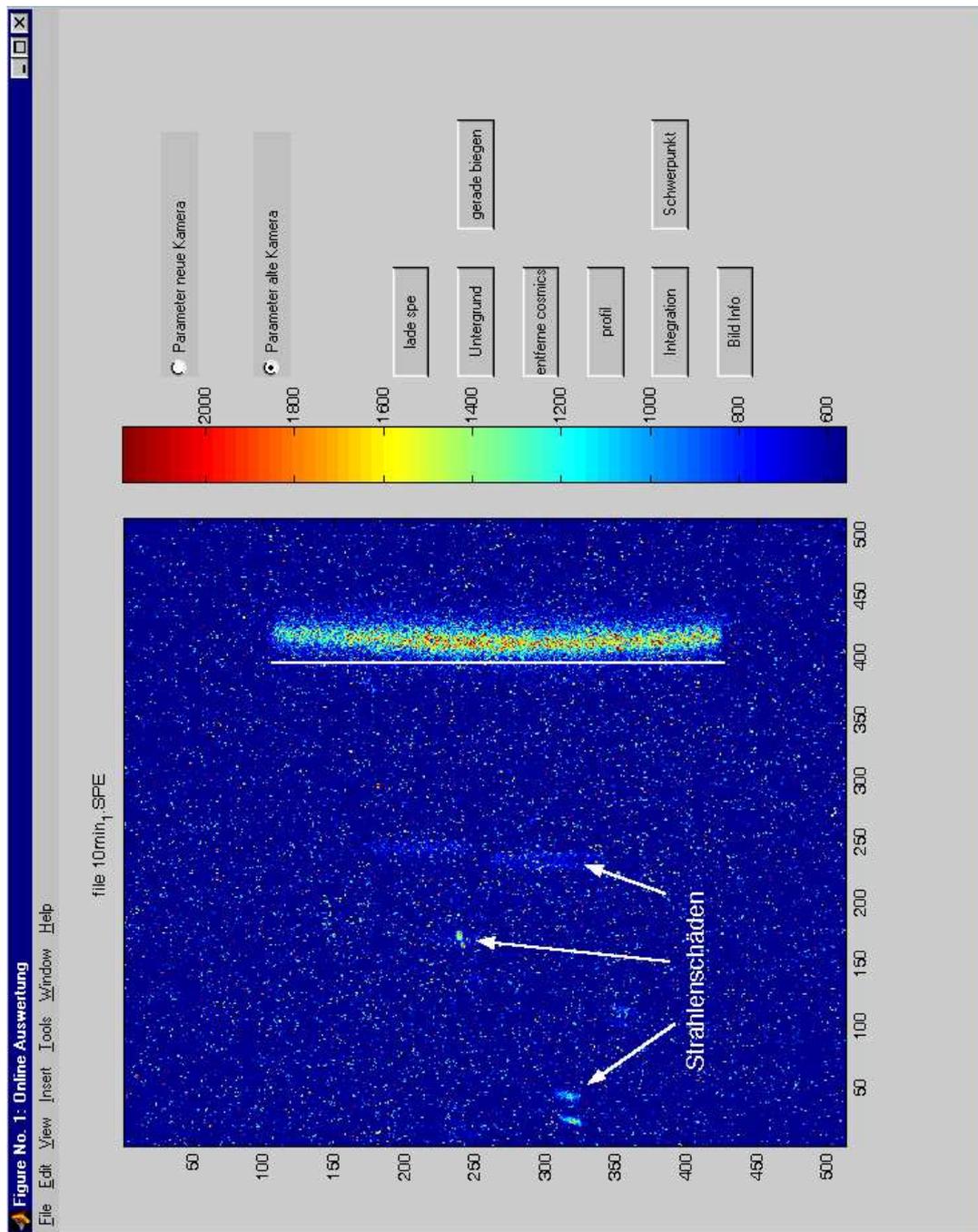


Abb. 57: Hauptfenster Auswertungsprogramm.

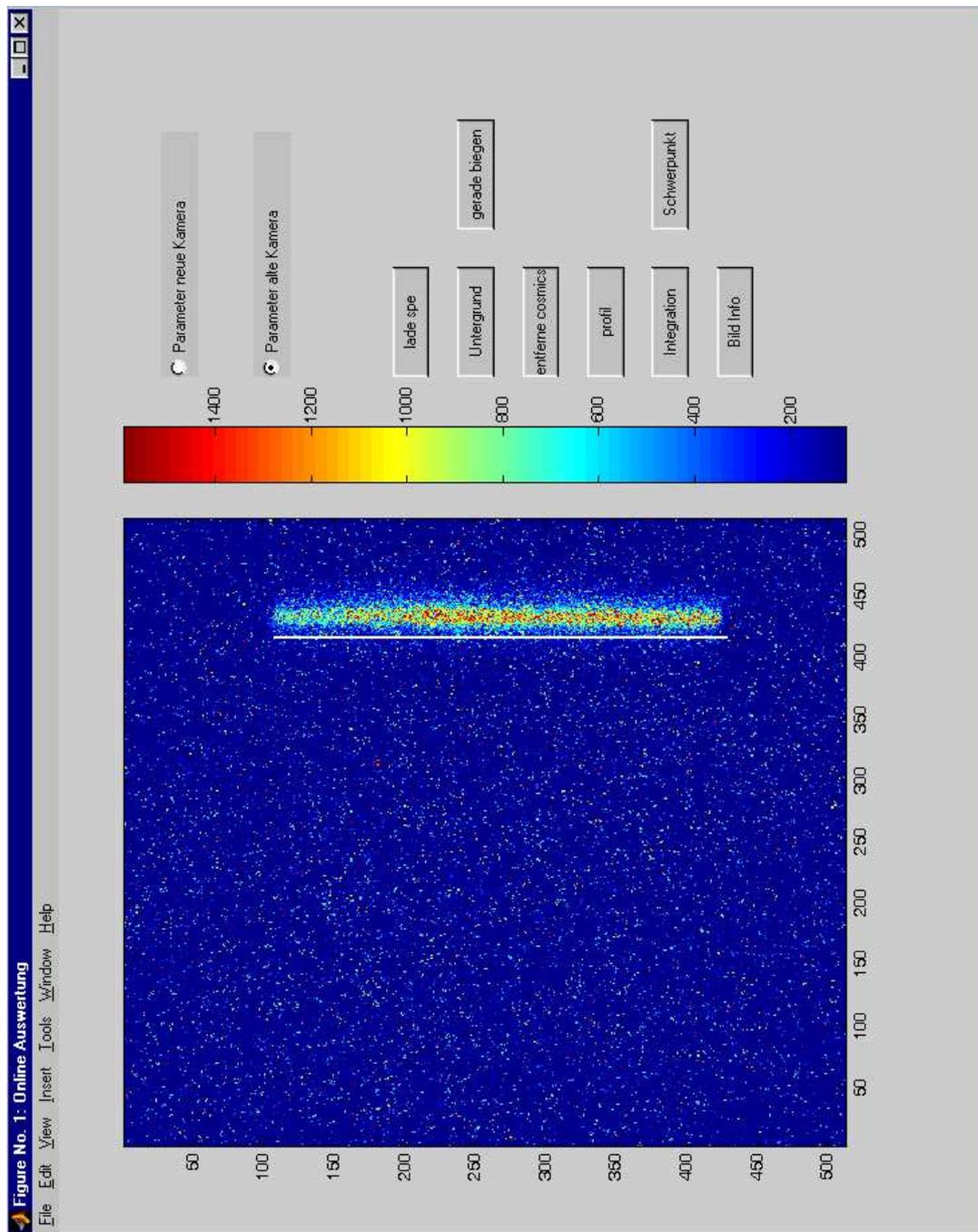


Abb. 58: Hauptfenster Auswertungsprogramm.

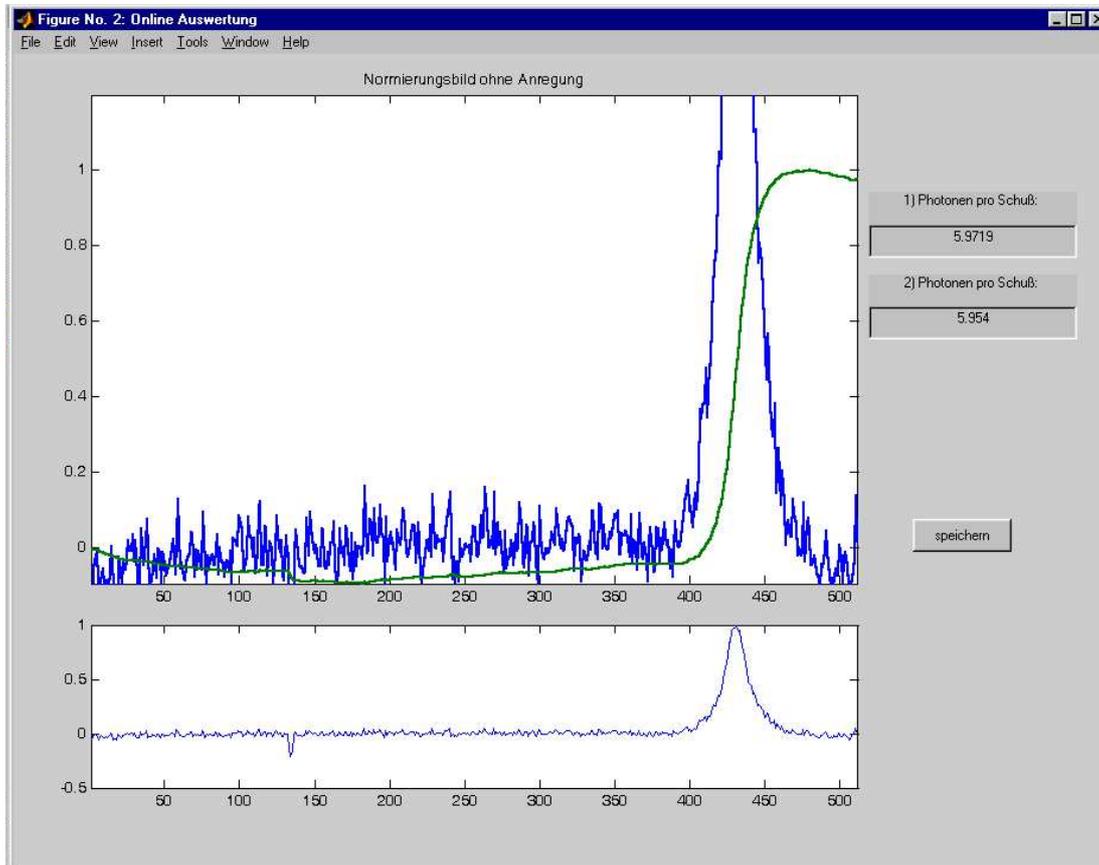


Abb. 59: Beugungslinie, erstellt mit dem Auswertungsprogramm.

In der Abb. 59 ist beispielsweise das Fenster zur Berechnung der Anzahl der Photonen abgebildet. Die blaue Funktion ist die Beugungskurve, die sich durch spaltenweises Aufsummieren der Kamerabilder ergibt. Die Beugungskurve im unteren Fenster ist auf 1 normiert, und die Linie ist in Ganzen zu sehen. Im oberen Fenster ist die Linie vergrößert dargestellt, gleichzeitig ist das Integral über diese Kurve berechnet worden und als grüne Kurve abgebildet. Das Integral ist einfachheitshalber auf 1 normiert, der Sprung im Integral ist proportional zur Anzahl der Photonen.

5.3 Winkelkalibrierung der Wismutexperimente

Bei den Beugungsexperimenten an den Bi-Schichten stehen zur Winkelkalibrierung der Beugungsprofile gleichzeitig keine zwei gebeugte Linien auf den Kamerabildern zur Verfügung. Für die Berechnung der Dehnung unter der Verwendung von (23) ist es somit notwendig, eine Winkelkalibrierung durchzuführen. Wird die Bi-Probe um einen bekannten Winkel gedreht, so verschiebt sich das Maximum der gebeugten Röntgenstrahlung auf der CCD-Kamera um denselben Winkel. Dabei ist darauf zu achten, daß nur Winkel sinnvoll sind, die in dem vom Röntgenspiegel angebotenen Konus liegen. *Abb. 60* zeigt ein Beispiel für eine Kalibrierung des (111)-Reflexes von Bi. Da die Kalibrierung abhängig ist von dem Abstand zwischen Probenoberfläche und CCD-Kamera, ist es notwendig, nach jedem Umbau zwischen (111)- und (222)-Reflex eine neue Kalibrierung durchzuführen.

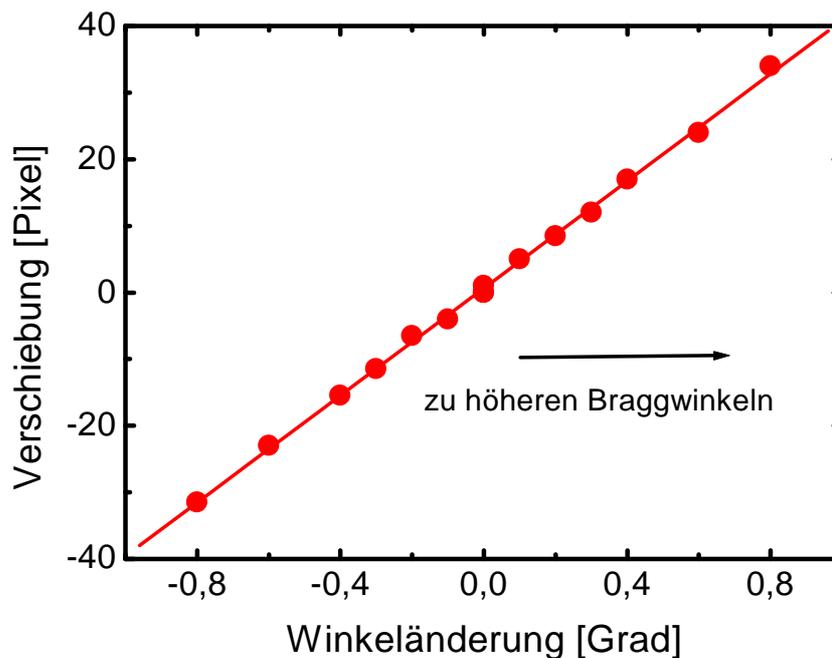


Abb. 60: Winkelkalibrierung der Kamerabilder für einen Bi(111)-Reflex. Aufgetragen ist die Drehung der Probe um einen festen Winkel gegen die Verschiebung der Linie auf dem CCD-Chip.

5.4 Fehleranalyse

Die Fehleranalyse für die Experimente an dünnen Wismutschichten besteht aus zwei Teilen. Im ersten Teil wird nach einer sinnvollen Belichtungszeit gesucht, um den Fehler der Reflektivität auf einen Wert von $\leq \pm 2\%$ zu beschränken. Im zweiten Teil wird versucht, den Fehler auf eine Verteilungsfunktion zurückzuführen.

Wird die Belichtungszeit vergrößert, bewirkt dies eine längere Mittelung über die Schwankungen, die in *Abb. 13* gemessen worden sind. Zur Untersuchung der Auswirkung der Mittelung auf den Fehler wurden bei verschiedenen Belichtungszeiten Beugungskurven von Bi aufgenommen. Bei jeder festen Belichtungszeit wurden bis zu $n = 20$ Aufnahmen durchgeführt und innerhalb dieser Gruppe jeweils der arithmetische Mittelwert μ der gebeugten Photonen, die Varianz σ^2 bzw. die Standardabweichung σ , der relative Fehler σ/μ und der Fehler von Spitzenwert-zu-Spitzenwert bestimmt. Sei I_i die Gesamtanzahl der gebeugten Photonen in der i -ten Aufnahme, so sind die statistischen Größen wie folgt definiert:

$$\mu = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n I_i \quad (51)$$

$$\sigma^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (I_i - \mu)^2 \quad (52)$$

$$\frac{\sigma}{\mu} = \frac{\sigma}{\mu} 100 \text{ [%]} \quad (53)$$

$$\frac{\text{Peak-zu-Peak}}{\mu} = \frac{\text{Maximum}(I_i) - \text{Minimum}(I_i)}{\mu} 100 \text{ [%]} \quad (54)$$

Abb. 61 zeigt als Beispiel den relativen Fehler sowie den Fehler von Peak-zu-Peak in Abhängigkeit der Belichtungszeit für ein Experiment in (222)-Richtung. Der relative Fehler nimmt erwartungsgemäß bei längerer Integration schnell ab, bis der Fehler gegen einen Grenzwert konvergiert. Ab einer Belichtungszeit von 120 s fällt der Fehler auf *ca.* 2%. Ab dieser Belichtungszeit ist keine Veränderung des Fehlers mehr feststellbar. Der Peak zu Peak Fehler weist dort einen Wert von 7% auf und ändert sich zu längeren Belichtungszeiten ebenfalls nicht mehr. Bei dem Peak zu Peak Fehler wurde eigentlich erwartet, daß dieser für alle Belichtungszeiten konstant bleibt. Eine wiederholte Auswertung der Meßdaten brachte leider keine Klärung der großen Fehler bei kleinen Belichtungszeiten. Aus dieser Beobachtung ergibt sich, daß längere Belichtungszeiten nicht sinnvoll sind und zu keiner wesentlichen Verbesserung der Meßergebnisse führen.

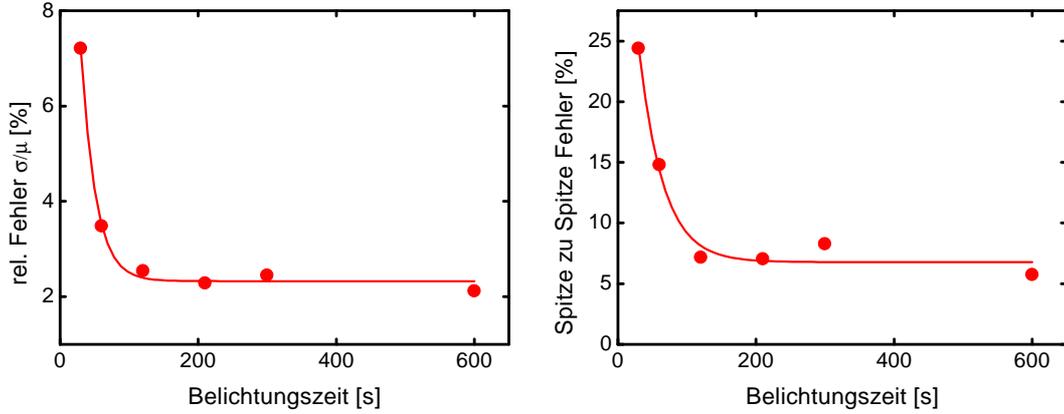


Abb. 61: Fehleranalyse für die Experimente an Wismutschichten.

Im weiteren wird diskutiert, wie sich der Fehler für ein einzelnes Bild von *ca.* 2% bei der festen Belichtungszeit von 120 s auf die Reflektivität R auswirkt. Der Fehler in der Reflektivität $\sigma(R)$ wird nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz bestimmt:

$$\sigma(R) = \left| \frac{\partial R}{\partial I_{Bi,gep}} \right| \sigma(I_{Bi,gep}) + \left| \frac{\partial R}{\partial I_{Bi,ungep}} \right| \sigma(I_{Bi,ungep}) \quad (55)$$

Die Reflektivität als Funktion von $I_{Bi,gep}$ und $I_{Bi,ungep}$ wurde bereits in (7) eingeführt und lautete

$$R = \frac{I_{Bi,gep}}{I_{Bi,ungep}}.$$

Die Schwankung der Anzahl der detektierten Photonen im Bild mit optischer Anregung und ohne optischer Anregung ist mit $\sigma(I_{Bi,gep})$ bzw. $\sigma(I_{Bi,ungep})$ bezeichnet. Werden die Ableitungen in (55) ausgeführt, ergibt sich mit Hilfe der Partiellen Ableitungen:

$$\left| \frac{\partial R}{\partial I_{Bi,gep}} \right| = \frac{1}{I_{Bi,ungep}} \quad \left| \frac{\partial R}{\partial I_{Bi,ungep}} \right| = \frac{I_{Bi,gep}}{I_{Bi,ungep}^2} = R \frac{1}{I_{Bi,ungep}} \quad (56)$$

der Fehler zu:

$$\sigma(R) = \left(\frac{1}{I_{Bi,ungep}} \right) \sigma(I_{Bi,gep}) + R \left(\frac{1}{I_{Bi,ungep}} \right) \sigma(I_{Bi,ungep}). \quad (57)$$

Die Anzahl der Photonen in den Aufnahmen ohne optischer Anregung $I_{Bi,ungep}$ kann durch den Mittelwert μ und der Fehler $\sigma(I_{Bi,ungep})$ kann durch die Standardabweichung σ aus der obigen Messung ersetzt werden. Auch der Fehler in dem Bild

während der optischen Anregung $\sigma(I_{Bi,gep})$ wird dem Fehler σ entsprechen, da in den Gleichungen (51) und (52) die Anzahl der detektierten Photonen I_i jeweils durch RI_i zu ersetzen ist. Somit kann aber in der Gleichung für die Standardabweichung (54) die Reflektivität wieder herauskürzt werden. Der Fehler wird somit zu:

$$\sigma(R) = \{1 + R\} \frac{\sigma}{\mu} \leq 2, 2 \frac{\sigma}{\mu} \approx 4, 5 \% \quad (58)$$

Im letzten Schritt wurde R durch 1, 2 nach oben abgeschätzt. Dies ist der maximal gemessene Wert in den Beugungsexperimenten in (222)-Richtung. Die obere Grenze des Fehlers liegt also bei *ca.* 4,5 % und kann durch längere Integration nicht verbessert werden. Eine Möglichkeit, die Fehlergrenze weiter zu reduzieren, ist die mehrmalige Bestimmung der Reflektivität. Wird die Reflektivität n -mal durch unabhängige Experimente bestimmt, so fällt der Fehler mit $1/\sqrt{n}$.

Bei den Experimenten wurde jede Belichtung bei einer festen Zeitverzögerung mehrmals wiederholt. Steht der Buchstabe n_i für das i -te Normierungsbild und p_i für ein angeregtes Bild, so ergibt sich folgende Abfolge der Bilder bei einer festen Zeitverzögerung τ (also für einen Meßpunkt):

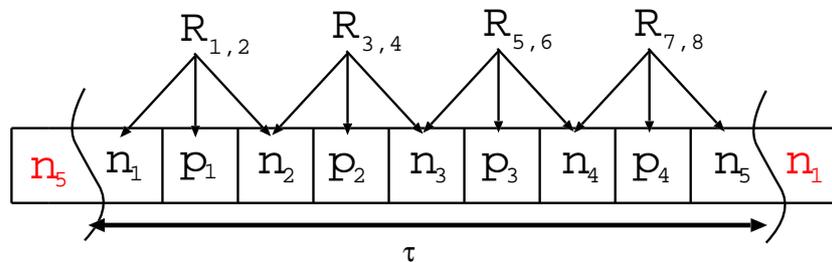


Abb. 62: Abfolge der Aufnahmen bei den Experimenten an Bi-Schichten. Das Symbol n_i steht für das i -te Normierungsbild, p_i für das i -te angeregte Bild. Aus den 8 Werten für die Reflektivität R_i – bei einer festen Zeitverzögerung τ – wird ein Mittelwert berechnet.

Wie aus der Abfolge zu erkennen ist, entsteht mit dieser Methode ein Mittelwert aus 8 unterschiedlichen Werten für die Reflektivität. Der bereits abgeschätzte Fehler von *ca.* 4,5 % fällt somit um $1/\sqrt{8}$ auf 1,6 %.

Nun soll noch einmal, mit Hilfe der gemessenen Verteilung aus Abb. 13, der gemessene Fehler verifiziert werden. Die Verteilung aus Abb. 13 wird mit Hilfe der statistischen Funktionen, die in (51) bis (53) definiert sind, beschrieben. Die Auswertung der Daten ergibt eine mittlere Photonenzahl im Röntgenfokus von $\mu = 1, 9 \cdot 10^4$ pro Laserimpuls, bei einer Standardabweichung von $\sigma = 3953$. Es entsteht ein relativer Fehler von $\sigma/\mu \approx 21\%$. Für statistisch unabhängige Ereignisse addieren sich die

Mittelwerte und Varianzen. Werden „theoretische“ Bilder mit der festen Belichtungszeit τ aus Einzelimpulsmessungen zusammengesetzt, wobei jeder einzelne Impuls der Verteilung in *Abb. 13* gehorcht, ergibt sich eine neue Verteilung mit einem Mittelwert μ_1 und einer Varianz σ_1^2 von:

$$\mu_1 = 10\tau\mu \left(R_{int} \frac{70}{\pi} \right) 1/\text{rad} \quad (59)$$

$$\sigma_1^2 = 10\tau\sigma^2 \left(R_{int} \frac{70}{\pi} \right)^2 1/\text{rad}^2 \quad (60)$$

Die Belichtungszeit wurde mit 10 multipliziert, da die Belichtungen im Experiment bei einer Laserwiederholrate von 10 Hz durchgeführt worden sind. Die Anzahl der Photonen wird um die Reflektivität R_{int} vermindert, wobei die Photonen wieder homogen über den Öffnungswinkel von $2,5^\circ$ verteilt werden. Der relative Fehler ergibt:

$$\frac{\sigma_1}{\mu_1} = \frac{1}{\sqrt{10\tau\mu}} \frac{\sigma}{\mu} 100\% = \frac{1}{\sqrt{10\tau}} 21\% \quad (61)$$

Wird eine Belichtungszeit von 120 s eingesetzt, ergibt sich ein Fehler von 0,6%. Der gemessene Fehler, der durch eine 120 s lange Integration entsteht, beträgt nach *Abb. 61* 2% und ist um einen Faktor 3 größer als der zuvor abgeschätzte aus den Einzelimpulsen. Bei der Abschätzung wurde jedoch nicht berücksichtigt, daß die geringe Reflektivität von $R_{int} \approx 10$ μrad die Photonenzahlen auf unter 10 pro Impuls erniedrigt; somit kann eine weitere Wahrscheinlichkeitsverteilung maßgebend sein. Die *Poisson*-verteilung beschreibt die Verteilung seltener Ereignisse, sie ist durch ihren Mittelwert μ_2 vollständig bestimmt. Die Varianz der *Poisson*-verteilung σ_2^2 ist gleich dem Mittelwert der Verteilung. Bei den Bi-Experimenten aus *Abb. 61* wurden bei einer Belichtungszeit von 120 s im Mittel $\mu_2 = 8000$ Photonen detektiert. Der relative Fehler beträgt $\sigma_2/\mu_2 = 100/\sqrt{\mu_2} \approx 1,1\%$. Da die Einzelschußverteilung und die *Poisson*-verteilung unabhängig sind, werden sich die Varianzen und die Mittelwerte wiederum addieren:

$$\sigma_3 = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \quad (62)$$

$$\mu_3 = \mu_1 + \mu_2 \quad (63)$$

Für beide Verteilungen zusammen ergibt sich ein Fehler von $\sigma_3/\mu_3 = 0,7\%$. Es läßt sich somit zusammenfassen, daß keine der Verteilungen den festgestellten und gemessenen Fehler von 2% reproduzieren kann.

Um die Langzeitstabilität der Quelle zu beobachten und um Fehlmessungen zu ver-

meiden, wurde während der Experimente auch die Abfolge der Anzahl der Photonen in den Normierungsbildern grafisch dargestellt und beobachtet.

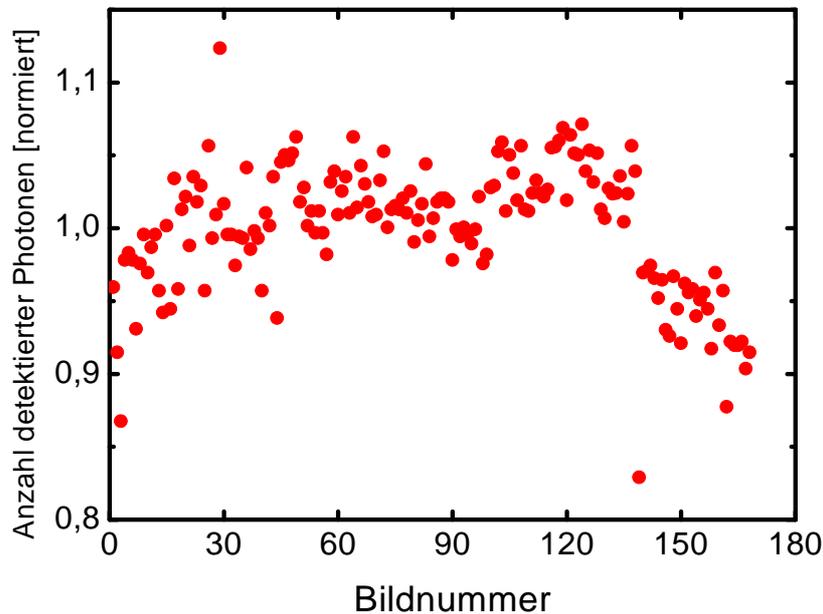


Abb. 63: Aufgetragen ist die Anzahl der detektierten Photonen in den Normierungsbildern in chronologischer Reihenfolge während eines Beugungsexperiments an Bi (222).

In Abb. 63 ist die chronologische Abfolge der Photonenzahl in den Normierungsbildern aufgetragen. Die Daten wurden einem Experiment in (222)-Richtung entnommen und sind auf den Mittelwert normiert. Eindeutige „Ausreißer“, die als Fehlmesung aussortiert wurden und nicht in die Auswertung für die Reflektivität eingehen, liegen außerhalb von $\pm 10\%$. Eine Langzeitdrift ist nicht zu erkennen, jedoch ist ein Sprung in der Emission bei Bildnummer 140 auszumachen. Nach diesem Sprung ist die Emission um etwa 5% erniedrigt. Da die Emission jedoch auf diesem Niveau verbleibt, können die Meßdaten weiter verwendet werden. Diese Anomalie fand bisher keine Klärung. Eine mögliche Erklärung könnte eine plötzliche Änderung der Position des Drahts sein. Daher wurde für spätere Experimente eine verbesserte Mechanik des Drahttargets entwickelt [32]. Zusätzlich wurde der Schrittmotor gegen einen Synchronmotor ausgetauscht, der eine kontinuierlichere Bewegung des Drahts durch den Fokus verspricht.

5.5 Materialdaten

Materialdaten für Germanium	Symbol	Wert	Ref.
Schmelztemperatur	$T_{M,Ge}$	1 210 K	[33]
spezifische Wärme (sol)	$c_{sol,Ge}$	1,98 J/(cm ³ K)	[33]
Absorptionskoeffizient (bei 800 nm, sol)	$1/\alpha_{sol,Ge}$	200 nm	[48]
Schallgeschwindigkeit (sol 300 K)	$v_{sol,Ge}$	5 555 m/s	[33]
Dichte (sol)	$\rho_{sol,Ge}$	5 323 kg/m ³	[33]
Dichte (liq)	$\rho_{liq,Ge}$	5 510 kg/m ³	[33]
Kompressionsmodul (sol 300 K)	$B_{sol,Ge}$	70 GPa	[33]
lin. Ausdehnungskoeff. (sol 300 K)	$\beta_{sol,Ge}$	$5,9 \cdot 10^{-6}$ 1/K	[33]
lin. Ausdehnungskoeff. (sol 1000 K)	$\beta_{sol,Ge}$	$8,5 \cdot 10^{-6}$ 1/K	[33]
latente Wärme	$L_{M,Ge}$	2,71 kJ/cm ³	[33]
spezifische Wärme (liq)	$c_{liq,Ge}$	1,98 J/(cm ³ K)	[72]
Schallgeschwindigkeit (liq)	$v_{liq,Ge}$	2 660 m/s	[97]
Kompressionsmodul (liq)	$B_{liq,Ge}$	40 GPa	[72]
lin. Ausdehnungskoeffizient (liq)	$\beta_{liq,Ge}$	$3,3 \cdot 10^{-5}$ 1/K	[18]
<i>Debye</i> -Temperatur	T_D	374 K	[33]
Atommasse	m_{Ge}	72,61	[33]
Wärmeleitfähigkeit (sol)	$\eta_{sol,Ge}$	60 W/m/K	[33]

Tab. 13: Zusammenfassung der Materialdaten und Referenzen für Ge in verschiedenen Phasenzuständen (sol: Festkörper, liq: Flüssigkeit). Die Schallgeschwindigkeit $v_{sol,Ge}$ bezieht sich auf eine longitudinale Welle in der Ausbreitungsrichtung (111), d. h. $v_{sol,Ge}^2 = 1/(3\rho_{sol,Ge})(C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44})$. Die Materialdaten für $v_{sol,Ge}$, $B_{sol,Ge}$ und $\beta_{sol,Ge}$ sind eigentlich temperaturabhängige Konstanten (Abb. 64, 65, 66). Eine Auflistung von Meßdaten bis $T = 1\,200$ K findet sich in [33]. Werden Temperaturen über 1 200 K erreicht, werden die Daten aus den bekannten Daten genähert.

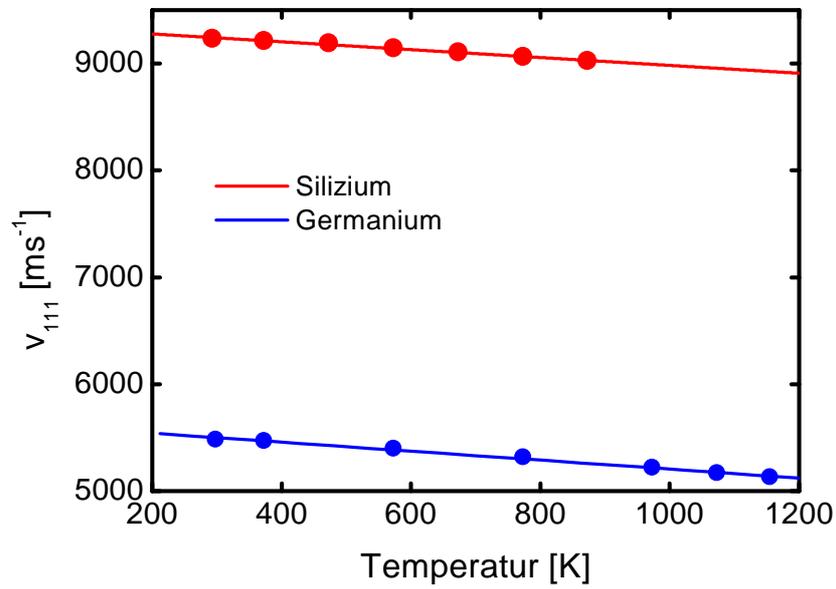


Abb. 64: Schallgeschwindigkeit in Ge und Si senkrecht zu den (111) Ebenen in Abhängigkeit von der Temperatur [33].

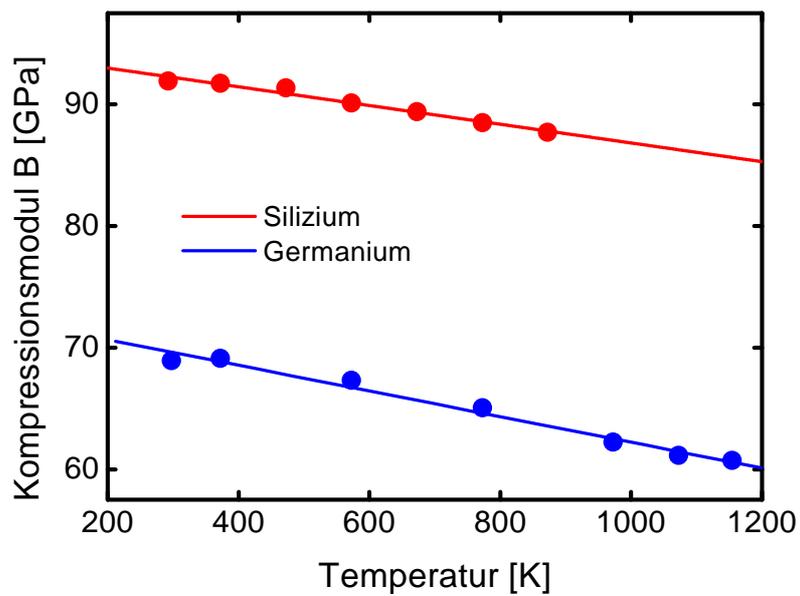


Abb. 65: Kompressionsmodul in Ge und Si in Abhängigkeit von der Temperatur [33].

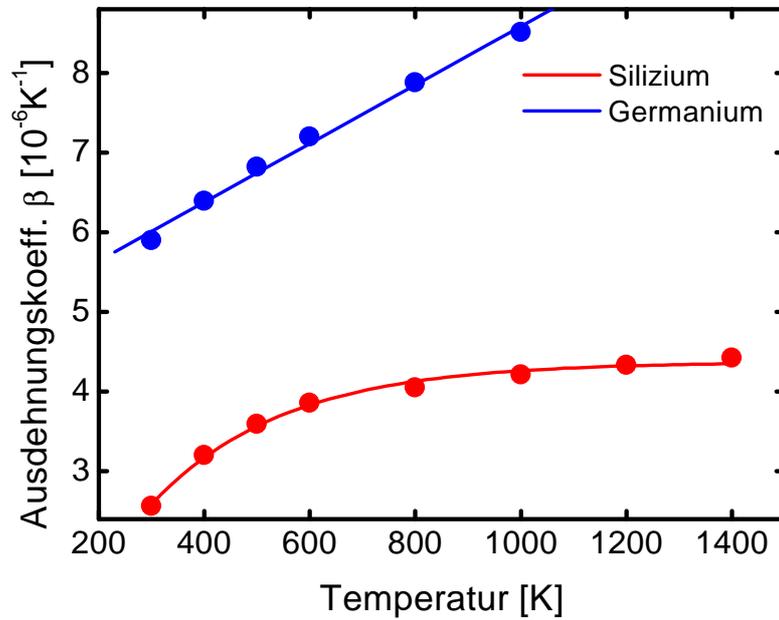


Abb. 66: Linearer Ausdehnungskoeffizient in Ge und Si in Abhängigkeit von der Temperatur [33].

Materialdaten für Silizium	Symbol	Wert	Ref.
spezifische Wärme (sol)	$c_{sol,Si}$	0,296 J/(cm ³ K)	[33]
Absorptionskoeffizient (bei 800 nm, sol)	$1/\alpha_{sol,Si}$	10 μm	[48]
Dichte (sol)	$\rho_{sol,Si}$	2329 kg/m ³	[33]
Schallgeschwindigkeit (sol)	$v_{sol,Si}$	9 360 m/s	[33]
Kompressionsmodul (sol 570 K)	$B_{sol,Si}$	90 GPa	[33]
lin. Ausdehnungskoeffizient (sol 550 K)	$\beta_{sol,Si}$	$3,73 \cdot 10^{-6}$ 1/K	[33]

Tab. 14: Zusammenfassung der Materialdaten für Si in der Festphase.

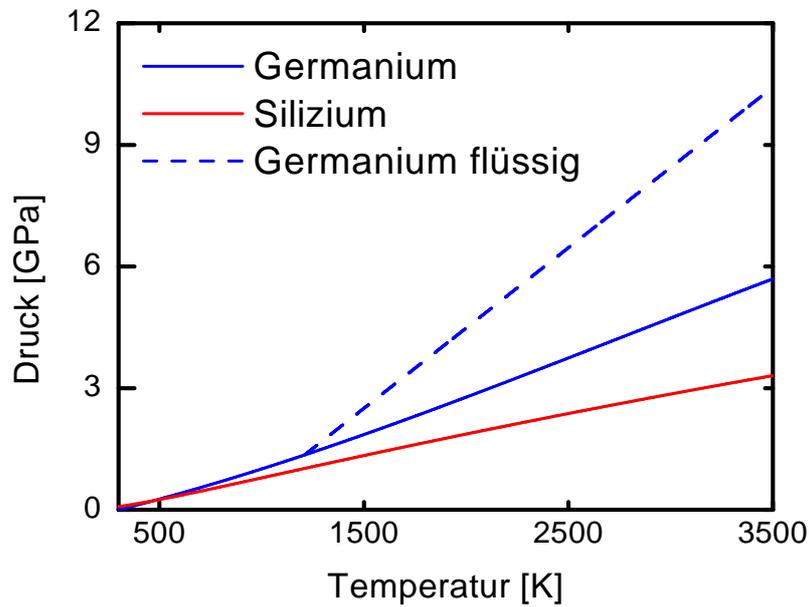


Abb. 67: Druckerhöhung *vs.* Temperatur bei konstantem Volumen in Ge und Silizium. Der Druck ergibt sich aus der Gleichung $dp = 3\beta B dT$. Die Integration wurde mit Hilfe der Interpolationen aus Abb. 65 und 66 durchgeführt. Die gestrichelte Linie ergibt sich, wenn nicht die Interpolation für festes Germanium verwendet wird, sondern die Materialdaten der Flüssigkeit aus Tabelle 13.

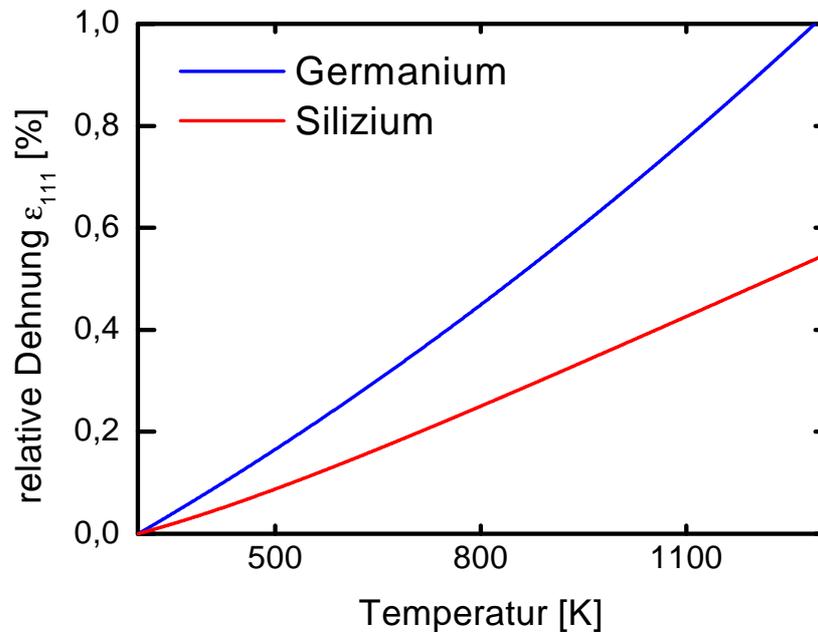


Abb. 68: Uniaxiale thermische Ausdehnung *vs.* Temperatur für Ge und Si. Die Ausdehnung kann nur in (111)-Richtung stattfinden [34].

Literaturverzeichnis

- [1] ANDIEL, U., K. EIDMANN, K. WITTE, I. USCHMANN und E. FÖRSTER: *Comparative study of time-resolved K-shell spectra from aluminum plasmas generated by ultrashort laser pulses at 395 and 790 nm*. Applied Physics Letters, 80(2):198, January 2002.
- [2] AUTOREN, DIVERSE: *International Tables of X ray crystallography*. D. Reidel Publishing Company, 1983.
- [3] BACKUS, S., G. DURFEE, M. M. MURNANE und H. C. KATEYN: *High power ultrafast lasers*. Review of Scientific Instruments, 69(3):1207–1223, March 1998.
- [4] BASTIANI, S., A. ROUSSE, J. P. GEINDRE, P. AUDEBERT, C. QUOIX, G. HAMONIAUX, A. ANTONETTIA und J. C. GAUTHIER: *Experimental study of the interaction of subpicosecond laser pulses with solid targets of varying initial scale lengths*. Physical Review E, 56(6):7179–7185, December 1997.
- [5] BLASCO, F., C. STENZ, F. SALIN, A. FAENOV, A. I. MAGUNOV, T. A. PIKUZ und I. SKOBELEV: *Portable, tunable, high-luminosity spherical crystal spectrometer with an X-ray charge coupled device, for high-resolution X-ray spectromicroscopy of clusters heated by femtosecond laser pulses*. Review of Scientific Instruments, 72(4):1956–1962, April 2001.
- [6] BLOME, C.: *Röntgenstrahlung aus lasererzeugten Femtosekunden-Plasmen*. Diplomarbeit, Universität Essen, Institut für Laser- und Plasmaphysik, 1999.
- [7] BLOME, C., K. SOKOLOWSKI-TINTEN, C. DIETRICH, A. TARASEVITCH und D. VON DER LINDE: *Set-up for ultrafast time-resolved X-ray diffraction using a femtosecond laser-plasma keV X-ray-source*. Journal de Physique, IV(11), 2001.
- [8] BORN, M. und E. WOLF: *Principles of Optics*. Cambridge University Press, 1988.
- [9] BRUNEL, F.: *Not-So Resonant, Resonant Absorption*. Physical Review Letter, 59(1):52–55, July 1987.
- [10] BUCKSBAUM, P. H. und R. MERLIN: *The phonon Bragg switch: a proposal to generate sub-picosecond X-ray pulses*. Solid State Communications, 111:535, May 1999.

-
- [11] CAHN, R. W.: *Melting from within*. Nature, 413(3):582–583, October 2001.
- [12] CALLAN, J. P.: *Ultrafast Dynamics and Phase Changes in Solids Excited by Femtosecond Laser Pulses*. Doktorarbeit, Harvard University, Cambridge Massachusetts, 2000.
- [13] CAVALLERI, A., C. W. SIDERS, F. L. BROWN, D. M. LEITNER, C. TOTH, J. A. SQUIER, C. P. BARTY, K. R. WILSON, K. SOKOLOWSKI-TINTEN, M. HORN-VON HOEGEN, D. VON DER LINDE und M. KAMMLER: *Anharmonic Lattice Dynamics in Germanium Measured with Ultrafast X-Ray Diffraction*. Physical Review Letters, 85(3):586–589, July 2000.
- [14] CAVALLERI, A., C. W. SIDERS, K. SOKOLOWSKI-TINTEN, C. TOTH, C. BLOME, J. A. SQUIER, D. VON DER LINDE, C. P. J. BARTY und K. R. WILSON: *Femtosecond X-Ray Diffraction*. Optics and Photonics News, Seiten 27–31, May 2001.
- [15] CAVALLERI, A., K. S. TINTEN, J. BIALKOWSKI, M. SCHREINER und D. VON DER LINDE: *Femtosecond melting and ablation of semiconductors studied with time of flight mass spectroscopy*. Journal of Applied Physics, 85(6):3301, March 1999.
- [16] CHIN, A. H., R. W. SCHOENLEIN, T. E. GLOVER, P. BALLING, W. P. LEEMANS und C. V. SHANK: *Ultrafast Structural Dynamics in InSb Probed by Time-Resolved X-Ray Diffraction*. Physical Review Letters, 83(2):336–339, July 1999.
- [17] CHO, A.: *The Ultimate Bright Idea*. Science, 296(10):1008–1010, May 2002.
- [18] CUTLER, M.: *Liquid semiconductors*. Academic Press, 1977.
- [19] DECAMP, M. F., D. A. REIS, P. H. BUCKSBAUM und R. MERLIN: *Dynamics and coherent control of high-amplitude optical phonons in bismuth*. Physical Review B, 64:92301–92304, August 2001.
- [20] DIELS, J. C. und W. RUDOLPH: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press, 1996.
- [21] DYSON, N. A.: *X-rays in atomic and nuclear physics*. Cambridge University Press, 1990.

- [22] EDER, D. C., G. PRETZLER, E. FILL, K. EIDMANN und A. SAEMANN: *Spatial characteristics of K-alpha radiation from weakly relativistic laser plasmas*. Applied Physics B, 70(2):211–217, August 2000.
- [23] FEURER, T., A. MORAK, I. USCHMANN, C. ZIENER, H. SCHWOERER, P. GIBBON C. REICH, E. FÖRSTER, R. SAUERBREY, K. ORTNER und C. R. BECKER: *Femtosecond silicon $K\alpha$ pulses from laser-produced plasmas*. Physical Review E, 65:164121–164124, December 2001.
- [24] FEURER, T., A. MORAK, I. USCHMANN, C. ZIENER, H. SCHWOERER, E. FÖRSTER und R. SAUERBREY: *An incoherent sub-picosecond X-ray source for time-resolved X-ray-diffraction experiments*. Applied Physics B, 72(1):15–20, November 2001.
- [25] FORK, R. L., C. H. BRITO, P. C. BECKER und C. V. SHANK: *Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation*. Optics Letters, 12(7):483, July 1987.
- [26] GIBBON, P. und E. FÖRSTER: *Short-Pulse laser-plasma interactions*. Plasma Physics and Controlled Fusion, 38(6):769, June 1996.
- [27] HASE, M., M. KITAJIMA, S. NAKASHIMA und K. MIZOGUCHI: *Dynamics of Coherent Anharmonic Phonons in Bismuth Using High Density Photoexcitation*. Physical Review Letters, 88(6):67401, Febr 2002.
- [28] HEUSER, H.: *Gewöhnliche Differentialgleichungen*. B.G. Teubner Stuttgart, 1991.
- [29] HORN-VON HOEGEN, M.: *Surfactants: Perfect heteroepitaxy of Ge on Si (111)*. Applied Physics A, 59:503–515, June 1994.
- [30] HORN-VON HOEGEN, M., F. K. LEGOUES, M. C. REUTER und R. M. TROMP: *Defect self-annihilation in surfactant-mediated epitaxial growth*. Physical Review Letters, 67(9):1130–1133, August 1991.
- [31] JESCHKE, H. O., M. E. GARCIA und K. H. BENNEMANN: *Microscopic analysis of the laser-induced femtosecond graphitization of diamond*. Physical Review B, 60(6):R3701–R3704, August 1999.
- [32] KEHLE, S.: *Erzeugung kurzer Röntgenimpulse*. Diplomarbeit, Universität Essen, Institut für Laser- und Plasmaphysik, eingereicht, 2002.

- [33] LANDOLT, H. H. und BÖRNSTEIN: *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik*. Springer, Madelung, 1961.
- [34] LARSON, B. C., J. Z. TISCHLER und D. M. MILLS: *Nanosecond resolution time-resolved X-ray study of silicon during pulsed-laser irradiation*. J. Mater. Res., 1(1):144, Jan/Feb 1986.
- [35] LARSSON, J., A. ALLEN, P. H. BUCKSBAUM, R. W. FALCONE, A. LINDENBERG, G. NAYLOR, T. MISSALLA, D. A. REIS, K. SCHEIDT, A. SJÖRGEN, P. SONDDHAUSS, M. WULFF und J. S. WARK: *Picosecond X-ray diffraction studies of laser-excited acoustic phonons in InSb*. Applied Physics A, 75(4):467–478, March 2002.
- [36] LARSSON, J., Z. CHANG, E. JUDD, P. J. SCHUCK, R. W. FALCONE, P. A. HEIMANN, H. A. PADMORE, H. C. KAPTEYN, P. H. BUCKSBAUM, M. M. MURNANE, R. W. LEE, A. MACHACEK, J. S. WARK, X. LIU und B. SHAN: *Ultrafast X-ray diffraction using a streak-camera detector in averaging mode*. Optics Letters, 22(13):1012–1014, July 1997.
- [37] LARSSON, J., P. A. HEIMANN, A. M. LINDENBERG, P. J. SCHUCK, P. H. BUCKSBAUM, R. W. LEE, H. A. PADMORE, J. S. WARK und R. W. FALCONE: *Ultrafast structural changes measured by time-resolved X-ray diffraction*. Applied Physics A, 66(6):587–591, April 1998.
- [38] LAWRENCE LIVERMORE LAB.: *X-Ray Interactions with Matter*, http://www-cxro.lbl.gov/optical_constants, November 2002.
- [39] LEEMANS, W. P., R. W. SCHOENLEIN, P. VOLFBEYN, A. H. CHIN, T. E. GLOVER, P. BALLING, M. ZOLOTOREV, K. J. KIM, S. CHATTOPADHYAY und C. V. SHANK: *X-Ray Based Subpicosecond Electron Bunch Characterization Using 90° Thomson Scattering*. Physical Review Letters, 77(20):4185, November 1996.
- [40] LINDE, D. VON DER und H. SCHÜLER: *Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser-solid interaction*. Journal of the Optical Society of America, 13:216–222, January 1996.
- [41] LINDE, D. VON DER, K. SOKOLOWSKI-TINTEN, C. BLOME, C. DIETRICH, A. TARASEVITCH, A. CAVALLERI und J. A. SQUIER: *Ultrafast extended to X-rays: Femtosecond time-resolved X-ray diffraction*. Zeitschrift für physikalische Chemie, 215(12):1527–1541, September 2001.

- [42] LINDENBERG, A. M., I. KANG, S. L. JOHNSON, T. MISSALLA, P. A. HEIMANN, Z. CHANG, J. LARSSON, P. H. BUCKSBAUM, H. C. KAPTEYN, H. A. PADMORE, R. W. LEE, J. S. WARK und R. W. FALCONE: *Time-Resolved X-Ray Diffraction from Coherent Phonons during a Laser-Induced Phase Transition*. Physical Review Letters, 84(1):111–114, January 2000.
- [43] MARGARITONDO, G.: *Introduction to Synchrotron Radiation*. Oxford University Press, 1988.
- [44] MERLIN, R.: *Generating Coherent THz Phonons with Light Pulses*. Solid State Communications, 102(2-3):207–220, 1997.
- [45] MICHETTE, A. G. und C. J. BUCKLEY: *X-Ray, Science and Technology*. Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 1993.
- [46] MISSALLA, T., I. USCHMANN, E. FÖRSTER, G. JENKE und D. VON DER LINDE: *Monochromatic focusing of subpicosecond X-ray pulses in the keV range*. Review of Scientific Instruments, 70(2):1288–1299, February 1999.
- [47] MURNANE, M. M., H. C. KAPTEYN, M. D. ROSEN und R. W. FALCONE: *Ultrafast X-ray Pulses from Laser-Produced Plasmas*. Science, 251(6):531–536, February 1991.
- [48] PALIK, E. D.: *Handbook of optical constants of solids*. Academic Press Handbook Series, 1985.
- [49] PEIERLS, E. R.: *More surprises in theoretical physics*. Princeton Series in Physics, 1991.
- [50] PITTMAN, M., S. FERRE, J.P. ROUSSEAU, L. NOTEBAERT, J.P. CHAMBARET und G. CHERIAUX: *Design and characterization of a near-diffraction limited femtosecond 100-TW 10-Hz high-intensity laser system*. Applied Physics B, 74:529, May 2002.
- [51] PRINCETON INSTRUMENTS: *Documentation, Header Structure For WinView/WinSpec (WINX) Files*.
- [52] PRINCETON INSTRUMENTS: *High Performance Cameras, Instr. Manual*.
- [53] REICH, C., P. GIBBON, I. USCHMANN und E. FÖRSTER: *Yield Optimization and Time Structure of Femtosecond Laser Plasma $K\alpha$ Sources*. Physical Review Letters, 84(21):4846, May 2000.

- [54] RETHFELD, B., K. SOKOLOWSKI-TINTEN und D. VON DER LINDE: *Ultrafast thermal melting of laser-excited solids by homogeneous nucleation*. Physical Review B, 65:92103, February 2002.
- [55] RICHARD, F., J. R. SCHNEIDER, D. TRINES, A. WAGNER, R. BRINKMANN, K. FLÖTTMANN, J. ROSSBACH, P. SCHMÜSER, N. WALKER, H. WEI-SE, R. D. HEUER, D. MILLER, P. ZERWAS, T. BEHNKE, S. BERTOLUCI, R. SETTLES, G. MATERLIK, T. TSCHENTSCHER, R. KLANNER, V. TELNOV, U. KATZ, M. KLEIN, A. LEVY, R. KAISER, W. D. NOWAK, DESANCTIS, J. M. LAGET, K. RITH, B. FAATZ und H. SCHULTE-SCHREPPING: *TESLA FXFEL, First Stage of the X-Ray Laser Laboratory, Technical Design Report*. DESY, Deutsches Elektron-Synchrotron, October 2002.
- [56] RISCHEL, C., A. ROUSSE, I. USCHMANN, P. A. ALBOUY, J. P. GEINDRE, P. AUDEBERT, J. C. GAUTHIER, E. FÖRSTER, J. L. MARTIN und A. ANTONETTI: *Femtosecond time-resolved X-ray diffraction from laser-heated organic films*. Nature, 390(4):490–492, December 1997.
- [57] ROBERTS, D. und M. SULKANEN: *AXAFS Project Science: Widths for Characteristic X-Ray Lines*, <http://wwwastro.msfc.nasa.gov/xray/xraycal/linewidths.html>, May 1997.
- [58] ROPERS SCIENTIFIC: *Data Sheet, PI, LCX1300*.
- [59] ROSE-PETRUCK, C., R. JIMENEZ, T. GUO, A. CAVALLERI, C. W. SIDERS, F. RAKSI, J. A. SQUIER, B. C. WALKER, K. R. WILSON, und C. P. J. BARTY: *Picosecond-millångström lattice dynamics measured by ultrafast X-ray diffraction*. Nature, 398(25):310–312, March 1999.
- [60] ROUSSE, A., P. AUDEBERT, J. P. GEINDRE, F. FALL und J. C. GAUTHIER: *Efficient $K\alpha$ X-ray source from femtosecond laser-produced plasmas*. Physical Review E, 50(3):2200, September 1994.
- [61] ROUSSE, A., C. RISCHEL, S. FOURMAUX, I. USCHMANN, S. SEBBAN, PH. BALCOU G. GRILLON, E. FÖRSTER, J. P. GEINDRE, P. AUDEBERT, J. C. GAUTHIER und D. HULIN: *Non-thermalmelting in semiconductors measured at femtosecond resolution*. Nature, 410(1):65–67, March 2001.
- [62] ROUSSE, A., C. RISCHEL und J. C. GAUTHIER: *Colloquium: Femtosecond X-ray crystallography*. Review of modern Physics, 73(1):17–31, January 2001.

- [63] RÖNTGEN, W. C.: *Über eine neue Art von Strahlung*. Sitzungsbericht an die medizinisch-physikalische Gesellschaft Würzburg, 1895.
- [64] SANCHEZ DEL RIO, M.: <http://www.esrf.fr/computing/scientific/xop>, November 2002.
- [65] SANCHEZ DEL RIO, M. und R. J. DEJUS: *XOP: Recent Developments*. SPIE, 2488:340–345, 1998.
- [66] SCHOENLEIN, R. W., S. CHATTOPADHYAY, H. CHONG, T. GLOVER, P. A. HEIMANN, W. LEEMANS, C. V. SHANK, A. ZHOLENTS und M. ZOLOTOREV: *Generation of femtosecond X-ray pulses via laser electron beam interaction*. Applied Physics B, 71(1):1–10, June 2000.
- [67] SCHOENLEIN, R. W., S. CHATTOPADHYAY, H. CHONG, T. GLOVER, P. A. HEIMANN, C. V. SHANK, A. ZHOLENTS und M. ZOLOTOREV: *Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation*. Science, 287:2237, March 2000.
- [68] SCHOENLEIN, R. W., W. P. LEEMANS, A. H. CHIN, P. VOLFBEYN, T. E. GLOVER, P. BALLING, M. ZOLOTOREV, K. J. KIM, S. CHATTOPADHYAYA und C. V. SHANK: *Femtosecond X-ray Pulses at 0.4 Å Generated by 90° Thomson Scattering: A Tool for Probing the Structural Dynamics of Materials*. Science, 274:236, October 1996.
- [69] SHANK, C. V.: *Investigation of ultrafast phenomena in the femtosecond time domain*. Science, 233(80):1276, 1986.
- [70] SHANK, C. V., R. YEN und C. HIRLIMANN: *Femtosecond time-resolved surface structural dynamics of optically excited silicon*. Physical Review Letter, 51:900, 1983.
- [71] SHICK, A. B., J. B. KETTERSON, D. L. NOVIKOV und A. J. FREEMAN: *Electronic structure, phase stability, and semimetal-semiconductor transitions in Bi*. Physical Review B, 60(23):15484–15487, December 1999.
- [72] SHIH, W. H. und D. STROUD: *Thermodynamic properties of liquid Si and Ge*. Physical Review B, 31(6):3715–3720, March 1985.
- [73] SIDERS, C. W., A. CAVALLERI, K. SOKOLOWSKI-TINTEN, C. TOTH, T. GUO, M. KAMMLER, M. HORN-VON HOEGEN, K. R. WILSON,

- D. VON DER LINDE und C. P. J. BARTY: *Detection of Nonthermal Melting by Ultrafast X-ray Diffraction*. Science, 286(12):1340–1342, November 1999.
- [74] SILVESTRELLIA, P. L. und M. PARRINELLO: *Ab initio molecular dynamics simulation of laser melting of graphite*. Journal of Applied Physics, 83(5):2478–2483, March 1998.
- [75] SOKOLOWSKI-TINTEN, K., J. BIALKOWSKI, M. BOING, A. CAVALLERI und D. VON DER LINDE: *Thermal and nonthermal melting of gallium arsenide after femtosecond laser excitation*. Physical Review B, 58(18):11805–11808, November 1998.
- [76] SOKOLOWSKI-TINTEN, K., J. BIALKOWSKI und D. VON DER LINDE: *Ultrafast laser-induced order-disorder transitions in semiconductors*. Physical Review B, 51(20):14186–14198, May 1995.
- [77] SOKOLOWSKI-TINTEN, K., C. BLOME, J. BLUMS, A. CAVALLERI, C. DIETRICH, A. TARASEVITCH, I. USCHMANN, E. FÖRSTER, M. KAMMLER, M. HORN-VON HOEGEN und D. VON DER LINDE: *Femtosecond X-ray measurement of coherent lattice vibrations near the Lindemann stability limit*. Nature, 422:287–289, March 2003.
- [78] SOKOLOWSKI-TINTEN, K., C. BLOME, C. DIETRICH, A. TARASEVITCH, M. HORN-VON HOEGEN, D. VON DER LINDE, A. CAVALLERI, J. SQUIER und M. KAMMLER: *Femtosecond X-Ray Measurement of Ultrafast Melting and Large Acoustic Transients*. Physical Review Letters, 87(22):2257011–2257014, November 2001.
- [79] SOKOLOWSKI-TINTEN, K. und D. VON DER LINDE: *Generation of dense electron hole plasmas in silicon*. Physical Review B, 61(4):2643, January 2000.
- [80] SOKOLOWSKI-TINTEN, K., J. SOLIS, J. SIEGEL, C. N. AFONSO und D. VON DER LINDE: *Dynamics of Ultrafast Phase Changes in Amorphous GeSb Films*. Physical Review Letters, 81(17):3679–3682, October 1998.
- [81] SPIELMANN, C., N. H. BURNETT, S. SARTANIA, R. KOPPITSCH, M. SCHNÜRER, C. KAN, M. LENZNER, P. WOBRAUSCHEK und F. KRAUSZ: *Generation of Coherent X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses*. Science, 278(24):661–664, October 1997.

-
- [82] STAMPFLI, P. und K. H. BENNEMANN: *Dynamical theory of the laser-induced lattice instability of silicon*. Physical Review B, 46(17):10686–10692, November 1992.
- [83] STAMPFLI, P. und K. H. BENNEMANN: *Time dependence of the laser-induced femtosecond lattice instability of Si and GaAs: Role of longitudinal optical distortions*. Physical Review B, 49(11):7299–7305, March 1994.
- [84] STEPANOV, S.: <http://sergey.gmca.aps.anl.gov>. Advanced Photon Source (APS), January 2002.
- [85] SUNDARAM, S. K. und E. MAZUR: *Inducing and probing non-thermal transitions in semiconductors using femtosecond laser pulses*. Nature materials, 1:217, December 2002.
- [86] SYNNERGREN, O., M. HARBST, T. MISSALLA, J. LARSSON, G. KATONA und R. NEUTZE: *Projecting picosecond lattice dynamics through x-ray topography*. Applied Physics Letters, 80(20):3727, May 2002.
- [87] TREACY, E. B.: *Optical Pulse Compression*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 5(9):454–458, September 1969.
- [88] USCHMANN, I.: *Private Communication*.
- [89] WARREN, B. E.: *X-Ray Diffraction*. New York: Dover Classics of Science and Mathematics, 1990.
- [90] WILHEIN, T.: *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendungen im Bereich weicher Röntgenstrahlung*. Doktorarbeit, Georg-August-Universität zu Göttingen, 1994.
- [91] WILKS, S. C. und W. L. KRUEER: *Absorption of Ultrashort, Ultra-Intense Laser Light by Solids and Overdense Plasmas*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 33(11):1954–1968, November 1997.
- [92] WITTRY, D. B. und S. SONGQUAN: *X-ray optics of doubly curved diffractors*. Journal of Applied Physics, 67(4):1633–1638, February 1990.
- [93] WITTRY, D. B. und S. SONGQUAN: *X-ray optics of doubly curved diffractors II*. Journal of Applied Physics, 71(2):564–568, October 1992.
- [94] X-RAY EMISSION LINES: *K-level and L-level emission lines in KeV*, <http://xray.uu.se/hypertext/XREmission.html>, November 2002.

-
- [95] X-RAY OPTICS GROUP, INSTITUTE OF OPTICS AND QUANTUM ELECTRONICS, FRIEDRICH SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA: *Herstellerangabe*.
- [96] YAAKOBI, B. und R. E. TURNER: *Focusing X-ray spectrograph for laser fusion experiments*. Review of Scientific Instruments, 50(12):1609–1611, December 1979.
- [97] YOSHIMOTO, N., H. SHIBATA, M. YOSHIKAWA und K. SUZUKI: *Sound Velocity Measurements of Molten Germanium*. Japanese Journal of Applied Physics, 35(5A):2754–2757, May 1996.
- [98] ZACHARIASEN, W. H.: *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals*. New York: Dover Classics of Science and Mathematics, 1994.
- [99] ZEIGER, H. J., J. VIDAL, T. K. CHENG, E. P. IPEN, G. DRESSELHAUS und M. S. DRESSELHAUS: *Theory for dispersive excitation of coherent phonons*. Physical Review B, 45(2):768–778, January 1992.
- [100] ZEMANSKY, W.: *Heat and Thermodynamics*. McGraw-Hill, Ltd., 1968.
- [101] ZEPF, M., G. D. TSAKIRIS, G. PRETZLER, I. WATTS, D. M. CHAMBERS, P. A. NORREYS, U. ANDIEL, A. E. DANGOR, K. EIDMANN, C. GAHN und A. MACHACEK, J. S. WARK und K. WITTE: *Role of the plasma scale length in the harmonic generation from solid targets*. Physical Review E, 58(5):5253, November 1998.
- [102] ZHOLENTS, A. A. und M. S. ZOLOTOREV: *Femtosecond X-Ray Pulses of Synchrotron Radiation*. Physical Review Letters, 76(6):913, February 1996.



Mein DANK gilt:

In besonderer Weise Herrn *Prof. Dr. von der Linde* für die hilfreiche Unterstützung bei meiner Arbeit am Institut für Laser und Plasmaphysik der Universität Essen. Herr Prof. Dr. von der Linde hat den Fortgang meiner Dissertation stets mit großem Interesse und fruchtbaren Anregungen begleitet.

Herrn *Prof. Dr. Horn-von Hoegen* für die freundliche Übernahme der Begutachtung der Dissertation.

Der Arbeitsgruppe von Herrn *Prof. Dr. Horn-von Hoegen* und Herrn Dr. Kammler für die Überlassung der notwendigen Wismut- und Germanium Proben.

Herrn *Dr. Sokolowski-Tinten* für die eingehenden Diskussionen der Daten und die intensive Betreuung während der Labortätigkeit. Insbesondere für die gemeinsam durchwachten Nächte im Labor. Ohne seinen Einsatz wäre diese Arbeit nicht zustande gekommen.

Herrn *Prof. Förster* und Herrn *Dr. Uschmann* für die Präparierung und Bereitstellung der Röntgenoptiken.

Herrn *Dipl.-Ing. Proff* und Herrn *Handwerksmeister Bieske* für die technische und mechanische Hilfestellung.

Allen Mitarbeitern und Kollegen des Instituts für die kameradschaftliche Zusammenarbeit. Insbesondere *Clemens* für die Mitarbeit an der Forschungsfront bis zur „Erstschlagfähigkeit“, aber auch für erholsame Abende in unserer Stammkneipe.

Nicht zuletzt meinen Eltern, die mir mit Tat und Rat zur Seite standen, diese Arbeit erfolgreich zu beenden und mein Ziel zu erreichen.

Lebenslauf

Christian Blome

geboren am 10.11.1971 in Essen

Schulausbildung	1978 – 1982	Grundschule in Essen
	1982 – 1991	Bischöfliche Tagesheimschule Schulzentrum Am Stoppenberg in Essen Abschluss: Abitur
Wehrdienst	07/1991 – 06/1992	Grundwehrdienst
Hochschulausbildung	09/1992 – 05/1999	Universität Essen Studiengang Physik Abschluss: Diplom Physiker
	seit 05/1999	Universität Essen wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Laser- und Plasmaphysik
Lehrerfahrung	seit 99	Übungsleiter Praktikum für Fortgeschrittene: <i>Farbstofflaser und Lasergrundversuch</i>
Dissertation	Abgabe 05/2003	<i>Untersuchung schneller Strukturänderungen mit Hilfe kurzer Röntgenimpulse *</i>
Mitgliedschaften	Deutschen Physikalische Gesellschaft (DPG) Katholisch Studierenden Jugend (KSJ)	

Essen, 01.05.2003

* siehe Publikationsliste

Publikationsliste

- 1999 Blome C.: *Röntgenstrahlung aus lasererzeugten Femtosekunden-Plasmen*. Diplomarbeit, Universität Essen, Institut für Laser- und Plasmaphysik
- 2001 Blome C., Sokolowski-Tinten K., Dietrich C., Tarasevitch A., Linde v. d. D.: *Set-up for ultrafast time-resolved X-ray diffraction using a femtosecond laser-plasma keV X-ray-source*. Journal de Physique IV 11, Pr2-491
- Cavalleri A., Siders C., Sokolowski-Tinten K., Toth C., Blome C., Squier J., Linde v. d. D., Barty C., Wilson K.: *Femtosecond X-Ray Diffraction*. Optics and Photonics News, 7-31, May
- Linde v. d. D., Sokolowski-Tinten K., Blome C., Dietrich C., Tarasevitch A., Cavalleri A., Squier J.: *Ultrafast extended to X-rays: Femtosecond time-resolved X-ray diffraction*. Zeitschrift für Physikalische Chemie, 215,1527-1541, September
- Sokolowski-Tinten K., Blome C., Dietrich C., Tarasevitch A., Horn-von Hoegen M., Linde v. d. D., Cavalleri A., Squier J., Kammler M.: *Femtosecond X-Ray measurement of ultrafast melting and large acoustic transients*. Physical Review Letters, 87,225701, November
- Linde v. d. D., Sokolowski-Tinten K., Blome C., Dietrich C., Zhou P., Tarasevitch A., Cavalleri A., Siders C., Squier J., Barty C., Wilson K., Uschmann I., Förster E.: *Generation and application of ultrashort X-ray pulses*. Laser and Particle Beams 19, 15-22
- 2002 Tarasevitch A., Dietrich C., Blome C., Sokolowski-Tinten K., Linde v. d. D.: *3/2 Harmonic Generation by Femtosecond Laser Pulses on Solid Targets*. Ultrafast Phenomena XIII, ed. by R.J.D. Miller, M.M. Murnane, N.F. Scherer, A.M. Weiner, Springer Series in Chemical Physics (Springer, Heidelberg, in print)
- Sokolowski-Tinten K., Blome C., Dietrich C., Tarasevitch A., Horn-von Hoegen M., Linde v. d. D., Cavalleri A., Squier J.A., Kammler M.: *Time Resolved X-ray Diffraction Study of Ultrafast Structural Dynamics in Laser-Excited Solids*. Ultrafast Phenomena XIII, ed. by R.J.D. Miller, M.M. Murnane, N.F. Scherer, A.M. Weiner, Springer Series in Chemical Physics (Springer, Heidelberg, in print)
- Cavalleri A., Blome C., Forget P., Kieffer J., Majnan S., Siders C., Sokolowski-Tinten K., Squier J., Toth C., Linde v. d. D.: *Time Resolved X-ray Diffraction Study of Ultrafast Structural Dynamics in Laser-Excited Solids*. Phase Transitions (accepted)

- 2002 Sokolowski-Tinten K., Blome C., Blums, Cavalleri A., Dietrich C., Tarasevitch A., Linde v. d. D.: *Ultrafast Time-Resolved X-ray Diffraction*. Science of Super-Strong Field Interaction, AIP Conf. Proc. 634, 11
- Linde v. d. D., Sokolowski-Tinten K., Blome C., Dietrich C., Tarasevitch A., Cavalleri A., Squier J.: *Femtosecond Time Resolution in X-ray Spectroscopy*. Superstrong Fields in Plasmas, AIP Conf. Proc. 611, 63
- 2003 Sokolowski-Tinten K., Blome C., Blums J., Cavalleri A., Dietrich C., Tarasevitch A., Uschmann I., Förster E., Kammler M., Horn-von Hoegen M., Linde v. d. D.: *Femtosecond X-ray measurement of coherent lattice vibrations near the Lindemann stability limit*. Nature 422, 287-289
- Tarasevitch A., Dietrich C., Blome C., Sokolowski-Tinten K., Linde v. d. D.: *3/2 Harmonic Generation by Femtosecond Laser Pulses on Solid Targets*. *Physical Review E*, eingereicht zur Veröffentlichung
- Linde v. d. D. und Sokolowski-Tinten K.: *X-Ray Diffraction experiments with Femtosecond Time Resolution* Journal of Modern Optics 50, 683-694