Aufbau einer Apparatur zur Untersuchung der photoinduzierten Feldemission und erste Ergebnisse an strukturierten p-Siliziumund Goldkathoden

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades des Fachbereichs Mathematik und Naturwissenschaften Fachgruppe Physik

> der Bergischen Universität Wuppertal

vorgelegt von Dipl.-Phys. Benjamin Bornmann aus Radevormwald

Juni 2014

Die Dissertation kann wie folgt zitiert werden:

urn:nbn:de:hbz:468-20150108-115200-0

[http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=urn%3Anbn%3Ade%3Ahbz%3A468-20150108-115200-0]

Inhaltsverzeichnis

Einleitung

2	The	Theoretische Grundlagen					
	2.1	Elektr	ronische Bandstruktur	3			
		2.1.1	Volumenzustände	3			
		2.1.2	Halbleiter, p-dotiertes Silizium	7			
		2.1.3	Oberflächenzustände	8			
		2.1.4	Austrittsarbeit	9			
	2.2	Photo	emission und Elektronenanregung	11			
		2.2.1	Quanteneffizienz	13			
		2.2.2	Emittanz, Brillanz	16			
		2.2.3	Optische Polarisation	18			
		2.2.4	Optische Anregung	19			
		2.2.5	Lebensdauer	25			
		2.2.6	Polarisierte Elektronenquellen	27			
2.3 Feldemission							
		2.3.1	Metalle	29			
		2.3.2	p-Halbleiter	37			
	2.4	Photo	induzierte Feldemission und verwandte Phänomene	40			
3	Au	bau de	er UHV-Apparatur zur PFE	51			
	3.1	Gesan	ntsystem	51			
	3.2	Präpa	räparations- und Schleusenkammer				
	3.3	3.3 Analysekammer					
		3.3.1	Kathodenkonfiguration	59			

1

		3.3.2	Kippbarer Gateaufbau		60				
		3.3.3	Elektronenspektrometer		63				
		3.3.4	Elektrostatische Simulationen		68				
		3.3.5	Emissionseigenschaften		72				
	3.4	OPO-	Laser		73				
		3.4.1	Aufbau und Funktionsweise		74				
		3.4.2	Spezifikationen, Laserstrahlenschutz		79				
		3.4.3	Justagetisch mit Fokussieroptik		82				
		3.4.4	Laserfokussierung		84				
	3.5 Steuerung und Datennahme				91				
		3.5.1	Software		94				
		3.5.2	Messgeschwindigkeit und Messfehler		96				
4	Photosensitivität der Feldemission von B-dotiortom Silizium								
-	4.1	1 Struktur und Herstellung der Si-Spitzen-Arrays							
	4.2	Exper	rimentelle Ergebnisse und Interpretation		101				
		_							
5	Quanteneffizienz und Feldabhängigkeit photoemittierter								
	5 1	Elektronen aus Gold							
	0.1 5.0	Functional Enclosed and Interpretation			110				
	0.2	Exper		• •	110				
Zι	ısam	menfa	ssung und Ausblick		133				
Literaturverzeichnis									
Danksagung									
Erklärung									

Einleitung

Die Erforschung von Struktur und Dynamik physikalischer und chemischer Prozesse auf atomarem Niveau ist mit der aktuellen Entwicklung von Free-Electron-Lasern (FEL) mit einer Auflösung im Femtosekundenbereich möglich [1–12]. Zur Erzeugung der Strahlung werden hochenergetische freie Elektronen durch Undulatoren wie beim European-XFEL, FLASH oder der LCLS geführt. Andere Bauarten nutzen geeignete Einkristalle [13, 14] oder Gitter [15, 16]. Dabei ist die Brillanz des Elektronenstrahls entscheidend, da sie die Strahlqualität und Sättigungslänge des FELs bestimmt [8, 17–19]. Da die Emittanz aber im Beschleuniger nicht oder praktisch nur begrenzt reduziert werden kann [20], ist ihr intrinsischer Wert an der Kathode für einen gegebenen Strom der kritische Faktor. Die Optimierung der Kathode kann daher die Kosten für den Bau einer solchen Anlage erheblich senken und gleichzeitig ihre Performance steigern [10, 21].

Elektronenquellen auf Basis der Feld- oder Photoemission finden in vielen technischen Anlagen Verwendung [5]. Hier sind Elektronenmikroskope [22–25], diverse Quellen für Röntgen- [26–28], Mikrowellen- [29] oder THz-Strahlung [30], Sensoren [31–33] und einige weitere zu nennen [34–38]. In allen Anwendungen hängen die Eigenschaften des Systems entscheidend von der Qualität des Elektronenstrahls ab.

In Beschleunigern haben sich Photokathoden bewährt [39–48], da diese bei hohen Strömen aktuell die höchste Brillanz liefern [5,49]. Ihre Pulsdauer wird durch den anregenden Laser bestimmt [49] und ist damit bis in den fs-Bereich zugänglich [50,51]. Zudem haben diese Kathoden hohe Quanteneffizienzen [52,53], welche meist durch reaktive Materialien oder Beschichtungen aus Cs erreicht werden [46–48]. Dies reduziert die Lebensdauer auf etwa einen Monat bei einem Druck von $p < 10^{-10}$ mbar. Des Weiteren ist bei der Emittanz durch den vergleichsweise großen Laserspot und die thermische Emittanz einer Photokathode mittlerweile ein Limit erreicht [54]. Die geringste Emittanz wird dagegen mit Feldemissionskathoden erreicht [5,55–57], bei kleinen Strömen kann ihre Brillanz auch die von Photokathoden übertreffen [5,58]. Dabei werden Nadelkathoden oder CNTs verwendet, da diese durch ihren geringen Spitzenradius einen Elektronenstrahl mit minimaler lateraler Ausdehnung erzeugen [55,59]. Der Feldemissionsmechanismus wirkt zudem als Impulsfilter [60]. Nachteile sind hierbei ein limitierter Maximalstrom und eine Verbreiterung des Elektronenstrahls durch die auf die Nadel fokussierten Feldlinien [56].

Eine Kathode, die eine photoinduzierte Feldemission (PFE) einsetzt, sollte die Vorteile beider Mechanismen kombinieren können und erscheint als ein vielversprechender Kandidat für höchstbrillante Elektronenquellen [55]. Am PSI in Villigen wurde eine solche Kathode aus einer ZrC-Nadel bereits für den dortigen SwissFEL getestet [55]. Die erreichte Brillanz liegt um einen Faktor 50 unter dem für den European-XFEL benötigten Wert von $B_{XFEL} = 5 \cdot 10^{13} \text{ Am}^{-2} \text{rad}^{-2}$. Höhere Brillanzen durch einen gesteigerten Strom könnten mit flachen Kathoden erreicht werden, wenn dabei parasitäre Feldemission ausgeschlossen werden kann. Auch Emitterarrays kommen in Frage, wobei jeweils der Emittanzzuwachs durch den größeren Emissionsbereich berücksichtigt werden muss. Des Weiteren beschäftigt sich die aktuelle Forschung in diesem Bereich mit dem Anregungs- und Emissionsprozess der Elektronen. Es kann eine direkte Emission aus angeregten Zuständen sowie nach vorheriger Relaxation beobachtet werden [61-64]. Die ablaufenden Mechanismen sind aber noch nicht vollständig verstanden. Des Weiteren eignen sich solche Kathoden zur Erzeugung von Pulsen im Attosekundenbereich. Damit könnte ein neuer Bereich der Lichtwellenelektronik mit Schaltfrequenzen von bis zu 10¹⁸ Hz erschlossen werden [65]. Ein weiterer Bereich untersucht die Tunneldauer der Elektronen durch die Barriere [66].

Ziel dieser Arbeit ist es, das Verhalten der Elektronen zwischen Photoabsorption und ihrer Emission zu untersuchen und die dazu nötigen experimentellen Grundlagen zu schaffen. Dies soll später genutzt werden, um konkurrenzfähige PFE-Kathoden für die genannten Anwendungen zu entwickeln. Für ein tieferes Verständnis der PFE hat sich die Spektroskopie der emittierten Elektronen als notwendig herausgestellt [67], da sich nur damit die Zustände bestimmen lassen, aus denen heraus emittiert wurde. Eine eventuelle Relaxation kann dann festgestellt werden. Zunächst werden die theoretischen Grundlagen zum Verständnis und der Analyse der späteren Untersuchungen geschaffen. Anschließend wird die Konstruktion und Charakterisierung des Spektroskopiesystems aus Vakuumanlage und zugehörigen Komponenten vorgestellt. Dieses bildet die Basis dieser Arbeit. In den beiden folgenden Kapiteln werden die hiermit durchgeführten Messungen an strukturierten Silizium- sowie Goldkathoden präsentiert und die Ergebnisse diskutiert. Abschließend werden diese zusammengefasst und ein Ausblick auf weitere Arbeiten gegeben.

2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel soll auf die physikalischen Grundlagen eingegangen werden, die zur Analyse und Interpretation der späteren Ergebnisse nötig sind. Dazu gehören die elektronische Bandstruktur, die Photoemission, die Feldemission und eine Übersicht über die bekannten Aspekte der photoinduzierten Feldemission (PFE).

2.1 Elektronische Bandstruktur

Für die Untersuchung des Verhaltens von Elektronen in Festkörpern spielt die Bandstruktur (BS) eine zentrale Rolle. Daher soll diese hier soweit wie nötig erläutert werden. Dabei wird auf Volumenzustände und die Besonderheiten von p-dotierten Halbleitern eingegangen. Außerdem werden Oberflächenzustände behandelt, die bei der Elektronenemission eine Rolle spielen können.

2.1.1 Volumenzustände

Die Elektronen eines Atoms sind in Orbitalen um den Kern verteilt. Jeder Zustand mit Quantenzahl n, l, m kann dabei nach dem Pauli-Prinzip nur von je zwei Elektronen mit entgegengesetztem Spin s besetzt werden. Somit besitzt jedes Elektron einen diskreten Energiezustand. Nähert man N Atome soweit an, dass die Orbitale sich überlappen, spaltet jedes Energieniveau in N - 1 Zustände auf. In Festkörpern mit $N \sim \mathcal{O}(10^{23})$ führt dies zu quasikontinuierlichen Energiebändern. Die Aufspaltung hängt dabei vom Überlapp der Wellenfunktionen ab. Daher erfahren die Niveaus der Rumpfelektronen in der Regel keine Aufspaltung, wohingegen die Orbitale der Valenzelektronen bei ausreichender Aufspaltung auch gemeinsame Bänder aus verschiedenen Zuständen bilden können. Abbildung 2.1 zeigt eine solche Aufspaltung abhängig vom Atomabstand für Natrium. Die Besetzung der Bänder erfolgt nach der Fermi-Dirac-Statistik mit der Fermi-Verteilung

$$f(W) = \frac{1}{\exp\left(\frac{W-\mu}{k_B T}\right) + 1},\tag{2.1}$$

mit der Elektronenenergie W, dem chemischen Potential μ , der Boltzmann-Konstanten k_B und der Temperatur T. Die Fermi-Energie W_F entspricht bei T = 0 K dem chemischen Potential und gibt dann den höchsten noch besetzten Elektronenzustand an. Bei T > 0 K ist die Lage von W_F durch $f(W_F) = 1/2$ definiert.



Abbildung 2.1: Energieschema von Natrium in Abhängigkeit des Atomabstands [68]. Unter Standardbedingungen weist Natrium eine bcc-Struktur mit einem Atomabstand von a = 371.6 pm auf.

Detaillierte Informationen über die Energieeigenwerte eines Elektrons erhält man durch Lösen der Schrödinger-Gleichung mit dem Hamilton-Operator $H = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + U(\vec{r})$ für ein gitterperiodisches Potential $U(\vec{r})$. Hierbei werden Wechselwirkungen zwischen einzelnen Elektronen vernachlässigt, so dass das Ein-Elektron-Problem betrachtet wird. Die Lösung hierfür sind die Bloch-Wellen

$$\psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = e^{ik\vec{r}} u_{n\vec{k}}(\vec{r}) \tag{2.2}$$

mit einer Funktion $u_{n\vec{k}}(\vec{r})$, die die Periodizität des Bravais-Gitters besitzt. Nähere Informationen hierzu sind in den Lehrbüchern der Festkörperphysik zu finden. Die genaue Lage eines Elektrons innerhalb eines Bandes wird demnach durch dessen Wellenzahlvektor \vec{k} bestimmt. Das Verhalten $W(\vec{k})$, die Dispersionsrelation, entspricht gerade der Bandstruktur. In Näherung ergibt sich analog zum freien Elektron $W \propto k^2$. Entsprechend reagieren Leitungselektronen im Festkörper auf äußere Felder häufig wie freie Elektronen im Vakuum mit der effektiven Masse

$$m^* = \hbar^2 \left(\frac{d^2 W(\vec{k})}{dk^2}\right)^{-1}.$$
 (2.3)

Je nach Einfluss des Gitterpotentials kommt es dann zu unterschiedlich starken Abweichungen vom parabelförmigen Verlauf.

Die Bandstruktur wird üblicherweise entlang Richtungen hoher Symmetrie im reziproken Gitter, dem k-Raum, aufgetragen. Da sich die Bandstruktur periodisch über die Brillouin-Zonen (BZ) fortsetzt (Bloch-Theorem), können alle Bänder einer k-Richtung auf die erste BZ projiziert werden, was dem reduzierten Zonenschema entspricht. Es ist zu beachten, dass im Gegensatz zu freien Elektronen, bei denen der Impuls $\vec{p} = \hbar \vec{k}$ proportional zu \vec{k} ist, dies bei Bloch-Elektronen im Gitter nicht der Fall ist. Dies ist auf das nicht konstante Potential $U(\vec{r})$ des periodischen Gitters im Hamilton-Operator zurückzuführen. Es führt dazu, dass der Eigenzustand $\psi_{n\vec{k}}$ von H der Elektronen im Gitter (die Bloch-Welle) kein Eigenzustand des Impulsoperators ist:

$$\vec{p}\psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \frac{\hbar}{i}\nabla\psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = \hbar\vec{k}\psi_{n\vec{k}}(\vec{r}) + e^{i\vec{k}\vec{r}}\frac{\hbar}{i}\nabla u_{n\vec{k}}(\vec{r}).$$
(2.4)

Der Erwartungswert des Impulsoperators ist hier also nicht $\hbar \vec{k}$, wie es für freie Elektronen der Fall ist. Insbesondere ist dies im reduzierten Zonenschema zu beachten. Hier wird $\vec{k'} = \vec{k} + \vec{G}$ um einen beliebigen reziproken Gittervektor \vec{G} verschoben. Dies ist wegen $\exp(i\vec{G}\vec{R}) = 1$, mit einem beliebigen Vektor \vec{R} des Bravais-Gitters, ebenfalls eine Lösung für obige Schrödinger-Gleichung. Eine analoge Transformation ist jedoch für den Impuls nicht möglich und auch anschaulich schon nicht sinnvoll. Daher gehören im reduzierten Zonenschema zu übereinanderliegenden Ästen des selben Bandes im Allgemeinen unterschiedliche Impulse.

Die BS und Zustandsdichte von Kupfer ist in Abbildung 2.2 zusammen mit der ersten BZ des fcc-Gitters gezeigt. Die Bezeichnungen der Punkte und Richtungen im Impulsraum entstammen der Gruppentheorie und charakterisieren die jeweilige Symmetrie. Die Zustandsdichte $\rho(W)$ gibt an, wie viele Elektronenzustände sich in einem Energieinterval [W, W + dW] befinden. Sie ist gegeben durch

$$\rho(W) = \frac{1}{4\pi^3} \int_{\substack{W=const.}} \frac{d\vec{S}}{|\vec{\nabla}_k E|},\tag{2.5}$$

mit dem Flächenelement $d\vec{S}$ einer Fläche konstanter Energie im Impulsraum. $\rho(W)$ ist also antiproportional zur Steigung der Bänder in der BS wie auch ein Vergleich mit Abbildung 2.2 zeigt. Am Rand der BZ $(k = \pm \pi/a)$ wird gerade die Braggsche Reflexionsbedingung $(\vec{k} + \vec{G})^2 = k^2$ oder im Eindimensionalen $k = \pm \frac{1}{2}G$ mit einem reziproken Gittervektor \vec{G} mit $G = n2\pi/a$ erfüllt. Dies führt zu Reflexionen und damit stehenden Wellen für solche Elektronen. Entsprechend weicht $W(\vec{k})$ hier vom Verhalten freier Elektronen $(W(k) \propto k^2)$ stark ab, es kommt zu einem Abflachen des Bandes und damit zu einer Bandlücke in dieser Zone. An diesen Stellen verschwindet $\vec{\nabla}W$, was nach Gleichung 2.5 zu Unstetigkeiten in der Zustandsdichte führt. Diese Stellen werden als Van-Hove-Singularitäten bezeichnet und sind ebenfalls in Abbildung 2.2 zu sehen.

Das energetisch höchstliegende, bei T = 0 K noch besetzte Band wird Valenzband (VB) genannt. Ist es vollständig besetzt und von anderen Bändern durch eine



Abbildung 2.2: Erste Brillouin-Zone des fcc-Gitters mit gekennzeichneten Punkten und Richtungen hoher Symmetrie und den zugehörigen Miller-Indizes. Zustandsdichte und Bandstruktur von Cu entlang L- Γ -X-K- Γ , aus [69].

Bandlücke $W_g > 2.5$ eV getrennt, handelt es sich um einen Isolator. Das nächsthöherliegende Band ist dann das Leitungsband (LB). Ist das VB nicht vollständig besetzt, haben die Elektronen eine hohe Beweglichkeit und das Material ist elektrisch leitend. In diesem Fall entspricht das LB dem VB. Daneben gibt es Materialien, in denen das VB voll besetzt ist aber mit dem LB überlappt. Auch diese Konfiguration ist metallisch leitend. Ist $0.5 < W_g < 2.5$ eV, können Elektronen thermisch vom VB in das LB angeregt werden, was zu einer begrenzten Leitfähigkeit führt. In diesem Fall handelt es sich um einen intrinsischen Halbleiter. Bei $W_g < 0.5$ eV liegt bei Raumtemperatur ebenfalls metallische Leitfähigkeit vor. Bei $W_g \approx k_B T$ spricht man von einem Halbmetall. Die genannten Werte unterliegen keiner strengen Definition und können je nach Quelle um einige 0.1 eV variieren [69, 70].

2.1.2 Halbleiter, p-dotiertes Silizium

Die Leitfähigkeit von Silizium stammt von den vier Valenzelektronen 3s² 3p². Diese können durch Linearkombination der s, p_x, p_y und p_z -Orbitale vier identische sp³-Hybridorbitale in tetragonaler Anordnung bilden, welche ebenfalls die gegebene Schrödinger-Gleichung lösen. Durch die Annäherung der Atome im Festkörper spalten diese Niveaus auf und bilden einen energetisch günstigen *bindenden* und einen höherliegenden antibindenden Zustand, wie Abbildung 2.3 zeigt. Alle vier Valenzelektronen jeden Atoms besetzen entsprechend die bindenden Zustände, woraus das vollständig besetzte VB entsteht. Die antibindenden Zustände bleiben unbesetzt und bilden das leere LB mit einer Bandlücke von $W_q^{Si} = 1.1$ eV. Silizium ist damit ein Elementhalbleiter. Im undotierten Zustand liegt das Fermi-Niveau W_F in der Mitte der Bandlücke, da die Besetzung von VB und LB symmetrisch um W_F erfolgen muss. Um die Leitfähigkeit von Halbleitern zu kontrollieren, können Fremdatome in das Gitter eingebaut werden. In Silizium ([Ne] 3s² 3p²) führt die p-Dotierung beispielsweise mit Bor ([He] $2s^2 2p^1$) zu Elektronenfehlstellen ("Löchern"). Über diese kann ein Strom geleitet werden, indem Elektronen aus dem VB von einer Fehlstelle zur nächsten wandern. Diese Akzeptorniveaus liegen nur etwa 50 meV oberhalb des VB in der Bandlücke, wie Abbildung 2.3 schematisch zeigt. Im Gegensatz dazu führt eine n-Dotierung mit fünfwertigen Elementen wie beispielsweise Phosphor $([Ne] 3s^2 3p^3)$ in Silizium zu einem frei beweglichen Elektron pro Dotierungsatom. Diese Donatorniveaus liegen etwa 25 meV unterhalb des LB in der Bandlücke. Da die



Ladungsträgerbeweglichkeit der Elektronen etwa drei Mal höher als die der Löcher ist, sind n-Halbleiter bei gleicher Dotierung entsprechend leitfähiger als p-Halbleiter.

Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Aufspaltung der sp3-Hybridorbitale in Abhängigkeit des Atomabstands in p-dotiertem Silizium. Schematische Zustandsdichte $\rho(W)$ und Besetzungswahrscheinlichkeit D(W) der aufgespaltenen Bänder bei einem Gleichgewichtsabstand von $a_0 = 243$ pm.

2.1.3 Oberflächenzustände

Durch den Abbruch der Periodizität des Gitters an der Oberfläche eines Festkörpers, weicht dort die elektronische Struktur von der im Festkörper ab. Es entstehen elektronische (und vibronische) Oberflächenzustände (OZ). Deren Wellenfunktionen können im Kristall durch eine Volumen-Bloch-Welle mit komplexem Wellenvektor beschrieben werden. Dadurch entsteht eine mit der Eindringtiefe exponentiell abfallende Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Vor der Oberfläche kann eine Exponentialfunktion angesetzt werden, die das begrenzte Austreten der Elektronen durch das Bildladungspotential berücksichtigt. Beide Funktionen gehen an der Oberfläche stetig ineinander über, wobei Zustände mit der höchsten Aufenthaltswahrscheinlichkeit nahe der Oberfläche entstehen, wie Abbildung 2.4 zeigt. Analog zu Volumenzuständen liegen auch an der Oberfläche je nach Kristallorientierung unterschiedliche Zustände vor. Auch hierfür existieren Bandstrukturdiagramme je nach Impuls $k_{||}$ parallel zur Oberfläche.

Die durch die OZ zusätzlich an der Oberfläche angelagerten Elektronen führen zu einer negativen Aufladung, die durch eine positiv geladene Zone unterhalb der Oberfläche neutralisiert wird. Dies führt zu einer Dipolschicht, die in Metallen eine Debyesche Abschirmlänge von wenigen Atomlagen, in Halbleitern von bis zu 1000 nm aufweisen. Die elektronische Struktur der vierwertigen Elementhalbleiter wie Si und Ge ergibt sich aus den sp³-Hybridorbitalen. An der Oberfläche liegt im Vergleich zum Inneren eine geringere Überlappung der Orbitale verschiedener Atome vor. Dies führt dort zu einer geringeren Aufspaltung und zu für diese Halbleiter typischen Zuständen innerhalb der Bandlücke, wie Abbildung 2.4 schematisch zeigt. Diese Zustände können an der Oberfläche unter anderem zu einem vom Volumen abweichenden Verhalten der Leitfähigkeit oder der optischen Eigenschaften führen. Bei der Rekonstruktion der Struktur und Eigenschaften von Oberflächen aus Messdaten muss dies stets bedacht werden.



Abbildung 2.4: Wellenfunkion und Einhüllende eines Ein-Elektron-Oberflächenniveaus, aus [70]. Die Orte der Atome sind mit Punkten markiert. Schematische Darstellung der Entstehung der Volumen- und Oberflächenzustände in vierwertigen Elementhalbleitern aus den Atom- beziehungsweise sp³-Hybridorbitalen, aus [71].

2.1.4 Austrittsarbeit

Als Austrittsarbeit Φ eines Festkörpers wird die Energiedifferenz der Gleichgewichtszustände mit N Elektronen im Festkörper und N-1 Elektronen im und einem ruhenden Elektron in großer Reichweite außerhalb des Festkörpers bezeichnet. Dies definiert das Vakuumniveau W_{vac} , so dass $\Phi = W_{vac} - W_F$ gilt, wie Abbildung 2.9 in Kapitel 2.3 zeigt. Sie nimmt für reine Elemente Werte zwischen 2.14 eV (Cs) und 5.9 eV (Se) an [72]. Je nach Kristallorientierung variiert Φ um einige Zehntel eV. Dabei ragen die ortsfesten Ladungen der Atomrümpfe unterschiedlich weit aus der vergleichsweise unlokalisierten Ladungswolke der Leitungselektronen heraus. Es entsteht ein Dipolmoment. Je größer der Abstand ist, desto kleiner die Austrittsarbeit. So nimmt Φ für ein kubisch-raumzentriertes Gitter entsprechend der atomaren Rauheit von der (110)- über die (100)- und (111)-Fläche ab. Für kubischflächenzentrierte Gitter ist die Reihenfolge umgekehrt.

Experimentell lässt sich die Austrittsarbeit auf verschiedene Weisen bestimmen. Zu den gängigsten gehört dabei die Bestimmung über die thermische und die Feldsowie Photoemission. Die Stromdichte j_{th} der thermischen Emission wird mittels der Richardson-Dushman-Gleichung

$$j_{th} = AT^2 \exp\left(-\frac{\Phi}{k_B T}\right) \tag{2.6}$$

mit $A \approx 120 \text{ AK}^{-2} \text{ cm}^{-2}$ (gering materialabhängig), der Boltzmann-Konstante k_B und der Temperatur T beschrieben. Die Feldemission wird wie in Kapitel 2.3 über die Fowler-Nordheim-Stromdichte beschrieben. Dort wird näher auf eine Bestimmung von Φ eingegangen. Für die Photoemission existieren mehrere Verfahren, entweder mit oder ohne Spektroskopie der emittierten Elektronen. Dies wird in Kapitel 2.2 näher beschrieben. Alle drei Methoden ergeben für polykristalline Oberflächen einen Mittelwert der Austrittsarbeit, wobei Flächen geringerer Austrittsarbeit - je nach Emissionstyp - einen stärkeren Beitrag liefern.

Adsorbate können je nach Element oder Molekül sowie der Kristalloberfläche die Austrittsarbeit ändern. Dabei steigt die Änderung mit dem Bedeckungsgrad bis zur Vervollständigung der Adsorbatschicht an. Zur Senkung der Austrittsarbeit werden in der Praxis häufig Alkalimetalle verwendet, da diese selbst schon eine geringe Austrittsarbeit besitzen. Insbesondere ist hier Cs zu nennen, was zur Beschichtung oder in Verbindung in diversen Photokathoden wie beispielsweise GaAs:Cs oder Cs_2 Te verwendet wird. Adsorbate oder Beschichtungen erzeugen auf der Oberfläche Dipolmomente, die ähnlich wie oben bei den verschiedenen Kristallorientierungen die Austrittsarbeit ändern. Dabei kommt es zu einer Reduktion der Austrittsarbeit, wenn das Dipolmoment von der Oberfläche weg zeigt und zu einer Steigerung, wenn es hinein zeigt. Allerdings konnte auch der anomale Effekt beobachtet werden, bei dem es umgekehrt verläuft [73, 74]. Die Differenz von Austrittsarbeit und der Energie der unteren Leitungsbandkante wird als Elektronenaffinität bezeichnet. Sie ist üblicherweise positiv, kann durch Beschichtungen jedoch auch negative Werte aufweisen. Weitere Informationen zu diesem Kapitel sind in [71, 75–78] zu finden.

2.2 Photoemission und Elektronenanregung

Die Photoemission (PE) beruht auf dem äußeren photoelektrischen Effekt für dessen Deutung A. Einstein 1921 den Nobelpreis für Physik erhielt [79]. Hierbei wird eine Metall- oder Halbleiteroberfläche mit Licht der Wellenlänge λ bestrahlt. Ist die Photonenenergie $W_p = hc/\lambda$ größer als die Austrittsarbeit des Metalls, werden Elektronen emittiert. Der Strom ist dabei proportional zur Lichtintensität, die kinetische Energie der Elektronen proportional zu W_p . Dies konnte mit der Wellentheorie des Lichts nicht erklärt werden und wurde durch Einstein mit der Teilchennatur des Lichts gedeutet. Die PE kann mit dem Drei-Stufen-Modell nach Puff [80], Berglund und Spicer [81,82] oder dem Ein-Stufen-Modell nach Pendry [83–86] erklärt werden. Beide Modelle haben verschiedene Vor- und Nachteile und werden entsprechend zur Beschreibung verschiedener Effekte verwendet [87,88]. Die optische Anregung von Elektronen ist zudem auch für die PFE ein elementarer Bestandteil und wird daher in diesem Kapitel detailliert behandelt.

Im Drei-Stufen-Modell wird im ersten Schritt ein eintreffendes Photon durch ein Elektron absorbiert. Dabei nimmt es dessen Energie auf, die abzüglich der Bindungsenergie des Elektrons in dessen kinetische Energie umgewandelt wird. Der zweite Schritt beschreibt den Weg des Elektrons durch das Metall bis zur Oberfläche. Dabei kann es zu elastischen und inelastischen Stößen kommen, die ein Erreichen der Oberfläche verhindern können. In Metallen dominiert dabei die Elektron-Phonon-Streuung, die zu einer mittleren freien Weglänge von einigen Nanometern führt [89,90]. In Halbleitern dominiert dagegen die Streuung an Gitterdefekten, da die e⁻-e⁻-Streuung durch die reduzierte Zahl der freien Ladungsträger unterdrückt ist. Dies führt zu einer größeren mittleren freien Weglänge und somit zu einer höheren Effizienz der Photoemission aus Halbleitern [52,91]. Im dritten Schritt verlassen die eintreffenden Elektronen die Kathode durch die Oberflächenbarriere. Die dazu nötige Energie wird der kinetischen Energie senkrecht zur Oberfläche entnommen. Damit bleibt die Impulskomponente des Elektrons parallel zur Oberfläche $k_{||}$ erhalten. Dies führt zu einer gesteigerten Emittanz bei der Emission entsprechender Elektronen. Die Gesamteffizienz des Prozesses setzt sich aus dem Produkt der drei Einzeleffizienzen zusammen, was im folgenden Kapitel 2.2.1 genauer erläutert wird.

Das Ein-Stufen-Modell basiert auf der zeitabhängigen Störungstheorie erster Ordnung. Dabei wird der Emissionsstrom auf der Grundlage von Fermis goldener Regel mit dem Wechselwirkungsoperator in Dipolnäherung berechnet [83]. Es beschreibt die Photoemission als *einen* quantenmechanischen Übergang aus dem Bloch-Zustand eines Elektrons im Valenz- oder Leitungsband in einen zeitinversen LEED¹-Zustand unter Einfluss eines absorbierten Photons. Der zeitinverse LEED-Zustand beinhaltet den gesamten Streu- und Beugungsprozess der Elektronen auf dem Weg durch den Festkörper bis ins Vakuum.

Durch die Trennung in separate Prozesse vereinfacht das Drei-Stufen-Modell die Berechnung von Emissionsparametern wie beispielsweise der Quanteneffizienz oder Emittanz. Dies führt dazu, dass diese durch makroskopische Größen wie die mittlere freie Weglänge der Elektronen und Photonen, die Reflektivität und die Fermi-Energie sowie die effektive Austrittsarbeit beschrieben werden können. Insbesondere ist dies für verschiedene Materialien mit den gleichen Formeln durch Einsetzen der spezifischen Parameter universell beschreibbar. Allerdings ist die Trennung dieses quantenmechanischen Prozesses in drei unabhängige Prozesse aus theoretischer Sicht streng genommen nicht gerechtfertigt und führt zu Problemen bei mikroskopischen oder materialspezifischen Effekten. Hier liegt die Stärke des Ein-Stufen-Modells. Soll beispielsweise die räumliche Verteilung der emittierten Elektronen aus einem bestimmten Material berechnet werden, spielt die Bandstruktur eine große Rolle. Diese wird hierbei sowohl durch die Anfangszustände in Form von Bloch-Wellen als auch durch die zeitinversen LEED-Endzustände berücksichtigt. So findet dieses

¹Low Energy Electron Diffraction (LEED): Eine Probe im Vakuum wird mit polyenergetischen Elektronen bestrahlt. Die Energie der Elektronen liegt im Bereich von etwa 100 eV und damit bei einer de Broglie-Wellenlänge im Bereich der Atomabstände ($\lambda_{e^-}^{deB}(150 \ eV) = 1 \ \text{Å}$). In den oberflächennahen Atomlagen kommt es zur Streuung der Elektronen. Der inelastisch gestreute Anteil wird ausgeblendet, so dass nur der gebeugte Anteil auf einem Fluoreszenzschirm oder ähnlichem betrachtet wird. Aus dem entstehenden Beugungsmuster kann ähnlich wie bei der Röntgenbeugung auf die Struktur der Oberfläche der Probe geschlossen werden.

Modell große Beliebtheit bei der Analyse von ARPES²-Daten. Da die vollständige Information der Bandstruktur bei der Simulation der PE mit dem Ein-Stufen-Modell berücksichtigt wird, wird hier eine sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen erreicht. Die Vereinfachung auf die erste Ordnung der Störungsrechnung und die Dipolnäherung führt allerdings zu Problemen, wenn zum Beispiel Vielteilcheneffekte eine Rolle spielen. Diese müssen durch Erweiterungen oder Entwicklungen höherer Ordnung berücksichtigt werden [85,92].

2.2.1 Quanteneffizienz

Die Quanteneffizienz (QE) entspricht beim Photoeffekt der Anzahl der emittierten Elektronen pro eintreffendem Photon. Auf Basis des Drei-Stufen-Modells wurde die QE beispielsweise in [93] unter Annahme des Fermi-Dirac-Modells hergeleitet. Um die Einschränkungen und Folgen für die Intepretation von Experimenten bei dieser Herleitung der QE zu verstehen, soll dieser Weg im Folgenden auszugsweise dargestellt werden.

Die Emissionswahrscheinlichkeit kann durch die Separation der drei Prozesse als das Produkt der Wahrscheinlichkeiten für die einzelnen Prozesse berechnet werden. Die Anzahl der besetzten Zustände N(W) wird durch die Fermi-Dirac-Verteilung f(W) approximiert, die Anzahl der freien Zustände durch 1 - f(W). Da bei herkömmlichen Photokathoden die Überschussenergie $\hbar \omega - \Phi$ nach der Anregung klein ist, wird die Zustandsdichte als $\rho(W) \equiv 1$ um W_F angenommen und nicht wie sonst üblich durch einen \sqrt{W} -Verlauf beschrieben. Alle von der Besetzung her möglichen Anregungsprozesse erfüllen dann die Relation

$$D_{PE}(W) = f(W) \cdot (1 - f(W + \hbar\omega)) > 0, \qquad (2.7)$$

was für alle Zustände oberhalb $W_F - \hbar \omega$ gilt. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron angeregt wird, das genügend Energie besitzt, um die Kathode verlassen zu

²Angular Resolved PE Spectroscopy (ARPES): Bei der winkelaufgelösten Photoelektronenspektroskopie wird eine Probe im Vakuum mit Photonen im UV- oder Röntgenbereich bestrahlt. Die Energie- und Winkelverteilung der photoemittierten Elektronen wird gemessen. Daraus lässt sich beispielsweise die gesamte $W(\vec{k})$ -Relation der Kathode, also die Bandstruktur, bestimmen.

können, ergibt sich aus dem Quotienten

$$QE'(\omega) = \int_{W_F + \Phi - \hbar\omega}^{\infty} D(W) dW / \int_{W_F - \hbar\omega}^{\infty} D(W) dW$$
(2.8)

aus allen D_{PE} , deren Anfangsenergie ausreichend hoch (über $W_F + \Phi - \hbar \omega$) liegt und allen überhaupt möglichen Anregungen. Um die reale QE zu erhalten, muss in 2.8 noch die Streuung der Elektronen auf dem Weg zur Oberfläche und die Reflektivität der Photonen an der Oberfläche $R(\omega)$ berücksichtigt werden. Erstere kann durch die mittlere freie Weglänge der Photonen $\lambda_{phot}(\omega)$ und Elektronen $\lambda_{ee}(W)$ im Festkörper ausgedrückt werden. Der Anteil der Elektronen pro Einheitsstrecke in einer Tiefe s, die nicht gestreut wurden, beträgt

$$n(s, W, \Theta, \omega) = \frac{1}{\lambda_{phot}(\omega)} \exp\left(-s\left(\frac{1}{\lambda_{phot}(\omega)} + \frac{1}{\lambda_{ee}(W)\cos(\Theta(W))}\right)\right), \quad (2.9)$$

mit dem Winkel Θ relativ zur Oberflächennormalen. Hierbei wurde angenommen, dass der Laser senkrecht auf die Kathode strahlt. Für andere Bestrahlungswinkel müsste in Gleichung 2.9 wie bei λ_{ee} ein zusätzlicher $\cos \theta$ -Term für den Winkel θ des Lasers zur Oberflächennormalen eingefügt werden. Nimmt man an, dass nur solche Elektronen die Oberfläche erreichen, deren Bewegung unter $\Theta_{max} < 20^{\circ}$ erfolgt, kann dann wegen $\cos \Theta \approx \text{const.}$ für $0 \leq \Theta \leq 20^{\circ}$, der Winkelbereich mit seiner jeweiligen Streuwahrscheinlichkeit auf 0-20° mit konstanter Streuung eingegrenzt werden. Zudem ist $\lambda_{ee}(W) \approx \overline{\lambda}_{ee} = \text{const.}$, da die kinetische Energie der Elektronen nach der Anregung annähernd gleich ist. Damit ist dann $n(s, W, \Theta, \omega) \approx n(s, \omega)$. Der Gesamtanteil der Elektronen aus allen Tiefen s, die nicht gestreut wurden ist damit

$$N'(\omega) = \int_{0}^{\infty} n(s,\omega)ds = \frac{1}{1 + \frac{\lambda_{phot}(\omega)}{\lambda_{ee}}}.$$
(2.10)

Es wurde angenommen, dass jede Streuung dazu führt, dass ein Elektron nicht oder nur mit unzureichender Energie zur Oberfläche gelangt. Um die Wahrscheinlichkeit der angeregten Elektronen, sich in einer geeigneten Richtung zu bewegen, korrekt wieder zu geben, muss ähnlich wie in Gleichung 2.8 hier noch über den geeigneten Raumwinkel integriert werden. Zusammen mit Gleichung 2.8 ergibt sich schließlich

$$QE = (1 - R(\omega)) \frac{\int_{W_F + \Phi - \hbar\omega}^{\infty} D_{PE}(W) dE \int_{\cos \Theta_{max}(W)}^{1} d(\cos \Theta) \int_{0}^{2\pi} d\Phi N'(\omega)}{\int_{W_F - \hbar\omega}^{\infty} D_{PE}(W) dW \int_{-1}^{1} d(\cos \Theta) \int_{0}^{2\pi} d\Phi}.$$
 (2.11)

Es kann in Näherung³ cos $\Theta_{max}(W) \approx \sqrt{(W_F + \Phi)/(W + \hbar\omega)}$ angenommen werden. Mit f(W) = H(W), der Heaviside-Stufenfunktion, also der Näherung T = 0 K, lässt sich die Integration in Gleichung 2.11 ausführen und es ergibt sich:

$$QE = \frac{1 - R(\omega)}{1 + \frac{\lambda_{phot}(\omega)}{\overline{\lambda_{ee}}}} \frac{(\hbar\omega - \Phi)^2}{8\Phi(W_F + \Phi)}.$$
(2.12)

Die zur Berechnung angenommenen Näherungen sollen hier kurz zusammen gefasst werden, um die Grenzen dieses Modells zu verdeutlichen. Zunächst wurde das Drei-Stufen-Modell der PE angesetzt. Dies vernachlässigt alle möglichen Resonanzen in der Anregung. Bandstrukturspezifische Effekte können damit also nicht korrekt wiedergegeben werden. Dazu müsste die QE auf Basis des Ein-Stufen-Modells berechnet werden, was jedoch umfangreicher und für jedes Material mit der jeweiligen Kristallorientierung separat erfolgen müsste. Die Näherung der Elektronenbesetzung durch die Fermi-Funktion unter Vernachlässigung der Zustandsdichte $\rho(W)$ sollte keine großen Auswirkungen haben, solange $d\rho(W)/dW$ im Bereich des Fermi-Niveaus klein ist und $\hbar \omega \gtrsim \Phi$. Die Vernachlässigung der $W^{-3/2}$ -Abhängigkeit von λ_{ee} [89] führt nach numerischer Rechnung zu einer um etwa 3% zu hohen QE [93]. Auf gleiche Weise lässt sich der Fehler durch die vernachlässigte Winkelabhängigkeit auf unter +1% abschätzen. Der Grund für den in beiden Fällen kleinen Fehler liegt in der geringen Energiebreite $\hbar\omega - \Phi$ der angeregten Elektronen. Die Näherung T = 0K ist zutreffend, solange $\hbar \omega - \Phi >> k_B T$ ist. Für T >> 0 K lässt sich numerisch eine Steigerung der QE um 0.1% und 10% für 300 K und 2000 K abschätzen.

³Die Mindestenergie, die ein Elektron zum Passieren der Barriere benötigt, beträgt $W = W_F + \Phi$. Es tritt dann senkrecht zur Oberfläche aus. Hätte es einen Impuls parallel zur Oberfläche, wäre dieser nach der Emission erhalten und das Elektron hätte eine Überschussenergie, die nicht zum Passieren der Barriere nötig war. Mit einer Energie $W + \hbar \omega > W_F + \Phi$ ist auch einen Impuls parallel zur Oberfläche möglich. Eine Betrachtung der Impulskomponenten liefert dann $\cos \Theta_{max}(W) \approx \sqrt{(W_F + \Phi)/(W + \hbar \omega)}$.

2.2.2 Emittanz, Brillanz

Die Emittanz eines Teilchenstrahls entspricht dem sechsdimensionalen Phasenraumvolumen $V_P(x, y, z, p_x, p_y, p_z)$, welches seine Teilchen einnehmen. Um dies praktisch zugänglich zu machen, wird häufig die projezierte Emittanz entlang der Bewegungsrichtung und in den zwei transversalen Dimensionen betrachtet. Nach dem Satz von Liouville ist V_P erhalten, sofern die Teilchen kanonischen Bewegungsgleichungen folgen [20]. Praktisch ist dies der Fall, solange beispielsweise keine Raumladungskräfte wirken, die Teilchen keine Synchrotronstrahlung emittieren und allgemein nur lineare Optiken auf die Teilchen wirken. Bei letzteren oder der Beschleunigung der Teilchen ändert sich zwar die Form des besetzen Phasenraums, das Volumen bleibt jedoch konstant. Die Raumladungskräfte spielen nur auf den ersten Metern eines Beschleunigers eine wichtige Rolle, da die Teilchen dort noch nicht relativistisch sind. Auf dieser Strecke tritt in der Regel der größte Emittanzzuwachs auf. Daher ist man bestrebt Injektoren bei hohen Beschleunigungsfeldstärken zu betreiben. So wird bisher trotz eines supraleitenden Beschleunigers oft ein normalleitender Cu-Injektor verwendet, da dieser gepulst bei höheren Feldgradienten betrieben werden kann.

Mathematisch gibt es eine Reihe von Definitionen für die Emittanz, entsprechend des jeweils erfassten V_P [78,93–95]. Eine häufige Verwendung findet die normalisierte rms-Emittanz

$$\varepsilon_{n,rms} = \frac{1}{m_0 c} \sqrt{\langle x^2 \rangle \langle p_x^2 \rangle - \langle x p_x \rangle^2},\tag{2.13}$$

nach [77] mit

$$\langle x^2 \rangle = \frac{\sum x^2}{n} - \left(\frac{\sum x}{n}\right)^2, \\ \langle p_x^2 \rangle = \frac{\sum p_x^2}{n} - \left(\frac{\sum p_x}{n}\right)^2, \\ \langle xp_x \rangle = \frac{\sum xp_x}{n} - \frac{\sum x\sum p_x}{n^2}.$$
(2.14)

x und p_x bezeichnen die Orts- und Impulskoordinaten, die Summen laufen über alle Teilchen n. $\varepsilon_{n,rms}$ ist bis auf den Faktor π proportional zum rms- V_P . Die reale Emittanz des Strahls berechnet sich mit dem mittleren longitudinalen Impuls \overline{p}_z zu

$$\varepsilon_{rms} = \frac{1}{\overline{p}_z} \varepsilon_{n,rms}.$$
(2.15)

An dieser Stelle wird die *adiabatische Dämpfung* offensichtlich: Durch die Beschleunigung nimmt der Impuls zu und damit die Emittanz ab. Die transversalen Impulse bleiben dabei jedoch unverändert, weshalb in der Regel die normalisierte Emittanz zur Beschreibung des Strahls entlang des Beschleunigers verwendet wird. Ohne es explizit zu kennzeichnen, wird in dieser Arbeit die Emittanz synonym mit der normalisierten rms-Emittanz verwendet.

Die transversale Emittanz kann statt der Impulse $p_{x,y}$ auch durch Winkel x', y' der Impulse zur longitudinalen Achse angegeben werden:

$$\varepsilon_{n,rms}' = \frac{\overline{p}_z}{m_0 c} \sqrt{\langle x^2 \rangle \langle x'^2 \rangle - \langle xx' \rangle^2},\tag{2.16}$$

wenn p_x und p_z unabhängig sind. Näheres hierzu ist in [77] zu finden. Für praktische Zwecke kann eine Abschätzung der transversalen Emittanz unmittelbar vor der Kathode in der Regel durch das Produkt aus rms-Emitterradius und dem rms-Winkel senkrecht zur Strahlachse unter dem emittiert wird, abgeschätzt werden⁴.

Ein weiterer wichtiger Faktor zur Beschreibung eines Elektronenstrahls in einem Beschleuniger ist die Brillanz (englisch "brightness")

$$B = \frac{\eta I}{\pi^2 \varepsilon_x \varepsilon_y} \tag{2.17}$$

mit dem Strompuls I pro Elektronenpaket, nach [96]. Der Faktor η variiert je nach Definition von V_P , welches die Emittanzen einschließt und liegt in der Regel um 1. Wie für die Emittanz existieren auch für die Leuchtdichte verschiedene Definitionen, die sich üblicherweise jedoch nur in η unterscheiden, wie in [96] erläutert wird.

⁴Genau gilt dies falls $\langle xx' \rangle \approx 0$. Hierbei handelt es sich um den Fall, dass der Strahl nicht konvergent oder divergent ist, also um Punkte an denen der Strahl im Rahmen seiner Betatronschwingung eine Taille aufweist. Näheres ist in [77,94] zu finden.

2.2.3 Optische Polarisation

Die Polarisation des Lasers spielt eine wichtige Rolle bei der Anregung der Elektronen. Daher soll der Zusammenhang zwischen der Polarisation von Licht im Wellenund Teilchenbild hier kurz erläutert werden. Der Vektor des elektrischen Feldes einer transversalen elektromagnetischen Welle gibt die Richtung der Polarisation an. Ist dieser Vektor zeitlich konstant, spricht man von linearer Polarisation. Wenn er rotiert handelt es sich um zirkulare Polarisation. Eine Überlagerung beider Varianten entspricht der elliptischen Polarisation. Das Verhalten des Lichts beim Passieren von Polarisatoren oder anderen optischen Elementen kann in Lehrbüchern der klassischen Optik gefunden werden und wird als bekannt vorrausgesetzt. Aufgrund des Korrespondezprinzips muss das selbe Verhalten nun auch im Photonenbild wiedergefunden werden können. Das Äquivalent zur Schwingungsrichtung einer Welle stellt bei den Photonen ihr Spin dar. Da Photonen masselos sind, kann der Spin nur parallel oder antiparallel zur Bewegungsrichtung orientiert sein. Dies entspricht der linksbeziehungsweise rechtszirkularen Polarisation einer Welle. Die lineare Polarisation der Welle kann dann als Überlagerung zweier entgegengesetzt rotierender Wellen dargestellt werden. Entsprechend setzt sich linearpolarisiertes Licht aus der Überlagerung von Photonen beider Spinorientierungen zusammen. Nun kann man die Intensität eines linearpolarisierten Lichtstrahls soweit abschwächen, dass pro Zeitintervall nur noch einzelne Photonen auf einen linearen Polarisationsfilter treffen. Die lineare Polarisation muss dann auch für das einzelne Photon gelten - es passiert den Filter oder nicht. Daher besteht ein linearpolarisierter Lichtstrahl aus Photonen, deren Spin für jedes einzelne Photon aus der Überlagerung der beiden Spineigenzustände $|+1\rangle$ und $|-1\rangle$ entspricht. Der mittlere Erwartungswert des Spins eines solchen Photons ist Null, bei einer einzelnen Messung wird jedoch stets ein Spin von +1oder -1 gemessen. Daher spielt die Polarisation eines Lasers eine entscheidende Rolle bei der optischen Anregung von Elektronen in Festkörpern, bei der die Drehimpulserhaltung gültig ist. Des Weiteren bestimmt die Polarisation senkrecht und parallel zur Einfallsebene des Lasers auf die Kathode die Reflexion an der Kathodenoberfläche, wie in Kapitel 3.4.2 noch genauer ausgeführt wird. Bei Intrabandanregungen muss zudem die Polarisation eine Komponente in der Beschleunigungsrichtung des Elektrons aufweisen. Nähere Details können in [97–102] gefunden werden.

2.2.4 Optische Anregung

Ein Photon mit Wellenfunktion⁵ $\vec{A}(\vec{k})$ besitzt eine Energie $W_p = \hbar \omega$, einen Impuls $\vec{p}_{phot} = \hbar \vec{k}$ und den Gesamtdrehimpuls⁶ $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$ mit Spin s = 1. Der Gesamtdrehimpuls kann die Werte $j = 1, 2, 3, \ldots$ annehmen. j = 0 ist wegen der transversalen Polarisation nicht möglich. Zu jedem Wert j existiert zudem ein gerader und ein ungerader Zustand. Dies findet sich in der Praxis in den bekannten Multipolübergängen wieder. Ein Photon mit Parität $(-1)^j$ wird als elektrisches 2^j -Pol-Photon oder Ej-Photon bezeichnet, mit Parität $(-1)^{j+1}$ als magnetisches 2^j -Pol-Photon oder Mj-Photon. Der ungerade Zustand mit j = 1 entspricht gerade dem bekannten elektrischen Dipolphoton, wie es in elektrischen Dipolübergängen auftritt. Ein elektrisches Quadrupolphoton entspricht dem geraden Zustand mit j = 2 und ein magnetisches Dipolphoton dem geraden Zustand mit j = 1. Näheres hierzu ist in [97] zu finden.

Die Photoabsorption beschreibt die Anregung eines Elektrons durch ein Photon. Dabei nimmt das Elektron die Energie, den Impuls sowie den Drehimpuls des Photons auf. Die zusätzliche Energie hebt das Elektron in der Bandstruktur in einen angeregten Zustand. Der Impuls des Photons ist relativ zu dem des Elektrons allerdings vernachlässigbar: Ein Photon mit einer Energie von $W_p = 5$ eV besitzt einen Impuls von $\hbar k = W/2\pi c \simeq 2.7 \cdot 10^{-9}$ eVs/m, ein Elektron am Rand der

⁵Eine Wellenfunktion des Photons im Sinne der nichtrelativistischen Quantenmechanik existiert nicht. Der Begriff der Koordinaten hat hier keine physikalische Bedeutung. Daher kann diese Wellenfunktion unter anderem nicht als Wahrscheinlichkeitsamplitude der räumlichen Lokalisierung interpretiert werden. Sie ergibt sich hier aus der Quantisierung des freien elektromagnetischen Feldes und entspricht den ebenen Wellen im Vektorpotential [97]. Weitere Informationen sind in [99–103] zu finden.

⁶Physikalisch lassen sich Bahndrehimpuls l und Spin s des Photons nicht trennen. Die Wellenfunktion $\vec{A}(\vec{k})$ eines Teilchens mit Spin s ist ein Spinor der Stufe 2s. Gleichzeitig handelt es sich bei der Wellenfunktion um einen dreidimensionalen Vektor. Ein Vektor entspricht einem Spinor zweiter Stufe mit der Dimension 2s + 1. Der Spin des Photons beträgt also s = 1. Der Bahndrehimpuls hängt über die Kugelfunktionen mit der Ortsabhängigkeit zusammen (oder nach Transformation äquivalent mit dem Impuls \vec{k}). Um Spin und Bahndrehimpuls nun trennen zu können, dürfen beide nicht durch irgendwelche Einschränkungen miteinander verbunden sein. Bei Photonen stellt die Transversalitätsbedingung $\vec{k} \cdot \vec{A}(\vec{k}) = 0$ einer elektromagnetischen Welle jedoch eine solche Einschränkung dar, die Impulsabhängigkeit des Spinors ist eingeschränkt. Physikalisch entspricht dies einer Vermischung von l und s [97]. Zudem ist die übliche Definition des Spins als Drehimpuls des ruhenden Teilchens für Photonen nicht sinnvoll, da für diese kein Ruhesystem existiert. Eine Unterscheidung ist jedoch in soweit sinnvoll, dass s = 1 den Vektorcharakter der Wellenfunktion festlegt und l die Parität des Photonenzustandes $P = (-1)^{l+1}$ bestimmt. Weitere Informationen sind in [101] zu finden.

Brillouin-Zonengrenze von $\hbar k = \hbar \pi / a \simeq 3.8 \cdot 10^{-6}$ eVs/m für einen Gitterabstand $a_{Si} = 543$ pm. Die Photoabsorption entspricht in diesem Fall also einem vertikalen Übergang in der Bandstruktur. Hierbei spricht man von einem direkten Übergang. Bei einem indirekten Übergang wird parallel zur Absorption des Photons ein Phonon erzeugt oder absorbiert. Dies besitzt eine vernachlässigbare Energie, allerdings einen Impuls in der Größenordnung dessen des Elektrons. Bei einem indirekten Übergang nimmt das Elektron also in guter Näherung die Energie des Photons und den (entgegengesetzten) Impuls des Phonons auf. Entsprechend des optischen Übergangs vom obersten Valenzband- zum untersten Leitungsbandzustand eines Halbleiters, erfolgt die Unterteilung in direkte und indirekte Halbleiter.

Bei der Photoanregung wird zwischen Intra- und Interbandübergängen unterschieden. Bei ersteren findet der Übergang innerhalb eines Bandes statt. Er kann sowohl strahlungslos als auch durch Photoabsorption oder -emission verlaufen. Bei der Beteiligung eines Photons, kann dies im Wellenbild als Beschleunigung eines Leitungselektrons durch das elektrische Feld der Strahlung verstanden werden. Im Modell des freien Elektronengases wird ein Maximum der Photoabsorption bei der Plasmafrequenz

$$\omega_{pl} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_1 \varepsilon_0 m_e}} \tag{2.18}$$

des Materials erreicht, wobei n_e die Elektronendichte, ε_1 die Permittivität des Materials, ε_0 die elektrische Feldkonstante und m_e die Elektronenmasse bedeutet. Dies entspricht einer Longitudinalschwingung des Elektronengases, die in Form von Plasmonen als Quasiteilchen quantisiert sind. Sie besitzen üblicherweise eine Energie im Bereich um 10 eV. Im Teilchenbild des Lichts kann der Intrabandübergang neben der Plasmonenanregung als die Absorption eines Photons durch ein Elektron verstanden werden, wobei keine Drehimpulserhaltung gegeben ist. Dies ist unten noch näher ausgeführt. Bei solchen Übergängen ist stets ein Phonon beteiligt, weil der tatsächliche Impuls eines Elektrons an verschiedenen Punkten eines Bandes stets verschieden ist. Dies ist wie oben erläutert auch der Fall, wenn beide Zustände im reduzierten Zonenschema übereinanderliegen. Des Weiteren können Intrabandübergänge durch reine Phononenstreuung erfolgen. Dies ist beispielsweise bei vielen thermischen Übergangsprozessen der Fall [104, 105]. Interbandübergänge werden meist durch Absorption oder Emission eines Photons dominiert. Die thermische Anregung vom Valenz- ins Leitungsband eines Halbleiters beispielsweise stellt eine Abweichung dar. Für elektrische Dipolübergänge in Atomen gelten die bekannten Drehimpulsauswahlregeln $\Delta l = \pm 1$, $\Delta m = 0, \pm 1$. Wegen der Drehimpulserhaltung muss der Spin des Photons von $s_{phot} = \pm 1$ den Drehimpuls l des Elektrons um den entsprechenden Wert ändern. Diese Auswahlregeln gelten in Festkörpern in dieser Form häufig nicht mehr. Die Drehimpulserhaltung folgt aus der Rotationssymmetrie der Atome (Noether-Theorem, [20]). Diese ist in kristallinen Festkörpern jedoch nicht mehr oder nur für diskrete Drehungen gültig. Daher ist auch die Drehimpulserhaltung hier nicht mehr uneingeschränkt gültig. An deren Stelle bestimmen dann Symmetriegruppen des Gitters sowie die Parität von Ausgangs- und Endzustand die erlaubten Übergänge [106, 107].

Des Weiteren entspricht der Bahndrehimpuls l der gebundenen Elektronen Zuständen, deren Komponenten der Wellenfunktionen durch Kugelfunktionen Y_{lm} l-ter Ordnung ausgedrückt werden, wie sie sich für das Ein-Elektron-Problem im Wasserstoffatom ergeben. Die zu Bändern aufgespaltenen Zustände der Elektronen im Festkörper sind dagegen Bloch-Wellen, für die ein Bahndrehimpuls analog zu dem des Elektrons im Atom nicht mehr definiert ist⁷. Man bezeichnet Zustände oder Bänder in der Bandstruktur daher oft nur als s(p,d,...)-artig. Die Übergangswahrscheinlichkeit ist daher hier ein geeigneteres Kriterium als die Frage nach erlaubten oder nicht erlaubten Übergängen. Dieses Verhalten lässt sich beispielsweise auch in XAFS⁸-Spektren, insbesondere bei den Übergangsmetallen, gut beobachten.

Nach obigen Überlegungen weisen Festkörper andere optische Eigenschaften auf als Atome, die lediglich diskrete Spektrallinien emittieren. Dies wird im Folgenden näher betrachtet. Zunächst ist durch die Aufspaltung der diskreten Zustände in qua-

 $^{^{7}}Y_{lm}$ sind Eigenfunktionen des Drehimpulsoperators, die Bloch-Wellen dagegen in der Regel nicht. Daher ist der Erwartungswert des Drehimpulsoperators angewendet auf einen Bloch-Zustand kein Eigenwert des Drehimpulses und liefert damit keine physikalisch messbare Größe.

⁸X-ray Absorption Fine Structure (XAFS): Bei der Röntgenabsorption von Molekülen, Flüssigkeiten oder Festkörpern kommt es im Bereich einer Absorptionskante zur Interferenz der erzeugten Photoelektronen an den Nachbaratomen. Aus der resultierenden Feinstruktur der Absorption oberhalb der Kante (Extended X-ray Absorption Fine Structure, EXAFS) kann auf die atomare Umgebung des durch die Absorptionskante ausgewählten Elements geschlossen werden. Der kantennahe Bereich (X-ray Absorption Near Edge Structure, XANES) gibt unter anderem Auskunft über die elektronische Struktur am und oberhalb des Fermi-Niveaus, da es hier zu Anregungen in diese Zustände kommt.

sikontinuierliche Bänder eine sehr große Anzahl an Zuständen vorhanden. So lässt sich in Metallen zu vielen Photonenenergien ein energetisch möglicher Ubergang, allerdings mit jeweils variierender Übergangswahrscheinlichkeit, finden. Dies ist auch schon anhand der silbrigen (farblosen) Farbe der meisten Metalle zu erkennen. Wenn die Energiedifferenz vom Fermi-Niveau zum energetisch nächsttieferen Band im Bereich des sichtbaren Lichts liegt, kann es dagegen zu einer bevorzugten Absorption in einem Energiebereich und damit zu einer bestimmten Farbe kommen. Sofern verschiedene Übergänge möglich sind, haben direkte (Dipol-)Übergänge die höchste Übergangswahrscheinlichkeit, also vertikale Übergänge zwischen verschiedenen Bändern mit $\Delta l = \pm 1$. Bei indirekten Übergängen ist die Übergangswahrscheinlichkeit durch die Absorption oder Emission des Phonons reduziert. Das gleiche gilt für vertikale und nichtvertikale Intrabandübergänge, da hier ebenfalls ein Phonon benötigt wird. An Kupfer und Gold lässt sich dies gut verdeutlichen. Kupfer besitzt ein über 15 eV breites, s- und p-artiges Leitungsband, das von einem flachen, 4 eV breiten, dartigen Band mit hoher Zustandsdichte überlagert ist. Die Oberkante der d-Bänder liegt 2.4 eV unterhalb des Fermi-Niveaus im 4s-Band. Entsprechend steigt ab dieser Energie die Absorption von Licht an und steigt mit zunehmender Energie. Dies liegt zum einen an der hohen Zustandsdichte der d-Bänder, zum anderen an der höheren Übergangswahrscheinlichkeit des direkten Interbandübergangs. Im sichtbaren Bereich wird daher überwiegend gelbes bis rotes Licht reflektiert. Bei Gold ist es ähnlich. Allerdings kommt es durch die hohe Ladung des Kerns und die daraus resultierende hohe Geschwindigkeit der Elektronen zu einer relativistischen Korrektur der Bänder. s- und p-Bänder werden komprimiert, d- und f-Bänder verbreitert. Insgesamt ergibt sich dadurch die stärkste Reflexion im Gelben.

Neben elektrischen Dipolübergängen (E1) sind auch magnetische Dipolübergänge (M1) sowie Übergänge höherer Ordnung (Quadropol: E2, M2; ...) mit Drehimpulserhaltung möglich, wobei jeder Typ eigenen Auswahlregeln bezüglich des Drehimpulses/Symmetrie und der Parität mit jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeiten unterliegt. Die Auswahlregeln sind im Einzelnen in [97] zu finden. Die größte Übergangswahrscheinlichkeit haben in der Regel E1-Übergänge, gefolgt von M1 und E2. Des Weiteren weichen reale Festkörper häufig von den idealisierten Bedingungen ab, die zur Berechnung der theoretischen Übergangswahrscheinlichkeit herangezogen werden. Beispielsweise führt die thermische Bewegung der Atome zu einer Abweichung vom streng periodischen Gitter. Dies führt zu stark unterdrückten, jedoch nicht vollständig verschwindenden Übergangswahrscheinlichkeiten theoretisch verbotener Übergänge, was ebenfalls in XAFS-Spektren zu erkennen ist. Weitere Faktoren sind unter anderem Gitterfehlstellen, Fremdatome oder Oberflächenzustände.

GaAs ist aus optischer Sicht eine weitere interessante Verbindung. Die günstige Kombination aus Symmetrieeigenschaften und Bandtypen führt dazu, dass die genannten Auswahlregeln zu elektrischen Dipolübergängen an den entsprechenden Punkten der BZ wieder gültig sind [87]. Zudem ist das Valenzband p- und das Leitungsband s-artig. Hierauf wird in Kapitel 2.2.6 noch näher eingegangen.

Durch die Vielfalt an Übergangsarten in Festkörpern müssen Übergangswahrscheinlichkeiten je nach Gittertyp und Elektronen- beziehungsweise Bandkonfiguration im Einzelfall geprüft werden. Für den Fall, dass das Modell des freien Elektronengases für einen gegebenen Festkörper gültig ist und die Photoabsorption für relevante Photonenenergien durch Interbandübergänge dominiert wird, lässt sich der Imaginärteil der dielektrischen Funktion $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$ zu

$$\varepsilon_2(\omega) = \frac{\pi e^2}{\varepsilon_0 m^2 \omega^2} \frac{1}{(2\pi)^3} \sum_{ij} \int_{\hbar\omega = W_j - W_i} |\langle i, \vec{k} | \mathbf{p} | j, \vec{k} \rangle|^2 \cdot \frac{df_\omega}{|grad_k[W_j(\vec{k}) - W_i(\vec{k}))||}$$
(2.19)

berechnen [69]. Diese enthält die kombinierten Zustandsdichte

$$\rho_{ij}(\hbar\omega) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int_{\hbar\omega = W_j - W_i} \frac{df_{\omega}}{|grad_k[W_j(\vec{k}) - W_i(\vec{k})]|}.$$
(2.20)

Ähnlich zur üblichen Zustandsdichte wie in Formel 2.5 enthält $\varepsilon_2(\omega)$ die Steigung der Bänder. Hier ist die Übergangswahrscheinlichkeit maximal zwischen Punkten, an denen die Bänder parallel verlaufen. $\varepsilon_2(\omega)$ von Ge ist zusammen mit der zugehörigen Bandstruktur und Zustandsdichte in Abbildung 2.5 zu sehen. Der Term $|\langle i, \vec{k} | \mathbf{p} | j, \vec{k} \rangle|^2$ in Formel 2.19 entspricht dem jeweiligen Element der Übergangsmatrix und folgt aus Fermis goldener Regel. Sie enthält für alle Anfangs- und Endzustände einen Term der Übergangswahrscheinlichkeit.



Abbildung 2.5: Bandstruktur von Si (oben), aus [108]. Die Oberkante des Valenzbands liegt bei 0 eV. Integrale Zustandsdichte von Valenz- (blau) und Leitungsband (rot) in Si sowie Zustandsdichte nach Drehimpulszuständen aufgespalten (links), aus [108]. Real- und Imaginärteil des Brechungsindex von Si mit Photoabsorptionskoeffizient α bei verschiedenen Temperaturen in °C (rechts), aus [109]. Die beiden Peaks in der Absorption entsprechen direkten Übergängen in der Λ - ($W_p = 3.4$ eV) und X-Richtung ($W_p = 4.4$ eV) [69]. Die Absorption bei $W_p < 3$ eV resultiert aus indirekten Übergängen.

2.2.5 Lebensdauer

Basierend auf dem Sommerfeld-Modell des freien Elektronengases lässt sich die Relaxationszeit eines Elektrons in einem Metall zu

$$\tau_M = \frac{\sigma m^*}{n_e e^2} \tag{2.21}$$

berechnen, mit der temperaturabhängigen elektrischen Leitfähigkeit $\sigma(T)$, der effektiven Elektronenmasse m^* , der Elektronendichte n_e der Elektronen im Leitungsband und der Elementarladung e. Die Streuung wird durch Elektron-Phonon-Stöße dominiert. Durch m^* variiert τ je nach Richtung im Kristall. In Metallen ist n_e in guter Näherung temperaturunabhängig.

$$\sigma(T) = \frac{1}{\rho(T)} = \frac{1}{\rho(T_0)(1 + \alpha \cdot \Delta T)}$$
(2.22)

gibt den realen Verlauf der Leitfähigkeit mit dem spezifischen Widerstand ρ in weiten Bereichen gut wieder. Für die meisten Metalle liegt α bei etwa $4 \cdot 10^{-3}$ K⁻¹, genaue Werte können der Literatur entnommen werden. Die lineare Näherung von $\rho(T)$ ist für Temperaturen T > 100 K gültig. Darunter dominiert die Streuung an Störstellen, $\rho(T)$ wird konstant. Der Temperaturbereich des Übergangs hängt von der Reinheit des jeweiligen Kristalls ab, wie Abbildung 2.6 für Kupfer zeigt.



Abbildung 2.6: Spezifischer elektrischer Widerstand von Kupfer für verschiedene Reinheiten in Abhängigkeit von der Temperatur, aus [110].

Abschließend ergibt sich

$$\tau_M(T) = \frac{m^*}{ne^2\rho(T_0)(1+\alpha\cdot(T-T_0))}.$$
(2.23)

Die Relaxationszeit ist also umso kürzer, je höher der Widerstand und die Elektronendichte ist. Üblicherweise liegt sie bei Metallen in der Größenordnung von 10 fs.

Die Relaxationszeit τ_{HL} in Halbleitern lässt sich nicht wie oben über die Leitfähigkeit berechnen, da diese hier kein gutes Maß für die Stoßrate ist [70]. τ_{HL} nimmt zwar ebenfalls mit steigender Temperatur ab, die Zunahme der Ladungsträgerkonzentration und damit auch der Leitfähigkeit außerhalb der Störstellenerschöpfung überdeckt diesen Effekt jedoch deutlich. Entsprechend hängt τ_{HL} von der Größe der Bandlücke und der Dotierung oder Reinheit ab. Dabei ist sowohl das Dotierungselement als auch dessen Konzentration von Bedeutung. Zudem gibt es verschiedene Relaxationsmechanismen [111], wie die strahlende (durch Photonemission) und nichtstrahlende Shockley-Read-Hall-Rekombination [112], die Auger-Rekombination und die Rekombination an der Oberfläche. Alle Mechanismen tragen mit ihren jeweiligen Relaxationszeiten zur Gesamtrelaxation bei, weshalb eine detaillierte Betrachtung hier zu weit führen würde. Im Allgemeinen liegt τ_{HL} einige Größenordnungen über τ_M , wie Abbildung 2.7 für Si in Abhängigkeit der Au-Konzentration zeigt.



Abbildung 2.7: Lebensdauer der Leitungselektronen in n-dotiertem Si in Abhängigkeit der Akzeptorkonzentration aus verschiedenen Messungen, aus [111]. Die Nummerierung der Messungen bezieht sich auf die dortigen Referenzen.

2.2.6 Polarisierte Elektronenquellen

Die Polarisation P eines Elektronenstrahls bezieht sich auf das Verhältnis der beiden Spinorientierungen N_{\uparrow} und N_{\downarrow} relativ zu einem externen Magnetfeld und ist wie folgt definiert [113]:

$$P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}.$$
(2.24)

Während in einem Atom die selektive Bevölkerung von Zuständen mit definiertem Spin durch Ausnutzen der Auswahlregeln einfach möglich ist, ist dies beim Festkörper wie oben erläutert oft nicht gegeben. Es gibt jedoch Konfigurationen, in denen an bestimmten Punkten der Brillouin-Zone die Übergangsregeln der Atome angewandt werden können [113–115]. Ein Beispiel hierfür ist GaAs [116, 117]. Die Wellenfunktionen im Bereich der oberen Valenzbandkante und der unteren Leitungsbandkante sind p- beziehungsweise s-artig. Am Γ -Punkt (k = 0) sind in dieser Struktur die p-Zustände durch die Feinstruktur aufgespalten, die Hyperfeinstrukturaufspaltung tritt jedoch noch nicht in Kraft. Dies führt zu vierfach entarteten $P_{3/2^-}$ und zweifach entarteten $P_{1/2}$ -Zuständen mit einer Energiedifferenz von $\Delta = 0.34$ eV. Die s-Zustände an dieser Stelle sind zweifach entartet. Abbildung 2.8 zeigt die hier mit zirkular polarisiertem Licht möglichen Übergänge.

Strahlt man nun mit Licht mit $E_{gap} \leq \hbar \omega \leq E_{gap} + \Delta$ und σ^+ -Polarisation ein, werden die $s_{-1/2}$ - gegenüber den $s_{+1/2}$ -Zuständen mit 3:1 bevorzugt bevölkert, was sich in der Polarisation widerspiegelt. Das Vakuumniveau in GaAs liegt nun etwa 4 eV über den bevölkerten Endzuständen, so dass eine PE nicht möglich ist. Damit die Elektronen die Kathode verlassen können, wird das GaAs mit Cs beschichtet. Dadurch sinkt das Vakuumniveau in den Bereich der Bandlücke. Jedes im Leitungsband vorhandene Elektron kann dann die Kathode verlassen, man spricht von einer NEA-Kathode (negative Elektronenaffinität). Die Vorteile einer solchen Kathode sind neben der polarisierten Emission die Emissionsfähigkeit bei Bestrahlung im sichtbaren Spektralbereich, in dem Laser in der Regel eine höhere Leistung als im UV-Bereich aufweisen, eine Quanteneffizienz von über 10 % und durch die selektive Anregung der Endzustände eine transversale Energieverteilung, deren Breite die thermische Verteilung unterschreiten kann. Zu den Nachteilen zählt die lange Ansprechdauer von etwa 100 ps im infraroten Spektralbereich, jedoch nur noch et-



Abbildung 2.8: Ausschnitt der Bandstruktur von GaAs um den Γ-Punkt (k=0) mit Bandlücke E_g und Spin-Bahn-Aufspaltung Δ des Valenzbands (links). Die zugehörigen entarteten Niveaus sind mit ihren Magnetquantenzahlen m_j des Gesamtdrehimpulses gekennzeichnet (rechts). Die erlaubten Übergänge sind gekennzeichnet für σ^+ - ($\Delta m_j =$ 1, durchgezogene Linie) und σ^- -zirkular polarisiertes Licht ($\Delta m_j = -1$, gestrichelte Linie) mit den jeweiligen relativen Übergangswahrscheinlichkeiten in Kreisen; aus [113].

wa 1 ps bei $\lambda = 520$ nm [46], und die hohen Anforderungen an den Druck in der Kammer von deutlich unter 10⁻¹⁰ mbar. Durch Aufbringen eines Übergitters mit Schichtdicken von einigen Atomlagen kann man die Energiezustände in der Bandstruktur modellieren und so eine Polarisation der emittierten Elektronen von über 90 % erreichen.

Mit dem gleichen Anregungsmechanismus wäre eine polarisierte PFE-Quelle ähnlich zu [119] denkbar. Da die Elektronen bei ausreichender Feldstärke und einer gegebenenfalls vorhandenen Schottky-Absenkung (näheres hierzu in Kapitel 2.3.1) aus den angeregten Zuständen heraustunneln könnten, wäre eine Cs-Beschichtung nicht mehr notwendig. Dies sollte die Lebensdauer deutlich steigern. Eine Alternative für die selektive Bevölkerung des Leitungsbands bietet eine Kathode aus einer GaAs-Schicht auf einem Fe-Substrat [117] oder eine EuS-bedeckte W-Nadel [120]. In beiden Fällen bildet sich eine Schottky-Barriere, durch die die spinpolarisierten Elektronen des Fe (W) in das GaAs (EuS) tunneln können. Des Weiteren kann eine Spinabhängigkeit in der Transmission der Oberflächenbarriere bei der PE aus Pt[111] beobachtet werden [118], worauf hier jedoch nicht näher eingegangen werden soll.

2.3 Feldemission

Die Feldemission (FE) beschreibt das Tunneln von Elektronen durch die Oberflächenbarriere einer kalten Metallkathode unter Einwirkung eines elektrischen Feldes ins Vakuum. Dies wurde erstmals 1928 von Fowler und Nordheim (FN) theoretisch korrekt beschrieben [121–123]. Die hier gezeigte Herleitung der energetischen Verteilung sowie der integralen Stromdichte orientiert sich im Wesentlichen an [60,124]. Sie ist etwas ausführlicher gehalten, um die nötigen Grundlagen und Einschränkungen für die folgende Diskussion zur PFE zu schaffen. Die FN-Theorie basiert auf den folgenden Annahmen [125]:

- Für das Metall wird das Sommerfeld'sche Modell der freien Elektronen mit Fermi-Dirac-Statistik angenommen.
- Die Metalloberfläche wird als eben angenommen. Dies ist in der Praxis meist gegeben, da die Dicke der Oberflächenbarriere in der Regel deutlich kleiner als der Emitterradius ist. Näheres dazu ist im folgenden Abschnitt zu finden. Die Berechnung kann damit auf ein eindimensionales Problem reduziert werden.
- Das Potential im Metall wird als konstant angenommen. Das äußere elektrische Feld hat keinen Einfluss auf die elektronischen Zustände im Metall.
- Es wird T = 0 K angenommen.

Basierend darauf lässt sich die FN-Theorie für Metalle herleiten.

2.3.1 Metalle

Das Potential eines Elektrons an der Oberfläche eines Metalls verläuft durch dessen Bildladung mit $W(z) = -e^2/4z$, mit dem Abstand z senkrecht zur Oberfläche. In einem elektrischen Feld E besitzt das Elektron das Potential W(E, z) = -eEz. Die Überlagerung beider Potentiale ergibt die in Abbildung 2.9 schematisch gezeigte Oberflächenbarriere der Feldemission. Die spektrale Verteilung dj(W)/dW der emittierten Elektronen lässt sich aus der Zahl N der pro Zeitintervall an der Oberfläche eintreffenden Elektronen und ihrer jeweiligen Tunnelwahrscheinlichkeit D berechnen.



Abbildung 2.9: Schematische Darstellung der Feldemission mit Austrittsarbeit Φ_0 der Kathode und Schottky-Absenkung $\Delta \Phi_S$. Durch Überlagerung des Bildladungspotentials $(W(z) \propto -1/z)$ mit dem elektrischen Potential $(W(E, z) \propto -Ez$ mit elektrischer Feldstärke E) entsteht die Potentialbarriere im Vakuum vor der Kathode. Die Breite der Barriere entspricht der Differenz der klassischen Umkehrpunkte $z_0 - z'_0$ $(z'_0$ liegt am oberflächennahen Schnittpunkt der Potentialbarriere mit W_F). Die feldemittierten Elektronen treten mit der in Formel 2.30 angegebenen Energieverteilung dj/dWum W_F aus.

Die Gesamtenergie W bestimmt die Lage der Elektronen relativ zur Barriere und besitzt die Verteilung $N(W, W_z)$ mit der Energie $W_z = \hbar^2 k_\perp^2 / 2m_e$ und dem Impuls k_\perp senkrecht zur Oberfläche. Da der eindimensionale FE-Fall betrachtet wird, ist $D = D(W_z)$. Für das freie Elektronengas gilt allerdings $W = W_z + W_F + \Phi - \hbar^2 k_\perp^2 / 2m_e$, so dass sich $D(W_z) = D(W)$ ergibt. Es wird hier der elastische Tunnelprozess betrachtet, so dass W_z auf beiden Seiten der Barriere identisch ist. Ebenso wirken beim Tunneln keine Kräfte parallel zur Oberfläche, wodurch der Querimpuls der Elektronen \vec{k}_{\parallel} ebenso erhalten bleibt. Es ergibt sich also

$$\frac{dj(W)}{dW} = e \int_{0}^{W} N(W, W_z) D(W_z) dW_z$$
(2.25)

Im eindimensionalen Fall kann $N(W, W_z)$ als Produkt aus der Fermi-Funktion $f(W) = (\exp[(W - W_F)/k_BT] + 1)^{-1}$, der Eintreffrate der Elektronen an der Ober-

fläche, die der Gruppengeschwindigkeit $v_z = \hbar^{-1}(\partial W/\partial k_{\perp})$ entspricht, und der Zustandsdichte $\rho(W) \propto \partial W/\partial k_{\perp}$ in einer Dimension ausgedrückt werden. Offensichtlich ist $v_z \cdot \rho$ hierbei eine Konstante, so dass der Einfluss der Bandstruktur immer verschwinden würde. Um den realen Einfluss zu verdeutlichen, muss hier ein kurzer Exkurs zum dreidimensionalen Fall gemacht werden. In solchen Systemen ist die Zustandsdichte durch $\rho(W) = \int |\vec{\nabla}_k W|^{-1} d\vec{S}$ gegeben, mit dem Oberflächenintegral über eine Fläche konstanter Energie im Impulsraum. Dann ist $v_z \cdot \rho \neq \text{const.}$. Durch geeignete Transformation der Differentiale [60] kann Gleichung 2.25 als

$$\frac{dj(W)}{dW} = \frac{2ef(W)}{\hbar(2\pi)^3} \int \int D(W, \vec{k}_{||}) \frac{\partial W/\partial k_{\perp}}{|\vec{\nabla}_k W|} d\vec{S}$$
(2.26)

geschrieben werden, wobei der Faktor 2 von der Spinentartung stammt. Über einige Zwischenschritte [60] und obige Relation für die Gesamtenergie von Elektronen eines freien Elektronengas gelangt man zu

$$\frac{dj(W)}{dW} = \frac{4\pi me}{\hbar^3} f(W) \int_0^W D(W_z) dW_z, \qquad (2.27)$$

was auch unabhängig von der Bandstruktur ist. Dies ist jedoch nur dann richtig, wenn das Verhalten des Metalls dem eines freien Elektronengases entspricht. Abweichungen können dazu führen, dass im Spektrum Eigenschaften der Bandstruktur wie zum Beispiel die Zustandsdichte wiedergefunden werden. Auf die gemachten Näherungen und unter welchen Bedingungen ein Einfluss der Bandstruktur sichtbar wird, wird weiter unten noch genauer eingegangen.

Im nächsten Schritt benötigt man nun einen Ausdruck für D(W). Diesen erhält man mit Hilfe der WKB-Näherung (nach G. Wentzel, H. A. Kramers, L. Brillouin): Die eindimensionale, stationäre Schrödinger-Gleichung für ein konstantes Potential $W(x) = W_0$ hat die Lösung $\psi(x) = A \exp(\pm i p_0 x/\hbar)$, mit $p_0 = \sqrt{2m(W - W_0)}$. Ändert sich das tatsächliche Potential W(x) nur langsam, kann es also in der Größenordnung der deBroglie-Wellenlänge des Elektrons im Festkörper als konstant angesehen werden, ist die Annahme $p_0 = p(x) = \sqrt{2m(W - W(x))}$ zulässig. Dann lässt sich mit $\psi(x) = A \exp(iS(x)/\hbar)$ ein Lösungsansatz analog zum konstanten Potential wählen. Diesen setzt man in die Schrödinger-Gleichung ein, entwickelt S(x)in Potenzen von \hbar und ordnet nach diesen Potenzen. Jeder zu einer Potenz zugehörige Term muss dann einzeln verschwinden $(H\psi - W\psi = 0)$. Die Lösung für die nullte Potenz lautet $S_0(x) = \pm \int \sqrt{2m(W - W(x'))} dx'$ und damit die Tunnelwahrscheinlichkeit $|T|^2 = \exp\left(-2\int \sqrt{2m(W(x) - W)/\hbar^2} dx\right)$.

Die FE setzt bei lokalen Feldstärken von etwa 2 GV/m für eine Austrittsarbeit von 5 eV ein. Die Breite der Barriere beträgt $d_0 = z_0 - z'_0$ mit den klassischen Umkehrpunkten wie in Abbildung 2.9 zu sehen. Für das Dreieckspotential beträgt sie dann $d_0 = \Phi/eE = 2.5$ nm. Die deBroglie-Wellenlänge eines Elektrons im Metall an der Brillouin-Zonengrenze entspricht gerade dem Gitterabstand, liegt also bei einigen Ångström. Damit kann die Barrierenbreite als groß gegenüber der Wellenlänge des Elektrons angenommen werden, womit die WKB-Näherung für die Oberflächenbarriere bei der FE gültig ist. Für das Dreieckspotential $W(z) = W_F + \Phi - eEz$ ergibt sich damit die Tunnelwahrscheinlichkeit

$$D_{WKB}(W) = \exp\left(-2\int_{z_0}^{z'_0} [(2m/\hbar^2)(W(z) - W)]^{1/2} dz\right) =: \exp(-A(W))$$

$$= \exp\left(-\frac{4}{3eE} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{1/2} (\Phi - (W - W_F))^{3/2}\right)$$

$$\simeq \exp\left(-\frac{4}{3eE} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{1/2} \left(\Phi^{3/2}\nu(y) + \frac{3}{2}\Phi^{1/2}(W - W_F)t(y)\right)\right).$$

(2.28)

Im letzten Schritt wurde eine Entwicklung um $(W - W_F)$ gemacht. Zudem wurden die Nordheim-Korrekturfaktoren $\nu(y)$ und t(y) mit $y = \Delta \Phi_S / \Phi$ hinzugefügt, die die Abweichung der tatsächlichen, runden Barriere von der berechneten Dreiecksbarriere berücksichtigen [60,122]. Eine explizite Berechnung dieser Faktoren ist nicht möglich, da diese auf elliptische Integrale führt. Mit $\nu(y) = 1 - y^2 - \frac{1}{3}y^2 \ln(y)$ und t(y) = $\nu - \frac{2}{3}y \frac{d\nu}{dy}$ existieren jedoch Näherungen, deren Fehler $\Delta \nu < 0.0033\nu$ beträgt [124,126]. Für die Schottky-Absenkung $\Delta \Phi_S$ gilt

$$\Delta \Phi_S = \sqrt{\frac{e^3 \beta E}{4\pi\varepsilon_0}} \approx 0.0379 \sqrt{\beta E} \ (MV/m)^{-1/2}, \tag{2.29}$$

mit der Feldüberhöhung β , auf die unten näher eingegangen wird.
Nun kann $D_{WKB}(W)$ in Gleichung 2.27 eingesetzt und das Integral gelöst werden. Das Feldemissionsspektrum lautet dann

$$\frac{dj}{dW} = \frac{AE^2}{\Phi t^2(y)} f(W) \exp\left(-\frac{B\Phi^{3/2}\nu(y)}{E}\right) \exp\left(\frac{C\Phi^{1/2}(W-W_F)t(y)}{W}\right) \quad (2.30)$$

mit

$$A = \frac{e^3}{8\pi h} = 154 \ eVA/MV^2, \quad B = \frac{4}{3e} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{1/2} = 6830 \ MV/eV^{3/2}m, \quad C = 3/2 \cdot B.$$
(2.31)

Integration über dW liefert die Fowler-Nordheim-Stromdichte

$$j(E) = \frac{AE^2}{\Phi t^2(y)} \exp\left(-\frac{B\Phi^{3/2}\nu(y)}{E}\right).$$
(2.32)

Wie oben erwähnt gilt diese Berechnung für eine atomar glatte Oberfläche. In der Realität liegt jedoch meist eine höhere Rauheit durch Strukturen auf der Oberfläche vor. Diese führen zu einer Feldüberhöhung β , die das äußere elektrische Feld E lokal zu $E_{lokal} = \beta E$ verstärkt. Durch Ersetzen von $E \rightarrow E_{lokal}$ geben die Gleichungen 2.30 und 2.32 die experimentellen Ergebnisse korrekt wieder. Die Feldüberhöhung kann bei Kenntnis der Emittergeometrie, die Abbildung 2.10 zeigt, wie folgt abgeschätzt werden [127–129]. Für einen nadel- oder kegelförmigen Emitter mit Höhe h, Spitzenradius r und Öffnungswinkel Θ gilt näherungsweise

$$\beta \approx \frac{h}{r} + 3\cos(\Theta), \tag{2.33}$$

wie sich aus FEM⁹-Simulationen ergibt. Befinden sich auf dem ursprünglichen Emitter mit β weitere, kleinere Strukturen mit β_2 , die sich wie oben berechnen lassen, gilt für die Gesamtfeldüberhöhung

$$\beta' = \beta \cdot \beta_2. \tag{2.34}$$

Dies wird auch als tip-on-tip-Modell bezeichnet.

 $^{^9{\}bf F}$ inite-Elemente-Methode: Ein numerisches Verfahren zur Lösung partieller Differentialgleichungen



Abbildung 2.10: Querschnitt dreier Feldemitter zur näherungsweisen Berechnung ihrer Feldüberhöhung β durch Höhe h, Spitzenradius r, Öffnungswinkel Θ und einer zweiten Feldüberhöhung β_2 auf dem Emitter.

Experimentell erhält man in der Regel den Strom $I = j \cdot S$, mit der emittierenden Fläche S. Trägt man $\ln(I/E^2)$ gegen 1/E auf, erhält man einen Fowler-Nordheim-Plot. Der Theorie nach ergibt sich eine Gerade mit Steigung s_{FN} und Ordinatenabschnitt c:

$$s_{FN} = -\frac{B\Phi^{3/2}u(y)}{\beta}, \quad c = -\ln\left(\frac{A\beta^2 S}{\Phi}\right), \quad (2.35)$$

mit $u(y) = \nu(y) - y/2 \cdot d\nu(y)/dy$. Mit Kenntnis einer Größe aus Φ , β und S lassen sich damit die übrigen beiden bestimmen. Mit Hilfe eines FN-Plots und eines Spektrums lässt sich zudem Φ unabhängig von β bestimmen. Dazu wird s_{FN} und die "Steigung" $s_W = \ln \left(C \Phi^{1/2} t(y) / \beta F \right)$ der niederenergetischen Flanke eines Spektrums, aufgenommen bei einer Feldstärke E_0 , benötigt. Damit erhält man

$$\Phi = \frac{3s_{FN}}{2s_W E_0}.\tag{2.36}$$

Das anliegende elektrische Feld E_0 während eines FE-Experiments lässt sich in der Regel nur indirekt bestimmen. Meist ist es daher genauer die angelegte Spannung U direkt zu messen. Für diesen Fall lässt sich analog zu oben der FN-Plot als $\ln(I/U^2)$ gegen 1/U auftragen. Hierbei ergibt sich ein anderer Wert für die Steigung s_{FN} . In Gleichung 2.36 kann dies durch den Übergang von E_0 auf U_0 korrigiert werden. Tragen mehrere Emitter zum Gesamtstrom bei, setzt dieser sich aus der Summe der Einzelströme jedes Emitters zusammen:

$$I(E) = \sum_{i}^{n} \frac{AS_i(\beta_i E)^2}{\Phi_i t^2(y)} \exp\left(-\frac{B\Phi_i^{3/2}\nu(y)}{\beta_i E}\right).$$
(2.37)

Sind β , S und Φ von allen Emittern identisch, lässt sich die Summe auflösen:

$$I(E) = n \frac{AS_i(\beta_i E)^2}{\Phi_i t^2(y)} \exp\left(-\frac{B\Phi_i^{1.5}\nu(y)}{\beta_i E}\right).$$
(2.38)

In obiger Transformation $\ln(I/E^2)$ gegen 1/E zerfällt das Produkt im Logarithmus dann wieder in eine Summe und es ergibt sich eine Gerade mit deren Steigung sich β bestimmen lässt. Variieren die Emitter untereinander zu stark, kann die Summe nicht vereinfacht werden. Folglich lässt sich der Logarithmus nicht zerlegen und die Transformation liefert keine sinnvoll definierte Gerade. Da die stärksten Emitter den größten Strom tragen, geht deren β höher gewichtet ein. Bestimmt man β einer solchen Kathode wie oben, ergeben sich Werte, die bestenfalls ein gewichtetes Mittel darstellen. Dies kann je nach Variation der Emitter stark zu den höchsten Werten verschoben sein oder auch vollkommen unphysikalische Werte liefern.

Bei der Berechnung von D(W) wurden einige Näherungen gemacht, die die Anwendung der FN-Formel auf Emission aus dem Bereich des Fermi-Niveaus beschränkt (*deep tunneling*). Im letzten Schritt von Gleichung 2.28 wurde eine Entwicklung um $(W - W_F)$ gemacht. Des Weiteren sollte D(W) für $W - W_F > \Phi$ konstant werden, wobei das exponentielle Verhalten um W_F erhalten bleiben muss. Um dies zu gewährleisten wird in der Miller-Good-Näherung [60]

$$D_{MG}(W_z) = \frac{1}{1 + \exp[A(W_z)]}$$
(2.39)

mit A(W) aus Gleichung 2.28 verwendet. Abbildung 2.11 zeigt den Quotienten

$$R = \int_{0}^{W} D_{MG}(W_z) dW_z / \int_{0}^{W} D_{WKB}(W_z) dW_z, \qquad (2.40)$$

wobei das Integral über $D_{MG}(W)$ für die angegebenen Feldstärken numerisch be-

rechnet wurde, um die Entwicklung um $(W - W_F)$ zu umgehen. Die Abweichung ist im Bereich $|W - W_F| < 0.5$ eV gering, außerhalb aber nicht zu vernachlässigen. Dies ist insbesondere bei der PFE zu beachten. Wenn man hier zur Berechnung von Emissionsparametern Gleichung 2.30 oder 2.32 verwenden würde und lediglich Φ anpasst, sind mit D_{WKB} umso größere Fehler zu erwarten, je höher die Elektronenenergie nach Anregung über W_F liegt.



Abbildung 2.11: Verhältnis R aus numerisch nach Miller-Good bestimmter und genäherter Tunnelwahrscheinlichkeit nach Gleichung 2.40 abhängig von der Energie relativ zu W_F für verschiedene Feldstärken, aus [60].

Die aktuelle Forschung in der Theorie der FE beschäftigt sich unter anderem mit den nötigen Voraussetzungen für die Gültigkeit der oben dargestellten FN-Theorie [130]. Hierbei wird zwischen *orthodoxer* und *unorthodoxer* Emission unterschieden. Die obige Datenanalyse ist gültig, wenn die folgenden Annahmen für eine orthodoxe Emission erfüllt sind. Nach [130] sind dies:

A Die Spannungsdifferenz zwischen den emittierenden Bereichen und einer nahegelegenen Gegenelektrode ist einheitlich im emittierenden Bereich und entspricht der gemessenen Spannung.

- B Der gemessene Strom ist identisch mit dem Gesamtstrom der Kathode und wird ausschließlich durch kalte Feldemission an der Emitter-Vakuum-Granzfläche bestimmt.
- C Die Emission kommt durch *deep tunneling* durch eine Schottky-Nordheim-Barriere (SN-Barriere) zustande. Der Gesamtstrom lässt sich durch Gleichung 2.32 multipliziert mit der emittierenden Fläche *S* oder durch eine hierzu äquivalente Gleichung beschreiben. Die einzigen Größen, die dabei von der gemessenen Spannung abhängen sind die unabhängige Variable (in Gleichung 2.32 die Feldstärke) und die Korrekturfaktoren der Barriere.
- D Die Austrittsarbeit ist im emittierenden Bereich konstant und hat den angenommenen Wert.

Die Punkte A und B betreffen apparative Gegebenheiten. Hierauf wird in Kapitel 3 noch eingegangen. Die Punkte C und D betreffen die Kathode, worauf in den Kapiteln 4 und 5 mit den jeweiligen Gegebenheiten Bezug genommen wird. Abweichungen vom *deep tunneling* treten beispielsweise auf, wenn die Kathode zu heiß wird oder Elektronen auf andere Weise angeregt werden. Wie die Miller-Good-Näherung zeigt, kann man in einem Bereich von 0.5 eV um W_F von *deep tunneling* sprechen. Die SN-Barriere ist unter anderem nicht gegeben, wenn es durch Adsorbate zu resonanten Zuständen in der Barriere kommt oder wenn durch eine zu starke Krümmung der Oberfläche die Barriere nicht mehr homogen über dem Emitter ist. Eine Abhängigkeit von der Spannung kann auftreten, wenn die Kathode einen zu hohen Widerstand aufweist und sich unter der Emission auflädt, oder wenn das Kathodenmaterial zu weich ist und sich unter dem elektrischen Feld oder dem Strom verformt (Elektromigration). Dies variiert β und S, gegebenenfalls auch Φ . Gründe für ein Abweichen der Austrittsarbeit wurden bereits in Kapitel 2.1.4 genannt.

2.3.2 p-Halbleiter

Die im vorigen Kapitel hergeleiteten Formeln zur FE aus Metallen können nur mit Einschränkungen auf die FE aus p-dotierten Halbleitern angewandt werden. Auf die wesentlichen Unterschiede soll in diesem Abschnitt eingegangen werden [60, 131]. Von den oben gemachten Annahmen zur FE wird insbesondere die des konstanten Potentials und der unveränderten elektrischen Zustände im Emitter durch die geringe Leitfähigkeit verletzt. Schon bei geringen Feldstärken ist die Abschirmung durch negativ geladene Akzeptorniveaus begrenzt und es kommt zu einem Eindringen des elektrischen Feldes in das Volumen des Halbleiters. Damit entsteht ein Potentialgefälle senkrecht zur Oberfläche, wie in Abbildung 2.12 dargestellt. An der Oberfläche bildet sich eine Inversionsschicht aus freien Elektronen. Fällt die untere Leitungsbandkante unter das Fermi-Niveau, spricht man von einem *degenerierten Leitungsband* und es kommt zum Zener-Effekt. Dabei tunneln Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband ähnlich dem Feldemissionsübergang vom Leitungsband ins Vakuum. Im Gegensatz zur thermischen oder Photoanregung ist hierbei kein Energieaufwand nötig. Die Tunnelwahrscheinlichkeit lautet nach [60]

$$D_{Ze}(W) \propto \exp\left(-\frac{a_0 m^{*1/2} W_G^{3/2}}{\hbar e E}\right),$$
(2.41)

wobei $a_0 \sim \mathcal{O}(1)$ (modellabhängig), m^* die effektive Masse des Elektrons und W_G die Energie der Bandlücke sind. Für $a_0 = \frac{4}{3}\sqrt{2}$ und $W_G = \Phi$ entspricht Gleichung 2.41 der WKB-Tunnelwahrscheinlichkeit für das Dreieckspotential.

Bei für die FE ausreichenden Feldstärken liegt in der Regel ein degeneriertes Leitungsband vor, aus dem die Emission bevorzugt erfolgt. Die FE weist dann zunächst eine metallartige Charakteristik, also einen linearen FN-Plot auf, wie Abbildung 2.12 in Bereich I zeigt. Ist ein Sättigungsstrom I_{sat} erreicht, kann die Nachführung der Elektronen aus dem Valenzband nur noch wenig gesteigert werden. Durch die Erschöpfung der Ladungsträger dringt das Feld stärker als vorher in den Emitter ein. Dadurch kommt es zu einem Absinken der effektiven Feldüberhöhung, der Emitter wird aus elektrischer Sicht abgerundet. Dies wirkt einem weiteren Anstieg des Stroms ebenfalls entgegen. Im FN-Plot ergibt sich ein Plateau (Bereich II). Der Strom steigt in diesem Bereich jedoch weiter an, was auf den Poole-Frenkel-Effekt zurückgeführt wird [131]. Hierbei wird die thermische Ladungsträgererzeugung durch das elektrische Feld im Inneren verstärkt. Der Strom verläuft dann nach [131] wie

$$I_{sat}(E,T) \propto A + BT^2 (CT^{-1}\sqrt{E} - 1) \exp\left(CT^{-1}\sqrt{E}\right), \qquad (2.42)$$



Abbildung 2.12: Schematische Darstellung der FE aus einem p-dotierten Halbleiter im metallartigen Bereich I (links) mit Tunnelwahrscheinlichkeit D_{Ze} zwischen Valenzund Leitungsband. Logarithmus des Emissionsstroms in Abhängigkeit der inversen angelegten Spannung (rechts) mit den charakteristischen Bereichen I-III, aus [131]. Der Plateaubereich definiert den Sättigungsstrom I_{sat} und lässt sich durch Lichteinstrahlung zu höheren Werten verschieben. Im FN-Plot zeigt sich ein äquivalentes Verhalten.

mit der Temperatur T und Konstanten A, B, C. In diesem Bereich ist die FE sehr stabil, da sie hier primär von der oberflächenunabhängigen Ladungsträgergeneration im Inneren abhängt und nicht mehr von der oberflächenempfindlichen Tunnelwahrscheinlichkeit. Für technische Anwendungen ist dieser Bereich daher sehr attraktiv. Des Weiteren steigt das Potentialgefälle, das degenerierte Leitungsband wird energetisch und räumlich tiefer. Sobald ein Spannungsabfall mit $e\Delta U > W_G$ innerhalb der Oberflächenzone möglich ist, kann ein mittels Zener-Effekt getunneltes Elektron ein zusätzliches Elektron aus dem Valenzband per Elektron-Elektron-Stoß anregen. Steigt das Potentialgefälle weiter, können pro ZE-getunneltem Elektron mehrere Elektronen angeregt werden. Ein Lawineneffekt bildet sich aus. Der FE-Strom steigt dann bei Erhöhung des Felds stärker als in Bereich I (Bereich III). In diesem Bereich kann die Kathode leicht zerstört werden.

Die Emission aus n-Halbleitern kann dagegen bei ausreichender Dotierung weitgehend mit der Theorie der FE aus Metallen beschrieben werden. Dabei ist allerdings das Fehlen von Zuständen in der Bandlücke zu beachten. Bei niedriger Dotierung können die gleichen Effekte wie bei den p-Halbleitern beobachtet werden. Bei intrinsischen Halbleitern entscheidet entsprechend die Temperatur über das jeweilige Verhalten.

2.4 Photoinduzierte Feldemission und verwandte Phänomene

Die photoinduzierte Feldemission (PFE) beschreibt die Anregung von Elektronen aus dem Valenz- oder Leitungsband in Zustände oberhalb des Fermi-Niveaus, von wo aus sie den Festkörper durch Tunneln durch die Oberflächenbarriere verlassen können. Sie enthält damit Elemente der Photo- sowie Feldemission. Entsprechend ist die Quanteneffizienz gegenüber der Photoemission um die Tunnelwahrscheinlichkeit reduziert. Allerdings wirkt die Tunnelwahrscheinlichkeit wegen

$$D(\vec{k}) \propto \exp\left(-\frac{1}{\cos(\sphericalangle(\vec{k},\vec{k}_{\perp}))}\right)$$
(2.43)

mit dem Impuls der Elektronen \vec{k} auch als Impulsfilter, sodass sich auch eine reduzierte Emittanz ergibt. Insgesamt könnte eine PFE-Kathode daher eine höhere Brillanz als eine PE-Kathode erreichen. Eine vollständige Theorie der PFE existiert im Gegensatz zur PE und FE aktuell nicht. Die Beschreibung ist meist auf die Anregung durch Photoabsorption und die Emission durch den Tunneleffekt wie bei der FE reduziert. Dieses Kapitel stellt daher lediglich einige Experimente dar, bei denen es durch die Kombination beider Prozesse zu charakteristischen Effekten kommt.

PFE-Effekte lassen sich in geringem Maße auch mit herkömmlichen Strahlungsquellen nachweisen [67], die Verwendung eines Lasers ist jedoch zweckmäßig. Erste Nachweise der PFE gelangen daher in den Jahren nach der Entwicklung des Lasers 1960 durch T. Maiman. Einer der ersten direkten Nachweise gelang M.J.G. Lee 1973 durch Spektroskopie der Elektronen wie in Abbildung 2.13 gezeigt, die bei E = 2.7 GV/m von einer Wolframnadel unter Bestrahlung mit einem Ar-Ionenlaser emittiert wurden [61]. Demnach werden die Elektronen vom Fermi-Niveau aus um die jeweilige Laserenergie angeregt und anschließend ohne Energieverlust aus diesen Zuständen heraus emittiert.



Abbildung 2.13: Oben: Spektren der emittierten Elektronen aus einer W-Nadel bei E = 2.3 GV/m unter Bestrahlung mit einem cw Ar-Ionenlaser ($W_{Ar^+} = 2.6 \text{ eV}$ ($3 kW/cm^2$) und 3.5 eV ($10 kW/cm^2$)), aus [61]. Der Peak unterhalb des Fermi-Niveaus entspricht der reinen FE, die beiden oberhalb liegenden der Emission unter Bestrahlung mit jeweils einer der beiden Laserenergien. Unten: Tunnelwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der Energie der emittierten Elektronen für zwei verschiedene Modelle, siehe [61].

Mit der Entwicklung der fs-Lasern in den letzten Jahren konnte der PFE-Prozess auch zeitlich genauer untersucht werden. Der Übergang zwischen PE und PFE bei verschiedenen Feldstärken sowie die zu Grunde liegenden Anregungs- und Relaxationsprozesse wurden durch Yanagisawa und Mitarbeiter untersucht [62–64]. Zur Bestrahlung wurde ein Ti:Saphir-Laser ($\lambda_{center} = 800 \text{ nm}, t_{pulse}^{FWHM} = 100 \text{ fs}$) verwendet. Den experimentellen Aufbau zeigt Abbildung 2.14 schematisch. Bei einer Spannung von $U_{tip} = -2300 \text{ V}$ an der W-Nadelkathode wird ein typisches Feldemissionsspektrum, wie in Abbildung 2.15a gezeigt, beobachtet. Bei zusätzlicher Bestrahlung durch den Laser treten im Spektrum zusätzliche Peaks bei $n \cdot h\nu$, $n \in \mathbb{N}$ oberhalb der Fermi-Energie auf, deren Amplitude mit zunehmender Energie ansteigt (Abbildung 2.15c). Diese sind auf Elektronenanregung mit jeweils n Photonen zurückzuführen. Da die Lebensdauer der angeregten Elektronen im Metall im Bereich der Pulslänge des Lasers liegt, verlaufen Anregung und Relaxation hier in etwa simultan. Dies führt zu der in Abbildung 2.15b gezeigten stufenförmigen Elektronenbesetzung. Die Peaks im Spektrum ergeben sich daraus durch die exponentiell ansteigende Tunnelwahrscheinlichkeit der höher angeregten Elektronen. Bei $U_{tip} = -500$ V mit Beleuchtung ist keine Feldemission mehr zu beobachten, im Spektrum ist damit nur noch Multiphoton-PE zu sehen, wie Abbildung 2.15d zeigt.



Abbildung 2.14: Schematische Darstellungen des Aufbaus zur Untersuchung der Anregungs und Relaxationsprozesse durch Yanagisawa et al., aus [64].

Die Verwendung von PFE-Kathoden als Elektronenquelle für Beschleuniger wird intensiv auch am Paul-Scherrer-Institut in Villigen für den dortigen FEL von R. Ganter et al. untersucht [55,132]. Dabei wird eine ZrC-Nadel unter kleinem Winkel zu ihrer Achse mit einem Nd:VAN-Laser¹⁰ (Pulsenergie $W_{266 \text{ nm}} < 20 \text{ µJ}$, Pulsdauer $\sigma_{t,rms} = 16 \text{ ps}, \lambda = 266 \text{ nm}$) bestrahlt. Den Aufbau zeigt Abbildung 2.16a schematisch. Mit einem Teleskop-Linsenaufbau wird der Laserstrahl auf die Nadel auf $\sigma_{r,rms}$ fokussiert. Die Leistungsdichte wird damit auf etwa 0.1 GW/cm² eingestellt, was noch unterhalb der Grenze für die explosive Elektronenemission¹¹ [134–137] von etwa 1 GW/cm² liegt. Der Laser ist mit einer gepulsten Hochspannungsquelle synchronisiert, mit der eine negative Spannung von $V_{tip} < 60 \text{ kV}$ in Pulsen von 2 ns Dauer an der Nadel gegenüber eines geerdeten Lochgates angelegt werden kann. Die einkristalline Nadel hat einen Durchmesser von 500 µm und einen Spitzenradius von $r_{apex} < 1$ µm, welcher jedoch vergrößert wurde, um höhere Ströme tragen

¹⁰Nd:VAN: Nd-dotiertes Yttrium-Orthovanadat (YVO₄) besitzt im Gegensatz zum häufig verwendeten Nd:YAG (Nd-dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat, $Y_3Al_5O_15$) eine etwa sechs Mal stärkere Absorption, einen breiteren Absorptionsbereich und eine um etwa eine Größenordnung kürzere Fluoreszenzlebensdauer [133]. Es wird daher verwendet, wenn eine Pulsdauer im Bereich von 10 ps benötigt wird, die mit Nd:YAG-Lasern nicht möglich ist.

¹¹Die explosive Elektronenemission setzt ein, wenn die Kathode durch hohe Energiedichte überhitzt. Die Folge sind Explosionen des betreffenden Bereichs mit der Bildung eines Plasmas, wie es zum Beispiel bei einem Lichtbogen auftritt.



Abbildung 2.15: Schematische Darstellungen der verschiedenen Emissionsprozesse mit gemessenen Spektren an einer W-Nadel bei verschiedenen Spannungen U_{tip} mit und ohne Bestrahlung durch den Ti:Saphir-Laser bei $P_{Laser} = 50$ mW, aus [64]; a) $U_{tip} =$ -2300 V ohne Bestrahlung; b) Elektronenbesetzung bei Bestrahlung mit Darstellung der Anregungs- und Relaxationsprozesse; c) $U_{tip} = -2300$ V mit Bestrahlung und um 20-fach vergrößertes Spektrum; d) $U_{tip} = -500$ V mit Bestrahlung.

zu können. Die emittierten Elektronen werden mit einem Faraday Cup in 20 cm Abstand von der Kathode gesammelt und der Strompuls zeitlich mit einem 1 GHz Oszilloskop aufgenommen. Dieser ist mit und ohne Bestrahlung in Abbildung 2.16b für $V_{tip} = -45$ kV zusammen mit dem Spannungspuls gezeigt und in Abbildung 2.16
c für $-36~{\rm kV} < V_{tip} < -59~{\rm kV}.$ Es zeigt sich, dass bereits durch das Anlegen der Hochspannung Elektronen feldemittiert werden. Durch die Bestrahlung wird die emittierte Ladung noch deutlich gesteigert. Der größte Puls von 144 pC oder $I_p = 2.9$ A wurde bei $V_{tip} = -59$ kV, $W_{266 \text{ nm}} = 6 \text{ µJ}$ und $\sigma_{r,rms} = 85 \text{ µm}$ erreicht, wobei 28 pC ohne Bestrahlung emittiert wurden. Dies entspricht einer mittleren QE von etwa 10^{-4} . Es ist aufgrund der inhomogenen Feldüberhöhung davon auszugehen, dass die QE zum Rand der Nadel hin näherungsweise exponentiell abfällt und dort auch durch einen flacheren Einfallswinkel weniger Photonen absorbiert werden. Approximiert man dies durch eine Verteilung der QE auf der Oberfläche von $QE(\rho) = QE_0 \exp(-\rho/\rho_0)$, mit dem Abstand ρ von der Nadelachse, ergibt sich $QE_0 = 10^{-2}$ und $\rho_0 = 2 \ \mu m$ [138]. Es zeigt sich zudem, dass die QE für $\rho_0 > 50 \ \mu m$ vernachlässigbar wird. Bei üblichen Photokathoden liegt die Emittanz unmittelbar vor der Kathode im Bereich von 1 mm mrad bei einer Spotgröße von 1 mm. Unter Annahme einer näherungsweise gleichgroßen Divergenz der Elektronen aus einer Nadelkathode ließe sich somit eine Emittanz von 0.05 mm mrad aus der ZrC-Nadel erreichen. Messungen mit einem Phosphorschirm 34 cm hinter der Kathode haben eine normalisierte projizierte Emittanz zwischen 0.3 und 0.7 mm mrad ergeben. Die Abweichung von etwa einer Größenordnung zum theoretisch möglichen Wert wurde dabei der Strahlverbreiterung während des Flugs der Elektronen zugeschrieben, wobei magnetische Störungen als wesentliche Ursache angegeben werden. Zudem ist von einer Verbreiterung durch die Krümmung der Nadelspitze und die darauf senkrecht treffenden Feldlinien auszugehen.

Aus $I_p = 2.9$ A und der Emittanz von $\varepsilon_x \approx \varepsilon_y \approx 0.5$ mm mrad ergibt sich eine Leuchtdichte von $B = I_p/\pi^2 \varepsilon_x \varepsilon_y = 1 \cdot 10^{12} Am^{-2} rad^{-2}$. Dies liegt nur einen Faktor 50 unter der für den XFEL am DESY in Hamburg vorgesehenen Leuchtdichte von $B_{XFEL} = 5 \cdot 10^{13} Am^{-2} rad^{-2}$ [139] und ist daher ein vielversprechender Ansatz, wenn man bedenkt, dass es sich hierbei um einen ersten Test handelt. Nadelkathoden haben jedoch den Nachteil, dass sie bei den Oberflächenfeldstärken von etwa $E_{rf} = 60 - 130 \text{ MV/m}$ [139,140] Elektronen auch feldemittieren können. Dies führt zu Strompulsen mit einer Dauer in der Größenordnung von etwa einem Zehntel der



Abbildung 2.16: a) Schematische Darstellung des Aufbaus zur Messung des PFE-Stroms aus einer ZrC-Nadel unter Bestrahlung mit einem Nd:VAN-Laser ($\lambda = 266$ nm). b) Strom- und Spannungspuls an der Nadel mit und ohne Laserbestrahlung. c) Strompulse mit und ohne Bestrahlung für verschiedene Peak-Spannungen, aus [55].

rf-Frequenz $f_{rf} = 1.3$ GHz des Beschleunigers [139], also $t_{FE,Leck} = 0.1/f_{rf} \approx 80$ ps. Dies ist vier Mal so lang, wie der geplante Photopuls aus der Cs₂Te-Kathode [139] und würde damit einen Betrieb des FELs mit einer solchen Kathode unmöglich machen. Diese FE-Leckströme sind auch der limitierende Faktor der Lebensdauer der aktuellen, zunächst flachen PE-Kathoden, die durch Ionenbombardierung im Laufe der Lebensdauer feldemittierende Strukturen erhalten. Daher sollten zukünftige PFE-Kathoden für Beschleunigerzwecke ohne feldüberhöhende Strukturen entwickelt werden. Des Weiteren wurde am PSI auch mit Spitzenarrays mit und ohne aufgewachsenem Gate experimentiert [141–143]. Durch eine Fokussierung durch das Gate oder eine zusätzliche Elektrode kann die Emittanz weiter reduziert werden. Elektronenpakete werden durch Anlegen von Spannungspulsen am Gate erzeugt. Da der Abstand zwischen Kathode und Gate weniger als ein µm beträgt, können geringere Spannungen als bei den Nadelkathoden verwendet werden. Diese ermöglichen dann auch Pulse im Subnanosekundenbereich ohne die Verwendung von Lasern.

Von Atomen und Molekülen in der Gasphase ist bekannt, dass diese unter intensiver Laserbestrahlung Elektronen durch optisches Tunneln emittieren können. Dabei führt der Laserpuls zu elektrischen Feldstärken, bei denen das Tunneln ähnlich zur FE möglich ist. 2011 wurde dies erstmals von P. Hommelhoff et al. auch an einer Festkörperoberfläche beobachtet [65]. Ahnliche Arbeiten gingen dieser voraus [144–146]. Eine mit $\beta E_{makro} = 0.4 \text{ GV/m}$ vorgespannte W-Nadel wurde dabei mit einem 6 fs langen Puls eines Ti:Saphir-Lasers mit 240 pJ bestrahlt, was einer Spitzenleistungsdichte von etwa $4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ im Fokus entspricht. Unter Berücksichtigung der Feldüberhöhung für den Laserpuls an der Nadel von $\beta' = 25$ wurde eine Feldstärke von $\beta E_{makro} + \beta' E_{Laser} = 10.4 \text{ GV/m}$ erreicht. Dies liegt deutlich über den bei der FE üblichen Feldstärken, so dass das Tunneln zu Zeitpunkten geeigneter Phase der Laserwelle möglich ist. Die Vorspannung alleine reicht dafür nicht aus. Nach dem optischen Tunneln können die Elektronen Energie durch das Laserfeld aufnehmen. Dabei werden sie zunächst durch das Laserfeld zurück zur Nadel getrieben. Dort streuen sie elastisch und nehmen während der nächsten Schwingungsperiode zusätzliche Energie auf. Diese beträgt Vielfache der mittleren Photonenenergie von 1.56 eV. Abbildung 2.17 zeigt diesen Prozess schematisch.

Das entscheidende Kriterium für die Zahl der emittierten Elektronen ist die Phase zwischen der maximalen Amplitude der Laserschwingung und der Einhüllenden des Pulses, die sogenannte Carrier-Envelope-Phase Φ_{CE} . Diese bestimmt das elektrische Feld und damit die Tunnelwahrscheinlichkeit sowie das Vektorpotential, welches für die anschließende Beschleunigung nötig ist, wie Abbildung 2.18 zeigt. Bei $\Phi_{CE} = \pi$ werden zwei Pulse emittiert und es kommt zu Interferenzen im Spektrum, die in Abbildung 2.19 zu sehen sind. Bei $\Phi_{CE} = 0$ wird nur ein dominierender Puls emittiert. Ein Interferenzmuster ist dann nicht zu erkennen. Allerdings werden hierbei höhere Maximalenergien der Elektronen erreicht.

Durch die Kontrolle der Emission durch Φ_{CE} ergibt sich die Möglichkeit, Materiewellen einzelner Elektronen mit einer intrinsischen Dauer von etwa 450 as zu



Abbildung 2.17: Schematische Darstellung des Experiments von Krüger, Schenk und Hommelhoff, aus [65]. Eine W-Nadel wird mit einem wenige Zyklen langen Laserpuls (rot) eines Ti:Saphirlasers bestrahlt. Die emittierten Elektronen (blau) können je nach Carrier-Envelope-Phase zur Nadel zurückgestreut werden, wo sie elastisch gestreut werden und anschließend zusätzliche Energie durch den Laser aufnehmen können.



Abbildung 2.18: Simulierte kinetische Endenergie (rot) der emittierten Elektronen relativ zum Zeitpunkt der maximalen elektrischen Feldstärke (grau gestrichelt) des Laserpulses, aus [65]. Zudem ist das Vektorpotential des Lichtfelds (blau gepunktet) und die Emissionswahrscheinlichkeit (grüne Fläche) dargestellt.



Abbildung 2.19: a) Zählrate (blau) der emittierten Elektronen in Abhängigkeit ihrer kinetischen Energie W_k gemittelt über alle Carrier-Envelope-Phasen Φ_{CE} aus b) und Modulationstiefe der Zählrate (grün) bei der Variation der Φ_{CE} . Die Photonenordnung ist mit eingekreisten Zahlen markiert. Insets: Zählrate des Photostroms in Abhängigkeit von der Zeit bei $W_k = 3$ und 11 eV. Es ist die Φ_{CE} -Modulation mit 0.2 Hz zu sehen. b) Konturplot der normierten gemessenen Elektronenzählrate in Abhängigkeit von Φ_{CE} und W_k . Der Plot ist bei $W_k = 4.3$ eV in verschiedene Farbskalen geteilt. In jedem Bereich ist die auf das Maximum normalisierte Zählrate gezeigt. Die Messung erfolgte in Schritten von $\Delta \Phi_{CE} = \pi/8$ über einen Bereich von 2π . Für eine bessere Darstellung ist der Bereich doppelt auf 4π geplottet. Die gelben Punkte mit Fit $(\sin(\Phi_{CE}) \text{ in rot})$ markieren die Cut-Off-Energie, bei der die Zählrate verschwindet. c) Elektronenspektren bei verschiedenen Φ_{CE} mit $\Delta\Phi_{CE} = \pi/2$. Bei 0.6π und -0.9π sind deutliche Peaks zu erkennen. d) Gemittelte Sichtbarkeit der Peaks bei der jeweiligen Φ_{CE} mit Fit (sin(Φ_{CE}) in rot). Die Peaks, die hierzu verwendet wurden, sind mit grauen Pfeilen in a) markiert. Es fällt auf, dass die Cut-Off-Energie und die Peaksichtbarkeit um $\Phi_{CE} \approx \pi$ gegeneinander verschoben sind; aus [65].

erzeugen. Neben einem Sensor zur Bestimmung der Φ_{CE} von Laserpulsen könnte dies technisch zu einer deutlichen Steigerung der Schaltfrequenz in elektrooptischen Bauteilen von bis zu 10¹⁸ Hz führen. In Analogie zur Mikrowellenelektronik, die sich mit Verfügbarkeit der Halbleiter ergab, wäre so ein neuer Bereich der Lichtwellenelektronik zugänglich [65]. Der Versuch den Prozess durch andere Mechanismen wie nichtadiabatisches Tunneln oder Multiphoton-Photoemission zu beschreiben, führt zu weniger guten Übereinstimmungen mit den experimentellen Ergebnissen [65].

Die Dauer t_T , die ein Elektron zum Passieren der Tunnelbarriere benötigt, lässt sich durch eine zeitliche Modulation der Feldstärke mit der Frequenz $f = \omega_m/2\pi$ abschätzen. Wenn $t_T \ll f^{-1}$ ist, erscheint die Barriere für das Elektron als konstant und die Tunnelwahrscheinlichkeit ist unabhängig von ω_m . Nach [147] ergibt sich $\omega_m \approx \mathcal{O}(10^{13}) \text{ s}^{-1}$. Damit sind Laser mit Intensität I_0 im infraroten und sichtbaren Bereich für eine solche Untersuchung geeignet. In [66] wurden He-Atome (Ionisationsenergie $W_I = 24.59 \text{ eV}$) mit 5.5 fs langen Pulsen eines Ti:Saphirlasers $(\overline{W}_p = 1.7 \text{ eV})$ bei Intensitäten von $2.3 \cdot 10^{14} < I_0 < 3.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bestrahlt. Dies resultiert nach [148, 149] in

$$t_T = \gamma_K / \omega_0 = 0.531 \gamma_K \lambda(\mu m) = 0.174 \sqrt{\frac{I_p(eV)}{I_0(10^{14} \text{ W/cm}^2)}}$$
 (2.44)

mit dem Keldysh-Parameter

$$\gamma_K = \frac{\omega_0 \sqrt{2W_I}}{E_0} = 0.327 \sqrt{\frac{W_I(\text{eV})}{I_0 (10^{14} \text{ W/cm}^2) [\lambda_0(\mu\text{m})]^2}},$$
(2.45)

wobei $\omega_0/2\pi$ und λ_0 die Laserfrequenz und -wellenlänge und E_0 dessen elektrische Feldstärke im Peak bezeichnet. Hierbei stellt sich also eine Tunneldauer von $t_T = 450 - 560$ as ein. Verwendet man zirkular polarisiertes Licht, variiert die Polarisationsrichtung während des Tunnelprozesses. Je nachdem zu welchem Zeitpunkt während einer Periode das Tunneln einsetzt, nimmt das Elektron einen unterschiedlichen Impuls auf, welcher sich messen lässt. Bei bekannter Phase, zu der die Emission einsetzt, lässt sich daraus die Verzögerung, die zwischen Beginn des Tunnelns und Beschleunigung durch das Laserfeld vergeht, bestimmen. Nach [66] kann für diese ein oberes Limit von 34 as gesetzt werden. Es wird darauf hingewiesen, dass die Experimente nahelegen, dass eine reale Verzögerung nicht existiert. Mit einer Tunneldauer im Bereich von $t_T \approx 500$ as ist nach der Heisenbergschen Unschärferelation ein PFE-Experiment denkbar, bei dem die Anregung in einen Bereich ohne elektronische Zustände erfolgt. Dabei wäre eine Anregung um bis zu $\Delta W \leq h/\Delta t_t \approx 8$ eV möglich. Denkbar wäre also beispielsweise eine Anregung in die Bandlücke von Silizium oder Diamant, aus der heraus dann das Tunneln erfolgt. Experimentell erfordert dies jedoch einigen Aufwand, da alle anderen Anregungsprozesse ausgeschlossen werden müssen. Insbesondere sind hier die Anregung in Oberflächenzustände oder denen von Verunreinigungen sowie die Multiphotonphotoemission zu beachten.

3 Aufbau der UHV-Apparatur zur PFE

Der Aufbau der UHV-Apparatur bildet die Grundlage dieser Arbeit. Dieser ist ausführlich beschrieben, da die Anlage abgesehen vom Vakuumtank der Hauptkammer komplett neu aufgebaut wurde, und sonst nirgendwo dokumentiert ist.

3.1 Gesamtsystem

Ziel war es, ein System zu konstruieren, zu realisieren und in Betrieb zu nehmen, mit dem sich das Anregungs-, Relaxations- und Emissionsverhalten der PFE insbesondere spektroskopisch untersuchen lässt. Eine Übersicht der gesamten Anlage ist in Abbildung 3.1 gezeigt. Als Basis wird ein Ultrahochvakuum(UHV)-System mit einem Druck in der Analysekammer im Bereich von besser als 10^{-9} mbar benötigt. Damit das Einschleusen von Kathoden innerhalb einiger Stunden möglich ist, wird eine Vorkammer benötigt. Diese ermöglicht es, die Analysekammer unter Vakuum zu belassen, während in der Vorkammer eine Kathode oder ein Gate installiert wird. Nach Abpumpen der Schleuse kann beides mit einem Transfersystem in die Analysekammer gebracht und dort installiert werden. Beide Kammern sind durch ein Plattenventil voneinander getrennt. Bei vollständiger Belüftung des Systems würde es einige Tage dauern und ein erneutes Ausheizen erfordern, um den gleichen Enddruck zu erreichen. Neben der Schleusenfunktion sollte die Vorkammer eine Möglichkeit zur Kathodenreinigung bieten, was durch eine Ionenquelle zum Ionenstrahlätzen realisiert wurde. Als Grundlage des Vakuumsystems war eine zylindrische Edelstahlkammer aus einer früheren Arbeit vorhanden. Diese wurde zur Herstellung und Untersuchung von alkalibasierten Photokathoden verwendet [150]. Die Vorkammer wurde daran aus Standard-CF63-Bauteilen installiert. Die Analysekammer benötigt einen Aufbau zur Fixierung der Kathode mit elektrischer Zuführung. Zudem sollte die Möglichkeit zur Spektroskopie der emittierten Elektronen verfügbar sein. Dazu war ein CLAM2-Spektrometer der Firma VG vorhanden, welches bis dahin zur Auger-Elektronenspektroskopie verwendet wurde. Um die für die Feldemission üblichen Feldstärken im Bereich von einigen 100 MV/m zu erzeugen, ist dann eine Gate-Elektrode nötig. Diese wurde in festem Abstand zum Spektrometereintritt mit Hilfe eines kippbaren Aufbaus im Deckel der Analysekammer installiert. Durch die Maße von Deckelflansch und Spektrometerhals sowie des Gates im Abstand der festen Brennweite des Spektrometers vor der Eintrittsöffnung des Spektrometers, wurde die Messposition definiert. Damit musste der Kathodenaufbau positionierbar konstruiert werden. Eine Verfahrbarkeit entlang der Spektrometerachse musste einen Hub von 50 mm gewährleisten, um einerseits ein Abstand von Kathode und Gate von kleiner 1 mm zu ermöglichen und andererseits den Kathodenhalter soweit zurück fahren zu können, dass sich der Arm des Transfersystems aus der Vorkammer bis vor den Kathodenaufbau schieben lässt. Da für die Installation der Vorkammer nur ein bestimmter Flansch in Frage kam, war so der Mindesthub des Kathodenaufbaus festgelegt. Des Weiteren war eine Möglichkeit zur Manipulation der Kathoden nötig, was wie üblich mit einem Wobblestick realisiert wurde. Hierbei musste darauf geachtet werden, dass dieser mit den CF35-Flanschen an der Analysekammer kompatibel war, was die Auswahl einschränkte. Die Installation und Positionierung der Kathoden sollte zum einen durch ein Fenster überwacht werden können und zum anderen mit einer Kamera in einem Abstand im Mikrometerbereich gegenüber des Gates kontrolliert werden. Wiederum wurden durch die vorhandenen Flansche die Möglichkeiten begrenzt, so dass hier ein langreichweitiges Mikroskop auf der Oberseite der Analysekammer erforderlich war. Die Beleuchtung der Kammer wurde durch eine Halogenlampe mit 150 W elektrischer Leistung außerhalb der Kammer ermöglicht. Zur variablen Beleuchtung innerhalb der Kammer war ein Glasfasersystem zur Umlenkung des Strahls vorhanden, welche auf der gegenüberliegenden Seite des Beobachtungsfensters installiert wurde.

Im Laufe der Arbeit wurde die beantragte BMBF-Förderung [151] zur Untersuchung der photoinduzierten Feldemission für Elektronenquellen hoher Brillanz genehmigt. Hiermit konnte die Anlage unter anderem um einen OPO-Laser mit Strahlfokussierungsoptik, eine neue Ionenzerstäuberpumpe (IZ-Pumpe) sowie einen neuen Messrechner erweitert werden. Für den Laser wurde zudem ein Justagetisch konstruiert. Die Pumpe wurde am CF150-Flansch an der Unterseite der Kammer installiert. Damit waren alle radialen Flansche des Kammerzylinders belegt. Die elektrische Zuführung der Kathode wurde mit einem spiralförmig gebogenen Kupferdraht über einen eine BNC-Vakuumdurchführung auf einem CF35-Flansch an der Rückseite der Kammer realisiert. Daneben wurde ein Bayard-Alpert-Vakuummeter, eine 10-polige



Abbildung 3.1: Foto der PFES-Vakuumkammern (oben) und der gesamten Anlage. Details zu den verschiedenen Teilen sind in diesem Kapitel zu finden.

elektrische Durchführung für verschiedene Zwecke sowie ein Massenspektrometer zur Restgasanalyse installiert. Die elektrische Zuführung des Gates läuft über eine Hochspannungsdurchführung am Deckelflansch. Des Weiteren sind dort zwei Drehdurchführungen zur Einstellung des Gatetilts vorhanden. Zur optischen Bestrahlung der Kathode war ein UV-transparentes Fenster nötig, was ebenfalls am Deckelflansch angebracht wurde. Die Strahlführung konnte durch Einschnitte im Gateaufbau so gewählt werden, dass sie durch das Fenster, vorbei an der Spektrometereintrittsöffnung und durch das Gate auf die Kathode zielt. Zur Kontrolle des Laserspots auf der Kathode war ein weiteres Fenster oberhalb des UV-Fensters nötig. Damit waren bis auf drei weitere CF35-Flansche im Deckel alle Anschlüsse des Vakuumtanks belegt. Im Folgenden wird der Aufbau der Kammern im Detail beschrieben.

3.2 Präparations- und Schleusenkammer

Die Präparations- und Schleusenkammer (PSK) ist aus Standard-CF63-Teilen im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut worden und ist ebenfalls in Abbildung 3.1 zu sehen. Sie wird durch eine Trivac D4B Drehschieber- sowie eine Pfeiffer TPU 240 C Turbomolekularpumpe (TMP) evakuiert. Bei einem Vordruck von etwa $6 \cdot 10^{-3}$ mbar kann die TMP zugeschaltet werden. Sie erreicht nach etwa zwei Stunden einen Enddruck von $2 \cdot 10^{-7}$ mbar. Der Druck wird mit einem Bayard-Alpert-Vakuummeter oberhalb der TMP gemessen. Die PSK enthält einen selbstentwickelten Lineartranslator zum Ein- und Ausschleusen von Kathoden und Gates in die Analysekammer, wie in der CAD¹²-Zeichnung in Abbildung 3.2 gezeigt. Die Linearführung der Achse erfolgt durch vier Radialkugellager. Der Vorschub erfolgt durch Drehung der Antriebsachse mit einer Drehdurchführung auf der Rückseite der Kammer. Die mechanische Verbindung zwischen Antriebsachse und Führungsachse ist mit zwei Vitonringen realisiert. Die Reibung ist variabel einstellbar, um sowohl ein Durchdrehen als auch das Blockieren der Achsen zu verhindern. Die Führungsachse hat eine Länge von 467 mm bei einem Verfahrweg von 367 mm.

Der Träger des Lineartranslators besitzt drei zylindrische Bohrungen zur Aufnahme von Kathoden sowie eine quaderförmige Aussparung auf der Oberseite, in die ein Gate gesetzt werden kann. Beide Aufnahmen verfügen nicht über eine Möglich-

 $^{^{12}}$ Computer-Aided Design (CAD): rechnerunterstütztes Konstruieren mechanischer Bauteile.



Abbildung 3.2: CAD-Zeichnung des Transfersystems in der PSK in Seiten- und Frontansicht mit Radialkugellagern (rot), dem Kathoden- und Gatehalter (blau), Vitonringen (schwarz) zum Vortrieb auf der Antriebsachse (gelb) und der Führungsachse (grün) mit Nut. Die Befestigung an der PSK erfolgt durch die Bodenplatte (dunkelgrau), die Rotation der Antriebsachse durch Angriff der Rotationsvakuumdurchführung auf der Rückseite der Achse (in der Zeichnung rechts). Die möglichen Rotationswinkel sind in der Frontansicht an der jeweiligen Achse gekennzeichnet. Der Maßstab bezieht sich nur auf die 2D-Seitenansicht der linken Zeichnung.

keit zur Fixierung, weshalb der Träger leicht gegen die Achse verkippt angebracht ist. Dadurch kann ein Herausrutschen der Kathoden effektiv verhindert werden, ohne die Stabilität der Gateaufnahme zu beeinträchtigen.

Neben der Translation ist eine axiale Rotation der Achse um bis zu 90° durch eine am Ende der PSK angebrachte Drehdurchführung möglich. Die Rotation ist nötig, um Kathoden mit Hilfe einer Ionenquelle unter optimalem Winkel von etwa 70°, wie in Abbildung 3.3 gezeigt, zu reinigen. Bei Verwendung einer 2 mm hohen Kathode (Trägerplatte + Emissionsmaterial) und den dazugehörigen Kathodenträgern, liegt der Mittelpunkt der Kathodenoberfläche im Drehzentrum der Linearachse. Die Ionenquelle befindet sich auf der Oberseite der Kammer. Die Strahlachse ist identisch mit der vertikalen Achse des CF63-Doppelkreuzes. Der Strahldurchmesser lässt sich zwischen $D_{FWHM} = 5$ und 20 mm variieren. Um eine ungewollte Rotation der Linearachse in nicht vollständig eingefahrener Position zu verhindern, ist auf der Unterseite der Achse eine Nut eingefräst, durch die ein Stift auf der Führungsplatte fährt. An der Sollposition erlaubt eine radiale Aussparung die Rotation der Linearachse. Da solche Gleitführungen bei der Verwendung gleicher, insbesonderer weicher Materialien dazu neigen, festzufahren, besteht die Führungsplatte aus Edelstahl, wohingegen der Rest der Führung aus Aluminium gefertigt ist.



Abbildung 3.3: Normierte Sputterrate ($\Theta = 0^{\circ}$) von Ag, Ta, Ti und Al mit 1.04 keV Ar⁺-Ionen in Abhängigkeit des Einfallswinkels Θ der Ionen relativ zur Oberflächennormalen, aus [152, 153].

Durch eine vitongedichtete Fensterluke an der Vorderseite der PSK können Kathoden und Gates auf dem Halter des Translators installiert werden. Von der Luke geht die höchste Leckrate in der PSK aus, was den genannten Enddruck maßgeblich bestimmt. Zum Belüften der Kammer kann wahlweise Trockenstickstoff oder Argon 5.0 verwendet werden. Beide werden über ein Grob- und ein Feindosierventil am Gaseinlass der Ionenquelle zugeführt. Argon wird ebenfalls als Sputtergas verwendet. Da die Ionengetterpumpe der Analysekammer nicht für das Pumpen von Edelgasen optimiert ist, sollte zum Belüften bevorzugt Trockenstickstoff verwendet werden.

3.3 Analysekammer

Die Analysekammer (AK) hat ein Volumen von etwa 50 l und besteht aus einem zylinderförmigen Edelstahltank, der mit einem Deckelflansch ($\emptyset = 300 \text{ mm}$) mit Kupferdichtung an der Frontseite geschlossen wird. Eine Zeichnung der Kammer zeigt Abbildung 3.4. Die AK wird über die Pumpen der PSK vorevakuiert. Bei einem Druck von $5 \cdot 10^{-7}$ mbar wird die unterhalb der AK angebrachte Ionengetterpumpe (IGP) TiTan 300L (Saugvermögen S = 300 l/s) der Firma Gamma Vacuum zugeschaltet. Nach Ausheizen der Kammer bei bis zu 150 °C (120 °C am vitongedichteten Plattenventil) wird nach drei Tagen ein Enddruck von bis zu $1 \cdot 10^{-10}$ mbar erreicht. Der Druck wird mit einem Leybold-Heraeus Ionivac IM 51 Vakuummeter auf der Rückseite der Kammer oder direkt mit der IGP gemessen. Ebenfalls an der Rückseite ist ein Inficon Quadrex 200 Massenspektrometer installiert, um die Restgaszusammensetzung zu bestimmen, die im Wesentlichen aus H_2 und N_2 besteht [154]. Diese wird zudem verwendet, um Helium-Lecktests durchzuführen. Des Weiteren ist hiermit zu erkennen, wenn bei hohen Kathodenströmen Material der Kathode oder des Gates verdampft oder abgesputtert wird. Die AK enthält ein Triodensystem bestehend aus einem dreidimensional translatierbarem Kathodenaufbau, einem kippbaren Gate und dem hemisphärischen Energieanalysator hinter dem Gate, wie in Abbildung 3.5 zu sehen. Der Kathode-Gate-Abstand d_{KG} wird mit einem langreichweitigen Mikroskop mit Digitalkamera (1280 x 1024 Pixel für $2.2 \times 1.8 \text{ mm}^2$ Objektbereich) in einem Arbeitsabstand von 290 mm und einer optischen Auflösung von 10 µm (entspricht der minimalen Breite noch trennbarer, aneinanderliegender schwarzer und weißer Linien) überwacht. Der Strahlengang muss aufgrund des genutzten Fensters durch ein Periskop umgeleitet werden. Die Übergabe von Kathoden und Gates vom Transfersystem aus der PSK wird mit einem Wobblestick durchgeführt. Ebenso wird dieser für alle weiteren Manipulationen der Kathoden verwendet. Die Kathoden können durch ein Quarzglasfenster am Deckelflansch beleuchtet werden, wobei der Strahl von hinten durch das Gate auf die Kathodenoberfläche gelangt. Die Verwendung von Quarzglas ist aufgrund seiner Transmission von etwa $\lambda = 170 - 2700$ nm insbesondere für die UV-Beleuchtung nötig (vergleiche Abbildung 3.20). Die Kammer selbst wird durch einen Halogenstrahler auf der Außenseite beleuchtet.



Abbildung 3.4: Zeichnung der Analysekammer nach Vorlage aus [150] in Seiten-(oben) sowie Rück- (unten links) und Frontansicht. Es sind vier verschiedene Flanschgrößen verbaut, welche entsprechend ihrer Größe gezeichnet sind (CF150, CF63, CF35, CF16). Der Übersichtlichkeit halber wurde in der Seitenansicht auf die CF16-Flansche verzichtet, in der Frontansicht auf die übrigen Flansche des Deckels. Abgesehen von den beiden Flanschen für die Schleusenkammer und den Wobbelstick ist die Kammer mit Deckel symmetrisch zur Bildebene. Die Beschriftungen kennzeichnen die an den jeweiligen Flansch angebauten Teile. Die Hochspannungsdurchführung (HV-DF) befindet sich auf der abgewandten Seite der Seitenansicht und ist deshalb in Klammern gestellt. Man beachte den lateralen Versatz zwischen dem CF35-Flansch auf der Oberseite und den Sichtfenstern auf 45°.

3.3.1 Kathodenkonfiguration

Der Kathodenaufbau sitzt auf einem 450 mm langen Stempel mit einem Durchmesser von 34 mm, welcher an einer Rotationsmechanik auf der Kammerrückseite befestigt ist. Durch diese ist der Stempel entlang seiner Achse linear um $d \leq 50 \text{ mm}$ mit einer Präzision von etwa 42 µm beweglich ($\cong 1^{\circ}$ Rotation). Der Stempel ist in der Aufnahme an der Kammerrückseite an einem Punkt gelagert. Durch Druck senkrecht zur Achse auf den Stempel auf der Außenseite lässt sich so eine Translation der Kathode senkrecht zur Gateachse zusammen mit einer Verkippung erreichen. Im Inneren des Stempels befinden sich Kühlrohre und ein Heizdraht, um die Kathodentemperatur bei Bedarf zwischen 77 und 700 K zu variieren. Die Temperatur ist dabei durch die Verwendung von Aluminiumbauteilen nach oben limitiert. Auf den Stempel ist ein unter einer biegbaren Aluminiumplatte eingeklemmtes Piezoelement (PI P-885.91, 5x5x36 mm³) zur Feineinstellung von $d_{KG} < 32 \ \mu m$ eingesetzt. Darauf befindet sich ein Macor¹³-Zylinder zur elektrischen Isolation des eigentlichen Kathodenhalters gegenüber des elektrisch mit der AK verbundenen Stempels. Der Kathodenhalter aus OFHC-Kupfer¹⁴ sitzt auf dem Isolator und besitzt eine Flügelschraube zur Fixierung der Kathoden im Halter. Ein Kupferdraht verbindet den Halter mit einer BNC-Koaxialdurchführung zur Strommessung. Die Kathodenträger haben einen Fußdurchmesser von 6.0 mm und werden mit einem Offset von 5 mm senkrecht zur Stempelachse im Kathodenhalter installiert. Der Offset dient dazu, durch Rotation der Kathode verschiedene Punkte auf der Kathode vermessen zu können. Auf dem Kathodenträger werden die emittierenden Materialien ($\emptyset \leq 30 \text{ mm}$) mit Silberleitlack oder leitenden, UHV-tauglichen Klebepads befestigt.

¹³Macor der Firma Corning Inc. bezeichnet eine spanend bearbeitbare Glaskeramik und ist ein thermischer und elektrischer Isolator. Sie ist porenfrei, gast nur wenig aus und ist daher UHV-tauglich.

¹⁴OFHC: **O**xygen **F**ree **H**igh Conductivity, bezeichnet eine Gruppe von Kupferlegierungen, deren Sauerstoffgehalt < 0.001 % beträgt. Diese bieten den Vorteil einer deutlich reduzierten Sauerstoffabgabe ins Vakuum sowie eine hohe Leitfähigkeit.



Abbildung 3.5: Foto des Kathodenaufbaus in der Analysekammer bei geöffnetem Deckelflansch. Die elektrische Kontaktierung der Kathode führt über das spiralförmige Kabel zur BNC-Durchführung auf der Kammerrückseite. Daneben ist die Aufnahme des Stempels zu sehen. Das Spiel um dessen Auflagepunkt ermöglicht eine näherungsweise Translation der Kathode durch Rotation des Stempels um diesen Punkt. Der Ersatzkathodenhalter kann an den am Rand angebrachten Schrauben durch den Wobbelstick rotiert werden. Inset: Foto der Kathodenaufnahme auf dem Macor-Isolator und der Biegeplatte. Darunter ist das Piezoelement zu sehen.

3.3.2 Kippbarer Gateaufbau

Der Gateaufbau ist wie in Abbildung 3.6a zu sehen am Deckelflansch angeschweißt. Er besteht aus zwei aufeinanderstehenden Dreibeinen mit zwischenliegendem Tragring. Aufgesetzt ist eine biegbare, verstärkte Teflonplatte, die einerseits zur elektrischen Isolation des Gates vom tragenden Aufbau, und andererseits zum Ausgleich von Verkippungen zwischen Gate- und Kathodenoberfläche dient. Die Verkippung wird durch zwei Rotationsdurchführungen im Deckelflansch eingestellt, die über je ein Kardangelenk mit Feingewindeschrauben im Tragring verbunden sind. Die Biegeplatte wird mit Federn aus Kupfer-Beryllium-Draht gegen die Feingewindeschrauben gespannt. Das dritte Bein ist fixiert. Damit lassen sich eine flache Kathode und das Gate mit einer Parallelität von unter $0.003^{\circ} = 11''$ und einem Minimalabstand von $d_{min} = 50$ µm justieren. Die Verkippung lässt sich mit dem langreichweitigen Mikroskop aktuell nur von oben aus korrigieren. Eine Erweiterung des Periskops, um aus zwei senkrecht zueinander stehenden Positionen auf das Gate zu sehen, ist geplant, wurde aber noch nicht umgesetzt.



Abbildung 3.6: a) Foto des Gateaufbaus im Inneren des Deckelflanschs. Die Flügelschraube im Gatehalter wurde der Übersichtlichkeit halber nicht beschriftet. b) CAD-Zeichnung des Gatehalters (semitransparent) mit -hülse. Die beiden Aussparungen für den Laserstrahl (unten) und die Kamera (oben) sind zu sehen. c) Foto durch das Quarzfenster mit Blick auf die Rückseite des Gates. Mittig ist das Mesh-Gate zu sehen. Bei der Justage des Laserstrahls muss auf den Spektrometerhals geachtet werden, der von rechts oben ins Bild ragt. d) Zeichnung eines Netzes mit einer Lochgröße von $l = 220 \ \mu m$ (innerer Abstand zweier benachbarter, paralleler Stege), 30 μm Stegbreite und $\emptyset_{Netz} = 3.05 \ mm$. Die Dicke beträgt etwa 18 μm .

Auf der Teflonplatte sitzt der Gatehalter aus Kupfer, in den die Gatehülse samt eingespanntem Gate eingesetzt werden kann. Diese wird mit einer Flügelschraube von der Seite fixiert. Die Bedienung erfolgt per Wobbelstick. Die Form des Gates entspricht wie in Abbildung 3.6b gezeigt einem hohlen Kegelstumpf, um das elektrische Feld auf den ausgewählten Punkt auf der Kathode zu fokussieren. Auf die Oberseite des Lochgates kann bei Bedarf mit Silberleitlack ein Kupfernetz mit verschiedenen hexagonalen Maschen aufgeklebt werden (acht verschiedene Lochdurchmesser zwischen 42 und 425 µm mit Stegbreiten zwischen 20 und 75 µm). Hexagonale Netze haben bei einer gegebenen Zahl von Stegen, welche die Elektronenabsorption im Gate begrenzen, eine höhere Stabilität als quadratische Netze. Die optische Transmission der Netze beträgt etwa 80 %. An das Gate ist das Hochspannungsnetzteil FUG HCN 35-35000 ($U_{max} = 35$ kV, $I_{max} = 1$ mA) über eine Vakuumdurchführung im Deckelflansch angeschlossen. Durch die Nennspannung der Durchführung ist die maximale Spannung auf 20 kV limitiert. Ein Teil der Elektronen passiert das Gate auf seiner Achse und erreicht hinter dem Gate den Spektrometereingang. Bei geschlossenem System sitzen sich Kathode und Gate wie in Abbildung 3.7 gezeigt gegenüber.



Abbildung 3.7: Foto von Gate (links) und Kathodenhalter (rechts) mit eingesetzer Kathode bei geschlossenem System. Der Offset von 5 mm zwischen Kathoden- und Gateachse ist zu erkennen.

3.3.3 Elektronenspektrometer

Das Spektrometer sitzt mit seiner Eintrittsöffnung 28.3 mm hinter der Gateöffnung. Es handelt sich um einen hemisphärischen Sektoranalysator (HSA, VG Clam 2 CL008) mit elektrostatischen Linsen im Eintrittsrohr, wie in Abbildung 3.8 schematisch gezeigt.



Abbildung 3.8: Querschnittszeichung des 150° hemisphärischen Energieanalysators CLAM2. Die tragenden Teile im Inneren sowie elektrische Zuführungen sind nicht gezeigt. Die Elektronen treten links in den Spektrometerhals ein, werden durch das Linsensystem auf den Eintrittsspalt fokussiert, passieren diesen bei ausreichender Mindestenergie, anschließend die Hemisphären und werden dann hinter dem Austrittsspalt im Channeltron vervielfacht und detektiert. Die Hemisphären können nur passiert werden, wenn die durch den Eintrittsspalt abgebremsten Elektronen eine kinetische Energie $W_{kin} = W_{pass} \pm \Delta W$ besitzen. Schnellere Elektronen werden an der äußeren, langsamere an der inneren Hemisphäre absorbiert.

Die in die Eintrittsöffnung tretenden Elektronen werden mit einem Akzeptanzdurchmesser von 2.5 mm und einem -winkel von 5° durch die Linsen auf die variablen Eintritts- und Austrittsspalte (Breite w = 0.5, 1, 2, 4 mm) vor und hinter den zwei konzentrischen Hemisphären fokussiert. Die Hemisphären decken einen Winkel von 150° bei einem mittleren Radius von $r_0 = 100$ mm ab. Da die Linsen eine Vergrößerung von 1 aufweisen, entspricht der Eintrittswinkel in die Hemisphären α dem Akzeptanzwinkel an der Eintrittsöffnung des Spektrometers. Die Auflösung eines HSA kann damit nach [155] näherungsweise durch

$$\Delta W = (0.43 \frac{w}{r_0} + 0.25 \alpha_{max}^2) W_{pass} + \Delta U_r + \Delta U_{Kath}$$
(3.1)

bestimmt werden. ΔU_r und ΔU_{Kath} bezeichnen das Rauschen auf der Bremsspannung und der Kathodenvorspannung. Beide können in der Regel vernachlässigt werden, da U_r durch das entsprechende Netzteil und U_{Kath} durch die Verwendung von Batterien ausreichend rauscharm sind. Genauere Betrachtungen zur Auflösung eines HSA sind in [156–159] zu finden. Das Spektrometer kann wahlweise im "constant analyzer energy"- (CAE) oder "constant retard ratio"-Modus (CRR) betrieben werden. Im CAE-Modus wird die Passenergie ($W_{pass} = 2, 5, 10, 20, 50, 100, 200 \text{ eV}$) der Elektronen durch die Hemisphären für alle zu messenden kinetischen Energien W_{kin} konstant gehalten. Im CRR-Modus beträgt W_{pass} einen festen Teil von W_{kin} (1, 1/2, 1/4, 1/10, 1/20, 1/40, 1/100). Da die Spektrometerauflösung proportional zur Passenergie ist, ist der CAE-Modus für die PFE-Spektroskopie zu bevorzugen, da eine konstante Auflösung über ein gesamtes Spektrum erreicht wird.

Die maximale W_{kin} kann wahlweise auf 82, 1638 oder 3277 eV eingestellt werden, was durch die Auflösung von 16 Bit einer Schrittweite von 1.25, 25 oder 50 meV entspricht. Hinter dem Austrittsspalt sitzt ein Einkanalelektronenvervielfacher (Channeltron, Burle Industires Inc.), der im Proportional- (PM) oder Sättigungsmodus (SM) mit einem Lock-In-Verstärker (für PM) oder dem Pulszähler (für SM) ausgelesen werden kann. Der Dynamikbereich ist im SM maximal und beträgt $2 \cdot 10^6$ s^{-1} , weshalb dieser bevorzugt verwendet wird. Der Dynamikbereich wird durch die Totzeit des Channeltrons von 500 ns festgelegt. Die Aufnahmezeit für ein Spektrum liegt je nach Auflösung und Strom bei einigen Sekunden bis zu einer Minute. Der in Kapitel 3.4 beschriebene OPO-Laser erzeugt Pulse mit einer Dauer von 3.5 ns. Die damit erzeugten Elektronenpakete weisen dann eine ähnliche Dauer auf. Durch die Totzeit des Channeltrons ist eine Zählung der einzelnen Elektronen eines solchen Pulses prinzipiell nicht möglich. Alternativ käme die Messung des Stroms, den ein Elektronenpaket nach Verstärkung erzeugt, in Frage. Hierzu müsste das Channeltron im Proportionalmodus betrieben und der Strompuls am Ausgang integriert werden. Die üblicherweise verwendete, eingebaute Verstärkerschaltung müsste dann umgangen werden und der Ausgangspuls zeitaufgelöst aufgenommen werden. Das Integral des Pulses ist dann proportional zur Zahl der Elektronen im Paket. Entsprechend könnte auf diese Weise auch ein durch den OPO-Laser erzeugtes PFE-Spektrum aufgenommen werden. Hierzu wurde ein PC-Oszilloskop angeschafft, welches in die vorhandene Software integriert werden sollte. Dabei ergaben sich jedoch einige weitere Probleme. Da parallel hierzu der Folgeantrag des genannten BMBF-Projekts [151] genehmigt wurde, in dem ein neues, für kurze Pulse geeignetes Spektrometer enthalten war, wurde dieser Weg nicht weiter verfolgt.

Die Optimierung des Spektrometers für FE-Spektroskopie wurde im Rahmen der Bachelorarbeit von S. Mingels mit Wolframnadeln durchgeführt [154]. Diese wurden aus einem W-Draht mit einem Durchmesser von 0.5 mm mit KOH-Lauge elektrochemisch geätzt. Der Radius der Spitzen beträgt etwa 10 µm. Nach der Herstellung wurden die Nadeln mit Ethanol und Aceton gereinigt und per FE-Strom ausgeheizt, um Adsorbate zu entfernen. Zunächst wurde die Abhängigkeit der integralen Zählrate eines Spektrums vom Kathodenstrom I_{Kath} untersucht, wie Abbildung 3.9 zeigt. Im Rahmen der Fehler kann hier von einem linearen Verhalten ausgegangen werden. Anschließend wurden Spektren bei $I_{Kath} = 180$ nA mit verschiedenen Offnungen des Eintrittsspalts w und W_{pass} aufgenommen. Diese sind in Abbildung 3.10 gezeigt. Bei w = 4 mm ist deutlich zu erkennen, dass die Flankensteilheit proportional zu W_{pass} fällt. Für w = 0.5 mm sind nur noch geringe Abweichungen zwischen $W - W_F = 0.3 - 0.6$ eV zu sehen. Die jeweiligen theoretischen Auflösungen ΔW sind angegeben, woraus sich $\Delta W \leq 50$ meV abschätzen lässt. Zudem ist ersichtlich, dass die Zählrate und damit das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR) eines Spektrums um so größer ist, je größer w und W_{pass} sind. Dabei steigt jedoch auch die Energieauflösung.



Abbildung 3.9: Integrale Zählrate der Spektren bei verschiedenen Kathodenströmen mit linearem Fit. Inset: Der gleiche Graph bei kleinen Strömen.



Abbildung 3.10: FE-Spektren einer W-Nadel mit $I_{Kath} = 180$ nA bei verschiedenen Spaltbreiten w und Passenergien W_{pass} . Die jeweils zugehörigen theoretischen Auflösungen ΔW nach [155] sind angegeben.

In einer weiteren Messung wurde die Temperatur der Nadel anhand der Fermi-Kante des Spektrums bei verschiedenen Strömen bestimmt. Das in Abbildung 3.11 gezeigte Verhalten lässt sich durch das Stefan-Boltzmann-Gesetz erklären. Durch die steigende abgestrahlte Leistung mit steigender Temperatur wird ein weiterer Anstieg verhindert. Die geringste noch bestimmbare Temperatur lag bei T = 578 K $(W_{therm} = k_B T = 49.8 \text{ meV})$, was mit obiger Abschätzung der Auflösung übereinstimmt. Des Weiteren wurde einige Arbeit in die Datenaufnahme und -verarbeitung investiert, um die Qualität der Spektren zu optimieren. Hierbei ist insbesondere die Verbesserung des SNR durch analoge und digitale Datenmittelung zu nennen. Insgesamt muss ein geeigneter Kompromiss aus Auflösung, Zählrate und Messdauer für den jeweiligen Zweck gefunden werden. Näheres hierzu ist in der Arbeit ausgeführt.



Abbildung 3.11: Temperatur der W-Nadel in Abhängigkeit ihres FE-Stroms bestimmt aus dem Fit der hochenergetischen Kante des FE-Spektrums mit der Fermi-Dirac-Verteilung. Die Fehler ergeben sich aus dem mittleren Rauschen des FE-Stroms je Spektrum und dem Fehler des Fits. Inset: FE-Spektrum bei $I_{Kath} = 144$ nA (schwarze Punkte) mit Fit der Fermi-Dirac-Verteilung (rot). Es ergibt sich eine Temperatur von $T = 578 \pm 60$ K.

Ein weiterer Funktionstest des Systems war die Bestimmung der Austrittsarbeit eines CNT¹⁵-Patches [160,161] mit Hilfe eines Feldemissionsspektrums und der FN-Kurve aus Abbildung 3.12. Daraus kann wie in Gleichung 2.36 die Austrittsarbeit zu $\Phi_{CNT} = 4.86 \pm 0.5$ eV bestimmt werden, was in guter Übereinstimmung zur Literatur ist [72]. Der Fehler ist mit etwa 10 % allerdings recht hoch, was im Wesentlichen auf das Rauschen der FN-Kurve bei dieser Messung zurückzuführen ist.



Abbildung 3.12: Gemessene FN-Kurve des CNT-Patch und zugehöriges Spektrum bei $E_0 = 1.2$ MV/m, $I_{Kath} = 5.0$ µA und $\Delta W = 80$ meV. Aus der Steigung der FN-Geraden und der niederenergetischen Flanke des Spektrums wurde eine Austrittsarbeit von $\Phi_{CNT} = 4.86 \pm 0.5$ eV bestimmt.

3.3.4 Elektrostatische Simulationen

Da der Feldemissionsstrom exponentiell von der elektrischen Feldstärke abhängt, ist es wichtig, durch geeignete Geometrie des Gates auf der Kathode ein homogenes Feld zu erzeugen. Mit COMSOL Multiphysics 4.3 [162] wurden dazu FEM-Simulationen

¹⁵Carbon Nanotube (CNT): Zylindrische Röhren aus Kohlenstoffatomen in hexagonaler Anordnung mit einem Durchmesser von weniger als 50 nm. Man unterscheidet ein- und mehrwandige CNTs.
des elektrischen Potentials und der sich daraus ergebenden Feldstärke und Elektronentrajektorien durchgeführt. Es wurde eine vereinfachte axialsymmetrische Geometrie der Kathoden-Gate-Geometrie wie in Abbildung 3.13 verwendet. Das Netz wurde dabei durch fünf konzentrische Ringe approximiert. Dies stellt eine ausreichend gute Näherung für das reale Netz dar, da die bestimmte Feldinhomogenität durch ein Abfallen des Feldes zum Rand hin verursacht wird, wie Abbildung 3.14 zeigt. Die Inhomogenität der Feldstärke $\Delta E/E$ vom Zentrum zum Rand des Gatelochs beträgt danach 18 % für ein Lochgate und 4 % für ein Netzgate. Auffällig ist die Feldüberhöhung an Kanten des Gates. Diese tragen zur Feldinhomogenität im Bereich des Gates bei und beeinflussen die Trajektorien der passierenden Elektronen. Dies führt zu einer Aufweitung des Elektronenstrahls. Dieser Effekt ist umso größer, je näher die Elektronen den Stegen kommen.



Abbildung 3.13: Simulierte elektrische Feldstärke zwischen einer flachen Kathode $(U_0 = -100 \text{ V})$ und einem Loch- (links) und Netzgate $(U_G = 1000 \text{ V})$ im Abstand von $d_{KG} = 1 \text{ mm}.$

Das Elektronenspektrometer ist für Auger- und XP-Spektroskopie, also die Verwendung im elektromagnetisch feldfreien Raum, konstruiert worden. Durch das verwendete Gate auf Hochspannungspotential ist dies in dieser Anlage jedoch nicht gegeben. Daher ist der Einfluss auf die Elektronentrajektorien zu überprüfen. Dieser wurde bei verschiedenen Gatespannungen in der Diplomarbeit von S. Rutkowski [163] genauer untersucht. Hierbei wurde eine detaillierte 3D Version der Geometrie mit Netzgate verwendet. Es wurde auch der Einfluss von Asymmetrien wie den Befestigungsschrauben und der zwei Spalte in der Gatehülse untersucht. Diese



Abbildung 3.14: Elektrische Feldstärke auf der Kathodenoberfläche für die Parameter aus Abbildung 3.13.

haben jedoch kaum Einfluss auf die Trajektorien. Als wesentlich haben sich das Hineinragen des Feldes in die zylinder- und kegelstumpfähnlichen Geometrien von Gate und Spektrometer sowie der Einfluss der Stege in den Netzen herausgestellt. Ersteres wurde auch bei der Verwendung eines Lochgates festgestellt. Abbildung 3.15 zeigt die Feldverteilung und Elektronentrajektorien durch das Triodensystems bei $U_G = 0$ und 500 V sowie 3 und 9 kV. Die Elektronen starten ohne Anfangsimpuls an der Kathodenoberfläche. Sie werden dann durch das Feld senkrecht von der Kathode wegbeschleunigt. Die Feldüberhöhung an den Stegen des Netzes an der Gatevorderseite erzeugt eine Aufweitung des Strahls. Das hineinragende Potential an der Gaterückseite führt zu einer weiteren Aufweitung. Das Potential am Spektrometereingang hingegen fokussiert den Strahl wieder. Die Trajektorien zwischen Kathode und Spektrometereingang unterscheiden sich allerdings nur wenig bei $U_G = 1, 3$ und 9 kV. Da Spektren bei verschiedenen Strömen in der Regel nur innerhalb weniger kV aufgenommen werden, da andernfalls die Zählrate zu gering ist oder die Kathode zu heiß wird, lassen sich Spektren auch bei verschiedenen U_G vergleichen. Das lineare Verhalten der Zählrate in Abhängigkeit des Kathodenstroms aus Abbildung 3.9 stimmt mit diesen Befunden überein.



Abbildung 3.15: Querschnitt durch das simulierte elektrische Potential der Triodenanordnung (weiß) mit Meshgate bei $U_g = 0, 1, 3$ und 9 kV. Die Maße sind in mm angegeben, die Spannungsskala in V. Je nach Spannung ragt das Potential unterschiedlich stark in das Spektrometer und führt dementsprechend zu einer unterschiedlichen Fokussierung. Da das Linsenfeld nicht bekannt ist, ist eine genauere Betrachtung innerhalb des Spektrometerhalses nicht möglich. Die nicht exakte Symmetrie der Trajektorien um die vertikale Mittelachse ist auf die Asymmetrie der drei Schrauben und die Startpositionen der Elektronen relativ zu den Stegen des Gates zurück zu führen. Durch letztere kommen verschiedene Elektronen den Stegen unterschiedlich nah. Sie werden stärker abgelenkt, je näher sie die Stege passieren.

Zur Kompensation der Trajektorienverbreiterung wurden verschiedene Lösungen simuliert. Eine einfache und effektive Lösung ergibt sich durch Anbringung zweier weiterer Netze an der Rückseite der Gatehülse und am Spektrometereingang. Dadurch verlaufen makroskopisch alle Feldlinien zwischen Kathode und Spektrometer senkrecht zur Kathodenoberfläche und nehmen damit keinen Einfluss auf den Durchmesser und die Divergenz des Elektronenstrahls. An den Stegen der Netze kommt es zwar weiterhin zu Ablenkungen, diese haben jedoch bis zum Spektrometer nur wenige Auswirkungen. Im Spektrometer sorgen die Linsen für eine Fokussierung auf den Eintrittsspalt, sofern die Elektronen innerhalb des Akzeptanzbereichs mit einer Breite von 2.5 mm und unter einem Winkel $< 5^{\circ}$ eintreffen. Beide Netze wurden bisher jedoch noch nicht installiert. Alternativ zur Lösung mit zwei zusätzlichen Netzen könnte eine elektrostatische Linse zwischen Gate und Spektrometer eingebaut werden. Diese müsste jedoch abhängig von U_G gesteuert werden. Sie hätte den Vorteil einer einstellbaren Zählrate, würde aber auch die Bedienung noch einmal komplizierter gestalten. Daher wurde auf diese Lösung verzichtet. Nähere Details zu beiden Varianten sind in [163] zu finden.

3.3.5 Emissionseigenschaften

Die in Kapitel 2.3.1 genannten Voraussetzungen für orthodoxe Emission betreffen in den Punkten A und B den Gate- und Kathodenaufbau. Hierauf wird nun näher eingegangen.

A Die Spannungsdifferenz zwischen den emittierenden Bereichen und einer nahegelegenen Gegenelektrode ist einheitlich im emittierenden Bereich und entspricht der gemessenen Spannung.

Die FEM-Simulationen zeigen, dass das elektrische Feld auf der Kathode ausreichend homogen ist, sofern ein Netzgate verwendet wird und die Emitter sich innerhalb der Öffnung des Gates befinden. Außerhalb der Öffnung fällt das Feld ab. Der Beitrag zum Strom aus diesem Bereich ist also geringer als der Theorie nach zu erwarten. Der gemessene Gesamtstrom kann dann nicht mehr exakt mit der FN-Theorie beschrieben werden. Zudem werden diese Elektronen nicht im Spektrometer detektiert. Bei der Wahl der Kathode ist also darauf zu achten, dass alle Emitter innerhalb der Gateöffnung liegen. Das Beschneiden einer größeren Kathode führt zu Rändern, von denen gegebenenfalls ein hoher Beitrag resultieren kann, wenn die Kanten zu scharf sind. Hier muss im Einzelfall abgewägt werden, welcher Effekt den größeren Einfluss hat. Bei der Verwendung eines Lochgates kann das elektrische Feld nur in kleinen Bereichen als ausreichend einheitlich angesehen werden. Entsprechend kann dies nur für Messungen mit einzelnen oder wenigen Emittern auf kleinem Raum verwendet werden, wie mit einer Nadelkathode oder kleinen Patches. Es kann davon ausgegangen werden, dass die gemessene Spannung im Rahmen der in Kapitel 3.5.2 genannten Fehler der realen Spannung am Gate entspricht. Etwaige parallele oder serielle Widerstände sind ausreichend groß beziehungsweise klein und liefern keine nennenswerte Abweichung.

B Der gemessene Strom ist identisch mit dem Gesamtstrom der Kathode und wird ausschließlich durch kalte Feldemission an der Emitter-Vakuum-Granzfläche bestimmt.

Die Kathode ist über das PA mit Erdpotential verbunden. Alle Elektronen, die auf diesem Weg in die Kathode gelangen werden also detektiert. Leckströme wie beispielsweise über den Macor-Isolator am Kathodenträger oder innerhalb der Kabel und Verbindungen sind nicht relevant. In Kapitel 3.5.2 wird ebenfalls auf die Fehler der Strommessung eingegangen. Auch diese sind ausreichend klein.

3.4 OPO-Laser

Da die PFE wie in Kapitel 2.4 erläutert vom nahen Infrarot bis zum nahen UV verschiedene interessante Effekte zeigt, wird ein Laser benötigt, der eine Photonenenergie W_p von etwa 0.5 bis 6 eV möglichst lückenlos abdeckt. Es existiert eine Reihe verschiedener durchstimmbarer Laser, die überwiegend jedoch nur eine Bandbreite von wenigen 100 nm aufweisen. Farbstofflaser besitzen zwar ein breiteres Spektrum, welches aber durch Verwendung verschiedener Farbstoffe mit entsprechenden Umbauten erreicht wird. Ein Laser, der auf der Durchstimmung mit einem optischen parametrischen Oszillator (OPO) beruht, ermöglicht es, den genannten Spektralbereich mit zwei Energiebereichen abzudecken. Einer reicht vom Violetten bis ins Infrarote. Der zweite wird daraus durch Frequenzverdopplung realisiert. OPO-Laser lassen sich sowohl im Dauerstrahlmodus sowie gepulst betreiben. Da die Ausgangsenergie quadratisch von der Pumpenergie abhängt, lassen sich im gepulsten Betrieb deutlich höhere Pulsenergien erzeugen. Auf weitere Details wird im Folgenden näher eingegangen.

3.4.1 Aufbau und Funktionsweise

Der komplexe Aufbau des im Rahmen dieser Arbeit angeschafften OPO-Lasers NT342A SH-10-WW (Datenblatt [164], im Folgenden NT342A) der Firma EKSPLA¹⁶ ist in Abbildung 3.16 gezeigt. Am Anfang des Strahlengangs ist ein NL300 Nd:YAG-Laser des gleichen Herstellers installiert. Er erzeugt einen Ausgangspuls von $\lambda = 1064$ nm mit 194 mJ pro Puls von 3.5 ns Dauer bei einer Wiederholrate von 10 Hz. Der Nd:YAG-Kristall wird von einer Blitzlampe gepumpt. Beide befinden sich in einem elliptischen Reflektor jeweils in einem der Brennpunkte. Der erzeugte Laserpuls wird mit einer Pockels-Zelle ausgekoppelt. Über die Verzögerung an der Zelle von 0-500 µs kann die Ausgangsenergie mit einem Maximum bei etwa 250 µs variiert werden. Näheres hierzu ist in [165] zu finden. Der Ausgangspuls wird über den Spiegel M1 umgelenkt und trifft dann auf das $\lambda/2$ -Plättchen HWP1, mit dem die Polarisation um 90° von vertikale auf horizontale Orientierung gedreht wird. Dies ist für den dann folgenden Kristall SHG zur Erzeugung der zweiten Harmonischen von 532 nm durch Frequenzverdopplung wichtig. Näheres zur Frequenzvervielfachung und optischen Durchstimmung ist im Folgenden zu finden. Die Energie im frequenzverdoppelten Puls beträgt 71 mJ.

Generell wird der ursprüngliche 1064 nm Puls nicht vollständig in Licht kürzerer Wellenlänge umgewandelt, so dass der folgende Kristall THG zur Erzeugung der dritten Harmonischen von beiden Pulsen durchlaufen wird. Darin wird durch Erzeugung der Summenfrequenz ein Puls mit einer Wellenlänge von 355 nm bei einer Leistung von 62 mJ erzeugt ($\frac{1}{355 \text{ nm}} = \frac{1}{1064 \text{ nm}} + \frac{1}{532 \text{ nm}}$). Zwischen SHG und THG ist der Spiegel M2 unter einem Winkel von 45° installiert. Dieser ist für 1064 und 532 nm transparent und dient dazu, Reflexionen der 355 nm Welle aus THG in einen Beamstop auszukoppeln, damit diese nicht zurück in den NL300 gelangen. Der Fundamentalpuls passiert die dann folgenden Spiegel M3 und M4 ungehindert und trifft zur Pulsenergiemessung auf den Detektor an der Gehäusewand. Ebenso



Abbildung 3.16: Schematischer Aufbau des Lasers mit allen optisch relevanten Bauteilen nach [166] und Strahlprofil am Ausgang. Der Strahlengang ist mit farbigen Linien gekennzeichnet, wobei die Farbe der Linien bis OPO2 die jeweilige Wellenlänge kennzeichnet (rot: 1064 nm, grün: 532 nm, violett: 355 nm). Eine Erklärung der einzelnen Bauteile ist im Text zu finden.

passiert der frequenzverdoppelte Puls M3 und wird an M4 in einen Beamstop ausgekoppelt. Die dritte Harmonische wird über die Spiegel M3, M5, M7 und M7' sowie die Linsen L1 und L2 in den OPO eingekoppelt. An der Quarzplatte PL1 wird ein Teil des Pulses zur Energiemessung an der Photodiode PD1 ausgekoppelt. Spiegel M6 kann bei Bedarf manuell ausgeklappt werden, um die volle Energie der dritten Harmonischen von etwa 65 mJ an einem separaten Ausgang nutzen zu können.

Im OPO wird die Energie eines Photons von hc/355 nm = 3.49 eV zur Erzeugung zweier neuer Photonen verwendet, deren Energie in Summe der Ausgangsenergie entspricht. Dabei entscheidet der Winkel, unter dem der OPO-Kristall durchlaufen wird, welche beiden Frequenzen die Summe bilden. Je ein Photon stammt aus den Wellenlängenbereichen von 420-710 nm (*idler*) sowie 710-2300 nm (*signal*) mit einer Konversionseffizienz KE von etwa 20 %. Der *signal*-Bereich wird über das hinter dem OPO sitzende Glan-Prisma und den Spiegel M11 zum Ausgang umgelenkt. Der *idler*-Bereich wird über Spiegel M12 und M13 ausgekoppelt. Alternativ können beide Bereiche noch einmal in den Kristallen SH1 und SH2 frequenzverdoppelt werden (KE ≈ 0.15), wodurch der Wellenlängenbereich von 210-420 nm (210-355 nm aus *idler*, 355-420 nm aus *signal*) zugänglich wird. Mit Hilfe eines Pellin-Broca-Prismas hinter SH1 und SH2 wird der teilweise transmittierte Teil der 420-710 nm Pulse vor dem UV-Ausgang ausgekoppelt. Insgesamt stehen also wie in Abbildung 3.16 zu sehen vier Ausgänge mit den jeweiligen Wellenlängen zur Verfügung.

Um die Funktionsweise des OPO-Lasers besser zu verstehen, sind einige Grundlagen zur Frequenzvervielfachung und der parametrischen Fluoreszenz nötig [167, 168]. Diese sollen im Folgenden kurz erläutert werden. Die dielektrische Polarisation P eines Atoms unter Bestrahlung mit einer intensiven Pumpwelle $E_{pump} = E_0 \sin \omega_p t$ mit Frequenz ω_p beträgt

$$P(E) = \alpha E + \beta E^2 + \dots, \text{ mit } \beta \ll \alpha.$$
(3.2)

Durch Einsetzen von E_{pump} in P(E) und einer einfachen trigonometrischen Umformung ergibt sich

$$P(E_{pump}) = \alpha E_0 \sin \omega_p t + \frac{1}{2\beta} E_0^2 - \frac{1}{2\beta} E_0^2 \cos 2\omega_p t.$$
(3.3)

Der nichtlineare Anteil führt also zu einer Schwingung der Elektronen mit der doppelten Anregungsfrequenz und damit zum Aussenden einer frequenzverdoppelten Welle.

In einem doppelbrechenden Kristall sind die Brechungsindizes $n_0(\omega_p) \neq n_0(2\omega_p)$ für eine Polarisationsrichtung einer linearpolarisierten, elektromagnetischen Welle in jeder Kristallrichtung gleich groß. Der Brechungsindex n_a einer senkrecht dazu linearpolarisierten Welle mit Frequenz $2\omega_p$ variiert jedoch wie in Abbildung 3.17 gezeigt ellipsenförmig mit der Kristallrichtung. Die große Halbachse definiert die optische Achse des Kristalls. Damit existiert ein Winkel ϑ , unter dem der Brechungsindex und damit auch die Lichtgeschwindigkeit für ω_p und $2\omega_p$ gleich groß sind. Die Zeitdifferenz zwischen der Erzeugung der Oberwelle in zwei benachbarten Atomen entspricht dann der Laufzeit der Pumpwelle zwischen ihnen. Da die Oberwelle den Kristall nun mit der gleichen Geschwindigkeit wie die Pumpwelle durchläuft, trifft sie in jedem Atom exakt mit der Phase ein, mit der die nächste Welle erzeugt wird. Strahlt man die Pumpwelle E_{pump} nun unter entsprechenden Winkel ein, wird durch den nichtlinearen Anteil von P eine Frequenzverdopplung und durch die konstante Phase beider Wellen eine konstruktive Interferenz der $2\omega_p$ -Welle erzeugt. Die eingestrahlte Welle verliert dabei Energie. Die KE im SHG des NT342A liegt bei etwa 37 %.



Abbildung 3.17: Indexellipsoid für einen optisch einachsigen Kristall aus [167]. Für die Richtung ϑ gegen die optische Achse ist $n_a(2\omega_p) = n_0(\omega_p)$. Die frequenzverdoppelte Welle in dieser Richtung ist senkrecht zur Pumpwelle polarisiert.

Die Erzeugung der zweiten Oberwelle mit der Frequenz $3\omega_p$ verläuft wie folgt über die Frequenzaddition der Grundwelle mit der ersten Oberwelle im THG ($KE \approx$ 87 %). Strahlt man zwei elektromagnetische Wellen $E_{p2} = E_1 \sin \omega_1 t + E_2 \sin \omega_2 t$, von denen mindestens eine ausreichend intensiv ist, in einen optisch nichtlinearen Kristall, ergibt sich nach Einsetzen in Gleichung 3.2

$$P(E_{p2}) = \alpha(E_1 \sin \omega_1 t + E_2 \sin \omega_2 t) + \beta(E_1^2 \sin^2 \omega_1 t + E_2^2 \sin^2 \omega_2 t) + 2\beta E_1 E_2 \sin \omega_1 t \sin \omega_2 t.$$

$$(3.4)$$

Der erste Term beschreibt den linearen Anteil, der zweite entspricht der Frequenzverdopplung wie in Gleichung 3.3 vor der Umformung. Der dritte Term enthält wegen

$$\sin\omega_1 t \cdot \sin\omega_2 t = \frac{1}{2} [\cos(\omega_1 - \omega_2)t - \cos(\omega_1 + \omega_2)t]$$
(3.5)

sowohl die Summen- als auch die Differenzfrequenz. Wiederum ist dies ein Effekt der nichtlinearen Optik. Durch die Änderung von Sinus zu Cosinus entsteht eine Phasenverschiebung, die eine weitere Frequenzmischung verhindert.

Bei der parametrischen Fluoreszenz mischt nun eine eingestrahlte Pumpwelle ω_p mit dem Nullpunktfeld, das bei jeder Frequenz mit $\hbar\omega_0/2$ besetzt ist, zu deren Summen- und Differenzfrequenz. Die Differenzfrequenz $\omega_p - \omega_0 = \omega_{Diff}$ oder $\omega_p = \omega_i + \omega_s$ setzt sich zusammen aus der *idler*- und *signal*-Frequenz, wobei $\omega_i, \omega_s > 0$ beliebig sein können. Welche beiden Frequenzen in dem Kristall erzeugt und verstärkt werden, wird dann durch die Richtung bestimmt, in der die Pumpwelle einläuft. Bei geeigneter Wahl von Kristall und Winkel zur optischen Achse können eine oder beide Frequenzen verstärkt werden.

Für SHG und THG wird ein deuterierter Kaliumdihydrogenphosophat-Kristall (DKDP) verwendet. Die Kristalle im OPO und in SH1 und SH2 sind aus Beta-Bariumborat (BBO) gefertigt. Letzterer zeichnet sich durch eine hohe optische Nichtlinearität und seine breite Transparenz zwischen $\lambda = 210$ und 2300 nm aus. Die Polarisationsrichtungen für die verschiedenen Bereiche sind in Tabelle 3.1 zu finden, die Winkelabhängigkeit der erzeugten Wellenlängen in den BBO-Kristallen zeigt Abbildung 3.18.

sergehäuse auf ebenem Grund.

 Laserbereich
 Wellenlänge / nm
 Polarisationsrichtungen

 Pumplasor
 1064
 vortikal

Tabelle 3.1: Polarisationsrichtungen der verschiedenen Laserbereiche relativ zum La-

Laserbereich	Wellelliange / IIII	1 Olarisationsi icittungen
Pumplaser	1064	vertikal
zweite Harmonische	532	horizontal
dritte Harmonische	355	vertikal
signal	420-710	horizontal
idler	710-2300	vertikal
UV	210-420	vertikal



Abbildung 3.18: Wellenlängen von *signal-* und *idler-*Bereich eines Typ II BBO-Kristalls in Abhängigkeit des Winkels zwischen Ausbreitungsrichtung einer 355 nm Pumpwelle und optischer Achse. Zugehörige Gain-Kurve für die Konversion, aus [169].

3.4.2 Spezifikationen, Laserstrahlenschutz

Die Linienbreite des NT342A ist mit $\Delta\nu/c < 5 \ cm^{-1}$ im gesamten Spektrum angegeben [166], was $\Delta\nu < 150$ GHz oder $\Delta W_p < 62$ meV entspricht. Zudem wurden bei der Inbetriebnahme die in Tabelle 3.2 genannten Linienbreiten gemessen. Sie entspricht der üblicher Nd:YAG-Laser und liegt damit zwischen der von Gaslasern (He-Ne, Ar⁺, $\mathcal{O}(1 \text{ GHz})$) und Excimer-, Farbstoff- (intrinsisch) und Halbleiterlasern (KrF, Rh6G, GaAs, $\mathcal{O}(10 \text{ THz})$) [170]. Die Wellenlänge lässt sich mit einer Genauigkeit von $\Delta\lambda = 0.1$ nm einstellen. Der Strahldurchmesser beträgt $2w_0 = 4$ mm.

Die Polarisationsrichtungen in den in Tabelle 3.1 genannten Bereichen beeinflusst die Reflexion R an der Kathodenoberfläche. Für Anteile R_{\perp} senkrecht und R_{\parallel} parallel zur Einfallsebene ergibt sich aus den Fresnel-Formeln

$$R_{\perp} = \frac{\sin^2(\alpha - \beta)}{\sin^2(\alpha + \beta)} \tag{3.6}$$

$$R_{||} = \frac{\tan^2(\alpha - \beta)}{\tan^2(\alpha + \beta)} \tag{3.7}$$

Wellenlänge / nm	Linienbreite / $\rm cm^{-1}$
420	4.5
450	4.6
520	4.3
610	4.0
680	3.4
700	3.7
709	3.3

Tabelle 3.2: Linienbreite des NT342A für ausgewählte Wellenlängen wie bei der Inbetriebnahme gemessen.

mit dem Einfallswinkel $\alpha = \arccos(\cos 15 \cdot \cos 16) = 21.8^{\circ}$ relativ zur Kathodennormalen und dem gebrochenen Strahl unter β in der Kathode. Mit den geometrischen Überlegungen anhand der CAD-Zeichnung aus Abbildung 3.19 lassen sich beide Polarisationsrichtungen in die entsprechenden Anteile aufteilen. Es ergeben sich die in Tabelle 3.3 genannten Verhältnisse.



Abbildung 3.19: Schematische CAD-Zeichung von Laser (transparentblau), Laserstrahl (blau), Kathode (schwarz) und der Einfallsebene des Laserstrahls (grau). Die horizontale (rot) und vertikale Polarisation (grün) des Lasers sind mit ihren Projektionen auf die Einfallsebene gezeigt. Die in Tabelle 3.3 genannten Anteile beider Polarisationsrichtungen in der und senkrecht zur Einfallsebene von jeweils etwa 50 % lassen sich hier erkennen.

Tabelle 3.3: Anteile der Polarisation in der und senkrecht zur Einfallsebene (EE) des Lasers auf die Kathode.

Polarisationsrichtung	Anteil in der EE	Anteil senkrecht zur EE
horizontal	49.5	50.5
vertikal	50.8	49.2

Für jedes Kathodenmaterial lässt sich so mit den Formeln 3.6 und 3.7, Tabelle 3.3 und dem wellenlängenabhängigen Brechungsindex der reflektierte und eindringende Anteil eines Laserpulses berechnen. Zudem muss die Transmission der Linse und des Fensters, wie in Abbildung 3.20 für 10 mm Weglänge gezeigt, berücksichtigt werden. Der Strahl tritt dort in guter Näherung senkrecht ein. Das Spektrum des NT342A zeigt Abbildung 3.21. Der der Intensitätsverlauf von *signal* und *idler* ist bei den daraus generierten Wellenlängen im UV wiederzufinden.



Abbildung 3.20: Transmission mit (dunkelblau) und ohne Berücksichtigung (hellblau) der Fresnel-Reflexionen an den Oberflächen durch 10 mm Quarzglas bei senkrechtem Einfall, aus [171].



Abbildung 3.21: Emissionspektrum des NT342A nach [164]. Der Verlauf wurde experimentell in [165] bestätigt.

Der NT342A fällt aufgrund seiner Pulsleistung von bis zu 17.5 mJ / 3.5 ns \simeq 5 MW nach DIN EN 60825-1 zunächst in die höchste Laserklasse 4. Damit besteht Gefahr für Augen und Haut durch den direkten und diffus reflektierten Strahl sowie Brandgefahr. Der Betrieb eines solchen Lasers verlangt einen aufwändigen Strahlenschutz. Durch eine Kapselung des Systems, die einen Austritts von Strahlung vollkommen verhindert, lässt sich das System jedoch in die niedrigste Laserklasse 1 einordnen. Hierbei ist der Weg von den vier Laserausgängen bis zum Quarzfenster am Deckelflansch sowie eine Abdeckung aller weiteren Fenster zu berücksichtigen. Dazu ist die Fokussieroptik in einem lichtdichten Gehäuse untergebracht. Der Weg zwischen Laser und dem Optikgehäuse wurde durch einen passgenauen Block aus schwerentflammbarem extrudiertem Polystyrolschaum realisiert. Dieser lässt eine Bewegung des Lasers zur Wahl des Ausgangs zu. Zwischen dem Optikgehäuse und dem Quarzfenster ist ein Wellbalg aus Edelstahl angebracht. Beide schließen an ihren jeweiligen Enden dicht ab. Die übrigen Fenster der Kammer werden bei Laserbetrieb mit Aluminiumkappen abgedeckt. Der Laser darf nur von eingewiesenen Personen mit Laserstrahlenschutzunterweisung betrieben werden, was durch einen Schlüsselschalter am Laser sichergestellt wird. Der Zugang zum System ist Unbefugten bei Laserbetrieb nicht gestattet.

3.4.3 Justagetisch mit Fokussieroptik

Das Quarzfenster zum Einkoppeln des Laserstrahls in die Analysekammer sitzt unter einem Winkel von etwa 15° vertikal und etwa 16° horizontal zur Hauptachse der Kammer. Aus den vier Ausgängen des Lasers treten die jeweiligen Strahlen nicht exakt parallel aus und sie liegen auch nicht genau in der Mitte der Ausgangsöffnung, was im Rahmen der engen Geometrie durch die der Laserstrahl läuft (durch das Quarzfenster, vorbei am Spektrometereingang durch das Gate mit jeweils wenigen Millimetern und Grad Toleranz) zu Problemen führt. Daher muss der Laser justierbar installiert und eingekoppelt werden. Die Lösung mit dem geringsten mechanischen Aufwand wäre ein fest installierter Laser mit einem justierbaren Einkoppelspiegel (je zweidimensional rotier- und translatierbar). Dies ist jedoch mit einfachen optischen Geräten nicht möglich: Ein Oberflächenspiegel hat einen mit der Wellenlänge variierenden Brewster-Winkel, ein gleichschenkliges Prisma mit Totalreflexion an der Grundfläche entfällt wegen der Lichtbrechung bei nichtsenkrechtem



Abbildung 3.22: CAD-Zeichnung des Lasertischs mit Untertisch und dem Optikaufbau. Zwischen den fünf Aluminiumplatten können zwei Rotations- und zwei Translationsfreiheitsgrade eingestellt werden (rote Pfeile an schwarzen Achsen). Eine detaillierte Erklärung der Funktionsweise ist im Text zu finden.

Ein- und Ausfall und ein Halbkugelprisma ist wegen seiner wellenlängenabhängigen Fokussierung nicht zu gebrauchen. Daher muss der Laser justierbar installiert werden, um den Laserstrahl für jeden Ausgang direkt auf die Kathode zu richten. Dafür wurde der in Abbildung 3.22 gezeigte Tisch mit je zwei rotier- und translatierbaren

Achsen entworfen. Die Schwierigkeit hierbei lag darin, den Tisch bei dem Gewicht des Lasers von etwa 40 kg ausreichend steif zu konstruieren, so dass er durch Stöße möglichst unbeweglich ist, mit der Zeit nicht driftet und bei Einstellung einer Achse die anderen Achsen unverändert bleiben. Zunächst wurde ein vierbeiniger Träger aus 30 mm Vierkantrohren mit Querverstrebungen geschweißt. Dieser wurde mit dem Tisch auf dem das PFES sitzt, verschraubt. Darüber befinden sich fünf Aluminiumplatten mit einer Dicke von 10 mm, zwischen denen die vier Freiheitsgrade eingestellt werden können. Zwischen den unteren beiden Platten wird mit einer Trapezgewindespindel die Höhe des Tisches eingestellt, wobei die obere Platte mit vier Achsen durch Gleitlager in der unteren Platte geführt wird. Zwischen der zweiten und dritten Platte wird wiederum mit einer Trapezgewindespindel die Verkippung zur Horizontalen durch drei Gabelgelenke eingestellt. Darüber wird die zweite Rotationsachse mit einem Radialkugellager, welches innen und außen je an einer der anliegenden Platten mit entsprechenden Ringen eingepresst ist, geführt. Zwischen den beiden oberen Platten kann der Laser senkrecht zum Laserstrahl verschoben werden, um die vier Ausgänge zu wählen. Dies geschieht wiederum mit zwei Achsen auf Gleitlagern und einer Gewindespindel mit Handrad. Auf der oberen Platte wird der Laser mit seinen vier Beinen auf höhenverstellbaren Füßen installiert. Es ergeben sich an allen Achsen Toleranzen im Mikrometerbereich, was eine ausreichende Genauigkeit und Steifheit bei guter Verstellbarkeit gewährleistet.

3.4.4 Laserfokussierung

Um die Energiedichte des Lasers auf der Kathode einstellen zu können, ist eine variable Fokussierung nötig. Hierzu werden einige Grundlagen der Gaußschen Optik benötigt, da diese im Gegensatz zur geometrischen Optik die bei Lasern wichtigen Effekte der Beugung und Interferenz berücksichtigt. Die dazu benötigten Grundlagen sollen nur soweit wie benötigt angegeben werden. Detailliertere Ausführungen sind in [172–176] zu finden. Die Komponenten des elektromagnetischen Feldes eines Laserstrahls liegen transversal zur Ausbreitungsrichtung. Der Intensitätsverlauf wird durch die transversal-elektromagnetischen Mode TEM_{xy} bezeichnet. Die Indizes geben dabei die Anzahl der Nullstellen des Feldes entlang der x- und y-Komponente senkrecht zur Ausbreitungsrichtung z des Strahls an. Bei einem idealen Laser fällt die Feldverteilung gaußförmig entlang des Strahlradius ab, was der TEM₀₀-Mode entspricht. Diese hat den Vorteil, dass das Strahlprofil überall entlang des Strahlengangs, insbesondere auch nach dem Durchlaufen von Linsen, gaußförmig bleibt, was die mathematische Beschreibung erleichtert. Zudem treten in dieser Mode im Feld keine Phasenverschiebungen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung auf. Daher ist der Strahl vollständig räumlich kohärent. Die Verwendung von Blenden zur Reduzierung des Strahldurchmessers ist nicht möglich, da es zu Beugungsringen und einer Änderung der Strahlungsmode kommt. Das Strahlprofil des NT342A ist in Abbildung 3.16 gezeigt und kann näherungsweise mit einer jeweils in x- und y-Komponente symmetrischen TEM₀₀-Mode beschrieben werden (Elliptizität > 0.7). Die Intensität des Strahls lässt sich dann mit

$$I(r) = I_0 \exp(-\frac{2r^2}{w^2})$$
(3.8)

entlang des Radius r beschreiben. w bezeichnet dabei den gaußschen Strahlradius, bei dem die Intensität wie in Abbildung 3.23 zu sehen auf $1/e^2$ abgefallen ist. 86.5 % Pulsenergie sind hierin enthalten. Aufgrund der Divergenz Θ des Strahls nimmt der Strahlradius entlang der Ausbreitungsrichtung z zu:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\Theta z}{w_0}\right)^2}.$$
(3.9)

Da er beugungsbedingt nicht beliebig klein werden kann, ergibt sich der sogenannte Rayleigh-Bereich mit der Rayleigh-Länge z_R von

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda},\tag{3.10}$$

innerhalb derer der Strahlradius vom Verhalten aus Gleichung 3.9 abweicht. Der minimale Strahlradius im Zentrum des Rayleigh-Bereichs wird Strahltaille w_0 genannt $(w_{0,NT342} = 2 \text{ mm})$. Wird ein solcher Strahl durch eine Linse fokussiert, ergeben sich im Allgemeinen einige Abweichungen gegenüber der geometrischen Optik. Abbildung 3.23c zeigt eine bikonvexe Linse mit beidseitiger Brennweite f im Abstand z + f hinter der laserseitigen Strahltaille. Die bildseitige Strahltaille w_f liegt dann bei f + z' hinter der Linse mit

$$w_f^2 = w_0^2 \frac{z'}{z} = w_0^2 \frac{f^2}{z^2 + z_R^2}$$
 und $z' = \frac{zf^2}{z^2 + z_R^2}$ (3.11)

Die deutlichste Abweichung ergibt sich daraus für den Fall z = 0, bei dem die Strahltaille, also die virtuelle Lichtquelle, im Brennpunkt der Linse liegt. Im Gegensatz zur geometrischen Optik, bei der sich dann bildseitig parallele Strahlen ergeben würden, liegt für einen Gaußstrahl auch die bildseitige Strahltaille im Brennpunkt. Dies entspricht in der beugungsbegrenzten Optik der bestmöglichen Annäherung eines Gaußstrahls an einen Parallelstrahl.



Abbildung 3.23: a) Normiertes Intensitätsprofil eines TEM_{00} -Strahls und die eingeschlossene Leistung in Abhängigkeit des auf w normierten Strahlradius, aus [176]. Wichtige Punkte in der Intensität sind markiert. b) Verlauf des Strahlradius w entlang der Ausbreitungsrichtung mit Divergenz Θ und Strahltaille w_0 . In der Nähe der Strahltaille verhält sich der Strahl wie ein paralleles Strahlenbündel, weiter entfernt wie eine sphärische Welle. Der Übergangspunkt definiert die Rayleigh-Länge z_R und liegt in der Zeichnung beim Scheitelpunkt der Hyperbel. c) Strahlenverlauf eines Gaußstrahls durch eine bikonvexe Linse, aus [177]. Die Bezeichnungen sind im Text erklärt.

In der Praxis gilt häufig $z_R >> z$ sowie $z_R >> f$, was auch beim NT342A der Fall ist. Daraus ergibt sich näherungsweise

$$w_f \approx \frac{\lambda f}{\pi w_0}.\tag{3.12}$$

Da für einen TEM_{00} -Strahl entlang seiner Achse

$$w_0\Theta = \text{const.} \ge \frac{\lambda}{\pi}$$
 (3.13)

gilt¹⁷, vereinfacht sich Gleichung 3.12 zu

$$w_f = \Theta f. \tag{3.14}$$

Dies bedeutet, dass sich ein Laserstrahl umso besser fokussieren lässt, je geringer seine Divergenz und je kürzer die Brennweite der Linse ist, und das unabhängig von w_0 . Wegen Gleichung 3.13 kann durch Strahlaufweitung von w_0 auf w' mit je einer Streu- und Sammellinse die Divergenz verringert werden. Bei anschließender Fokussierung führt das zu einer Reduzierung der bildseitigen Strahltaille um das Aufweitungsverhältnis w'/w_0 .

Durch die beiden Näherungen vereinfacht sich Gleichung 3.11 zu

$$z' = 0, \tag{3.15}$$

was bedeutet, dass die bildseitige Strahltaille unabhängig vom Abstand der Linse zur laserseitigen Strahltaille wieder im bildseitigen Brennpunkt liegt. Dieses Resultat entspricht mit den genannten Näherungen wieder dem der geometrischen Optik: Ein ausreichend paralleler Strahl ($\Theta \rightarrow 0$) besitzt ein $z_R \rightarrow \infty$, was obige Näherungen sofort erfüllt, und wird damit in den Brennpunkt (z' = 0) fokussiert.

Um den Fokus möglichst exakt einstellen zu können, müssen Abbildungsfehler berücksichtigt werden. Da die Fokussierung für das komplette Spektrum des Lasers geeignet sein muss, ist insbesondere die chromatische Aberration zu beachten. Die effektive Brennweite einer Linse berechnet sich zu

$$f_{eff} = \left[(n(\lambda) - 1) \left(\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2} \right) \right]^{-1},$$
(3.16)

mit dem Brechungsindex $n(\lambda)$ und den Krümmungsradien r_1 und r_2 der Linse. Für eine plankonvexe Linse aus Quarzglas (siehe auch Abbildung 3.20) mit einem Krümmungsradius von 206 mm zeigt Abbildung 3.24 die effektive Brennweite für das Laserspektrum.

Die Brennweite variiert dabei zwischen 374 und 470 mm, wobei insbesondere der UV-Bereich beachtet werden muss. Hier schwankt der Brechungsindex stark, so dass der gezeigte Abfall zustande kommt. Dieser Effekt muss durch Verschieben der Linse

 $^{^{17}}w_0\Theta = \frac{\lambda}{\pi}$ gilt für den idealen, nur noch beugungsbegrenzten Gaußstrahl.



Abbildung 3.24: Brennweite und Brechungsindex einer plankonvexen Quarzglaslinse mit einem Krümmungsradius von 206 mm unter Berücksichtigung der chromatischen Aberration.

relativ zur Kathode korrigiert werden. Der Einsatz einer achromatischen Linse ist nicht möglich, da diese aus zwei verschiedenen Glassorten hergestellt werden, wovon eine in mindestens einem Spektralbereich des Lasers nicht transparent ist.

Weniger stark sind die Auswirkungen der sphärischen Aberration (SA), welche trotzdem berücksichtigt werden sollte. Die einfachste Lösung wäre hier der Einsatz von asphärischen Linsen, die den Effekt vollständig verschwinden ließen. Asphärische Linsen aus UV-transparenten Materialien sind handelsüblich jedoch nur in Brennweiten bis etwa 50 mm erhältlich, was für den Abstand vom Quarzfenster der Kammer bis zur Kathode zu gering ist. Die SA würde durch Wahl einer langbrennweitigen Linse (großer Krümmungsradius) begrenzt. Dies steht in Bezug auf einen minimalen Fokus jedoch im Widerspruch zu Gleichung 3.14. Übrig bleibt nur die Wahl einer plankonvexen Linse, da hier nur eine sphärische Fläche vorhanden ist. Zur Reduzierung der SA bei der Abbildung divergenter Lichtquellen wird üblicherweise der Linsendurchmesser möglichst groß gewählt. Bei der Fokussierung von Laserstrahlung ist diese Möglichkeit wegen des von sich aus begrenzten Strahldurchmessers nicht relevant.

Für die Fokussierung des Lasers auf die Kathode wurde aus obigen Überlegungen die in Abbildung 3.25 gezeigte Optik konstruiert. Die Positionierung relativ zum Laser kann wegen Gleichung 3.15 in beliebigem Abstand erfolgen. Wegen Gleichung 3.14 sollte das System so nah wie möglich zur Kathode hin installiert werden. Dadurch kann die Brennweite der Linse minimal gewählt werden, was den bildseitigen Strahlradius minimiert. Um die chromatische Aberration auszugleichen, wird die Fokussierungslinse fahrbar auf einer optischen Bank gelagert. Die Steuerung erfolgt abhängig von der gewählten Wellenlänge automatisch über den PC mit einem Schrittmotor. Auf eine Strahlaufweitung wurde verzichtet, da bereits mit einer Linse die Laserablationsgrenze in Teilen des Spektrums überschritten wird, was weiter unten noch genauer ausgeführt ist. Bei Bedarf einer stärkeren Fokussierung ist der Fahrweg auf der optischen Bank jedoch ausreichend groß dimensioniert, um eine Aufweitung nachträglich hinzuzufügen. Ebenso kann ein weiterer Motor zum Verfahren der Aufweitungslinsen installiert werden. Es wurde eine plankonvexe Linse $(\emptyset = 50.8 \text{ mm})$ aus Quarzglas mit einem Krümmungsradius von 206 mm gewählt. Die konvexe Seite der Linse muss zum Laser hin installiert werden, damit der re-



Abbildung 3.25: CAD-Zeichnung der Fokussierungsoptik mit fahrbarer Linse (gelb), Laserstrahl (rot) und Motoren (orange) mit Gewindespindeln (schwarz). Optional können zwei weitere Linsen zur Strahlaufweitung installiert werden (grün und blau). Der Inset zeigt die Positionierung der Linsen zueinander abhängig von ihren Brennweiten.

flektierte Anteil des Strahls aufgeweitet wird und den Laser nicht beschädigen kann. Durch Korrektur des Linsenabstands zur Kathode ergibt sich dann der in Abbildung 3.26 gezeigte Strahlradius im effektiven Brennpunkt. Der geringere Fokus bei kleineren Wellenlängen ist eine direkte Folge aus den Gleichungen 3.13 und 3.14. Um den Brennpunkt auf die Kathode justieren zu können, ist ein weiteres langreichweitiges Mikroskop mit CMOS-Kamera (BW-500X der Firma Shenzhen SNS Technology) am Deckelflansch angebracht. Hiermit kann wie in Abbildung 3.6c gezeigt von hinten auf das Gate geschaut werden.



Abbildung 3.26: Gaußscher Strahlradius w_f im Brennpunkt einer plankonvexen Quarzglaslinse mit einem Krümmungsradius von 206 mm nach Korrektur der chromatischen Aberration durch Verfahren der Linse. Mittlere Energiedichte innerhalb $0.23 \cdot w_f$.

Die typische Flächenenergiedichte ρ_{Abl} ab der Laserablation auftritt, liegt für ein Goldtarget bei etwa 1 J/cm² in nanosekundenlangen Pulsen, wie in Abbildung 3.27 zu sehen. Abbildung 3.26 zeigt die über $0.23 \cdot w_f$ gemittelte Energiedichte des fokussierten Laserpulses auf der Kathode. Innerhalb dieses Radius fällt die Intensität auf 90 % ab. Demnach übertrifft der fokussierte Laserstrahl ρ_{Abl} zwischen 410-1200 nm. Zwischen 210-340 nm wird noch über $0.2 \cdot \rho_{Abl}$ erreicht.



Abbildung 3.27: Einsatzfluss für die Laserablation bei einem Target aus Gold (links, bei $\lambda = 1053$ nm) und Quarzglas bei verschiedenen Wellenlängen (rechts) in Abhängigkeit der Laserpulsdauer, aus [178, 179]. Die Punkte stammen aus Messungen, die Geraden entsprechen den theoretischen Verläufen. Der lineare Anstieg setzt sich bei höheren Pulsdauern fort.

3.5 Steuerung und Datennahme

Die gesamte Steuerung und Datennahme des Systems läuft über einen Mess-PC unter Windows 7 mit 64 Bit. Der PC enthält eine Advantech PCI-1716 Messkarte [180]. Diese verfügt über 16 analoge Eingänge (AI, 16 Bit, 250 kHz), 2 analoge Ausgänge (AO, 16 Bit, 20 V/ μ s), je 16 digitale Ein- und Ausgänge (DI, DO) und einen Zähler (C0, 16 Bit). Die Karte ist über ein SCSI-Kabel mit einer Verteilerbox verbunden, von wo aus die einzelnen Signale über BNC- und DSub-15-Stecker den verschiedenen Geräten zugeführt werden. Die Verteilung zeigt Abbildung 3.28.

Der Kathodenstrom wird mit einem Keithley 6485 Picoamperemeter (PA) gemessen. Die Steuerung und Auslese per PC erfolgt über GPIB. Die Messdauer kann in Einheiten von Schwingungsperioden der Netzspannung zwischen 0.01 und 5, entsprechend 0.2 bis 100 ms, gewählt werden. Der geringste Fehler wird bei 20 ms erreicht [181], was für die Messung von Gleichströmen verwendet wird. Für durch den Laser mit 10 Hz erzeugte Pulsströme, wird eine Messdauer von 100 ms gewählt. Hierbei erfolgt eine Synchronisierung von Laser und PA, so dass die Strommessung



Abbildung 3.28: Übersicht des elektronischen Aufbaus des PFES. An den Verbindungen ist die Richtung des Signalflusses sowie der Kabeltyp und die Signalart notiert. Die Steuerung und Auslese der Geräte erfolgt am PC mit einer GPIB-Karte, über den RS232-Anschluss und mit der PCI-1716-Messkarte. Damit werden das Keithley 6485, der Laser und die Verteilerbox angesteuert. Von letzterer werden die Signale zur und von der Spektrometereinheit und dem Hochspannungsnetzteil verteilt. Zudem beinhaltet die Box die Elektronik für die Pulserzeugung des Lasertriggers. Die Steuerung des Piezoelements erfolgt manuell über den Controller. Zwischen dem Keithley 6485 und der Vakuumdurchführung zur Kathode ist eine Schutzschaltung aus Dioden eingebaut.

20 ms vor dem nächsten Puls beginnt. Das PA verfügt über eine Offsetkorrektur. Diese gewährleistet einen Fehler von $\Delta I < 1$ % bei der genannten Integration über kurze Pulse. Der Eingang des PA muss gegen Spannungen von ±20 V abgesichert werden. Dies geschieht durch zwei Dioden, die in jeweils umgekehrter Richtung gegen Erdpotential parallelgeschaltet sind.

Elektronen, die vom Fermi-Niveau der Kathode austreten, besitzen am Spektrometereingang eine kinetische Energie von 0 eV. Damit diese das Spektrometer erreichen, wird die Kathode um ein festes Potential von etwa $U_0 = 81$ V vorgespannt. Bei niedrigerer Spannung fällt die Zählrate ab [154]. Die Vorspannung wird durch 9 V Batterien in einem abgeschirmten Gehäuse mit BNC-Anschlüssen realisiert, um das Rauschen so gering wie möglich zu halten. Die Verbindung mit der Kathodenstromdurchführung ist mit 75 Ω Kabeln mit einer Gesamtlänge von 1.5 m zur Reduzierung von Offset- und ähnlichen Spannungen über die Schutzschaltung und die Offset-Box realisiert.

Das Hochspannungsnetzteil FUG HCN 35-35000 (im Folgenden FUG) wird per AO1 mit 0-10 V angesteuert, was einer Ausgangsspannung von 0-35 kV entspricht. Es verfügt über ein Amperemeter mit einer Genauigkeit von 1 µA zur Messung des Gatestroms I_G . Dies ermöglicht den Einsatz als Konstantstromquelle. Da das Gate alle in der Kammer erzeugten Elektronen, also auch am Spektrometereingang erzeugte Sekundärelektronen anzieht, ist dieser Modus in der Regel nicht sinnvoll, um die Emission aus der Kathode zu regeln. Ebenso kann deshalb nicht über I_G und I_{Kath} auf die Transmission des Gates geschlossen werden.

Die Verteilerbox enthält für jeden Digitalausgang DO0-DO5 eine Treiberstufe aus je einem Transistor, um die Relais in der Spektrometer Control Unit (SCU) zu schalten. Hiermit wird der Detektormodus (CAE/CRR) und die zugehörige Energieeinstellung (4 Bit) sowie die Maximalenergie (2 Bit) eingestellt. Die Zählrate des Spektrometers im Sättigungsmodus kann wahlweise per Pulszählung von TTLähnlichen Pulsen mit C0 oder nach Frequenz-Spannungskonversion per AI eingelesen werden. Letzteres wird bevorzugt, da es wiederholt zu Problemen bei Überlaufen des Zählers kam.

Die Synchronisation von Laser und PC wird von der Software übernommen. Dabei kann unter Windows 7 als Nichtechtzeitsystem nur der 10 Hz Takt ausreichend genau erzeugt werden. Der Laser benötigt jedoch Rechteckpulse von $\mathcal{O}(10^{-4})$ s Dauer im Abstand von 100 ms. Die Pulslänge bestimmt dabei die Ausgangspulsenergie des Pumplasers und ist bei etwa 255 µs maximal. Daher wurde eine Schaltung basierend auf einem NT555-Timer verwendet, welche mit fallender Flanke des PC-Signals Pulse variierbarer Länge ausgibt [165].

3.5.1 Software

Die Software ist in Visual C# [182] geschrieben und umfasst im Hauptprogramm aktuell etwa 4500 Zeilen Code. Sie umfasst die Steuerung und Auslese des Spektrometers, des Lasers, des Hochspannungsnetzteils und des PA sowie das Plotten der Messdaten in Echtzeit. Abbildung 3.29 zeigt einen Screenshot mit Steuerungsteil und den verschiedenen Graphen. Die Steuerung ermöglicht die automatische Aufnahme von Spektren (unter CLAM2 settings), $I_{Kath}(U_G)$ -Kurven (unter Automation) und QE-Plots (unter QE) sowie das manuelle Aufnehmen einer $I_{Kath}(U_G)$ -Kurve durch Variation der Spannung in 10^n V Schritten $(n \in \{0, 1, 2, 3, 4\})$ (unter Voltage Control). Energy Range entspricht dem Bereich der kinetischen Energie der zu messenden Elektronen. Die *samples/step* werden zur Mittelung der Zählrate pro Energiewert verwendet. Daneben existieren weitere Registerkarten für die Aufnahme eines U(z)-Plots (U(z)), diverse Hardware-Einstellungen (Hardware Settings), zur Kalibration und zum Testen verschiedener Parameter (*Calibration & Testing*) sowie für die Lasereinstellungen (NT342A). Während einer Messung wird das aktuelle Spektrum, der $I_{Kath}(U_G)$ -Plot, ein QE-Plot (zusammen mit dem jeweiligen Plot für Strom und Photonenzahl) und ein Strommonitor über einen wählbaren Zeitraum ausgegeben, sofern jeweils aktiviert. Die Daten werden unmittelbar nach Aufnahme auf die Festplatte geschrieben. Eine Messdatei enthält die folgenden Werte: Gatespannung, Kathodenstrom, Abstand Kathode-Gate, makroskopische Feldstärke, kinetische Energie, Laserwellenlänge und einen Zeitstempel im Takt von 100 ms.



Abbildung 3.29: Screenshot des Hauptfensters der Software mit Steuerungsteil (links) und Graphen der Messdaten. A) Elektronenspektrum des HSA und Kathodenstrom zu jedem Messpunkt. B) Kathodenstrom gegen elektrische Feldstärke zur Aufnahme einer FN-Kurve. C) zeitlicher Verlauf des Kathodenstroms. D) QE gegen Photonenenergie des Lasers. E und F) Kathodenstrom und Photonenzahl gegen Photonenenergie zur Berechnung von D).

3.5.2 Messgeschwindigkeit und Messfehler

Alle für die direkte Aufnahme von Messwerten relevanten Funktionen der Hardund Software sollen im Folgenden soweit wie nötig erläutert werden. Das Setzen der Gatespannung erfolgt über AO1 der Messkarte mit 16 Bit Genauigkeit. Als Referenzspannung verwendet die Karte dabei eine interne Referenz von 5 V, wahlweise kann auch eine externe vorgegeben werden. Die Referenzspannung wurde mit verschiedenen Voltmetern kalibriert. Der Fehler wird dabei durch die mittlere Abweichung der Geräte von 10 mV zu 2 % abgeschätzt. Der AO1 verfügt laut Datenblatt über eine Genauigkeit von ± 1 LSB¹⁸. Bei 10 V entspricht dies einer Abweichung von $10/2^{16} = 0.15$ mV oder 0.015 %, was vernachlässigt werden kann. Der Spannungsabfall zwischen dem Ausgang der Karte und dem Eingang des FUG beträgt $\Delta U = R_{Anschluss} \cdot I_{AO1,10V}$, was aber gegen den hochohmigen Eingang des FUG nicht relevant ist. Der Spannungsabfall zwischen Ausgang des FUG und dem Gate kann ebenfalls vernachlässigt werden, da der maximale Strom von 1 mA und der Anschlusswiderstand von $R < 1 \Omega$ keinen relevanten Beitrag im Vergleich zur Ausgangsspannung von einigen Kilovolt verursacht. Bei der Datenaufnahme wird die eingestellte Sollspannung mitgeschrieben, die tatsächliche Spannung kann also um bis zu 2 % variieren. Da mit dem PFES-System zunächst das Auftreten verschiedener Effekte und keine Präzisionsmessungen durchgeführt werden sollen, ist dieser Fehler akzeptabel. Um ihn bei Bedarf zu reduzieren, können einerseits die genannten Fehler durch entsprechende Maßnahmen reduziert werden und andererseits die tatsächliche Spannung am Gate gemessen werden. Entweder wird dann diese mitgeschrieben oder anhand dieser eine Kalibration durchgeführt. Das zeitliche Verhalten der Gatespannung auf eine Spannungsänderung der Software ergibt sich im Wesentlichen aus der Kapazität des Hochspannungskabels zwischen FUG und der Vakuumdurchführung im Deckelflansch von etwa 100 pF. Damit ist eine Spannungsänderung von $\delta_t U = I_{G,max}/C_{Kabel} = 10^7 \text{ V/s}$ möglich. Dies ist ausreichend, da die größte Spannungsänderung bei Aufnahme einer $I_{Kath}(U_G)$ -Kurve auftritt und 100 V/s nicht übersteigt.

Der Fehler bei der Messung des Kathodenstroms resultiert aus dem Messfehler des PA. Dieser ist wie in [181] gezeigt von der Dauer einer Messung abhängig und

¹⁸LSB, least significant bit: das niedrigstwertige Bit einer Reihe von Bits

Tabelle 3.4: Übersicht der Messfehler des Keithley 6485 PA bei den verfügbaren Messbereichen. Nähere Angaben zu den einzelnen Fehlern sind in [181] zu finden. Durch die Auslese des PA über GPIB mit sechs Dezimalstellen reduziert sich der Ablesefehler des Displays. Er kann damit gegenüber den anderen vernachlässigt werden.

RANGE	5½ DIGIT DEFAULT RESOLUTION	ACCURACY (1YR) ¹ ±(% RDG. + OFFSET) 18°–28°C, 0–70% RH	TYPICAL RMS NOISE ²	ANALOG RISE TIME ³ (10% to 90%)	
2 nA	10 fA	0.4 % + 400 fA	20 fA	8 ms	
20 nA	100 fA	0.4 % + 1 pA	100 fA	8 ms	
200 nA	1 pA	0.2 % + 10 pA	1 pA	500 µs	
2 μΑ	10 pA	0.15% + 100 pA	10 pA	500 µs	
20 µA	100 pA	0.1 % + 1 nA	100 pA	500 µs	
200 µA	1 nA	0.1 % + 10 nA	1 nA	500 µs	
2 mA	10 nA	0.1 % + 100 nA	10 nA	500 µs	
20 mA	100 nA	0.1 % + 1 μA	100 nA	500 µs	

bei 20 ms minimal. Aus diesem Grund wird üblicherweise mit einer Frequenz von 50 Hz abgetastet. Hinzu kommen die geräteinternen Fehler des PA, wie Tabelle 3.4 zeigt. Für jede Messung wird der jeweils kleinstmögliche Messbereich gewählt, woraus sich der jeweilige Fehler ergibt. Der Fehler des PA ist in der Regel gegenüber dem FE-Rauschen vernachlässigbar.

Die zu messende Energie des CLAM2 wird durch die Spannung an der Ein- und Austrittsblende bestimmt. Daran angepasst werden die Spannungen auf den Linsen und den Hemisphären. Die Flankensteilheit beim Einstellen dieser Spannungen kann vernachlässigt werden. Die Verzögerung, mit der die Elektronen nach einer Änderung der kinetischen Energie des CLAM2 das Channeltron erreichen, beträgt flugzeitlimitiert nur etwa 0.2 µs:

$$t = \frac{s}{v} = \frac{s}{\sqrt{2W_e/m_e}} \simeq \frac{1 \text{ m}}{\sqrt{2 \cdot 80 \text{ eV}/512 \text{ keV/c}^2}} \simeq 0.19 \cdot 10^{-6} \text{ s.}$$
(3.17)

Hinzu kommt eine Verstärkungsdauer im Channeltron von etwa 500 ns. Die anschließende Pulsverstärkung und -formung liegt im gleichen Bereich. Die größte Verzögerung kommt dann durch das eigentliche Zählen hinzu. Zur Aufnahme eines Spektrums ist eine Zählrate zwischen $10^3 - 10^5$ s⁻¹ anzustreben. Da die Zählrate durch Messung der Spannung nach einer Frequenz-Spannungs-Konversion (FSK) erfolgt, ist eine Änderung der Zählrate erst nach ausreichend vielen Pulsen mit genannter Frequenz sinnvoll zu messen. Um das Rauschen nach der FSK zu reduzieren, verfügt die Spektrometerelektronik über eine analoge Mittelung mit Zeitkonstanten zwischen 3.3 und 10^5 ms. Hier hat sich eine Einstellung um 100 ms und eine Mittelung über fünf Messwerte der Messkarte als optimal herausgestellt. Näheres dazu ist in [154] ausgeführt. Zusammenfassend muss also eine Verzögerung von einigen zehn Millisekunden vor der Aufnahme des ersten Werts für die Zählrate berücksichtigt werden. Dies wird in der Software einstellbar berücksichtigt und beträgt üblicherweise 50 ms.

Die eingestellte W_{kin} des Spektrometers wird durch die Spannung U_{AO1} des AO1 zwischen 0-10 V bestimmt. Diese muss kalibriert werden, da es sonst zu einem Offset und einem falschen $W_{kin}(U_{AO1})$ -Verhalten kommen kann. In der Software wurde dies durch eine lineare Korrektur berücksichtigt. Da nur der Energiebereich um 80 eV bei einem Messbereich von 0-1638 eV wichtig ist, ist eine Korrektur höherer Ordnung hier nicht notwendig.

4 Photosensitivität der Feldemission von B-dotiertem Silizium

In diesem Kapitel werden die Emissionseigenschaften eines strukturierten p-Silizium-Arrays unter Laserbestrahlung mit $W_p = 2.3$ eV untersucht. Dazu wird zunächst die Struktur und Herstellung der Kathoden erläutert. Anschließend wird die Emission ohne Bestrahlung anhand der FN-Kurve und der Elektronenspektren charakterisiert. Auf Basis dieser wird dann der Einfluss der Photonen auf den integralen und energieaufgelösten Emissionsstrom untersucht. Daraus kann auf das Verhalten der Elektronen in der Kathode unter Bestrahlung geschlossen werden.

4.1 Struktur und Herstellung der Si-Spitzen-Arrays

Die verwendete Kathode besteht aus 10^{16} cm⁻³ B-dotiertem, [100]-orientiertem Silizium mit einem spezifischen Widerstand von etwa 5 Ω cm. Darauf befinden sich sechs hexagonale Patches mit verschiedenen Durchmessern ($\emptyset = 1, 40, 200, 500,$ 760, 1000 µm), die gleichmäßig auf einem Ring mit 10 mm Durchmesser verteilt sind. Mit dem Offset zwischen Kathoden- zur Spektrometerachse von 5 mm können damit durch Rotation der Kathode alle Patches untersucht werden. Die Patches bestehen aus Si-Spitzen, die in Dreiecksanordnung mit einem Abstand von 20 µm angeordnet sind. Die Höhe der Spitzen beträgt etwa 1 µm mit einem Spitzenradius von etwa 25 nm, wie Abbildung 4.1 zeigt. Die Spitzen decken innerhalb eines Patches etwa ¹/400 der Kathodenoberfläche ab. Alle in diesem Kapitel präsentierten Messungen wurden an dem Patch mit 200 µm Durchmesser mit 91 Spitzen durchgeführt.

Die Herstellung der Kathoden erfolgte an der OTH Regensburg in der Gruppe von Prof. R. Schreiner [183, 184]. Die einzelnen Schritte des Herstellungsprozesses sind schematisch in Abbildung 4.2 dargestellt. Zunächst wird thermisch eine Oxidschicht von 750 nm Dicke auf einem Si-Wafer von 100 mm Durchmesser erzeugt. Mit einer Maske wird die Struktur von 12 Kathoden per Photolithographie übertragen. Nach Entfernung des Photoresist und der Oxidschicht per reaktivem Ionenätzen



Abbildung 4.1: SEM-Aufnahmen des Si-Spitzenarrays ($\emptyset = 200 \ \mu m$) und einer einzelnen Spitze.

(RIE) mit CHF₃ und O₂ verbleiben an den Positionen der späteren Spitzen SiO₂-Scheiben mit einem Durchmesser von 2 μ m. Per RIE mit SF₆ und O₂ wird dann die vertikale Struktur der Spitzen definiert. Dabei erfolgt das Ätzen zwischen den Berei-



Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Prozessschritte bei der Fertigung der Si-Spitzen-Arrays, aus [183, 184]. a) Thermische Oxidation der Waferoberfläche. b) Strukturierung per Photolithografie. c) Transfer der Struktur in das SiO₂ per RIE. d) vertikale Strukturierung der Spitzen per weiterem RIE. e) Schärfung der Spitzen per Oxidation. f) Entfernung des SiO₂ per nasschemischem Ätzen.

chen der verbliebenen SiO₂-Scheiben. Neben einem Abtrag senkrecht zur Oberfläche kommt es zu einem Unterätzen der Scheiben, wobei die Ätztiefe etwa dem vierfachen Abtrag in lateraler Richtung entspricht. Es verbleibt ein Siliziumzapfen mit einem Durchmesser von 1 µm, welcher nötig ist, um ein Abfallen der SiO₂-Scheiben zu verhindern. Anschließend wird die freie Oberfläche bei 940 °C erneut oxidiert, bis die Oxidschichten sich in der Mitte der späteren Spitzen treffen. Es entsteht ein Profil wie in Abbildung 4.2e gezeigt. Abschließend wird das gesamte verbliebene SiO₂ per nasschemischem Ätzen entfernt. Es verbleibt eine reine Si-Oberfläche mit den fertigen Spitzen. Durch Variation der einzelnen Schritte können die Parameter der Spitzen wie Durchmesser, Höhe, Spitzenradius und Krümmungsradius an der Basis verändert werden. Bei Bedarf kann nach einem weiteren Oxidationsschritt zur Erzeugung einer Isolationsschicht eine leitende Schicht als Gateelektrode aufgedampft werden.

4.2 Experimentelle Ergebnisse und Interpretation

Zunächst wurde das Emissionsverhalten einer einzelnen Si-Spitze untersucht. Diese Messung wurde am Feldemissionsrastermikroskop (FERM) durchgeführt [185]. Dies verfügt im Gegensatz zum PFES über eine Diodenanordnung mit Wolframanoden. Diese weisen unter anderem eine Kegelstumpfgeometrie mit verschiedener Spitzendurchmessern d_W auf. Des Weiteren ist die Kathode dreidimensional translatierbar, um den Abstand und die Position relativ zur Anode zu definieren. Die Tiltkorrektur erfolgt an der Kathode. Mit einer Nadelanode mit $d_W = 20$ µm lässt sich das Emissionsverhalten einer einzelnen Spitze untersuchen.

Die FN-Kurve der einzelnen Spitze weist alle drei in Kapitel 2.3.2 genannten Emissionsbereiche auf, wie in Abbildung 4.3 zu sehen. Insbesondere ist das Plateau deutlich ausgeprägt. Es ist jeweils die Kurve beim Steigern (A) und Senken (B) der Gatespannung gezeigt. Das Rauschen in A ist höher als in B. Dies kann auf ein Erwärmen der Spitze im Lawinenbereich und eine daraus resultierende Reinigung der Spitze von Adsorbaten zurückgeführt werden. Dies ist auch der Grund für die geringe Verschiebung der Emissionsbereiche zwischen A und B. Bei niedrigen Spannungen ist das metallartige FE-Verhalten zu sehen. Bei etwa 3 nA setzt die Sättigung des Stroms ein. Das Plateau reicht bis etwa 21 nA. Im anschließenden Lawinenbereich wurde der Strom auf ein Maximum von 300 nA gesteigert, bevor die Spannung wieder reduziert wurde. Dies hatte abgesehen von der Reinigung keine Auswirkungen auf die Spitze. Die Feldüberhöhung wurde nach Gleichung 2.35 aus dem metallartigen Bereich zwischen 2.3-2.7 kV⁻¹ bestimmt und beträgt $\beta = 116$.

Im nächsten Schritt wurde das Array mit einem Durchmesser von 200 µm (91 Spitzen) im PFES untersucht. Zur Photoanregung wurde ein grüner Dauerstrich-Halbleiterlaser mit $\lambda = 532$ nm ($\hat{=} 2.33$ eV), P = 100 mW und einem Strahlradius von $w_0 = 0.5$ mm verwendet. Dieser verwendet den gleichen Strahlengang wie der in Kapitel 3.4.4 gezeigte Laser. Eine Linse zur Fokussierung wurde nicht verwendet. Unter Berücksichtigung der Transmission von Fenster und Gate erreicht dann jede Si-Spitze ein Photonenfluss von

$$\dot{n}_{phot} \approx \frac{0.1 \text{ W}}{2.33 \text{ eV}} \cdot \frac{\pi (100 \text{ }\mu\text{m})^2}{\pi (500 \text{ }\mu\text{m})^2} \cdot \frac{1}{400} \cdot \frac{1}{91} \cdot 0.93 \cdot 0.8 = 2 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}.$$
(4.1)

Die Strom-Spannungs-Kurve des untersuchten Arrays wurde mit einem Mesh-Gate mit 220 µm Lochgröße und $d_{KG} = 450$ µm gemessen. Der zugehörige FN-Plot



Abbildung 4.3: FN-Plot einer einzelnen Si-Spitze im FERM gemessen, bestehend aus den Kurven beim Steigern (schwarz) und anschließenden Senken (grün) der Anodenspannung. In den Übergangsbereichen sowie im Minimum und Maximum der Kurve beim Senken der Spannung ist der jeweilige Strom markiert.

ist in Abbildung 4.4 mit und ohne Bestrahlung zu sehen. Mit Bestrahlung ist ein geringer, aber dennoch signifikanter Anstieg des Stroms zu erkennen. Eine deutlicher Unterschied der Photosensitivität in den drei Bereichen konnte hier jedoch nicht festgestellt werden. Die drei p-halbleitertypischen Emissionsregionen I-III lassen sich identifizieren, wobei der Sättigungsbereich sich nur durch eine geringere Steigung von dem metallartigen Bereich unterscheidet. Bei $1/U_G > 0.086 \text{ kV}^{-1}$ ist die metallartige FE mit einer Steigung von 25.5 kV zu beobachten. Bei höherem U_G sinkt die Steigung auf 23.9 kV, was auf eine Verarmung von Ladungsträgern in diesem Bereich schließen lässt. Bei $1/U_G < 0.058 \text{ kV}^{-1}$ wächst die Steigung durch die Erzeugung sekundärer Elektronen wie in Kapitel 2.3.1 beschrieben wieder an. Als Ursache für den kaum ausgeprägten Sättigungsbereich kann man von einer mangelnden Homogenität der Spitzen ausgehen. Die gemessene FN-Kurve ergibt sich aus der Überlagerung der verschiedenen FN-Kurven der 91 einzelnen Spitzen. Abweichungen in der Geometrie einzelner Spitzen führen hier zu einer unterschiedlichen Emissionscharakteristik und damit zu Plateaus bei verschiedenen $1/U_G$. In der Uberlagerung wird der Sättigungsbereich dann nur noch schwer erkennbar. Daneben muss von parasitären Emittern auf der Kathode ausgegangen werden. Bisher können Kathoden nicht unter staubfreier oder -reduzierter Atmosphäre in der Schleuse installiert werden. Dazu müssten im Schleusenbereich Reinraumbedingungen erzeugt werden. Am einfachsten ist dies lokal mit einem Laminar-Flow-System möglich. Darin wird ein laminarer Strom vorgefilterter Luft erzeugt, der auftretenden Staub lokal verdrängt. Ein solches System soll in naher Zukunft installiert werden. Nachdem die Kathode aus dem System ausgeschleust wurde, wurde sie unter einem optischen Mikroskop untersucht. Dabei wurden einige Partikel gefunden, die als parasitäre Emitter in Frage kommen. Neben einer Optimierung der Emitterhomogenität sollte das Emissionsverhalten nach Installation eines entsprechenden Systems erneut überprüft werden.

Die Inhomogenität der Emission wird bei Betrachtung der Spektren ohne Bestrahlung, wie in Abbildung 4.5 gezeigt, noch deutlicher. Im Bereich der metallartigen FE bei $I_{Kath} = 0.05 \,\mu\text{A}$ wird ein einzelner Peak gemessen. Dieser stammt aus der Emission aus dem degenerierten Leitungsband sowie aus Oberflächenzuständen. Bei $I_{Kath} = 0.35 \,\mu\text{A}$ ist eine Verschiebung des Spektrums sowie ein Aufspalten des Peaks zu beobachten. Die Verschiebung kann auf einen Spannungsabfall über den Spitzen zurückgeführt werden. Diese sollten unterhalb der Sättigung einen konstanten Wi-



Abbildung 4.4: FN-Plot des Si-Arrays mit und ohne Laserbestrahlung, gemittelt über die jeweiligen Kurven beim Steigern und Senken der Gatespannung. Die drei Bereiche sind durch gestrichelte Linien getrennt und in der ersten Zeile der Tabelle gekennzeichnet (I-III). Die Tabelle gibt für jeden Bereich die jeweilige Steigung aus dem linearen Fit an (ohne/mit Bestrahlung in schwarz/blau) Die linearen Fits sind nur in Bereich I gezeigt. Inset: Detailansicht der Bereiche II und III mit den zugehörigen Linearfits.

derstand aufweisen und sich somit proportional zu I_{Kath} aufladen. Dadurch wird die Vorspannung effektiv reduziert. Die Aufladung resultiert dann in einer geringeren kinetischen Energie der emittierten Elektronen. Die Aufspaltung in zwei Peaks könnte wieder aus der Inhomogenität der Spitzen resultieren. Einige Spitzen sind hier bereits in Sättigung und weisen dann einen noch höheren elektrischen Widerstand auf und laden sich somit stärker auf, als die Spitzen unterhalb der Sättigung. Steigert man den Strom weiter, nimmt die Aufladung zu und das Aufspalten der Peaks wird größer, wie die Spektren bei $I_{Kath} = 0.6$ und 1.3 µA belegen. Zudem steigt die Zählrate im niederenergetischen Peak gegenüber dem Peak der Spitzen unterhalb der Sättigung an, was belegen würde, dass die Zahl der Spitzen in Sättigung mit steigendem


Abbildung 4.5: Normierte FE-Spektren des Si-Arrays bei verschiedenen I_{Kath} . Die Kathodenvorspannung lag bei $U_0 = 81.5$ eV. Alle Spektren mit $I_{Kath} \leq 1.3$ µA wurden mit $W_{pass} = 20$ eV und einer Spaltbreite von w = 2 mm aufgenommen, was nach Gleichung 3.1 einer Auflösung von $\Delta W = 210$ meV entspricht. Bei höheren Strömen wurde $W_{pass} = 5$ eV und w = 2 mm verwendet, was zu $\Delta W = 53$ meV führt.

tigung mit steigendem Strom zunimmt. Für diese Erklärung der Aufspaltung ist es notwendig, dass der Widerstand beim Übergang vom metallischen in den Sättigungsbereich sprunghaft ansteigt. Andernfalls wären nicht zwei diskrete Peaks, sondern eine breite Verteilung zu erwarten. Eine andere Erklärung könnte sich aus der zunehmenden Bandverbiegung mit steigender Spannung und daraus resultierenden Effekten wie beispielsweise der Relaxation oder anderen ergeben. Dies lässt sich hier jedoch nicht abschließend klären. Steigert man den Strom bis in den Bereich der Sekundärelektronenerzeugung, sinkt die Aufladung stark ab. Der Widerstand ist durch die zusätzlich angeregten Ladungsträger hier also stark reduziert. Durch den hohen Strom bleibt die Aufladung aber über der im metallartigen Bereich. Des Weiteren fallen die Peaks wieder zusammen, wenn alle Spitzen in diesem Bereich emittieren, was bei einem Strom von $I_{Kath} = 5 \,\mu\text{A}$ der Fall ist.

Aus der Aufladung $e\Delta U$ der einzelnen Peaks und dem zugehörigen Strom I_{Kath} lässt sich der Widerstand $R = \Delta U/I_{Kath}$ der Spitzen in den einzelnen Bereichen berechnen, was in Abbildung 4.6 für die Spektren aus Abbildung 4.5 gezeigt ist. Der Peak bei $I_{Kath} = 0.05 \,\mu\text{A}$ und die drei höherenergetischen Peaks der aufgespaltenen Spektren lassen sich der metallartigen FE zuordnen. Entsprechend weisen diese alle einen gleichen Widerstand im Bereich von $R \approx 5 \,\text{M}\Omega$ auf. Die drei Peaks, die aus dem Sättigungsbereich stammen, weisen einen höheren Widerstand von $R \approx 8 \,\text{M}\Omega$ auf. Bei $I_{Kath} = 5 \,\mu\text{A}$ fällt der Widerstand auf $R = 180 \,\text{k}\Omega$ und bei 10 μA weiter auf 80 k Ω . Dies bestätigt die Erzeugung zusätzlicher Ladungsträger im Lawinenbereich der Emission. Das Spektrum bei $I_{Kath} = 10 \,\mu\text{A}$ ist der Übersichtlichkeit halber in Abbildung 4.5 nicht gezeigt, entspricht qualitativ jedoch dem bei 5 μA .



Abbildung 4.6: Widerstand der Si-Spitzen bei verschiedenen Emissionsströmen I_{Kath} in den Bereichen I - III. Inset: FN-Plot ohne Beleuchtung aus Abbildung 4.4. Die gestrichelten Linien trennen die drei Bereiche. Die Pfeile kennzeichnen die Punkte, an denen die jeweiligen Spektren aufgenommen wurden. Ihre Farben entsprechen denen in Abbildung 4.5.

Unter Beleuchtung ist in allen Spektren eine Reduzierung der Aufladung von $\Delta U/U = 20 - 50$ % zu beobachten, wie Abbildung 4.7 für $I_{Kath} = 0.05$ und 5 µA zeigt. Ein systematisches Verhalten konnte dabei nicht festgestellt werden. Die reduzierte Aufladung deutet auf die Erzeugung zusätzlicher Ladungsträger durch Photoanregung und damit ein Absinken des Widerstands hin. Um den Anregungs- und Relaxationsmechanismus unter Beleuchtung zu verstehen, ist ein Vergleich mit den Spektren ohne Beleuchtung nötig. Dazu muss die unterschiedliche Aufladung wie folgt korrigiert werden. Ohne Beleuchtung handelt es sich um reine FE, die in p-Halbleitern im Wesentlichen aus dem degenerierten Leitungsband (LB) stammt, wie in Abbildung 2.12 gezeigt. Die höherenergetische Flanke des Spektrums liegt dann am Fermi-Niveau W_F , die niederenergetische im LB darunter. Unter nicht zu intensiver Beleuchtung sollte sich die Besetzung der niederenergetischen Zustände nur vernachlässigbar ändern, da der Großteil der optisch angeregten Elektronen aus dem Valenzband (VB) stammt und in Zustände bei W_F relaxiert. Der optische Ubergang vom VB ins LB ist hier wahrscheinlicher als der Intrabandübergang im LB. Das heißt, dass das Spektrum mit Beleuchtung in der Regel das Spektrum ohne Beleuchtung enthält und zusätzlich um die optisch angeregten Elektronen bei oder über W_F erweitert ist. Daher ist die niederenergetische Flanke beider Spektren unter Beleuchtung weitgehend invariant und damit zur Aufladungskorrektur geeignet.



Abbildung 4.7: Elektronenspektren der p-Si-Kathode mit und ohne Beleuchtung bei $I_{Kath} = 50$ nA (links) und 5 μ A (rechts). Die Spektren ohne Beleuchtung wurden aufladungskorrigiert.

Bringt man beide Spektren mit ihrer niederenergetischen Flanke in Deckung, kann man die durch Beleuchtung zusätzlich emittierten Elektronen identifizieren, wie in Abbildung 4.7 zu sehen. Bei 50 nA ist nur ein geringer Zuwachs der Zählrate zu erkennen. Auf die Besetzung der angeregten Zustände lässt sich daraus jedoch nicht schließen. Bei 5 μ A ist dagegen eine Anderung der Zählrate von etwa 30 %zu sehen. Bei den optisch angeregten Zuständen handelt es sich um solche an der unteren Leitungsbandkante. Das heißt, dass Elektronen vom Valenzband aus direkt in diese Zustände angeregt wurden oder nach Anregung in höherliegende Zustände dorthin relaxiert sind. Dies lässt sich auch mit Hilfe der Bandstruktur und der Absorption von Si nicht vollständig klären. Beide sind in Abbildung 2.5 bereits gezeigt worden. Bei der verwendeten Laserenergie von $W_p = 2.33$ eV beträgt die Absorption nur etwa $\alpha = 10^4$ cm⁻¹. Zwischen Valenz- und Leitungsband sind damit energetisch nur indirekte Übergänge möglich ($\Gamma \to L, \Gamma \to \Delta, \Gamma \to \Sigma, L \to X$). Dabei sollten die Ubergänge $\Gamma \to L$ und $L \to X$ die höchste Wahrscheinlichkeit haben, da hier die Steigung der Bänder im Anfangs- und Endzustand gleich ist. Ein direkter Ubergang ist erst mit $W_p = 3.4$ eV bei X möglich. Die Absorption ist dort um mehr als eine Größenordnung höher als bei der hier verwendeten Energie. Von den möglichen Übergängen mit dem Anfangszustand bei Γ liegen die Endzustände alle mindestens 1 eV oberhalb der unteren Leitungsbandkante bei X_1 . Diese liegt im aufladungskorrigierten Spektrum von Abbildung 4.7b bei etwa 78.5 eV. 1 eV darüber wurden keine Elektronen detektiert. Das heißt, dass die Elektronen nach diesen Ubergängen zunächst relaxiert sind und dann erst emittiert wurden. Nach dem anderen möglichen Übergang $L \to X$ befinden sich die Elektronen bereits an der unteren Leitungsbandkante und würden von dort direkt emittiert. Abbildung 4.8 kennzeichnet die hier dargestellten Prozesse noch einmal in der Bandstruktur. Es lässt sich festhalten, dass der Emissionsstrom im Wesentlichen durch FE zustande kommt und durch Bestrahlung ein relevanter Zuwachs auftritt. Bei diesem handelt es sich dann um PFE aus relaxierten Zuständen. Es kommt dabei zum Auftreten zusätzlicher Effekte durch die limitierte Leitfähigkeit.

Auffällig ist, dass die mögliche Emission aus den Λ -Zuständen nicht erfolgt. Dort wäre die Tunnelwahrscheinlichkeit wegen der geringeren Barrierenhöhe- und breite höher als aus den X_1 -Zuständen. Eine Erklärung kann in der [100]-Orientierung (Δ -Richtung) der Kathode gefunden werden. Elektronen in Λ -Zuständen müssten die Spitze unter einem Winkel von 45° zur Kathodenoberfläche verlassen. Auf dem



Abbildung 4.8: Bandstruktur von Si mit den energetisch möglichen Übergängen bei $W_p = 2.33$ eV. Die blauen Pfeile kennzeichnen die Übergänge, bei denen die Bandsteigung im Anfangs- und Endzustand identisch und Null sind. Dies sind die Übergänge mit der höchsten Übergangswahrscheinlichkeit und der höchsten kombinierten Zustandsdichte. Die grünen Pfeile kennzeichnen die beiden übrigen möglichen Übergänge. In der Σ -Richtung sind energetisch auch noch Übergänge links und rechts des markierten möglich.

Apex der Spitze bedeutet dies eine Steigerung der effektiven Barrierenbreite um $\sqrt{2}$. Dies überwiegt offensichtlich die um 1 eV höhere Anregung, insbesondere unter Berücksichtigung der exponentiellen Gewichtung in der Tunnelwahrscheinlichkeit. Zudem weist die [100]- eine geringere Austrittsarbeit als die [111]-Oberfläche auf.

Nimmt man eine kugelförmige Rundung des Spitzenkopfs an, liegt die [111]-Richtung auf der Kugeloberfläche bei 45° zur Achse der Spitze. Dort tritt keine Verbreiterung der effektiven Barriere wie oben auf. An dieser Stelle ist jedoch das lokale elektrische Feld um etwa 15 % gegenüber dem Apex abgefallen, wie in der Simulation aus Abbildung 5.8 im folgenden Kapitel noch gezeigt wird. Hinzu kommt eine um 7 % geringere Schottky-Absenkung. Die Summe aller Effekte führt trotz der höher angeregten Zustände zu einer unterdrückten Emission der [111]-Richtung bei [100]-orientierter Oberfläche. Zudem tritt üblicherweise eine Relaxation der Elektronen auf ihrem Weg zur Oberfläche ohnehin auf, da durch das Eindringen des elektrischen Felds in das Si ein Potentialgefälle vorliegt. Die Elektronen werden dann aus den unteren Zuständen des degenerierten Leitungsbands emittiert, wie in Kapitel 2.3.2 erläutert.

Die Aufspaltung der sp3-Hybridorbitale ist an der Oberfläche von Si nicht so stark ausgeprägt wie im Volumen. Daher existieren in der Bandlücke elektronische Oberflächenzustände (OZ). Zudem sind OZ durch Adsorbate möglich. Sie kommen dann sowohl als Anfangs- sowie Endzustände bei der Anregung in Frage, da sie auch im thermischen Gleichgewicht eine Elektronenbesetzung aufweisen. Bei einer Anregung vom Valenzband in die OZ, bilden sie die niederenergetische Flanke der Spektren, da die untere Leitungsbandkante etwa im Maximum des Peaks liegt. Bei einer Anregung aus den OZ in das Leitungsband wären die Elektronen relaxiert, bevor sie emittiert wurden, da 2.33 eV über der niederenergetischen Flanke keine emittierten Elektronen detektiert wurden.

Bei den Doppelpeaks bei $I_{Kath} = 0.35, 0.6$ und 1.3 µA tritt qualitativ das gleiche Verhalten wie oben beschrieben auf, wie Abbildung 4.9 für $I_{Kath} = 1.3 \ \mu A$ zeigt. Unter Beleuchtung kommt es ebenfalls zu einer reduzierten Aufladung (Abbildung 4.9a). Nach Aufladungskorrektur der niederenergetischen Peaks, sieht man zunächst ebenfalls einen Zuwachs an Elektronen in den Zuständen im Bereich der Fermi-Kante (Abbildung 4.9b). Dabei liegen die höchsten besetzten Zustände um 0.1 eV über denen ohne Beleuchtung. Bei dieser Korrektur sind die höherenergetischen Peaks dann jedoch nicht in Deckung. Die Aufladungsänderung unter Beleuchtung ist also in den Bereichen I und II unterschiedlich stark ausgeprägt. Daher wurde anschließend die Aufladung anhand der höherenergetischen Peaks, also denen aus Bereich I, korrigiert (Abbildung 4.9c). Eine höhere Besetzung an der Fermi-Kante kann dann abgesehen vom Tail bei $W_{kin} > 76$ eV nicht festgestellt werden. Dies entspricht ebenfalls der Beobachtung der Spektren bei 50 nA. Die Photosensitivität ist im Bereich I also weniger ausgeprägt als in den Bereichen II und III. Die höhere Empfindlichkeit dort lässt sich in Bereich II mit dem Mangel an Ladungsträgern erklären. Im Bereich III führen zusätzliche Elektronen zu einer weiteren Verstärkung des Lawineneffekts. Bei den Elektronen bei $W_{kin} > 76$ eV wird davon ausgegangen, dass sie aus Spitzen stammen, die weniger stark aufgeladen waren als die übrigen. Dieser Tail ist ebenfalls in den Spektren ohne Bestrahlung zu finden, daher kann es sich nicht exklusiv um Elektronen handeln, die aus angeregten Zuständen über W_F stammen. Die etwas höhere Zählrate im Tail in den Spektren mit Beleuchtung wird darauf zurückgeführt, dass sich die Spitzen unter Beleuchtung weniger stark aufgeladen. Die Anzahl mit geringer Aufladung ist folglich höher.



Für zukünftige Untersuchungen ist ein direkter Vergleich der Emission eines [100]- und eines [111]-orientierten Wafers mit sonst gleichen geometrischen Strukturen interessant. Sofern der in Abbildung 4.8 gezeigte elektronische Übergang entlang der Λ -Richtung bevorzugt auftritt, könnte mit einem [111]-orientierten Wafer ein höherer Strom auftreten. Die Emission wäre dann direkt aus den angeregten Zuständen möglich und die Tunnelwahrscheinlichkeit damit höher. Sollte es dennoch zu einer Relaxation zum X-Punkt kommen, wäre die [100]-orientierte Kathode die bessere Wahl. Grundsätzlich wäre es allerdings sinnvoller, wenn man einen Laser mit $W_p = 3.4$ eV oder $W_p = 4.4$ eV verwendetet, da damit direkte Übergänge in

der A-Richtung beziehungsweise bei X möglich sind. Die Photoabsorption ist dort um mehr als eine Größenordnung höher, wie in Abbildung 2.5 gezeigt. Bei entsprechender Wahl der Kristallorientierung sollten die beobachteten Effekte dann deutlich ausgeprägter sein. Für eine weitergehende Analyse des Prozesses sind PFE-Spektren bei verschiedenen Photonenenergien nötig. Diese sind mit dem OPO-Laser und dem installierten Elektronenspektrometer aus den in Kapitel 3.3.3 genannten Gründen nicht möglich. Die Analyse wird mit dem neuen Spektrometer zukünftig fortgeführt.

5 Quanteneffizienz und Feldabhängigkeit photoemittierter Elektronen aus Gold

Dieses Kapitel befasst sich mit der Messung der Quanteneffizienz (QE) einer Au-Kathode in Abhängigkeit der Energie der eingestrahlten Photonen und des elektrischen Felds. Zu Beginn erfolgt eine ausführliche Charakterisierung der Kathode mittels SEM, XRD und XPS. Aus dem Spektrum der QE können verschiedene Beiträge zum Emissionsstrom unterschieden werden. Deren Zustandekommen wird anhand der Bandstruktur analysiert.

5.1 Kathodencharakterisierung

Die verwendete Kathode ist Teil eines Gold-Sputtertargets mit einer Reinheit von 99.99 %. Da dieses bereits zum Sputtern verwendet wurde, weist es eine hohe Rauheit auf und sollte demnach für Experimente mit moderater Feldüberhöhung gut geeignet sein. SEM-Aufnahmen zeigen unregelmäßig verteilte Strukturen in Kegelform mit verschiedener Größe auf der Oberfläche, wie in Abbildung 5.1A zu sehen. Die größten Kegel weisen einen Durchmesser von etwa 20 µm am Fuß auf. Bei 6500facher Vergrößerung sind scharfkantige Strukturen auf der Oberfläche der Kegel zu erkennen. Zudem besitzen einige Kegel nadelförmige Aufsätze auf der Spitze, wie Abbildungen 5.1B und C zeigen. Des Weiteren sind noch kleinere Unterstrukturen auf der Nadel zu erkennen. Diese konnten aufgrund der begrenzten Auflösung des SEM jedoch nicht weiter untersucht werden. Bei Betrachtung des Kegels unter einem Blickwinkel von 45°, wie in Abbildung 5.1D, weist dieser einen Öffnungswinkel von etwa 90° auf. Daraus lässt sich die Höhe des Kegels zu etwa 10 µm abschätzen.

Bei Betrachtung der Oberfläche mit einem Lichtmikroskop bestätigt sich die Kegelstruktur, es handelt sich hierbei nicht um Krater in der Oberfläche. Es zeigt sich zudem eine poröse Oberfläche mit gegeneinander in der Höhe versetzten Ebenen, auf denen sich die Kegelstrukturen befinden. Der Abstand der Ebenen beträgt einige Mikrometer, was bei einem Kathoden-Gate-Abstand im Bereich von $d_{KG} = 1$ mm



Abbildung 5.1: SEM-Aufnahmen des Sputtertargets, A) unregelmäßig verteilte Kegelstrukturen verschiedener Größe auf der Oberfläche bei 1000-facher Vergrößerung, B) Kegel in der Bildmitte von A bei 6500-facher Vergrößerung, C) Kegelspitze aus B bei 30000-facher Vergrößerung, D) Kegel aus B unter einem Blickwinkel von etwa 45°.

keine Auswirkungen auf die FE haben sollte. Es wird davon ausgegangen, dass die Kegelstrukturen beim Austreten von Goldclustern aus dem Target entstehen. Ein eintreffendes Sputtergasion trifft auf die Oberfläche und wird darin abgelenkt. Bei einigen Stoßprozessen wird der Impuls dabei um bis zu 180° umgelenkt und weist dann senkrecht von der Oberfläche in Richtung des Plasmas. Entlang des Pfads wird das Gold lokal geschmolzen. Beim Austritt zieht ein Goldcluster geschmolzenes Material mit und reißt schließlich von der Oberfläche ab. Die zurückbleibende Struktur erstarrt, hierbei sind kegelförmige Spitzen zu erwarten. Ob diese Spitzen sich bis in den atomaren Bereich fortsetzen, sollte von der Temperatur und der Erstarrungszeit abhängen. Des Weiteren ist zu beachten, dass Gold ein duktiles Metall ist und sich bei für die FE üblichen Feldstärken verformen kann. Dies betrifft im Wesentlichen die Länge der Kegel und etwaig vorhandene Unterstrukturen auf dem Kegel, die sich aufrichten und auch verlängern können. Von diesen Effekten ist eine Steigerung der Feldüberhöhung zu erwarten.

Die Kristallorientierung der Kathode wurde anhand des in Abbildung 5.2 gezeigten Röntgendiffraktogramms bestimmt und ist in Tabelle 5.1 aufgelistet. Es zeigt sich ein polykristallines Gefüge mit einer Vorzugsorientierung in L- und K-Richtung von 23.8 und 19.5 %, die übrigen Orientierungen liegen zwischen 5.8 und 13.6 % vor.

Nach den PFES-Messungen wurde ein Röntgenphotoelektronenspektrum (XPS, englisch: Xray Photoelectron Spectrum) aufgenommen, um die tatsächliche Zusammensetzung im vermessenen Zustand zu bestimmen. Dies ist in Abbildung 5.3 gezeigt. Neben Gold kann Kohlenstoff, Sauerstoff und eine Stahllegierung gefun-



Abbildung 5.2: Röntgendiffraktogramm der Au-Kathode aus dem Sputtertarget aus einer Θ -2 Θ -Messung. Die Peaks sind mit den zugehörigen Miller-Indizes gekennzeichnet. Zu jedem gekennzeichneten Peak gehört ein gemessener Doppelpeak, der durch die Messung mit K α_1 - und K α_2 -Strahlung zustande kommt.

Tabelle 5.1: Kristallorientierung der Kathode bestimmt aus dem Röntgendiffraktogramm in Abbildung 5.2. Es ist jeweils der Miller-Index der gemessenen Ordnung, der zugehörige Punkt in der Brillouin-Zone (BZ), der gemessene Winkel 2Θ , die jeweilige theoretische Intensität und der damit berechnete relative Anteil jeder Orientierung in der Kathode aufgelistet. Die theoretische Intensität entspricht derer, die eine Probe aufweisen würde, in der alle Orientierungen gleichhäufig vorliegen. Einige Orientierungen können nur in höherer Ordnung gemessen werden oder liegen in verschiedenen Ordnungen vor, können dann aber zusammengefasst werden.

Miller-Index	ΒZ	2Θ / °	theor. Intensität / $\%$	rel. Anteil / $\%$
220	К	65.576	32	19.5
222, 111	L	81.721, 38.184	12, 100	17.0 + 5.78 = 22.8
331		110.80	23	13.6
422		135.42	23	13.0
400, 200	Х	98.133, 44.392	6, 52	8.13 + 4.23 = 12.4
311		77.547	36	10.6
420	W	115.26	22	8.16

den werden. Der Kohlenstoff ist auf Spuren des Pumpenöls zurückzuführen, welches durch das Evakuieren der Vorkammer der XPS-Anlage mit einer Drehschieberpumpe immer zu finden ist. Da das PFES ebenfalls mit einer solchen Pumpe evakuiert wird, ist dies dort ebenso zu erwarten. Der Umbau auf eine ölfreie Pumpe ist geplant. Der Sauerstoff ist durch den Kontakt mit der Luft und durch adsorbiertes Wasser zu erklären. Die Spuren des Stahls stammen vom Targetträger der Sputterkammer. An einigen Stellen war das Target bereits brüchig, so dass dort auch Material der Targethalterung abgetragen werden konnte und sich teilweise auf dem Gold abgelagert hat. Quantitativ lässt sich die Zusammensetzung nicht im Rahmen sinnvoller Fehler angeben, da die Zahl der auftretenden Elemente zu hoch ist und deren örtliche Verteilung nicht bekannt ist. Qualitativ ist davon auszugehen, dass sich auf dem eigentlich reinen Au eine wenige Nanometer dicke Schicht der Ablagerungen befindet. Dies ergibt sich aus der vergleichsweise geringen Intensität des Goldsignals im Vergleich zu den übrigen Elementen, was auch unter Berücksichtigung der einzelnen Absorptionsquerschnitte der Fall ist. Dass es sich lediglich um eine sehr dünne Schicht auf dem Au handelt, zeigt das Diffraktogramm aus Abbildung 5.2, da dort ausschließlich Au-Reflexe nachweisbar sind.



Abbildung 5.3: XPS des Sputtertargets unter Al-Anregung ($W_p = 1486 \text{ eV}$). Die Elemente und Orbitale der Photoelektronenpeaks sind oberhalb der Kurve gekennzeichnet, die Augerlinien mit ihren Elementen und den drei beteiligten Schalen (Valenzband V) unterhalb. Neben den Au-Peaks treten solche von C, O und einer Stahllegierung (Fe, V, Cr, Zr, Mo) auf. Es ist anzumerken, dass Augerlinien im Gegensatz zu XP-Linien eine charakteristische *kinetische* Energie aufweisen. Das Auftreten bei den jeweiligen Bindungsenergien ist auf die Berechnung dieser aus der gemessenen kinetischen Energie zurückzuführen ($W_B = W_p - W_{kin}$). Dies erfolgt in der Messsoftware und ist für Zuordnung der XP-Linien notwendig.

Aus dem Sputtertarget wurde ein 10x10 mm² großes Stück herausgeschnitten und mit einem vakuumtauglichen Klebepad auf dem Kathodenhalter befestigt. Um einen guten elektrischen Kontakt zu gewährleisten, wurde zusätzlich etwas Silberleitlack verwendet. Der feldemittierende Bereich ist damit größer als die Öffnung des Gates. Es ist also unorthodoxe Emission zu erwarten, so dass die übliche FN-Analyse hier keine sinnvollen Werte liefern sollte. Die größere Kathode wurde vorgezogen, da es mit einem kleineren Stück durch die ohnehin raue und poröse Struktur zu einer starken Emission an den Kanten hätte kommen können. Vor dem Einbau des Targets in das PFES-System, wurde es mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad gereinigt. Die oben genannten Ablagerungen lassen sich damit jedoch nicht nachhaltig entfernen. C und O sind nach Transport und Abpumpen in der Vorkammer wieder darauf zu finden und bei den Elementen der Stahllegierung ist davon auszugehen, dass diese metallisch gebunden sind. Ein Abtragen mit der Ionenquelle in der Präparationskammer wäre vorher nötig gewesen.

5.2 Experimentelle Ergebnisse und Interpretation

Die Kathode wurde auf dem Kathodenträger installiert und in einen Abstand von $d_{KG} = 1.68$ mm vor das Gate gebracht. Die Verkippung wurde korrigiert. Zur Bestrahlung der Kathode wurde der OPO-Laser NT342A-SH bei Photonenenergien von $W_p = 3.1 - 5.9$ eV verwendet. Die Wellenlänge wurde dabei in Schritten von 2 nm variiert. Die Kathodenvorspannung betrug $U_0 = -77.3$ V, eine Gatespannung wurde zunächst nicht angelegt. Bei einem Abstand von $d_{KG} = 1.68$ mm entsteht eine makroskopische Feldstärke von $E = U_0/d = 46$ kV/m. Es ergibt sich der in Abbildung 5.4 gezeigte Kathodenstrom $I(W_p)$. Die Fehler resultieren aus dem Untergrund von etwa 2 pA und den Schwankungen im Strom bei der Messung von etwa 10 %. Die PE setzt bei etwa $W_p = 3.5$ eV ein. Der höchste Strom von 7.75 nA wird bei $W_p = 5.08$ eV erreicht. Hierbei handelt es sich um den mittleren Strom über 100 ms pro Messwert. Dies entspricht einer emittierten Ladung von 0.775 nC pro Laserpuls oder 0.22 A im Peak.

Das weitere Verhalten der Kathode kann nach Berücksichtigung des Laserspektrums anhand der QE untersucht werden. Diese ist ebenfalls in Abbildung 5.4 sowie in Abbildung 5.5 zusammen mit dem $QE^{1/2}(W_p)$ -Verhalten gezeigt. Zunächst fällt die niedrige Einsatzenergie für die PE auf. Diese kann nach [93, 165] über den Schnittpunkt der Linearfits von Untergrund und der Einsatzkante des $QE^{1/2}(W_p)$ -Plots bestimmt werden. Es ergibt sich $\Phi = 3.5 \pm 0.17$ eV. Dies entspricht der geringsten Austrittsarbeit aller an der Emission beteiligten Oberflächen. Es kommt also zu einer Abweichung der Austrittsarbeit von der des reinen Au, die je nach Kristallrichtung zwischen $\Phi_{Au} = 5.1 - 5.5$ eV variiert [72]. Es fallen in den Spektren verschiedene Peaks zwischen 3.6 - 4.25 eV und 4.8 - 5.3 eV auf. Innerhalb dieser steigt die QE um bis zu einen Faktor 5.8 gegenüber dem Untergrund auf ihr



Abbildung 5.4: Kathodenstrom I_{cath} , Peakstrom I_{peak} und Quanteneffizienz in Abhängigkeit der Photonenenergie bei $U_0 = -77.3$ V und $U_{Gate} = 0$ V. Der Peakstrom im Laserpuls ergibt sich aus der Messdauer von 100 ms und der Pulsdauer von 3.5 ns zu $I_{peak} = I_{cath} \cdot 10^{-1}/3.5 \cdot 10^{-9} = 2.8 \cdot 10^7 \cdot I_{cath}$. Der Wert bei $W_p = 5$ eV scheint durch einen zusätzlichen statistischen Fehler zum gezeigten systematischen Fehler zustande zu kommen. Bei den Messungen mit $U_{Gate} > 0$ V tritt dieses Artefakt nicht mehr auf, wie später gezeigt wird.

Maximum von $QE = 2.1 \cdot 10^{-5}$ bei $W_p = 5.08$ eV. In diesen Bereichen kommt es zu Elektronenanregungen mit hoher Übergangswahrscheinlichkeit, die auf die elektronische Struktur im Bereich der Oberfläche zurückgeführt wird. Des Weiteren ist abzüglich der Peaks ein quadratischer Anstieg der QE oberhalb der Einsatzenergie zu beobachten, wie es nach Gleichung 2.12 zu erwarten ist. Die Anregung kann hier also mit dem freien Elektronengas beschrieben werden. Durch einen Linearfit des $QE^{1/2}(W_p)$ -Verlaufs zwischen 4.46 – 4.8 eV können weitere Beiträge zur QE unterschieden werden. Die Extrapolation der Geraden auf die Abszisse führt zu einem Ursprung der QE-Parabel bei 3.75 eV. Auch bei geringeren W_p werden Elektronen emittiert. Diese weichen also vom Verhalten des freien Elektronengases ab. Hierbei kann es sich ebenfalls um PE handeln. Des Weiteren ist in diesem Energiebereich unmittelbar über der Oberflächenbarriere Schottky-induzierte PE aus den Spitzen möglich. Die Schottky-Absenkung beträgt dort etwa 50 meV, wie später noch gezeigt wird. Zudem ist ebenfalls PFE möglich, da die Tunnelwahrscheinlichkeit aus den höchsten Zuständen an der Oberflächenbarriere sehr hoch ist. In jedem Fall handelt es sich aber nur um einen geringen Beitrag. Im Bereich oberhalb der Peaks weicht der gemessene Verlauf von der Extrapolation des Fits ab. Subtrahiert man diesen von den Messdaten, ergibt sich der durch blaue Punkte gekennzeichnete Verlauf in Abbildung 5.5. Ein Linearfit dieses Bereichs führt zu einem Ursprung von $W_p = 5.3$ eV.



Abbildung 5.5: Quanteneffizienz QE in Abhängigkeit der Photonenenergie W_p bestimmt aus dem Kathodenstrom aus Abbildung 5.4 und dem Laserspektrum aus Abbildung 3.21. $QE^{1/2}(W_p)$ -Verlauf mit A) Linearfit innerhalb der roten Linien sowie B) Residuum der beiden mit C) Linearfit innerhalb der grünen Linien.

Die C- und O-Anteile sind für sich optisch transparent und elektrisch nichtleitend, können also nicht den Großteil des Emissionsstroms tragen. Die Elemente der Stahllegierung befinden sich nur in Spuren in den obersten Atomlagen. Es ist nicht davon auszugehen, dass sie eine geschlossene Schicht bilden. Dies ist selbst auf glatten Substraten üblicherweise erst ab einer Schichtdicke von etwa 10 nm der Fall [186]. Bei dieser Dicke wäre das Au-Signal im XPS jedoch wegen der geringen Austrittstiefe der Photoelektronen nicht mehr nachweisbar. Bei Betrachtung der Kathode zeigt sich nach wie vor die charakteristische Farbe von Au. Das Verhalten im optischen Spektralbereich wird also weiterhin hierdurch bestimmt. Es ist davon auszugehen, dass dies auch im UV der Fall ist. Folglich wird die PE hier durch das Au getragen, wobei die Oberflächenschicht die Austrittsarbeit auf etwa $\Phi_{eff} = 3.5$ eV reduziert. Eine Absenkung um $\Delta \Phi > 2$ eV mit chemisch kaum reaktiven Materialien wie hier könnte eine interessante Alternative zu den sehr anfälligen Alkalimetallschichten bieten. Eine relevante Reduktion durch die Schottky-Absenkung oder ähnliche Mechanismen kommt hier nicht in Frage.

Die Emission lässt sich in den vier oben genannten Bereichen qualitativ der Bandstruktur zuordnen. Es handelt sich in Au bei diesen Photonenenergien um Übergänge zwischen dem d-artigen Valenzband und den s- und p-artigen Leitungsbändern sowie innerhalb dieser. Eine exakte Zuordnung der Übergänge ist durch die komplexere Bandstruktur von Au sowie die fehlenden Elektronenspektren nicht



Abbildung 5.6: Bandstruktur von Gold nach [187]. Die Fermienergie (durchgezogen) und das Vakuumniveau bei $\Phi = 3.5$ eV (gestrichelt) und $\Phi = 5.3$ eV (gepunktet) sind markiert. Kandidaten für an der Anregung beteiligte Zustände sind markiert. Die Anfangszustände sind für $W_p = 4.25 - 4.8$ eV (rot) und 5.3-5.9 eV (blau) eingekreist. Die Endzustände für den Bereich $W_p = 4.8 - 5.3$ eV sind mit Kreuzen markiert (grün).

möglich. Die Übergänge lassen sich jedoch auf wenige Möglichkeiten einschränken. Diese sind in Abbildung 5.6 gekennzeichnet. Die Elektronen, die bei $W_p < 4.25$ eV emittiert werden, haben gerade genug Energie um die Austrittsarbeit zu überwinden. Ihre Anfangszustände liegen also am und kurz unterhalb des Ferminiveaus, von wo aus sie in Zustände im Bereich nah oberhalb des Vakuumniveaus angeregt werden können. Mit den gleichen Endzuständen sind bei $W_p = 4.25 - 4.8$ eV Anfangszustände bis zum rot markierten Punkt bei L möglich. Durch den flachen Bandverlauf ist die Zustandsdichte dort höher als am Ferminiveau. Für die resonanten Anregungen zwischen $W_p = 4.8 - 5.3$ eV eignen sich die vier grün markierten Endzustände. Durch ihre ebenfalls relativ hohe Zustandsdichte ist hier eine hohe Übergangsrate zu erwarten. Mit $W_p > 5.3$ eV werden die d-Bänder zugänglich. Die möglichen Anfangszustände liegen am rechten blauen Kreis und zwischen den beiden linken. Dies erklärt die Abweichung des Fits in Abbildung 5.5 von den Messdaten bei $W_p > 5.3$ eV. Alternativ ist es möglich, dass die Emissionen aus Bereichen der Kathode stammen, die keine Beschichtung aufweisen und daher die Austrittsarbeit des reinen Au aufweisen. Diese Zuordnung der Emission zu speziellen Bereichen der Bandstruktur ist allerdings nicht eindeutig. Hierzu wären ε_2 -Kurven mit Spektren der emittierten Elektronen nötig. Die dargestellte Interpretation erscheint jedoch im Rahmen der vorliegenden Daten die schlüssigste zu sein.

Um die Emission bei höheren Feldstärken zu untersuchen, muss zunächst die Feldüberhöhung der Kathode bestimmt werden. Hierzu wurde eine FN-Kurve zwischen E = 0-3.3 MV/m, wie in Abbildung 5.7 zusammen mit dem FN-Plot gezeigt, aufgenommen. Der FN-Plot zeigt eine Änderung in der Steigung ab etwa 3 MV/m. Nimmt man eine Austrittsarbeit von $\Phi_{eff} = 3.5 \text{ eV}$ an , ergibt sich aus dem der Steigung des FN-Plots eine Feldüberhöhung von $\beta = 6500$ im unteren und $\beta = 1400$ im oberen Bereich. Diese Werte sind jedoch nicht realistisch, da selbst CNTs nur Werte bis $\beta_{CNT} \approx 1000$ aufweisen. Aus der Einsatzfeldstärke von 0.95 MV/m bei $U_G = 1600 \text{ V}$ lässt sich $\beta \approx 2000$ für die schärfsten Spitzen abschätzen. Auch dieser Wert erscheint noch zu hoch. Hier werden die Fehler der üblichen FN-Analyse bei unorthodoxer Emission deutlich. Zudem handelt es sich um eine Kathode mit vielen, sehr inhomogenen Emittern. Daher liefert das Vorgehen zur Bestimmung von β aus Kapitel 2.3.1 hier weiterhin keine wohldefinierten Werte.



Abbildung 5.7: Emissionsstrom der Kathode in Abhängigkeit der elektrischen Feldstärke $E = (U_G - U_0)/d$ und der Gatespannung. Inset: Zugehöriger FN-Plot mit zwei Bereichen unterschiedlicher Steigung in blau und schwarz gekennzeichnet. Beide Bereiche wurden linear gefittet, die jeweiligen Steigungen sind notiert.

Um die Feldüberhöhung besser abzuschätzen, wurden diese mit den in den SEM-Aufnahmen gefundenen Strukturen mit COMSOL Multiphysics simuliert. Dabei wurde von einer vereinfachten Geometrie mit einem Kegel auf ebenem Untergrund mit aufgesetzter Nadel ausgegangen. Die Maße sind in Abbildung 5.8 gezeigt. Die Kathode befindet sich auf Erdpotential. In einem Abstand von $d_{KG} = 1$ mm befindet sich eine ebene Anode mit einer Spannung von 1000 V. Beide Elektroden sind durch ideales Vakuum getrennt, es herrscht also eine makroskopische Feldstärke von 1 MV/m. Die Simulation ergibt auf der Spitze der Nadel eine Feldstärke von 85.2 MV/m, also $\beta \approx 85$. Im Vergleich mit anderen Emittern ist die simulierte Struktur recht hoch und weist damit ein höheres β auf. Durch die aufgesetzte Nadel wird dies noch verstärkt. Die mittlere Feldüberhöhung liegt nach dieser Analyse im Bereich von $\overline{\beta} \approx 50$, die der stärksten Emitter um $\beta_{max} \approx 100$. Daneben können weitere Effekte auftreten, die β steigern, wie im Folgenden diskutiert wird.



Abbildung 5.8: Numerische Simulation der elektrischen Feldstärke an der Spitze des in Abbildung 5.1D gezeigten Emitters, wie im Inset im Querschnitt gezeigt. Der Durchmesser am Fuß und die Höhe des Kegels betragen 20 und 10 µm, die aufgesetzte Nadel hat eine Länge von 2 µm mit einem Spitzenradius von 100 nm. Die übrigen Parameter sind im Text genannt.

Gold ist ein weiches Metall, welches hier zudem in einer porösen Struktur vorliegt. Unter den hohen lokalen Feldstärken ist es möglich, dass sich die Kathode verformt, was β gegenüber der feldfreien Betrachtung vergrößert. Hier ist beispielsweise das Aufrichten gekippter Nadeln oder eine Dehnung der Kegel zu nennen. Eine Verformung der gesamten porösen Struktur oder einzelner Schichten konnte mit dem Mikroskop während der Messung nicht beobachtet werden. Bei einem Abstand von $d_{KG} = 1.68$ mm ist die Auflösung des Mikroskops von 10 µm ausreichend um eine relevante Änderung festzustellen. Des Weiteren ist es möglich, dass sich auf den Spitzen weitere Strukturen befinden, die mit dem SEM nicht aufgelöst werden konnten. Durch die C- und O-Verunreinigungen ist davon auszugehen, dass eine elektrisch isolierende Schicht auf der Oberfläche vorhanden ist. Damit müssen Effekte durch das Metall-Isolator-Vakuum-Modell (MIV) [188] berücksichtigt werden. Hierbei werden durch ein elektrisches Feld von $E_{sw} \approx 1 \cdot 10^9 \text{ V/m}$ Leitungskanäle in eine Isolationsschicht auf einem metallischen Substrat erzeugt. Diese feldemittieren dann bereits ab $E_{th} \approx 0.1 \cdot E_{sw}$, wo vorher keine Emission stattfand. Dieser Prozess ist irreversibel, die FE-Kurven treten danach also reproduzierbar auf. Sie erreichen einen stabilen Sättigungsstrom, welcher auch bereits unmittelbar nach der Kanalerzeugung fließt. Aus E_{sw} und E_{th} kann die Feldüberhöhung der Leitungskanäle mit $\beta \approx \mathcal{O}(10)$ abgeschätzt werden. Eine Feldstärke von $E > 10^9$ V/m wurde bei dieser Kathode nur auf den Kegelspitzen erreicht. Mögliche Leitungskanäle können sich also nur dort befinden. Sowohl mögliche Nanostrukturen als auch die Leitungskanäle können β über das tip-on-tip-Modell steigern. Das Metall-Isolator-Metall-Modell (MIM) sollte hier keine Anwendung finden, da die Bildung der Isolationsschicht im Wesentlichen nach dem letzten Absputtern erfolgte. Somit sollten sich keine metallischen Strukturen mehr auf ihr befinden. Auch resonantes Tunneln sollte hier nicht relevant sein. Hierfür wären Adsorbate oder Strukturen mit diskreten Energieniveaus auf der Oberfläche nötig. Alle Elemente der Beschichtung haben hier eine zu große Ausdehnung, um größenquantisierte Zustände aufzuweisen [189, 190].

Um den Einfluss der Feldstärke zu untersuchen, wurde die Gatespannung zwischen $U_G = 0 - 1000$ V in Schritten von 100 V variiert. Dies führt unter Berücksichtigung der Vorspannung zu $\overline{E}_{tip} = \overline{\beta}(U_G - U_0)/d = 2.3 - 32$ MV/m auf den Spitzen und $E = (U_G - U_0)/d = 46 - 640$ kV/m im flachen Bereich. Reine FE tritt hier also, auch unter Berücksichtigung etwaiger Leitungskanäle, nicht auf. Es ergibt sich die Quanteneffizienz in Abhängigkeit der Gatespannung und Photonenenergie wie Abbildung 5.9 zeigt.

Zunächst treten die gleichen vier Emissionsbereiche bei den gleichen Photonenenergien wie bei der Emission ohne Gatespannung auf. Die Peaks verschieben sich zudem nicht unter Variation der Feldstärke. Die QE steigt langsamer als $QE \propto E$, worauf später noch genauer eingegangen wird. Dies bestätigt, dass es sich hierbei um diskrete Anregungen innerhalb der Bandstruktur handelt. Würde es sich um Effekte der PFE oder FE handeln, wie beispielsweise resonantes Tunneln, wäre $QE \propto \exp(E)$ zu erwarten. Die Feldstärke ist hier also zu gering. Lediglich im Ein-



Abbildung 5.9: Quanteneffizienz in Abhängigkeit der Gatespannung und Photonenenergie bei $U_0 = -77.3$ V.

satzbereich des Stroms bei $W_p = 3.5$ eV könnte wie bei $U_G = 0$ V ein geringer Beitrag auftreten. Nach Abzug der Peaks gilt $QE \propto W_p^2$ auch bei $U_G > 0$ V, wie Abbildung 5.10 durch Linearfits von $QE^{1/2}(W_p)$ zeigt. Es wurde jeweils über den gleichen Energiebereich wie in Abbildung 5.5 gefittet und die Geraden auf den gesamten Bereich extrapoliert. Die Abweichung der Steigung der Messdaten bei $W_p > 5.4$ eV von der der jeweiligen Geraden tritt auch bei allen anderen Kurven auf.

Es kommt es durch die steigende Feldstärke zu weiteren Effekten. Insbesondere fällt der Anstieg der QE mit der Gatespannung auf. Dieser kann auf das Erreichen der Raumladungsgrenze (RLG) zurückgeführt werden. Über eine Reduktion der Austrittsarbeit mit steigendem Feld kann dieser Effekt dagegen nicht erklärt werden, was später noch betrachtet wird. Bei einem Abstand von $d_{KG} = 1.68$ mm



Abbildung 5.10: Wurzel der Quanteneffizienz in Abhängigkeit der Photonenenergie bei $U_G = 0$, 200, 500 und 1000 V. Von $W_p = 4.46 - 4.81$ eV (grauer Pfeil) wurde ein linearer Fit durchgeführt.

zwischen Gate und Kathode und einer aktiven Fläche von etwa $A = 10 \text{ mm}^2$ beträgt die Kapazität des Aufbaus etwa $C = \varepsilon_0 A/z \approx 5 \cdot 10^{-14} \text{ F}$. Damit ist bei einer Spannung von $U_G = 0$ V und $U_0 = -77.3$ V eine Ladung von $Q = C(U_G - U_0) \approx 4 \cdot 10^{-12} \text{ C}$ oder $2 \cdot 10^7$ Elektronen nötig, um das Feld abzuschirmen. Bei $U_G = 1000$ V sind es $Q \approx 5 \cdot 10^{-11}$ C oder $3 \cdot 10^8$ Elektronen. Werden diese gleichzeitig emittiert, liegt an der Kathode kein elektrisches Feld mehr an. Jedes weitere, emittierte Elektron erzeugt dann eine Gegenspannung. Damit wird der PE-Strom begrenzt. Auf ähnliche Weise kann die RLG-Stromdichte für den stationären Fall nach [191] hergeleitet werden. Dieser liegt vor, wenn die Pulsdauer des Lasers deutlich länger ist als die Dauer, die die Elektronen zum Passieren des Spalts zwischen Kathode und Gate benötigen. Bei einer kinetischen Energie der Elektronen von $10^2 - 10^3$ eV liegt ihre Flugzeit zwischen Kathode und Gate bei $t \approx \mathcal{O}(10^{-10})$ s, was ausreichend gering ist. Es ergibt sich

$$j_{max}^{sc} = \frac{4}{9} \varepsilon_0 \left(\frac{2e}{m_e}\right)^{1/2} \frac{(U_G - U_0)^{3/2}}{d_{KG}^2}$$
(5.1)

oder $I_{max}^{sc} = 8.3 \cdot (U_G - U_0)^{3/2} \mu \text{AV}^{-3/2}$ für die oben genannten Werte von d_{KG} und A. Daraus folgt $I_{max}^{sc} = 5.6$ und 290 mA für $U_G = 0$ und 1000 V. Im Maximum werden allerdings $I_{max}^{peak} = 2.3$ und 3.7 A für $U_G = 0$ und 1000 V bei $W_p = 5.09$ eV emittiert, wie Abbildung 5.11 zeigt.



Abbildung 5.11: Peakstrom pro Laserpuls in Abhängigkeit von U_G und W_p . Das Maximum wird für alle W_p bei $U_G = 1000$ V erreicht.

Es ist zu erkennen, dass der Strom abgesehen von den Peaks in ein Plateau bei etwa $I_{peak} = 2.5$ A läuft, was ab etwa $W_p = 5$ eV erreicht ist. Dass die QE auch darüber weiter mit W_p^2 steigt, liegt daran, dass die Pulsenergie des Lasers zu höheren Energien hin abnimmt. Wäre die Pulsenergie konstant, würde auch die QE durch den limitierten Strom in ein Plateau laufen. Die gemessene QE wird hier also nur bei $U_G < 300$ V und darüber kaum durch die RLG eingeschränkt. Dies ist in Übereinstimmung mit anderen Messungen und der Theorie zur QE, die bei Metallen üblicherweise zwischen $QE = 10^{-5} - 10^{-4}$ liegt [52, 91, 93, 192–194]. Lediglich im Inneren des gaußförmigen Laserspots dürfte eine Abweichung auftreten. Eine Extrapolation der Messdaten auf Oberflächenfeldstärken in Beschleunigern ist also nicht sinnvoll. Bisher ist die Raumladung dort auch eher ein Problem bei der transversalen Emittanz als bei der Limitierung des Maximalstroms [139].

Das Uberschreiten der theoretischen RLG bei niedrigen U_G wird auf die folgenden Faktoren zurückgeführt. Bei der Herleitung von Gleichung 5.1 wurde die Annahme gemacht, dass der Emissionsstrom verschwindet, wenn die emittierte Ladung ausreicht, um das elektrische Feld des Gates abzuschirmen. Dies trifft praktisch jedoch nicht vollständig zu, da durch die Geometrie des Gates und dessen Halterung auch außerhalb des Spalts ein elektrisches Feld anliegt, was die Elektronen von der Kathode abzieht. Zusätzlich treten in diesem Bereich Randeffekte auf, die bei den idealisierten Bedingungen nicht berücksichtigt wurden. Folglich gilt das Limit also nur im inneren Bereich des Elektrodenspalts streng, zum Rand hin tritt die Begrenzung verlangsamt ein. Im vorliegenden Fall ist die theoretische RLG zwischen einem Faktor 410 bei $U_G = 0$ V und 13 bei $U_G = 1000$ V überschritten. Bei niedrigen U_G sollte also auch das weiche Limit im Randbereich erreicht sein und damit I_{peak} ähnlich zu Gleichung 5.1 steigen. Bei höheren U_G scheint die reale RLG noch nicht oder nicht überall erreicht zu sein. Die Emission sollte somit dem Verlauf unterhalb der RLG folgen und damit näherungsweise in ein Plateau laufen, wie es auch beobachtet wird. $QE(U_G)$ kann im Gegensatz zu $QE(W_p) \propto W_p^2$ folglich nicht mit einem Verlauf beschrieben werden. Abbildung 5.12 zeigt für verschiedene W_p einen deutlicher Anstieg der QE zwischen $U_G = 0 - 300$ V und ein zunehmendes Abflachen der Kurve bei höheren Werten. Auch innerhalb von Peaks bei $W_p = 4.16$ und 4.88 eV zeigt sich dieses Verhalten. Dies unterstützt die Annahme, dass es sich um einen Effekt des emittierten Stroms handelt und nicht bei der Anregung bereits auftritt.

Drei weitere Mechanismen wurden ebenfalls zur Zunahme des Emissionsstroms mit der elektrischen Feldstärke in Betracht gezogen und werden im Folgenden diskutiert. Bei dieser Messung erfolgt die Emission im Wesentlichen durch PE. Dabei ist der Emissionsstrom bei konstanter Leistungsdichte des Lasers proportional zur bestrahlten Fläche. Daneben würde der Emissionsstrom durch die Schottky-Absenkung näherungsweise linear mit der Feldstärke steigen¹⁹. Dies tritt jedoch nur an den Spit-

¹⁹Die QE für photoemittierte Elektronen steigt nach Gleichung 2.12 mit $QE(W_p, \Phi - \Delta\Phi_S) \propto (W_p - (\Phi - \Delta\Phi_S))^2$. Für $\Delta\Phi_S = aE^{1/2}$ aus Gleichung 2.29 folgt $QE \propto 2(W_p - \Phi)aE^{1/2} + a^2E$ mit $a = (e^3/4\pi\varepsilon_0)^{1/2}$, also ein höchstens linearer Anstieg von QE(E).



Abbildung 5.12: Quanteneffizienz in Abhängigkeit der Gatespannung bei verschiedenen Photonenenergien. Die gemessenen Punkte entsprechen Schnitten durch den QE-Plot aus Abbildung 5.9. Bei $W_p = 4.16$ und 4.88 eV verläuft der Schnitt jeweils durch einen Peak in der QE.

zen auf. Deren Flächen sind bei dieser Kathode jedoch viel kleiner als die gesamte bestrahlte Fläche, die den Strom dominiert. Der Einfluss der Schottky-Absenkung ist daher hier minimal. Dies verdeutlicht auch $I_{Kath}(W_p)$ in dem Energiebereich, in dem die Emission einsetzt. Dieser ist in Abbildung 5.13 für verschiedene Gatespannungen gezeigt. Für alle U_G kann ab $W_p = 3.5$ eV ein Strom oberhalb des Offsets detektiert werden, darunter jedoch nicht. Eine Reduktion der Austrittsarbeit durch die Gatespannung liegt also unterhalb dessen, was durch die Schrittweite von hier $\Delta W_p = 17$ meV und die Messfehler im Strom festgestellt werden kann. PFE kann hier zwar ebenfalls auftreten, liegt jedoch ebenfalls unter der Messgrenze. Für ein eindeutiges Auftreten hätte die Feldstärke bis an den Bereich der FE gesteigert werden müssen.



Abbildung 5.13: Rohdaten des Kathodenstroms in Abhängigkeit der Photonenenergie für verschiedene Gatespannungen. Für alle anderen Auswertungen wurde der Offset von etwa -50 pA abgezogen. Der Abstand der Messpunkte von etwa 17 meV in diesem Bereich ergibt sich aus den gewählten Messschritten des Lasers von $\Delta \lambda = 2$ nm.

Die durch die Verunreinigungen wie Adsorbate auf der Oberfläche erzeugten Dipolmomente variieren die Austrittsarbeit wie in Kapitel 2.1.4 beschrieben. Auch ohne Gatespannung wurde eine Reduktion der Austrittsarbeit durch die Beschichtung festgestellt. Das erzeugte Dipolmoment zeigt also von der Oberfläche weg. Das durch die Gatespannung erzeugte elektrische Feld zeigt in die gleiche Richtung. Die Ladungstrennung und damit die Reduktion der Austrittsarbeit kann hierdurch also verstärkt werden. Das induzierte Dipolmoment beträgt $\mu_{ind}(E) = \alpha E$, wobei $\alpha \approx \mathcal{O}(10^{-40}) \text{ Asm}^2 \text{V}^{-1}$ für polare Moleküle gilt. Mit einem elektrischen Feld von $E = (U_G - U_0)/d = 0.64 \text{ MV/m}$ wie es im flachen Bereich der Kathode bei $U_G = 1000 \text{ V}$ anliegt ergibt sich $\mu_{ind} = 6.3 \cdot 10^{-35} \text{ Asm}$. Das permanente Dipolmoment polarer Moluküle liegt jedoch bei $\mu_0 \approx \mathcal{O}(10^{-31}) \text{ Asm}^2 \text{V}^{-1}$. Das auf der Oberfläche erzeugte Dipolmoment durch die Beschichtung liegt etwa im gleichen Bereich und ist damit deutlich größer als das induzierte. Da das Dipolmoment proportional zur Änderung der Austrittsarbeit ist, ist auch hier nur ein geringer Einfluss zu erwarten.

Auf ihrem Weg zur Oberfläche stoßen einige angeregte Elektronen inelastisch und können die Kathode dann nicht verlassen. Nach dem Drei-Stufen-Modell senkt dies die QE. Bei metallischen Leitern ändert ein angelegtes elektrisches Feld diese Abnahme nicht, da es nicht in die Kathode eindringen kann. In den nichtleitenden Teil der Beschichtung kann es dies jedoch schon. Bei einer Schichtdicke von $d_S = 5$ nm und E=640 kV/m ergibt sich ein Potentialabfall von U = 3.2 mV. Die Dicke kann aus dem Au-Signal im XP-Spektrum abgeschätzt werden und entspricht etwa der mittleren freien Weglänge der Elektronen bei den auftretenden Energien. Ein Lawineneffekt zur Stromverstärkung kann hier also ausgeschlossen werden. Der Elektronenimpuls am X-Punkt in der Brillouin-Zone beträgt für Gold $\hbar k = \hbar \pi / a^{Au}_{[100]} = 5 \cdot 10^{-6}$ eVs/m mit $a^{Au}_{[100]} = 406$ pm. Näherungsweise haben sie auch diesen Impuls nach Übergang in die Schicht. Dieser entspricht einer kinetischen Energie von $E_{kin} = \hbar^2 k^2/2m = 2.2$ eV unter Annahme der Dispersionsrelation freier Elektronen und ihrer Ruhemasse. Für Elektronen mit einem Impuls von $1\cdot 10^{-6}$ eVs/m, wie er näher am $\Gamma\text{-Punkt}$ oder in Richtungen mit höheren Miller-Indizes auftritt, beträgt sie nur noch $E_{kin} = 88$ meV. Für Elektronen mit hohem Impuls verlängert das Potential über der Schicht die mittlere freie Weglänge also kaum. Somit steigt die QE dann durch diesen Effekt auch nicht. Je geringer der Impuls der Elektronen nach Übergang vom Gold in die Schicht aber ist, desto größer kann der Einfluss dieses Effekts auf den Emissionsstrom werden. Alle drei der oben diskutierten Effekte haben jedoch einen deutlich zu geringen Einfluss und können so nur einen geringen Zuwachs erklären.

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein UHV-System zur Untersuchung der photoinduzierten Feldemission entworfen, aufgebaut und in Betrieb genommen. Es wurde eine Analysekammer mit Triodenanordnung aus Kathode, Gate und hemisphärischem Sektoranalysator zur Spektroskopie der emittierten Elektronen bei Feldstärken von bis zu 400 MV/m verwendet. Des Weiteren sind hiermit die üblichen Methoden zur Charakterisierung der Feldemission wie die Aufnahme von FN-Kurven möglich. Zur Beleuchtung der Kathoden stehen ein Dauerstrahllaser mit einer Leistung von 100 mW bei einer Photonenenergie von 2.33 eV sowie ein gepulster OPO-Laser zur Verfügung. Letzterer konnte neben diversen weiteren Bauteilen zur Verbesserung der Anlage im Rahmen eines BMBF-Projekts angeschafft werden. Er ist im Energiebereich von 0.54-5.9 eV kontinuierlich durchstimmbar und ermöglicht damit die Untersuchung von schwachen Anregungsprozessen bis hin zur Photoemission der Elektronen aus der Kathode. Zusammen mit dem Elektronenspektrometer stehen damit zwei verschiedene spektroskopische Methoden zur Untersuchung der PFE zur Verfügung. Leider lassen sie sich bisher nicht in Kombination nutzen, da der HSA nur für die Aufnahme von kontinuierlichen Emissionsprozessen geeignet ist. Der Umbau auf ein neues Spektrometer, mit dem dies möglich ist, wird jedoch aktuell umgesetzt. Das Einschleusen von Kathoden und Gates in die Analysekammer und die dortige Manipulation sind möglich, ohne das Vakuum zu brechen. Hierzu wurde eine Schleusenkammer installiert, die zudem noch zum Ionenätzen für die Reinigung der Kathodenoberflächen verwendet werden kann. Sie wurde ebenfalls vollständig selbst konstruiert und den übrigen Gegebenheiten angepasst.

Zur Steuerung und Datenaufnahme des Systems wurde eine Software in Visual C# unter Windows 7 programmiert, die die Kommunikation mit den diversen elektronischen Geräten ermöglicht. Hiermit werden alle zu einer Messung relevanten Geräte, wie der OPO-Laser, das Spektrometer, die Hochspannungsversorgung des Gates sowie das Amperemeter des Kathodenstroms überwacht. Die verschiedenen Messdaten werden in Echtzeit geplottet und ermöglichen so eine komfortable Bedienung der Anlage. Einiger Aufwand wurde zudem in die Reduzierung von Messfehlern und die Verbesserung der Anlage investiert, um die Datenqualität und das Verständnis der Anlage zu verbessern. Hierbei konnte jeweils eine Bachelor-, Mastersowie eine Diplomarbeit eingebunden werden [154,163,165]. Zudem wurden viele der benötigten Routinen automatisiert, um die vielseitige Bedienung der Anlage zu vereinfachen.

Nach dem Aufbau der Anlage folgten Funktionstests sowie ihre Charakterisierung anhand von Kathoden aus W-Nadeln sowie CNTs. Mit Hilfe der Elektronenspektren konnte die Temperatur einer W-Nadel in Abhängigkeit von ihrem Emissionsstrom bestimmt werden. Zu hohen Strömen hin flacht der Anstieg der Temperatur zunehmend ab, wie es durch das Stefan-Boltzmann-Gesetz zu erwarten ist. Durch die Flankensteilheit der Fermi-Kante im Spektrum konnte die Auflösung des Spektrometers zu etwa 50 meV bestimmt werden. Dies kann als ausreichend betrachtet werden, um den Energiebereich zwischen Fermi- und Vakuumniveau zu spektroskopieren. Zudem liegt die thermische Verbreiterung der emittierten Elektronen in diesem Bereich, so dass eine bessere Auflösung ohne Kühlung der Kathode nicht nötig ist. Die Austrittsarbeit einer CNT-Kathode konnte durch die Messung eines Feldemissionsspektrums und der zugehörigen FN-Kurve zu $\Phi_{CNT} = 4.86 \pm 0.5$ eV bestimmt werden, was in Übereinstimmung mit der Literatur ist. Der Fehler von etwa 10 % ist jedoch vergleichsweise hoch, was auf das intrinsische Rauschen des FE-Stroms dieser Kathode zurückgeführt werden konnte.

Erste Ergebnisse zur PFE unter Laserbestrahlung konnten anhand der integralen und energieaufgelösten Emissionseigenschaften von strukturierten, p-dotierten Siliziumkathoden gewonnen werden. Diese wurden in der Gruppe von Prof. Schreiner in Kooperation mit der Hochschule Regensburg für die Anwendung in integrierten Vakuumsensoren hergestellt [33]. Zunächst konnte der charakteristische Verlauf der Strom-Spannungskurve einer p-halbleitenden Kathode an einer einzelnen Si-Spitze bestätigt werden. Selbiger Verlauf des gesamten Patches weist jedoch eine starke Verbreiterung der jeweiligen Emissionsbereiche auf, so dass das Plateau im Sättigungsbereich nur noch schwer zu erkennen ist. Hier konnte eine Inhomogenität im FE-Verhalten der einzelnen Spitzen festgestellt werden. Durch ihre Überlagerung zum Gesamtstrom weicht das Plateau stark auf. Da gerade dies für technische Anwendungen interessant ist, ist hier eine Verbesserung im Herstellungsprozess sowie in der späteren Handhabung der Kathoden notwendig. Im Folgenden wurde in den Spektren eine elektrostatische Aufladung der Spitzen je nach Emissionsstrom festgestellt. Diese konnte auf die unterschiedliche elektrische Leitfähigkeit des p-dotierten Si in den drei Emissionsbereichen zurückgeführt werden. Es konnte eine Variation des Widerstands um zwei Größenordnungen von 8 M Ω im Sättigungsbereich auf 80 k Ω im Lawinenbereich bestimmt werden. Dieses Emissionsverhalten war bislang nicht bekannt. Der beobachtete Spannungsabfall über den Spitzen hat bei Gatespannungen im kV-Bereich keine relevanten Auswirkungen auf die Emission. Wird bei der Herstellung jedoch zusätzlich eine Gateelektrode aufgebracht, genügt bei dem Kathoden-Gate-Abstand von dann wenigen Mikrometern eine Gatespannung von einigen 10 V zur Emission. Dabei hätte eine Aufladung von einigen Volt einen erheblichen Einfluss und müsste berücksichtigt werden.

Unter Beleuchtung mit dem Dauerstrichlaser konnte eine Reduktion der Aufladung um 20-50 % bestimmt werden. Ein systematisches Verhalten je nach Emissionsbereich konnte nicht festgestellt werden, was auf die genannten Inhomogenitäten zurückgeführt wurde. Anhand der Spektren konnten nach einer Aufladungskorrektur die durch die durch Photoabsorption besetzten Zustände identifiziert werden. Diese liegen an der unteren Leitungsbandkante und damit im gleichen Bereich, aus dem auch die Elektronen ohne Bestrahlung stammen. Das Zustandekommen konnte im Wesentlichen auf zwei indirekte Anregungsprozesse eingeschränkt werden. Es ist eine Anregung innerhalb der Bandstruktur von L nach X, sowie eine von Γ nach L mit anschließender Relaxation nach X möglich. In beiden Fällen erfolgt die Emission in der Richtung der Kristallorientierung der Kathode, was auf die starke Richtungsabhängigkeit des Tunnelprozesses zurückgeführt wird. Bei dem durch die Beleuchtung erzeugten Strom handelt es sich also um PFE aus relaxierten Zuständen. Für zukünftige Anwendungen, auch in Beschleunigern, sollte eine geeignete Kombination aus Kristallorientierung und Laserenergie gewählt werden. Idealerweise sollte dann ein direkter Übergang aus und in van-Hove-Singularitäten oder andere Punkte hoher Zustandsdichte gewählt werden, bei dem die Anregung in der k-Richtung senkrecht zur Oberfläche stattfindet und der Endzustand möglichst hoch über dem Fermi-Niveau liegt. Letzteres ist wichtig, wenn die Emission aus dem angeregten Zustand erfolgen soll. Für die Bestrahlung einer Si-Kathode sollte daher je nach Orientierung ein Laser mit einer Photonenenergie von 3.4 eV für [111]- oder 4.4 eV für [100]-Orientierung gewählt werden. Der Endzustand in der [111]-Richtung liegt dabei bis zu 1 eV über dem von [100]. Die Schalteffekte des Stroms sollten dann deutlich stärker ausgeprägt sein.

An einer Au-Kathode konnte erstmalig die QE der Photoemission über einen quasikontinuierlichen Energiebereich gemessen werden. Zunächst musste die Kathode jedoch umfangreich charakterisiert werden, da sie, wie sich später herausstellte, einige Verunreinigungen auf der Oberfläche aufwies. Dabei konnte die Zusammensetzung bestimmt werden und die Dicke der vermutlich nicht vollständig geschlossenen Kontaminationsschicht zu etwa 5 nm abgeschätzt werden. Die Austrittsarbeit konnte durch die Einsatzenergie der PE mit $\Phi = 3.5$ eV gemessen werden, was auf die metallischen Verunreinigungen zurückgeführt wurde. Dies zusammen mit den unter dem SEM gefundenen Kegelstrukturen auf porösem Untergrund bot eine interessante Konfiguration für die weitere Untersuchung. Der wesentliche Teil des Stroms konnte dabei in vier Emissionsbereiche unterteilt werden. Der Hauptteil steigt, wie zu erwarten war, quadratisch mit der Photonenenergie und entspricht im Verhalten dem Beitrag des freien Elektronengases. Zu diesem Untergrund kommen zwei Bereiche zwischen $W_p = 3.6 - 4.25$ eV und $W_p = 4.8 - 5.3$ eV mit deutlich ausgeprägten Peaks hinzu. Mögliche Übergänge konnten in der Bandstruktur identifiziert werden. Oberhalb von $W_p = 5.3$ eV kommt es zu einem verstärkten Anstieg des Stroms. Bei der gemessenen Austrittsarbeit werden mit diesen Photonenenergien die d-Bänder des Au zugänglich. Durch ihre deutlich höhere Zustandsdichte im Vergleich zu den darüberliegenden s-artigen Bändern lässt sich der beobachtete Zuwachs erklären. Alternativ ist es möglich, dass der zusätzliche Strom aus Bereichen der Kathode stammt, die keine Verunreinigung aufweisen und daher erst oberhalb von $\Phi_{Au} = 5.3$ eV emittieren. Dies ließe sich nur durch Spektren der emittierten Elektronen unterscheiden. Im Bereich von $W_p = 3.5$ eV ist es möglich, dass Schottky-induzierte PE oder PFE zum Strom beiträgt.

Zur Untersuchung der QE mit steigender elektrischer Feldstärke an der Kathode musste zunächst die Feldüberhöhung bestimmt werden. Hierbei ergab das übliche Vorgehen über die Steigung des FN-Plots keine sinnvollen Werte, da die Inhomogenität der Emitter zu hoch war. Zudem lag hier unorthodoxe FE vor, da die emittierende Fläche der Kathode größer als der durch das Gate erzeugte homogene Bereich des elektrischen Felds war. Durch FEM-Simulationen konnte die Feldüberhöhung der Kegelstrukturen mit $\beta = 50 - 100$ abgeschätzt werden. Zusätzlich dazu sind durch das MIV-Modell Leitungskanäle in der Verunreinigungsschicht zu erwarten, die die Feldüberhöhung zusätzlich steigern. Die Gatespannung wurde dann zwischen $U_G = 0 - 1000$ V variiert, was Feldstärken von E = 2.3 - 32 MV/m auf den Spit-

zen und E = 46 - 640 kV/m im flachen Bereich, beides ohne Berücksichtigung der Leitungskanäle, entspricht. Reine FE war hier also nicht zu erwarten. Die ohne Gatespannung beobachteten vier Emissionsbereiche in der QE traten unabhängig von der Feldstärke bei den gleichen Photonenenergien auf, was im Einklang mit reiner PE ist. Bei der (P)FE wäre durch die Schottky-Absenkung ein Mischen von E- und W_p -Abhängigkeit zu erwarten. Daneben kam es zu einem Anstieg der QE mit steigender Feldstärke. Der zunächst lineare Anstieg verläuft ab $U_G > 300$ V zunehmend flacher. Es wurden verschiedene Mechanismen zur Erklärung des Verlaufs herangezogen, wovon sich das Erreichen der Raumladungsgrenze auf Teilen der Kathodenoberfläche als der dominierende Faktor herausstellte. Insbesondere bei geringen Feldstärken begrenzt dies die Emission, so dass der Strom hier mit steigender Feldstärke zunächst noch wächst. Oberhalb von $U_G > 300$ V flacht dieser Anstieg zunehmend ab, da der emittierte Strom nicht mehr ausreicht, um das hier höhere elektrische Feld abzuschirmen. Der Verlauf nähert sich dann dem für reine PE zu erwartenden Verhalten an, bei dem ohne Raumladungsbegrenzung kein oder nur ein sehr geringer Anstieg der QE mit der Feldstärke auftritt. Hier erreicht die QE dann auch die für Gold in der Literatur bekannten Werte und im Maximum $QE = 5.35 \cdot 10^{-5}$ bei $W_p = 5.90$ eV. Das Verhalten der QE in Abhängigkeit der Feldstärke bestätigt ebenfalls, dass es sich hier im Wesentlichen um reine PE handelt, da bei der (P)FE ein exponentieller Anstieg zu erwarten wäre. Um PFE eindeutig zu messen, hätte die Feldstärke bis an den Bereich der FE gesteigert werden müssen. Für zukünftige Messungen wäre eine $QE(W_p, E)$ -Karte interessant, die von reiner PE über PFE bis zur FE reicht. Daraus sollte einiges über das jeweiligen Auftreten geschlossen werden können. Die Bestimmung der QE mit einem durchstimmbaren Laser hat sich hier als sehr effektiv erwiesen und kann für die zukünftige Auswahl von Beschleunigerkathoden und zugehörigem Laser nur empfohlen werden. Im Peak konnte so ein Anstieg um einen Faktor 5.8 bei resonanten Anregungen gegenüber dem Untergrund aus dem Verhalten des freien Elektronengases bestimmt werden. Eine solche Steigerung wäre für Beuschleunigerkathoden ein erheblicher Gewinn, sofern ein geeigneter Laser für die

Eine solche Kombination aus durchstimmbarem Laser und Elektronenspektrometer wurde in dieser Form noch nicht zur Untersuchung der PFE verwendet. Wie gezeigt werden konnte, ist hiermit eine Reihe von Experimenten möglich, die zu einem tieferen Verständnis der PFE beitragen können. Ein zusätzlicher Informa-

nötige Photonenenergie zugänglich ist.

tionsgewinn ist mit dem geplanten Ausbau der Anlage mit einem neuen Elektronenspektrometer und einigen weiteren Verbesserungen zu erwarten. Damit lassen sich dann auch die mit OPO-Laser angeregten Elektronen spektroskopieren, woraus neue Informationen über den Anregungs- und Relaxationsmechanismus gewonnen werden können. Zudem lassen sich eine Reihe weiterer, interessanter Experimente, wie beispielsweise das in Kapitel 2.4 genannte Tunneln aus der Bandlücke, durchführen. Allerdings ist zunächst eine Verbesserung bei der Oberflächenreinheit der Proben anzustreben, wie sich insbesondere bei der Au-Kathode herausgestellt hat. Hier sollte die Installation eines Laminar-Flow-Systems vor der Schleusenkammer sowie eine standardmäßige Reinigung der Kathodenoberfläche von Adsorbaten mit der Ionenquelle einen deutlichen Gewinn bringen. Auch ein Ausheizen auf einem überarbeiteten Kathodenhalter in der Analysekammer bei dort besserem Vakuum, wäre eine Möglichkeit. Ein Auftreten der PFE konnte in dieser Arbeit nur bei den Untersuchungen der Si-Kathode parallel zur FE festgestellt werden. Bei der Au-Kathode handelte es sich vornehmlich um PE. Dies zeigt die enge Verwandtschaft der drei Prozesse und den engen Bereich, in dem ein alleiniges Auftreten der PFE im Übergangsbereich zwischen PE und FE stattfindet.

Literaturverzeichnis

- [1] R. Neutze et al., Nature 406, 752 (2000).
- [2] H. Wabnitz et al., Nature 420, 482 (2002).
- [3] B.J. Siwick et al., Science 302, 1382 (2003).
- [4] R. Neutze et al., Rad. Phys. Chem. 71, 905 (2004).
- [5] B.J. Claessens et al., Phys. Rev. Lett. 95, 164801 (2005).
- [6] H.N. Chapman et al., Nature Physics 2, 839 (2006).
- [7] W. Ackermann et al., Nature Photonics 1, 336 (2007).
- [8] T. Shintake et al., Nature Photonics 2, 555 (2008).
- [9] K. Nakajima, Nature Physics 4, 92 (2008).
- [10] G. Lambert et al, Nature Photonics 4, 296 (2008).
- [11] P. Emma et al., Nature Photonics 4, 641 (2010).
- [12] H. Tanaka et al., Nature Photonics 6, 540 (2012).
- [13] C.A. Brau et al., Synchrotron Radiation News 25(1), 20 (2012).
- [14] P. Piot et al., AIP Conference Proceedings 1507, 734 (2012).
- [15] J.M. Wachtel, J. Appl. Phys. 50, 49 (1979).
- [16] R.P. Leavitt et al., Appl. Phys. Lett. 35, 363 (1979).
- [17] R. Bonifacio et al., Phys. Rev. Lett. 73, 70 (1994).
- [18] Z. Huang, K.J. Kim, Phys. Rev. ST Accel. Beams 10, 034801 (2007).
- [19] S.V. Milton et al., Science 292, 2037 (2001).

- [20] L.D. Landau, E.M. Lifschitz, Lehrbuch der theoretischen Physik, 1, Mechanik, Akademie Verlag (2007).
- [21] H.P. Freund, A.K. Ganguly, Phys. Rev. A 34, 1242 (1986).
- [22] W. Wei et al., Appl. Phys. Lett. 89, 203112 (2006).
- [23] B.C. Yao et al., Microsc. Microanal. 13 S2, 586 (2007).
- [24] M.M. El-Gomati et al., Microsc. Microanal. 18 S2, 1208 (2012).
- [25] T. van Oudheusden et al., J. Appl. Phys. 102, 093501 (2007).
- [26] J. Kim et al., Proc. SPIE 8668, Medical Imaging 2013: Physics of Medical Imaging, 866861 (2013).
- [27] B.C. Smith et al., Proc. 24th Int. Vac. Nanoelectr. Conf., 111 (2011).
- [28] Y.Z. Lee et al., Nucl. Instrum. Meth. A 648, 281 (2011).
- [29] W.I. Milne et al., J. Vac. Sci. Technol. B 24, 345 (2006).
- [30] H.W. Koops et al., Proc. 24th Int. Vac. Nanoelectr. Conf., 187 (2011).
- [31] M. Nanba et al., J. Vac. Technol. B 28, 96 (2010).
- [32] T. Grzebyk, A. Gorecka-Drzazga, J. Micromech. Microeng. 23, 015007 (2013).
- [33] R. Schreiner et al., Proc. IVNC11, 19 (2011).
- [34] Z. Yongai et al., Journal of Semiconductors 34, 064005 (2013).
- [35] C. Vieu et al., Appl. Surf. Sci. 164, 111 (2000).
- [36] M.J. van Bruggen et al., Microelectronic Engineering 83, 771 (2006).
- [37] W.F. van Dorp et al., Microelectronic Engineering 83, 1468 (2006).
- [38] G.N. Fursey, Appl. Surf. Sci. 215, 113 (2003).
- [39] A.Arnold et al., Nucl. Inst. Meth. A 593, 57 (2008).
- [40] F. Stephan, Int. J. Mod. Phys. A 22, 3957 (2007).
- [41] K. Abrahamyan et al., Nucl. Inst. Meth. A 528, 360 (2004).
- [42] Y. Naoto et al., J. Appl. Phys. 103, 064905 (2008).
- [43] T. Rao et al., Nucl. Inst. Meth. A 557, 124 (2006).
- [44] C.K. Sinclair et al., Phys. Rev. ST Accel. Beams 10, 023501 (2007).
- [45] Y.A. Mamaev et al., Appl. Phys. Lett. 93, 081114 (2008).
- [46] I.V. Bazarov et al., J. Appl. Phys. 103, 054901 (2008).
- [47] D. Sertore et al., Nucl. Inst. Meth. A 445, 422 (2000).
- [48] S. Lederer et al., Proc. IPAC10, 2155 (2010).
- [49] I.V. Bazarov et al., Phys. Rev. Lett. 102, 104801 (2009).
- [50] W.E. Spicer, F. Wooten, Proc. IEEE 51(8), 1119 (1963).
- [51] J.B. Rosenzweig et al., Nucl. Inst. Meth. A 593, 39 (2008).
- [52] D.H. Dowell et al., Nucl. Inst. Meth. A 622, 685 (2010).
- [53] W.A. Barletta et al., Nucl. Inst. Meth. A 618, 69 (2010).
- [54] C.P. Hauri et al., Phys. Rev. Lett. 104, 234802 (2010).
- [55] R. Ganter et al., Phys. Rev. Lett. 100, 064801 (2008).
- [56] K.L. Jensen et al., J. Appl. Phys. 107, 014903 (2010).
- [57] J.D. Jarvis et al., J. Appl. Phys. 109, 094322 (2010).
- [58] W. Qian et al., J. Appl. Phys. 73, 7041 (1993).
- [59] N. de Jonge et al., Phys. Rev. Lett. 94, 186807 (2005).
- [60] J.W. Gadzuk, E.W. Plummer, Rev. Mod. Phys. 45, 487 (1973).
- [61] M.J.G. Lee, Phys. Rev. Lett. 30, 1193 (1973).

- [62] H. Yanagisawa et al., Phys. Rev. Lett. 103, 257603 (2009).
- [63] H. Yanagisawa et al., Phys. Rev. B 81, 115429 (2010).
- [64] H. Yanagisawa et al., Phys. Rev. Lett. 107, 087601 (2011).
- [65] M. Krüger, M. Schenk, P. Hommelhoff, Nature 475, 78 (2011).
- [66] P. Eckle et al., Science 5 322, 1525 (2008).
- [67] B. Bornmann, Untersuchung der photoinduzierten Feldemission von Metallkathoden, Bergische Universität Wuppertal, Diplomarbeit (2008).
- [68] Bergmann, Schaefer, Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 6 Festkörper, 2. Auflage, Walter de Gruyter (2005).
- [69] H. Ibach, H. Lüth, *Festkörperphysik*, 7. Auflage, Springer (2009).
- [70] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Festkörperphysik*, Oldenbourg (2001).
- [71] M. Henzler, W. Göpel, Oberflächenphysik des Festkörpers, 2. Auflage, Teubner Studienbücher (1994).
- [72] R.C. Weast, M.J. Astle, CRC Handbook of Chemistry and Physics, 61. Auflage, CRC Press (1980/81).
- [73] T. Roman, A. Groß, Phys. Rev. Lett. 110, 156804 (2013).
- [74] T.C. Leung et al., Phys. Rev. B 68, 195408 (2003).
- [75] E. Chevallay et al., Nucl. Inst. Meth. A 340, 146 (1994).
- [76] S.H. Kong et al., Nucl. Inst. Meth. A 358, 276 (1995).
- [77] K. Flöttmann, TESLA FEL-Report, 01 (1997).
- [78] K.L. Jensen et al., J. Appl. Phys. 102, 074902 (2007).
- [79] A. Einstein, Annalen der Physik 17, 132 (1905).
- [80] H. Puff, Phys. Stat. Sol. 4, 125 (1964).
- [81] C.N. Berglund, W.E. Spicer, Phys. Rev. 136, A1030 (1964).

- [82] A.H. Sommer, Photoemissive Materials, Preparation, Properties and Uses, S. 5, 21-26, John Wiley & Sons, 1968.
- [83] J.B. Pendry, Surf. Sci. 57, 679 (1976).
- [84] C.O. Almbladh, L. Hedin, in: Handbook on Synchrotron Radiation, Vol. 1a, p. 607, North-Holland, Amsterdam (1983).
- [85] W. Schattke, Prog. Surf. Sci. 54, 211 (1997).
- [86] E.W. Plummer, W. Eberhardt, Adv. Chem. Phys. 49, 533 (1982).
- [87] B. Feuerbacher, B. Fitton, R.F. Willis, Photoemission and the Electronic Properties of Surfaces, John Wiley & Sons (1978).
- [88] R. Paucksch, Ein- und Zwei-Photon-Photoemissionsspektroskopie von Oberflächenzuständen an Ni(111), Gesamthochschule Essen, Dissertation (2000).
- [89] M.P. Seah, W.A. Dench, Surf. and Int. Anal. 1, 2 (1979).
- [90] I. Campillo et al., Phys. Rev. B 61, 13484 (2000).
- [91] Datenbank der Cornell University zu Kathodeneigenschaften, http:// photocathodes.chess.cornell.edu/wiki/Cathode_properties, abgerufen am 6.5.2014.
- [92] M. Potthoff, J. Lachnitt, W. Nolting, J. Braun, Phys. Stat. Sol. b 203, 441 (1997).
- [93] D.H. Dowell, J.F. Schmerge, Phys. Rev. ST Accel. Beams 12, 074201 (2009).
- [94] K. Wille, Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen, S. 89ff., B.G. Teubner, Stuttgart, 1996.
- [95] K.T. Mcdonald, D.P. Russell, in Frontiers of Particle Beams; Observation, Diagnosis and Correction, S. 12ff., Springer (1989).
- [96] M.J. Rhee, Phys. Fluids B 4, 1674, (1992).

- [97] L.D. Landau, E.M. Lifschitz, Lehrbuch der Theoretischen Physik IV, Quantenelektrodynamik, 7. Auflage, Akademie Verlag (1991).
- [98] C. Brosseau, Fundamentals of Polarized Light, John Wiley & Sons (1998).
- [99] H. Paul, Photonen Eine Einführung in die Quantenoptik, B.G. Teubner (1995).
- [100] W. Kuhn, J. Strnad, Quantenfeldtheorie Photonen und ihre Deutung, Vieweg (1995).
- [101] E. Zeidler, *Quantum Field Theory II Quantum Electrodynamics*, Springer (2000).
- [102] M. Srednicki, *Quantum Field Theory*, 5. Auflage, Cambridge (2011).
- [103] L. Landau, R. Peirls, Z. Phys. 69, 56 (1931).
- [104] A.M. Smith, P.M. Norris, Appl. Phys. Lett. 78, 1240 (2001).
- [105] P.E. Hopkins, J. Heat Transfer 132, 122402 (2010).
- [106] W. Eberhardt, F. J. Himpsel, Phys. Rev. B 21, 5572 (1980).
- [107] M. Tinkham, Group Theory and Quantum Mechanics, Dover Publications (2003).
- [108] M. Grundmann, The Physics of Semiconductors, 2. Auflage, Springer, (2010).
- [109] G.E. Jellison, F.J. Modine, J. Appl. Phys. 76, 3758 (1994).
- [110] http://www.copper.org/resources/properties/cryogenic, abgerufen am 20.5.2014.
- [111] M.E. Law et al., IEEE El. Dev. Lett. 12(8), 401 (1991).
- [112] W. Shockley, W.T. Read jr., Phys. Rev. 87, 835 (1952).
- [113] D.T. Pierce, F. Meier, Phys. Rev. B 13, 5484 (1976).
- [114] E. Dietz, H. Becker, U. Gerhardt, Phys. Rev. Lett. 36, 1397 (1976).

- [115] H. Becker et al., Phys. Rev. B 12, 2084 (1985).
- [116] I. Zutic et al., Rev. Mod. Phys. 76, 323 (2004).
- [117] B. Endres, Spin injection into GaAs, 1. Auflage, Universitätsverlag Regensburg (2013).
- [118] H.P. Oepen, K. Hünlich, J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. 56, 496 (1986).
- [119] M. Kuwahara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 45, 6245 (2006).
- [120] G. Baum et al., Appl. Phys. 14, 149 (1977).
- [121] R.H. Fowler, L.W. Nordheim, Proc. Royal Soc. A119, 173 (1928).
- [122] L.W. Nordheim, Proc. Royal Soc. A121, 626 (1928).
- [123] L.W. Nordheim, Z. Physik 30, 177 (1929).
- [124] R.G. Forbes, J.H.B. Deane, Proc. R. Soc. A 463, 2907 (2007).
- [125] G. Fursey, Field Emission in Vacuum Microelectronics, Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York (2005).
- [126] R.G. Forbes, Appl. Phys. Lett. 89, 113122 (2006).
- [127] A. Navitski, Scanning field emission investigations of structured CNT and MNW cathodes, niobium surfaces and photocathodes, Bergische Universität Wuppertal, Dissertation (2010).
- [128] S. Podenok et al., Nano 1, 87 (2006).
- [129] E. I. Givargizov et al., Appl. Surf. Sci. 87, 24 (1995).
- [130] R.G. Forbes, Proc. R. Soc. A 469, 1471 (2007).
- [131] K.X. Liu et al., J. Appl. Phys. 99, 034502 (2006).
- [132] R. Ganter et al., Nucl. Inst. Meth. A 565, 423 (2006).
- [133] O. Guillot-Noel et al., Phys. Rev. B 60, 1668 (1999).
- [134] I.I. Beilis, IEEE Trans. Plasma Sci. 29, 657 (2001).

- [135] E.A. Litvinov, Sov. Phys. Usp. 26, 138 (1983).
- [136] G.A. Mesyats, D.I. Proskurovskii, Pulsed Electrical Discharge in Vacuum, Springer, Berlin (1989).
- [137] G. Fursey, IEEE Trans. Elect. Insul. 20, 659 (1985).
- [138] K.L. Jensen et al., J. Vac. Sci. Technol. B 23, 621 (2005).
- [139] XFEL Technical Design Report, Deutsches Elektronen Synchrotron, Hamburg (2006).
- [140] D.T. Palmer et al., Particle Accelerator Conference, Vancouver, B.C., Canada, SLAC-PUB-7422 (1997).
- [141] R. Ganter et al., J. Vac. Sci. Technol. B 24, 974 (2006).
- [142] M. Paraliev et al., IEEE Pulsed Power Conference, 898 (2011).
- [143] M. Dehler et al., J. Vac. Sci. Technol. B 24, 892 (2006).
- [144] P. Hommelhoff et al., Phys. Rev. Lett. 96, 077401 (2006).
- [145] P. Hommelhoff et al., Phys. Rev. Lett. 97, 247402 (2006).
- [146] P. Hommelhoff et al., Ultramicroscopy 109, 423 (2009).
- [147] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP 20, 1307 (1965).
- [148] G. L. Yudin, M. Y. Ivanov, Phys. Rev. A 63, 033404 (2001).
- [149] M. Büttiker, R. Landauer, Phys. Rev. Lett. 49, 1739 (1982).
- [150] A. Michalke, Photokathoden in supraleitenden Resonatoren, Universität Wuppertal, Dissertation (1992).
- [151] Verbundprojekt FSP 301 des Bundesministeriums für Bildung und Forschung: FLASH: Beschleuniger-basierte Erzeugung kurzer Pulse, Teilprojekt 05K10PXA: Untersuchung der photoinduzierten Feldemission für Elektronenquellen hoher Brillianz, Förderperiode 2010-2013.

- [152] M. Ohring, Materials science of thin films, 2. ed., Academic Press, San Diego (2002).
- [153] H. Oechsner, Appl. Phys. 8, 195 (1975).
- [154] S. Mingels, Optimierung eines Elektronenspektrometers f
 ür feldemittierte Elektronen kalter Kathoden, Bergische Universit
 ät Wuppertal, Bachelorarbeit (2010).
- [155] R.E. Imhof et al., J. Phys. E 9, 138 (1976)
- [156] T.J.M. Zouros, E.P. Benis, J. El. Spec. Rel. Phen. 125, 221 (2002).
- [157] E.P. Benis, T.J.M. Zouros, J. El. Spec. Rel. Phen. 163, 28 (2008).
- [158] E.P. Benis, T.J.M. Zouros, Nucl. Inst. Meth. A 440, 462 (2000).
- [159] T. Sagara et al., Rev. Sci. Instr. 71, 4201 (2000).
- [160] R.K. Joshi et al., J. Mater. Chem. 20, 1717 (2010).
- [161] B. Bornmann et al., Proc. IVNC10, 20 (2011).
- [162] Informationen zu COMSOL Multiphysics Modeling and Simulation Software: http://www.comsol.com, abgerufen am 11.12.2013.
- [163] S. Rutkowski Messung und Simulation von kalten Kathoden in Triodenanordnung, Bergische Universität Wuppertal, Diplomarbeit (2012).
- [164] Datenblatt zum Laser EKSPLA NT342A-SH, http://www.ekspla.com/ product/nt300-series-tunable-lasers, abgerufen am 11.12.2013.
- [165] S. Mingels, Erweiterung der Apparatur und erste Ergebnisse zur photoinduzierten Feldemission, Bergische Universität Wuppertal, Masterarbeit (2012).
- [166] Handbuch zum Laser EKSPLA NT342A-SH.
- [167] W. Demtröder, Physik in unserer Zeit 5, 137 (1973).
- [168] H. Römer, Theoretische Optik, VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim (1994).

- [169] T. Notake et al., Optics Express 20, 25850 (2012).
- [170] J. Eichler, H.J. Eichler, Laser Bauformen, Strahlführung, Anwendungen 7. Auflage, Springer 2010.
- [171] Datenblatt zu Schott Lithosil, synthetisches Quarzglas: http://itos.de/ dateien/fusedsilicia/lithotec_fused_silica_jan2009.pdf, abgerufen am 16.12.2013.
- [172] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser, 2. Auflage*, Teubner, München (2005).
- [173] A.E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, (1986).
- [174] E. Hecht, *Optik*, 4. Auflage, Oldenbourg Verlag, München (2005).
- [175] H. Kogelnik, T. Li, Appl. Optics 5, 1550 (1966).
- [176] Newport Corporation, Gaussian Beam Optics, http://www.newport. com/Gaussian-Beam-Optics/144899/1033/content.aspx, Zugriff am 16.6.2013.
- [177] Qioptiq Photonics GmbH & Co. KG, Fokussierung und Aufweitung von Laserstrahlung, http://www.linos.com/pages/mediabase/original/ fokussierung-aufweitung-von-laserstrahlung_2186.pdf, abgerufen am 16.6.2013.
- [178] E. Gamaly et al., Phys. Plasmas 9, 949 (2002).
- [179] E. Gamaly et al., Appl. Surf. Sci. 197-198, 699 (2002).
- [180] Datenblatt Advantech PCI-1716, http://downloadt.advantech.com/ ProductFile/PIS/PCI-1716/Product%20-%20Datasheet/PCI-1716_ DS20120910174521.pdf, abgerufen am 13.12.2013.
- [181] Handbuch Keithley 6485 Picoamperemeter, http://www.keithley.de/ products/dcac/sensitive/lowcurrent/?path=6485E/Documents#6, abgerufen am 13.12.2013.

- [182] Informationen zu Microsoft Visual C#: http://msdn.microsoft.com/ de-de/vstudio/hh341490.aspx, abgerufen am 13.12.2013.
- [183] F. Dams et al., Proc. IVNC11, 49 (2011).
- [184] F. Dams et al., IEEE Trans. El. Dev. 59(10), 2832 (2012).
- [185] D. Lysenkov, G. Müller, Int. J. Nanotechnology 2, 239 (2005).
- [186] D. Hecht, D. Stark, Thin Solid Films 238, 258 (1994).
- [187] N.E. Christensen, B.O. Seraphin, Phys. Rev. B 4(10), 3321 (1971).
- [188] R.V. Latham, M.S. Mousa, J. Phys. D: Appl. Phys. 19, 699 (1986).
- [189] F.K. Schulte, Surf. Sci. 55, 427 (1976).
- [190] D. Stark, P. Zwicknagl, Appl. Phys. 21, 397 (1980).
- [191] J.P. et C. Girardeau-Montaut, J. Appl. Phys. 65, 2889 (1989).
- [192] Y. Kawamura et al., Appl. Phys. Lett. 45, 307 (1984).
- [193] S.W. Downey et al., Appl. Phys. Lett. 49, 912 (1986).
- [194] A.H. Sommer, Photoemissive Materials, John Wiley & Sons, New York, (1968).

Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. Günter Müller für die Anregung zu dem Thema der Arbeit und die Möglichkeit sie in seiner Arbeitsgruppe durchführen zu können. Ebenso danke ich ihm für seine vielfältige Unterstützung während dieser Zeit, die zahlreichen Diskussionen, die maßgeblich zum Gelingen beigetragen haben sowie für den gestatteten Freiraum bei der Arbeit und die ermöglichten Konferenzteilnahmen im In- und Ausland.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Ronald Frahm für viele anregende Gespräche, die freundliche Übernahme des Koreferats und die Gastfreundschaft in seiner Arbeitsgruppe.

Ein besonderer Dank geht an Herrn Dr. Dirk Lützenkirchen-Hecht für seine unerschöpfliche Diskussionsbereitschaft, die stets angenehme Zusammenarbeit, seine Unterstützung sowie zahlreichen Anregungen und Ideen.

Stephan Mingels danke ich für die produktive und freundschaftliche Zusammenarbeit am gesamten PFES-System und die vielen Diskussionen im Rahmen unserer Arbeiten. Ich danke Jan-Christoph Gasse und Dr. Christian Markert für die freundschaftliche Zusammenarbeit im gemeinsamen Büro sowie für unsere unzähligen Diskussionen. Bei Dr. Daniel Krämer und Dr. Jan Stötzel bedanke ich mich für die gemeinsame Zeit während Studium und Promotion.

Ebenso danke ich allen anderen Kollegen für ihre großen und kleinen Beiträge zu dieser Arbeit sowie für das angenehme und produktive Arbeitsklima: Pascal Becker, Andreas Behrendt, Justus Just, Jonas Kläs, Stefan Lagotzky, Dr. Aliaksandr Navitski, Oliver Müller, Dr. Stefanie Pfleiderer, Vitali Porshyn, Jahangir Pouryamout, Jakob Schmidtke, Dr. Pavel Serbun, Sebastian Szillat, Oliver von Pohlheim, Ralph Wagner, Haiko Wilhelm und Iwona Wüster. Ein zusätzlicher Dank geht an Ralph Wagner für die Beschaffung zahlreicher Veröffentlichungen. Allen genannten danke ich zudem für die unterhaltsame Zeit und diverse Aktivitäten abseits der Arbeit. Ich danke allen Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt des Fachgruppe Physik der Bergischen Universität Wuppertal um Herrn Martin Hoppe für die Anfertigung diverser Bauteile und die Beratung in konstruktiven Fragen.

Ein weiterer Dank geht an Friedhelm Olschewski für die Betreuung im Laserstrahlenschutz.

Dem Bundesministerium für Bildung und Forschung danke ich für die großzügige finanzielle Unterstützung durch Personal-, Sach- und Reisemittel.

Abschließend danke ich meiner Familie und Freunden für ihr Verständnis und die Unterstützung während dieser Arbeit.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst habe, nur die in der Arbeit angegebenen Hilfsmittel benutzt wurden und alle wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen als solche gekennzeichnet sind. Weiterhin versichere ich, dass diese Arbeit in der gegenwärtigen Fassung noch keinem anderen Fachbereich, keiner Gesamthochschule und keiner anderen wissenschaftlichen Hochschule vorgelegen hat.

Radevormwald, Juni 2014

Benjamin Bornmann