

Röntgenbeugung auf Subpikosekunden Zeitskalen

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

vorgelegt dem Rat der Physikalisch–Astronomischen Fakultät
der Friedrich–Schiller–Universität Jena

von Diplomphysiker Andreas Morak
geboren am 11. Juli 1972 in Jena

Gutachter :

1. Prof. Dr. Roland Sauerbrey
2. Prof. Dr. Helmut Zacharias
3. Prof. Dr. Christoph G. Rose-Petruck

Tag der letzten Rigorosumsprüfung : 11.09.2003

Tag der öffentlichen Verteidigung : 06.11.2003

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Charakterisierung der Röntgenquelle	7
2.1	Das Titan–Saphir–Lasersystem	7
2.2	Experimenteller Aufbau	9
2.3	Entstehung von Röntgenstrahlen mit Hochintensitätslaserpulsen	10
2.4	Detektoren für Röntgenstrahlen	11
2.4.1	Röntgenfilm	11
2.4.2	Röntgendiode	12
2.4.3	CCD–Kamera für den Röntgenbereich	14
2.5	Röntgenoptik mit gebogenen Kristallen	17
2.5.1	Spektrale und Räumliche Auflösung	19
2.5.2	Zeitabhängige Braggreflexion	20
2.6	Optimierung der Laser–Plasma–Wechselwirkung	23
2.6.1	Variation des Lasereinfallswinkels	24
2.6.2	Variation des Laserfokus–Intensitätsabhängigkeit	25
2.6.3	Variation des Röntgenbeobachtungswinkels	26
2.7	Variation von Laserparametern	27
2.7.1	Variation der Laserpulsdauer	27
2.7.2	Variation der Laserenergie	29
2.7.3	Variation der Anzahl der Laserpulse	30
3	Messung der $K\alpha$–Pulsdauer	32
3.1	Schnelle Prozesse im Röntgenbereich	32
3.2	Meßprinzip und experimenteller Aufbau	34
3.3	Bestimmung der Röntgenpulsdauer	34

3.3.1	Theoretische Vorhersagen für die Röntgenpulsdauer	34
3.3.2	Messungen der transienten Reflexion einer CdTe-Schicht	36
3.3.3	Interpretation der Messergebnisse	40
3.3.4	Bestimmung der Zeitauflösung des Experimentes	47
3.4	Andere Meßmethoden	48
3.4.1	Messungen mit einer Streak-Kamera	48
3.4.2	Messungen der anormalen Transmission von Quarz	50
3.5	Zusammenfassung	51
4	Messungen an Halbleitern	53
4.1	Messungen an InSb	54
4.1.1	Untersuchung reversibler Anregungen	54
4.1.2	Untersuchungen zum nichtthermischen Schmelzen	59
4.1.3	Untersuchungen zum thermischen Schmelzen	63
4.2	Messungen an Germanium	65
4.3	Zusammenfassung der Messungen	68
5	Simulation der Stoßwellen	69
5.1	Thomsenmodell	69
5.2	Zweitemperaturmodell	77
5.3	Mikroskopisches Modell	82
5.4	Zusammenfassung der Simulationen	92
6	Zusammenfassung und Ausblick	94
A	Wichtige Veröffentlichungen	117

Kapitel 1

Einleitung

Der größte Teil des heutigen Wissens über die Struktur der Materie beruht auf den Ergebnissen der Röntgenstrukturanalyse und ist damit in den letzten 100 Jahren erzielt worden. Die Ursache dafür ist, dass erst die kurze Wellenlänge der Röntgenstrahlung, im Bereich von einigen Angström, einen direkten Zugang zur Anordnung der Atome in Kristallgittern gibt. Die Entdeckung der Röntgenbeugung in kristallinen Festkörpern durch von Laue [1] 1912 eröffnete neue Möglichkeiten der Messung von atomaren Abständen und der Strukturanalyse. Die erste, einfache Struktur wurde 1913 von Bragg [2] analysiert. Er stellte fest, dass jedes Natriumatom von sechs äquidistanten Chloratomen und jedes Chloratom von sechs äquidistanten Natriumatomen umgeben ist. Heute ist es möglich, sehr komplizierte Strukturen biologischer Moleküle zu untersuchen.

Die fundamentalen Prozesse in der Natur, die dynamische Änderungen von Atompositionen beinhalten, wie chemische Reaktionen oder Phasenübergänge, finden auf der Zeitskala typischer natürlicher Oszillationsperioden von Atomen und Molekülen, d.h. Femtosekunden bis Pikosekunden, statt. Deshalb wurde bereits sehr zeitig damit begonnen, gepulste Röntgenquellen zu entwickeln. Ein erster Schritt war die 1942 von Tsukerman und Avdeenko entwickelte Röntgenröhre mit einem gepulsten Millisekundenelektronenstrahl. Damit haben sie Lauebeugung an einkristallinem Aluminium durchgeführt [3]. 1950 gelang es R. Schall mit einer Einzelpulsfunkenentladung die Röntgenpulsdauer auf 500 ns zu begrenzen. Er benutzte diese Quelle für die Untersuchung der Ausbreitung von Stoßwellen [4]. Van Wonterghem und Rentzepis haben die Röntgenpulsdauer auf 70 ps begrenzt durch die Bestrahlung der Kathode

mit einem Laserpuls [5]. Diese Art der Röntgenquelle ist aber nicht lichtstark genug, um Einzelschüßaufnahmen durchführen zu können. Die Zeitauflösung ist damit in der gleichen Größenordnung wie die von Synchrotrons im Einzel Bunch Betrieb [6]. Eine neue Qualität stellt jedoch die Entwicklung von Kurzpulsröntgenquellen mit Pulsdauern im Bereich von 100 fs dar. Diese neuartigen Röntgenpulsquellen müssen zusätzlich zur kurzen Pulsdauer über eine entsprechend hohe Anzahl von Photonen verfügen, da es für die Untersuchung verschiedener Prozesse nicht möglich ist, für eine Aufnahme einen Tag zu belichten. Außerdem müssen sie mit einer Genauigkeit von besser als 100 fs gegen den Anregeimpuls ausgelöst werden können.

In der Entwicklung von intensiven Kurzpulsröntgenquellen wurden verschiedene Wege beschritten: Ausgehend von Synchrotronstrahlung wurde eine Quelle entwickelt, die über Thomsenstreuung Röntgenstrahlung im 100 fs Bereich erzeugt [7, 8]. Eine andere Möglichkeit besteht in der gezielten Modulation der Elektronendichte eines Bunches im Synchrotron. Damit können auch Röntgenpulse im 100 fs Bereich erzeugt werden [9, 10]. Der Vorteil dieser Methoden besteht in der nahezu freien Wahl der Photonenenergie. Ein ganz anderer, vielversprechender Ansatz in der Entwicklung einer Kurzpulsröntgenquelle ist mit dem Einsatz eines Kurzpulshochleistungslasers gegeben. Wird ein solcher Laser auf eine Festkörperoberfläche oder einen Flüssigkeitstropfen fokussiert, können in dem entstehenden Plasma die Elektronen bis auf Energien im MeV-Bereich beschleunigt werden [11]. Diese Elektronen erzeugen dann im Targetmaterial Röntgenstrahlung. Da die Elektronen nur während der Laserpulsdauer beschleunigt werden, wird erwartet, dass die Röntgenpulsdauer mit der Laserpulsdauer vergleichbar ist. Die ersten Messungen mit einer Streak-Kamera die diese Erwartung bestätigten sind von Murnane et al. [12] veröffentlicht. In den letzten Jahren ist es durch eine Weiterentwicklung der Lasertechnologie möglich geworden, diese Systeme auf wenigen Tischen aufzubauen (engl.: table-top-laser). Diese neue Art der mit einem hohen Röntgenphotonenfluß versehenen Kurzpulsquelle macht es möglich, die aus der optischen Spektroskopie bekannten Untersuchungen auf den Röntgenbereich auszudehnen und damit dynamische Änderungen mit einer nie gekannten räumlichen und zeitlichen Auflösung zu untersuchen. Mit einer solchen Quelle ist es Rose-Petruck et al. [13] erstmalig gelungen, die Gitterdynamik in kristallinem GaAs nach der Bestrahlung mit einem Femtosekundenlaser mit einer Pikosekunden Zeitauflösung zu untersuchen. Vor we-

nigen Monaten ist es Sokolowski–Tinten et al. [14] gelungen, mit einer Röntgenquelle dieser Art kohärente Gitterschwingungen in Wismut (Frequenz 2,12 THz) zu beobachten. Damit konnte die Leistungsfähigkeit der Laser produzierten Plasmaquellen eindrucksvoll demonstriert werden. Gegenwärtig wird intensiv an der Entwicklung eines Freien Elektronenlasers gearbeitet, der in weniger als 10 Jahren mit einer Zeitauflösung von 100 fs und einem Photonenfluß von 10^{17} Photonen/s bei einer Photonenenergie von 1 bis 10 keV arbeiten soll. Nach dem gegenwärtigen Stand der Technik stellt der Einsatz eines Kurzpulshochleistungslasers die erfolgversprechendste Methode dar.

Die Arbeit gliedert sich in die folgenden Teile: zunächst wird die mit dem Jenaer Multiterawattlaser entwickelte Kurzpulsröntgenquelle charakterisiert und optimiert (Kapitel 2). Mit dieser in zahlreichen Experimenten optimierten Quelle wurde in einem ersten Anwendungsexperiment die Röntgenpulsdauer bestimmt (Kapitel 3). In einem weiteren Experiment wurden erstmalig mit einer Subpikosekunden Zeitauflösung transiente Änderungen in Halbleiterkristallen nach der Anregung mit einem 100 fs Laserpuls vermessen (Kapitel 4). Experimente dieser Art der zeitaufgelösten Röntgenbeugung galten bis vor wenigen Jahren als unmöglich. Heute werden sie weltweit in weniger als 10 Großforschungseinrichtungen bzw. Universitäten durchgeführt. Um die in diesen Experimenten gewonnenen Informationen über physikalische Prozesse besser verstehen zu können, wurde eine Modellvorstellung entwickelt (Kapitel 5).

Kapitel 2

Charakterisierung der fs–Laser Röntgenquelle

Zur Durchführung von Experimenten auf dem Gebiet der zeitaufgelösten Röntgenbeugung ist es zwingend notwendig, dass die verwendete Kurzpulsröntgenquelle möglichst vollständig charakterisiert und optimiert ist. Aufgrund der geringen Streuquerschnitte der Röntgenstrahlung in Materie ist man in den Experimenten auf **jedes** detektierte Photon angewiesen. Das setzt wiederum voraus, dass die verwendete Röntgenquelle eine maximale Emission der $K\alpha$ –Strahlung aufweist, wobei die Röntgenpulsdauer im Bereich von 100 fs liegen soll.

Nach einem Abschnitt über den verwendeten Titan–Saphir–Laser folgt ein Kapitel über die Erzeugung und Vermessung von charakteristischer Röntgenstrahlung. Im Anschluß folgen die Untersuchungen zur Optimierung der $K\alpha$ –Ausbeute.

2.1 Das Titan–Saphir–Lasersystem

Alle im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden am Jenaer Multiterawatt–Titan–Saphir–Lasersystem durchgeführt. Eine ausführliche Beschreibung und Charakterisierung dieses Lasersystems ist in der Arbeit von Ziener [15] zu finden. Der schematische Aufbau ist in der Abbildung 2.1 zu sehen. Mit diesem modular aufgebauten, auf der CPA-Technik von Mourou und Strickland [16] beruhenden Lasersystem ist es möglich, Laserpulse mit einer Pulsdauer von 80 fs, einer maximalen Pulsenergie von 1 J (nach dem Kompressor) bei einer Wiederholrate von 10 Hz zu erzeugen.

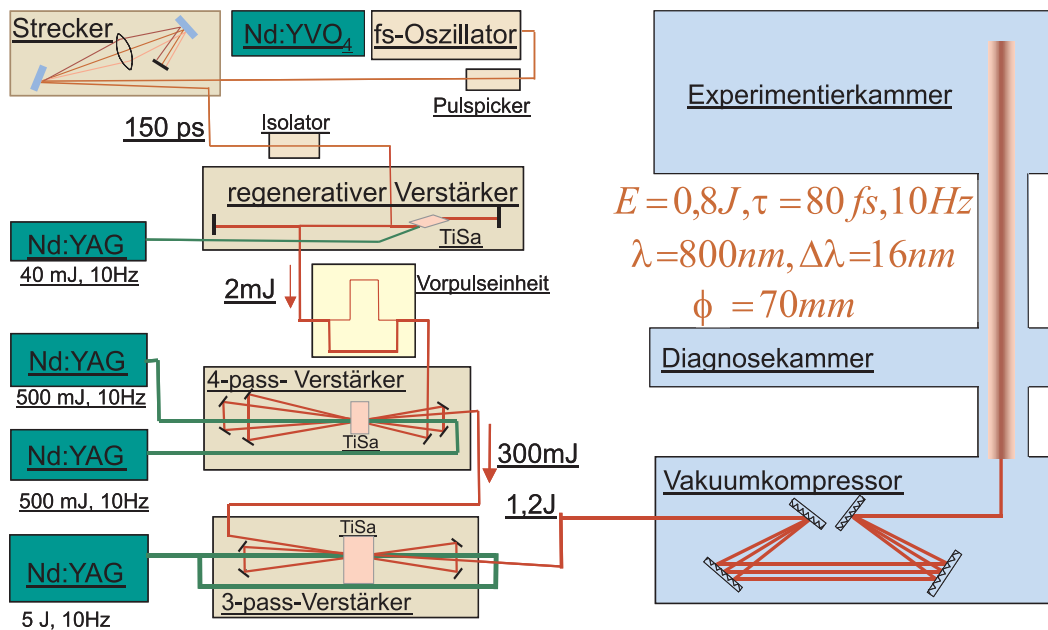


Abb. 2.1: Aufbau des Jenaer Hochleistungs Titan-Saphir Lasersystems

Das System besteht aus einem Oszillator, der bei einer Wiederholrate von 82 MHz Pulse mit einer Pulsdauer von 80 fs erzeugt. Der sogenannte Pulspicker, eine Pockelszelle, schneidet zusammen mit dem folgenden Polarisator, mit einer Wiederholrate von 10 Hz, die weiter zu verstärkenden Pulse aus dem Pulszug aus und liefert den Haupttriggerimpuls für das ganze Lasersystem. Danach werden die Pulse im Strecker um einen Faktor 1500 gestreckt, um im nachfolgenden Verstärkungsprozess die optischen Komponenten nicht zu zerstören und die Energie der Pumplaser effektiv zu nutzen. Der folgende Isolator, ein Faraday-Rotator, gewährleistet, dass keine Reflexionen des verstärkten Laserpulses in den Oszillator zurücklaufen können und diesen zerstören. Danach durchläuft der Laserpuls die verschiedenen Verstärkerstufen und wird in einem Viergitterkompressor wieder auf eine Pulsdauer von 80 fs komprimiert.

Als Standarddiagnostik stehen eine schnelle Photodiode, ein Multischuß-Autokorrelator dritter Ordnung und ein Sagnac-Interferometer zur Bestimmung der Pulsfrontverkipfung zur Verfügung.

Werden die in diesem Lasersystem erzeugten Pulse auf eine Festkörperoberfläche oder auf Tropfen mit einem Durchmesser von $5 \mu\text{m}$ fokussiert, kann man Spitzen-

intensitäten von $6 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ erreichen. Damit ist es möglich, Elektronen auf Energien im relativistischen Bereich zu beschleunigen und diese für die Untersuchung von zahlreichen wissenschaftlichen Fragestellungen, wie die Erzeugung von charakteristischer Röntgenstrahlung [17], die Erzeugung von extrem ultravioletter Strahlung in Wassertropfen [18], der Spaltung von Atomkernen oder der Fusion von Atomkernen zu benutzen [19].

Die weiteren Kapitel dieser Arbeit beschäftigen sich ausschließlich mit der Erzeugung und Nutzung von charakteristischer Röntgenstrahlung in Festkörpertargets (Silizium, Titan, Kobalt, Kupfer).

2.2 Experimenteller Aufbau

In der Abbildung 2.2 ist der experimentelle Aufbau für die ersten Untersuchungen zur Optimierung der $K\alpha$ -Ausbeute zu sehen. Für diese Experimente wurde der

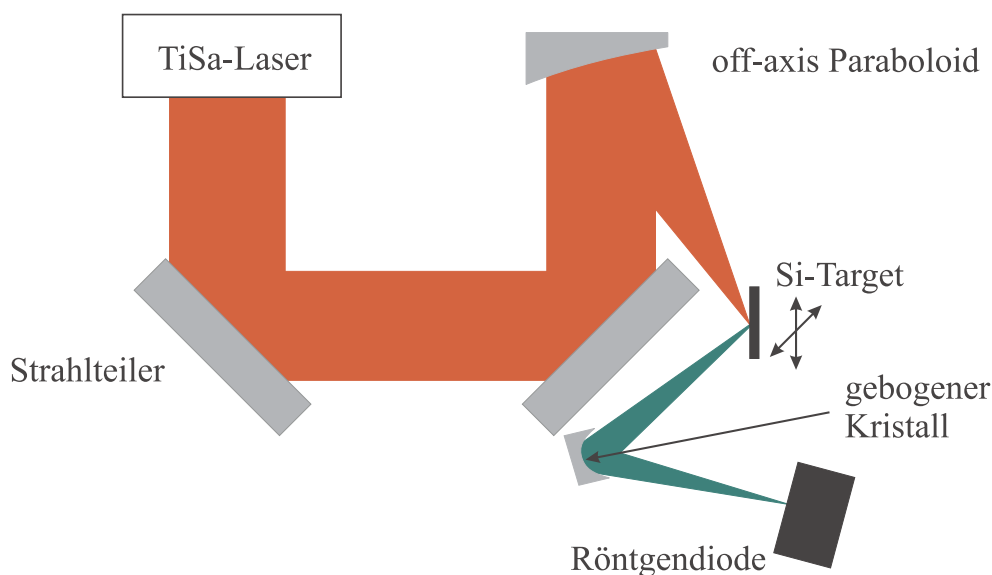


Abb. 2.2: Experimenteller Aufbau für die Messungen zur Optimierung der $K\alpha$ Ausbeute

Laser **ohne** die letzte Verstärkerstufe betrieben, so dass Pulsenergien von 230 mJ nach dem Kompressor erzielt wurden. Diese Energiewerte sind ausreichend, um Intensitäten im Bereich von einigen 10^{17} W/cm^2 zu erreichen. Der in die Experimentierkammer geführte hochintensive Laserpuls wird mit einem off-axis-Paraboloiden

auf das Siliziumtarget fokussiert. Die Fokusgröße wird mit Hilfe eines Mikroskopobjektives und einer CCD-Kamera bestimmt. Die im Experiment verwendeten Fokusgrößen variieren zwischen $10 \mu\text{m}^2$ und $100 \mu\text{m}^2$. Als Targetmaterial wurden 5 mm dicke Siliziumwafer verwendet, die mit Schrittmotoren in der x–y–Ebene über einen Bereich von jeweils 35 mm bewegt werden konnten. Die Parallelität der Wafer bei der Verschiebung wurde mit einer Mikrometermessuhr auf kleiner $5 \mu\text{m}$ geprüft. Die Ebenheit der Wafer wurde im Interferenzkomparator mit besser als $2 \mu\text{m}$ bestimmt. Um das Targetsystem ist ein 1 cm dicker Bleizylinder angebracht, um die im Plasma entstehende Störstrahlung und die heißen Elektronen abzuschirmen. Dieser ist in der Abbildung 2.2 nicht mit eingezeichnet. Auf den verwendeten gebogenen Kristall wird in Kapitel 2.5 und auf die Röntgendiode in Kapitel 2.4.2 eingegangen.

2.3 Entstehung von Röntgenstrahlen mit Hochintensitätslaserpulsen

Wird ein ultrakurzer (100 fs) intensiver Laserpuls auf eine Festkörperoberfläche fokussiert (Intensität 10^{16} bis 10^{20} W/cm^2), wird der Teil der Atome des Festkörpers die innerhalb der Eindringtiefe des Lasers liegen in ein Plasma verwandelt. Dabei werden die Teilchen auf Energien von einigen keV bis zu einigen MeV beschleunigt. Diese hochenergetischen Teilchen generieren dann die charakteristische Röntgenstrahlung durch Innerschalenionisation im kalten Festkörper.

Es hat sich in den letzten Jahren gezeigt, dass verschiedene Mechanismen für die Einkopplung der Laserenergie in das Plasma wirksam werden. Während für niedrigere Intensitäten der Laser über die Stoßabsorption (inverse Bremsstrahlung) in das Plasma einkoppelt, spielen für Intensitäten größer als 10^{15} W/cm^2 kollektive Prozesse wie Resonanzabsorption oder Vakuumheizung die entscheidende Rolle. Eine ausführliche theoretische Analyse ist durch Gibbon et al. [20] erfolgt. In dieser Arbeit wird als Skalierungsgesetz für die Temperatur der Elektronenverteilung als Funktion der Laserintensität der folgende Zusammenhang angegeben:

$$T \sim I\lambda^2 \tag{2.1}$$

Dabei bedeutet T die Temperatur der Elektronen, I die Laserintensität auf dem Target und λ die Wellenlänge der Laserstrahlung.

Es hat sich in einer Reihe von Experimenten [17, 21] gezeigt, dass die Ausbeute an $K\alpha$ -Photonen von der Skalenlänge der Elektronendichte L

$$L = \frac{n_e}{\nabla n_e} \Big|_{n_e=n_c} \quad (2.2)$$

des Plasmas abhängt. Dabei ist n_e die Elektronendichte im Plasma. Die kritische Dichte n_c ist die Elektronendichte, bei der die Plasmafrequenz ω_P gleich der Laserfrequenz ω_L ist. Durch eine geeignete Wahl der Skalenlänge kann die Ausbeute um bis zu einen Faktor 10 erhöht werden, wobei es bis zum heutigen Tag keine Messung der Röntgenpulsdauer als Funktion der Skalenlänge des Plasmas gibt.

In der Anwendung der laserproduzierten Plasmen muß man zwischen den Röntgenemissionen (Bremsstrahlung und charakteristische Strahlung) des Plasmas selbst und der Röntgenstrahlung aus dem kalten Targetmaterial (Bremsstrahlung und charakteristische Strahlung) unterscheiden.

Alle Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit befassen sich mit der Emission charakteristischer Linienstrahlung des kalten Targetmaterials hinter dem Plasma.

2.4 Detektoren für Röntgenstrahlen

2.4.1 Röntgenfilm

Eine Möglichkeit der orts aufgelösten Messung von Röntgenstrahlung besteht in der Verwendung von Röntgenfilmen. Mit einem Film kann man geringste Signalintensitäten durch eine Verlängerung der Belichtungszeit nachweisen. Ein weiterer Vorteil gegenüber der CCD-Kamera oder einer Diode besteht in der Größe des Detektors von bis zu 10 mal 10 cm bei einer theoretischen Auflösung von einigen μm , die durch die Korngrenze gegeben ist. Ein Nachteil ist allerdings die naßchemische Entwicklung des Filmes, die dazu führt, dass das Ergebnis der Messung nicht sofort vorliegt. Für die Experimente wurde ein Kodak-DEF-Film verwendet. Es handelt sich dabei um einen doppelseitig beschichteten Polyesterfilm. Die Dicke der photoempfindlichen Schicht beträgt 13 μm und die Korngröße der AgBr-Teilchen 1,6 μm [22]. Das theoretische Auflösungsvermögen liegt in der Größenordnung der Korngröße (für eine Monolage), wird aber bedingt durch die Dicke der lichtempfindlichen Schicht und der unterschiedlichen Eindringtiefe für verschiedene Photonenenergien sowie der

Streuung in der Schicht nicht erreicht. Das reale Auflösungsvermögen von $(7-10) \mu\text{m}$ ist deshalb geringer als das theoretische Auflösungsvermögen, aber immer noch besser als das von üblicherweise verwendeten CCD-Kameras mit $(20 - 40) \mu\text{m}$.

Auf den empfindlichen Schichten befindet sich jeweils noch ein Schutzüberzug aus Gelatine von $1 \mu\text{m}$ Dicke, der den Einsatz des Filmes für die Detektion niedriger Photonenenergien, wegen der höheren Absorption, verhindert. Der Energiebereich, in dem der Film verwendet wird, reicht von 1 keV bis zu 10 keV , wobei das Maximum der Empfindlichkeit bei 4 keV liegt [22]. Die Empfindlichkeit nimmt bis zur Einsatzgrenze bei 10 keV auf die Hälfte ab.

Die Auswertung der Filme erfolgt durch ein Ausmessen der Schwärzung (Transmission) am Photometer. Mit Hilfe der vorhandenen Kalibrierkurven [22, 23] kann man eine absolute Zahl der detektierten Photonen angeben.

In der Abbildung 2.3 ist das mit einem von-Hamos-Spektrometer und einem Röntgenfilm aufgenommene Spektrum eines laserproduzierten Plasmas eines Silizium Targets zu sehen. Durch die bekannte Kalibrierung der Schwärzung des Filmes konnte die Anzahl der pro Laserpuls (isotrop in 4π) emittierten Silizium $K\alpha$ -Photonen zu $6 \cdot 10^9$ bestimmt werden.

2.4.2 Röntgendiode

Eine weitere Möglichkeit der Detektion von Röntgenstrahlen besteht in der Verwendung einer Photodiode. Mit diesem Detektor erhält man keine Information über die räumliche Verteilung oder die Energieverteilung des Signales. Die elektronische Verarbeitung des Meßsignales ist dagegen sehr schnell und begrenzt durch die Zeitauflösung des Vorverstärkers (einige μs).

Im Experiment wurde eine GaAsP-Photodiode vom Schottky-Typ mit einer empfindlichen Fläche von 21 mm^2 verwendet. Der Vorteil dieses Diodentypes liegt in dem geringen Rauschen und der extrem kurzen Schaltzeit von etwa 100 ps [24]. Der Einsatz der Röntgendiode war im Justierbetrieb und zur Durchführung der Messungen zur Optimierung des Röntgensignales (Kapitel 2.6) unbedingt notwendig, da nach jedem Laserschuß sofort eine Aussage über die Entwicklung des Signales möglich war und damit der Zeitaufwand für diese Messungen begrenzt blieb. In der Abbildung 2.4 ist ein typisches Signal der Diode zu sehen. Der Signalverlauf ist aufgrund der invertierenden Einstellungen des nachgeschalteten Operationsverstärkers negativ. Die im

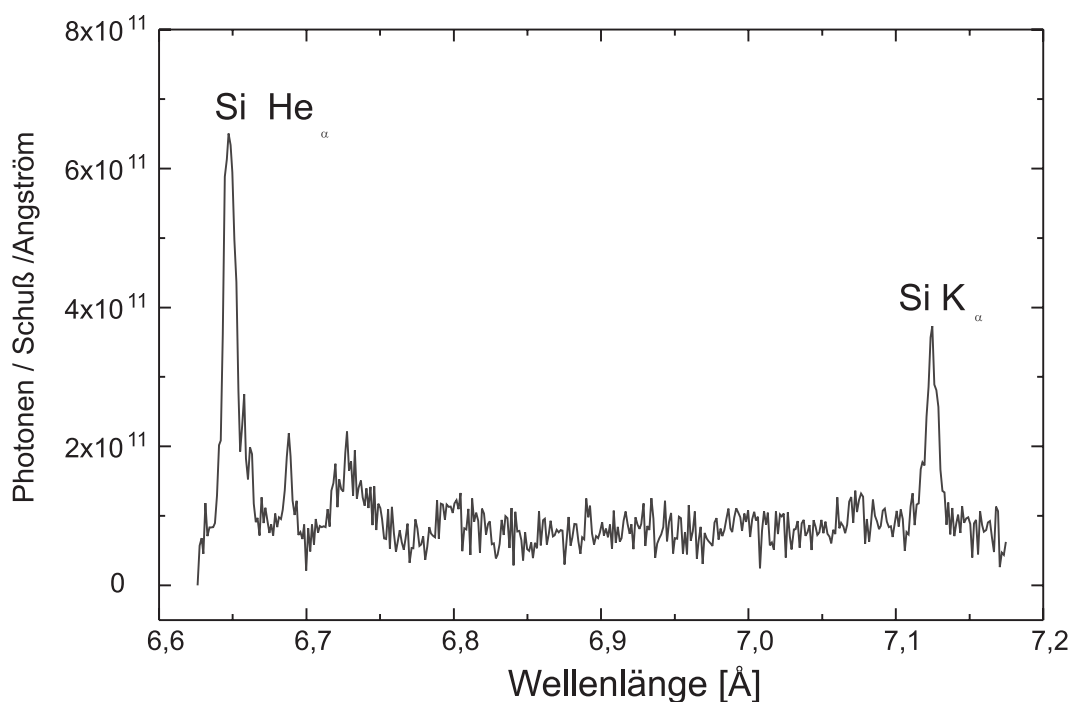


Abb. 2.3: Mit einem von-Hamos-Spektrometer gemessene Emission des Silizium Targets im Bereich von 6,6 bis 7,2 Å. Die beiden dominierenden Linien sind die He α und die K α -Linie. Zur Aufnahme des Spektrums wurden 100 Laserpulse akkumuliert. Die von der Quelle isotrop emittierte Photonenzahl in der K α -Linie beträgt $6 \cdot 10^9$ Photonen pro Puls. Laserintensität auf dem Target: $3 \cdot 10^{17}$ W/cm²

Experiment verwendete Diode war für den Einsatz im sichtbaren bzw. ultravioletten Spektralbereich ausgelegt und wurde durch das Entfernen des Eintrittsfensters vor der empfindlichen Fläche für den Einsatz im weichen Röntgenbereich nutzbar gemacht. Zur Abschirmung von längerwelligem Licht ($\lambda > 100$ Å) wurde ein $7 \mu\text{m}$ dickes Beryllium-Fenster verwendet. Desweiteren wurde ein Verstärker entwickelt, der direkt an die Diode angeschlossen werden kann. Damit und durch die Abschirmung der Diode selbst in einem Messinggehäuse kann der Einfluß der Störstrahlung auf nicht mehr messbare Größen reduziert werden. Die elektrischen Versorgungskabel des Verstärkers und die Signalkabel sind alle doppelt abgeschirmt, um keine Störeffekte in das Signal einzukoppeln.

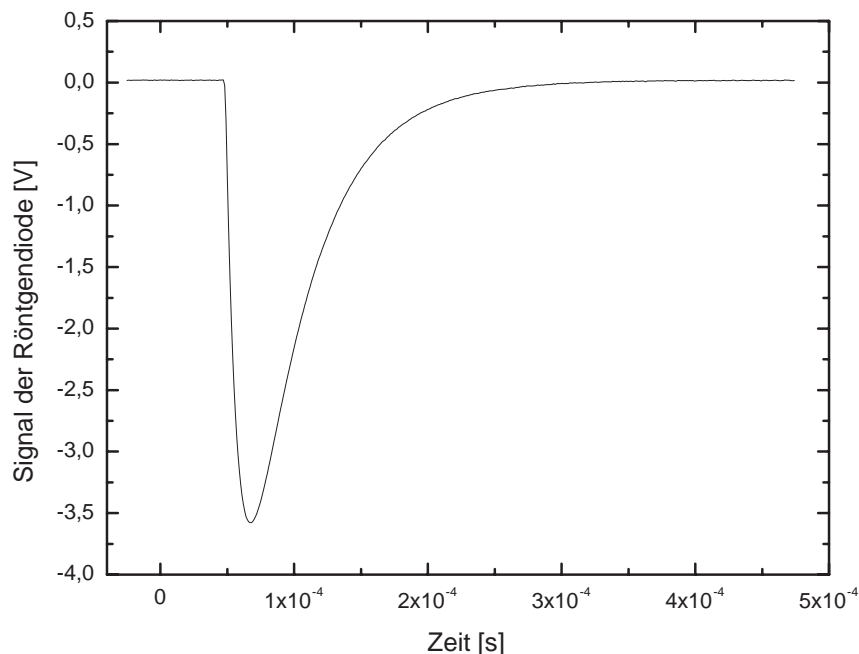


Abb. 2.4: Typischer Signalverlauf der Röntgendiode für einen Si-K α -Puls hinter dem gebogenen Kristall; Laserintensität auf dem Target: $3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$

2.4.3 CCD-Kamera für den Röntgenbereich

In allen Röntgenbeugungsexperimenten wurde eine CCD-Kamera (engl: charge coupled device) von ARP verwendet. Der Vorteil des Einsatzes einer CCD-Kamera besteht darin, dass man räumlich aufgelöst und zeitlich integriert die Intensitätsverteilung des Röntgensignales messen kann. Die Auswertung der Signale kann im Gegensatz zum Röntgenfilm während des Experimentes sehr schnell erfolgen. Die wichtigsten Parameter sind in der Tabelle 2.1 zusammengefasst (Quelle: [25]). Da es sich bei der vorliegenden Kamera um eine für den Einsatz im sichtbaren Spektralbereich geeignete CCD-Kamera handelte, wurde diese für den Einsatz im Röntgenbereich umgebaut. Dieser Umbau umfasste die folgenden Punkte: Entfernung des Glasfensters vor dem Chip; Einbau eines Beryllium-Fensters vor dem Chip zum Schutz vor langwelliger Strahlung; Anbau eines neuen vakuumdichten Schiebers vor

dem Chip; neue Signalkabel, da der Vorverstärker der CCD nicht im Vakuum betrieben werden kann; Umbau der Wasserkühlung des Chips der CCD mit vakuumdichten Durchführungen.

Bauart	Vorderseiten belichtet
Chipgröße	$(2,03 \cdot 2,03) \text{ cm}^2$
Anzahl der Pixel	$1024 \cdot 1024$
Pixelgröße	$(19,8 \cdot 19,8) \mu\text{m}^2$
Quanteneffizienz	0,40 (bei 1,7 keV)
Empfindlichkeit	1,5 keV/Count
Kühlung	Peltierkühlung; -30°C
Auflösung	12 Bit

Tab. 2.1: Daten der verwendeten Röntgen CCD-Kamera

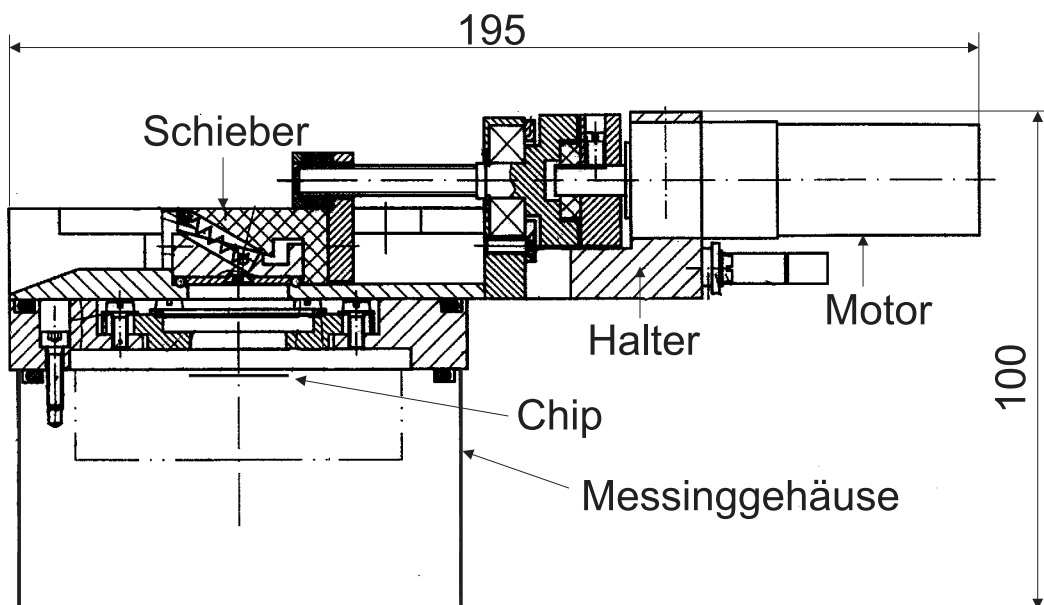


Abb. 2.5: Schematische Zeichnung der verwendeten Röntgen CCD-Kamera

In der Abbildung 2.5 ist ein schematisches Bild der CCD-Kamera zu sehen. Ein Problem bei vielen Experimenten stellt dabei die geometrische Größe der CCD dar, da die Führung der Röntgenstrahlung und des optischen Anregimpulses durch das

Experiment vorgegeben sind. Bei allen Experimenten sind die folgenden Punkte zu beachten:

- Für die Untersuchungen zur Gitterdynamik ist es notwendig, möglichst große Braggwinkel zu untersuchen, da man dann sehr empfindlich auf eine Deformation des Gitters des Probekristalls ist. Für die relative Änderung gilt:
$$\frac{\Delta d}{d} = - \tan\Theta \cdot \Delta\Theta$$
- Der optische Anregeimpuls und der Röntgenpuls müssen möglichst parallel auf die Probe treffen, damit keine, oder nur eine kleine, zeitliche Verschmierung auftritt.

Zur Auswertung der aufgenommenen Bilder wurde ein Matlab-Programm entwickelt, das es ermöglicht, eine große Anzahl von Bildern zeitnah (während des Experimentes) auszuwerten und die benötigten Informationen (Position, Intensität, Linienform des Signales) zu extrahieren.

Da es im Rahmen der späteren Untersuchungen notwendig ist ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis zu erzielen, wurde das Quantenrauschen der CCD-Kamera in Abhängigkeit von der Belichtungszeit gemessen. Dazu wurden mehrere Dunkelbilder für eine feste Belichtungszeit aufgenommen und die Differenz aller Pixel der CCD analysiert. Das Ergebnis ist in der Abbildung 2.6 zu sehen und zeigt einen linearen Anstieg des mittleren Rauschens der CCD-Pixel mit der Belichtungszeit. Selbst für eine Belichtungszeit von einer Sekunde beträgt das mittlere Rauschen aller Pixel der CCD-Kamera 2 Counts. Dieser Wert ist damit in der gleichen Größenordnung wie das von einem Si-K α -Photon (E=1,74 keV) erzeugte Signal in einem Pixel. Eine Auswertung ist trotz dieses Verhältnisses möglich, da das zu erwartende Signal nicht über den ganzen CCD-Bereich verteilt sondern stark lokalisiert ist und in einem Pixel mehr als ein Photon detektiert wurde. An Hand der Messungen sieht man, dass Belichtungszeiten über 55 Sekunden nicht möglich sind, da dann das Rauschen der CCD größer als die erwarteten Signale wird. Damit ist man bei dem vorhandenen 10 Hz Lasersystem auf Aufnahmen mit maximal 500 Röntgenpulsen begrenzt. Dieser Wert ist niedriger als der durch die reine Belichtungszeit vorgegebene, da am Beginn und am Ende der Messung keine Pulse erzeugt werden sollten, um zusätzliche Störungen zu vermeiden.

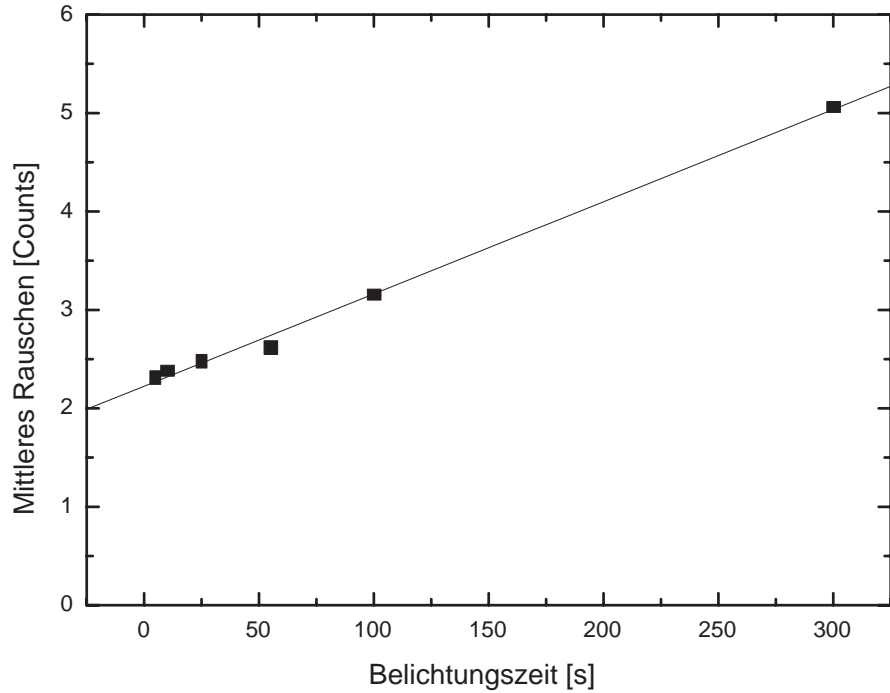


Abb. 2.6: Mittleres Rauschen der Röntgen CCD-Kamera als Funktion der Belichtungszeit

2.5 Röntgenoptik mit gebogenen Kristallen

Eine ausführliche Diskussion der Eigenschaften gebogener Kristalle für die Fokussierung von Röntgenpulsen ist in der Referenz [26] erfolgt. In Analogie zur Optik im sichtbaren Spektralbereich ist für eine Punkt-zu-Punkt-Abbildung die Verwendung eines Rotationsellipsoides [27] notwendig, d.h. die Netzebenen des verwendeten Kristalls müssen die entsprechenden Krümmungen aufweisen. Da es technisch sehr schwierig ist, diese Kristallform herzustellen, verwendet man toroidal gebogene Kristalle. Dabei gelten für die Brennweiten (f_h -horizontale Brennweite [in der Dispersionsebene] ; f_v -vertikale Brennweite [senkrecht zur Dispersionsebene]) die folgenden Zusammenhänge:

$$f_h = \frac{R_h}{2} \cdot \sin \Theta_B; \quad f_v = \frac{R_v}{2 \cdot \sin \Theta_B} \quad (2.3)$$

Die Forderung für eine Punkt-zu-Punkt-Abbildung lautet $f_v = f_h$. Daraus ergibt sich für einen bestimmten Bragg-Winkel Θ_B direkt das Krümmungsradienverhältnis. In der Tabelle 2.2 sind die wichtigsten Parameter des bei einer Photonenenergie von 1,74 keV verwendeten gebogenen Kristalls zusammengefasst. Die für die Herstel-

Abmessungen (horizontal · vertikal)	$(5 \cdot 25) \text{ mm}^2$
Krümmung	toroidal
Krümmungsradien	$R_h=150 \text{ mm } R_v=106,4 \text{ mm}$
Bragg-Winkel Θ_B	$56,88^\circ$
Breite der Reflexionskurve	$\Delta\Theta = 26''$
Integrales Reflexionsvermögen	$55,0 \mu\text{rad}$
Winkelauflösung bei 1,7 keV	$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 8 \cdot 10^{-5}$

Tab. 2.2: Daten des verwendeten Quarz 10.0-Kristalls (Photonenenergie: $E=1,74 \text{ keV}$)

lung gebogener Kristalle verwendeten Materialien sollten eine perfekte Gitterstruktur vorweisen und ein hohes Reflexionsvermögen besitzen, um so viel wie möglich Photonen auf die Probe fokussieren zu können. Sie müssen mit der geforderten Genauigkeit ($\Delta R_h = \Delta R_v = 0,1 \text{ mm}$) gebogen werden können, um den Astigmatismus gering zu halten.

Die im Laserbrennpunkt entstehende $K\alpha$ -Strahlung wird, unter Ausnutzung der Braggschen Reflexion, mit einem gebogenen Quarz-Kristall konvergent und monochromatisch auf die zu untersuchende Probe abgebildet. Der Einsatz eines gebogenen Kristalls in Verbindung mit einer Laser produzierten Röntgenquelle hat die folgenden Vorteile:

1. Durch den kleinen horizontalen Öffnungswinkel ($\approx 2^\circ$) des gebogenen Kristalls kann ein großer Teil der erzeugten Photonen auf die Probe refokussiert werden. Dieser Öffnungswinkel ist sehr groß gegen die Rockingkurvenbreiten des 2. Probekristalls, die im Bereich von 1 arcsec bis 300 arcsec liegen. Dadurch wird als gebeugtes Signal nach dem 2. Kristall dessen Reflexionskurve, im wesentlichen verbreitert durch Einflüsse der Quellgröße gemessen.
2. Der große vertikale Öffnungswinkel ist direkt proportional zur aufgenommenen Photonenzahl.

3. Mit dem gebogenem Kristall kann man einen Wellenlängenbereich $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 10^{-4}$, der für die Anwendung interessant ist, auswählen. Die spektrale Breite ist deutlich kleiner als die $K\alpha$ -Linienbreite. Damit ist die Empfindlichkeit höher.
4. Durch die Verwendung eines gebogenen Kristalls ist die zu untersuchende Probe vor der direkten Bestrahlung der im Laser produzierten Plasma entstehenden Teilchen und Photonen geschützt. Zusätzlich ist der Detektor vor Störstrahlung geschützt. Man kann damit ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis erreichen.

2.5.1 Spektrale und Räumliche Auflösung

Das spektrale Fenster des gebogenen Kristalls ist bestimmt durch die Rockingkurve des gebogenen Kristalls und der Bragg-Winkel Variation der von einer Punktquelle ausgehenden Strahlung über die Kristalloberfläche. Diese Variation ist bestimmt durch die horizontale Apertur des Kristalls und den Abbildungsmaßstab k (Im vorliegenden Experiment gilt $k=1$). Für einen Abbildungsmaßstab von $k=1$ liegen beide Effekte in der gleichen Größenordnung und sind viel kleiner als die Linienbreite der $K\alpha$ -Strahlung. (Si- $K\alpha$: $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 2,8 \cdot 10^{-4}$) [28] In diesem Fall kann die auf den Probekristall fokussierte Strahlung als monochromatisch angenommen werden.

In der Abbildung 2.7 ist die mit der Röntgendiode gemessene Rockingkurve zu sehen. Die Halbwertsbreite beträgt $6'$. Das gemessene Signal ist die Faltung der horizontalen Quellgröße mit dem Spektrum der Strahlung und der Reflexionskurve des gebogenen Kristalls. Die Asymmetrie kann durch eine Veränderung des Spektrums (Mehrfachionisation, Spektrallinienverbreiterung) hervorgerufen werden. Vor dem Beginn der Experimente zur zeitaufgelösten Röntgenbeugung wurden die Abbildungseigenschaften des gebogenen Kristalls überprüft. Dazu wurde an der Röntgenröhre ein Tantalgitter (Gitterkonstante: $100 \mu\text{m}$) abgebildet und die gemessene räumliche Auflösung von $10 \mu\text{m}$ ist in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Rechnungen von Strahlverfolgungsprogrammen.

In der Abbildung 2.8 ist eine Serie von detektierten Röntgenfoki für verschiedene Abstände zwischen der verwendeten CCD-Kamera und dem gebogenem Kristall zu sehen. Die Bilder vor und hinter dem besten Fokus zeigen einen kleinen Astigmatismus. Die Ursache dafür liegt darin, dass die Krümmungsradien des gebogenen

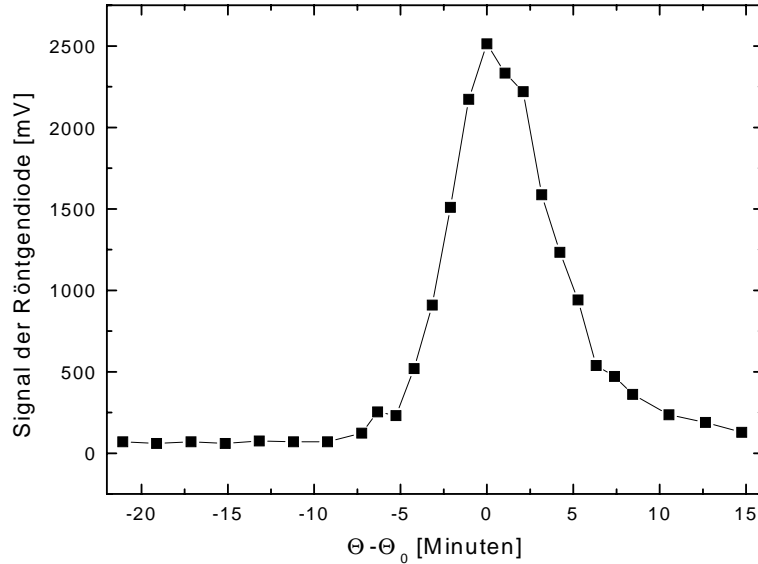


Abb. 2.7: Mit einer Diode gemessene Rockingkurve des gebogenen Quarzkristalls für Si-K α Strahlung als Faltung von: spektralen Fenster des Kristalls, der Quellgröße und der K α -Linienbreite; Quellgröße $\sim 10 \mu\text{m}$; Quelle auf dem Rowlandkreis ($k=1$)

Kristalls nicht exakt dem Braggwinkel der Si-K α Strahlung entsprechen, sondern nach $\Theta = \arcsin \sqrt{\frac{R_v}{R_h}} = 57,38^\circ$ ergeben. Dies entspricht dem Braggwinkel der Al-Ly α -Strahlung. Es ist weiterhin zu erkennen, dass es horizontal eine große und vertikal eine kleine Schärfentiefe gibt. Der Durchmesser des besten Fokus kann mit der Pixelgröße bestimmt werden und beträgt etwa $100 \mu\text{m}$.

In der Abbildung 2.9 ist ein mit der Schneidenmethode [29] im Fokus aufgenommener integraler Signalverlauf zu sehen. Die Breite des Fokus beträgt sowohl horizontal als auch vertikal $90 \mu\text{m}$.

2.5.2 Zeitabhängige Braggreflexion

Erstmals in der Geschichte der Röntgenbeugung stellt sich die Frage: „Wie verändert die Braggsche Reflexion die zeitliche Struktur eines Röntgenimpulses?“, da die Pulslänge der K α -Pulse in die Größenordnung der Eindringtiefen kommen. Die Röntgen-

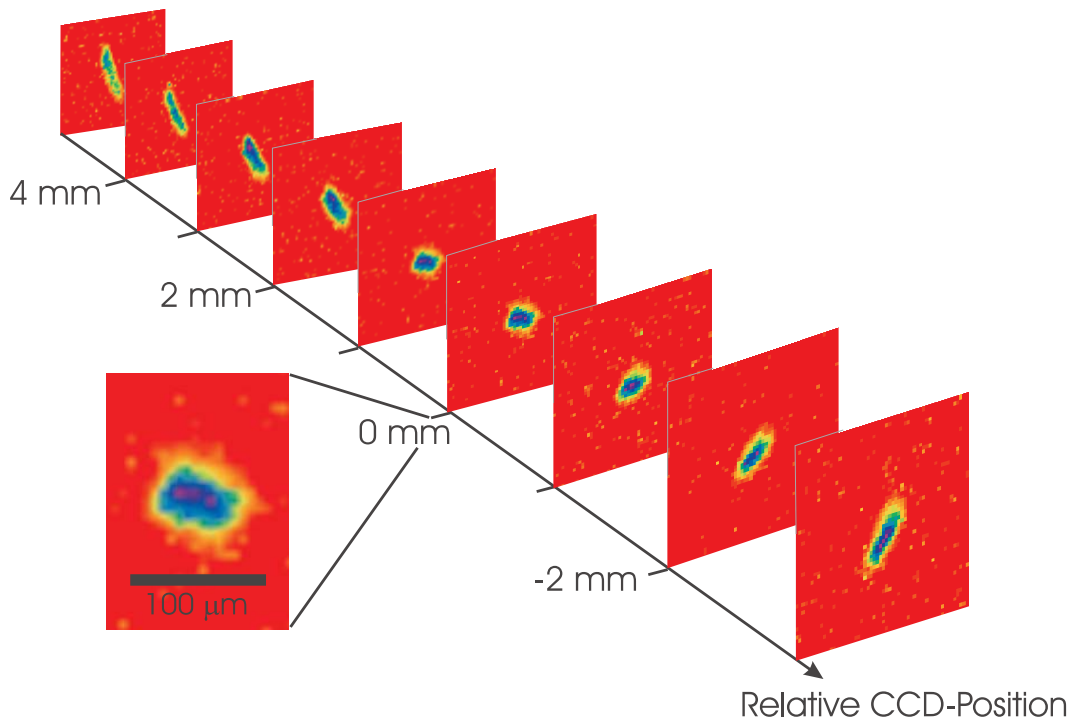


Abb. 2.8: Mit der CCD-Kamera detektierter Fokus des gebogenen Kristalls für verschiedene Abstände zwischen der CCD-Kamera und dem gebogenen Kristall; toroidaler Quarzkristall 10.0; Si-K α Strahlung

beugung am dreidimensionalen Gitter ist ein Volumeneffekt an einer oberflächennahen Schicht und dadurch ändert sich ein ultrakurzer Röntgenpuls. Eine ausführliche Diskussion der zeitlichen Entwicklung von ultrakurzen Röntgenpulsen ist in den Arbeiten von He und Wark [30] sowie von Chukhovskii und Förster [31] für eine Bragg-Reflexion im Grenzfall eines perfekten und eines Mosaik-Kristalls zu finden. Man unterscheidet dabei drei verschiedene Pulsverlängerungsmechanismen [26]:

- $\Delta\tau_1$: beschreibt die unterschiedlich langen Strahlwege der Röntgenstrahlung im Kristallvolumen. Für den Fall der schwachen Absorption gilt: $\Delta\tau_1 = \frac{2t_e}{c \sin\Theta}$ (t_e : Extinktionstiefe, c : Lichtgeschwindigkeit)
- $\Delta\tau_2$: beschreibt die Bandbreitenbegrenzung durch die Breite der Reflexionskurve. Für einen zeitlich deltaförmigen Röntgenpuls ergibt sich die Zeit $\Delta\tau_2$ aus der Halbwertsbreite der Fouriertransformierten der Reflexionskurve des Kristalls im Frequenzraum.

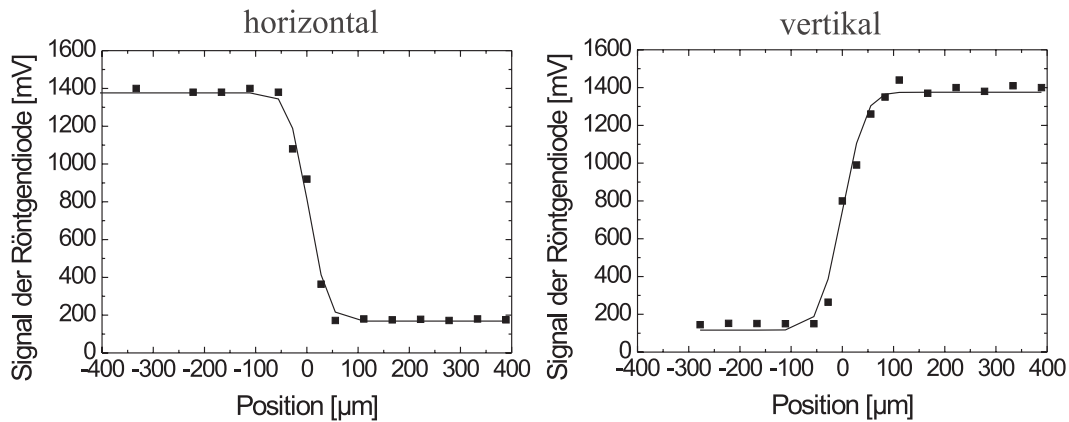


Abb. 2.9: Schneidensignal zur Messung der horizontalen und vertikalen Ausdehnung des Si-K α Fokus, erzeugt mit dem Quarz 10.0 Kristall; Die Breite des Fokus beträgt sowohl horizontal als auch vertikal $90 \mu\text{m}$.

- $\Delta\tau_3$: beschreibt das Zeitintervall, das der maximalen Wegdifferenz der Röntgenstrahlung entspricht, die über die Kristallapertur auftritt

Wie sehen die Werte für die im Experiment verwendete Kombination aus Si-K α Strahlung und einem toroidalen Quarzkristall aus?

- Die Extinktionstiefe beträgt $t_e = 1,99 \mu\text{m}$ und der Braggwinkel $\Theta = 56,88^\circ$. Damit ergibt sich für $\Delta\tau_1 = 15,9 \text{ fs}$.
- In der Abbildung 2.10 ist die nach [32] berechnete Rockingkurve für den verwendeten Quarzkristall zu sehen.

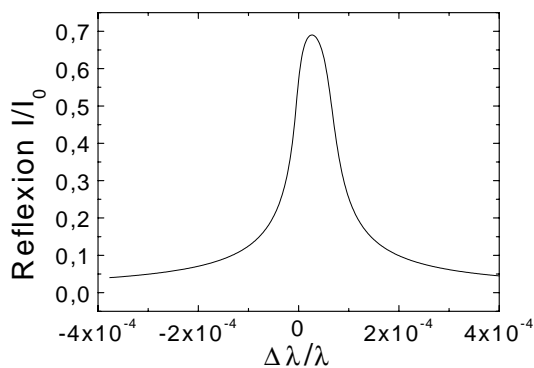


Abb. 2.10: Nach [32] berechnete Rockingkurve des Quarzkristalls für Si-K α Strahlung.

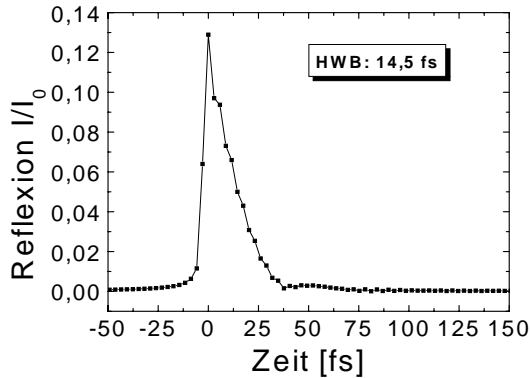


Abb. 2.11: Zeitlicher Verlauf eines deltaförmigen Pulses nach der Reflexion am Quarzkristall.

Führt man eine numerische Fouriertransformation durch, ergibt sich der in der Abbildung 2.11 dargestellte Verlauf eines deltaförmigen Röntgenpulses nach der Reflexion am Quarzkristall. Die Halbwertsbreite beträgt $\Delta\tau_2 = 14,5$ fs.

- Die horizontale Breite des gebogenen Kristalls beträgt 5 mm. Damit folgt aus Rechnungen mit einem Strahlverfolgungsprogramm eine zeitliche Verlängerung des Röntgenpulses von $\Delta\tau_3 < 5$ fs [26].

Fast man alle 3 Parameter zusammen, stellt man fest, dass für die verwendete Kombination von Si-K α Strahlung und den toroidal gebogenen Quarz Kristall eine maximale Pulsverlängerung eines deltaförmigen Eingangsimpulses auf 22 fs stattfindet. Dieser Wert ist viel kleiner als die durch die Dauer des Laserpulses erwartete Röntgenpulsdauer von mindestens 100 fs. Damit ist diese Kombination (toroidaler Quarzkristall und Si-K α Strahlung) bestens geeignet für zeitaufgelöste Röntgenbeugungsexperimente.

2.6 Optimierung der Laser–Plasma–Wechselwirkung

Nachdem in den vorangegangenen Kapiteln die technischen Voraussetzungen für die Experimente diskutiert wurden, soll im nächsten Abschnitt die Optimierung der Röntgenquelle diskutiert werden. Für die späteren Experimente zur zeitaufgelösten Röntgenbeugung ist es notwendig, mit einer geringen Schußzahl ein maximales Signal–Rausch–Verhältnis zu erzielen. Deshalb muß man in dem Parameterfeld aus Laserintensität (Laserenergie, Pulsdauer, Fokusgröße), Einfallswinkel des Lasers

zur Targetnormalen und Beobachtungswinkel der Röntgenoptik zur Targetnormalen durch eine systematische Suche die optimalen Bedingungen finden. Dieses Parameterfeld setzt sich aus geometrischen Parametern zusammen.

2.6.1 Variation des Lasereinfallswinkels

Es hat sich gezeigt, dass es für die Absorption von Hochintensitäts Femtosekundenlasern zwei entscheidende Parameter gibt: die Skalenlänge L der Elektronendichte vor dem Target und den Einfallswinkel des Lasers. Für s- und p-polarisierte Laserstrahlung wurden charakteristische Abhängigkeiten vom Einfallswinkel beobachtet [33, 34]. In dem im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Intensitätsbereich tragen sowohl die Stoßabsorption als auch die Resonanzabsorption zum Energietransfer auf die Elektronen im Plasma bei. Während die Stoßabsorption mit der Vergrößerung des Lasereinfallswinkels abnimmt, zeigt die Resonanzabsorption ein ausgeprägtes Maximum bei 45° [35].

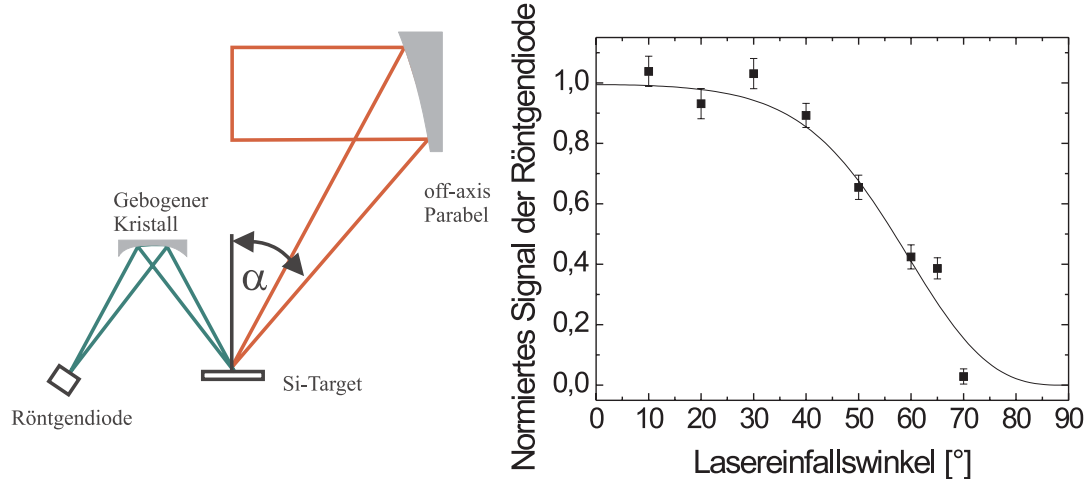


Abb. 2.12: Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von verschiedenen Lasereinfallswinkeln bezüglich der Targetnormalen; Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall selektierte und fokussierte Si- $K\alpha$ Strahlung gemessen.

Die Abbildung 2.12 zeigt die gemessene Röntgenemission als Funktion des Einfalls-

winkels des Lasers im Bereich von 10° bis 70° . Die Messung wurde für eine Laserintensität von $1,5 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ durchgeführt. Wird der Einfallswinkel des Lasers von 10° auf 70° erhöht, nimmt die Laserintensität um einen Faktor 2 ab. Gleichzeitig nimmt der Röntgenphotonenfluß offensichtlich um einen Faktor 5,5 ab.

Wird der Lasereinflusswinkel geändert, hat das einen Einfluß auf den Absorptionsprozess, und damit auf die Effizienz. Die sich dabei abspielenden Zusammenhänge sind sehr komplex. Die Erzeugung der charakteristischen Röntgenstrahlung aus den schnellen Elektronen ist ein indirekter Prozeß, der nicht unmittelbar an den Laser gekoppelt ist. Deshalb kann man aus der Messung der charakteristischen Röntgenstrahlung keine direkten Rückschlüsse auf den Absorptionsprozeß der Laserenergie im Plasma ziehen.

2.6.2 Variation des Laserfokus–Intensitätsabhängigkeit

In der Abbildung 2.13 ist der gemessene $K\alpha$ –Photonenfluß als Funktion der Position des Paraboloidspiegels zu sehen. Es ist deutlich zu erkennen, dass die höchste $K\alpha$ –Emission nicht an der Stelle der höchsten Intensität auftritt, sondern bei einer etwas niedrigeren Intensität. Der gleiche Effekt wurde von Eder et al. [36] für Kupfer $K\alpha$ gemessen.

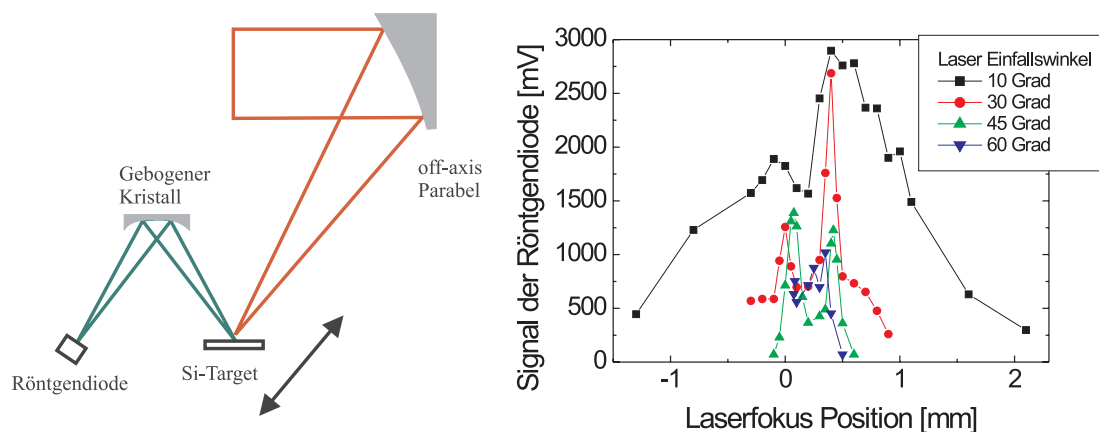


Abb. 2.13: Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von verschiedenen Laserintensitäten auf dem Target; Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall monochromatisch fokussierte Si- $K\alpha$ Strahlung gemessen.

Durch die Veränderung der Größe des Laserfokus, und damit der Intensität zwischen $2,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und $6,3 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ wurde das Maximum der $K\alpha$ -Emission bei einer Intensität von $1,4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ gefunden. Verringert sich die Intensität zu $2,5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, nimmt der $K\alpha$ -Fluß um einen Faktor 10 ab. Wird die Intensität dagegen auf $6,3 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ erhöht, führt dies zu einer Abnahme des $K\alpha$ -Flusses um einen Faktor 2.

Von verschiedenen Experimenten und theoretischen Vorhersagen wurde erwartet, dass der Röntgenphotonenfluß mit der Intensität zunimmt, ein charakteristisches Maximum erreicht, und dann wieder abnimmt. Mit dem Beginn relativistischer Effekte sollte die $K\alpha$ -Ausbeute wieder zunehmen. Diese Vorhersage konnte von Ewald et al. [37] für Ti- $K\alpha$ am Jenaer Terawatt-Laser für Folientargets gemessen werden. Während das erste Maximum der Ausbeute bei $7 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ $Z^{4,4}$ [38] erwartet wird, werden die relativistischen Einflüsse wichtig für Intensitäten über 10^{18} W/cm^2 . In den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente war die Intensität nicht hoch genug um in den relativistischen Bereich vorzudringen, da immer ohne die letzte Verstärkerstufe gearbeitet wurde. Des weiteren kann für massive Targets aufgrund der Dicke dieser Effekt nicht nachgewiesen werden.

2.6.3 Variation des Röntgenbeobachtungswinkels

Die Experimente haben gezeigt, dass die von der Vorderseite des Targets emittierte Si- $K\alpha$ Strahlung isotrop ist, siehe Abbildung 2.14. Die Messungen wurden für verschiedene Einfallswinkel des Lasers bezüglich der Targetnormalen durchgeführt und zeigten immer das gleiche Ergebnis, eine isotrope Emission der Si- $K\alpha$ Strahlung im Bereich der Vorderseite des Targets. Eine Messung der Emission von der Rückseite des Targets war nicht möglich, da die Dicke der Targets 2 mm betrug und damit keine Emission zu erwarten war und zusätzlich die Geometrie des Targethalters die Messung nicht erlaubt hätte.

Dieser experimentelle Befund deutet darauf hin, dass die Reabsorption der Si- $K\alpha$ Strahlung im Si-Target einen vernachlässigbaren Einfluß auf die Emission der Strahlung hat. Diese Tatsache kann nur durch eine kleine Eindringtiefe der heißen Elektronen erklärt werden. Für eine optimale Intensität von 10^{16} W/cm^2 sollte die mittlere Elektronenenergie in der Größenordnung von 10 keV liegen und man kann damit eine mittlere Eindringtiefe der Elektronen in das Target von rund $1,5 \mu\text{m}$ erwarten.

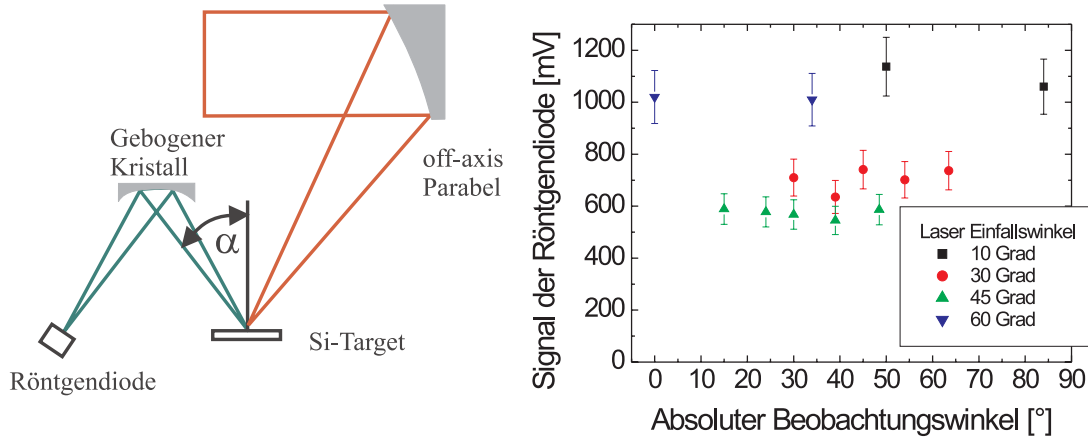


Abb. 2.14: Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von verschiedenen Beobachtungswinkeln α des gebogenen Kristalls bezüglich der Targetnormale; Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall monochromatisch abgebildete Si-K α Strahlung gemessen.

Dieser Wert ist viel kleiner als die Absorptionstiefe der Si-K α Strahlung in Silizium von $12,2 \mu\text{m}$. Das bedeutet, dass für leichte Elemente die Beobachtungswinkel aufgelöste Messung der K α Emission keine geeignete Methode für die Unterscheidung zwischen verschiedenen Modellen für die Elektronenbremsung im Target ist.

Die Schlußfolgerung für das Röntgenbeugungsexperiment ist, dass der Beobachtungswinkel beliebig ist und das ein großer Raumwinkel ohne Intensitätsvariation nutzbar ist.

2.7 Variation von Laserparametern

2.7.1 Variation der Laserpulsdauer

Ein Parameter zur Optimierung der Ausbeute an K α -Strahlung ist die Variation der Laserpulsdauer durch die Veränderung der Stellung der Gitter im Kompressor. Für die später durchzuführenden Röntgenbeugungsexperimente ist diese Methode nur bedingt geeignet, da sich die Dauer der K α -Pulse und der Anrege Pulse mit ändern wird.

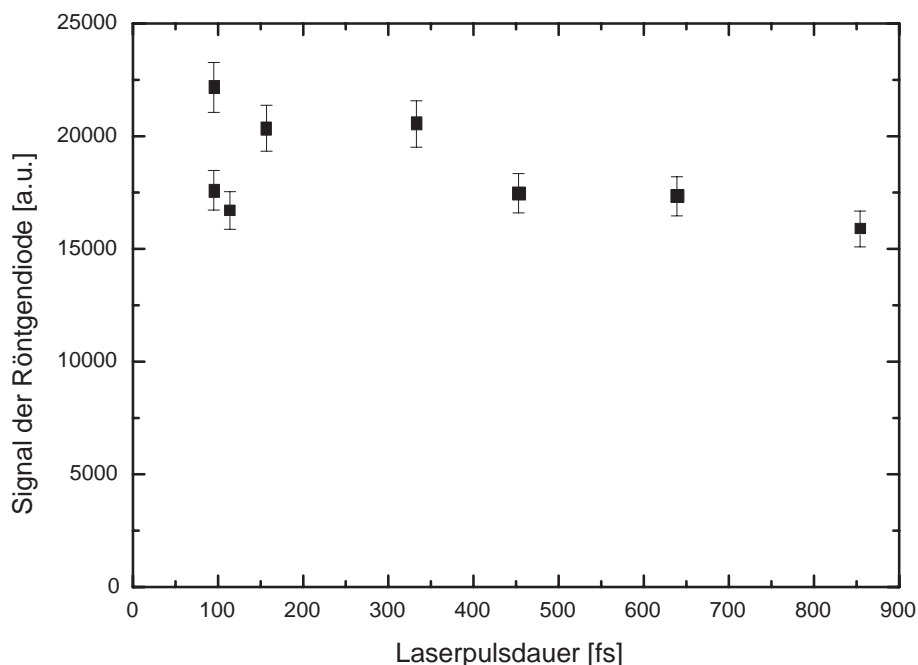


Abb. 2.15: Emission der Si- $K\alpha$ Strahlung für verschiedene Laserpulsdauern

In der Abbildung 2.15 ist die mit der Röntgendiode nach dem gebogenem Kristall gemessene Emission der $K\alpha$ -Strahlung zu sehen. Das Signal ist über den gemessenen Bereich konstant. Die Erklärung für diese Messung liegt in der Skalenlänge ($L = 2\lambda$ [17]) des Plasmas, so dass die Ausbeute durch die Vorpulsstruktur des Lasers bestimmt wird. Für die späteren Experimente konnte durch den Einbau eines neuen Autokorrelators, und die damit mögliche bessere Diagnose des Lasers, das Kontrastverhältnis verbessert werden. Eine ausführliche Diskussion dazu ist in [15] zu finden.

In der Abbildung 2.16 ist die Veränderung der Anzahl der detektierten harten Photonen ($E > 7$ keV) auf der CCD-Kamera zu sehen. Es zeigt sich ein exponentieller Abfall.

Da die späteren Experimente mit der kürzesten Laserpulsdauer durchgeführt werden sollen, muß die im Experiment eingebaute Abschirmung so gut sein, dass die höhere Anzahl von Störphotonen nicht mit detektiert wird. Die bei dieser Unter-

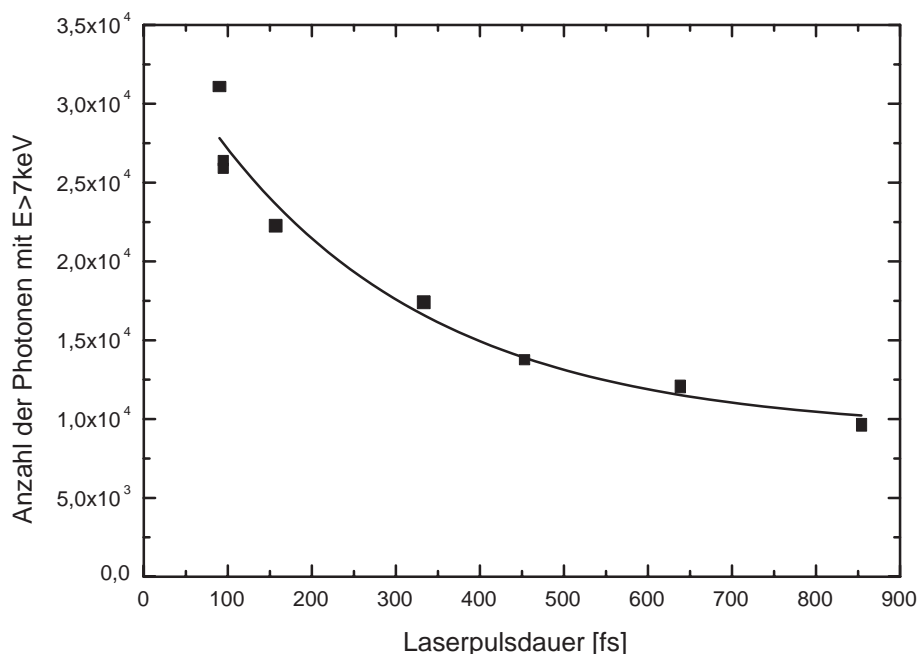


Abb. 2.16: Anzahl der Pixel der CCD-Kamera mit Energien größer 7 keV (harte Strahlung) in Abhängigkeit von der Laserpulsdauer

suchung verwendete Abschirmung ist nicht ausreichend, da etwa 3% der Pixel der CCD-Kamera durch Störstrahlung getroffen werden.

2.7.2 Variation der Laserenergie

Ein Parameter zur Optimierung der $K\alpha$ -Ausbeute stellt die Laserenergie dar. Diese kann in dem vorhandenem TiSa-Lasersystem durch die Veränderung der Blitzlampenspannung der Pumplaser und damit der Pumplaserenergie oder über die Zeitverschiebung des Pumpulses im Laser gegenüber dem erzeugten Signalpuls variiert werden. Eine Veränderung der Blitzlampenspannung führt dabei zu einer veränderten thermischen Linse im Verstärkerkristall und damit zu einer veränderten Divergenz des TiSa-Signalpulses. Dies kann zu einer Änderung des Laserfokus auf dem Target führen und wurde deshalb nicht benutzt. Das Ergebnis für die Verschiebung

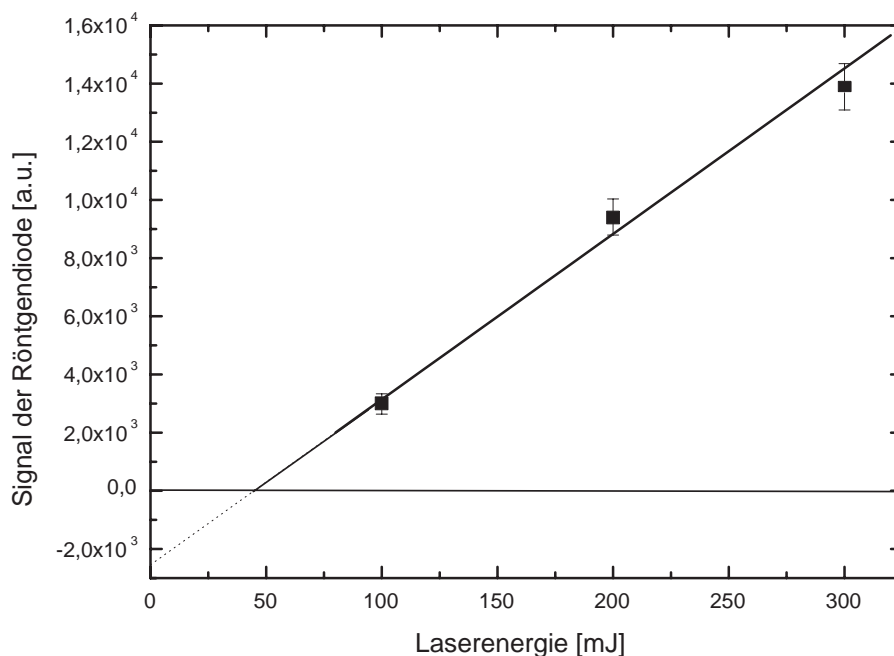


Abb. 2.17: Gemessenes $K\alpha$ -Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von der Laserenergie (Werte der Laserenergie vor dem Kompressor); Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall monochromatisch abgebildete $Si-K\alpha$ Strahlung gemessen.

des Pumpulses im Laser ist in der Abbildung 2.17 zu sehen und zeigt einen linearen Verlauf, d.h. die höchste verfügbare Laserenergie liefert die maximale Ausbeute an $K\alpha$ -Photonen.

2.7.3 Variation der Anzahl der Laserpulse

In einem weiteren Experiment wurde die Abhängigkeit des Röntgensignales von der Anzahl der Laserpulse gemessen. Das Ergebnis ist in der Abbildung 2.18 zu sehen und zeigt den erwarteten linearen Verlauf. Es treten keine Sättigungseffekte oder Verlusteffekte auf und der räumliche Abstand zwischen zwei Laserpulsen auf dem Target ist ausreichend, so dass es keinen Überlappungsbereich gibt. Damit

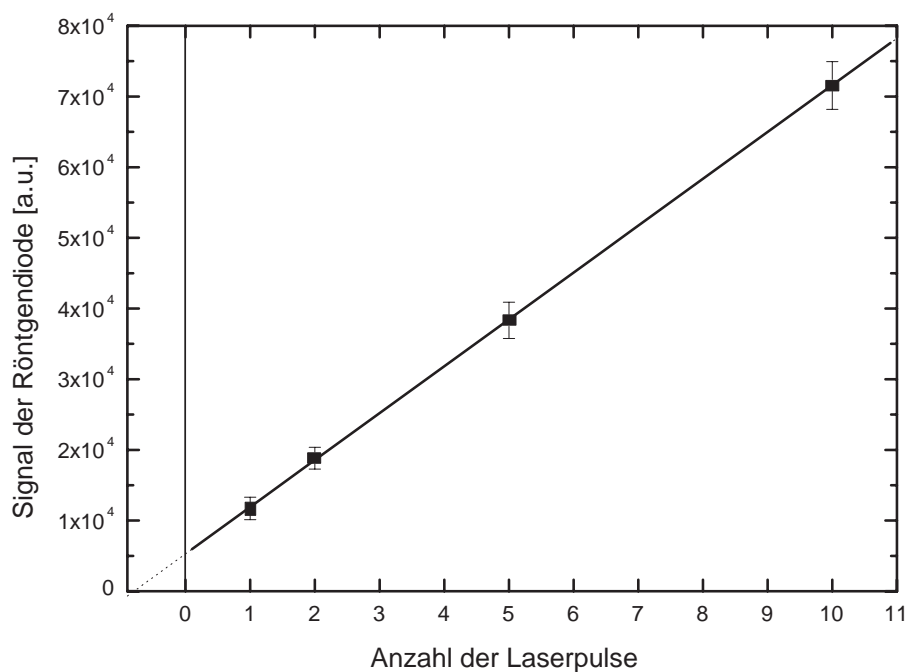


Abb. 2.18: Gemessenes Si- $K\alpha$ Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von der Anzahl der Laserpulse für einen Punktfokus

kann eine beliebige Anzahl von Laserpulsen akkumuliert werden, da die pro Puls emittierte $K\alpha$ -Strahlung im Rahmen der Messgenauigkeit immer den selben Betrag hat. Die Fehlerbalken sind durch die Schwankungen der Laserenergie bestimmt. Das Experiment wurde sowohl für einen Punkt- als auch für einen Linienfokus des TiSa-Lasers auf dem Siliziumtarget durchgeführt. Dabei zeigte sich kein Unterschied in der Abhängigkeit des Röntgensignales von der Anzahl der Laserpulse.

Kapitel 3

Messung der $K\alpha$ -Pulsdauer

Das Problem der Dauer der charakteristischen Röntgenstrahlung von lasererzeugten Plasmen und die zeitliche Impulsform sind bis zum heutigen Tage noch nicht geklärt. Auf Grund der Lebensdauer der Innerschalenübergänge und der Energieunschärfere-lation sollten Röntgenemissionsdauern im fs-Bereich problemlos möglich sein [39]. Eine direkte Messung (Autokorrelation) wie im sichtbaren Spektralbereich durch nichtlineare Prozesse ist auf Grund der geringen Wirkungsquerschnitte [40] und der zu geringen Röntgenintensität nicht möglich. Die Suche nach alternativen Methoden ist sehr schwierig. Eine direkte Messung des Röntgenpulses mit Hilfe einer Streak-Kamera (Schmierbildkamera) ist prinzipiell möglich, scheitert derzeit aber an der zu schlechten Zeitauflösung der Streak-Kamera [41].

In dem folgenden Abschnitt sollen zunächst einige Möglichkeiten der Messung schneller Prozesse im Röntgenbereich diskutiert werden. Danach wird der experimentelle Aufbau dargestellt sowie die Bestimmung der Röntgenpulsdauer mit Hilfe des nichtthermischen Schmelzens vorgestellt.

3.1 Schnelle Prozesse im Röntgenbereich

Eine erste Möglichkeit der Messung von ultrakurzen Röntgenpulsen besteht in der Nutzung des Phänomens des elektronisch induzierten Übergangs eines Festkörpers zu einer Flüssigkeit. Dieser Prozeß des nichtthermischen Schmelzens wurde von Shank et al. [42, 43] vor 20 Jahren für optische Anrege und optische Abfragepulse im Femtosekundenbereich beobachtet und wird durch eine Interbandanregung eines dichten Elektron-Loch-Plasmas ($\approx 10^{22} \text{ cm}^{-3}$) ausgelöst, das zu einer ultraschnel-

len Unordnung in Halbleiterkristallen führt.

In einer Reihe von weiteren Experimenten [44, 45, 46, 47, 48] wurde festgestellt, dass das optische Reflexionsvermögen verschiedener Halbleiter unter Bestrahlung mit einem Femtosekundenlaser den Wert des flüssigen Materials annimmt. Damit kann davon ausgegangen werden, dass die vorhandene Kristallstruktur zerstört ist. Die optischen Messungen liefern nur einen indirekten Hinweis, da es die Wellenlängen von einigen hundert Nanometern nicht erlaubt, direkt die Kristallstruktur zu untersuchen. Dies ist erst durch die Verwendung von Röntgenstrahlung, und insbesondere Subpikosekunden Impulsen, möglich. Der Prozeß des nichtthermischen Schmelzens konnte in verschiedenen Materialien (Silizium [42, 43, 44], Galliumarsenid [44, 45, 46], Indiumantimonid [47] und Kohlenstoff [48]) nachgewiesen werden.

Ein zweite Möglichkeit der Messung der Röntgenpulsdauer besteht in der Nutzung von ultraschnellen elektronischen Prozessen, wie z.B. dem Kerr-Effekt. Dieser könnte mit Hilfe des Borrmanneffektes [49], der anomal hohen Transmission von Röntgenstrahlung durch einen Kristall, detektiert werden. Eine weitere Möglichkeit der Messung von ultraschnellen elektronischen Prozessen besteht in der Verwendung von schwachen, quasi verbotenen Braggreflexen. Diese sollten für kleine Änderungen der periodischen Gitterstruktur große Änderungen im gemessenen Röntgensignal zeigen. Das Problem dabei ist, dass die Beobachtung der schwachen Reflexe bei den gegenwärtig verfügbaren Flüssen an Röntgenphotonen sehr lange dauert (mehrere Minuten) und damit zumindest für die mit laserproduzierten Plasmen erzeugten Röntgenpulse nicht nutzbar ist. Eine dritte Möglichkeit der Messung von ultraschnellen elektronischen Prozessen ist die Verwendung von Vielfachreflexionen bzw. der Umweganregung von Reflexen in Kristallen.

Von all den hier diskutierten Verfahren stellte die Methode des nichtthermischen Schmelzens zu Beginn dieser Arbeit aufgrund der zur Verfügung stehenden Röntgenflüsse und der optischen Vorexperimente die Methode der Wahl dar. Diese wurde weiterentwickelt und für die Bestimmung der Röntgenpulsdauer eines laserproduzierten Si- $K\alpha$ -Pulses verwendet. Zusätzlich wurden erste Untersuchungen mit Hilfe des Borrmanneffektes durchgeführt, die in Kapitel 3.4.2 vorgestellt werden.

3.2 Meßprinzip und experimenteller Aufbau

Für die folgenden Experimente zur Bestimmung der Röntgenpulsdauer bzw. der Untersuchung der Ausbreitung von akustischen Phononen in Halbleitern, wurde der in Kapitel 2.2 vorgestellte Aufbau wie folgt modifiziert: an der Stelle der Röntgendiode wird ein zweiter Kristall eingebaut und die Braggreflexion dieses Kristalls wird untersucht. Zusätzlich wird über eine variable Verzögerungsstrecke ein Teil (etwa 10%) des TiSa-Laserpulses zur Anregung des zweiten Kristalls verwendet. Der Aufbau des Experimentes ist in der Abbildung 3.1 zu sehen.

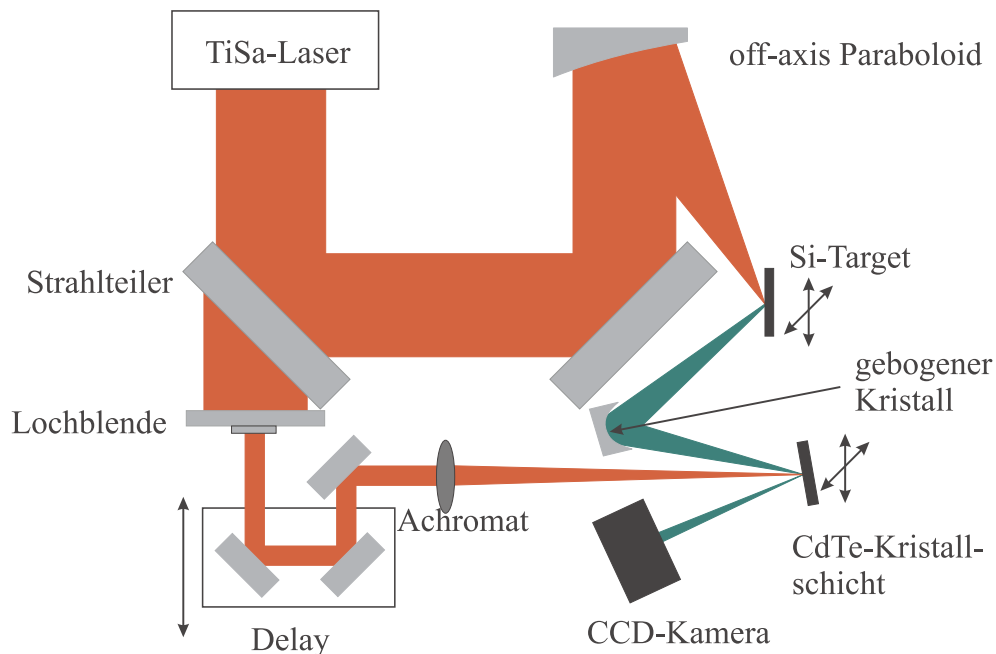


Abb. 3.1: Experimenteller Aufbau für die Untersuchung der Röntgenpulsdauer bzw. der transienten Änderung von Halbleiterkristallen.

3.3 Bestimmung der Röntgenpulsdauer

3.3.1 Theoretische Vorhersagen für die Röntgenpulsdauer

Die theoretischen Vorhersagen stützen sich auf die Lebensdauer der Innerschalenübergänge und die Energieunschärferelation. Bei Femtosekundenlaserplasmen ist

die Röntgenpulsdauer zusätzlich begrenzt durch:

1. die Laserpulsdauer. Diese bestimmt die Zeitskala, auf der die Elektronen auf Energien im keV-Bereich beschleunigt werden.
2. die Zeit die zur Bremsung der Elektronen im Target benötigt wird.
3. die unterschiedlichen Röntgenstrahlwege (Quellgröße).

Neuere theoretische Vorhersagen unterstützen die Tatsache, dass es prinzipiell möglich sein sollte, mit Laser produzierten Plasmen $K\alpha$ -Pulse mit Pulsdauern im 100 fs Bereich zu erzeugen [38]. In diesen Simulationen wurde zunächst mit ei-

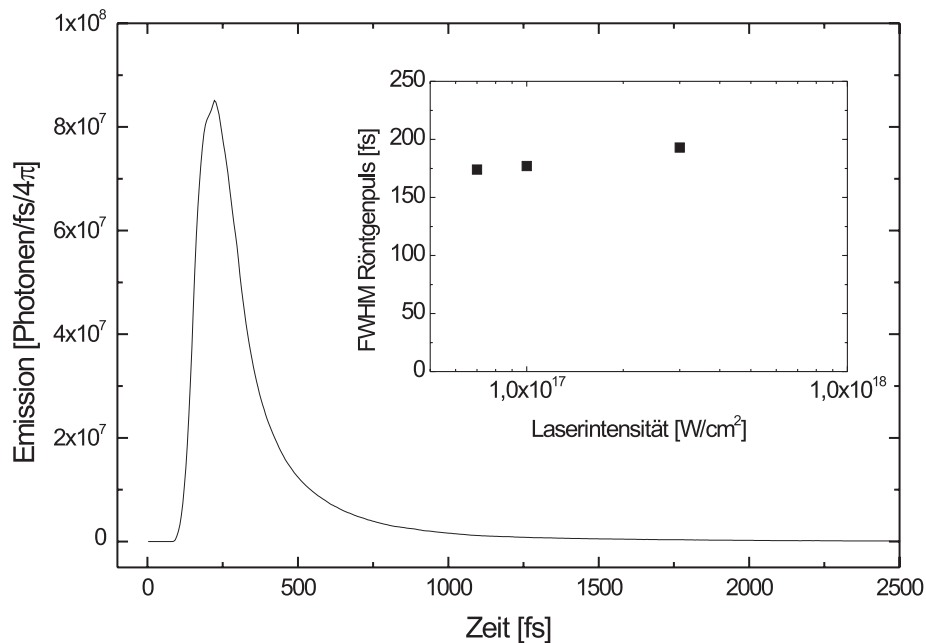


Abb. 3.2: Simulationen der Si- $K\alpha$ Emission [50]

nem eindimensionalen particle-in-cell-Code (PIC-Code) die Energieverteilung der Elektronen für die vorhandenen Laserparameter berechnet. Danach wird mit einer Monte-Carlo Simulation die Ausbreitung der Elektronen im Targetmaterial und die dabei entstehende Röntgenemission berechnet. In der Abbildung 3.2 ist das Ergebnis

für die verwendeten Laserparameter (Intensität: 10^{17} W/cm²; Energie: 100 mJ; Lase-reinfallswinkel: 45°; p-Polarisation) zu sehen. Der zeitliche Verlauf der Röntgenemission zeigt einen asymmetrischen Verlauf und insbesondere einen langen Ausläufer bis in den Zeitbereich von 1 ps. Dieser wird durch die zu heißen Elektronen verursacht, die sehr tief in das Targetmaterial eindringen und damit durch die längere Laufzeit zu einer Verlängerung der Emission führen. Der Anteil der zum Röntgensignal beitragenden Röntgenphotonen wird durch die Reabsorption der $K\alpha$ -Strahlung im Target selbst begrenzt. Die in der Quelle [38] angegebenen Pulsdauern sind immer Angaben über die Emission von 90% der Röntgenphotonen. Für schwere Elemente (Kupfer, Tantal) zeigt sich eine deutliche Verlängerung der Emissionsdauer für Intensitäten um 10^{18} W/cm². Für die Erzeugung von 100 fs Röntgenpulsen mit diesen Elementen wird die Verwendung von Folientargets mit einer Dicke im μm -Bereich vorgeschlagen. Ein Problem dabei ist die verringerte integrale Ausbeute an $K\alpha$ -Photonen. In der Arbeit werden jedoch keine Aussagen zu den Halbwertsbreiten der Röntgenpulse gemacht. Die Angaben zur Halbwertsbreiten sind nur sinnvoll, wenn im Ausläufer der Röntgenemission weniger als 10% der insgesamt emittierten Photonen enthalten sind.

Die Änderung der FWHM (full width at half maximum; Halbwertsbreite) der Silizium $K\alpha$ -Pulse in Abhängigkeit von der verwendeten Laserintensität auf dem Target ist im Inset der Abbildung 3.2 zu sehen. Die Werte liegen im Bereich von 175 bis 195 fs und steigen für größere Intensitäten unbedeutend an. Damit hat man eine Quelle für $K\alpha$ -Photonen zur Verfügung, die eine hohe Konversionseffizienz ($\eta = \frac{E_{K\alpha}}{E_{Laser}} = 3 \cdot 10^{-5}$ [17]) des Laserlichtes in charakteristische Röntgenstrahlung aufweist und deren Emissionsdauer, nach den theoretischen Vorhersagen, im Bereich von 180 fs liegt. Diese Quelle ist damit prädestiniert sowohl für zeitaufgelöste Untersuchungen als auch für den Vergleich der Theorie mit den im Experiment bestimmten Ergebnissen.

3.3.2 Messungen der transienten Reflexion einer CdTe-Schicht

Ziel des ersten Experimentes mit der optimierten Röntgenquelle war die Bestimmung der Röntgenpulsdauer (FWHM). Der zeitliche Verlauf kann aufgrund der Erzeugung

der $K\alpha$ -Strahlung durch den Laserpuls als gaussförmig angenommen werden (siehe Abbildung 3.2). Die in der Arbeit von Reich [38] vorhergesagten Änderungen des zeitlichen Verlaufes betragen nur wenige Prozent und sind unter den gegenwärtigen experimentellen Bedingungen nicht aufzulösen. Die Beantwortung der Frage nach dem zeitlichen Verlauf der $K\alpha$ -Strahlung kann erst in einem späteren Experiment endgültig geklärt werden.

Die Experimente wurden als Anrege-Abfrage-Experimente (engl.: pump-probe-experiment) durchgeführt, d.h. der TiSa-Laserpuls modifiziert die CdTe-Schicht (Pumpimpuls) und der Röntgenpuls fragt die Struktur der CdTe-Schicht ab (Probeimpuls).

Würde man versuchen, mit Kupfer- $K\alpha$ Strahlung und einem dicken Siliziumkristall das gleiche Experiment unter Ausnutzung des nichtthermischen Schmelzens durchzuführen, treten die folgenden Probleme auf:

1. Der Laser dringt etwa 100 nm in das Silizium ein und damit schmilzt nur eine Schicht von 100 nm.
2. Die Röntgenextinktionstiefe beträgt etwa $10 \mu\text{m}$.
3. Der Signalkontrast im transienten Röntgensignal für Zeiten kleiner als 5 ps entsteht nur durch die Absorption der Röntgenstrahlung in der geschmolzenen Schicht und beträgt damit etwa 2 %. Diese Werte sind derzeit nicht messbar.

Der Probekristall war eine an der Universität Würzburg mit Molekularstrahlepitaxie hergestellte 320 nm dicke CdTe-Schicht(111) auf einem GaAs(100)-Wafer. Dieses Material wurde aus den folgenden Gründen gewählt:

1. Durch die Verwendung einer Schichtstruktur ist die Röntgenreflexion beschränkt auf die Schichtdicke selbst. Das Trägermaterial liefert aufgrund der anderen Gitterkonstante (CdTe: $2d_{111} = 7,4790 \text{ \AA}$; GaAs: $2d_{100} = 11,3063 \text{ \AA}$) keinen Beitrag unter dem Bragg-Winkel der Schicht.
2. Die Absorptionstiefe der Si- $K\alpha$ Strahlung in CdTe beträgt 498 nm [51].
3. Die Eindringtiefe des TiSa-Lasers beträgt rund 165 nm [52]. Damit sind die Eindringtiefen beider Strahlungen in der Größenordnung der Schichtdicke und

man sollte eine Verringerung des Reflexionsvermögens um mehr als 50 % messen können. Durch die Verwendung eines Schichttargets kann ein viel besseres Kontrastverhältnis erreicht werden.

4. Die Schichten können mit einer hohen kristallographischen Qualität und einer definierten Dicke hergestellt werden.
5. Das berechnete integrale Reflexionsvermögen ist mit $792 \mu\text{rad}$ (massives InSb: $991 \mu\text{rad}$) vergleichsweise hoch. Man sollte deshalb mit einer kleinen Anzahl (< 20) von Laserpulsen ein ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis erzielen können. Die Einheit des integralen Reflexionsvermögens ergibt sich durch die Integration der Rockingkurve über den gesamten Winkelbereich.

Eine typische gemessene Rockingkurve der CdTe-Schicht ist in der Abbildung 3.3 zu sehen (rote Kurve). Aufgrund der geringen Schichtdicke, sind die Rockingkurven deutlich verbreitert gegen die eines dicken CdTe-Kristalls (blaue Kurve). Die Übereinstimmung zwischen der experimentell gemessenen und der berechneten Kurve (schwarze Kurve) einer perfekten Kristallschicht ist sehr gut. Da in den später durchzuführenden zeitaufgelösten Messungen die CdTe-Schicht bei jedem Laserpuls zerstört wird, muß man zunächst ein Optimum finden für die Ausnutzung der endlichen Probenoberfläche und der für jeden Zeitschritt notwendigen Anzahl der Laserpulse. Im folgenden Experiment wurden 17 Laserpulse bzw. Röntgenpulse akkumuliert. Das sich daraus ergebende Signal-Rausch-Verhältnis ist 13. Die Bestimmung des zeitlichen Nullpunktes zwischen dem TiSa Pumpuls und dem Röntgen Probe-puls erfolgte mittels spektraler Interferometrie. Dazu wurde der den Röntgenimpuls erzeugende Teil des TiSa Laserpulses so abgeschwächt, dass er an der Oberfläche des Siliziumtargets reflektiert wurde ohne ein Plasma zu erzeugen. Statt des Röntgenstrahles wurde dieser abgeschwächte TiSa-Strahl mit der Oberfläche des gebogenen Kristalls fokussiert und mit dem TiSa-Pumpstrahl überlagert. Der Punkt, an dem sich die beiden TiSa Laserpulse räumlich überlagern (Standort der Probe), muß auf den Eintrittsspalt eines Spektrometers abgebildet werden. Die am Austrittsspalt befindliche CCD-Kamera zeigt bei einer zeitlichen Überlagerung der beiden Pulse Interferenzstreifen [53]. Diese Methode ist möglich, weil die Oberfläche des gebogenen Kristalls besser als $6'$ zu den Netzebenen orientiert ist und die Kohärenzlänge des Laserpulses klein ist. Mit dieser Methode konnte der zeitliche Überlapp beider

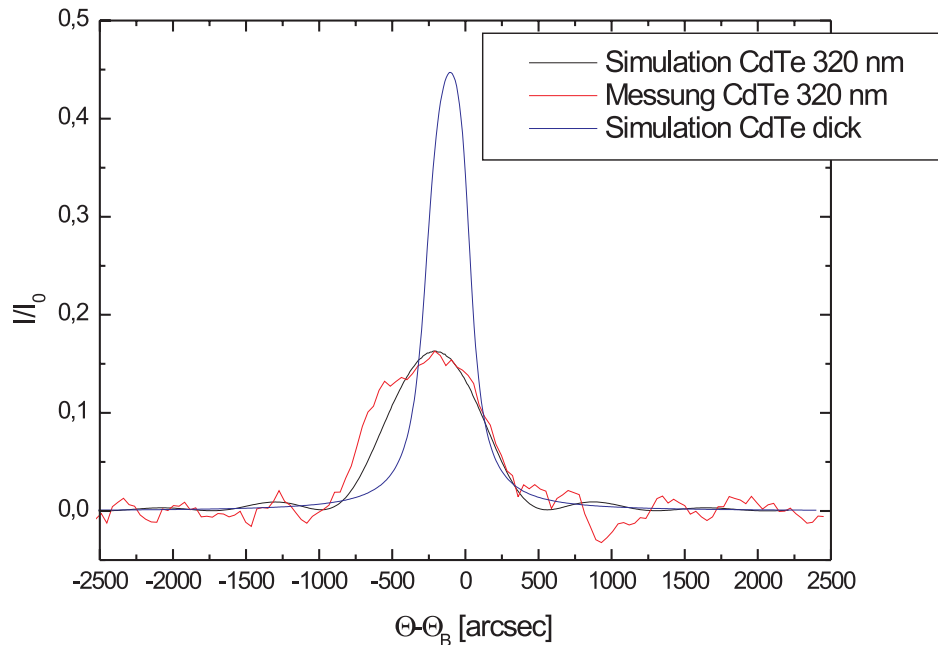


Abb. 3.3: Vergleich zwischen der mit dem Aufbau nach Abbildung 3.1 gemessene ungestörte Rockingkurve der CdTe-Schicht (rote Linie) und zwei theoretischen Rockingkurven, Akkumulation von 17 Impulsen, $E_{K\alpha}=1,7$ keV, Braggwinkel $\Theta_B=72,3^\circ$

Impulse auf 100 fs bestimmt werden.

Die Bestimmung des räumlichen Überlapps des TiSa-Pulses und des Röntgenpulses erfolgte mit der Schneidenmethode [29]. Dazu wurde an den Kristall, in der Ebene der Oberfläche, ein Kupferblech angebracht, mit dem die Größe und die Position der Foki ausgemessen werden konnten. Als Detektor wurden hinter dem Probenhalter eine Diode für den Röntgenbereich bzw. für den sichtbaren Spektralbereich benutzt. In der Abbildung 3.4 ist ein typisches Ergebnis zu sehen. Der Fokus des Pumpstrahles wurde dabei durch die Veränderung des Abstandes zwischen dem Achromaten und der Probe immer so eingestellt, dass er mindestens doppelt so groß war wie der gemessene Röntgenfokus. Damit ist gewährleistet, dass die vom Röntgenpuls untersuchte Stelle durch den Pumpimpuls homogen modifiziert wurde.

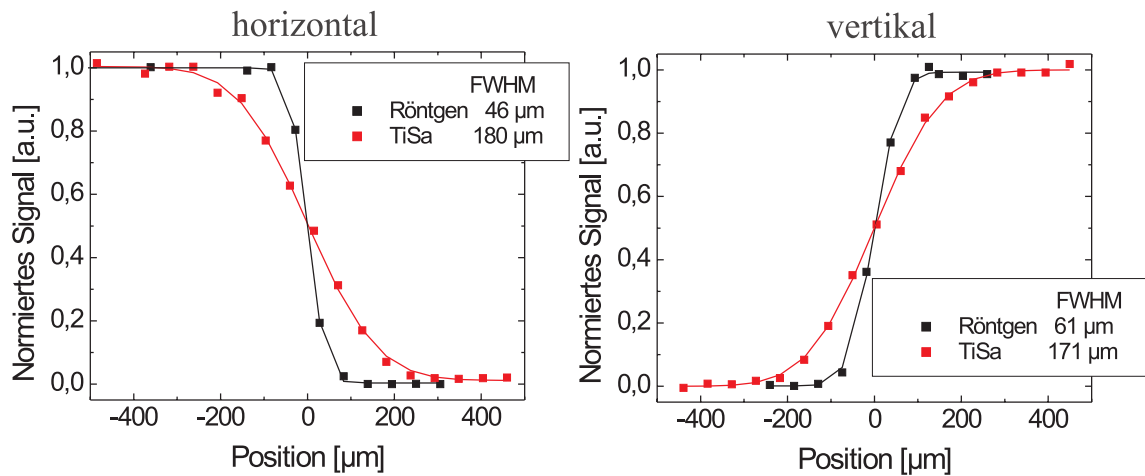


Abb. 3.4: Messung der Fokusgröße und Position des TiSa-Pulses (rote Kurve) und des Röntgenpulses (schwarze Kurve) zur Bestimmung des räumlichen Überlapps; Die Halbwertsbreite des TiSa-Fokus ist etwa einen Faktor 3 größer als die des Röntgenfokus.

Das Ergebnis der zeitaufgelösten Messung ist in der Abbildung 3.5 zu sehen. Die Energiedichte des TiSa-Lasers auf der CdTe-Schicht lag mit $3,2 \text{ J/cm}^2$ über der Einzelschußerstörschwelle. Deshalb mußte die Probe zwischen jedem Pumpuls verschoben werden. In der Abbildung 3.5 ist deutlich zu erkennen, dass sich das Reflexionsvermögen in einigen hundert Femtosekunden auf $(0,51 \pm 0,02)$ vom Ausgangswert verringert. Dieses bleibt auch nach einigen Minuten auf einem Wert von $(0,51 \pm 0,02)$. Der Wert von 0,51 ergibt sich genau aus dem Verhältnis von Eindringtiefe des Laserpulses (165 nm) in die CdTe-Schicht zur Schichtdicke (320 nm). Dies bedeutet, dass eine permanente Veränderung der CdTe-Schicht in der Lasereindringtiefe stattgefunden hat. Die durchgezogene Linie ergibt sich aus der Faltung der Simulation der Röntgenemission (siehe Abbildung 3.2) und einer linearen Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht mit einer Abfallzeit von 540 fs.

3.3.3 Interpretation der Messergebnisse

Die Interpretation der Messergebnisse ist unter verschiedenen Gesichtspunkten möglich. Zunächst muß geklärt werden, warum man annehmen kann, dass die Ände-

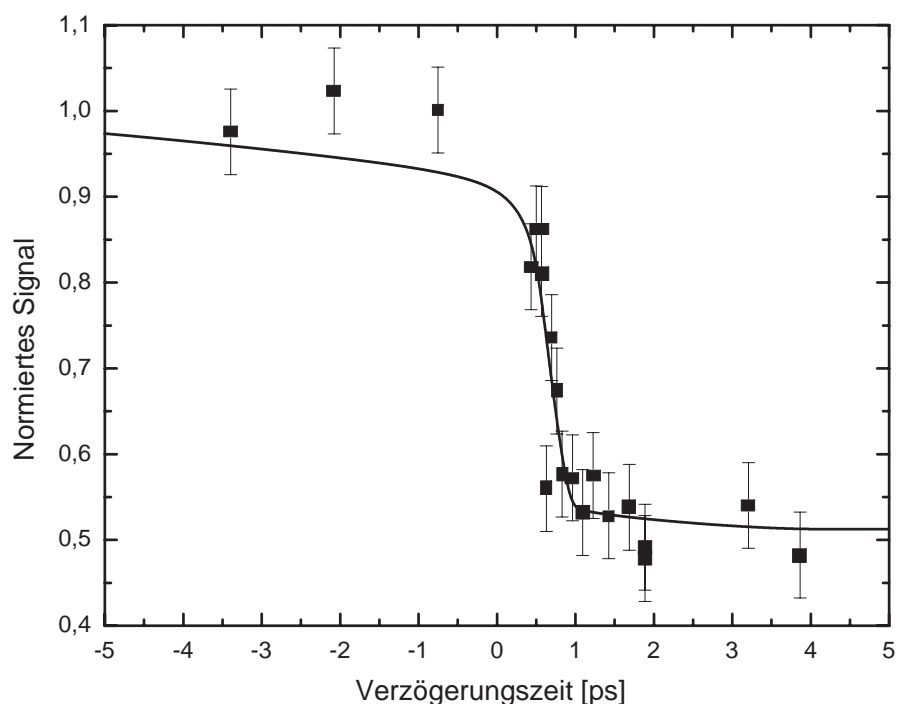


Abb. 3.5: Die integrale reflektierte Röntgenintensität der 320 nm dicken CdTe Kristallschicht als Funktion der zeitlichen Verschiebung zwischen dem optischen Pumpimpuls und dem Röntgenpuls. Negative Zeiten bedeuten, dass der Röntgenpuls vor dem Pumpimpuls auf die Probe trifft. Die durchgezogene Linie ergibt sich als Ergebnis der Simulation der Röntgenemission und einer linearen Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht mit einer Abfallzeit von 540 fs. [50]

Die lineare Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht erfolgt. Wie bereits in Kapitel 3.1 diskutiert, besteht eine Möglichkeit in der Untersuchung des nichtthermischen Schmelzens. Nach theoretischen Vorhersagen [54, 55, 56, 57] ist es möglich, dass sich die Bandstruktur in einem Halbleiterkristall unter Einstrahlung von Laserlicht kollabiert, wenn 10% der Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt werden. In der Arbeit von Stampfli et al. [55] werden für die Dauer τ bis zum Erreichen der Gitterinstabilität die folgenden Proportionalitäten (Die Werte für Silizium

sind in der Arbeit direkt berechnet.):

$$\frac{\tau}{\tau_{Si}} \sim \frac{\omega_{Si}}{\omega} \sim \frac{d^2 M^{\frac{1}{2}}}{d_{Si}^2 M_{Si}^{\frac{1}{2}}} \quad (3.1)$$

d -Bindungslänge

M -Masse pro Elementarzelle

In der Tabelle 3.1 sind die wichtigsten Daten für Halbleiterkristalle mit Zinkblende-Struktur zusammengefasst.

Material	Gitterkonstante [\AA]	d [\AA]	M [amu]	τ [fs]
Si	5,43072	2,3516	28,10	120
Ge	5,65754	2,4498	72,61	209
GaAs	5,65315	2,4479	72,32	208
InSb	6,47877	2,8054	118,29	350
CdTe	6,47700	2,8046	120,00	352

Tab. 3.1: Zusammenfassung der Daten für verschiedene Halbleiterkristalle

Wie man erkennt, dauert die Zeit bis zum Erreichen der Gitterinstabilität für die schweren Verbindungen InSb und CdTe mit rund 350 fs vergleichsweise lange. Die leichteren Verbindungen wie Si, Ge und GaAs sollten zwar schneller die Gitterinstabilität erreichen, weisen jedoch ein schwächeres Röntgenreflexionsvermögen auf.

Die Messungen des optischen Reflexionsvermögens der Kristalle können aber keine Aussage über die Struktur der untersuchten Proben oder Änderungen der Struktur liefern. Es ist nur möglich, die dielektrische Funktion zu bestimmen, die eine Aussage über die elektronische Struktur liefert. Deshalb wurde in einigen Experimenten die reflektierte Strahlung der zweiten Harmonischen [43, 47] gemessen. Die Erzeugung von Oberflächenharmonischen kann im Prinzip eine Information über die strukturelle Symmetrie des Materiales [58, 56] liefern, weil der nichtlineare Suszeptibilitätstensor die Symmetrie des Kristallgitters widerspiegelt. Eine beobachtete schnelle Änderung des Signals der zweiten Harmonischen nach einer Femtosekundenlaserbestrahlung wird deshalb als Beweis für eine Änderung oder den Verlust der Kristallsymmetrie betrachtet.

In den Experimenten wurde für GaAs ein Übergang in den metallischen Zustand (Flüssigkeit) in 300 fs [44] für Energiedichten oberhalb der Einzelschußzerstörungsschwelle bestimmt. Die Messungen zur Änderung des Verhaltens der zweiten Harmonischen

werden als Indiz dafür verwendet, dass in einigen hundert Femtosekunden auch eine Änderung der Röntgenreflexion stattfindet. Eine Aussage über den zeitlichen Verlauf des nichtthermischen Schmelzens ist weder anhand der Messungen noch anhand des Modells möglich. Deshalb wurde hier für eine erste Auswertung eine in der Zeit lineare Änderung angenommen. Für CdTe sind keine optischen Messungen publiziert. Eine eigene Messung wahr aufgrund der begrenzten Probengröße nicht möglich. Wie man in den beiden vorangegangenen Kapiteln gesehen hat, liegen beide Prozesse (Emission des Röntgenpulses und das nichtthermische Schmelzen der Kristallstruktur) in der gleichen Größenordnung von einigen hundert Femtosekunden und können nicht ohne weiteres getrennt werden. Das mit der CCD-Kamera gemessene transiente Signal ist die Faltung der Signale der beiden Einzelprozesse. Deshalb wurde versucht, in einer Modellrechnung verschiedene Röntgenpulsdauern und verschiedene Änderungen der Röntgenreflexion miteinander zu falten und das Ergebnis mit den Meßergebnissen zu vergleichen. In der Abbildung 3.6 sind als Beispiel drei verschiedene Röntgenpulse zu sehen, deren zeitlicher Verlauf aus Gründen der Einfachheit eine Gaussform ist. Diese Vereinfachung ist möglich, da die berechneten Emissionsverläufe nur in der abfallenden Flanke von der Gaussform abweichen. Ausserdem kann man den Beitrag der abfallenden Flanke in den berechneten Emissionskurven zum integralen Emissionsvermögen im Experiment nicht auflösen, da er in der Größe von 5% liegt.

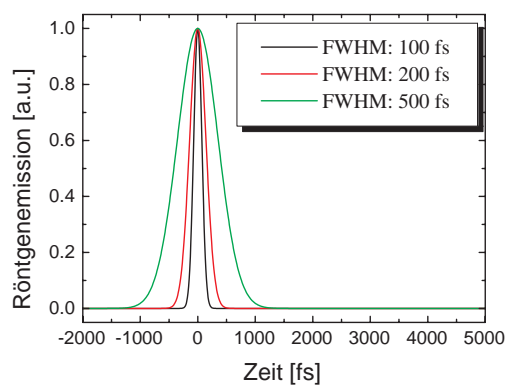


Abb. 3.6: Röntgenemission verschiedener zeitlicher Breite

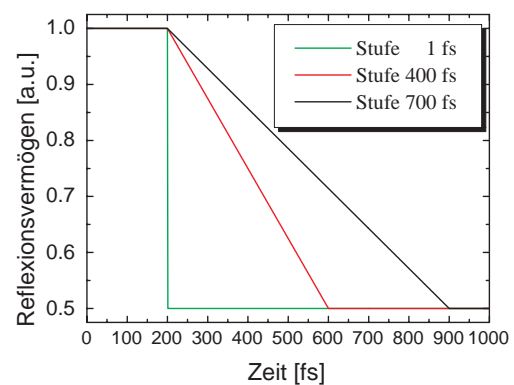


Abb. 3.7: Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht

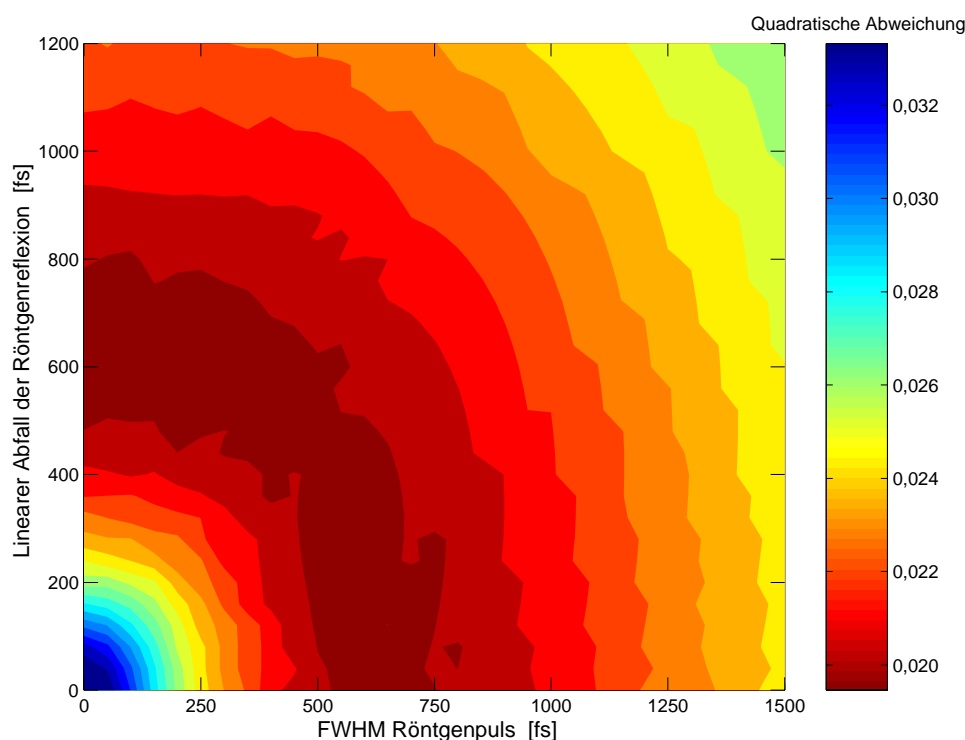


Abb. 3.8: Mittlere quadratische Abweichung der Messwerte von der Faltung eines gaussförmigen Röntgenpulses mit einer linearen Änderung des Röntgenreflexionsvermögens der CdTe-Schicht; Die Farbe gibt den numerischen Wert der Abweichung an.

In der Abbildung 3.7 sind drei typische Änderungen des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht zu sehen. Wie bereits im vorangegangenen Kapitel erläutert wurde, ist der Verlauf linear. Trägt man die mittlere quadratische Abweichung zwischen den Messpunkten (siehe Abbildung 3.5) und der Faltung einer linearen Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht und eines gaussförmigen Röntgenpulses für verschiedene Anstiegs- bzw. Halbwertszeiten auf, erhält man die Abbildung 3.8. Das dunkelrote Gebiet ist der Bereich, in dem die mittlere quadratische Abweichung zwischen den Messwerten und der Faltung der beiden angenommenen Kurven minimal ist. In den Außengebieten ist die Abweichung deutlich größer. Das bedeutet: jede Kombination aus einer angenommenen Röntgenemission und einer dazugehörigen Änderung des Röntgenreflexionsvermögens der CdTe-Schicht, die im dunkelroten Bereich der

Abbildung 3.8 liegt, ist wahrscheinlicher als eine Kombination im Außenbereich. Man kann aber zumindest die beiden Extremfälle und zwei wahrscheinliche Fälle angeben.

1. Die Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht ist eine Sprungfunktion
Das bedeutet, dass die Röntgenpulsdauer maximal (650 ± 150) fs ist (Änderung von $R=1,00$ auf $R=0,51$). Dieser Wert gibt damit eine Obergrenze für die Röntgenpulsdauer an.
2. Die Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht dauert (650 ± 150) fs
Das bedeutet, dass die Röntgenpulsdauer im 1 fs Bereich liegen würde. Dies kann aber aus physikalischen Gründen der Entstehung der $K\alpha$ -Strahlung durch den Laser und heiße Elektronen nicht sein. Eine untere Grenze ist zumindest die Laserpulsdauer mit 80 fs. Die Effekte der Pulsverlängerung durch Laufzeiteffekte durch die Röntgenoptik müssen noch diskutiert werden.
3. Der Röntgenpuls entspricht dem simulierten Ergebnis (Abbildung 3.2)
In diesem Fall ist dauert die Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht 540 fs.
4. Die Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht dauert 350 fs (siehe Tabelle 3.1).
In diesem Fall ist der gemessene Röntgenpuls ebenfalls etwa 350 fs lang.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die in diesem Experiment bestimmte Dauer der Si- $K\alpha$ -Pulse für eine Laserintensität von $3 \cdot 10^{17}$ W/cm² mit (500 ± 150) fs angegeben werden kann.

Wie in der Abbildung 3.9 zu sehen ist, bleibt sowohl die Position als auch die Linienform der gemessenen Rockingkurve unverändert. Lediglich das integrale Reflexionsvermögen verringert sich auf 51%. Kann diese Abnahme durch einen Temperatur bedingten Debye-Waller Faktor erklärt werden?

Das Modell des Debye-Waller Faktors geht dabei davon aus, dass sich die Atome des Gitters aufgrund einer Temperatur größer als Null Grad Kelvin statistisch um die Ruheposition bewegen. Im zeitlichen Mittel führt das zu einer Änderung der Streuamplitude der Atome. Die Temperaturabhängigkeit der Streuamplitude eines

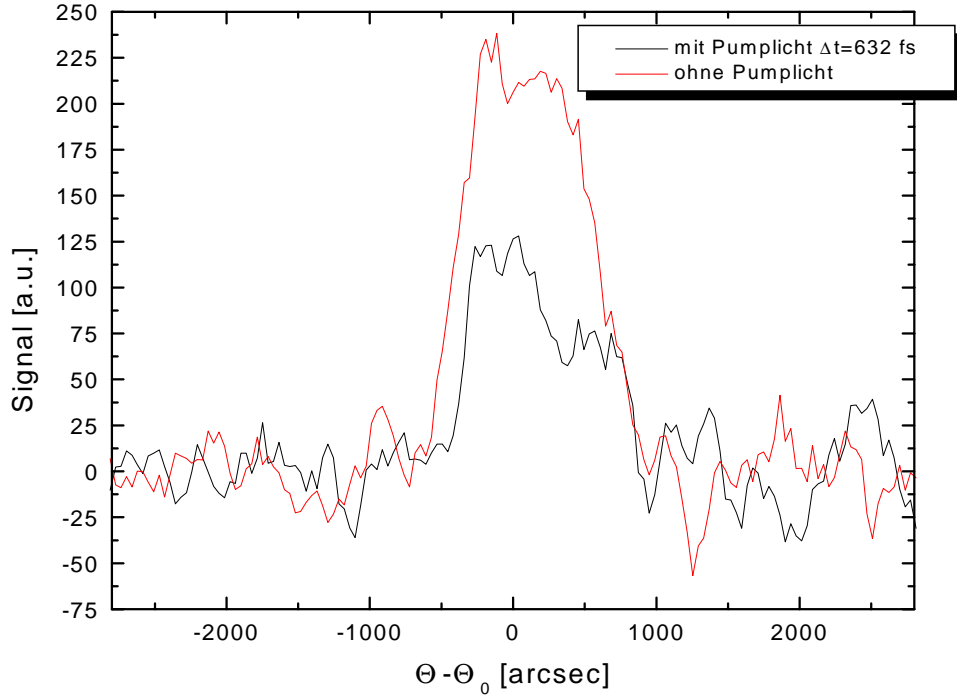


Abb. 3.9: Typische gemessene Rockingkurven der CdTe-Schicht, Akkumulation von 17 Impulsen, $E_{K\alpha}=1,7$ keV, Braggwinkel $\Theta_B=72,3^\circ$, Energiedichte $3,2$ J/cm²; schwarze Kurve: mit Pumplicht; Zeitverzögerung $\Delta t=632$ fs; rote Kurve: ohne Pumplicht

Teilchens ist durch den Term

$$e^{-W_k(T)} \quad (3.2)$$

gegeben. Dabei bedeutet $W_k(T)$ den Debye-Waller Faktor. Für Zink-Blende-Kristalle (kubisches Gitter) hängt der Debye-Waller Faktor mit dem Erwartungswert der Position $\langle u^2 \rangle_k$ zusammen:

$$W_k(T) = \frac{8\pi^2}{3} \left(\frac{\sin\Theta}{\lambda} \right)^2 \langle u^2 \rangle_k \quad (3.3)$$

Dabei bedeutet λ die Wellenlänge der einfallenden Strahlung und 2Θ ist der zugehörige Streuwinkel. Die Abnahme der Streuamplitude eines Teilchens kann nach

[59] berechnet werden. Aus den angegebenen Werten für $\langle u^2 \rangle_k$ und den im Experiment verwendeten Parametern ($\lambda = 7, 12 \text{ \AA}$ und $\Theta = 72, 3^\circ$) nimmt die Streuamplitude beim Erreichen der Schmelztemperatur von CdTe (1371°K [60]) auf 93,7 % ab. Dieser Wert liegt noch nahe bei 1. Außerdem liegt die Zeit, die benötigt wird um im Gitter eine thermische Energieverteilung zu erreichen, in der Größenordnung von einigen Nanosekunden [61] und ist damit viel länger als die untersuchten Zeiten. Aus diesen Gründen kann **die gemessene Abnahme des Reflexionsvermögens in keinem Fall durch eine Temperatur bedingte Änderung des Debye–Waller Faktors erklärt werden.**

3.3.4 Bestimmung der Zeitauflösung des Experimentes

Die Zeitauflösung des Experimentes ergibt sich aus der Faltung der in Kapitel 2.5.2 berechneten Werte für den gebogenen Kristall und der Quellgröße bzw. der zeitlichen Verschmierung im Röntgenfokus. Unter der Annahme, dass der entstehende Röntgenpuls einen in der Zeit deltaförmigen Verlauf hat und alle Verlängerungsmechanismen gaußförmig sind, kann man die resultierende Zeitauflösung nach der folgenden Formel berechnen:

$$t_{min} = \sqrt{t_{Quelle}^2 + t_{Kristall}^2 + t_{Probe}^2} \quad (3.4)$$

Die Verlängerung des Röntgenpulses in der Quelle ergibt sich aus der Quellgröße, die mit maximal $80 \mu\text{m}$, und dem Beobachtungswinkel von 77° unter dem der gebogene Kristall die Abbildung durchführt. Damit ergibt sich für t_{Quelle} ein Wert von 60 fs. Der Wert für die Zeitverschmierung im Kristall ist in Kapitel 2.5.2 diskutiert und beträgt 22 fs.

Am Ort der Probe ergibt sich die Zeitverschmierung t_{Probe} analog zur Quelle aus der Größe des Fokus (maximal $80 \mu\text{m}$) und dem Winkel zwischen dem Röntgenstrahl und dem Pumpstrahl (etwa 9°) zu 40 fs.

Mit diesen Werten beträgt die minimale Röntgenpulsdauer t_{min} , für einen zeitlich deltaförmigen Quellpuls, am Ort der Probe 75 fs.

3.4 Andere Meßmethoden

3.4.1 Messungen mit einer Streak-Kamera

Eine Möglichkeit, die Dauer der $K\alpha$ -Strahlung zu messen, besteht im Einsatz einer Streak-Kamera für den Röntgenbereich. In der Tabelle 3.2 sind die wichtigsten Veröffentlichungen der letzten Jahre zusammengefasst. Die angegebenen

Ort	Zeitauflösung	gemessene Röntgenemissionen	Jahr	Quelle
Michigan	2 ps	Al He α 4 ps Al K α 2 ps	1993	[62]
Michigan	1,6 ps	Al K α 1,5...2,3 ps V K α \approx 3 ps	1996	[41]
Yokohama	2 ps	Cu K α 6,4 ps	1998	[63]
Michigan	0,55 ps	Al He α 0,7...0,9 ps	2000	[64]
Michigan	0,35 ps	Al He α 0,7 ps	2000	[65]
Garching	1,7 ps	Al He α 2,3 ps	2001	[66]
Garching	0,9 ps	Al He α 2,1 ps Al K α 1,2 ps	2002	[67]
Garching	0,9 ps	Al He α 5,2 ps Al K α 3,3 ps	2002	[67]

Tab. 3.2: Zusammenfassung der Daten einiger Streak-Kamera Messungen

Zeitauflösungen werden mittels Kalibrierung durch Ultraviolette Pulse bestimmt. Bei einer Photonenenergie der UV-Pulse von 5 eV werden praktisch nur Primärelektronen aus der Photokathode ausgelöst. Im Gegensatz dazu werden Röntgenpulse mit einer Photonenenergie von 2 keV zusätzlich Sekundärelektronen erzeugen. Deshalb wird bei dem Einsatz der Streak-Kamera im Röntgenbereich der Beitrag durch Raumladungseffekte viel größer sein. Eine genaue Angabe ist schwer möglich. Ein weiterer Aspekt ist die viel breitere Energieverteilung der Elektronen für die Röntgenpulse aufgrund der hohen Photonenenergie. Beim Einsatz der Streak-Kamera im UV-Bereich sind die ausgelösten Elektronen nahezu monoenergetisch, da die Photonenenergie von 5 eV nur wenig größer ist als die Auslösearbeit der KJ-Photokathode

von 1,6 eV [68].

Wie man sieht, ist die angegebene Zeitauflösung bereits in den Subpikosekundenbereich vorgedrungen. Diese Werte gelten aber nur im Einzelschußbetrieb. Wird vor der Streak-Kamera keine röntgenoptische Abbildung verwendet, ist der Photonenfluß von der Quelle auf den Eintrittspalt der Streak-Kamera in den zu untersuchenden Linien so gering, dass man nur im Multischußbetrieb arbeiten kann. Dann ist die Zeitauflösung aufgrund der elektronischen Schwankungen wieder im Bereich von 2 ps (siehe Quelle [66]). Eine im Rahmen dieser Arbeit zusammen mit dem Max-Planck-Institut für Quantenoptik durchgeführte Meßkampagne mit dem ATLAS-2 Laser, dem selben gebogenem Kristall als röntgenoptische Abbildung und der vorhandenen Streak-Kamera zeigt, dass sowohl mit dem TiSa-Laser in der Grundwelle als auch mit dem verdoppelten Laser die Zeitauflösung von 1,2 ps erreicht werden kann [69]. Die Anzahl der mit dem gebogenem Kristall abgebildeten $K\alpha$ Photonen ist so hoch, dass Raumladungseffekte zu einer deutlichen Verlängerung der gemessenen Pulsdauer führen. Deshalb mußte der gebogene Kristall leicht dejustiert werden. Nach den vorliegenden Veröffentlichungen ist es bisher noch **keiner** Arbeitsgruppe in der Welt gelungen, mit einer Streak-Kamera $K\alpha$ -Röntgenpulse im Subpikosekundenbereich zu messen. Führt man eine kritische Bewertung der möglichen Zeitauflösung von Streak-Kameras entsprechend [65] durch, erscheint es aus meiner Sicht sehr schwierig zu werden, Zeitaufösungen unter 700 fs erreichen zu können. Die Zeitauflösung wird in [65, 70] definiert als

$$\Delta\tau = \sqrt{t_s^2 + t_{pk}^2 + t_{sc}^2} \quad (3.5)$$

Dabei bedeuten die einzelnen Terme:

- t_s statischer Beitrag durch die Größe des Eintrittsspalt; 200 fs
- t_{pk} Beitrag durch Dispersionseffekte; 120 fs
- t_{sc} Beitrag durch Raumladungseffekte; 250 fs

Die bisher beste Zeitauflösung wird in [65] mit angegebenen 350 fs erreicht. Dies ist die gemessene Anstiegszeit einer Messung (10%–90% des Maximums). Dieses Ergebnis hat nichts mit der Messung einer Halbwertsbreite (FWHM) zu tun, und kann damit nicht direkt mit den in dieser Arbeit erzielten Ergebnissen verglichen werden.

Der abgebildete Verlauf der gesamten Messung zeigt eine Halbwertsbreite von 600 fs und ist damit fast einen Faktor 2 größer als die Anstiegszeit.

Ein weiteres Problem stellt der Akkumulationsbetrieb dar. Wie in dem Vortrag von R. Falcone [68] sehr schön zu erkennen ist, verlängert sich die Einzelschußzeitauflösung von 0,54 ps durch elektronische Schwankungen im Multischußbetrieb (Akkumulation von 5000 Schuß) auf 2,2 ps.

In den Arbeiten [62] und [67] sind die gemessenen Pulsdauern deutlich länger als die für die Streak-Kameras angegebenen Zeitauflösungen. Die Erklärung für die im Pikosekundenbereich liegenden $K\alpha$ -Pulsdauern wird in beiden Veröffentlichungen durch Laufzeiteffekte der Elektronen vor dem Target angegeben. Der durch selbst-erzeugte elektrische und magnetische Felder entstehende „Springbrunneneffekt“ ist für Intensitäten oberhalb von 10^{18} W/cm² möglich und führt zu $K\alpha$ -Pulsdauern von bis zu 5 ps [71].

3.4.2 Messungen der anormalen Transmission von Quarz-Borrmanneffekt

Im Rahmen dieser Arbeit wurde an der Entwicklung eines Korrelators für den Röntgenbereich auf Grundlage des Borrmanneffektes (siehe Kapitel 3.1) gearbeitet. Dazu wurde zunächst ein Bandtargetsystem [72, 73] aufgebaut, das es erlaubt, mehr als 1 Million Röntgenpulse bei einer Wiederholrate von bis zu einem 1 kHz zu erzeugen. Durch die Auswahl des Bandmaterials kann die Photonenenergie variiert werden. In dem durchgeführten Experiment wurde ein 20 μ m dickes Titanband verwendet. Die Abbildung der $K\alpha$ -Strahlung erfolgte mit einem torischen Siliziumkristall (Orientierung: (311); $\Theta_B = 57,01^\circ$). Als Probekristall wurde ein 70 μ m dicker Quarz-Kristall (Oberfläche: 11.0; Reflexion: 10.-1) verwendet und mit einer Leistungsdichte knapp unterhalb der Weißlichtschwelle ($I=50$ GW/cm²) bestrahlt. Ein erstes Ergebnis der Messung ist in der Abbildung 3.10 zu sehen. Es sind deutliche Änderungen (Abnahme, Zunahme, jeweils 9%) des Signales auf einer Zeitskala von 100 fs zu erkennen. Eine vollständige Erklärung ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht möglich, da das Experiment zunächst unter verschiedenen Bedingungen wiederholt werden muß.

Die entwickelte Methode hat den großen Vorteil, dass der Quarzkristall nicht zerstört wird und deshalb nicht zwischen zwei Laserpulsen verschoben werden muß. Mit die-

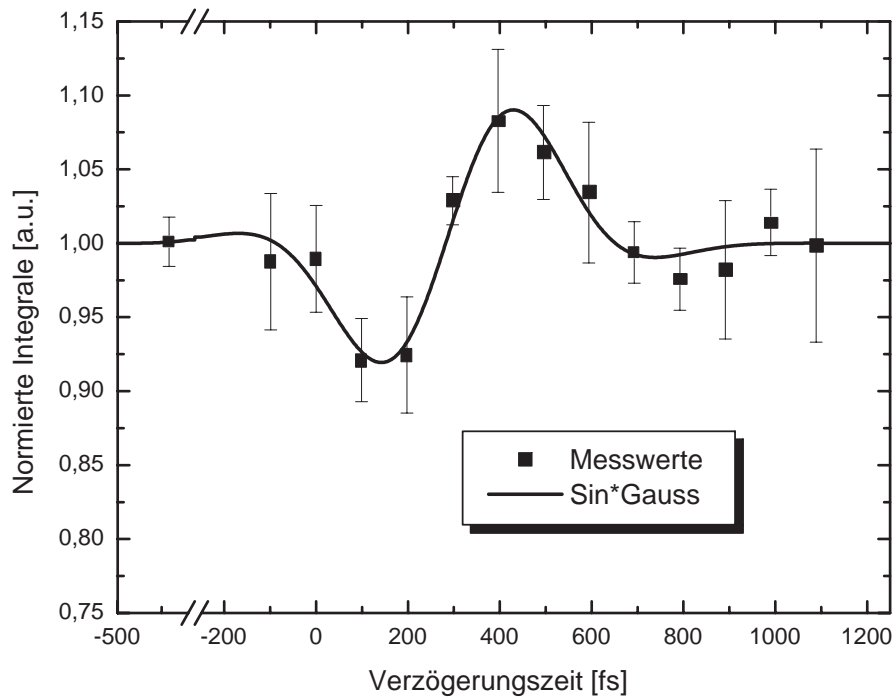


Abb. 3.10: Gemessene Transmission durch den $70 \mu\text{m}$ dicken Quarz-Kristall als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Röntgenpuls und VIS-Pumppuls, Akkumulation von 500 Impulsen pro Verzögerungszeit, $E_{K\alpha}=4,51 \text{ keV}$, Braggwinkel $\Theta_B=24,27^\circ$

ser Methode kann man einen Kreuzkorrelator wie im VIS-Bereich aufbauen.

3.5 Zusammenfassung

Die Bestimmung der Pulsdauer eines mit einem Hochintensitätslaser erzeugten $K\alpha$ -Pulses ist sehr schwierig. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt kann aufgrund der zu geringen Photonenflüsse und der zu geringen Wirkungsquerschnitte für Zweiphotonprozesse keine direkte Messung der Röntgenpulsdauer erfolgen. Von den in Kapitel 3.1 diskutierten Methoden stellt die Messung der Röntgenpulsdauer mit dem Prozeß des nichtthermischen Schmelzens die Methode der Wahl dar, da sie im sichtbaren

Spektralbereich am besten untersucht ist. Die Untersuchungen zeigen, dass die untere Grenze für die Dauer des Si- $K\alpha$ -Pulses 80 fs (entspricht der Laserpulsdauer) und die obere Grenze (650 ± 150) fs sind (Kapitel 3.3.3). Die Intensität der TiSa-Laserpulse auf dem Siliziumtarget betrug dabei $3 \cdot 10^{17}$ W/cm². Die Dauer der Si- $K\alpha$ -Pulse kann mit (500 ± 150) fs angegeben werden. Eine genaue Analyse des zeitlichen Verlaufes des Pulses ist, im Rahmen dieser Arbeit, nicht exakt möglich, da der Prozeß des nichtthermischen Schmelzens, im Vergleich zu dem zu vermessenden Röntgenpuls, nicht schnell genug erfolgt. Die Arbeiten von Sokolowski-Tinten et al. [74] bzw. Rousse et al. [75] zeigen nicht das von Reich et al. [38] vorhergesagte Nachleuchten des Röntgenpulses. Die in den pump-probe-Experimenten bestimmten Pulsdauern sind kleiner als 1 ps [50, 75, 74] und alle kürzer als die Messungen mit Streak-Kameras. Die Entwicklung einer neuen, nicht zerstörenden Meßmethode (Borrmanneffekt) ist begonnen und zeigt in ersten Experimenten vielversprechende Ansätze zur Messung von ultrakurzen Röntgenpulsen, die mit Hochintensitätslasern erzeugt werden können.

Kapitel 4

Messungen zu laserinduzierten Prozessen in massiven Halbleiterkristallen

In diesem Kapitel sollen die Untersuchungen zu Messungen von laserinduzierten Prozessen in massiven Halbleiterkristallen vorgestellt werden. In dem ersten, ausführlicheren Teil, werden die Untersuchungen zum Verhalten von InSb diskutiert. Dabei wird der (111)-Reflex untersucht. Die verwendete Si-K α Strahlung ist die langwelligste charakteristische Röntgenstrahlung, die für Beugungsexperimente mit InSb verwendet werden kann. In einem zweiten Teil werden Messungen mit Ti-K α -Pulsen und einem Germaniumkristall vorgestellt. Die in diesen Messungen erzielte Dynamik im Signal-Rausch-Verhältnis ist mit $3 \cdot 10^4$ einzigartig.

Die zunächst verwendete Si-K α Strahlung wird in den Materialien sehr stark absorbiert und hat mit einer Eindringtiefe von 745 nm in InSb [51] den kleinsten Wert verglichen mit kürzerwelliger charakteristischer Röntgenstrahlung. Diese Eindringtiefe ist aber immer noch groß verglichen mit der Eindringtiefe des IR-Pumpulses von (160 ± 20) nm [52]. Damit wird die erwartete Änderung des integralen Reflexionsvermögens bei einer Auflösung des kristallinen Zustandes durch den Laser, das von dem Verhältnis der Eindringtiefen bestimmt wird, um 20% liegen. Die physikalischen Prozesse sind im Kapitel 3.3.3 ausführlich diskutiert wurden und in der Tabelle 3.1 ist die theoretisch vorhergesagte Zeit für die Gitterinstabilität mit 350 fs angegeben. Diese Zeit ist einen Faktor 3 bis 4 größer als die erwartete Röntgenpulsdauer und damit ist diese Kombination nicht geeignet, die Röntgenpulsdauer zu

messen. Der InSb-Kristall wurde aber zunächst ausgewählt, weil er ein sehr hohes integrales Reflexionsvermögen von $991 \mu\text{rad}$ aufweist und mit seiner Gitterkonstante von $6,47877 \text{ \AA}$ mit der Si-K α Strahlung untersucht werden kann. Durch den großen Braggwinkel von $\Theta = 72,3^\circ$ ist man sehr empfindlich auf Gitteränderungen.

In Analogie zum Kapitel 2.5.2 kann man die Zeitverschmierung des Si-K α -Pulses im Probekristall InSb untersuchen. Die Werte sind in [26] mit $\Delta\tau_1 = 2,0 \text{ fs}$, $\Delta\tau_2 = 4,1 \text{ fs}$ und $\Delta\tau_3 = 0 \text{ fs}$ angegeben und damit im Experiment vernachlässigbar.

In den letzten 4 Jahren gab es eine Reihe von Veröffentlichungen, die InSb als Probekristall untersucht haben. Die für die Experimente verwendeten Röntgenstrahlquellen reichen von Thomsenstreuung [76], über normale Synchrotronstrahlung [77, 78, 79] bis zu Röntgenstrahlung aus laserproduzierten Plasmen [75, 80, 81]. Der dabei verwendete Photonenenergiebereich reicht von $1,74 \text{ keV}$ bis zu 30 keV und die Röntgenpulsdauer von 200 fs bis 20 ps . Es wurden eine Reihe von Effekten untersucht, wie die Anregung kohärenter akustischer Phononen [78, 81], Phononenoszillationen [77], schnelles bzw. nichtthermisches Schmelzen [76, 75, 80] und die kohärente Kontrolle von Phononen durch Mehrfachpulsanregung [79]. In all diesen Arbeiten wird InSb als Probekristall verwendet, da es das höchste Reflexionsvermögen aufweist, und es damit möglich sein sollte, mit der geringsten Photonenzahl ein für physikalisch interessante Messungen ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis zu erreichen. Eine Übersicht der wichtigsten Veröffentlichungen ist im Anhang zu finden.

4.1 Messungen an InSb

4.1.1 Untersuchung reversibler Anregungen

Vorbereitende Messungen

Ein wichtiger Justageparameter in dem Zweikristalldiffraktometer ist der Braggwinkel des zweiten, ebenen Kristalls (InSb). Die Winkelschrittweite des Goniometers beträgt $2,3''$. In der Abbildung 4.1 ist die Rockingkurve des InSb für drei verschiedene Goniometerwinkel zu sehen (Signal als Funktion der Pixel der CCD-Kamera). Diese Messung ist nur möglich, weil das Winkelangebot des ersten Kristalls mit 2° viel größer ist als die zu messende Rockingkurve. Wie man sieht, gibt es eine optimale Position, zu der nach beiden Seiten das Reflexionsvermögen abnimmt. Diese

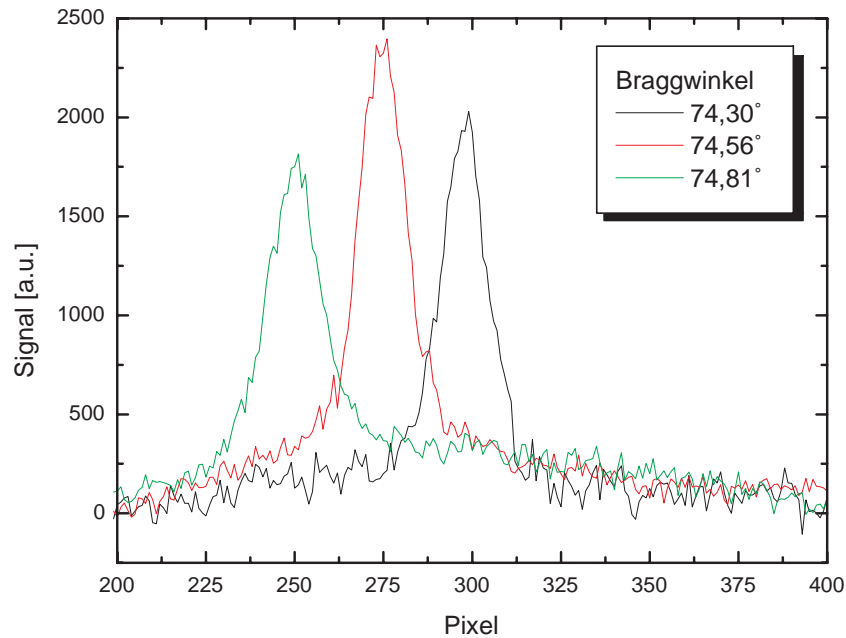


Abb. 4.1: Mit der CCD-Kamera gemessene Rockingkurve des InSb-Kristalls in Abhängigkeit des Braggwinkels des InSb.

Messung ist nicht nur wichtig für die Signaloptimierung, sondern auch notwendig für die Winkelkalibrierung der CCD-Kamera. Man kann aus der Position des Maximums der Rockingkurve, des Abstandes der CCD-Kamera vom zweiten Kristall (106,8 mm) und der Pixelgröße ($19,8 \mu\text{m}$) die Winkelauflösung bestimmen. Diese beträgt in dieser Messung $32''$ pro CCD-Pixel.

Messungen an InSb

Es wurden Messungen zur Untersuchung des reversiblen Verhaltens des InSb-Kristalls für drei verschiedene Energiedichten ($1, 5$ und 10 mJ/cm^2) im Pumpstrahl durchgeführt. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 4.2 bis 4.4 zu sehen. In diesen Messungen wurde für verschiedene Verzögerungszeiten die Rockingkurve gemessen. Der zeitliche Abstand zwischen zwei Aufnahmen betrug in der Regel 10 ps und es wurden 40 Röntgenpulse akkumuliert. Die x-Achse zeigt die Abweichung

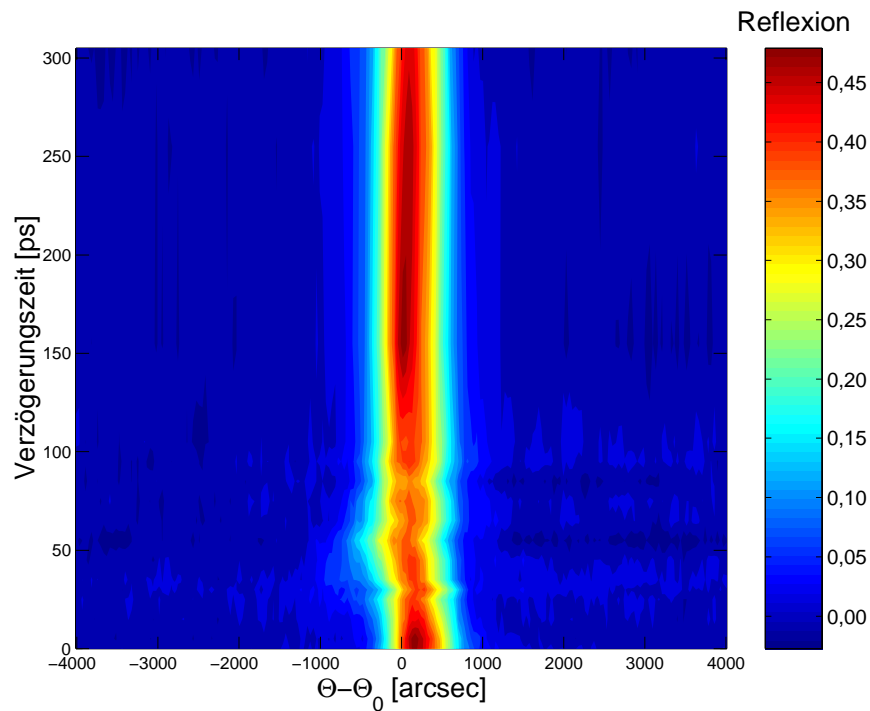


Abb. 4.2: Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 1 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si- $K\alpha$ Strahlung

vom nominalen Braggwinkel in Bogensekunden, die y-Achse die Zeitverzögerung zwischen Pump- und Probepuls in Pikosekunden und die Farbe gibt die Höhe des Reflexionsvermögens an. Die Zeit $t=0$ war so definiert, dass der Pumpimpuls und der Röntgenimpuls gleichzeitig den InSb-Kristall erreichen. Für Verzögerungszeiten kleiner als Null wird die unbeeinflusste Rockingkurve gemessen, da der Röntgenimpuls den InSb-Kristall abfragt bevor dieser durch den Pumpimpuls beeinflusst wurde. In all den Experimenten war die Größe des Pumpstrahles mindestens doppelt so groß wie die Größe des Röntgenfokus (analog zur Messung am CdTe; Abbildung 3.4).

Beschreibung von Abbildung 4.2

Wie man in der Abbildung 4.2 sehen kann, tritt in den ersten 10 bis 15 ps nach dem Eintreffen des Pumpimpulses keine Veränderung der Rockingkurve des InSb für die sehr kleine Energiedichte im Pumpstrahl von 1 mJ/cm^2 auf. Im Zeitbereich

von 25 ps bis etwa 100 ps ist die Rockingkurve verbreitert und das Maximum um wenige Bogensekunden zu kleineren Braggwinkeln hin verschoben. Dies bedeutet, dass das Gitter leicht expandiert ist. In dem Kristall kommt es zur Ausbildung einer Stoßwelle, deren Kompressionsanteil sehr gering, praktisch nicht erkennbar, ist, aber die Expansion des Gitters auf der Rückseite der Stoßwelle ist zu erkennen. Nach 150 ps ist die Rockingkurve mit der des ungepumpten Kristalls vergleichbar. Für diesen Effekt kann es zwei Ursachen geben: Erstens das Gitter ist aufgrund der sehr geringen Energiedichte im Pumpstrahl schon wieder vollständig relaxiert oder zweitens die Eindringtiefe der Röntgenstrahlung ist kleiner als die sich im Kristall ausbreitende Stoßwelle.

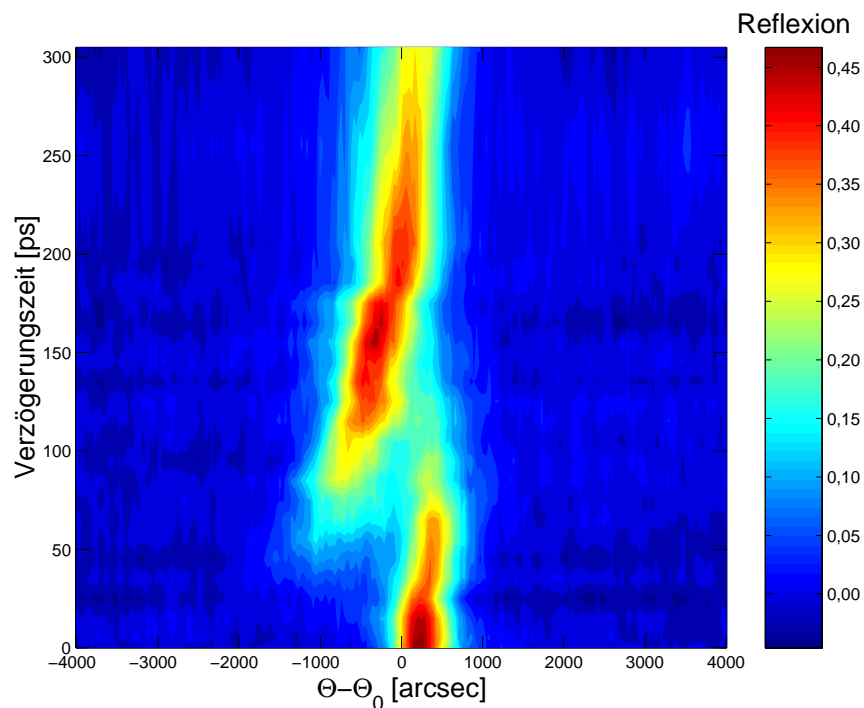


Abb. 4.3: Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 5 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si- $K\alpha$ Strahlung

Beschreibung von [Abbildung 4.3](#)

Das Verhalten im InSb-Kristall wird deutlicher sichtbar, wenn die Energiedichte im Anregeimpuls auf 5 mJ/cm^2 erhöht wird (siehe [Abbildung 4.3](#)). Etwa 10 ps nach der

Anregung des Kristalls ist eine deutliche Verschiebung des Braggreflexes zu großen Winkeln und eine stetige Abnahme der Intensität erkennbar. Das Gitter wird komprimiert. Nach 50 ps wächst auf der Seite kleinerer Braggwinkel (Expansion des Gitters) ein zweiter Reflex. Dieser wird kontinuierlich größer und läuft auf die Position der unbeeinflussten Rockingkurve zu. Nach etwa 175 ps ist die Ausgangsposition wieder erreicht und man detektiert wieder die unbeeinflusste Rockingkurve.

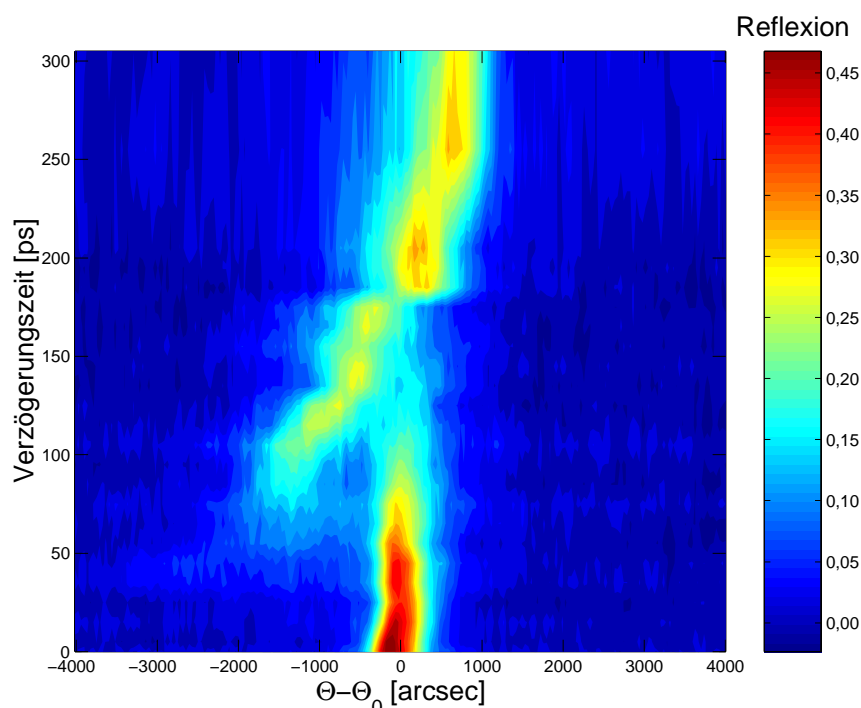


Abb. 4.4: Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 10 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si- $K\alpha$ Strahlung

Beschreibung von [Abbildung 4.4](#)

Wie man in der [Abbildung 4.4](#) sehen kann, ist für die ersten 10 ps nach dem Eintreffen des Pumpimpulses keine Veränderung der Rockingkurve zu erkennen. Nach etwa 15 ps ist die Rockingkurve zu größeren Braggwinkeln verschoben, das Gitter ist komprimiert. Die Rockingkurve zeigt keine Veränderungen für kleinere Braggwinkel. Nach etwa 25 ps nimmt das Reflexionsvermögen in der Spitze um mehr als 15% ab und die Verschiebung des Braggreflexes wächst an.

Die Kompression und der Deformationsgradient werden größer. Für noch spätere Verzögerungszeiten ist auch eine Expansion zu sehen, die in einem breiten Plateau, weit entfernt vom Hauptpeak ($\Delta\Theta = -500 \dots -3000$ arcsec), anwächst. Das bedeutet, dass im Gitter eine starke Änderung relativ zum unbeeinflussten Gitter stattgefunden hat. Die schwache Intensität deutet darauf hin, dass die Expansion nur in einer kleinen Schicht stattfindet und das breite Plateau wird durch einen starken Deformationsgradienten verursacht. Bis etwa 55 ps wird das Plateau auf der Seite der kleineren Braggwinkel größer.

Nach 150 ps verschwindet der Kompressionspeak und die Stoßfront ist tiefer in den Kristall eingedrungen als die Eindringtiefe der Röntgenstrahlung. Der Expansionsast läuft auf den ungestörten Braggpeak zu, was mit einer Relaxation des Gitters erklärt werden kann.

Während der gesamten Messungen war es nicht notwendig, den InSb-Kristall zu verschieben. Alle ungepumpten Aufnahmen zeigten keinerlei Veränderungen der Rockingkurve, sowohl in der Signalhöhe als auch in der Position auf der CCD-Kamera. Die Anregung erfolgte also **vollständig reversibel** und das Gitter konnte wieder in die Ausgangsposition relaxieren.

Diese Messungen, des Verhaltens eines Halbleiterkristalls unter der Bestrahlung mit einem Femtosekundenlaser, mit einer Zeitauflösung besser als eine Pikosekunde, sind neuartige Experimente zur zeitaufgelösten Röntgenbeugung, von denen man bis vor vier Jahren nur zu träumen wagte. Es ist damit möglich, reversible Prozesse auf einer Subpikosekunden Zeitskala mit einer räumlichen Auflösung im Angströmbereich zu vermessen. Die Messungen beschränken sich aufgrund der derzeit verfügbaren Photonenflüsse auf Substanzen mit starken Braggreflexen. Es wurde erstmalig in einer Arbeit das reversible Verhalten des InSb-Kristalls für 3 verschiedene Anregungsenergie-dichten (1 mJ/cm^2 , 5 mJ/cm^2 , 10 mJ/cm^2) untersucht.

Die verschiedenen theoretischen Modelle der Absorption der Laserenergie im Halbleiterkristall und der Ausbreitung von Phononen werden im Kapitel 5 vorgestellt.

4.1.2 Untersuchungen zum nichtthermischen Schmelzen

In einem weiteren Experiment sollte das Verhalten von InSb im Bereich des Nichtthermischen Schmelzens untersucht werden. Dazu wurde die symmetrische Bragg-

Reflexion der (111)–Ebenen ausgenutzt. Die Breite der Rockingkurve des InSb ist mit 329 arcsec viel breiter als die des gebogenen Quarzkristalls. Damit sind Messungen bei einer kleinen Röntgenquelle möglich. Das Experiment wurde für zwei

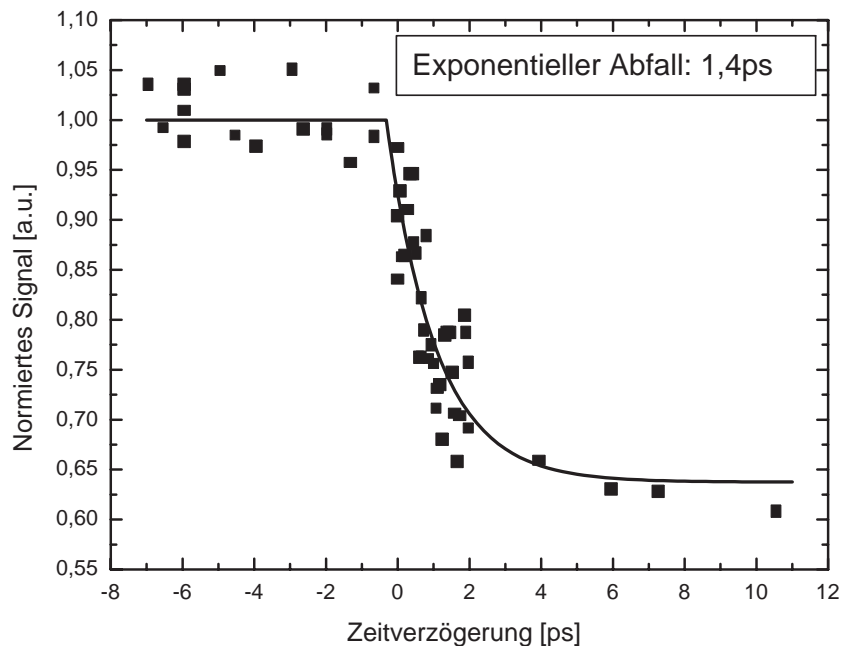


Abb. 4.5: Nichtthermisches Schmelzen in InSb; Energiedichte im Pumpstrahl: 100 mJ/cm²; Laserintensität auf dem Siliziumtarget: $3 \cdot 10^{17}$ W/cm²

verschiedene Laserintensitäten auf dem Siliziumtarget ausgeführt (3×10^{17} W/cm² und 7×10^{16} W/cm²), wobei die Größe des Laserfokus auf dem Target geändert wurde. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 4.5 und 4.6 zu sehen und zeigen für beide Laserintensitäten den gleichen Verlauf. Auf das Eintragen der Fehlerbalken an jedem Messpunkt wurden aus Gründen der Übersichtlichkeit verzichtet. Die Fehler für jeden Messpunkt sind zwischen 3 und 5% groß und werden durch die Schwankung der Laserpulsenergie während der Aufnahme der 10 Laserpulse bestimmt. Die Energiedichte des Pumpstrahles lag mit 100 mJ/cm² oberhalb der Einzelschußzerstörungsschwelle. Das bedeutet für die Messung, dass das InSb zwischen jedem Laserpuls verschoben werden muß, um immer eine neue Stelle mit dem Röntgenpuls

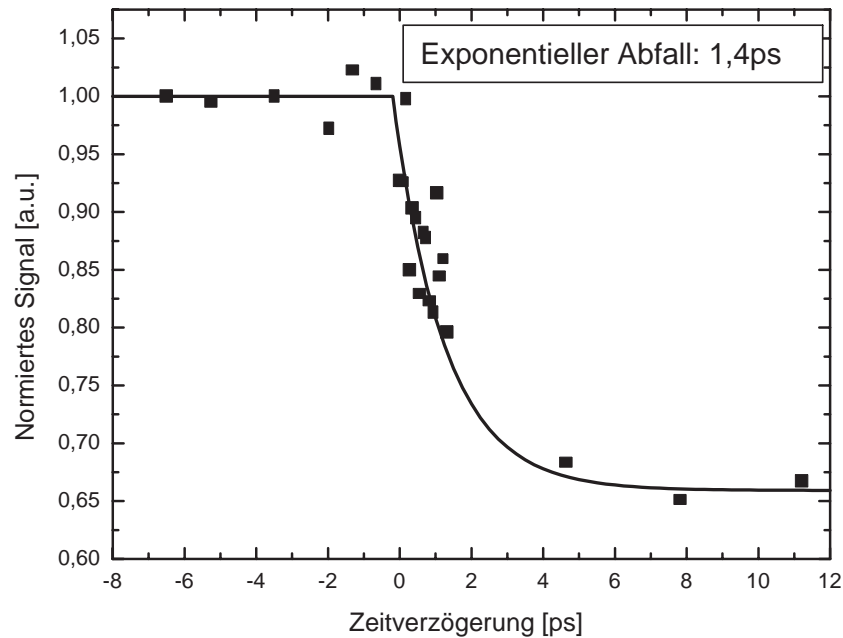


Abb. 4.6: Nichtthermisches Schmelzen in InSb; Energiedichte im Pumpstrahl: 100 mJ/cm^2 ; Laserintensität auf dem Siliziumtarget: $7 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$

zu untersuchen. In den beiden Messungen zeigt sich, unabhängig von Laserintensität auf dem Siliziumtarget, der gleiche Verlauf. Das integrale Reflexionsvermögen des dicken InSb-Kristalls nimmt bei einem exponentiellen Abfall des Signales innerhalb von 1,4 ps auf 64% des ursprünglichen Wertes ab. Dieser Wert kann nicht durch eine temperaturbedingte Änderung des Debye-Waller-Faktors erklärt werden, da die Streuamplitude beim Erreichen der Schmelztempertur von 803°K [60] nur auf 93,5% abnimmt [59]. Für negative Zeitverzögerungen probt der Röntgenpuls den unbeeinflussten InSb-Kristall. Das Nachleuchten, wie von Reich et al. [38] vorhergesagt, kann anhand der Messwerte nicht gefunden werden.

In diesen Experimenten stehen sehr viele Messpunkte zur Verfügung, so dass man verschiedene Funktionen für die Änderung des Reflexionsvermögens des InSb-Kristalls untersuchen kann. In der Abbildung 4.7 wurde eine lineare Änderung des Reflexionsvermögens angenommen, wobei die Messwerte die gleichen wie in Abbil-

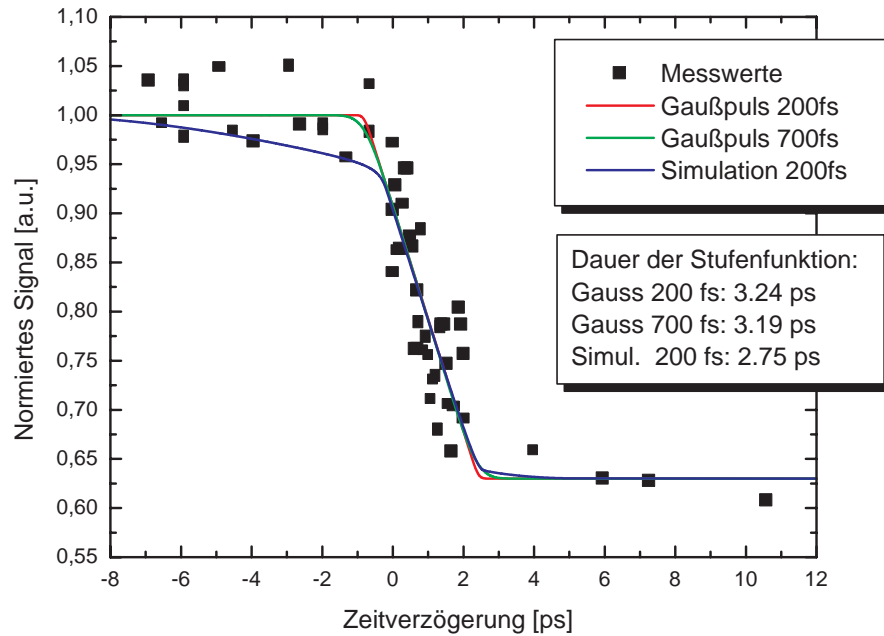


Abb. 4.7: Nichtthermisches Schmelzen in InSb; Energiedichte im Pumpstrahl: 100 mJ/cm^2 ; Laserintensität auf dem Siliziumtarget: $3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$; Vergleich der Messwerte mit der Faltung unterschiedlich langer Röntgenpulse und einer linearen Änderung des Reflexionsvermögens (analog zu Kapitel 3.3.3)

dung 4.5 sind. Als Röntgenpulse wurden die in Kapitel 3 bestimmten Werte angenommen. Die Ergebnisse zeigen, dass die Dauer der Änderung des Reflexionsvermögens im Falle einer linearen Stufe etwa 3,2 ps beträgt. Dieser Wert ist um vielfaches größer als die von Stampfli et al. [55] vorhergesagte Zeit für die Ausbildung der Gitterinstabilität von 350 fs. Betrachtet man die Abbildungen 4.5 und 4.7 kann man nicht unterscheiden, ob die Änderung des Reflexionsvermögens linear oder exponentiell erfolgt. Die Auswertung mit der Exponentialfunktion ergibt die schnelleren Änderungen.

Ein ähnliches Ergebnis wie in Abbildung 4.5 wurde von Rouse et al. [75] für exakt den gleichen experimentellen Aufbau gefunden (Si- $K\alpha$ Strahlung, gebogener Quarz-

kristall mit 10.0 Orientierung, Probekristall InSb). Im Gegensatz zu den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden auch asymmetrische Reflexe untersucht, um die unterschiedlichen Eindringtiefen für Laser- und Röntgenstrahlung besser anzupassen. Es zeigt sich, dass für die größte Probetiefe von 350 nm die schnellste Änderung mit einer Abfallzeit von 350 fs gemessen wurde. Für den symmetrischen 111-Braggreflex wurde eine Abfallzeit von 420 fs gemessen. Diese ist um einen Faktor 3 kürzer als die in Jena gemessene Abfallzeit.

Im Anhang ist eine Tabelle der wichtigsten Veröffentlichungen auf dem Gebiet der zeitaufgelösten Röntgenbeugung anderer Gruppen zu finden.

4.1.3 Untersuchungen zum thermischen Schmelzen

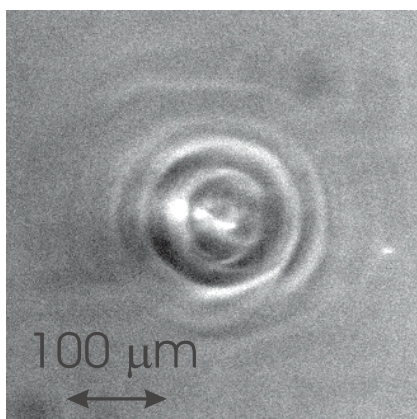


Abb. 4.8: Aufnahme der Krater im InSb mit einem Lichtmikroskop nach der Bestrahlung mit dem TiSa-Laserpuls; Energiedichte im Pumpstrahl 400 mJ/cm^2

In einem weiteren Experiment wurde die Energiedichte im Pumpstrahl auf über 400 mJ/cm^2 erhöht. Dieser Wert liegt weit über der Einzelschußzerstörungsschwelle und erzeugt auf dem InSb ein Mikroplasma.

In der Abbildung 4.8 ist eine Aufnahme mit Hilfe eines Lichtmikroskopes des InSb-Kristalls zu sehen, und zeigt die erzeugten Krater. Zur Veranschaulichung der Größenverhältnisse ist die Kalibrierung mit eingezeichnet. Die Form der Krater zeigt eine eingefrorene Wellenstruktur mit einem Durchmesser von etwa $200 \mu\text{m}$, d.h. der InSb-Kristall ist an der Oberfläche geschmolzen und durch den Druck ist die Flüssigkeit nach außen gedrängt wurden. Das Profil des Pumpstrahles war zentralsymmetrisch. Die Tiefe der Krater reicht, je nach Energiedichte im Pumpstrahl, von 200 nm bis zu $10 \mu\text{m}$ werden (siehe Abbildung 4.9).

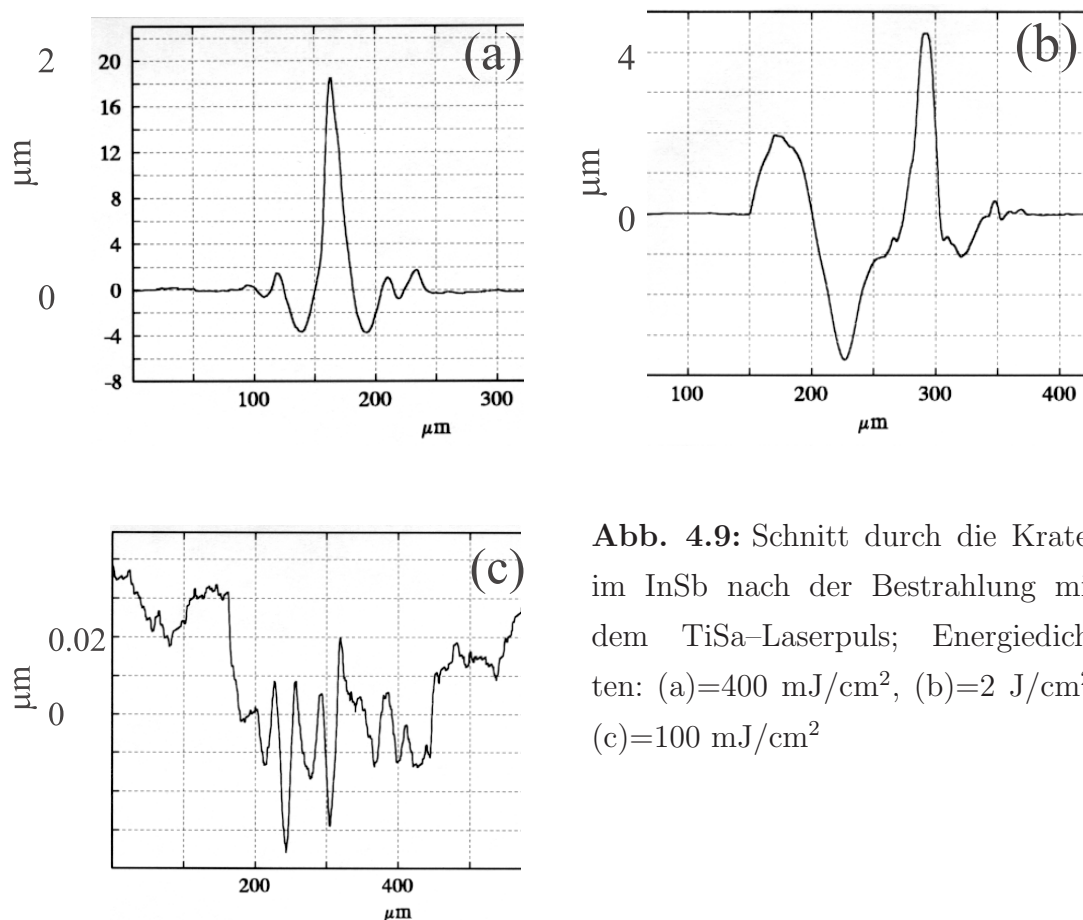


Abb. 4.9: Schnitt durch die Krater im InSb nach der Bestrahlung mit dem TiSa-Laserpuls; Energiedichten: (a)=400 mJ/cm², (b)=2 J/cm², (c)=100 mJ/cm²

Trotz dieser irreversiblen Bedingungen wurde genau wie in Kapitel 4.1.1 die Rockingkurve des InSb-Kristalls für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls aufgenommen. Das Ergebnis ist in der Abbildung 4.10 zu sehen und zeigt eine starke Kompression des Gitters unter der geschmolzenen Oberflächenschicht im Zeitbereich bis 50 ps (wie in der Arbeit von Sokolowski-Tinten et al. [74] für eine Germanium-Silizium-Kombination beobachtet) und danach keine messbare Rockingkurve. Dies bedeutet, dass auf der Kristalloberfläche keine regelmäßige Gitterstruktur mehr vorhanden ist.

Aufnahmen der bestrahlten InSb-Oberfläche mit einem Rasterelektronenmikroskop zeigen, dass das stöchiometrische Verhältnis zwischen Indium und Antimon von 1:1 auch in den Kratern erhalten bleibt und das keine Fremdstoffe eingelagert wurden.

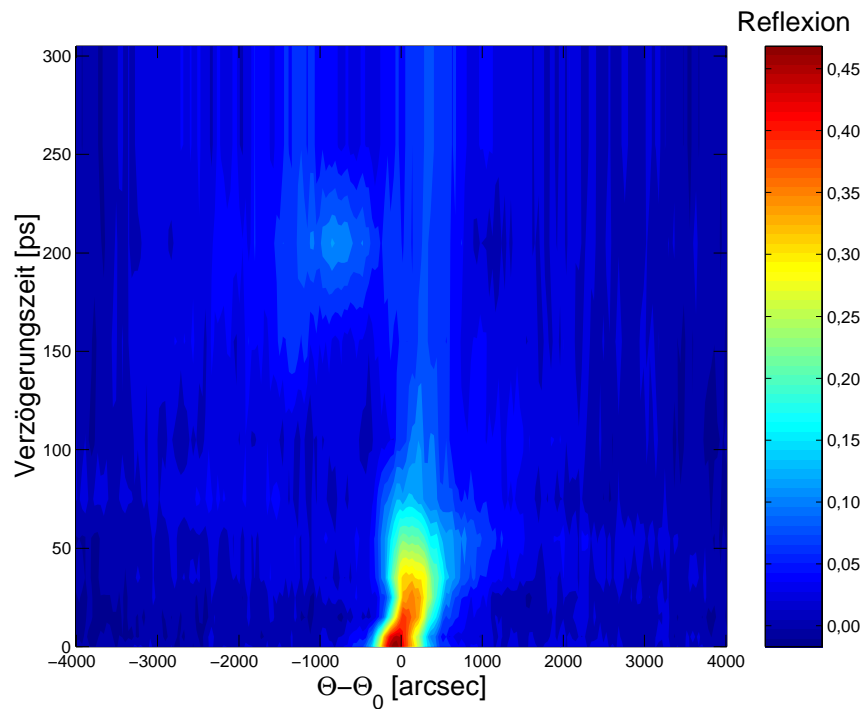


Abb. 4.10: Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 40 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si-K α Strahlung

4.2 Messungen an Germanium

In einem weiteren Experiment wurde das Verhalten von Germanium bei einer Bestrahlung mit einem 100 fs Laserimpuls der Energiedichte 10 mJ/cm^2 untersucht. Die bei dieser Energiedichte im Anregungspuls im Halbleiterkristall ausgelösten Prozesse sind alle vollständig reversibel. Als Röntgenstrahlung wurden Ti-K α -Pulse benutzt, die mit einem gebogenen Si(311)-Kristall von der Quelle auf die Probe abgebildet wurden. Das dabei verwendete Bandtargetsystem [73] hat es ermöglicht, 500 Röntgenpulse pro Verzögerungszeit aufzunehmen. Es wurde wieder das Verhalten des 111-Reflexes untersucht. Der sich aus der Gitterkonstante von $5,65645 \text{ \AA}$ ergebende Braggwinkel von $\Theta_B = 24,9^\circ$ ist nicht groß, und damit ist die Messung nicht empfindlich auf Änderungen des Gitters.

In der Abbildung 4.11 sind fünf gemessene Rockingkurven für Verzögerungszeiten

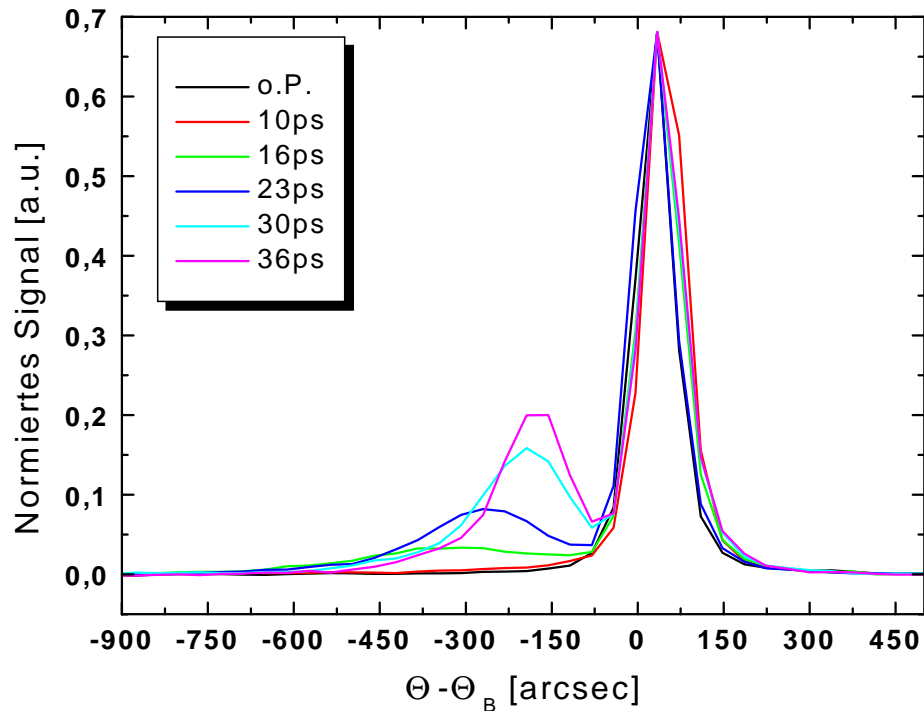


Abb. 4.11: Rockingkurven des Germanium für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; lineare Auftragung; Energiedichte im Pumpstrahl 10 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 500 Impulsen; Ti- $K\alpha$ Strahlung

zwischen 0 und 36 ps abgebildet. Auf der Seite der größeren Braggwinkel (Kompression) treten keine Veränderungen der Rockingkurve auf. Das Maximum der Reflexionskurve an der Position des originalen Braggwinkels bleibt für alle Verzögerungszeiten unverändert. Die Ursache dafür liegt in der großen Eindringtiefe der Ti- $K\alpha$ Strahlung in das Germanium. Auf der Seite der kleineren Braggwinkel (Expansion) ist für Verzögerungszeiten größer als 10 ps das Anwachsen eines zweiten Reflexes zu beobachten. Dieser wird für größere Verzögerungszeiten stärker und schiebt sich in das Hauptmaximum hinein. Für Verzögerungszeiten kleiner als 10 ps sind, bei einer linearen Auftragung, keine Änderungen sichtbar.

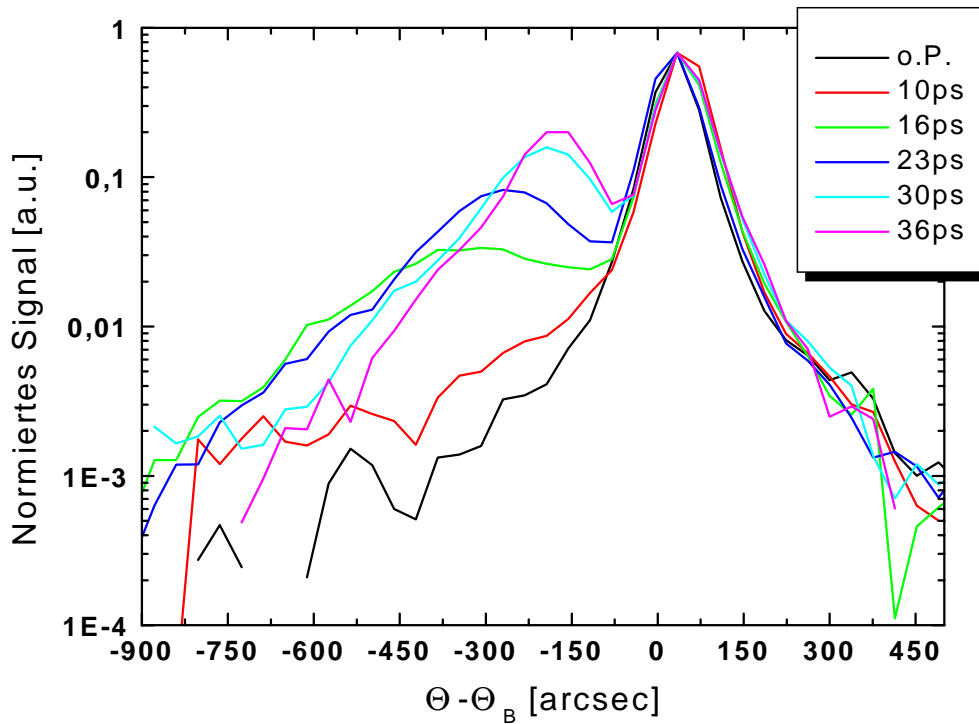


Abb. 4.12: Rockingkurven des Germanium für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; logarithmische Auftragung; Energiedichte im Pumpstrahl 10 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 500 Impulsen; Ti-K α Strahlung

Trägt man die gemessenen Rockingkurven dagegen logarithmisch auf (Abb. 4.12), sieht man, dass auch für eine Verzögerungszeit von 10 ps schon eine deutlich messbare Abweichung von der ungepumpton Rockingkurve vorliegt. Das Gitter ist expandiert. Diese erstmals beobachteten Änderungen im Ge-Gitter, auf einer Zeitskala von 10 ps, sind nur möglich, weil die Dynamik in diesem Experiment mit $3 \cdot 10^4$ einzigartig ist.

4.3 Zusammenfassung der Messungen

In diesem Kapitel konnte mit verschiedenen Messungen gezeigt werden, dass es möglich ist, mit einer Subpikosekunden Zeitauflösung das Verhalten des Atomgitters von Kristallen zu untersuchen. Mit der Wahl der Energiedichte des Pumpulses kann man dabei anfangen von der leichten Anregung von optischen und akustischen Phononen, über die Anregung von Stoßwellen bis hin zur Zerstörung der Kristallstruktur alle physikalischen Effekte untersuchen. Die Untersuchungen beschränken sich derzeit auf die Halbleiterkristalle InSb, Ge [74] und GaAs [13] sowie auf eine Messung an Langmuir–Blodgett–Filmen [82], weil die verfügbaren Photonenflüsse noch zu gering sind. Für den mit einem Femtosekundenlaserplasma erzeugten zeitlich gemittelten Photonenfluß kann durch den Einsatz von hochrepetierenden Lasersystemen mit 1 kHz [83, 84] oder bis zu 2 kHz Repetitionsrate [85, 86] eine Verbesserung um bis zu einen Faktor 100 erreicht werden.

Kapitel 5

Simulation der Stoßwellen

In diesem Kapitel sollen verschiedene Modelle der Absorption der Laserenergie in dem InSb–Kristall und die Ausbreitung der sich ausbildenden Stoßwellen untersucht werden. Dabei werden nur Laserfluenzen auf dem Probekristall betrachtet, die zu **keiner** irreversiblen Veränderung des InSb–Kristalls führen. In dem ersten Abschnitt wird der bisher in allen Arbeiten benutzte Ansatz von Thomsen [87] verwendet. Der zweite Abschnitt behandelt das Zweitemperaturmodell als eine Möglichkeit der Absorption der Laserenergie. Dabei unterscheidet man zwischen einer Temperatur der Elektronen und einer Temperatur des Gitters. Im dritten Abschnitt wird versucht, den Prozeß der Absorption der Laserenergie und der Erwärmung des Gitters mit Hilfe von Ratengleichungen für die Konzentration der Elektronen und Löcher im Halbleiter zu beschreiben.

5.1 Thomsenmodell

In diesem Abschnitt werden zunächst die Ausführungen der Veröffentlichung von Thomsen [87] diskutiert. Danach folgen einige Sätze zur numerischen Umsetzung der Stoßwellenausbreitung als Grundlage für die Berechnung der Röntgenbeugungssignale von InSb. Die mit diesem Modell gewonnenen numerischen Ergebnisse werden mit den gemessenen Kurven (Kapitel 4.1.1) verglichen.

Das angenommene Modell ist das folgende: Ein kurzer Laserimpuls ($\tau_{Laser} < 1$ ps) der Energie Q ist auf die freie Oberfläche eines Filmes der Dicke d fokussiert. Man nimmt an, dass die Absorptionslänge ζ des Lichtes viel kleiner ist als die Filmdicke d . Die lineare Ausdehnung der bestrahlten Fläche A ist groß verglichen mit den Dimen-

sionen von ζ und d . Deshalb kann man alle Gleichungen eindimensional (senkrecht zur freien Oberfläche) betrachten. Die im Film deponierte Energie pro Volumen und Tiefe z ist

$$W(z) = (1 - R_{Laser}) \frac{Q}{A\zeta} e^{-\frac{z}{\zeta}} \quad (5.1)$$

Hierbei bedeutet R_{Laser} das Reflexionsvermögen. Dieser Energieeintrag führt zu einer Temperaturerhöhung

$$\Delta T_l(z) = \frac{W(z)}{C_l} = (1 - R_{Laser}) \frac{Q}{AC_l\zeta} e^{-\frac{z}{\zeta}} \quad (5.2)$$

Diese führt wiederum zu einer isotropen thermischen Spannung, die durch

$$-3B\beta\Delta T_l(z) \quad (5.3)$$

gegeben ist. Dabei bedeutet B den Kompressionsmodul und β ist der lineare Ausdehnungskoeffizient. Da die Spannung nur von z abhängt, ist die einzige nicht verschwindende Komponente des elastischen Deformations-Tensors η_{33} . Deshalb hat man die Elastizitätsgleichung in der Form:

$$\sigma_{33}(z, t) = 3 \frac{1 - \nu}{1 + \nu} B \frac{\partial u_{33}(z, t)}{\partial z} - 3B\beta\Delta T_l(z) \quad (5.4)$$

$$\rho \frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{33}(z, t)}{\partial z} \quad (5.5)$$

$$\eta_{33}(z, t) = \frac{\partial u_{33}(z, t)}{\partial z} \quad (5.6)$$

zu lösen. Dabei bedeutet ν die Poisson-Zahl, u_{33} ist die Verschiebung und ρ ist die Dichte. Setzt man alles in die Ausgangsgleichung (Gl. 5.4) ein, ergibt sich:

$$\rho \frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial t^2} = 3 \frac{1 - \nu}{1 + \nu} B \frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial z^2} - 3B\beta \frac{\partial(\Delta T_l(z))}{\partial z} \quad (5.7)$$

Benutzt man zusätzlich für die Schallgeschwindigkeit v den Zusammenhang

$$v^2 = 3 \frac{1 - \nu}{1 + \nu} \frac{B}{\rho} \quad (5.8)$$

erhält man:

$$\frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial t^2} - v^2 \frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial z^2} = v^2 \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \frac{\beta}{\zeta} \Delta T_l(z) \quad (5.9)$$

Diese inhomogene partielle Differentialgleichung muß gelöst werden. Als Anfangsbedingung wählt man keine Deformation im betrachteten Gebiet und als Randbedingung keine Spannung an der freien Oberfläche bei $z = 0$.

Als Lösung ergibt sich für die Verschiebung:

$$u_{33}(z, t) = (1 - R_{Laser}) \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \frac{Q\beta}{AC_l} \left[\frac{1}{2} e^{-|z-vt|/\zeta} - e^{-\frac{z}{\zeta}} \left(1 - \frac{1}{2} e^{-\frac{vt}{\zeta}} \right) \right] \quad (5.10)$$

Nimmt man diese Lösung und errechnet daraus die Gitterdeformation, ergibt sich:

$$\eta_{33}(z, t) = (1 - R_{Laser}) \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \frac{Q\beta}{A\zeta C_l} \left[e^{-\frac{z}{\zeta}} \left(1 - \frac{1}{2} e^{-\frac{vt}{\zeta}} \right) - \frac{1}{2} e^{-|z-vt|/\zeta} \operatorname{sgn}(z - vt) \right] \quad (5.11)$$

Für die Berechnung des Röntgenbeugungssignales ist die Gitterdeformation (engl.: Strain) $\eta_{33}(z, t) = \frac{\partial u_{33}(z, t)}{\partial z}$ notwendig.

Die numerische Lösung der partiellen Differentialgleichung 5.9 erfolgte in MATLAB mit der Programmbibliothek FEMLAB. Dieser Schritt wurde durchgeführt, da man damit die Funktionsfähigkeit des entwickelten Programmes durch einen Vergleich mit der analytischen Lösung testen kann. Dabei wurde wie folgt vorgegangen:

1. Definition des Gebietes

Es wird ein eindimensionales Gebiet definiert, dessen Tiefe i.a. mit $5 \mu\text{m}$ festgelegt ist. Diese Begrenzung ergibt sich aus der maximalen Eindringtiefe einer Stoßwelle bei einer Beobachtungszeit von mehreren hundert Pikosekunden. Bei der Verwendung von 1001 Stützstellen, ergibt sich ein Abstand von 5 nm zwischen benachbarten Stützstellen. Dieser Stützstellenabstand ist ausreichend, um alle (auch kleine) Änderungen der Gitterdeformation aufzulösen. Außerdem muß die Zeitliste festgelegt werden. In der Regel wird mit 50 Zeitschritten gearbeitet und einem Abstand von 1 ps. Die zeitliche Schrittweite ergibt sich aus der erwarteten Röntgenpulsdauer von kleiner 1 ps und den zu erwartenden signifikanten Änderungen in den Meßsignalen. Die Wahl der räumlichen bzw. zeitlichen Schrittweite bestimmt in einem großen Maße die benötigte Rechenzeit.

2. Bestimmung der Koeffizienten der DGL

Der Vergleich der DGL 5.9 mit der Wellengleichung in FEMLAB

$$d_a \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - \nabla(c \nabla u) = f \quad (5.12)$$

liefert:

$$d_a = 1; c = v^2; f = v^2 \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \frac{\beta}{\zeta} \Delta T_l \quad (5.13)$$

3. Bestimmung der Anfangsbedingungen

Die Anfangsbedingung lautet: keine Deformation im betrachteten Gebiet. Dies hat automatisch zur Folge, dass auch die Verschiebung im gesamten Gebiet Null sein muß.

4. Bestimmung der Randbedingungen

Das Ende des Gebietes im Inneren wird nicht festgelegt. Das Ende an der freien Oberfläche bei $z = 0$ muß definiert werden. Man kann Randbedingungen nach

(a) Dirichlet $hu = r$ auf $\partial\Omega$ und

(b) Neumann $n(c\nabla u + \alpha u - \gamma) + qu = g$ auf $\partial\Omega$

definieren. Im vorliegenden Fall lautet die Randbedingung: keine Spannung an der freien Oberfläche, d.h. $\sigma_{33} = 0$. Man hat also Randbedingungen nach Neumann (Definition σ_{33} siehe Gleichung 5.4). Für die Konstanten ergibt sich:

$$c = v^2; \alpha = 0; \gamma = 0; q = 0; g = v^2 \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \beta \Delta T_l(z) \quad (5.14)$$

5. Allgemeine Angaben

Alle Konstanten werden so eingegeben, dass mit den Einheiten μm und ps gearbeitet werden kann. Deshalb ergibt sich für jeden Summanden als Einheit $\frac{\text{kg}}{\mu\text{m}^2\text{ps}^2}$. In der Tabelle 5.1 sind die in der Simulation verwendeten Konstanten zusammengefasst.

Konstante	Bedeutung	Wert
ν	Poissonzahl	0,3
C_l	Wärmekapazität	$8,316 \cdot 10^5 \text{ J}/(\text{m}^3\text{K})$
β	Längenausdehnungskoeff.	$4,7 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$
v	Schallgeschwindigkeit	3880 m/s
Q/A	Energiedichte	$45 \text{ mJ}/\text{cm}^2$
R_{Laser}	Reflexionsvermögen	0,41
ζ	Absorptionstiefe	$163 \cdot 10^{-9} \text{ m}$

Tab. 5.1: Zusammenfassung der verwendeten Konstanten

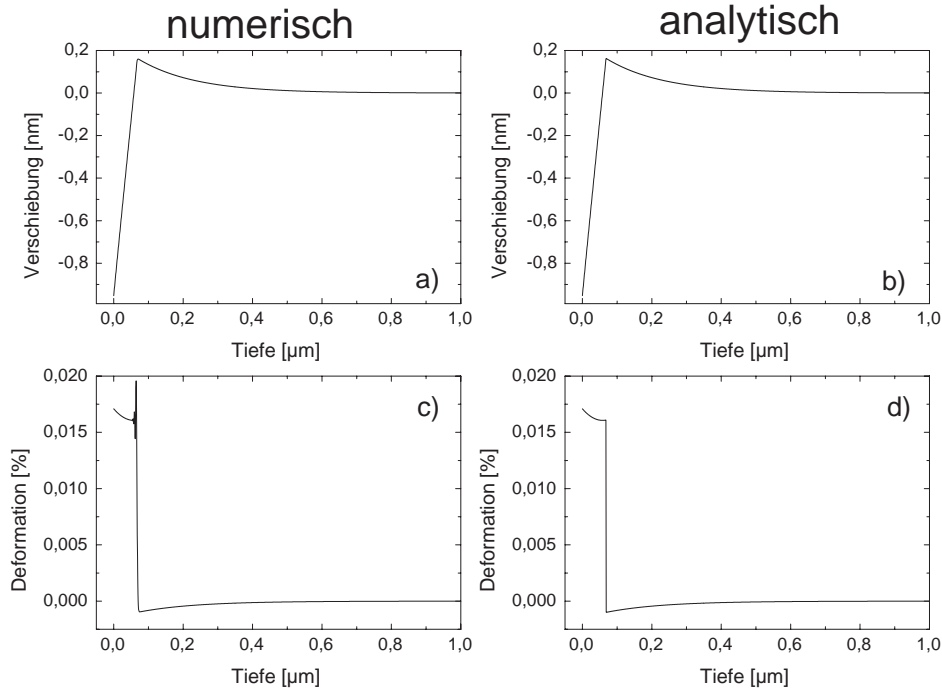


Abb. 5.1: Vergleich zwischen der numerischen [a) und c)] und der analytischen [b) und d)] Lösung des Thomsenmodells, Energiedichte im Pumpstrahl: 5 mJ/cm^2 , Verzögerungszeit: $t=20 \text{ ps}$

Die in der Simulation verwendeten Energiedichten entsprechen den im Experiment (gemessenen) eingestrahlteten Werten. In der Abbildung 5.1 ist ein Vergleich zwischen der analytischen und der numerischen Lösung sowohl für die Verschiebung als auch für die Deformation zu sehen. Die entsprechenden Kurven stimmen überein. Lediglich in der numerischen Berechnung der Deformation tritt eine im Bereich des Sprunges der Kurve eine Abweichung auf. Diese wird durch das numerische Differenzieren der Amplitude des Gitters verursacht und hat keine physikalische Bedeutung. In der Abbildung 5.1 tritt aber auch das Problem dieses Modells deutlich zu Tage. Aufgrund der deltaförmigen Anregung des Gitters durch den Laser, gibt es in der Lösung für die Amplitude der Gitterauslenkung eine Unstetigkeitsstelle (Gl. 5.10). Diese äußert sich in der Kurve der Verspannung als eine Sprungstelle. Die Abbildungen 5.2 und 5.3 zeigen den Verlauf der Deformation im Gitter, wie er

für die Berechnung des Röntgenbeugungssignales benötigt wird. Die sich mit Schallgeschwindigkeit in den Halbleiter ausbreitende Stoßwelle ist deutlich zu erkennen. Der rote Bereich entspricht einer Expansion (Deformation >0), der dunkelblaue Bereich einer Kompression (Deformation <0) des Gitters. In dem hellblauen Bereich hat keine Veränderung des Gitters stattgefunden.

Als eine weitere Möglichkeit die Richtigkeit des Modells zu prüfen, kann man die Gittertemperatur verwenden. In der Abbildung 5.4 ist der Verlauf der Gittertemperatur im Kristall für verschiedene eingestrahelte Energiedichten zu sehen. Die Schmelztemperatur von 803°K [60] wird bereits bei einer eingestrahelten Energiedichte von 12 mJ/cm² erreicht. Für höhere Energiedichten findet ein Phasenübergang statt. Der Vorgang des Schmelzens ist aber in der Theorie nach Thomsen nicht enthalten. Es wird von einer vollkommen elastischen Verformung im InSb-Kristall ausgegangen.

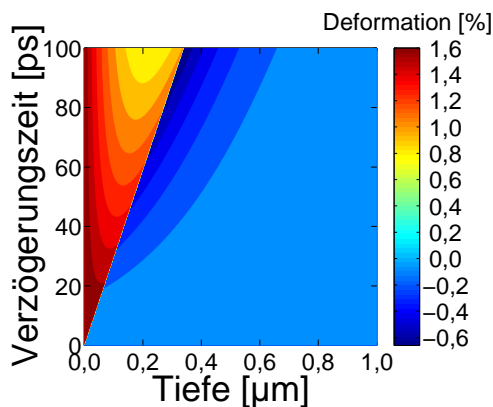


Abb. 5.2: Verlauf der Deformation im Gitter nach Thomsen im Zeitintervall von 0 bis 100 ps, Energiedichte im Pumpstrahl: 45 mJ/cm²

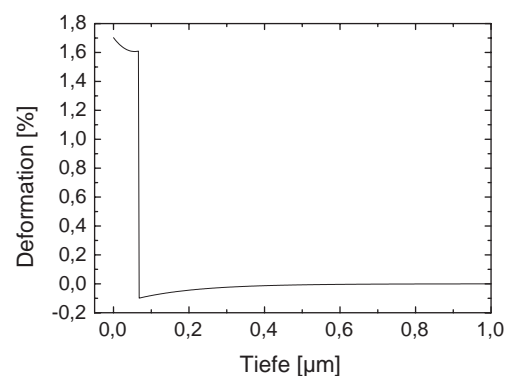


Abb. 5.3: Verlauf der Deformation im Gitter für $t=20$ ps, Energiedichte im Pumpstrahl: 45 mJ/cm²

Nachdem man die Deformation im Gitter nach dem Modell von Thomsen als Funktion der Kristalltiefe und der Verzögerungszeit ausgerechnet hat, kann man das Röntgenbeugungssignal des InSb-Kristalls mit der dynamischen Beugungstheorie [32] berechnen.

In der Abbildung 5.5 sind die gemessenen Rockingkurven zu sehen (Experimentelle Bedingungen siehe Kapitel 4.1.1). Die Abnahme des integralen Reflexionsvermögens

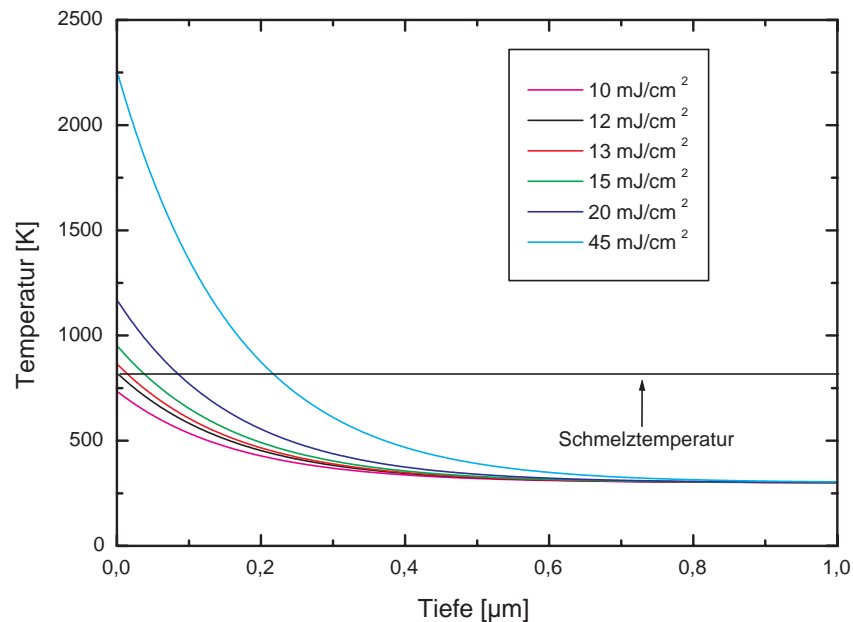


Abb. 5.4: Temperaturverlauf des InSb für verschiedene eingestrahlte Energiedichten. Die horizontale Linie kennzeichnet die Schmelztemperatur. Die normale Gittertemperatur beträgt 300°K ; Zeit $t=0$ ps

des Kristalls für alle Zeiten größer Null ist deutlich zu erkennen. Desweiteren ist eine Verschiebung des Maximums der Kurven zu größeren Bragg-Winkeln (Kompression des Gitters) für Zeiten >20 ps zu erkennen. Die gerechneten Rockingkurven (Abbildung 5.6) zeigen Übereinstimmung für lange Zeiten, $\Delta t \geq 33$ ps. Sowohl in der Amplitude als auch in der Halbwertsbreite ist kein Unterschied zwischen den jeweiligen Kurven zu sehen. Die gerechnete Kurve für $t=20$ ps zeigt jedoch eine Verschiebung des Maximums. Dieser Effekt ist bei der gemessenen Kurve nicht zu beobachten. Die Erklärung für diese Abweichung liegt im Thomsenmodell begründet, da die Energie im Modell **sofort** und **vollständig** im Gitter absorbiert wird.

Damit die Simulation gut mit der Messung übereinstimmt, kann man 2 Parameter variieren:

1. Die Energiedichte des Pumpstrahles. Diese bestimmt sowohl die Abnahme des

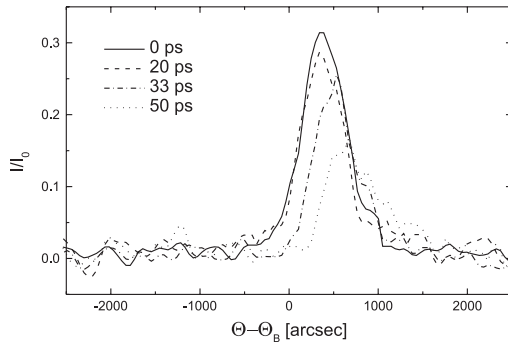


Abb. 5.5: Gemessene zeitabhängige Rockingkurven für InSb(111) mit Si-K α Strahlung

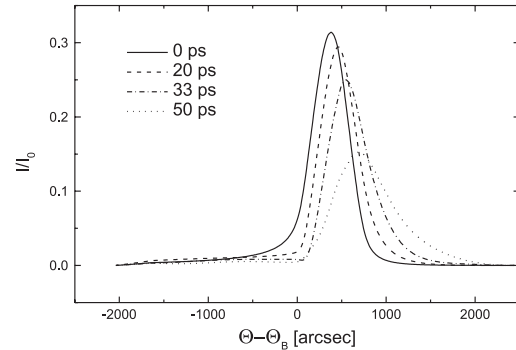


Abb. 5.6: Gerechnete zeitabhängige Rockingkurven für InSb(111) nach dem Modell von Thomsen

Reflexionsvermögens des untersuchten Kristalls, als auch die Verschiebung des Maximums der Rockingkurve bzw. die Stärke der Ausläufer. Die beste Übereinstimmung zwischen den gemessenen und den gerechneten Kurven ergibt sich für eine Energiedichte von 45 mJ/cm^2 . Diese liegt einen Faktor 2 unter den im Experiment benutzten Werten.

2. Die Breite der Apparatefunktion. Diese bestimmt die Verbreiterung der gemessenen Kurven aufgrund der ausgedehnten Röntgenquelle (nicht idealer Punktfokus). In der Simulation wurde eine Kastenfunktion der Breite 300 arcsec verwendet.

Zusammenfassung des Abschnittes

1. Das Thomsenmodell ist der einfachste Ansatz zur Berechnung der Deformation im Gitter.
2. Es wird angenommen, dass die absorbierte Laserenergie völlig im Gitter deponiert wird, wobei die Laserpulsdauer $\tau_{\text{Laser}} < 1 \text{ ps}$ ist und damit klein gegen die untersuchten Zeiten.
3. Die zur Simulation verwendete Energiedichte des Pumplaserpulses (liefert die besten Ergebnisse) von 45 mJ/cm^2 ist um einen Faktor 2 kleiner als die im Experiment bestimmte Energiedichte von 90 mJ/cm^2 .

4. Die sich aus den Parametern ergebende Gittertemperatur liegt mit 2250°K an der Oberfläche des Kristalls weit oberhalb der Schmelztemperatur von 803°K, d.h. die obersten Kristallschichten sind geschmolzen.
5. Die Röntgenbeugungssignale des InSb–Kristalls werden prinzipiell richtig wiedergegeben, jedoch ist für Zeiten $t < 20$ ps schon eine Verschiebung der gerechneten Rockingkurve zu größeren Braggwinkeln zu beobachten. Die Messung zeigt keine solche Verschiebung (siehe Abbildung 5.5 bzw. 5.6).
6. Wärmediffusionsprozesse haben auf der Zeitskala bis 100 ps keinen Einfluß.

5.2 Zweitemperaturmodell

Ein weiterer Ansatz zur Berechnung der Gittertemperatur ist das Zweitemperaturmodell (engl.: two-temperature-model, TTM)[88]. Dieses ist für Metalle etabliert und unterscheidet zwischen einer Elektronen- (T_e) und einer Gittertemperatur (T_l) und geht für den Fall, dass die Elektronen- und die Gittertemperatur gleich gesetzt werden, wieder in das Thomsenmodell über. Der in dem Experiment verwendete InSb–Kristall ist zwar ein Halbleiter, aber die Energiedifferenz der Bandlücke von 0,18 eV [60] ist so gering, dass die durch die Bestrahlung des Kristalles mit Licht hervorgerufene Änderung der Bänderstruktur so groß ist, dass das Valenz- und das Leitungsband überlappen. Damit hat man die gleichen Verhältnisse wie in Metallen. Dem Zweitemperaturmodell liegt eine Fermi–Dirac–Gleichgewichtsverteilung der Elektronen und eine Bose–Einstein–Verteilung der Gitterschwingungen zugrunde. Mit den Gleichungen des Zweitemperaturmodelles kann man die zeitliche und räumliche Entwicklung der Elektronen- und der Gittertemperatur berechnen. Sie haben die folgende Gestalt (Erklärung der Größen in der Tabelle 5.2):

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(K_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - G \cdot (T_e - T_l) + S(z, t) \quad (5.15)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = G \cdot (T_e - T_l) \quad (5.16)$$

Die Wärmekapazität des Elektronengases ist nach der Theorie der Fermiflüssigkeiten gegeben durch [89]:

$$C_e(T_e) = \gamma \cdot T_e = \frac{\pi^2 \cdot n_e \cdot k_B^2 \cdot T_e}{2 \cdot E_F} \left[1 + \mathcal{O} \left(\frac{k_B T_e}{E_F} \right)^2 \right] \quad (5.17)$$

Die Wärmekapazität des Gitters dagegen kann für Temperaturen größer als die Debye-Temperatur ($T_l > \Theta_D$; $\Theta_D(\text{InSb})=202^\circ\text{K}$ [60]) als konstant angenommen werden. Außerdem ist die Wärmeleitfähigkeit der Elektronen gegeben durch: $K_e = \kappa_0 \cdot T_e/T_l$ [90]. Die Wärmeleitfähigkeit des Gitters ist verglichen mit der Wärmeleitfähigkeit der Elektronen vernachlässigbar. Der Quellterm ist gegeben durch

$$S(z, t) = \frac{F_{\text{Laser}}(1 - R_{\text{Laser}})}{\sqrt{2\pi\tau_{\text{Laser}}\zeta}} \cdot \exp\left\{-\frac{z}{\zeta} - \frac{1}{2}\left(\frac{t}{\tau_{\text{Laser}}}\right)^2\right\} \quad (5.18)$$

Der Energietransfer von den Elektronen zum Gitter kann für thermische Verteilungen der Elektronen und Phononen sowie der Bedingung $T_l \geq \Theta_D$ geschrieben werden als $G \cdot (T_e - T_l)$. Die Größe des Kopplungstermes bestimmt im Wesentlichen die Zeit die vergeht, bis die Energie an das Gitter übertragen ist.

Wie erfolgte die numerische Umsetzung?

1. Definition des Gebietes

Es werden die gleichen Einstellungen wie beim Thomsenmodell benutzt.

2. Definition der Anwendungen

Da sowohl das System der gekoppelten partiellen Differentialgleichungen für die Bestimmung der Gittertemperatur, als auch die Ausbreitung der Stoßwelle (Gl. 5.9) simultan gelöst werden müssen, gibt es 2 Anwendungen.

3. Bestimmung der Anfangsbedingungen

Die Anfangsbedingungen für die Ausbreitung der Stoßwelle sind analog zum Thomsenmodell. Die Anfangsbedingung für die Berechnung der Gittertemperatur lauten: $T_e = T_l = 300^\circ\text{K}$ – Raumtemperatur.

4. Bestimmung der Randbedingungen

Die Randbedingungen für die Ausbreitung der Stoßwelle sind analog zum Thomsenmodell.

Die in der Simulation verwendeten Konstanten sind in der Tabelle 5.2 zusammengefasst.

Konstante	Bedeutung	InSb	Quelle
γ	Wärmekapa. der Elektronen	$1,3 \cdot 10^{-3} \text{ J}/(\text{m}^3\text{K}^2)$	[90]
C_l	Wärmekapa. des Gitters	$8,316 \cdot 10^5 \text{ J}/(\text{m}^3\text{K})$	[60]
G	El.-Ph.-Kopplungspara.	$4,3351 \cdot 10^{15} \text{ W}/(\text{m}^3\text{K})$	[90]
κ_0	Wärmeleitfähigkeit	$16 \text{ W}/(\text{m K})$	[60]
F_{Laser}	Energiedichte	$90 \text{ mJ}/\text{cm}^2$	Messung
R_{Laser}	Reflexionsvermögen	0,41	[60]
ζ	Absorptionstiefe	$163 \cdot 10^{-9} \text{ m}$	[60]
τ_{Laser}	Laserpulsdauer	100 fs	Messung
d	Kristalldicke	$10 \mu\text{m}$	Messung

Tab. 5.2: Zusammenfassung der verwendeten Konstanten in der TTM-Rechnung

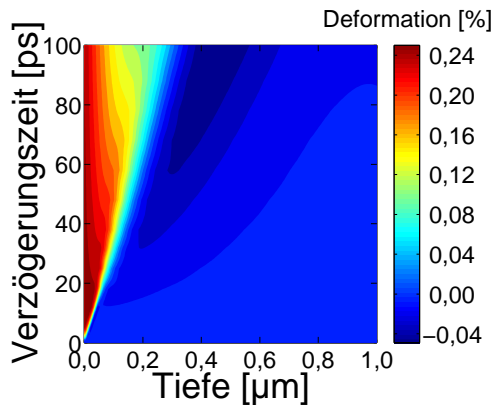


Abb. 5.7: Verlauf der Deformation im Gitter mit dem TTM im Zeitintervall von 0 bis 100 ps, Energiedichte im Pumpstrahl: $60 \text{ mJ}/\text{cm}^2$

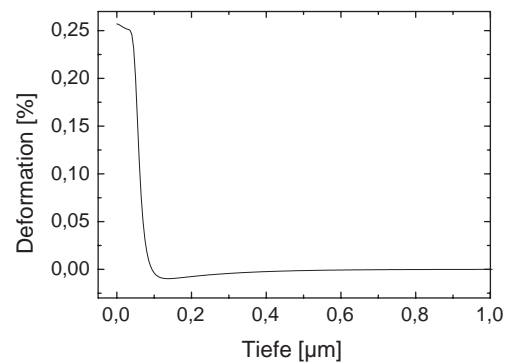


Abb. 5.8: Verlauf der Deformation im Gitter für $t=20 \text{ ps}$; TTM-Rechnung; Energiedichte im Pumpstrahl: $60 \text{ mJ}/\text{cm}^2$

In den Abbildungen 5.7 und 5.8 ist der Verlauf der Deformation im Gitter zu sehen. Im Gegensatz zur Abbildung 5.3 ist in der Abbildung 5.8 kein Sprung zu sehen. Der prinzipielle Kurvenverlauf ist aber ähnlich.

Als weitere Kontrolle ist in der Abbildung 5.9 der Verlauf der Gittertemperatur an der freien Oberfläche zu sehen. Die Elektronen-Phononen-Kopplungszeit von 10 ps ist gut zu erkennen. Die Gittertemperatur erreicht nach 11 ps den Wert von 800°K

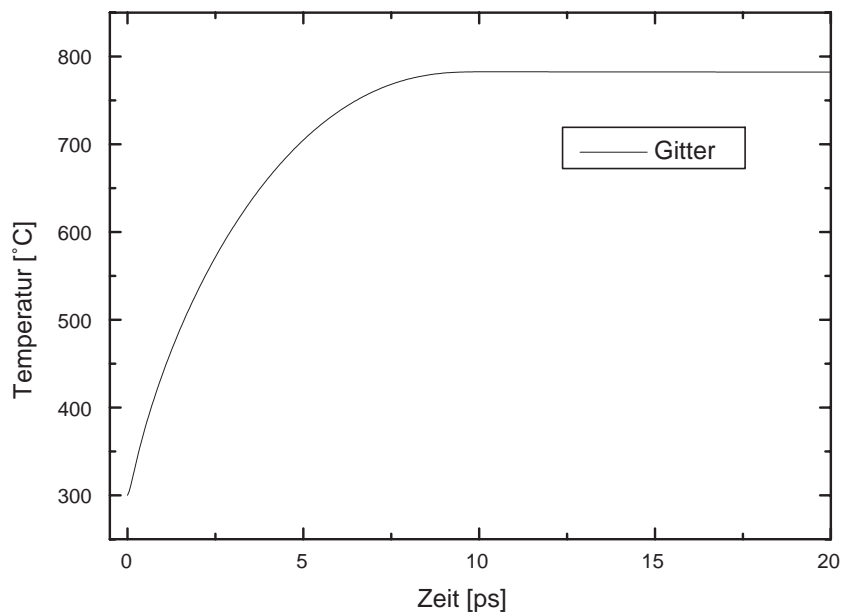


Abb. 5.9: Temperaturverlauf des Gitters an der freien Oberfläche als Funktion der Zeit nach dem Eintreffen des Pumpulses; Energiedichte im Pumpstrahl: 90 mJ/cm^2

und bleibt danach zunächst konstant. Die Gittertemperatur bleibt damit knapp unter der Schmelztemperatur von 803°K . Ein typisches Ergebnis der Simulationen ist in der Abbildung 5.10 zu sehen und zeigt den Vergleich zwischen den gemessenen und den mit dem TTM-Modell berechneten Rockingkurven für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen dem Pumpuls und dem Röntgenpuls. Man kann eine sehr gute Übereinstimmung für alle Verzögerungszeiten feststellen.

5.3 Mikroskopisches Modell

Als drittes Modell wurde hier eine Weiterentwicklung des Modells von Lietoila und Gibbons [91, 92] verwendet. Es enthält solche Prozesse wie Auger-Rekombination, die Emission longitudinal optischer Phononen, die Erzeugung akustischer Phononen,

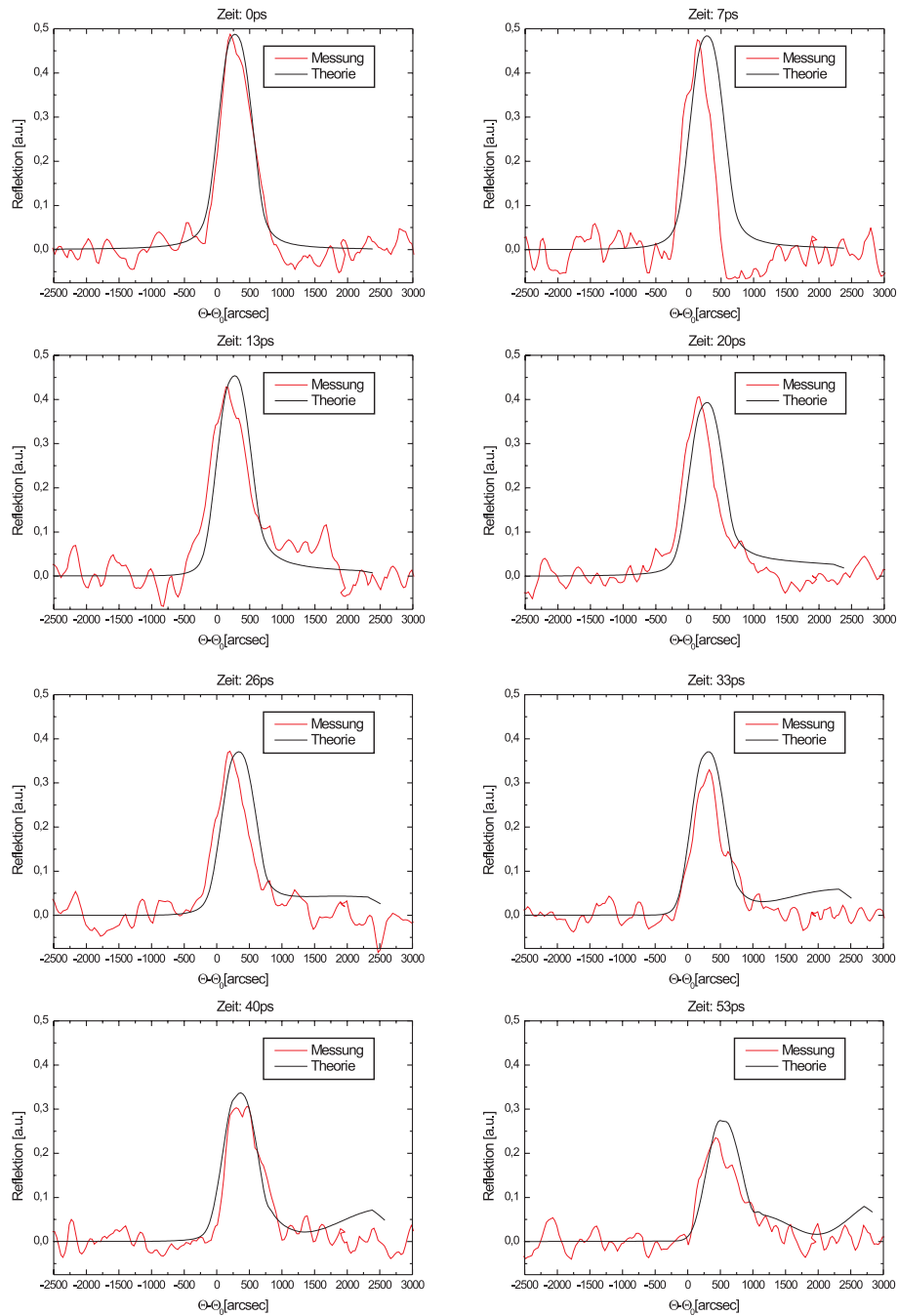


Abb. 5.10: Vergleich zwischen gemessenen und mit dem TTM-Modell gerechneten Rockingkurven; Parameter für die Simulation siehe Tabelle 5.2

die Phononenausbreitung im Halbleiter und die Ausdehnung des Gitters als Folge der Temperaturerhöhung. Dem vollkommen thermischen Modell liegen die folgenden Annahmen zu Grunde:

1. Die Konzentration der Elektronen und Löcher ist gleich. Die Diffusion der Ladungsträger ist charakterisiert durch den ambipolaren Diffusionskoeffizient.
2. Die angeregten Ladungsträger befinden sich instantan in einer Gleichgewichtsverteilung, deren Temperatur durch T_e charakterisiert wird (gleich für Elektronen und Löcher).
3. Gilt für die Gittertemperatur $T_l < T_e$, wird der Transfer der Energie der Ladungsträger an das Gitter durch eine Relaxationszeit τ_{el-ph} charakterisiert.
4. Der dominante Rekombinationsprozeß ist Auger-Rekombination, wobei die Energiedifferenz der Bandlücke auf einen freien Ladungsträger übertragen wird.
5. Das Problem ist wie die vorhergehenden Modelle eindimensional.

Mit diesen Annahmen ergibt sich das folgende Gleichungssystem für die Ladungsträgerkonzentration N , die Energiedichte der Ladungsträger $E_{carrier}$, die Energiedichte der longitudinalen optischen Phononen E_{LO} und die Gittertemperatur T_l .

$$\frac{\partial N}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial z} \left(D_a \frac{\partial N}{\partial z} \right) = S(z, t) - C_a N(N - N_0) \quad (5.19)$$

$$\frac{\partial E_{carrier}}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{E_{carrier}}{N} D_a \frac{\partial N}{\partial z} \right) = E_{Laser} S(z, t) + E_{gap} C_a N(N - N_0) - \frac{E_{carrier} - 3Nk_b T_l}{\tau_{el-ph}} \quad (5.20)$$

$$\frac{\partial E_{LO}}{\partial t} = \frac{E_{carrier} - 3Nk_b T_l}{\tau_{el-ph}} - \frac{E_{LO}}{\tau_{ph-ph}} \quad (5.21)$$

$$\frac{\partial T_l}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\kappa_l}{C_l} \frac{\partial T_l}{\partial z} \right) = \frac{1}{C_l} \frac{E_{LO}}{\tau_{ph-ph}} \quad (5.22)$$

Die Elektronentemperatur ergibt sich über den Zusammenhang

$$E_{carrier} = 2 \left(\frac{3}{2} N k_b T_e \right) \quad (5.23)$$

Der Faktor 2 vor der Ladungsträgerkonzentration kommt daher, dass die Elektronen und die Löcher gleichbehandelt werden.

Der Quellterm ist gegeben durch

$$S(z, t) = \frac{F_{Laser}(1 - R_{Laser})}{\sqrt{2\pi}\tau_{Laser}\zeta E_{Laser}} \cdot \exp \left\{ -\frac{z}{\zeta} - \frac{1}{2} \left(\frac{t}{\tau_{Laser}} \right)^2 \right\} \quad (5.24)$$

In der Abbildung 5.11 wird der Prozeß der Energieabsorption im Halbleiter noch einmal schematisch dargestellt. Der Prozeß erfolgt in den folgenden Schritten:

1. direkte (Einphotonen) Anregung der Elektronen in das Leitungsband und zusätzliches Aufheizen des Elektronengases durch Absorption der freien Ladungsträger.
2. Thermalisierung des Elektronenplasmas in eine Fermi-Verteilung im Leitungsband auf einer Zeitskala von 10 - 100 fs.
3. Transfer der Energie zu nichtthermischen Phononen [zunächst longitudinal optische (LO) Phononen und dann longitudinal akustische (LA) Phononen] über Elektronen-Phononen-Stöße auf einer Zeitskala von einigen Pikosekunden.
4. Thermalisierung der Phononen-Verteilung [gleichbedeutend mit einer Erhöhung der Gittertemperatur des Halbleiters] und eventuelles Schmelzen des Materials.

Wie kann man von diesen Größen auf die Deformation des Gitters schließen? Die in Kapitel 5.1 gemachten Ausführungen zur Erwärmung eines Gitters sind nicht zwingend gültig. In einem allgemein gültigeren Fall muß man berücksichtigen, dass der einfallende Lichtpuls zu einer Veränderung der Elektronen $\delta n_e(k)$ und Phononenverteilung $\delta n_p(k)$ führt. Diese Änderungen erzeugen eine Spannung, die nach [94] durch

$$\sigma_{ij} = \sum_k \delta n_e(k) \frac{\partial E_k}{\partial \eta_{ij}} + \sum_k \delta n_p(k) \hbar \frac{\partial \omega_k}{\partial \eta_{ij}} \quad (5.25)$$

gegeben ist. Dabei bedeutet E_k die Energie eines Elektrons und ω_k die Frequenz eines Phonons mit einem Wellenvektor k . Der erste Term in Gleichung 5.25 ist der elektronische Beitrag zur Deformation des Gitters, der mit dem Deformationspotential $\frac{\partial E_k}{\partial \eta_{ii}}$ verbunden ist. Sind die Elektronen und Phononen im lokalen thermischen Gleichgewicht, reduziert sich die Gleichung 5.25 zu dem früheren Ergebnis 5.3 [94].

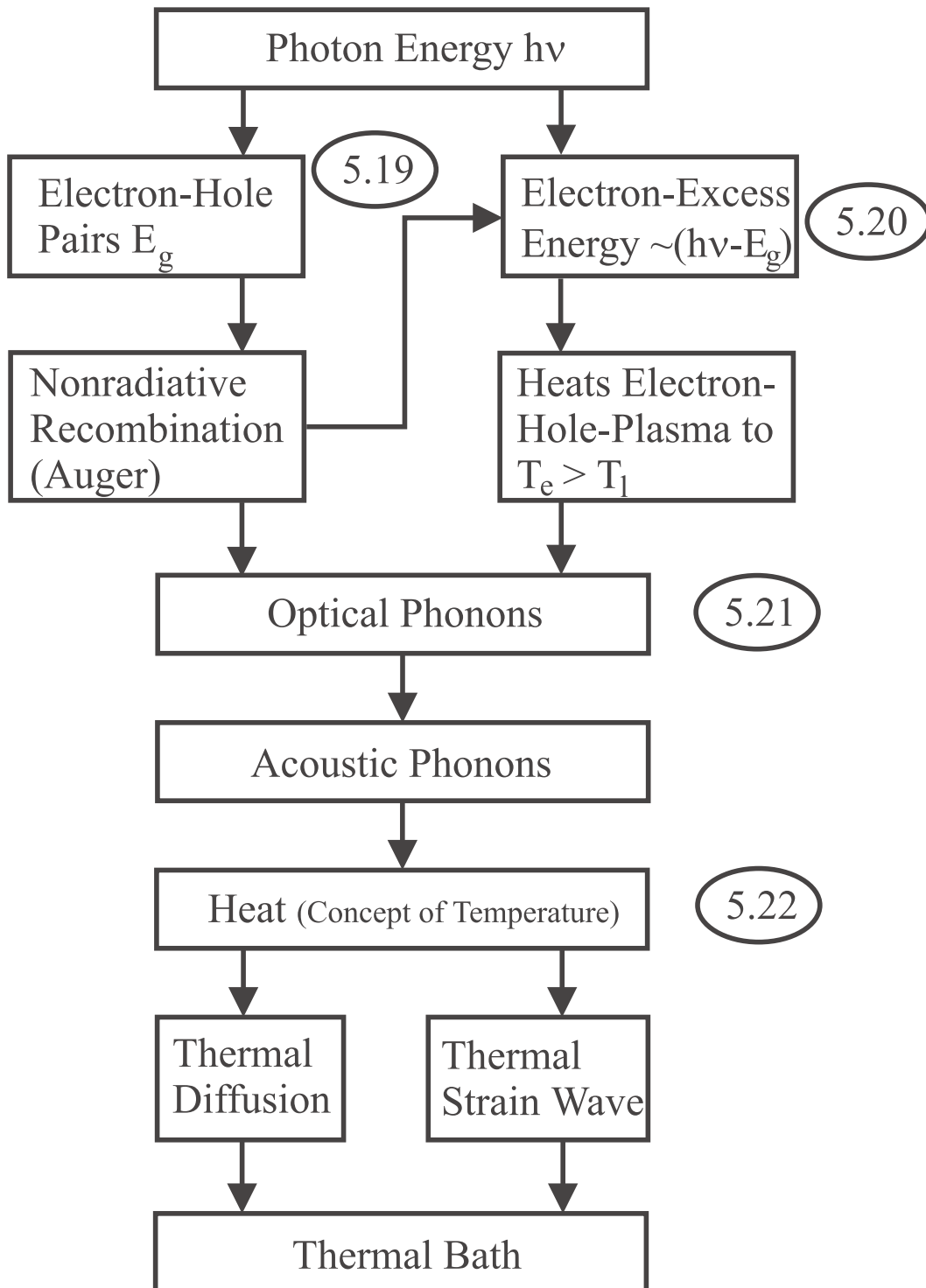


Abb. 5.11: Schema des Energieflusses im Halbleiter [93]

Diese mikroskopische Beschreibungsweise der Entstehung der Spannung trägt den im Modell von Lietoila und Gibbons [91, 92] gemachten Ausführungen Rechnung. Nach der Gleichung 5.25 ist der Beitrag der Elektronen und Löcher zur Spannung

$$\sigma_{ij}^e = \frac{\partial E_{gap}}{\partial \eta_{ij}} \delta n_e = -B \frac{dE_{gap}}{dp} \delta_{ij} \delta n_e \quad (5.26)$$

In dieser Gleichung ist δn_e die Anzahl der Elektronen (identisch zur Zahl der Löcher), E_{gap} ist die Bandlückenenergie und p ist der Druck, unter der Annahme, dass der Festkörper elastisch isotrop ist. Die räumliche Abhängigkeit von δn_e kann durch Diffusion modifiziert sein. Desweiteren werden für jedes absorbierte Photon der Energie E_{Laser} thermische Phononen der Energie $(E_{Laser} - E_{gap})$ erzeugt. Kann man die Phononen durch eine thermische Verteilung beschreiben, ist deren Beitrag zur Spannung gegeben durch

$$\sigma_{ij}^p = -\frac{3B\beta}{C_l} (E_{Laser} - E_{gap}) \delta_{ij} \delta n_e \quad (5.27)$$

Die beiden Beiträge der Gleichungen 5.26 und 5.27 sind normalerweise in der gleichen Größenordnung. Zu beachten ist, dass das Vorzeichen von $\frac{dE_{gap}}{dp}$ sowohl positiv als auch negativ sein kann, so dass der elektronische Beitrag zur Gitterdeformation zu dem von den Phononen addiert oder subtrahiert werden muß. Setzt man diese Beiträge in die Gleichung 5.4 ein, ergibt sich die folgende Wellengleichung

$$\frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial t^2} - v^2 \frac{\partial^2 u_{33}(z, t)}{\partial z^2} = -\frac{v^2}{3} \frac{1 + \nu}{1 - \nu} \left(\frac{\partial E_{gap}}{\partial p} + 3 \frac{\beta}{C_l} (E_{Laser} - E_{gap}) \right) \frac{\partial N}{\partial z} \quad (5.28)$$

In der mathematischen Umsetzung muß jetzt das Gleichungssystem (5.19 – 5.22) simultan mit der Gleichung 5.28 gelöst werden. Die numerische Umsetzung erfolgt wie in Kapitel 5.1 in der MATLAB Bibliothek FEMLAB, jedoch jetzt in einer Multiphysikumgebung, da mehrere, voneinander abhängige, partielle Differentialgleichungen auf dem gleichen Gebiet gelöst werden müssen. Die in der Simulation verwendeten Konstanten sind in der Tabelle 5.3 zusammengefasst.

Welche Ergebnisse können mit diesem Modell erzielt werden?

In der Abbildung 5.12 sind die Rockingkurven für verschiedene Verzögerungszeiten für eine Energiedichte im Pumpstrahl von 1 mJ/cm² zu sehen. Im Teil (a) ist die Rokingkurve des ungestörten Kristalls zum Zeitpunkt t=0 mit der nach der Dynamischen Beugungstheorie [32] berechneten Rockingkurve verglichen. Die

Variable	Bezeichnung	Wert	Quelle
D_a	ambipolarer Diffusionskoeff.	$100 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$	[95]
τ_{ph-ph}	akustische Phononenrekomb.	10 ps	[96]
τ_{el-ph}	Elektronen-Phononen-Lebens.	2 ps	[96]
N_0	intrinsische Ladungs.	10^{16} cm^{-3}	[97]
T_0	Umgebungstemp.	300 K	
κ	Wärmeleitfähigkeit	$160 \text{ mW cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$	[97]
E_{Laser}	Laserenergie	1,55 eV	
E_{gap}	Bandlückenenergie	0,18 eV	[60]
τ_{Laser}	Laserpulsdauer	100 fs	
ζ	Absorptionstiefe	163 nm	[60]
R_{Laser}	Reflexionsvermögen	0,41	[60]
F_{Laser}	Energiedichte	nach Experiment	
ν	Poissonzahl	0,3	[60]
v	Schallgeschw.	3880 m s^{-1}	[60]
β	linearer Ausdehnung.	$4,7 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$	[60]
C_a	Augerrekombination.	$1,5 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$	[97]
$\frac{\partial E_{gap}}{\partial p}$	Defo. Bandlücke	$15,5 \cdot 10^{-6} \text{ eV bar}^{-1}$	[97]
C_l	Wärmekapazität	$8,316 \cdot 10^5 \text{ J}/(\text{m}^3 \text{ K})$	[60]

Tab. 5.3: Zusammenfassung der verwendeten Konstanten in den Rechnungen mit dem mikrophysikalischen Modell

Simulationskurve wurde dazu mit einer Funktion gefaltet, die durch die experimentelle Verbreiterung gegeben ist. Diese Funktion wurde dann für alle folgenden Rechnungen benutzt. In alle Grafiken wurde eine vertikale Linie eingezeichnet, die die Position des Maximums der ungestörten Rockingkurve kennzeichnet, um kleine Verschiebungen des Maximums erkennen zu können. Die gemessenen Kurven sind die durchgezogenen Linien, die mit dem Modell nach Thomsen [87] (siehe Kapitel 5.1) berechneten Kurven sind gestrichelt und die mit dem Mikrophysikalischen Modell berechneten Kurven sind gepunktet gezeichnet. Für eine Verzögerungszeit von 35 ps und eine Energiedichte von $1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ kann man erkennen, dass die Intensität für kleine Braggwinkel leicht ansteigt. Das Hauptmaximum ist um etwa 10% erniedrigt. Diese Effekte werden durch das Mikrophysikalische Modell

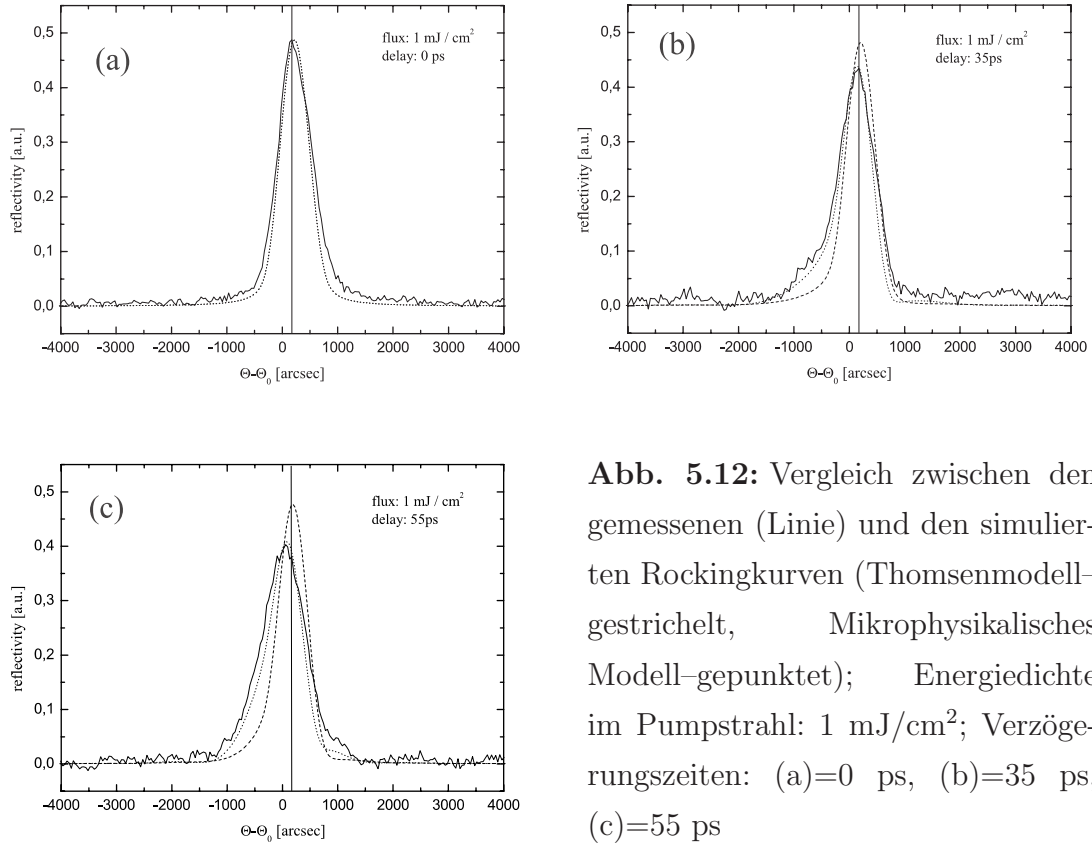


Abb. 5.12: Vergleich zwischen den gemessenen (Linie) und den simulierten Rockingkurven (Thomsenmodell-gestrichelt, Mikrophysikalisches Modell-gepunktet); Energiedichte im Pumpstrahl: 1 mJ/cm²; Verzögerungszeiten: (a)=0 ps, (b)=35 ps, (c)=55 ps

sehr gut wiedergegeben, während das konventionelle Modell nach Thomsen keine befriedigende Übereinstimmung zeigt. Für eine spätere Zeit von 55 ps ist die Gitterexpansion stärker ausgebildet aber es ist auch eine Gitterkompression durch ein kleines Maximum bei größeren Braggwinkeln zu erkennen. Dieser Effekt wird durch das Mikrophysikalische Modell ebenfalls sehr gut reproduziert.

Für eine höhere Energiedichte im Pumpstrahl von 10 mJ/cm² ergibt sich ein anderes Verhalten (Abbildung 5.13). Die Expansion des Gitters ist viel stärker. Der Ausläufer für kleine Braggwinkel ist um bis zu $\Delta\Theta = -3000$ arcsec verschoben. Das schwache Reflexionsvermögen deutet auf einen starken Deformationsgradient hin. Während das neue Mikrophysikalische Modell die Messungen sehr gut reproduziert, wird der Expansionsteil durch das konventionelle Modell nach Thomsen [87] nicht wiedergegeben. Die zu diesen Messungen gehörenden Deformationsprofile sind in der Abbildung 5.14 zu sehen. Das mikrophysikalische Modell zeigt deutlich, dass

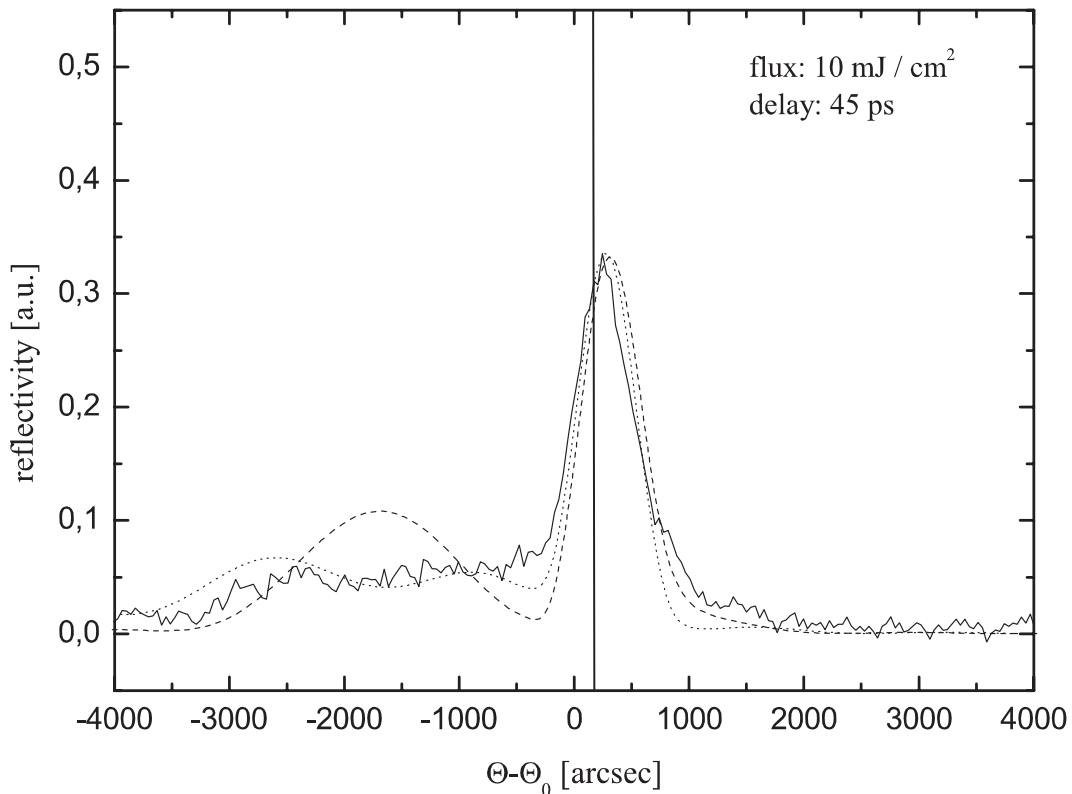


Abb. 5.13: Vergleich zwischen den gemessenen (Linie) und den simulierten Rockinkurven (Thomsenmodell-gestrichelt, Mikrophysikalisches Modell-gepunktet); Energiedichte im Pumpstrahl: 10 mJ/cm^2 ; Verzögerungszeit: $t=45 \text{ ps}$

die Deformation an der Oberfläche durch die Relaxation schon wieder kleiner wird, während es im Gitter eine Verstärkung der Deformation gibt. Dieses Verhalten ist ganz anders als im Modell nach Thomsen [87]. Zur Verdeutlichung dieser Tatsache ist in der Abbildung 5.15 die zeitliche Entwicklung der Deformation im Kristall nach dem mikrophysikalischem Modell für verschiedene Zeiten nach dem Eintreffen des Pumpimpulses zu sehen. Während die Deformation an der Oberfläche innerhalb von 35 ps von 0,3% auf 0,1% abgefallen ist, ist der Beitrag der akustischen Deformation im Kristallinneren mit 0,4% nahezu gleich geblieben. Der Kompressionsbeitrag (Deformationswerte kleiner als Null) ist, verglichen mit dem Expansionsbeitrag, sehr gering. Im Gegensatz zu der Arbeit von Lindenberg et al. [77], der aufgrund seiner Messergebnisse künstlich eine Elektronen-Akustische Phononenkopplungszeit von

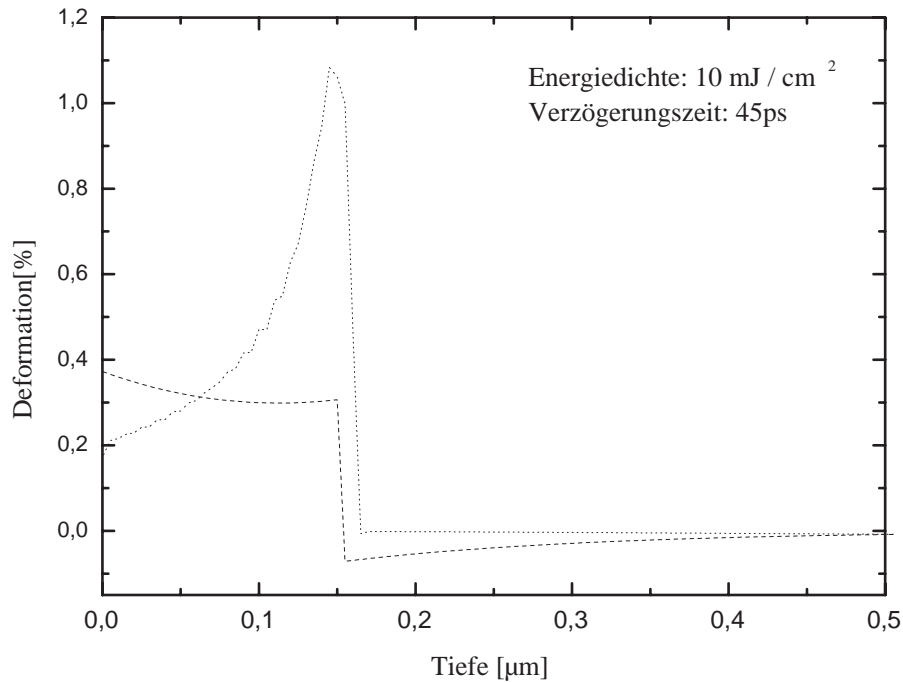


Abb. 5.14: Vergleich zwischen den Deformationsverläufen im Gitter (Thomsenmodell–gestrichelt, Mikrophysikalisches Modell–gepunktet); Energiedichte im Pumpstrahl: 10 mJ/cm²; Verzögerungszeit: $t=45$ ps

12 ps einführt, ist diese im mikrophysikalischen Modell direkt enthalten. Es ist weiterhin nicht notwendig, die Amplitude der thermischen Verspannung und die Amplitude der durch das Deformationspotential gegebenen Verspannung unabhängig voneinander an die Messwerte anzupassen. Im Mikrophysikalischen Modell kann mit einem Satz von Parametern gearbeitet werden, indem einmalig für die verschiedenen Energiedichten im Pumpstrahl der Wert des Deformationspotentials angepasst wurde. Die von Lindenberg et al. [77] getroffene Feststellung, dass das zeitliche Verhalten des InSb-Kristalls unter der Bestrahlung mit einem Femtosekundenlaser nur richtig wiedergegeben werden kann, wenn man einen instantanen Beitrag zur Deformation des Gitters und einen langreichweitigen, sich langsam entwickelnden Beitrag betrachtet, kann hier nicht unterstützt werden. Es ist vielmehr festzustellen, dass

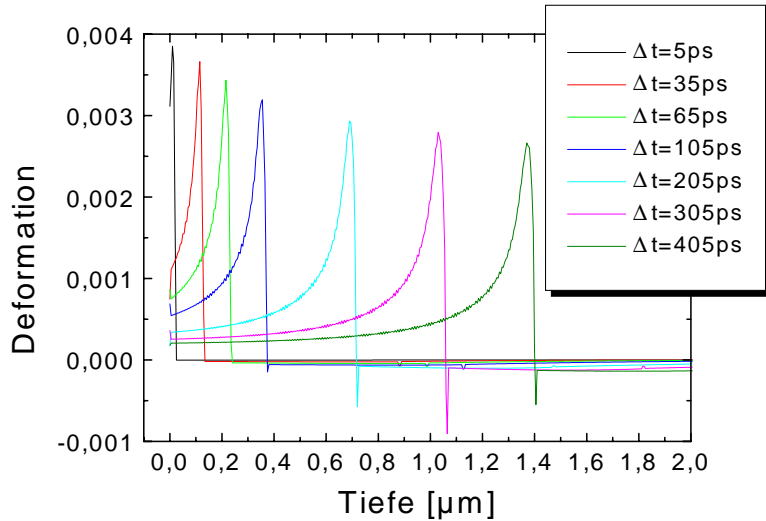


Abb. 5.15: Zeitentwicklung der Deformation im InSb-Kristall für verschiedene Verzögerungszeiten; Energiedichte im Pumpstrahl 5 mJ/cm^2

es mit dem mikrophysikalischen Modell problemlos möglich ist, mit einer Anregung alle Deformationsverläufe im InSb-Kristall richtig wiederzugeben. Die von Reis et al. [78] veröffentlichte Arbeit kann praktisch keinen Beitrag zum Verständnis der Deformation im InSb-Kristall liefern, da die verwendeten Röntgenpulse mit 90 ps viel zu lang sind im Vergleich zu den auf einer Zeitskala von 1 ps stattfindenden Prozesse. Alle möglichen Effekte werden durch die lange Röntgenpulsdauer verschmiert und überdeckt.

Im Gegensatz zu allen anderen bisher veröffentlichten Arbeiten, in denen die Energiedichte im Pumpstrahl als Fitparameter benutzt wurde, wurden in dieser Arbeit die im Experiment gemessenen Energiedichten in den Rechnungen verwendet. Mit dem Mikrophysikalischen Modell konnte eine für alle Energiedichten und für alle Verzögerungszeiten eine hervorragende Übereinstimmung zwischen den Messungen und den Simulationen gefunden werden.

In der Abbildung 5.16 sind der direkte Vergleich aller gemessenen Rockingkurven des InSb und die mit dem Mikrophysikalischen Modell berechneten Rockingkurven zu sehen. Die Übereinstimmung ist für alle Energiedichten im Pumpstrahl und für alle Verzögerungszeiten sehr gut.

Die Simulationen zeigen, dass in etwa 90% der Deformation im Gitter durch den Druck der Elektron-Loch-Paare erzeugt wird und nur 10% durch die Phononen bzw. die Erhöhung der Gittertemperatur [98]. Der Term $\frac{\partial E_{gap}}{\partial p}$ in der Gleichung 5.28, der den Druck durch die Ladungsträger beschreibt, gibt den Hauptbeitrag zur Defor-

Messung

Simulation Mikrophysik

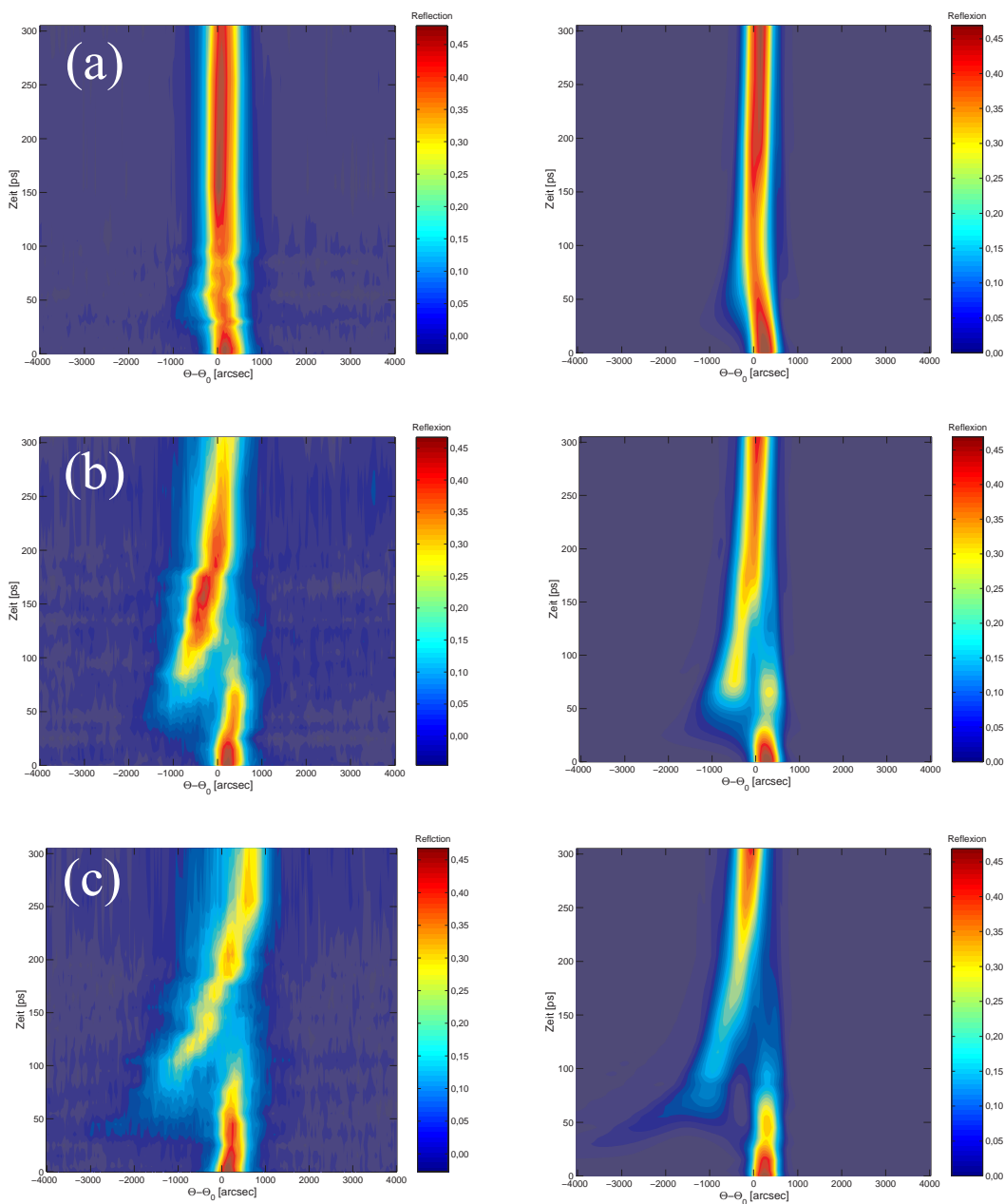


Abb. 5.16: Vergleich zwischen den gemessenen und den mit dem Mikrophysikalischen Modell simulierten zeitabhängigen Rockingkurven; Energiedichte im Pumpstrahl: (a) 1 mJ/cm^2 ; (b) 5 mJ/cm^2 ; (c) 10 mJ/cm^2

mation im Gitter. Eine gute übereinstimmung zwischen den experimentellen Ergebnissen und Simulationen konnte erzielt werden, in dem der Tabellenwert um 30% geändert wurde. Die Variation anderer Parameter hat keinen signifikanten Einfluß auf die Simulationen.

In dieser Arbeit wurden alle Konstanten als zeitunabhängige Größen betrachtet und deshalb für die verschiedenen Verzögerungszeiten nicht variiert. Es wurden auch keine Abhängigkeiten von der Anzahl der Elektron–Loch–Paare, oder Abschirmeffekte [95, 99] betrachtet. Der Vergleich zwischen den im Experiment gemessenen und den simulierten Rockingkurven ist für **alle Verzögerungszeiten und für alle Energiedichten im Pumpstrahl** hervorragend. In diesen Simulationen wurden erstmalig die im Experiment bestimmten Energiedichten verwendet und **nicht**, wie in allen anderen Veröffentlichungen üblich, als Parameter benutzt.

5.4 Zusammenfassung der Simulationen

In diesem Abschnitt wurden verschiedene Modelle der Energieabsorption in einem Halbleiterkristall mit den sehr genau durchgeführten, von der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepuls abhängigen, Messungen der Rockingkurve eines InSb-Kristalls verglichen. Die Ergebnisse zeigen, dass man die Prozesse, in einem durch den Femtosekunden Pumpimpuls angeregten Kristall, sehr genau untersuchen muß. Die im Experiment gewonnenen Ergebnisse können nur in einer sehr beschränkten Weise (für kurze Intervalle in der Verzögerungszeit und Anpassen der Energiedichte im Pumpstrahl) mit dem zunächst verwendeten Modell nach Thomsen [87] beschrieben werden. Eine in sich geschlossene Beschreibung liefert das Mikroskopische Modell, dass für alle gemessenen Daten (3 verschiedene Anregungsenergiedichten, Verzögerungszeiten zwischen Pumpimpuls und Probepuls von 1 ps bis 400 ps) eine hervorragende übereinstimmung mit den Simulationen liefert. Dabei wurde der gleiche Datensatz für alle Simulationen verwendet.

Diese Weiterentwicklung der theoretischen Modellvorstellungen ist nur möglich, weil die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen sowohl die Zeitauflösung als auch die Dynamik im Signal–Rausch–Verhältnis aufweisen.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Die Erzeugung und Anwendung von Femtosekunden Röntgenimpulsen ist eine Herausforderung an die moderne Wissenschaft. Der Aufbau von pump-probe-Experimenten zur Untersuchung von Röntgenbeugungssignalen ermöglicht die direkte Beobachtung der dynamischen Strukturänderung in der Materie auf der fundamentalen Zeitskala einer Vibrationsperiode von Molekülen. Diese Experimente stellen harte Anforderungen an die Femtosekunden Röntgenquellen. Zunächst ist die interessierende Zeitskala 100 fs oder kürzer. Desweiteren reicht der gewünschte Photonenenergiebereich von 1 bis 10 keV und ist damit sehr breit und schließlich müssen die Stabilität und die Brillianz der Quelle so hoch wie möglich sein.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass es mit dem Einsatz eines Hochleistungs Titan-Saphir Lasersystemes möglich ist, effizient Subpikosekunden Röntgenimpulse, bei einer Wiederholrate von 10 Hertz, zu erzeugen. Durch die Optimierung der Laser Plasma Wechselwirkung konnten pro Laserpuls bis zu 10^{10} Si-K α -Photonen, die isotrop in einen Raumwinkel von 4π abstrahlen, generiert werden. Der Einsatz torisch gebogener Kristalle ermöglicht die monochromatische Fokussierung der entstehenden charakteristischen Röntgenstrahlung auf die zu untersuchenden Probekristalle und die Nutzung von 10^6 Röntgenphotonen pro Laserpuls bei einer Fokusgröße von 80 μm .

Die Bestimmung der K α -Pulsdauer wurde mit einer Kreuzkorrelationstechnik unter Ausnutzung des nichtthermischen Schmelzens einer Halbleiterkristallschicht durchgeführt. Die Untersuchungen zeigen, dass die Dauer des Si-K α -Pulses mit (500 ± 150) fs angegeben werden kann (Laserintensität: $3 \cdot 10^{17}$ W/cm 2). Im Gegensatz zu allen anderen bisher veröffentlichten Arbeiten wird hier erstmalig nicht

nur die Kristallresponse, sondern zusätzlich auch die Röntgenpulsemission in einer ausführlichen Analyse mit berücksichtigt. Eine genaue Analyse des zeitlichen Verlaufes des Pulses ist, im Rahmen dieser Arbeit, nicht exakt möglich, da der Prozeß des nichtthermischen Schmelzens, im Vergleich zu dem zu vermessenden Röntgenpuls, nicht schnell genug erfolgt. Die Entwicklung einer neuen, zerstörungsfreien, ultraschnellen Meßmethode (schneller Schalter der anormalen Röntgentransmission durch schnelle elektronische Anregung unter Ausnutzung des Borrmanneffektes) wurde in dieser Arbeit begonnen und zeigt in ersten Experimenten vielversprechende Ansätze zur Messung von ultrakurzen Röntgenpulsen.

Es konnte weiterhin gezeigt werden, dass es möglich ist, mit einer Subpikosekunden Zeitauflösung das Verhalten des Atomgitters von Kristallen zu untersuchen. Mit der Wahl der Energiedichte des Pumpulses kann man dabei angefangen von der leichten Anregung von optischen und akustischen Phononen, über die Anregung von Stoßwellen bis hin zum thermischen Schmelzen der Kristallstruktur eine Vielzahl physikalischer Effekte untersuchen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dazu das transiente Verhalten eines InSb-Kristalls unter dem Einfluß von sechs verschiedenen Anregungsenergiedichten untersucht.

Zunächst wurde die reversible Anregung von Stoßwellen für 3 verschiedene Anregungsenergiedichten untersucht, wobei zwischen den Messungen signifikante Unterschiede aufgetreten sind. Vergleicht man die Messungen für eine Verzögerungszeit von 55 ps, bei der die deutlichsten Unterschiede aufgetreten sind, stellt man fest, dass für die niedrigste Energiedichte von 1 mJ/cm² nur eine Expansion des Gitters beobachtet wurde. Eine Kompression war nicht meßbar. Für die mittlere Energiedichte von 5 mJ/cm² wurde eine starke Expansion ($\frac{\Delta d}{d} = 0,34\%$) und eine Kompression beobachtet. Für die nächst höhere Energiedichte von 10 mJ/cm² verstärkten sich sowohl die Kompression $\frac{\Delta d}{d} = -0,005\%$ als auch die Expansion $\frac{\Delta d}{d} = 1,08\%$. Alle Anregungen waren vollständig reversibel. Für eine weitere Erhöhung der Anregungsenergiedichte konnte das nichtthermische Schmelzen beobachtet werden. Es hat sich gezeigt, dass die gemessene Änderung des integralen Reflexionsvermögens eines InSb-Kristalls beim nichtthermischen Schmelzen unabhängig von der Laserintensität auf dem Target für die K α -Quelle ist. Es gibt damit kein Indiz für eine Pulsverzögerung bei einer Variation der Laserintensität. Für zwei weitere Anregungsenergiedichten konnten thermisches Schmelzen, sowie ein massiver Materialabtrag,

beobachtet werden.

Durch ein neues Bandtargetsystm konnte der Photonenfluß für eine CCD-Belichtung erhöht werden und damit die Dynamik in den Messungen von 10 auf $3 \cdot 10^4$ erhöht werden. Damit ist es erstmals möglich, bei der Anregung von Stoßwellen in Germanium bereits nach 10 ps die Expansion des Gitters, die im Intensitätsverhältnis zum Hauptmaximum nur 10^{-3} beträgt, zu beobachten.

In der theoretischen Beschreibung der im Experiment gewonnenen Ergebnisse lieferte das Modell nach Thomsen [87] keine befriedigende Übereinstimmung, insbesondere für Verzögerungszeiten kleiner als 20 ps. Deshalb wurde eine mikrophysikalische Beschreibung, mit Hilfe von Ratengleichungen entwickelt. Es wurden zwischen einer Temperatur der Elektronen und des Gitters unterschieden, sowie die Prozesse der Entstehung optischer und akustischer Phononen und Auger-Rekombination in das Modell implementiert. Damit hat man erstmals die Möglichkeit, theoretisch schnelle Prozesse (kleiner als 10 ps) in Festkörpern studieren und diese direkt mit den experimentellen Ergebnissen vergleichen zu können. In den Experimenten und den dazugehörigen Simulationen hat sich gezeigt, dass für die Deformation in Halbleiterkristallen die Verbiegung der Bänder durch den hohen Druck der Elektron-Loch-Paare den entscheidenden Beitrag liefert. Erstmals stimmen die im Experiment gemessenen Anregungsenergiedichten, mit denen die in den Simulationen verwendet wurden, überein.

In den nächsten Jahren wird es zwei wesentliche Entwicklungen geben. Zum einen werden die Quellen mit Laser produzierten Plasmen, als kostengünstige und kompakte Röntgenquelle, eine weite Verbreitung in den Forschungslabors auf der Welt finden. Da sie an jeder Universität betrieben werden können, wird damit eine Reihe von Grundlagenuntersuchungen mit moderaten Röntgenphotonenflüssen im keV-Bereich stattfinden. Entscheidend für viele Experimente wird dabei sein, mit der Zeitauflösung in den sub 100 fs Bereich vorzudringen. Alternativ dazu wird an Großforschungseinrichtungen, wie etwa dem Freien Elektronen Laser in Hamburg, mit mittleren Photonenflüssen von 10^{17} Photonen/s die Untersuchung von Molekülen mit biologischer Relevanz mit einer Zeitauflösung von 100 fs stattfinden. Dabei wird mit Hilfe von Laue-Aufnahmen das Verhalten der Moleküle bei einer Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls untersucht werden. Nach dem gegenwärtigen Zeitplan wird eine Photonenenergie von 10 keV jedoch frühestens 2010 erreicht sein.

Literaturverzeichnis

- [1] VON LAUE, M.: Interferenzerscheinungen bei Röntgenstrahlen. In: *Annalen der Physik* 41 (1913), S. 989
- [2] BRAGG, W.H. ; BRAGG, W.L.: The Reflection of X-Rays by Crystals. In: *Proc. Roy Soc. London* A88 (1913), S. 249
- [3] TSUKERMANN, V.A. ; AVDEENKO, A.I.: In: *Zh. Tekh. Fiz.* 12 (1942), S. 185
- [4] SCHALL, R.: In: *Z. Angew. Phys.* 2 (1950), S. 83
- [5] VAN WONTERGHEM, P.M. ; RENTZEPIS, P.M.: Characteristics of a TA photocathode for the generation of picosecond x-ray pulses. In: *Appl. Phys. Lett.* 56 (1990), S. 1005–1007
- [6] SZEKENYI, D.M. ; ET AL.: In: *Trans. Am. Cryst. Assoc.* 24 (1988), S. 167
- [7] SCHOENLEIN, R.W. ; LEEMANS, W.P. ; CHIN, A.H. ; VOLFBEYN, P. ; GLOVER, T.E. ; BALLING, P. ; ZOLOTOREV, M. ; KIM, K.-J. ; CHATTOPADHYAY, S. ; SHANK, C.V.: Femtosecond X-ray Pulses at 0.4Å Generated by 90° Thomson Scattering: A Tool for Probing the Structural Dynamics of Materials. In: *Science* 274 (1996), S. 236–238
- [8] LEEMANS, W.P. ; SCHOENLEIN, R.W. ; VOLFBEYN, P. ; CHIN, A.H. ; GLOVER, T.E. ; BALLING, P. ; ZOLOTOREV, M. ; KIM, K.-J. ; CHATTOPADHYAY, S. ; SHANK, C.V.: X-ray based subpicosecond electron bunch characterization using 90 degrees Thomson scattering. In: *Physical Review Letters* 77 (1996), S. 4182–4185
- [9] ZHOLENTS, A.A. ; ZOLOTOREV, M.S.: Femtosecond x-ray pulses of synchrotron radiation. In: *Physical Review Letters* 76 (1996), S. 912–915
- [10] SCHOENLEIN, R.W. ; CHATTOPADHYAY, S. ; CHONG, H.H.W. ; GLOVER, T.E. ; HEIMANN, P.A. ; SHANK, C.V. ; ZHOLENTS, A.A. ; ZOLOTOREV, M.S.: Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation. In: *Science* 287 (2000), S. 2237–2240

- [11] KMETEC, J.D. ; GORDON, C.L. ; MACKLIN, J.J. ; LEMOFF, B.E. ; BROWN, S.G. ; HARRIS, S.E.: MeV X-Ray Generation with a Femtosecond Laser. In: *Physical Review Letters* 68 (1992), S. 1527–1530
- [12] MURNANE, M.M. ; KAPTEYN, H.C. ; ROSEN, M.D. ; FALCONE, R.W.: Ultrafast x-ray pulses from laser-produced plasmas. In: *Science* 251 (1991), S. 531–536
- [13] ROSE-PETRUCK, C.R. ; JIMENEZ, R. ; GUO, T. ; CAVALLERI, A. ; SIDERS, C.W. ; RAKSI, F. ; SQUIER, J.A. ; WALKER, B.C. ; WILSON, K.R. ; BARTY, C.P.J.: Picosecond-milliångström lattice dynamics measured by ultrafast X-ray diffraction. In: *Nature* 398 (1999), S. 310–312
- [14] SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; BLOME, C. ; BLUMS, J. ; CAVALLERI, A. ; DIETRICH, C. ; TARASEVITCH, A. ; USCHMANN, I. ; FÖRSTER, E. ; KAMMLER, M. ; HORN VON HOEGEN, M. ; VON DER LINDE, D.: Femtosecond X-ray measurement of coherent lattice vibrations near the Lindemann stability limit. In: *Nature* 422 (2003), S. 287–289
- [15] ZIENER, Christian: *Aufbau eines 12 Terawatt Titan:Saphir Lasers zur effizienten Erzeugung charakteristischer Röntgenstrahlung*. Jena, Friedrich–Schiller–Universität, Dissertation, 2001
- [16] STRICKLAND, D. ; MOUROU, G.: Compression of amplified chirped optical pulses. In: *Opt. Comm.* 56 (1985), S. 219–221
- [17] ZIENER, Ch. ; USCHMANN, I. ; STOBRAWA, G. ; REICH, Ch. ; GIBBON, P. ; FEURER, T. ; MORAK, A. ; DÜSTERER, St. ; SCHWOERER, H. ; FÖRSTER, E. ; SAUERBREY, R.: Optimization of $K\alpha$ bursts for photon energies between 1.7 and 7 keV produced by femtosecond-laser-produced plasmas of different scale length. In: *Physical Review E* 65 (2002), S. 066411
- [18] DÜSTERER, St. ; SCHWOERER, H. ; ZIEGLER, W. ; SALZMANN, D. ; SAUERBREY, R.: Optimization of EUV radiation yield from laser-produced plasma. In: *Appl. Phys. B* 73 (2001), S. 693–698
- [19] SCHWOERER, H. ; GIBBON, P. ; DÜSTERER, St. ; BEHRENS, R. ; ZIENER, Ch. ; REICH, Ch. ; SAUERBREY, R.: MeV X Rays and Photoneutrons from Femtosecond Laser-Produced Plasmas. In: *Physical Review Letters* 86 (2001), S. 2317–2320
- [20] GIBBON, P. ; FÖRSTER, E.: Short-Pulse Laser-Plasma Interactions. In: *Plasma Phys. Control. Fusion* 38 (1996), S. 769–793

- [21] BASTIANI, S. ; ROUSSE, A. ; GEINDRE, J.P. ; AUDEBERT, P. ; QUOIX, C. ; HAMONIAUX, G. ; ANTONETTI, A. ; GAUTHIER, J.-C.: Experimental study of the interaction of subpicosecond laser pulses with solid targets of varying initial scale lengths. In: *Physical Review E* 56 (1997), S. 7179–7185
- [22] HENKE, B.L. ; UEJIO, J.Y. ; STONE, G.F. ; DITTMORE, C.H. ; FUJIWARA, F.G.: High-energy x-ray response of photographic films-models and measurement. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 3 (1986), S. 1540–1550
- [23] HÖPFNER, K.: *Charakterisierung und Kalibrierung von Röntgenkristallspektrometern*. Zwickau, Westsächsische-Hochschule, Diplomarbeit, 1998
- [24] BEUTH, K.: *Elektronik 2-Bauelemente*. 13. Auflage. Vogel-Verlag, 1991
- [25] ARP: *Angaben der Firma ARP*, 1996
- [26] MISSALLA, T. ; USCHMANN, I. ; FÖRSTER, E. ; JENKE, G. ; VON DER LINDE, D.: Monochromatic Focusing of Subpicosecond X-Ray Pulses in the keV Range. In: *Review of Scientific Instruments* 70 (1999), S. 1288 – 1299
- [27] BERREMANN, D.W.: Curved-crystal x-ray monochromator efficiency. In: *Physical Review B* 19 (1979), S. 560–567
- [28] USCHMANN, I. ; GIBBON, P. ; KLÖPFEL, D. ; FEURER, T. ; FÖRSTER, E. ; AUDEBERT, P. ; GEINDRE, J.P. ; GAUTHIER, J.-C. ; ROUSSE, A. ; RISCHER, C.: X-ray emission produced by hot electrons from fs-laser produced plasma– diagnostic and application. In: *Laser and Particle Beams* 17 (1999), S. 671–679
- [29] WRIGHT, D.: Beamwidths of a diffracted laser using 4 proposed methods. In: *Opt. Quant. Electr.* 24 (1992), S. 1129–1135
- [30] HE, H. ; WARK, J.: Annual report / SERC Rutherford Appleton Laboratory. 1993. – Forschungsbericht. – 45–46 S
- [31] CHUKHOVSKII, F.N. ; FÖRSTER, E.: Time-dependent X-ray Bragg diffraction. In: *Acta Cryst. A* 51 (1993), S. 668–672
- [32] TAUPIN, D.: Théorie dynamique de la diffraction des rayons x par les cristaux déformés. In: *Bull. Soc. Franc. Miner. Cristallogr.* 87 (1964), S. 469–511
- [33] TEUBNER, U. ; USCHMANN, I. ; GIBBON, P. ; ALTENBERND, D. ; FÖRSTER, E. ; FEURER, T. ; THEOBALD, W. ; SAUERBREY, R. ; HIRST, G. ; KEY, M.H. ; LISTER, J.

- ; NEELY, D.: Absorption and hot electron production by high intensity femtosecond UV-laser pulses in solid targets. In: *Physical Review E* 54 (1996), S. 4167–4177
- [34] FEURER, T. ; THEOBALD, W. ; SAUERBREY, R. ; USCHMANN, I. ; ALTENBERND, D. ; TEUBNER, U. ; GIBBON, P. ; FÖRSTER, E. ; MALKA, G. ; MIQUEL, J.L.: Onset of diffuse reflectivity and fast electron flux inhibition in 528 nm-laser solid interactions at ultrahigh intensity. In: *Physical Review E* 56 (1997), S. 4608–4614
- [35] TEUBNER, U. ; BERGMANN, J. ; WONTERGHEM, B. V. ; SCHÄFER, F. P.: Angle-Dependent X-Ray Emission and Resonance Absorption in a Laser-Produced Plasma Generated by a High Intensity Ultrashort Pulse. In: *Physical Review Letters* 70 (1993), S. 794–797
- [36] EDER, D.C. ; PRETZLER, G. ; FILL, E. ; EIDMANN, K. ; SAEMANN, A.: Spatial Characteristics of K_{α} Radiation from Weakly Relativistic Laser Plasmas. In: *Applied Physics B* 70 (2000), S. 211–217
- [37] EWALD, F. ; SCHWOERER, H. ; SAUERBREY, R.: K_{α} radiation from relativistic laser-produced plasmas. In: *Europhys. Lett.* 60 (2002), S. 710–716
- [38] REICH, Ch. ; GIBBON, P. ; USCHMANN, I. ; FÖRSTER, E.: Yield Optimization and Time Structure of Femtosecond Laser Plasma K_{α} Sources. In: *Physical Review Letters* 84 (2000), S. 4846–4849
- [39] CHUKHOVSKII, F.N. ; TEUBNER, U. ; USCHMANN, I. ; FÖRSTER, E.: A self-terminating X-ray amplifying medium: Kinetics of K-shell photoionization and stimulated emission. In: *Laser and Particle Beams* 18 (2000), S. 49–57
- [40] KOVAL, P. ; FRITZSCHE, St. ; SURZHYKOV, A.: Relativistic and retardation effects in the two-photon ionization of hydrogen-like ions. In: *J. Phys. B* 36 (2003), S. 873–878
- [41] KIEFFER, J.C. ; JIANG, Z. ; IKHLEF, A. ; COTE, C.Y. ; PERYRUSSE, O.: Picosecond dynamics of a hot solid-density plasma. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 13 (1996), S. 132–137
- [42] SHANK, C.V. ; YEN, R. ; HIRLIMANN, C.: Time-Resolved Reflectivity Measurements of Femtosecond-Optical-Pulse-Induced Phase Transitions in Silicon. In: *Physical Review Letters* 50 (1983), S. 454–457
- [43] SHANK, C.V. ; YEN, R. ; HIRLIMANN, C.: Femtosecond-Time-Resolved Surface Structural Dynamics of Optically Excited Silicon. In: *Physical Review Letters* 51 (1983), S. 900–903

- [44] SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; BIALKOWSKI, J. ; VON DER LINDE, D.: Ultrafast laser-induced order-disorder transitions in semiconductors. In: *Physical Review B* 51 (1995), S. 14186–14198
- [45] SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; BIALKOWSKI, J. ; BOING, M. ; CAVALLERI, A. ; VON DER LINDE, D.: Thermal and nonthermal melting of gallium arsenide after femtosecond laser excitation. In: *Physical Review B* 58 (1998), S. R11805
- [46] HUANG, L. ; CALLAN, J.P. ; GLEZER, E.N. ; MAZUR, E.: GaAs under Intense Ultrafast Excitation: Response of the Dielectric Function. In: *Physical Review Letters* 80 (1998), S. 185–188
- [47] SHUMAY, L. ; HÖFER, U.: Phase transformations of an InSb surface induced by strong femtosecond laser pulses. In: *Physical Review B* 53 (1996), S. 15878–15884
- [48] REITZE, D.H. ; AHN, H. ; DOWNER, M.C.: Optical properties of liquid carbon measured by femtosecond spectroscopy. In: *Physical Review B* 45 (1992), S. 2677–2693
- [49] BORRMANN, G.: Über Extinktionsdiagramme von Quarz. In: *Phys. Zeitschrift* 42 (1941), S. 157
- [50] FEURER, T. ; MORAK, A. ; USCHMANN, I. ; ZIENER, Ch ; SCHWOERER, H. ; REICH, Ch. ; GIBBON, P. ; FÖRSTER, E. ; SAUERBREY, R.: Femtosecond Silicon K_{α} Pulses from Laser-Produced Plasmas. In: *Physical Review E* 65 (2002), S. 016412
- [51] HENKE, B.L. ; GULLIKSON, E.M. ; DAVIS, J.C.: *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. Bd. 54. Academic, Orlando, 1993
- [52] PALIK, E.D.: *Handbook of Optical Constants of Solids*. Bd. 2. Academic, Orlando, 1991
- [53] LEPETIT, L. ; CHERIAUX, G. ; JOFFRE, M.: Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 12 (1995), S. 2467–2474
- [54] STAMPFLI, P. ; BENNEMANN, K.-H.: Theory for the instability of the diamond structure of Si, Ge, and C induced by a dense electron-hole plasma. In: *Physical Review B* 42 (1990), S. 7163–7173

- [55] STAMPFLI, P. ; BENNEMANN, K.-H.: Time dependence of the laser-induced femtosecond lattice instability of Si and GaAs: Role of longitudinal optical distortions. In: *Physical Review B* 49 (1994), S. 7299–7305
- [56] DUMITRICĂ, T. ; GRAVES, J.S. ; ALLEN, R.E.: Second-order susceptibility from a tight-binding Hamiltonian. In: *Physical Review B* 58 (1998), S. 15340–15343
- [57] DUMITRICĂ, T. ; ALLEN, R.E.: Femtosecond-scale response of GaAs to ultrafast laser pulses. In: *Physical Review B* 66 (2002), S. R081202
- [58] TOM, H.W.K. ; HEINZ, T.F. ; SHEN, Y.R.: Second-Harmonic Reflection from Silicon Surfaces and Its Relation to Structural Symmetry. In: *Physical Review Letters* 51 (1983), S. 1983–1986
- [59] VETELINO, J.F. ; GAUR, S.P. ; MITRA, S.S.: Debye-Waller Factor for Zinc-Blende-Type Crystals. In: *Physical Review B* 5 (1972), S. 2360–2366
- [60] LIDE, D.R.: *Handbook of Chemistry and Physics*. 74. Auflage. CRC Press, 1994
- [61] VON DER LINDE, D.: Ultrafast Spectroscopy of Plasmas Generated by Very Intense Dye Laser Pulses. In: *Topics in Applied Physics* 60 (1992), S. 113
- [62] KIEFFER, J.C. ; CHAKER, M. ; COTE, C.Y. ; BEAUDOIN, Y. ; PEPIN, H. ; CHIEN, C.Y. ; COE, S. ; MOUROU, G.: Time-resolved Kiloelectron-Volt spectroscopy of ultrashort plasmas. In: *Applied Optics* 32 (1993), S. 4247–4252
- [63] YOSHIDA, M. ; FUJIMOTO, Y. ; HIRONAKA, Y. ; NAKAMURA, K. ; KONDO, K. ; OHTANI, M. ; TSUNEMI, H.: Generation of picosecond hard x-rays by terawatt laser focusing on a copper target. In: *Appl. Phys. Lett.* 73 (1998), S. 2393–2395
- [64] GALLANT, P. ; JIANG, Z. ; CHIEN, C.Y. ; FORGET, P. ; DORCHIES, F. ; KIEFFER, J.C. ; PEPIN, H. ; PERYSSE, O. ; MOUROU, G. ; KROL, A.: Spectroscopy of solid density plasmas generated by irradiation of thin foils by a fs laser. In: *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* 65 (2000), S. 243–252
- [65] GALLANT, P. ; FORGET, P. ; DORCHIES, F. ; JIANG, Z. ; KIEFFER, J.C. ; JAANIMAGI, P.A. ; REBUFFIE, J.C. ; GOULMY, C. ; PELLETIER, J.F. ; SUTTON, M.: Characterization of a subpicosecond x-ray streak camera for ultrashort laser-produced plasmas experiments. In: *Rev. Sci. Instrum.* 71 (2000), S. 3627–3633

- [66] ANDIEL, U. ; EIDMANN, K. ; WITTE, K.: Time-resolved x-ray K-shell spectra from high density plasmas generated by ultrashort laser pulses. In: *Physical Review E* 63 (2001), S. 026407
- [67] ANDIEL, U. ; EIDMANN, K. ; WITTE, K. ; USCHMANN, I. ; FÖRSTER, E.: Comparative study of time-resolved K-shell spectra from aluminium plasmas generated by ultrashort laser pulses at 395 and 790 nm. In: *Appl. Phys. Lett.* 80 (2002), S. 198–200
- [68] UCBS (Veranst.): *Ultrafast X-Ray Sources*. Napa, CA, 2002
- [69] ANDIEL, U. *private Mitteilungen*. 2002
- [70] MURNANE, M.M. ; KAPTEYN, H.C. ; FALCONE, R.W.: X-ray streak camera with 2ps response. In: *Appl. Phys. Lett.* 56 (1990), S. 1948–1950
- [71] REICH, Ch. *private Mitteilungen*. 2003
- [72] FILL, E. ; BAYERL, J. ; TOMMASINI, R.: A novel tape target for use with repetitively pulsed lasers. In: *Review of Scientific Instruments* 73 (2002), S. 2190–2192
- [73] LÜBCKE, A.: *Ausnutzung des Borrmanneffektes zur Entwicklung eines ultraschnellen Schalters im Röntgenbereich*. Jena, Friedrich–Schiller–Universität, Diplomarbeit, 2002
- [74] SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; BLOME, C. ; DIETRICH, C. ; TARASEVITCH, A. ; HORN VON HOEGEN, M. ; VON DER LINDE, D. ; CAVALLERI, A. ; SQUIER, J. ; KAMMLER, M.: Femtosecond X-Ray Measurement of Ultrafast Melting and Large Acoustic Transients. In: *Physical Review Letters* 87 (2001), S. 225701
- [75] ROUSSE, A. ; RISCHER, C. ; FOURMAUX, S. ; USCHMANN, I. ; SEBBAN, S. ; GRILLON, G. ; BALCOU, Ph. ; FÖRSTER, E. ; GEINDRE, J.-P. ; AUDEBERT, P. ; GAUTHIER, J.-C. ; HULLIN, D.: Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution. In: *Nature* 410 (2001), S. 65–68
- [76] CHIN, A.H. ; SCHOENLEIN, R.W. ; GLOVER, T.E. ; BALLING, P. ; LEEMAANS, W.P. ; SHANK, C.V.: Ultrafast Structural Dynamics in InSb Probed by Time-Resolved X-Ray Diffraction. In: *Physical Review Letters* 83 (1999), S. 336–339
- [77] LINDENBERG, A.M. ; KANG, I. ; JOHNSON, S.L. ; MISSALLA, T. ; HEIMANN, P.A. ; CHANG, Z. ; LARSSON, J. ; BUCKSBAUM, P.H. ; KAPTEYN, H.C. ; PADMORE, H.A. ;

- LEE, R.W. ; WARK, J.S. ; FALCONE, R.W.: Time-Resolved X-Ray Diffraction from Coherent Phonons during a Laser-Induced Phase Transition. In: *Physical Review Letters* 84 (2000), S. 111–114
- [78] REIS, D.A. ; DE CAMP, M.F. ; BUCKSBAUM, P.H. ; CLARKE, R. ; DUFRESNE, E. ; HERTLEIN, M. ; MERLIN, R. ; FALCONE, R. ; KAPTEYN, H. ; MURNANE, M.M. ; LARSSON, J. ; MISSALLA, T. ; WARK, J.S.: Probing Impulsive Strain Propagation with X-Ray Pulses. In: *Physical Review Letters* 86 (2001), S. 3072–3075
- [79] LINDENBERG, A.M. ; KANG, I. ; JOHNSON, S.L. ; FALCONE, R. ; HEIMANN, P.A. ; CHANG, Z. ; LEE, R.W. ; WARK, J.S.: Coherent control of phonons probed by time-resolved x-ray diffraction. In: *Optics Letters* 27 (2002), S. 869–871
- [80] FEURER, T. ; MORAK, A. ; USCHMANN, I. ; ZIENER, Ch. ; SCHWOERER, H. ; FÖRSTER, E. ; SAUERBREY, R.: An Incoherent Sub-Picosecond X-Ray Source for Time-Resolved X-Ray-Diffraction Experiments. In: *Applied Physics B* 72 (2001), S. 15–20
- [81] SYNNERGREN, O. ; HERBST, M. ; MISSALLA, T. ; LARSSON, J. ; KATONA, G. ; NEUTZE, R. ; WOUTS, R.: Projecting picosecond lattice dynamics through x-ray topography. In: *Appl. Phys. Lett.* 80 (2002), S. 3727
- [82] RISCHEL, C. ; ROUSSE, A. ; USCHMANN, I. ; ALBOUY, P.-A. ; GEINDRE, J.-P. ; AUDEBERT, P. ; GAUTHIER, J.-C. ; FÖRSTER, E. ; MARTIN, J.-L. ; ANTONETTI, A.: Femtosecond time-resolved X-ray diffraction from laser-heated organic films. In: *Nature* 390 (1997), S. 490–492
- [83] HAGEDORN, M. ; KUTZNER, J. ; TSILMIS, G. ; ZACHARIAS, H.: High-repetition-rate hard X-ray generation with sub-millijoule femtosecond laser pulses. In: *Appl. Phys. B* 77 (2003), S. 49–57
- [84] KORN, G. ; THOSS, A. ; STIEL, H. ; VOGT, U. ; RICHARDSON, M. ; ELSAESSER, T.: Ultrashort 1-kHz laser plasma hard x-ray source. In: *Optics Letters* 27 (2002), S. 866–868
- [85] JIANG, Y. ; LEE, T. ; KETWAROO, G. ; ROSE-PETRUCK, C.G.: High-average-power 2-kHz laser for generation of ultrashort x-ray pulses. In: *Optics Letters* 27 (2001), S. 963–965

- [86] JIANG, Y. ; LEE, T. ; KETWAROO, G. ; ROSE-PETRUCK, C.G.: Generation of ultrashort hard-x-ray pulses with tabletop laser systems at a 2-kHz repetition rate. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 20 (2003), S. 229–237
- [87] THOMSEN, C. ; GRAHN, H.T. ; MARIS, H.J. ; TAUC, J.: Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. In: *Physical Review B* 34 (1986), S. 4129–4138
- [88] ANIMISOV, S.I. ; KAPELIOVICH, B.L. ; PERELMAN, T.L.: Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. In: *Sov. Phys. JETP* 39 (1974), S. 375–377
- [89] GREINER, W.: *Thermodynamik und Statistische Mechanik*. Thun, Frankfurt am Main : Harry Deutsch, 1987
- [90] HOHLFELD, J.: *Ultrafast Electron-, Lattice- and Spindynamics in Metals*. Bd. 24. 1. Berlin : Verlag für Wissenschaft und Forschung, 1998
- [91] LIETOILA, A. ; GIBBONS, J.F.: Computer modeling of the temperature rise and carrier concentration induced in silicon by nanosecond laser pulses. In: *J. Appl. Phys.* 53 (1982), S. 3207–3213
- [92] LIETOILA, A. ; GIBBONS, J.F.: Calculation of carrier and lattice temperatures induced in Si by picosecond laser pulses. In: *Appl. Phys. Lett.* 40 (1982), S. 624–626
- [93] VAN DRIEL, H.M.: Physics of Pulsed Laser Processing of Semiconductors. In: ALFANO, R.R. (Hrsg.): *Semiconductors Probed by Ultrafast Laser Spectroscopy* Bd. 2. Academic Press , London, 1984, S. 57
- [94] MARIS, H.J.: In: *Physical Acoustics*. New York : Academic Press, 1971, S. 279
- [95] YOFFA, E.J.: Dynamics of dense laser-induced plasmas. In: *Physical Review B* 21 (1980), S. 2415–2425
- [96] KASH, J.A. ; TSANG, J.C. ; HVAM, J.M.: Subpicosecond Time-Resolved Raman Spectroscopy of LO Phonons in GaAs. In: *Physical Review Letters* 54 (1995), S. 2151–2154
- [97] HELLWEGE, K.-H.: *Landoldt-Börnstein, New Series*. Bd. 17. Springer Verlag, 1982
- [98] MORAK, A. ; USCHMANN, I. ; FEURER, T. ; FÖRSTER, E. ; SAUERBREY, R.: Femtosecond Si-K α pulses from laser produced plasmas. In: MILLER, R.D. (Hrsg.): *Ultrafast Phenomena XIII*, Springer Verlag, 2002

- [99] TANAKA, S. ; SAITO, H. ; YOSHIDA, H. ; SHIONOYA, S.: Picosecond Spectroscopy of High-Density Electron-Hole Plasma in Direct-Gap Semiconductors. In: ALFANO, R.R. (Hrsg.): *Semiconductors Probed by Ultrafast Laser Spectroscopy* Bd. 1. Academic Press , London, 1984, S. 172
- [100] SIDERS, C.W. ; CAVALLERI, A. ; SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; TOTH, Cs. ; GUO, T. ; KAMMLER, M. ; HORN VON HOEGEN, M. ; WILSON, K.R. ; VON DER LINDE, D. ; BARTY, C.P.J.: Detection of Nonthermal Melting by Ultrafast X-ray Diffraction. In: *Science* 286 (1999), S. 1340–1342
- [101] CAVALLERI, A. ; SIDERS, C.W. ; BROWN, F.L.H. ; LEITNER, D.M. ; TOTH, C. ; SQUIER, J.A. ; BARTY, C.P.J. ; WILSON, K.R. ; SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; HORN VON HOEGEN, M. ; VON DER LINDE, D. ; KAMMLER, M.: Anharmonic lattice dynamics in germanium measured with ultrafast x-ray diffraction. In: *Physical Review Letters* 85 (2000), S. 586–589

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, den 05. April 2003

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Herrn Professor Sauerbrey danke ich für die Betreuung des sehr interessanten und anspruchsvollen Themas. Sein stetiges Bemühen um neue wissenschaftliche Erkenntnisse, die zahlreichen Ideen für Verbesserungen und sein Vertrauen in das Gelingen der Experimente haben ihn zum unentbehrlichen Mitarbeiter werden lassen. Professor Förster gilt mein Dank für die Unterstützung in den Fragen der Röntgenoptik.

Einen wesentlichen Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit haben Dr. Ingo Uschmann und Dr. Thomas Feurer geleistet. Angefangen von der Beantragung des Projektes und der Absicherung der Finanzierung, über die Mitarbeit im Labor bis hin zur Unterstützung beim Schreiben der Veröffentlichungen, ohne sie hätten die Untersuchungen zur zeitaufgelösten Röntgenbeugung in Jena nicht stattfinden können.

Herrn Dr. Christian Ziener gilt mein Dank für die Betreuung des Lasers und die tatkräftige Mitarbeit während der zahlreichen Messungen an den Wochenenden und in den Nachtstunden. Dr. Stefan Düsterer danke ich für die Hinweise zu den Untersuchungen zur Plasmadynamik. Frau Andrea Lübcke, die während Ihrer Diplomarbeit die Untersuchungen zum Borrmanneffekt begonnen hat, und mittlerweile die Experimente federführend weiterführt.

Herrn Wolfgang Ziegler, dem OBERINGENIEUR, danke ich für die Hilfe bei der technischen Realisierung des Experimentes. Angefangen vom Aufbau der Vakuorkammern, über das Innenleben der Kammern bis hin zum fahrbaren Gestell, das zunächst nicht in der gewünschten Form blieb, hat er einen entscheidenden Beitrag zur technischen Realisierung des Experimentes geleistet.

Für die intensive Betreuung des Hochleistungslasersystemes, insbesondere die Bekämpfung der Vorpulse, danke ich Dr. Heinrich Schwoerer, Friederike Ewald, Burgard Beleites, Falk Ronneberger und Kai-Uwe Amthor. Herrn Falk Ronneberger danke ich zusätzlich für die sofortige und stetige Hilfe bei Problemen mit den Computern und Druckern, sowohl im Labor als auch im Büro.

Herrn Holger Blaschke gilt mein Dank für die Unterstützung bei den vielen Latex-Problemen.

Eine so umfangreiche experimentelle Arbeit ist ohne die Hilfe und die flexible Arbeit der mechanischen Werkstatt und der Elektronikwerkstatt nicht möglich.

Ohne die moralische Unterstützung und die gemeinsamen Diskussionen der Mitarbeiter im Dachgeschoß wäre die Arbeit am Institut nur halb so schön gewesen. Die Freude auf die anstehende Promotionsfeier hat die Beendigung der Arbeit voran gebracht.

Nicht zuletzt gilt mein Dank meiner Familie, die mich während der langjährigen Arbeit am Institut tatkräftig unterstützt hat.

Lebenslauf

Name:	Andreas Morak
Geburtsdatum:	11.07.1972
Geburtsort:	Jena (Thüringen)
Staatsangehörigkeit:	deutsch
Familienstand:	ledig
Privatanschrift:	Jägersdorf 36, 07768 Schöps
September 1979 – August 1987	Polytechnische Oberschule Rothenstein
September 1987 – Juni 1991	Spezialschule „Carl Zeiss“ Jena Abitur mit vertiefenden Kenntnissen in Mathematik, Physik, Chemie
Juli 1991 – September 1992	Wehrdienst
Oktober 1992 – Januar 1998	Physikstudium an der Friedrich–Schiller Universität Jena Abschluß als Diplomphysiker Thema der Diplomarbeit: „Zeitaufgelöste Messungen an Lasererzeugten Plasmen“
seit Februar 1998	Doktorand am Institut für Optik und Quantenelektronik der Friedrich–Schiller Universität Jena

Jena, den 05. April 2003

Abbildungsverzeichnis

2.1	Aufbau des Jenaer Hochleistungs Titan–Saphir Lasersystems	8
2.2	Experimenteller Aufbau für die Messungen zur Optimierung der $K\alpha$ Ausbeute	9
2.3	Mit einem von–Hamos–Spektrometer gemessene Emission des Silizium Targets im Bereich von 6,6 bis 7,2 Å. Die beiden dominierenden Linien sind die $He\alpha$ und die $K\alpha$ –Linie. Zur Aufnahme des Spektrums wurden 100 Laserpulse akkumuliert. Die von der Quelle isotrop emittierte Photonenzahl in der $K\alpha$ –Linie beträgt $6 \cdot 10^9$ Photonen pro Puls. Laserintensität auf dem Target: $3 \cdot 10^{17}$ W/cm ²	13
2.4	Typischer Signalverlauf der Röntgendiode für einen Si– $K\alpha$ –Puls hinter dem gebogenen Kristall; Laserintensität auf dem Target: $3 \cdot 10^{17}$ W/cm ²	14
2.5	Schematische Zeichnung der verwendeten Röntgen CCD–Kamera . . .	15
2.6	Mittleres Rauschen der Röntgen CCD–Kamera als Funktion der Belichtungszeit	17
2.7	Mit einer Diode gemessene Rockingkurve des gebogenen Quarzkristalls für Si– $K\alpha$ Strahlung als Faltung von: spektralen Fenster des Kristalls, der Quellgröße und der $K\alpha$ –Linienbreite; Quellgröße $\sim 10 \mu\text{m}$; Quelle auf dem Rowlandkreis ($k=1$)	20
2.8	Mit der CCD–Kamera detektierter Fokus des gebogenen Kristalls für verschiedene Abstände zwischen der CCD–Kamera und dem gebogenen Kristall; toroidaler Quarzkristall 10.0; Si– $K\alpha$ Strahlung	21
2.9	Schneidensignal zur Messung der horizontalen und vertikalen Ausdehnung des Si– $K\alpha$ Fokus, erzeugt mit dem Quarz 10.0 Kristall; Die Breite des Fokus beträgt sowohl horizontal als auch vertikal $90 \mu\text{m}$. .	22

2.10	Nach [32] berechnete Rockingkurve des Quarzkristalls für Si-K α Strahlung.	22
2.11	Zeitlicher Verlauf eines deltaförmigen Pulses nach der Reflexion am Quarzkristall.	23
2.12	Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von verschiedenen Lasereinfalls winkeln bezüglich der Targetnormale; Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall selektierte und fokussierte Si-K α Strahlung gemessen.	24
2.13	Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von verschiedenen Laserintensitäten auf dem Target; Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall monochromatisch fokussierte Si-K α Strahlung gemessen.	25
2.14	Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von verschiedenen Beobachtungswinkeln α des gebogenen Kristalls bezüglich der Targetnormale; Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall monochromatisch abgebildete Si-K α Strahlung gemessen.	27
2.15	Emission der Si-K α Strahlung für verschiedene Laserpulsdauern	28
2.16	Anzahl der Pixel der CCD-Kamera mit Energien größer 7 keV (harte Strahlung) in Abhängigkeit von der Laserpulsdauer	29
2.17	Gemessenes K α -Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von der Laserenergie (Werte der Laserenergie vor dem Kompressor); Es wird jeweils die mit dem gebogenen Quarzkristall monochromatisch abgebildete Si-K α Strahlung gemessen.	30
2.18	Gemessenes Si-K α Signal der Röntgendiode in Abhängigkeit von der Anzahl der Laserpulse für einen Punktfokus	31
3.1	Experimenteller Aufbau für die Untersuchung der Röntgenpulsdauer bzw. der transienten Änderung von Halbleiterkristallen.	34
3.2	Simulationen der Si-K α Emission [50]	35
3.3	Vergleich zwischen der mit dem Aufbau nach Abbildung 3.1 gemessene ungestörte Rockingkurve der CdTe-Schicht (rote Linie) und zwei theoretischen Rockingkurven, Akkumulation von 17 Impulsen, $E_{K\alpha}=1,7$ keV, Braggwinkel $\Theta_B=72,3^\circ$	39

3.4	Messung der Fokusgröße und Position des TiSa-Pulses (rote Kurve) und des Röntgenpulses (schwarze Kurve) zur Bestimmung des räumlichen Überlapps; Die Halbwertsbreite des TiSa-Fokus ist etwa einen Faktor 3 größer als die des Röntgenfokus.	40
3.5	Die integrale reflektierte Röntgenintensität der 320 nm dicken CdTe Kristallschicht als Funktion der zeitlichen Verschiebung zwischen dem optischen Pumpimpuls und dem Röntgenpuls. Negative Zeiten bedeuten, dass der Röntgenpuls vor dem Pumpimpuls auf die Probe trifft. Die durchgezogene Linie ergibt sich als Ergebnis der Simulation der Röntgenemission und einer linearen Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht mit einer Abfallzeit von 540 fs. [50]	41
3.6	Röntgenemission verschiedener zeitlicher Breite	43
3.7	Änderung des Reflexionsvermögens der CdTe-Schicht	43
3.8	Mittlere quadratische Abweichung der Messwerte von der Faltung eines gaussförmigen Röntgenpulses mit einer linearen Änderung des Röntgenreflexionsvermögens der CdTe-Schicht; Die Farbe gibt den numerischen Wert der Abweichung an.	44
3.9	Typische gemessene Rockingkurven der CdTe-Schicht, Akkumulation von 17 Impulsen, $E_{K\alpha}=1,7$ keV, Braggwinkel $\Theta_B=72,3^\circ$, Energiedichte $3,2$ J/cm ² ; schwarze Kurve: mit Pumplicht; Zeitverzögerung $\Delta t=632$ fs; rote Kurve: ohne Pumplicht	46
3.10	Gemessene Transmission durch den 70 μ m dicken Quarz-Kristall als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Röntgenpuls und VIS-Pumpimpuls, Akkumulation von 500 Impulsen pro Verzögerungszeit, $E_{K\alpha}=4,51$ keV, Braggwinkel $\Theta_B=24,27^\circ$	51
4.1	Mit der CCD-Kamera gemessene Rockingkurve des InSb-Kristalls in Abhängigkeit des Braggwinkels des InSb.	55
4.2	Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 1 mJ/cm ² ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si-K α Strahlung	56
4.3	Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 5 mJ/cm ² ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si-K α Strahlung	57

4.4	Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 10 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si-K α Strahlung	58
4.5	Nichtthermisches Schmelzen in InSb; Energiedichte im Pumpstrahl: 100 mJ/cm^2 ; Laserintensität auf dem Siliziumtarget: $3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$.	60
4.6	Nichtthermisches Schmelzen in InSb; Energiedichte im Pumpstrahl: 100 mJ/cm^2 ; Laserintensität auf dem Siliziumtarget: $7 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$.	61
4.7	Nichtthermisches Schmelzen in InSb; Energiedichte im Pumpstrahl: 100 mJ/cm^2 ; Laserintensität auf dem Siliziumtarget: $3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$; Vergleich der Messwerte mit der Faltung unterschiedlich langer Röntgenpulse und einer linearen Änderung des Reflexionsvermögens (analog zu Kapitel 3.3.3)	62
4.8	Aufnahme der Krater im InSb mit einem Lichtmikroskop nach der Bestrahlung mit dem TiSa-Laserpuls; Energiedichte im Pumpstrahl 400 mJ/cm^2	63
4.9	Schnitt durch die Krater im InSb nach der Bestrahlung mit dem TiSa-Laserpuls; Energiedichten: (a)= 400 mJ/cm^2 , (b)= 2 J/cm^2 , (c)= 100 mJ/cm^2	64
4.10	Rockingkurven des InSb für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; Energiedichte im Pumpstrahl 40 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 40 Impulsen; Si-K α Strahlung	65
4.11	Rockingkurven des Germanium für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; lineare Auftragung; Energiedichte im Pumpstrahl 10 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 500 Impulsen; Ti-K α Strahlung	66
4.12	Rockingkurven des Germanium für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Pump- und Probepuls; logarithmische Auftragung; Energiedichte im Pumpstrahl 10 mJ/cm^2 ; Akkumulation von 500 Impulsen; Ti-K α Strahlung	67
5.1	Vergleich zwischen der numerischen [a) und c)] und der analytischen [b) und d)] Lösung des Thomsenmodells, Energiedichte im Pumpstrahl: 5 mJ/cm^2 , Verzögerungszeit: $t=20 \text{ ps}$	73

5.2	Verlauf der Deformation im Gitter nach Thomsen im Zeitintervall von 0 bis 100 ps, Energiedichte im Pumpstrahl: 45 mJ/cm ²	74
5.3	Verlauf der Deformation im Gitter für t=20 ps, Energiedichte im Pumpstrahl: 45 mJ/cm ²	74
5.4	Temperaturverlauf des InSb für verschiedene eingestrahelte Energiedichten. Die horizontale Linie kennzeichnet die Schmelztemperatur. Die normale Gittertemperatur beträgt 300°K; Zeit t=0 ps	75
5.5	Gemessene zeitabhängige Rockingkurven für InSb(111) mit Si-K α Strahlung	76
5.6	Gerechnete zeitabhängige Rockingkurven für InSb(111) nach dem Modell von Thomsen	76
5.7	Verlauf der Deformation im Gitter mit dem TTM im Zeitintervall von 0 bis 100 ps, Energiedichte im Pumpstrahl: 60 mJ/cm ²	79
5.8	Verlauf der Deformation im Gitter für t=20 ps; TTM-Rechnung; Energiedichte im Pumpstrahl: 60 mJ/cm ²	79
5.9	Temperaturverlauf des Gitters an der freien Oberfläche als Funktion der Zeit nach dem Eintreffen des Pumpimpulses; Energiedichte im Pumpstrahl: 90 mJ/cm ²	80
5.10	Vergleich zwischen gemessenen und mit dem TTM-Modell gerechneten Rockingkurven; Parameter für die Simulation siehe Tabelle 5.2	81
5.11	Schema des Energieflusses im Halbleiter [93]	84
5.12	Vergleich zwischen den gemessenen (Linie) und den simulierten Rockingkurven (Thomsenmodell-gestrichelt, Mikrophysikalisches Modell-gepunktet); Energiedichte im Pumpstrahl: 1 mJ/cm ² ; Verzögerungszeiten: (a)=0 ps, (b)=35 ps, (c)=55 ps	87
5.13	Vergleich zwischen den gemessenen (Linie) und den simulierten Rockingkurven (Thomsenmodell-gestrichelt, Mikrophysikalisches Modell-gepunktet); Energiedichte im Pumpstrahl: 10 mJ/cm ² ; Verzögerungszeit: t=45 ps	88
5.14	Vergleich zwischen den Deformationsverläufen im Gitter (Thomsenmodell-gestrichelt, Mikrophysikalisches Modell-gepunktet); Energiedichte im Pumpstrahl: 10 mJ/cm ² ; Verzögerungszeit: t=45 ps	89

5.15	Zeitentwicklung der Deformation im InSb-Kristall für verschiedene Verzögerungszeiten; Energiedichte im Pumpstrahl 5 mJ/cm^2	90
5.16	Vergleich zwischen den gemessenen und den mit dem Mikrophysikalischem Modell simulierten zeitabhängigen Rockingkurven; Energiedichte im Pumpstrahl: (a) 1 mJ/cm^2 ; (b) 5 mJ/cm^2 ; (c) 10 mJ/cm^2 .	91

Anhang A

Wichtige Arbeiten auf dem Gebiet der zeitaufgelösten Röntgenbeugung

In der Tabelle [A.1](#) sind die wichtigsten Veröffentlichungen auf dem Gebiet der zeitaufgelösten Röntgenbeugung der letzten fünf Jahre zu sehen. Dabei stellt man fest, dass alle Arbeiten an Halbleiterkristallen bzw. -schichten durchgeführt wurden. Die Tabelle erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit.

Gruppe Paper	Röntgenquelle	Photonen Energie	Methode Repetitionsrate	Zeitauflösung Pulse pro Bel.	Kristall Effekt
San Diego [13]	Laserplasma	$5 \cdot 10^{10}$ 8,4 keV	Pump-Probe 20 Hz	3 ps 2400	GaAs Phononenanregung
Berkley [76]	Thomson- streuung	$5 \cdot 10^4$ 30 keV	Pump-Probe 5 Hz	0,5 ps 20000	InSb schnelles Schmelzen
Essen \ San Diego [100]	Laserplasma	$5 \cdot 10^{10}$ 8,4 keV	Pump-Probe 20 Hz	7 ps	Ge-Schicht Nichtthermisches Schmelzen
Berkley [77]	Synchrotron single bunch	$5 \cdot 10^4$ 5,2 keV	Streakkamera $1,5 \cdot 10^6$	3 ps 60000	InSb Phononenoszillationen
San Diego [101]	Laserplasma	$5 \cdot 10^{10}$ 8,4 keV	Pump-Probe 20 Hz		Ge, Si kohärente Oszillationen
Palaiseau [75]	Laserplasma	$1 \cdot 10^9$ 1,7 keV	Pump-Probe 10 Hz	0,7 ps 5 ... 80	InSb Nichtthermisches Schmelzen
Michigan [78]	Synchrotron	10 keV	Pump-Probe	19 ps	InSb Kohärente akustische Schwingungen
Essen [74]	Laserplasma	4,51 keV	Pump-Probe 10 Hz	0,3 ps	Ge-Schicht Schmelzen

Tab. A.1: Zusammenfassung der wichtigsten Veröffentlichungen auf dem Gebiet der zeitaufgelösten Röntgenbeugung in den letzten fünf Jahren