

# Kapitel 4

## Die Erwärmung der Oberfläche

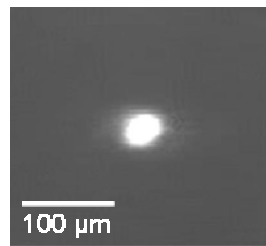
Wie bereits besprochen, wird die Oberfläche des Platin-Einkristalls mit Hilfe eines Lasers punktuell erwärmt. Um ein besseres Verständnis der zu erwartenden Veränderungen der Muster zu erlangen, ist es notwendig, einige Angaben über das Aufheizen des Kristalls zu erhalten. Im folgenden wird daher die zeitliche Entwicklung des Temperaturfeldes charakterisiert. Dazu wurden Experimente mit einer Infrarotkamera durchgeführt, deren Ergebnisse benutzt wurden, um die zeitliche Entwicklung des Temperaturfeldes detaillierter zu simulieren. Die zeitliche Auflösung der IR-Kamera ist, da sie ein Videosignal ausgibt, auf die Zeit eines Halbbildes (20 ms) begrenzt.

### 4.1 Größe des Fokus

Die Größe des Fokus des Lasers wurde bestimmt, indem bei gut fokussiertem Laser sein Streulicht an verschiedenen Stellen auf der Probe aufgenommen mit dem EMSI abgebildet wurde. Zur Messung des Spotdurchmessers wurden nur diejenigen Bilder betrachtet, bei denen der Laser nicht von einem großen oder mehreren kleinen Defekten gestreut wurde. Eines der verwendeten Bilder ist in Abbildung 4.1 zu sehen. Der Laserspot ist fast kreisförmig. Der Durchmesser der horizontalen Achse ist im Mittel  $45 \pm 6 \mu\text{m}$ , der der vertikalen Achse ist  $38 \pm 7 \mu\text{m}$ . Im Mittel kann man also von einem Fokus von ca.  $40 \mu\text{m}$  ausgehen.

### 4.2 Messungen mit der IR-Kamera

Es wurden verschiedene Messungen mit der IR-Kamera durchgeführt. Zum einen wurde die Entwicklung des Temperaturfeldes bei einem sich nicht bewegenden Laserspot über längere Zeit aufgezeichnet (Langzeitbereich). Zum



**Abbildung 4.1:** EMSI-Abbildung eines der Bilder, die zur Bestimmung der Größe des Lichtfokus benutzt wurden.

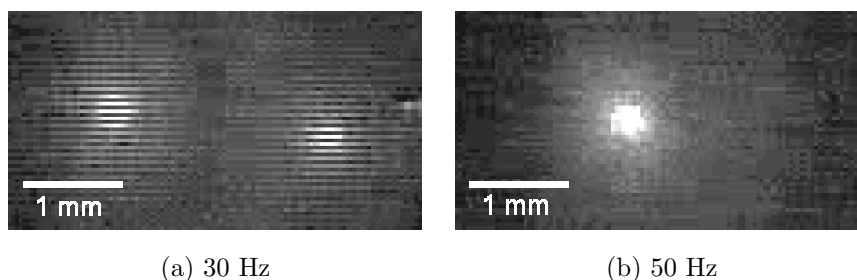
anderen wurde ein sich bewegender Spot aufgezeichnet. Diese Videosequenzen geben Aufschlüsse über die Schnelligkeit der Erwärmung und Abkühlung der Probenoberfläche durch den Laser (Kurzzeitbereich).

#### 4.2.1 Kurzzeitbereich

In den Videosequenzen des sich bewegenden Laserspots ist bereits mit dem bloßen Auge erkennbar, daß keine nennenswerte „Wärmespur“ erzeugt wird. In Abbildung 4.2 sind zwei Momentaufnahmen von verschiedenen Videosequenzen dargestellt. In Abbildung 4.2a wird der Laser mit ca. 30 Hz auf der Probe hin- und herbewegt. Es fällt auf, daß in den erwärmten – also hellen – Bereichen jede zweite Zeile dunkel ist. Das liegt daran, daß ein Videobild immer aus zwei Halbbildern zusammengesetzt wird, und zwar so, daß alle ungeradzahigen Zeilen von dem einen Halbbild stammen und alle geradzahigen Zeilen von dem anderen. Die Frequenz, mit der Videobilder aufgenommen werden, liegt bei 25 Hz. Jedes Halbbild wird in 20 ms aufgenommen. Man kann daher aus diesen Bildern schließen, daß die Erwärmung und Abkühlung der Oberfläche jeweils weniger als 20 ms benötigen. Dies bestätigte sich auch in den Simulationen, die in Abschnitt 4.3 besprochen werden.

In Abbildung 4.2b ist ein Videobild gezeigt, bei dem der Laser mit ca. 50 Hz über die Oberfläche bewegt wird. Im Video erscheint der Spot fast stationär. Nur weil die Videofrequenz nicht exakt getroffen wurde, bewegt er sich langsam hin und her. Man erkennt sofort, daß im Gegensatz zu Abbildung 4.2a hier keine schwarzen Zeilen durch den hellen Bereich gehen. Der Laser ist bei jedem aufgenommenen Halbbild ungefähr an der gleichen Stelle.

Beiden Bildern gemeinsam ist, daß, obwohl der Laser schnell hin- und herbewegt wird, sich keine nennenswerte „Wärmespur“ einstellt. Insbesondere bei Abbildung 4.2b ist es fast unmöglich festzustellen, ob der Laser senkrecht oder waagrecht bewegt wurde, ohne das Video selbst zu sehen. Vereinfacht kann man daher davon ausgehen, daß für die Reaktion an der Oberfläche der Laser immer nur dort eine erhöhte Temperatur erzeugt, wo er sich gerade



**Abbildung 4.2:** Infrarotbilder eines auf der Probe hin- und herbewegten Laserspots. a) 30 Hz: Das Bild zeigt zwei helle Punkte, da der Spot sich zwischen der Aufnahme des ersten Halbbildes und des zweiten bewegt. Deshalb ist auch jede zweite Zeile in den hellen Bereichen dunkel. Das gesamte Videobild wird durch die abwechselnde Abbildung zweier zueinander gehörender Halbbilder erzeugt. b) 50 Hz: Da der Laser bei jedem Halbbild ungefähr wieder an der gleichen Position angekommen ist wie beim Halbbild zuvor, sind keine dunklen Streifen in den hellen Bereichen zu sehen. In der Videosequenz scheint der erwärmte Bereich fast zu stehen. Er steht nur fast, da die 50 Hz des Videorecorders nicht exakt getroffen wurden. In beiden Bildern erkennt man deutlich, daß der Laser bei weitem nicht so gut fokussiert erscheint wie in Abbildung 4.1.

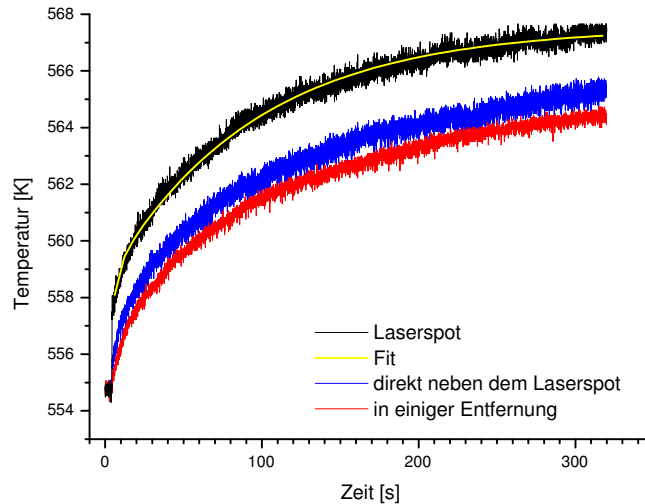
befindet.

### 4.2.2 Langzeitbereich

Wenn die Probe längerfristig der Laserstrahlung ausgesetzt ist – je nach Leistung des Lasers genügen bereits einige Sekunden – stellt man eine Erwärmung der gesamten Probe fest. Das ist im allgemeinen eher unerwünscht, da man Experimente bei konstanten Bedingungen, u.a. auch konstanter Temperatur, durchführen möchte. Eine Möglichkeit, eine konstante Temperatur zu gewährleisten, ist, den Laser während des gesamten Experiments auf der Probe zu belassen und somit eine Balance herzustellen zwischen den den Kristall erwärmenden Quellen (Lampe und Laser) und den Verlusten (hauptsächlich Strahlung und Wärmeleitung, in geringerem Maß auch Konvektion). Eine Alternative besteht darin, den Kristall nur kurzzeitig dem Laser auszusetzen und somit die Energie, die der Kristall während dieser Zeit aufnehmen kann, zu begrenzen.

Die längerfristige Erwärmung der Probe durch den Laser wurde wiederum mit Hilfe der IR-Kamera gemessen. Da zwecks Vergrößerung ein längerer Zwischenring zwischen Objektiv und Kamera eingefügt wurde, war die voreinge-



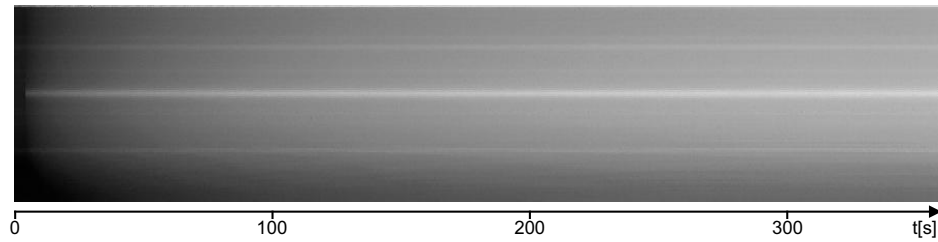


**Abbildung 4.4:** Die Temperatur der Oberfläche wurde an drei Stellen der Probe ausgewertet. Die schwarze Kurve ist die direkt vom Laser erwärmte Stelle. Die blaue bzw. rote Kurve sind die in Abbildung 4.3 c) durch Kreuze markierten Stellen. Dabei entspricht die blaue Kurve dem sich näher am Laserspot befindenden Punkt. Die gelbe Kurve stellt einen exponentiellen Fit mit zwei Zeitkonstanten an die schwarze Kurve für die Zeit nach dem Anschalten des Lasers dar.

um ca. 2,5 K macht. Danach steigt die Temperatur langsam weiter an. Auch beim Ende der Messung nach ca. 5 Minuten hatte sie noch nicht ganz ihr Sättigungsniveau erreicht. Die Temperaturkurven der nicht direkt beleuchteten Punkte weisen am Anfang nur einen kleineren bzw. keinen Sprung auf. Im weiteren Verlauf verhalten sie sich aber sehr ähnlich. Insbesondere bleiben ihre Abstände zueinander und zur Kurve des Laserspots ungefähr konstant. Das Profil des erwärmten Bereichs sollte sich also nicht wesentlich verbreitern. Denn dann müßte die blaue Kurve ihren Abstand zur roten Kurve deutlich ändern.

Daß das Profil des erwärmten Bereichs sich nicht stark verändert, kann man auch anhand eines Raum-Zeit-Diagramms (Abbildung 4.5) sehen, das senkrecht durch den Laserspot verläuft. Der Bereich des direkt erwärmten Spots bleibt scharf bestehen. Allerdings breitet sich mit der Zeit eine Zone etwas erhöhter Temperatur aus, auf der das Profil des Laserspots aufsitzt.

Fittet man eine exponentielle Kurve mit zwei Zeitkonstanten an die Daten in Abbildung 4.4, so erhält man für die Kurve des Laserspots die Zeitkon-



**Abbildung 4.5:** Raum-Zeit-Diagramm (xt-Plot) einer Schnittlinie, die durch den Laserspot verläuft. Hellere Graustufen entsprechen höheren Temperaturen. Man erkennt deutlich am Anfang das Einschalten des Lasers und das nachfolgende langsame Erwärmen der gesamten Probe. Außerhalb des recht scharfen Profils des Laserspots breitet sich mit der Zeit eine etwas wärmere Zone aus.

stanten  $\tau_{1L} = 18.9 \pm 0.5$  s und  $\tau_{2L} = 121.1 \pm 1.1$  s. Entsprechend erhält man  $\tau_{1N} = 16.5 \pm 0.3$  s und  $\tau_{2N} = 153.5 \pm 1.0$  s bzw.  $\tau_{1W} = 20.6 \pm 0.2$  s und  $\tau_{2W} = 152.3 \pm 0.8$  s für den näheren, respektive weiter entfernten Punkt. Man sieht, daß es einen Prozeß auf einer Zeitskala von ca. 16–20 s und einen weiteren auf einer Zeitskala von ca. 120–150 s gibt. Der Temperaturunterschied der beiden Punkte bleibt nach Einschalten des Lasers ungefähr konstant bei ca. 2 K. Das macht sich auch in den Fits bemerkbar, deren asymptotisch erreichte Temperaturen ebenfalls um ca. 2 K differieren.

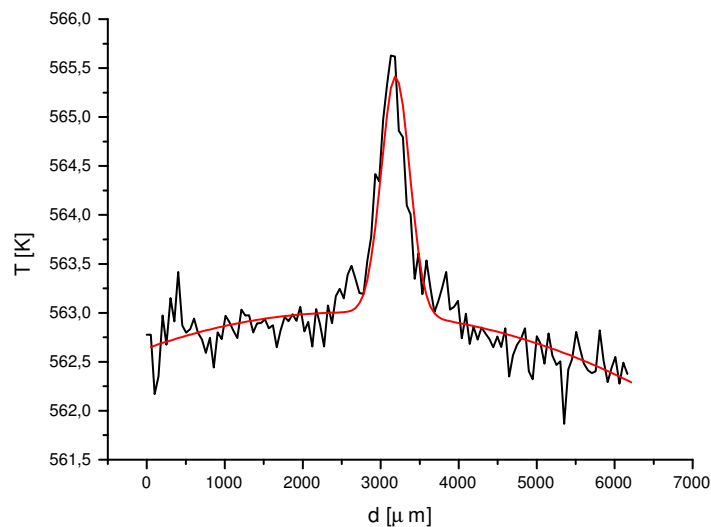
Insgesamt ergibt sich folgendes Bild: Nachdem der Laser im ersten Moment nur den unmittelbar beleuchteten Punkt erwärmt, wird wegen der Wärmeleitung nach einiger Zeit auch der Rest der Probe (Zeitkonstante ca. 18 s) und im weiteren Verlauf auch der gesamte Probenhalter (Zeitkonstante ca. 2 Minuten) erwärmt. Bis ein neues Gleichgewicht zwischen wärmenden Quellen und Verlusten durch Abstrahlung, Wärmeleitung und Konvektion gefunden ist, vergeht eine Zeit in der Größenordnung von ca. 10 Minuten. Diese Zeit ist für den Experimentator wichtig. So lange muß er im Normalfall nach dem Einschalten des Lasers warten, bis er davon ausgehen kann, daß sich die Temperatur wieder stabilisiert hat.

### 4.2.3 Größe des erwärmten Bereichs

Anhand von Abbildung 4.3b oder auch von Abbildung 4.5 kann man außerdem die räumliche Ausdehnung des Temperaturprofils abschätzen. Wenn man an das Profil eine Gaußkurve fittet (Abbildung 4.6), so erhält man eine Breite ( $2\sigma$ ) von ca.  $300 \mu\text{m}$ . Der Wärmespot hat somit einen anderen, deutlich größeren Durchmesser als der optische Fokus aus Abbildung 4.1. Das kann u.a. daran liegen, daß die IR-Kamera vor dem gleichen nicht sehr

großen Fenster positioniert werden mußte, durch das auch der Laser auf die Probe trifft. Daher konnte der Laser nicht mehr optimal fokussiert werden. Wenn aber der optische Fokus größer ist, wird natürlich auch der unmittelbar erwärmte Fleck größer.

Eine Verbreiterung des Spot-Profiles wegen der Wärmediffusion ist hingegen nicht zu beobachten. Zum einen kann man den Fit aus Abbildung 4.6 für mehrere Zeitpunkte durchführen und erhält immer ungefähr das gleiche Resultat. Zum anderen stellt man bei den Simulationen fest, daß man mit eben dem gemessenen Spot-Profil arbeiten muß, um die wesentlichen Merkmale der gemessenen Kurven (insbesondere die Höhe des ersten Sprunges in Abhängigkeit vom Abstand vom Mittelpunkt des Lasers) wiedergeben zu können. Da der Laser ja auch weiterhin die Stelle erwärmt, ist dieses Resultat plausibel.



**Abbildung 4.6:** Temperaturprofil des erwärmten Fleckes. Der Fit, der mit der Formel  $F(x) = A_0 \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{x-A_1}{A_2}\right)^2\right) + A_3 + A_4x + A_5x^2$  gemacht wurde, ergibt  $\sigma = A_2 \approx 150 \mu\text{m}$ .

## 4.3 Simulationen

### 4.3.1 Die Erwärmung

Da die Erwärmung des Kristalls im Zeitbereich unter 20 ms nicht meßbar war, wurden Simulationen durchgeführt. Dazu wurde ein Programm in C++ geschrieben, das mit der Methode der finiten Differenzen die Lösung folgender Differentialgleichung berechnete:

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \kappa_{diff} \Delta T - 5,67 \times 10^{-8} \kappa_{emis} \delta(z) (T^4 - T_{env}^4) + q. \quad (4.1)$$

Dabei ist  $T$  die Temperatur,  $\kappa_{diff}$  die Wärmediffusion von Platin und  $\kappa_{emis}$  die Emissivität von Platin im fernen IR. Der erste Term auf der linken Seite beschreibt hierbei die Diffusion der Wärme im Kristall, der zweite Term beschreibt die Abstrahlung und  $q$  beschreibt die Wärmequellen, also hier den Laserstrahl. Die Delta-Funktion  $\delta(z)$  im zweiten Term gibt an, daß nur die Oberfläche der Probe strahlt. Es wird angenommen, daß der Laserstrahl (gaußförmiges Profil) vom Zeitpunkt seines Einschaltens ( $t = 0$ ) an konstant die Mitte der kreisrunden Probe beleuchtet. Daher kann das Problem zylindersymmetrisch behandelt werden, was den Rechenaufwand deutlich erniedrigt. Die Werte der in Gleichung (4.1) vorkommenden Konstanten und einiger anderer, die ebenfalls in der Simulation benötigt wurden, sind in Tabelle 4.1 angegeben.

Da die Rückseite der Probe auf einem Metallstück aufliegt, wird ein gewisser Wärmeverlust über diese Auflage als Randbedingung angenommen. Gleichzeitig wird die Probe auch über diese Fläche geheizt, so daß die Randbedingung dann folgende Form annimmt:

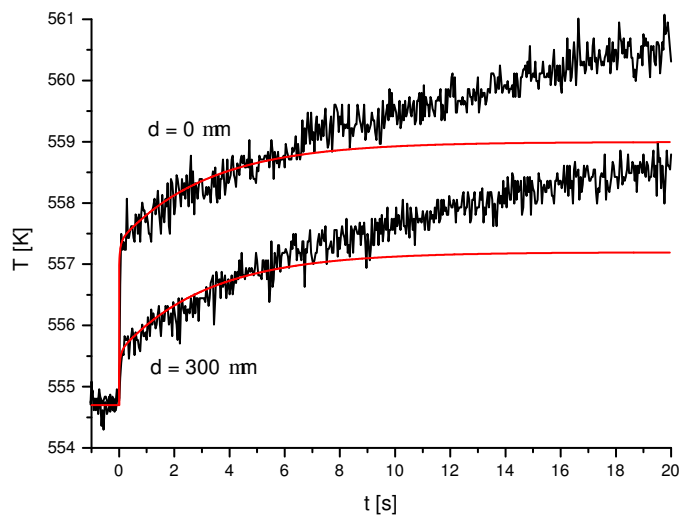
$$\frac{\partial T}{\partial z} = \beta(T - T_{env}). \quad (4.2)$$

Hierbei ist  $\beta$  ein Maß für die Größe des Lecks und  $T_{env}$  die Temperatur, mit der die Probe von hinten geheizt wird, also die Temperatur, die die Probe hat, wenn sie sich im Gleichgewicht befindet und nicht vom Laser zusätzliche

Konstante	$\kappa_{diff}$ [ $m^2/s$ ]	$\kappa_{emis}$	$c_p$ [ $J/(kg K)$ ]	$\alpha_{Laser}$	$\rho$ [ $kg/m^3$ ]
Wert	$2,61 \times 10^{-5}$	0,03	134,0	0,3	21500

**Tabelle 4.1:** Konstanten, die für die Simulation der Erwärmung der Oberfläche durch den Laser benötigt wurden. Hierbei ist  $c_p$  die Wärmekapazität von Pt,  $\rho$  seine Dichte und  $\alpha_{Laser}$  der Anteil der Strahlung des Lasers, der adsorbiert wird. Dieser wurde in einem separaten Versuch gemessen.



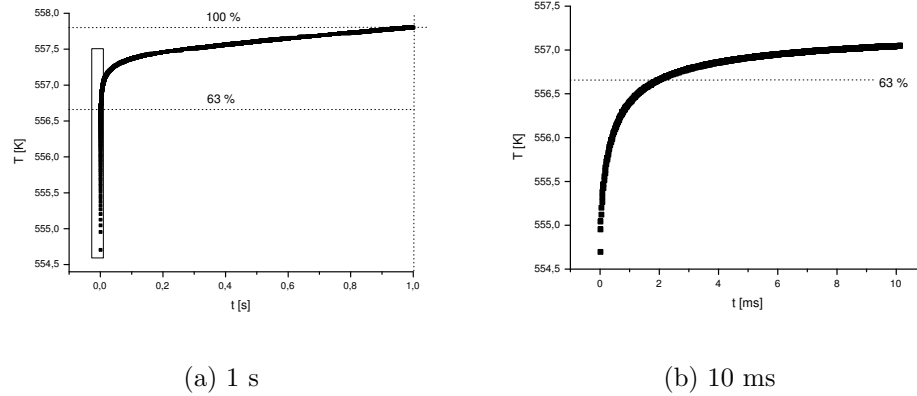


**Abbildung 4.7:** Vergleich der gemessenen Temperaturkurve mit der simulierten. Für die ersten 6–7 s zeigen die simulierten Kurven eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen. Danach jedoch sättigt die Simulation, während die gemessene Temperatur weiter ansteigt.

Energie erhält. Bei den Simulationen wird nicht berücksichtigt, daß sich der Probenhalter im Laufe der Zeit ebenfalls erwärmt, d.h.  $T_{env}$  wird als konstant angenommen.

Die Ergebnisse der Simulation wurden mit Hilfe des Parameters  $\beta$  so angepaßt, daß die gemessenen Kurven anfangs möglichst gut wiedergegeben werden. Die Breite  $\sigma$  für den Laserspot wurde entsprechend den IR-Messungen mit  $150 \mu\text{m}$  angenommen. Die Höhe des ersten Temperatursprunges zwischen ausgeschaltetem Laser und angeschaltetem bestimmt sich dann aus der Einstrahlungsleistung. Für eine auf die Probe gebrachte Leistung von  $0,341 \text{ W}$  werden die beiden Sprünge für den Laserspot selbst und für den Punkt ca.  $300 \mu\text{m}$  entfernt, welcher als blaue Kurve in Abbildung 4.4 dargestellt ist, gut reproduziert. Wird die Temperaturkurve mit einem  $\beta$  von  $2,81$  simuliert, so stimmt zwar die Zeitkonstante mit der kleineren der gemessenen überein, die Kurve selbst liegt aber viel zu weit oberhalb der tatsächlichen. In einem zweiten Schritt wurde  $\beta$  so angepaßt, daß der unmittelbar erste Teil der Temperaturkurve gut reproduziert wird. Mit  $\beta = 12,5$  gelingt dies zufriedenstellend. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.7 dargestellt.

An die simulierten Kurven können auch wieder Kurven angefitet werden, um die Zeitkonstanten der simulierten Erwärmung zu bestimmen. Man erhält



**Abbildung 4.8:** Zeitliche Entwicklung der Temperatur der Mitte des beleuchteten Fleckes. In b) ist ein Zoom des in a) durch einen Kasten markierten Bereichs dargestellt. Wie die Simulation zeigt, werden 63 % der Temperaturerhöhung nach einer Sekunde bereits nach ca. 2 ms erreicht.

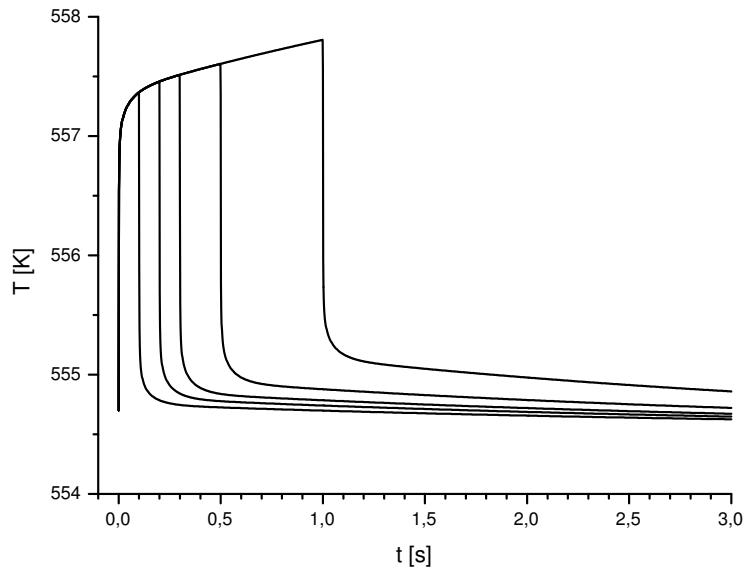
$\tau = 3,145 \pm 0,004$  s. Geht man nun zurück zu den gemessenen Daten und setzt bei der Fitgleichung  $f(x) = y_0 + A_1 \exp(-\frac{x-x_0}{\tau_1}) + A_2 \exp(-\frac{x-x_0}{\tau_2})$  für  $A_1$  und  $\tau_1$  die aus den Simulationen erhaltenen Werte ein, so erhält man für  $\tau_2 = 93 \pm 0,3$  s. Die resultierende Funktion ist der Fit, der in Abbildung 4.4 als gelbe Linie eingezeichnet ist. Es bestätigt sich also, daß es einen schnellen Prozeß gibt, der durch das Aufheizen der Probe selbst bestimmt wird, und einen zweiten, der durch die langsamere Erwärmung des Probenhalters verursacht wird.

Mit Hilfe der Simulationen ist es nun möglich, sich auch den Kurzzeitbereich etwas genauer anzuschauen: Für Zeiten zum einen kleiner 1 s (a) und zum anderen kleiner 12 ms (b) sind die simulierten Ergebnisse in Abbildung 4.8 dargestellt. Man erkennt, daß 63 % der Temperaturerhöhung nach 1 s bereits ca. 2 ms nach Einschalten des Lasers erreicht werden. Wie schon die IR-Messungen vermuten ließen, ist der erste Anstieg der Temperatur also sehr schnell.

### 4.3.2 Die Abkühlung

Mit Hilfe der Simulationen kann auch die Abkühlung der Oberfläche untersucht werden. Dies ist insbesondere wichtig für die Messungen in Kapitel 6. In Abbildung 4.9 werden die simulierten Temperaturkurven für unterschiedliche Heizdauern in der Mitte des Laserspots dargestellt. Man erkennt, daß in allen Fällen der größte Teil der Erhöhung der Temperatur nach Abschalten des La-

sers innerhalb sehr kurzer Zeit (einige Millisekunden) wieder verschwindet, ebenso wie bei der Erwärmung. Es bleibt aber über längere Zeit ein Rest zurück, der sich nur langsam wieder an das Ausgangsniveau anpaßt.



**Abbildung 4.9:** Abkühlungskurven für verschiedene Einstrahlungsdauern: 100 ms, 200 ms, 300 ms, 500 ms und 1000 ms. Der erste Temperaturabfall ist sehr schnell (einige ms). Danach jedoch verbleibt eine deutliche Resttemperatur über mehrere Sekunden (eingestrahelte Leistung: 0,341 W).

Für die Messungen, bei denen der Laser auf der Probe verbleibt aber die Position wechselt, ist aus diesen Simulationen zu sehen, daß das Temperaturprofil an der verlassenen Stelle quasi sofort verschwindet. Da der Laser nämlich die Probe als solche weiter mit Energie versorgt, erreicht diese Stelle in eben dieser kurzen Zeit wieder ihre (durch die kontinuierliche Bestrahlung erhöhte) Ausgangstemperatur.

Für die Messungen jedoch, bei denen der Laser zwischenzeitlich die Probe verläßt, wird klar, daß, auch einige Sekunden nachdem die Stelle nicht mehr erwärmt wird, noch immer Reste des vorher erzeugten Profils vorhanden sind – und sei es nur in Form einer leicht erhöhten Temperatur des gesamten Kristalls.

## 4.4 Zusammenfassung

Mit Hilfe der IR-Messungen und der Simulationen, die weitestgehend an die Messungen angepaßt wurden, kann man folgendes Bild von der Erwärmung der Probe durch den Laser zeichnen: Beim ersten Anschalten des Lasers (oder, entsprechend, wenn der Laser von einer Stelle zur nächsten bewegt wird) erfolgt der Aufbau des Temperaturprofils recht schnell. Innerhalb von wenigen Millisekunden ist bereits der größte Teil des Profils, welches man nach einer Verweildauer von 1 s bekommen würde, erreicht. Wäre der Probenhalter ein perfektes Wärmebad, so würde sich ein stationäres Profil innerhalb weniger Sekunden aufbauen. Da das nicht der Fall ist, steigt die Temperatur der gesamten Probe auch einige Minuten nach Einschalten des Lasers noch an. Der Laser aber produziert auch weiterhin ein Profil, welches der Breite seines optischen Fokus entspricht. Dieses Profil bleibt auch über längere Zeit erhalten (siehe Abbildung 4.5). Das Verschwinden dieses Profils geht ebenfalls sehr schnell, so daß die Probe auf der Zeitskala, die für die folgenden Messungen wichtig ist, quasi immer nur dort eine erhöhte Temperatur aufweist, wo der Laserspot auch im EMSI-Bild zu sehen ist. Bei Messungen, bei denen der Laser nicht kontinuierlich auf der Probe gehalten werden kann, muß man jedoch berücksichtigen, daß es eine geraume Zeit dauert (mehrere hundert Sekunden), bis die Gleichgewichtstemperatur von vor der Laserbestrahlung wieder erreicht wird.