

Einleitung

Mit der Fähigkeit, kontrolliert Laserpulse mit Pulslängen von deutlich unter 100 Femtosekunden erzeugen zu können, ist die experimentelle Zeitauflösung unter bzw. in den Bereich der Zeitskalen der Thermalisierung von Elektronen und Phononen in Metallen gekommen. Da diese die grundlegenden Eigenschaften der Metalle und Halbleiter bestimmen, führte diese Entwicklung bereits zu einer großen Anzahl von Experimenten, die die Möglichkeit der direkten Messung der Subpikosekunden–Nichtgleichgewichtsdynamiken ausnutzten.

Neben dem Aspekt der Grundlagenforschung ist ein Verständnis dieser Prozesse für den weiteren Fortschritt in Bezug auf Mikrotechnologien mit hohen Schaltgeschwindigkeiten in elektronischen Geräten notwendig, da die Entwicklung der Informationsübertragungsraten zunehmend die Berücksichtigung der Nichtgleichgewichtsprozesse verlangt. Die Größenordnung von Strukturen für mechanische und elektronische Anwendungen rückt weit in den Submikrometerbereich. Von den Herstellungsverfahren von Masken und Mechaniken mit definierten Formen werden hohe Reproduzierbarkeit sowie gute Strukturschärfe ohne Verschmutzung und Beeinflussung des umgebenden Materials verlangt. Diese Forderungen können mit der Anwendung von Femtosekundenpulsen zur Materialbearbeitung erfüllt werden.

Die nach optischer Anregung der Leitungsbandelektronen zu unterscheidenden Thermalisierungsprozesse sind zum einen die Etablierung einer Elektronentemperatur durch Elektron–Elektron–Stöße [1–4], die lokale Thermalisierung von Elektronen und Gitter durch die Anregung von Phononen [5–11] sowie das Erreichen der Stationarität nach räumlicher Thermalisierung aller Subsysteme durch ballistischen [8, 12, 13] und diffusiven [5, 7, 9–11] Energietransport.

Die zur Untersuchung dieser Prozesse bisher verwendeten zeitaufgelösten Messmethoden sind die Photoemission [1, 2, 14–16], die Untersuchung von Oberflächen–Plasmon–Polariton–Resonanzen [17, 18] und die hochenergetische Elektronbeugung [19]. Weitere Techniken, die auch in unserer Arbeitsgruppe zur Untersuchung der Relaxationsdynamiken verwendet wurden, sind die transiente Thermoreflektivitäts- [3, 4, 6, 8, 11–13, 20–23] und -transmissionsspektroskopie [23, 24], die Messung der transienten, optischen Frequenzverdopplung in Reflexion [8, 25, 26], die Messung der Strahlablenkung aufgrund der transienten Probenausdehnung [7, 27–31] sowie die Bestimmung der Fluenzschwelle zur Metallzerstörung durch Laserpulse [5, 9, 10, 32].

Während auf die bereits in [33–36] beschriebenen transienten Reflexions- und Transmissionsmessungen hier nur referiert wird, werden im Rahmen dieser Arbeit eine neue Methode zur Messung der Temperaturdynamik mit entscheidenden Vorteilen vorgestellt und die Ergebnisse von systematischen Untersuchungen zur Ablation von Metallfilmen gezeigt. Diese

beiden Themenbereiche bilden zusammen mit einem Teil über die Anregung von kohärenten Gitterschwingungen die drei Kapitel des Ergebnisteils: Kap.(3)₄₇, Kap.(4)₇₅ und Kap.(5)₈₇.

Der Schwachpunkt der thermoreflektionsspektroskopischen Messungen liegt in der Notwendigkeit eines theoretischen Modells für die Temperaturabhängigkeit der Reflexion, um aus der Messung der Reflexion auf den transienten Materialzustand schliessen zu können. Eine Lösung dieses Problems wurde im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und wird hier vorgestellt. Durch die Erweiterung der herkömmlichen *pump-probe*-Technik um einen zusätzlichen *pump*-Puls kann die Notwendigkeit eines Modells der Reflektivität im transienten Nichtgleichgewicht durch die Messung einer kalibrierbaren Gleichgewichtsreflektivität umgangen werden, indem als Abhängigkeitsparameter nicht die Zeit, sondern die Intensität der Anregung gewählt wird. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der thermischen Leitfähigkeit des Elektronengases kann über diese Intensitätsvariation die relative Stärke von Diffusion im Elektronengas zum Energieübertrag von Elektronen ans Gitter kontrolliert werden. Diese Messmethode wird daher in dieser Arbeit als *CETC – Control of Energy Transport Competition* – bezeichnet. Die Unabhängigkeit von einem Modell für die Temperaturabhängigkeit der Reflektivität ermöglicht die Messung der Parameter, die die Dynamik bestimmen, auch an Materialien mit komplizierten Bandstrukturen wie den Übergangsmetallen und supraleitenden Metallen.

Um diese Untersuchungen in Bezug auf die charakteristischen Größen der Thermalisierungszeit von Elektronengas und Gitter und der Diffusionslänge der Elektronen zu dieser Zeit zu optimieren, wurden diese Messungen sowohl an den Edelmetallen Gold und Kupfer sowie den Übergangsmetallen Chrom und Ruthenium durchgeführt, da sich diese durch die unterschiedlichen Besetzungsdichten an der Fermikante entscheidend in der Stärke der Elektron-Phonon-Kopplung unterscheiden.

Die Abhängigkeit der Diffusionslänge von der Elektron-Phonon-Kopplung wird auch in den in Kap.(5)₈₇ vorgestellten Messungen untersucht. Mit einer Reduzierung der Filmdicke des untersuchten Metalls im Bereich der Diffusionslänge sollte sich eine Änderung in der durch die optische Anregung erzeugten Energiedichte ergeben. Diese Erhöhung der Energiedichte kann in einer charakteristischen Reduzierung der für die Zerstörung des Materials notwendigen Fluenz mit abnehmender Filmdicke beobachtet werden. Diese Experimente wurden systematisch für verschiedene Filmdicken an dem Edelmetall Gold und im Vergleich dazu in Bezug auf die Kopplungsstärke an den Übergangsmetallen Nickel, Chrom und Molybdän durchgeführt. Die Proben bestanden aus polykristallinen Filmen, die im Dickenbereich von 5 nm bis 1.5 μm auf ein Quarzsubstrat aufgebracht worden sind.

Da diese Messungen aus der Bestimmung der zur Zerstörung notwendigen Fluenz bestehen, werden diese als Ablationsmessungen bezeichnet. Sie sollen zum einen zum Verständnis der Dynamiken beitragen und die Möglichkeit verfolgen, Werte der damit verbundenen und allgemein relevanten Parameter zu extrahieren. Die Auswertung von mikroskopischen Aufnahmen (*ex situ*) wird benutzt um die aus *in situ*-Messungen gewonnenen Daten stimmig zu interpretieren. Der zweite Aspekt, der in diesem Kapitel verfolgt wird, ist die Untersuchung von Richtlinien für potentielle Anwendungen der Ablation in Bezug auf Abhängigkeiten von Ablationsschwelle und Zerstörungstiefe. Damit verbunden sind die Abschätzung des für die Bearbeitung aufzuwendenden Energieaufwandes sowie der möglichen Strukturpräzision.

Um eine Wiederholung zu vermeiden, sind in den Grundlagen einige Passagen kurz gehalten. Für eine ausführlichere Diskussion des theoretischen Hintergrundes von thermischer Diffusion und Leitfähigkeit sowie der Elektron–Elektron- und Elektron–Phonon–Streuung sei daher auf [36] verwiesen.

Zur Erleichterung des “Blätterns” sind Verweise auf Abbildungen, Tabellen und Formeln klein mit der Seitenzahl des Objektes abgeschlossen, wenn sich dieses nicht auf den beiden sichtbaren Seiten befindet. Die verwendeten Abkürzungen und Symbole sind auf Seite 141 zusammengefasst. Englischsprachige Begriffe werden verwendet, wenn sie auch im deutschen Fach–Sprachgebrauch etabliert sind; sie sind *kursiv* dargestellt.