

RUPRECHT-KARLS-UNIVERSITÄT HEIDELBERG



KIRCHHOFF-INSTITUT FÜR PHYSIK

**Fakultät für Physik und Astronomie**

**Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg**

**Diplomarbeit  
im Studiengang Physik  
vorgelegt von  
Paul Starzetz  
aus Krakau  
2000**

Vorausberechnung des IR-Transmissionsvermögens  
ultradünner Eisenfilme auf MgO(001)

Die Diplomarbeit wurde von Paul Starzetz ausgeführt am  
Kirchhoff-Institut für Physik  
unter der Betreuung von  
Frau Prof. Dr. Annemarie Pucci

Die dielektrischen Eigenschaften von ultradünnen Metallfilmen auf ionischen Kristallen wurden mit einem auf das Fe/MgO System optimierten Effektivmedienmodell untersucht. Es wurden mehrere Effektivmedienmodelle betrachtet und auf ihre Verwendbarkeit für die im Arbeitskreis Pucci untersuchten Eisenfilme auf MgO(001) geprüft. Dabei hat sich ein Gitterverfahren ergeben, das Vorteile von bereits bekannten Effektivmedienmodellen in einem vereint. Eine weitere Aufgabe war es, durch Auffinden geeigneter Parameter zu einer Anpassung von gerechneten und gemessenen IR-Transmissionsspektren von Fe auf MgO(001) zu gelangen, wobei das theoretische Verfahren für die im Experiment zugänglichen Temperaturen getestet worden ist. Das Ergebnis dieser Anstrengung sind sowohl durch Fiten bestimmte Parametrisierung der Spektren als auch dielektrische Funktionen von dünnen Fe-Filmen auf MgO(001) für den gesamten, im Experiment zugänglichen Dickenbereich von Inselwachstum über Perkolation bis zu geschlossenen Metallfilmen.

The dielectric characteristics of ultra thin metal films on ionic crystals were examined with one for the Fe/MgO system optimized effective medium model. Several models were regarded and checked for their usefulness for the iron films on magnesium oxide(001) investigated in the research group of A. Pucci. New lattice procedure resulted, which combines the advantages from already well-known effective medium models. A further task was also to adapt the developed theory for Fe-films at MgO(001) to match the experimental found values of infrared transmission by finding suitable fit parameters. The theoretical procedure was tested for the temperatures accessible in the experiment. The result of this effort are both by subspace fitting determined parameterizing of the spectra and dielectric functions of thin Fe-films on MgO(001) for the whole film thickness range from initial island growth over percolation to already closed metal films.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Das Experiment</b>	<b>7</b>
1.1	Die UHV-Apparatur . . . . .	7
1.2	FTIR–Spektroskopie . . . . .	8
1.3	Überblick über die Fe-Transmissionsspektren . . . . .	9
<b>2</b>	<b>Dielektrische Eigenschaften von Metallfilmen</b>	<b>13</b>
2.1	Klassische Drude-Theorie . . . . .	13
2.2	Anwendung für dünne Fe-Filme . . . . .	16
<b>3</b>	<b>Eisen-Insellfilme auf MgO(001)-Substrat</b>	<b>23</b>
3.1	Entstehung und Wachstum von Insellfilmen . . . . .	23
3.2	Ein einfaches Wachstumsmodell . . . . .	25
<b>4</b>	<b>Effektivmedientheorie für dünne Metallfilme</b>	<b>29</b>
4.1	Yamaguchi-Modell für isolierende Fe-Insellfilme . . . . .	30
4.2	Cohen-Modell . . . . .	38
<b>5</b>	<b>Renormierung auf dem Gitter</b>	<b>41</b>
5.1	Das Berthier-Modell . . . . .	41
5.2	Umsetzung des Berthier-Modells in C++ . . . . .	45
5.3	Berthier-Modell für das System Fe/MgO(001) . . . . .	50
<b>6</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>59</b>
6.1	Gitterrenormierung nach Berthier . . . . .	59
6.2	Zusammenfassung und Ausblick . . . . .	79
<b>A</b>	<b>Hinweise zum Umgang mit SCOUT</b>	<b>81</b>
A.1	OLE-Automation Library . . . . .	81
A.2	Tips . . . . .	82
<b>B</b>	<b>Globale Optimierung</b>	<b>85</b>
<b>C</b>	<b>Berthier-Modell in C/C++</b>	<b>89</b>
C.1	Programmaufbau . . . . .	89
C.2	Programmlisting . . . . .	91



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Der FTIR-Aufbau in der AG Pucci . . . . .	8
1.2	Experimentell bestimmtes IR-Transmissionsvermögen von Fe auf MgO bei 313K (messr05r) . . . . .	10
1.3	Experimentell bestimmtes Transmissionsvermögen von Eisenfilm auf MgO bei 430K (messr11g) . . . . .	10
1.4	IR-Transmissionsvermögen von Eisenfilm auf MgO bei 500K (messr14) . . . . .	11
1.5	Eingaben für das in SCOUT implementierte Brendel-Modell . . . . .	12
1.6	Absoluttransmission eines 9.5 mm dicken MgO-Kristalls bei Zimmertemperatur . . . . .	12
2.1	Ordal-Werte für $\epsilon_1$ und $\epsilon_2$ für bulk-Fe . . . . .	16
2.2	Verlauf von $\omega_\tau$ und $\omega_p$ für bulk-Fe nach Ordal. Für unsere Rechnungen ist nur ein kleiner Anfangsbereich bis 6000 Wellenzahlen relevant, der sich sehr gut mit dem $\gamma$ -Modell beschreiben lässt. . . . .	17
2.3	Einfluss einer klassischen Size-Korrektur auf $\epsilon_1, \epsilon_2$ für einen 10 Å dicken Fe-Film . . . . .	20
3.1	Verlauf des Wachstumsparameters $\kappa$ mit der Temperatur [PF99] . . . . .	24
3.2	Mit He-Atomstrahlstreuung bestimmter Verlauf der Inselkeimdichte $N_s$ [PF99] . . . . .	25
4.1	Verlauf des Korrekturfaktors $f - \delta$ für eine 30 Å dicke Inselnschicht bei T=313 K . . . . .	36
5.1	Renormierungsregeln des 2d Berthier-Modells . . . . .	42
5.2	Renormierung eines 128x128 Gitters bei einem Füllfaktor $\mu = 0.528$ , es ist jeweils die Grösse der beim Übergang zur nächst grösseren Schrittweite berechneten Zellen angegeben. Man sieht in den letzten Stadien des Verfahrens sehr deutlich, wie die Berthier-Regeln angewendet werden. . . . .	48
5.3	Adaptives Berthier-Modell am Beispiel der 6ten Zellkonfiguration . . . . .	52
5.4	Rechts der Vergleich des conducting mit dem non-conducting case für ein 256x256 Gitter des Füllfaktors $\mu = 0.3$ und links die durch Schwankungen der Anfangsverteilung bedingte Variation der Gitterfunktion $\epsilon_{0,0}$ . . . . .	53
5.5	Verlauf des berechneten Transmissionsvermögen für $\kappa = 0.1$ bei Renormierung mit vereinfachter Maxwell-Garnet Formel (no particle shape), wobei wir jedoch keinen Fit durchgeführt sondern $\alpha = 0.5, \beta = 1$ gesetzt haben. . . . .	54
5.6	Skaleninvarianz des Berthier-Modells am Beispiel von $\mu = 0.45, \lambda = 0.995, 256x256$ Gitter, Realteil unten für $\omega > 1000cm^{-1}$ . . . . .	56
5.7	Einfluss von $s$ auf den Verlauf der Gitterfunktion eines 5 Å dicken Fe-Filmes . . . . .	57
6.1	Durch Abtasten des Fitraumes gewonnener Verlauf der mittleren quadratischen Abweichung für 6.8 Å (links) beziehungsweise 44.9 Å (rechts) jeweils für 313 K Substrattemperatur. . . . .	61
6.2	Verlauf der mittleren quadratischen Abweichung $\sigma_{rel}$ bezogen auf die Schichtdicke für 313 K. Adaptives Modell unten. . . . .	62
6.3	Übersicht des Parameterverlaufs für die 313 K Messreihe . . . . .	64
6.4	Verlauf von $\alpha$ für 313 K (Bezier-interpoliert) . . . . .	65
6.5	Verlauf von $\beta$ für 313 K (Bezier-interpoliert) . . . . .	66

6.6	Vergleich der gerechneten und gemessenen Transmissionskurven für 313 K (Experiment durchgeführt) . . . . .	67
6.7	Übersicht über die Fitparameter der 430 K Messreihe. . . . .	68
6.8	Für die Aufdampftemperatur von 430 K finden wir keinen deutlichen Abflacheffekt nach der Perkolationsschwelle im Verlauf des Korrekturparameters $\beta$ . . . . .	69
6.9	Auch für 430 K erreichen wir eine rel. gute spektrale Übereinstimmung. Der Knick um $3500\text{cm}^{-1}$ herum ist auf die in [Bar98] erwähnte 'MgO-Schulter' zurückzuführen und von messtechnischer Natur (Rechnung gestrichelt). . . . .	70
6.10	Verlauf der gerechneten dielektrischen Funktion am Beispiel der 430 K Messreihe. Der kritische Bereich wurde noch mal mit 100pt Auflösung in einem erweiterten Wellenzahlbereich errechnet. . . . .	71
6.11	Übersicht über die Dielektrizitätskonstanten für sowohl 313 K (links) als auch 500 K (rechts) Substrattemperatur. Man erkennt eine Unstetigkeit in $Re(\epsilon)$ mit zunehmender Dicke. . . . .	71
6.12	Vergleich zwischen 2 und 3 parametrischen Fits für 430 K Substrattemperatur. In der unteren Hälfte eine erneute Anpassung mit Fitwerten als Startwerte (2 parametrisch). . . . .	72
6.13	Parameteranpassung für 500 K Aufdampftemperatur. Die sehr starke Schwankung ist teilweise auf den kleinen Wert des $\kappa$ -Parameters von $\approx 0.025$ zurückzuführen. Zu sehen ist auch der Zeitverbrauch pro gefittetes Transmissionsspektrum. . . . .	73
6.14	Gerechneter Transmissionsverlauf im Vergleich zu Messung bei 500 K, Messung durchgeführt. . . . .	74
6.15	Parameteranpassung für 313 K Substrattemperatur mit einfachem Yamaguchi-Modell . . . . .	75
6.16	Parameterverlauf für 430 K (links) und 500 K (rechts) nach Anpassung mit einfachem Yamaguchi-Modell . . . . .	76
6.17	Der nach der Formel 6.4 berechnete Korrelationskoeffizient zwischen den gemessenen und gerechneten Transmissionsverläufen für alle 3 Substrattemperaturen . . . . .	78
C.1	EXCEL-Oberfläche zur Berechnung der Transmission nach Yamaguchi . . . . .	90

# Einführung

In den letzten Jahren ist durch die ständige Weiterentwicklung der Miniaturisierung ein grosses Interesse an der Untersuchung von immer kleineren Strukturen entstanden, zu denen insbesondere auch dünne Schichten und Oberflächenstrukturen zählen. Man denke z.B. an die in der Mikroelektronik benötigte Herstellung von immer kleineren elektronischen Bauelementen, für die natürlich eine Präparation von sehr dünnen Oberflächenschichten oder Schichtfolgen notwendig ist.

Weitere Einsatzgebiete der Oberflächenphysik in Verbindung mit dünnen Schichten sind beispielsweise optische Systeme, in denen speziell entwickelte Schichtsysteme zu Vermeidung von Reflexionen an Grenzflächen benötigt werden, wie das z.B. bei der Vergütung von Brillengläsern oder Linsen astronomischer Instrumente der Fall ist.

Ein anderes Beispiel für den vielfältigen Einsatz der Dünnschichtphysik ist die Entwicklung neuartiger Katalysatoren, wobei jedoch nicht die Herstellung von besonders beständigen und homogenen Flächen, sondern viel mehr eine chemisch aktive, möglichst raue Oberfläche benötigt wird. Auf diese Weise stellen auch aufgerissene, strukturierte Inselfilme einen Interessenschwerpunkt für die moderne Oberflächenforschung dar.

Dünne Schichten können mit unterschiedlichen experimentellen Verfahren erhalten werden, die wohl herausragendste ist das Aufdampfen eines bestimmten Materials auf eine Substratunterlage im Ultrahochvakuum ist.

Selbstverständlich stellt sich nicht nur die Frage nach der Präparation von bestimmten Oberflächenstrukturen mit geforderten Eigenschaften, sondern auch die Frage, inwieweit sich eine einmal hergestellte Oberflächenstruktur künftig reproduzieren lässt. Dazu kann direkt eine optische Untersuchungsmethode wie IR-Spektroskopie eingesetzt werden, doch stellt sich auch hier natürlich die Frage, ob sich eine durch Aufdampfen von immer mehr Material hergestellte Schichtenfolge nicht durch einen einfachen Parametersatz beschreiben lässt, an dem sich die Eigenschaften der Schicht erkennen und bei künftiger Reproduktion überprüfen lassen können.

Wir gehen in dieser Arbeit zuerst auf die experimentellen Grundlagen, um dann in Kapitel 2 zu einer einfachen Beschreibung von Metallfilmen zu gelangen, auf die eine Diskussion von Effektivmedienmodellen folgt, die wir später in Kapitel 5 für eine kompliziertere Beschreibung von Oberflächen auf einem diskreten Gitter be-

nützen werden. Es schliesst sich eine Diskussion der erhaltenen Ergebnisse und ein Ausdruck des für das Gitterverfahren benützten Programms an.

# Kapitel 1

## Das Experiment

### 1.1 Die UHV-Apparatur

In der AG Pucci wird eine Ultrahochvakuum-Bedampfungsapparatur betrieben, die eine in-situ Beobachtung von Wachstum und spektroskopische Untersuchung von optischen Eigenschaften dünner Metallfilme auf unterschiedlichen Substraten ermöglicht.

Der UHV-Bereich besteht im Wesentlichen aus einer Edelstahlkammer, die mit Flanschen zur Ankopplung von weiteren Komponenten zur Manipulation und Analyse von Proben versehen ist. Zur Verfügung stehen unter anderem Fe, Cu und ein Cr Ofen, die ein Bedampfen von Proben mit dem jeweiligen Metall ermöglichen. Aufgedampft wird unter anderen auf Magnesium-Oxid (MgO), Kalium-Bromid und auf Silizium, wobei die ionischen Kristalle direkt im UHV mit Hilfe einer Klinge (cleaver) gespalten werden können, was eine von in der Luft befindlichen Verunreinigungen freie Aufdampfoberfläche garantiert. Die Edelstahlkammer wird mit Hilfe eines mehrstufigen Pumpensystems (siehe [Kra99]) auf einem Druck von wenigstens  $10^{-9} \text{ mbar}$  gehalten.

Die Eichung der Aufdampfrate gelingt mit Hilfe einer Quarzwaage. Zu diesem Zweck befindet sich in der UHV-Apparatur ein Schwingquarz, der in den Dampfstrahl geschwenkt werden kann. Ausgenutzt wird die Massenabhängigkeit der Eigenfrequenz des Quarzkristalls, wobei bei bekanntem Auftreffwinkel des Dampfstrahls auf die Probe und auf den Schwingquarz auf die aufgedampfte Materialmenge geschlossen werden kann. Die Eichung der Aufdampfrate kann jedoch nur vor und nach der Messung durchgeführt werden, da die Probe und der Quarzkristall nicht gleichzeitig in den Dampfstrahl gebracht werden können.

Für die Untersuchung der Proben im Infraroten steht ein Fourier-Transform-Spektrometer der Firma Bruker zur Verfügung, mit dem sich ein Transmissionsspektrum einer bedampften Probe im Infraroten (IR) aufnehmen lässt. Zusätzlich kann ein LEED-System (low energy electron diffraction) zur Untersuchung der Probenoberfläche eingesetzt werden. Einzelheiten über die Möglichkeiten der Probenpräparation und die damit verbundenen Schwierigkeiten findet man in [Mag99], [Bar98]. Ein schematischer Aufbau der FTIR-Apparatur ist auf dem Bild 1.1 zu sehen.

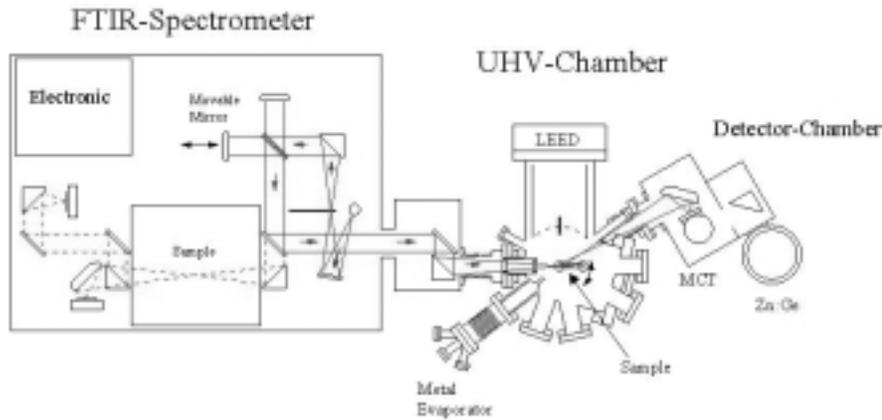


Abbildung 1.1: Der FTIR-Aufbau in der AG Pucci

## 1.2 FTIR–Spektroskopie

Wie im vorigen Abschnitt erwähnt werden die im UHV präparierten Filme mit einem FTIR-Spektrometer untersucht. Wir wollen hier ganz kurz auf das recht interessante Messprinzip eingehen.

Der Kernstück des FTIR-Spektrometers ist ein zweiarmiger Michelson Interferometer. Ein einlaufender Lichtstrahl wird mit einem für IR geeignetem Strahlteiler in zwei Teilstrahlen zerlegt, die in die beiden Arme gelenkt werden und nach Reflexion auf dem festen bzw. beweglichen Spiegel zusammengeführt werden und interferieren.

Für eine monochromatische Lichtwelle gilt für die Feldstärke am Detektor nach dem Zusammenführen der beiden Teilstrahlen, wenn wir für die beiden Teilstrahlen setzen  $\vec{E}_1 = \vec{E}_0 e^{i\omega t}$ ,  $\vec{E}_2 = \vec{E}_0 e^{i\omega t} e^{i\phi}$

$$\vec{E} = \vec{E}_0 (1 + e^{i\phi} e^{i\omega t}) \quad (1.1)$$

wobei wir mit  $\phi = \frac{\omega d}{c}$  den Gangunterschied bei einem Wegunterschied  $d$  zwischen den beiden Strahlen bezeichnet haben. Da die Intensität am Detektor proportional zum Betragquadrat der Feldstärke ist, erhalten wir für die Lichtintensität  $I$  am Detektor:

$$I(d) = I_0 \left(1 + \cos\left(\frac{\omega d}{c}\right)\right) \quad (1.2)$$

woraus wir beim Übergang zu einer thermischen Strahlungsquelle (sog. Globar) mit weitgehend Planckscher Intensitätsverteilung wie in dem UHV-Aufbau verwendet durch Aufintegrieren über die spektrale Verteilung die Beziehung bekommen:

$$I(d) \sim \int (1 + \cos(\frac{\omega d}{c})) d\omega \quad (1.3)$$

Am Detektor wird ein Intensitätsspektrum  $I(d)$  aufgenommen, also im Wesentlichen die Fourier-Transformierte der einfallenden Strahlintensität nach der Wellenlänge, aus der durch Umkehrung (üblicherweise mit inverser FFT innerhalb der Spektrometer-Software OPUS) die eigentlich interessierende Intensität  $I(\omega)$  gewonnen werden kann. Die experimentellen Details findet man gut beschrieben in [Mag99], [Bar98].

### 1.3 Überblick über die Fe-Transmissionsspektren

Wir wenden uns nun den in dieser Arbeit ausgewerteten Fe/MgO Spektren. Das Eisen ist jeweils auf einen im UHV gespaltenen Kristall aufgedampft worden. In den Abbildungen 1.2, 1.3 sowie 1.4 sind die relativen Transmissionsspektren (senkrechter Einfall) für die drei betrachteten Substrattemperaturen von 313K, 430K und 500K zu sehen. Normiert wurde jeweils auf ein vor dem Aufdampfen aufgenommenes MgO-Spektrum, was üblicherweise innerhalb der FTIR-Software automatisch durchgeführt wird. Die jeweiligen Prozessparameter wie Aufdampftrate, Strahlblende, usw. sind in [Mag99] dokumentiert.

Auffallend ist bei allen drei Messreihen die verhältnismässige Strukturlosigkeit der IR-Spektren, es treten keinerlei charakteristische Linien, wie man es z.B. aus der Molekülphysik gewohnt ist, noch sonstige Strukturen auf. Verantwortlich für diesen Transmissionsverlauf sind Intraband-Übergänge des weitgehend freien Elektronengases im Metall, wie wir auch noch später im Abschnitt über Drude-Theorie annehmen werden.

Abhängig von der Substratstruktur ergibt sich jedoch ein charakteristischer Verlauf der Transmission mit der aufgedampften Schichtdicke. So fällt im Anfangsbereich ein Absinken der Transmission mit wachsender Wellenzahl auf, der von der Inselbildung im Anfangsstadium des Filmwachstums herrührt. Die Kurven laufen aus einem gemeinsamen Anfangspunkt heraus. Es schliesst sich ein Übergangsbereich sinkender Transmission mit einem teilweise konstanten Transmissionsniveau in einem von der Temperatur abhängigen Dickenintervall an, auf den zunehmend ein bulk-ähnliches Verhalten mit einem für Metalle charakteristischen starken Abfall für kleine Wellenzahlen folgt. Bei Temperaturen um die Zimmertemperatur herum und darunter findet nur eine eingeschränkte Inselbildung statt. Für tiefe Temperaturen entstehen bereits für kleine Aufdampfdicken mikroskopisch glatte Fe-Filme, man stelle sich vor, dass die aufgedampften Fe-Atome am Ort ihres Auftreffens haften bleiben. Man könnte diese Wachstumsmode mit dem Entstehen einer Schneedecke im Winter vergleichen.

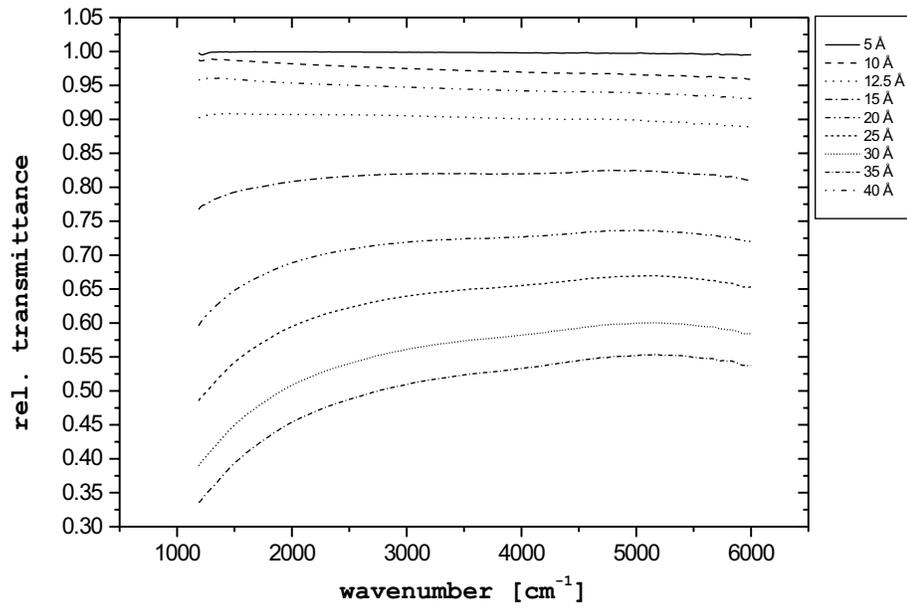


Abbildung 1.2: Experimentell bestimmtes IR-Transmissionsvermögen von Fe auf MgO bei 313K (messr05r)

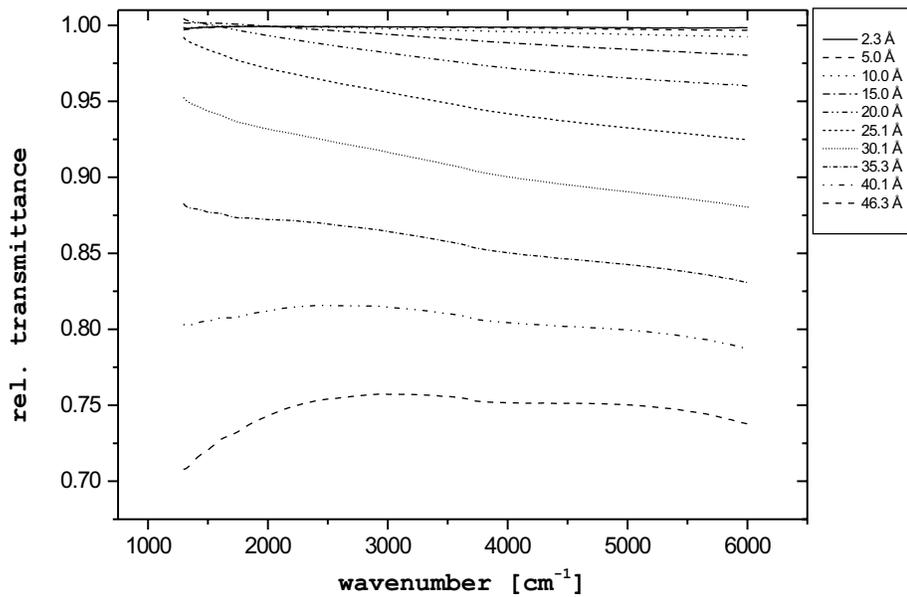


Abbildung 1.3: Experimentell bestimmtes Transmissionsvermögen von Eisenfilm auf MgO bei 430K (messr11g)

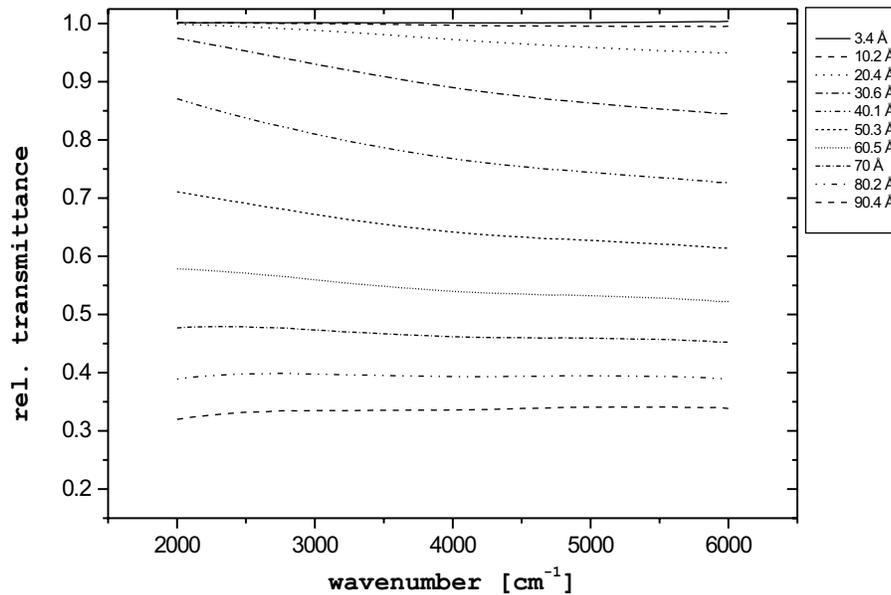


Abbildung 1.4: IR-Transmissionsvermögen von Eisenfilm auf MgO bei 500K (messr14)

Im Rahmen dieser Diplomarbeit ist anfänglich eine Referenzmessung des MgO-Substrats durchgeführt worden, für die noch mal das in [Bar98] vorgestellte Brendel-Oszillator-Modell angepasst worden ist, welches wir später für das Mehrschichtsystem von SCOUT verwendeten. Abbildung 1.3 zeigt ein in senkrechter Transmission gemessenes Spektrum eines dicken ( $9.5\text{ mm}$ ) MgO-Kristalls. In den früheren Arbeiten [Mag99],[Bar98] ist das MgO-Substrat eingehend untersucht worden, auch die Temperaturabhängigkeit der Lage der Absorptionskante sowie Auftreten einer 'Schulter' im Wellenzahlbereich um  $2000\text{cm}^{-1}$  ist dort behandelt worden. Die mit SCOUT berechneten (gefiteten) Werte für die Parameter des Brendel-Modells sind in Abbildung 1.5 zu sehen. Die Übereinstimmung des mit dem von A. Bartel entwickelten Modell berechneten und des gemessenen MgO-Spektrums ist sehr gut.

Der Substrateinfluss wird durch die Verwendung von Relativspektren weitgehend unterdrückt. Im weiteren Verlauf betrachten wir die Transmissionsspektren in einem etwas eingegrenzten Wellenzahlbereich von  $2000\text{cm}^{-1} \dots 6000\text{cm}^{-1}$ , da zum einen unterhalb von  $2000\text{cm}^{-1}$  die erwähnte Absorptionskante von MgO liegt und zum anderen dort auch die Empfindlichkeit der Detektoren abnimmt, was die Transmissionsmessung unterhalb von  $2000\text{cm}^{-1}$  noch mal erschwert. Die Empfindlichkeit des Detektors lässt auch allmählich oberhalb von  $5500\text{cm}^{-1}$  nach, allerdings ist der Intensitätsabfall der am Detektor ankommenden Strahlung nicht so rapide wie im Bereich der Absorptionskante von MgO, so dass wir die Spektren unbesorgt bis  $6000\text{cm}^{-1}$  auswerten können.

	Name	Type	Param.	Value	Param.	Value	Param.	Value	Param.	Value
1	DB	Dielectric background		3.010	+ i	0.000				
2	1	Harmonic oscillator	Pos.	401.0	Str.	2212.1	Damp.	0.000		
3	1	Brendel oscillator	Pos.	8.7	Str.	0.7	Damp.	294940	Width	4.543
4	2	Brendel oscillator	Pos.	1654.9	Str.	5.5	Damp.	3.107	Width	303.557
5	3	Brendel oscillator	Pos.	1495.2	Str.	3.1	Damp.	2.805	Width	91.761

Abbildung 1.5: Eingaben für das in SCOUT implementierte Brendel-Modell

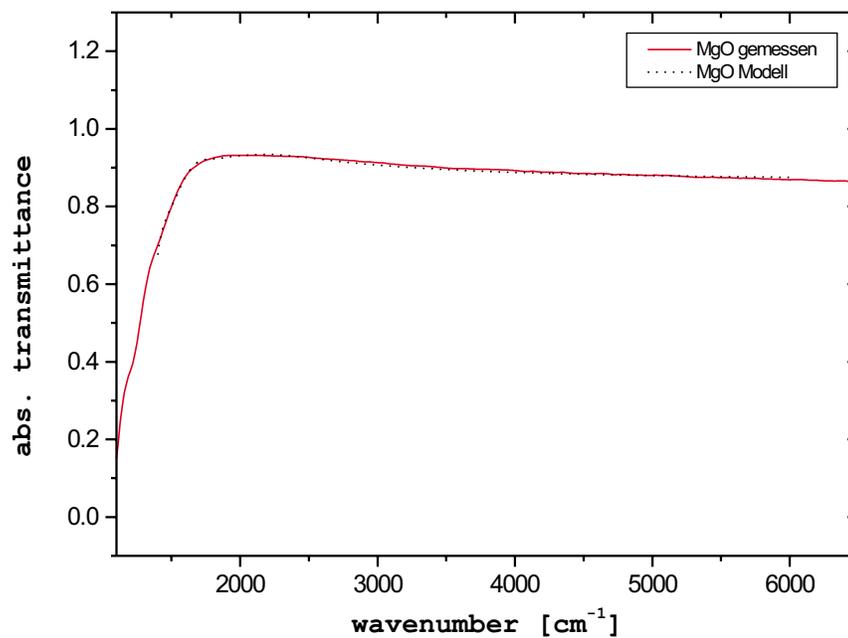


Abbildung 1.6: Absoluttransmission eines 9.5 mm dicken MgO-Kristalls bei Zimmertemperatur

## Kapitel 2

# Dielektrische Eigenschaften von Metallfilmen

### 2.1 Klassische Drude-Theorie

Die klassische Beschreibung eines Metalls geht auf Drude und Riecke 1900 zurück. Diese sogenannte Drude-Theorie geht von der Vorstellung eines freien Elektronengases aus, auf den die kinetische Gastheorie anwendbar ist. Die Elektronen bewegen sich statistisch mit einer mittleren thermischen Geschwindigkeit  $\vec{v}_t$  und stossen dabei untereinander sowie mit den Ionenrümpfen, wobei im Mittel eine Zeit  $\tau_{st}$  (Relaxationszeit) zwischen zwei solchen Stössen vergeht. Als weitere Streuzentren können neutrale Störstellen, Versetzungen, Leerstellen oder Zwischengitterbesetzungen sowie Korngrenzen dienen. Der Mittelwert der thermischen Geschwindigkeit verschwindet, weil der Schwerpunkt des Elektronengases ruht, da die Elektronen den Festkörper nicht verlassen.

Legt man ein elektrisches Feld an, so bildet sich im klassischen Bild nach Drude eine Driftbewegung der Elektronen mit der mittleren Driftgeschwindigkeit  $\vec{v}_d$  aus. Wir können einen Ausdruck für die Grösse  $\vec{v}_d$  herleiten, indem wir nach dem Kraftgesetz  $\vec{F} = m^* \vec{a} = q \vec{E}$  setzen und  $\vec{v} = \int \vec{a}(t) dt$  unter der Annahme ausrechnen, dass nach dem Stoss die Geschwindigkeiten der Elektronen wieder statistisch verteilt sind.

Um die Drude-Formeln herzuleiten, gehen wir von der klassischen Bewegungsgleichung eines geladenen Teilchens im elektrischen Feld aus und nehmen an:

- wir legen ein elektrisches Wechselfeld in x-Richtung an,  $\vec{E}_a = \vec{E}_x = E_x^0 e^{i\omega t}$ ,
- die von ihrer Ruhelage ausgelenkten Teilchen (später Elektronen) erfahren eine harmonische Rückstellkraft  $\vec{F} = -C(\vec{x} - \vec{x}_0)$  (harmonische Näherung),
- wir berücksichtigen zugleich noch Reibungsverluste durch eine zu  $\dot{\vec{x}}$  proportionale Reibungskraft.

Am Ort unseres Bezugsteilchens wirkt das lokale, durch die Nachbaratome des Kristallgitters modifizierte elektrische Wechselfeld  $\vec{E}_{loc}$ , so dass wir mit der Newtonschen Bewegungsgleichung schreiben können

$$q\vec{E}_{loc} = m^* \ddot{\vec{x}} + am^* \dot{\vec{x}} + b\vec{x}, \quad (2.1)$$

mit einer effektiven Masse  $m^*$ , die (wie aus der Grundvorlesung über Festkörperphysik bekannt) nicht unbedingt mit der schweren Masse des Teilchens übereinstimmen muss. Vielmehr ist bekanntlich die Krümmung der Energiefläche, d.h. die Dispersionsrelation  $\epsilon(\vec{k})$  relevant, aus der wir die effektive Masse durch zweifaches Ableiten nach  $\frac{\hbar^2}{m^*} = \frac{\partial^2 \epsilon}{\partial k^2}$  erhalten können.

Die Gleichung 2.1 kann in eine Gleichung für die Polarisation umgewandelt werden, indem wir berücksichtigen, dass  $\vec{P} = \xi N q \vec{x}$  ist, wobei  $\xi$  ein von der Gittergeometrie abhängiger Faktor und  $N$  Teilchendichte pro Volumen ist. Wir bekommen nun nach Einsetzen des Ausdrucks für die Polarisation:

$$\ddot{\vec{P}} + \frac{a}{m^*} \dot{\vec{P}} + \frac{b}{m^*} \vec{P} = \frac{\xi N q^2}{m^*} \vec{E}_{loc}. \quad (2.2)$$

Wir müssen uns Gedanken über den Zusammenhang zwischen dem angelegten und dem lokalen elektrischen Feld machen. In erster Näherung können wir analog wie bei der Herleitung der Clausius-Mosotti Gleichung vorgehen und mit der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon$  des Mediums,  $\epsilon_a$  der des im Unendlichen liegenden Aussenraums schreiben

$$\begin{aligned} \vec{E}_{loc} &= \vec{E}_a + \vec{E}_1 \\ \vec{E}_1 &= -\frac{f\vec{P}}{\epsilon_0} = -\vec{E}_a f \frac{\epsilon - \epsilon_a}{\epsilon_a}, \end{aligned} \quad (2.3)$$

wobei  $f$  der Depolarisationsfaktor des zur Konstruktion von  $\vec{E}_1$  (sog. Entelektrisierungsfeld) verwendeten Hohlraums ist. In einem Kristallgitter müssen wir aber noch den periodischen Aufbau berücksichtigen und die Gleichung 2.3 um zwei weitere Anteile erweitern

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E}_a + \vec{E}_1 + \vec{E}_2 + \vec{E}_3, \quad (2.4)$$

wobei  $\vec{E}_2$  durch Integration in Dipolnäherung die Fernordnung berücksichtigt und  $\vec{E}_3$  durch Summation über die unmittelbare Nachbarschaft die Nahordnung in Rechnung stellt. Von Lorenz stammt der Vorschlag, den Mittelpunkt des Hohlraums in einen Gitterpunkt zu legen und einen hinreichend grossen Hohlraum (mehrere 1000 Elementarzellen) zu betrachten, so dass das Dielektrikum ausserhalb des Hohlraums als homogen betrachtet werden kann. Tut man dies, so ergibt sich für das Feld  $\vec{E}_2$ :

$$\vec{E}_2 = \frac{\vec{P}}{3\epsilon_0}. \quad (2.5)$$

Für viele kubische Gitter folgt mit  $\epsilon_a = \epsilon$  aufgrund von Symmetriebetrachtungen (siehe z.B. [Hun97]), dass  $\vec{E}_3 = \vec{E}_1 = 0$  und wir können schreiben:

$$\vec{E}_{loc} = \vec{E}_a + \frac{1}{3\epsilon_0} \vec{P}. \quad (2.6)$$

Wir können dieses Ergebnis in die Differentialgleichung für die Polarisation 2.2 einsetzen und erhalten:

$$\ddot{\vec{P}}_1 + \frac{a}{m^*} \dot{\vec{P}}_1 + \omega_0^2 \vec{P}_1 = \frac{(\epsilon_\infty + 2)}{3} \frac{\xi N q^2}{m^*} \vec{E}_x \quad (2.7)$$

$$\vec{P}_2 = (\epsilon_\infty - 1) \epsilon_0 \vec{E} \quad (2.8)$$

wobei wir einfachheitshalber  $\vec{P} = P(\vec{\omega}) = P_1(\vec{\omega}) + P_2(\vec{\omega})$  in einen trägen, von der Anregung unbeeinflussten Anteil  $\vec{P}_2 \approx \text{const}$  und einen resonanten  $\vec{P}_1$  aufgespalten haben und gesetzt haben  $\omega_0^2 = \frac{b}{m} - \frac{\xi N q^2}{3\epsilon_0 m^*}$ , wobei  $\epsilon_\infty$  die Dielektrizitätskonstante fern von  $\omega_0$  bezeichnet.

Die allgemeine Lösung dieser Differenzialgleichung 2.7 lautet, wie man in einer mathematischen Formelsammlung finden kann

$$P(\vec{\omega}) = C \vec{E}_0 e^{i\omega t} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 + ia\omega} \frac{\epsilon_\infty + 2}{3}, \quad (2.9)$$

wo die Grösse  $C = \frac{\xi N q^2}{m^*}$  die Besonderheiten des Ionengitters enthält. Wir können nun direkt auf den Verlauf der resonanten Polarisation  $P_1(\omega)$  schliessen:

$$P_1(\vec{\omega}) = \vec{E}_0 e^{i\omega t} \left( \epsilon_0(\epsilon_\infty - 1) + \frac{\epsilon_\infty + 2}{3} \frac{C}{\omega_0^2 - \omega^2 + ia\omega} \right). \quad (2.10)$$

Jetzt interessieren wir uns natürlich für Dielektrizitätskonstante des betrachteten Mediums, wozu wir die Maxwell'schen Gleichungen zu Hilfe nehmen. Es gilt:

$$\vec{P} = \vec{D} - \epsilon_0 \vec{E} = \epsilon_0 \vec{E}(\epsilon - 1). \quad (2.11)$$

Setzen die Dielektrizitätskonstante wie in der Elektrodynamik üblich als komplexe Grösse an  $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ , so führt das Einsetzen des Polarisationsausdrucks in die obige Maxwell-Gleichung auf die verallgemeinerten Drude-Formeln:

$$\epsilon_1 = \epsilon_\infty + C \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + a^2\omega^2} \frac{\epsilon_\infty + 2}{3\epsilon_0} \quad (2.12)$$

$$\epsilon_2 = C \frac{\omega a}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + a^2\omega^2} \frac{\epsilon_\infty + 2}{3\epsilon_0}. \quad (2.13)$$

Speziell für das freie, an Gitterplätze ungebundene Elektronengas entfällt die harmonische, zur Auslenkung proportionale Rückstellkraft (d.h.  $b = 0$ ) und es kann sich auch kein inneres Polarisationsfeld aufbauen, d.h.  $\omega_0 = 0$ , so dass wir letztendlich die als Drude-Formel bekannte Beziehung erhalten:

$$\begin{aligned} \epsilon_1 &= 1 - \frac{ne^2}{\epsilon_0 m^*} \frac{1}{\omega^2 + a^2} \\ \epsilon_2 &= \frac{a}{\omega(\omega^2 + a^2)} \frac{ne^2}{\epsilon_0 m^*}. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Üblicherweise wird die Grösse  $\omega_p = \frac{ne^2}{\epsilon_0 m^*}$  als die Plasmafrequenz und  $a = \omega_\tau$  als die Relaxationsfrequenz des Drudeschen Elektronengases bezeichnet. Wir können aus den Gleichungen 2.14 entnehmen, dass weit unterhalb von  $\omega = \omega_\tau$  für ein Metall die dielektrische Leitfähigkeit  $\sigma_d = \epsilon_2 \omega \epsilon_0$  gross ist und ein Absorptionsgebiet vorliegt. Bei Frequenzen  $\omega \gg \omega_\tau$  wird  $\sigma_d \approx 0$  und weiterhin  $\epsilon_1 < 0$  d.h. es liegt Reflexion vor (wohl die Eigenschaft, die man bei Metallen als erste wahrnimmt). Erst für hohe Frequenzen  $\omega \approx 10^{16} \text{ s}^{-1}$  (ungefähr im Ultraviolett) und darüber wird  $\epsilon_1 > 0$  und das Metall wird durchsichtig.

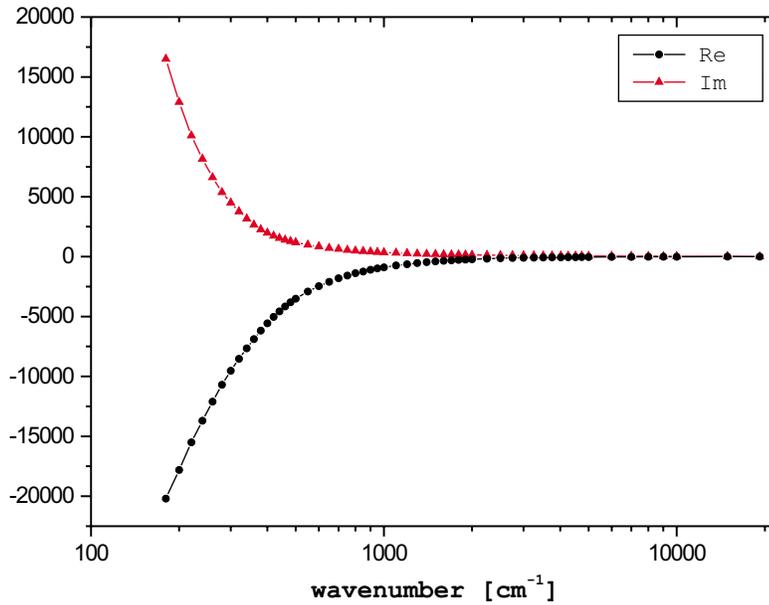


Abbildung 2.1: Ordal-Werte für  $\epsilon_1$  und  $\epsilon_2$  für bulk-Fe

## 2.2 Anwendung für dünne Fe-Filme

Die mit Hilfe der klassischen Kraftgleichung abgeleiteten Drude-Formeln behalten ihre Gültigkeit natürlich in erster Linie für eine makroskopische Probe (bulk Material), da wir ein freies Elektronengas angenommen haben, das sich erst in einem hinreichend grossen Kristallgitter ausbilden kann. Die Beziehungen 2.14 lassen sich auch nach den physikalisch handlicheren Grössen  $\omega_\tau(\epsilon_1, \epsilon_2), \omega_p(\epsilon_1, \epsilon_2)$  auflösen, so dass wir, falls es uns gelingen sollte den Frequenzverlauf von  $\epsilon_1, \epsilon_2$  zu bestimmen, in der Lage sind, auf den Verlauf der Plasma-  $\omega_p$  und Relaxationsfrequenz  $\omega_\tau$  zurück zu rechnen.

Ordal et al. bestimmten (siehe [BA85]) für 14 unterschiedliche Metalle den Verlauf der komplexen dielektrischen Funktion  $\epsilon(\omega)$ . Dabei wurden mit ellipsometrischen Methoden allerdings nicht die recht schwer zugänglichen Grössen  $\epsilon_1, \epsilon_2$  gemessen, sondern der Brechungsindex  $n$  und der Extinktionskoeffizient  $\kappa$  des Materials, die mit der dielektrischen Funktion durch Einführung eines komplexen Brechungsindex (siehe [Jac83]) verknüpft werden können

$$n^* = n + i\kappa = \sqrt{\epsilon_1 + i\epsilon_2}. \quad (2.15)$$

Aus den so gewonnenen Daten über den Verlauf der dielektrischen Funktion eines Metalls, lässt sich mit Hilfe der Drude-Formeln 2.14 auch die Frequenzabhängigkeit der beiden Drudeschen Parameter  $\omega_p, \omega_\tau$  bestimmen, in dem man die Drude-Gleichungen

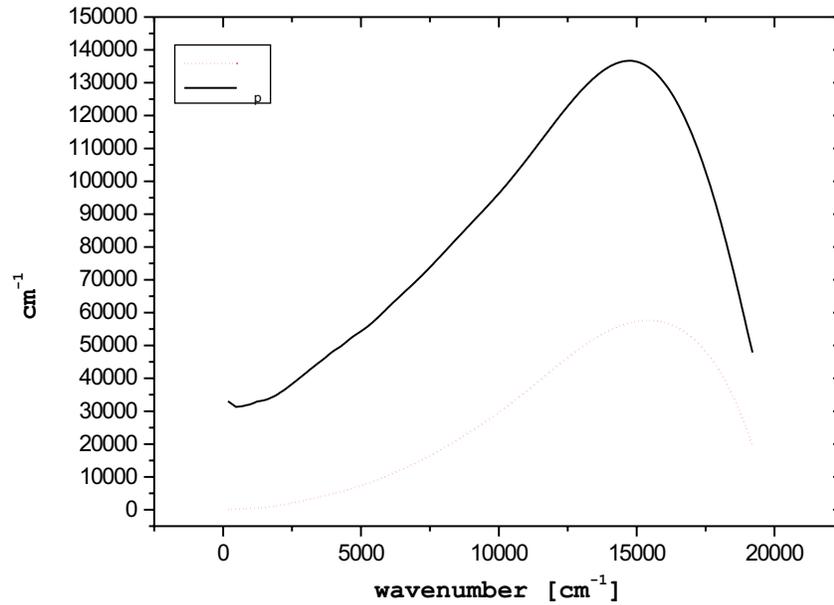


Abbildung 2.2: Verlauf von  $\omega_\tau$  und  $\omega_p$  für bulk-Fe nach Ordal. Für unsere Rechnungen ist nur ein kleiner Anfangsbereich bis 6000 Wellenzahlen relevant, der sich sehr gut mit dem  $\gamma$ -Modell beschreiben lässt.

2.14 nach  $\omega_p, \omega_\tau$  als Funktion von  $\epsilon_1, \epsilon_2$  auflöst, und zwar gilt dann:

$$\omega_\tau = \frac{\omega \epsilon_2(\omega)}{1 - \epsilon_1} \quad (2.16)$$

$$\omega_p = \sqrt{(1 - \epsilon_1)(\omega^2 + \omega_\tau^2(\omega))}. \quad (2.17)$$

Abbildung 2.1 zeigt den Verlauf der für bulk Eisen von Ordal et. all bestimmten Anteile der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_1(\omega), \epsilon_2(\omega)$ . Auffallend ist der charakteristisch für Metalle negative Realteil von  $\epsilon$ . Die klassische Elektrodynamik ordnet einem idealen Metall die Dielektrizitätskonstante  $\epsilon \rightarrow -\infty$ , was notwendig aus der Bedingung an die Metalloberfläche als Äquipotentialfläche im statischen E-Feld folgt.

Aus den Ordal-Daten für Eisen haben wir den Verlauf von  $\omega_\tau, \omega_p$  nach 2.16 bestimmt, welcher in Bild 2.2 zu sehen ist. Die von Ordal ursprünglich für den Wellenzahlbereich von  $180\text{cm}^{-1} \dots 19200\text{cm}^{-1}$  und Zimmertemperatur bestimmten Werte von  $(\omega_\tau, \omega_p)$  wurden für die Rechnungen bei 313 K mit einem kubischen Spline auf dem für spätere Rechnungen benötigten Wellenzahlintervall von  $2000\text{cm}^{-1} \dots 6000\text{cm}^{-1}$  interpoliert. In den beiden Vorgängerarbeiten [Mag99], [Bar98] ist gezeigt worden, dass der Verlauf von  $\omega_t$  im Anfangsbereich durch einen quadratischen Zusammenhang beschrieben werden kann (sogenanntes  $\gamma$ -Modell)

$$\omega_\tau^{\text{bulk}} = \omega_\tau^0(T) + \gamma(T)\omega^2, \quad (2.18)$$

wobei N. Magg in seiner Arbeit für die Zimmertemperatur und darüber für  $\omega_\tau^0 = 343\text{cm}^{-1}$  und  $\gamma = 1.73210^{-4}$  gefunden hat. Dieser Verlauf von  $\omega_\tau$  ist dann auch von uns für Temperaturen oberhalb der Zimmertemperatur übernommen worden, für 313 K wurden weiterhin die Ordal-Daten verwendet. Eine Temperaturabhängigkeit der Plasmafrequenz  $\omega_p$  wird hier nicht betrachtet.

Hierbei handelt es sich aber immer noch um bulk - Werte, d.h. den Verlauf für einen hinreichend grossen (makroskopischen) Eisenkristall. Was passiert nun, wenn wir zu immer dünneren Eisenfilmen übergehen? Die Randflächen eines Kristalls stellen den grössten Defekt unter den für die Streuung der Elektronen in Frage kommenden Kristalldefekten dar. Wir erwarten also für einen immer dünner werdenden Metallfilm, dass die Grenzflächenstreuung immer mehr an Bedeutung gewinnt, bis schliesslich die Oberflächenstreurate die Bulkstreurate übersteigt. Dieser Effekt wird üblicherweise als klassischer Size-Effekt bezeichnet.

Man findet in der Literatur Werte von ca. 100 Å für die freie Weglänge eines Elektrons in bulk Fe, woraus wir (schon im Voraus) sehen können, dass bei den in dieser Arbeit untersuchten Filmen, deren Dicke in der gleichen Grössenordnung oder gar unterhalb der freien Weglänge liegt, ein zusätzlicher Oberflächenstreumechanismus berücksichtigt werden muss.

Nach der Matthiesen'schen Regel ergibt sich für die Gesamtstreurate, falls die beitragenden Streuprozesse voneinander unabhängig sind:

$$\omega_\tau^{eff} = \sum_j \omega_\tau^j. \quad (2.19)$$

Die Annahme, dass eine Oberfläche die im Bulkmaterial vorhandenen Streuzentren nicht beeinflusst, ist aber nicht ganz korrekt. Die Festkörperoberfläche ist eine Quelle 'neuartiger' Defekte, sie weist in der Praxis stufen- oder spiralförmige Absätze mit Ecken- und Kantenatomen sowie Erhebungen auf. Die gegenüber dem Volumen abweichende Oberflächenstruktur lässt sich als Reaktion des Festkörpers auf den Abbruch der Gitterperiodizität auffassen. Der Kristall optimiert seine freie Enthalpie entsprechend den eingetretenen Verhältnissen. Quantenmechanisch gesehen wird durch das Vorhandensein der Oberfläche die Verteilung der Phononen  $\rho(\vec{x}, \vec{k})$  und die der Elektronen  $f(\vec{x}, \vec{k})$  modifiziert. Von Bedeutung ist natürlich nicht die absolute Grösse der Oberfläche sondern vielmehr die sogenannte spezifische Oberfläche

$$A_{sp} = \frac{A}{V}, \quad (2.20)$$

mit dem durch die Fläche  $A$  eingeschlossenen Volumen  $V$ .

Wir nehmen nun an, dass sich das in einem dünnen Metallfilm eingesperrte Elektron in der zur Oberfläche parallelen Richtung wie in einem grossen, makroskopischen Kristall bewegen kann, dafür aber in der dazu senkrechten Richtung einer zusätzlichen Streuung an der Oberfläche unterliegt. Für den Streubeitrag zu  $\omega_\tau^{eff}$  können

wir die mittlere Stosszeit zwischen den beiden Filmoberflächen einsetzen, wobei für die mittlere Elektronengeschwindigkeit senkrecht zu Oberfläche über die Geschwindigkeitsverteilung (Fermiverteilung) im  $k$ -Raum zu mitteln ist. Berücksichtigt man noch, dass bei den im Infraroten auftretenden Energieüberträgen von  $\approx 1\text{eV}$  oder darunter die Fermienergie von ca. 11 eV (für Eisen) gleich der kinetischen Energie der Elektronen gesetzt werden darf, können wir den folgenden Ansatz für die oberflächenbedingte Streurrate benützen

$$\omega_{\tau}^s = \alpha \frac{v_{\perp}}{d} = \alpha \frac{v_{fermi}}{2d}, \quad (2.21)$$

da die erwähnte Mittelung über im  $k$ -Raum über die Fermi - Verteilung zu  $\frac{v_{fermi}}{2} = v_{\perp}$  führt.

Wir führen an dieser Stelle einen Korrekturparameter  $\alpha$  ein, der die Wahrscheinlichkeit für eine nicht-spiegelnde und damit die Absorption bzw. die Leitfähigkeit beeinflussende Reflexion an der Grenzfläche beschreibt. Wie wir sehen werden, kann  $\alpha$  auch Werte über 1 annehmen, so dass hier eigentlich mehr die Rede von einem Korrekturfaktor als von einer Wahrscheinlichkeit (im Gegensatz zu früheren Arbeiten, siehe [Bar98],[Mag99]) sein sollte. Für eine 100% spiegelnde Oberfläche ist  $\alpha = 0$ , hat man es jedoch mit einer rauhen Oberfläche zu tun, so erhöht sich die Wahrscheinlichkeit für diffuse Streuung an der Oberfläche, und damit auch  $\alpha$ , was die Bezeichnung als Rauigkeitskoeffizient gerechtfertigt.

Abbildung 2.3 zeigt den Einfluss der klassischen Size-Korrektur auf den Verlauf der dielektrischen Funktion eines 10 Å dicken Eisenfilms. Offensichtlich kann die Korrektur durch Oberflächenstreuung bei so dünnen Proben nicht mehr unberücksichtigt gelassen werden.

Noch komplizierter stellt sich der Fall von isolierten Eiseninsel dar, denn hier sind die Metallelektronen nicht nur in einer Richtung eingeschränkt sondern i.a. in allen drei, so dass der Ansatz 2.21 nicht mehr mit anschaulichen Argumenten begründet werden kann. Je nach Grösse der Inseln kann selbst in der zum Substrat parallelen Richtung keine Rede mehr von einem bulk-Material sein. Konsequenterweise müsste man diesen Fall auf ein  $N$ -Teilchen ( $N$  'klein' von der Grössenordnung  $10^3$ ) System der Quantenmechanik zurückführen, und mit Hilfe eines Mehrteilchenformalismus die dielektrischen Eigenschaften (wie z.B. das atomare Dipolmoment  $q < \phi | \vec{x} | \phi >$  unter Einwirkung des angelegten elektrischen Wechselfeldes) ausrechnen. Wir verweisen den interessierten Leser an dieser Stelle auf [ZTM86].

Die nachfolgend beschriebenen Effektivmedienmodelle für Eisenfilme bauen trotz dieser Schwierigkeiten auf der klassischen Beschreibung von Metallclustern auf, wobei wir eine auf Cluster optimierte, die Streuung bestimmende charakteristische Dicke  $d$  verwenden. Für den Fall einer würfelförmigen Insel könnte man z.B. das geometrische Mittel der  $x$ ,  $y$ ,  $z$  - Abmessungen benützen, beziehungsweise für den Fall von ellipsoidalen Insel einen aus den drei Hauptachsen abgeleiteten Mittelwert. Darauf werden wir unten noch bei Bedarf genauer eingehen.

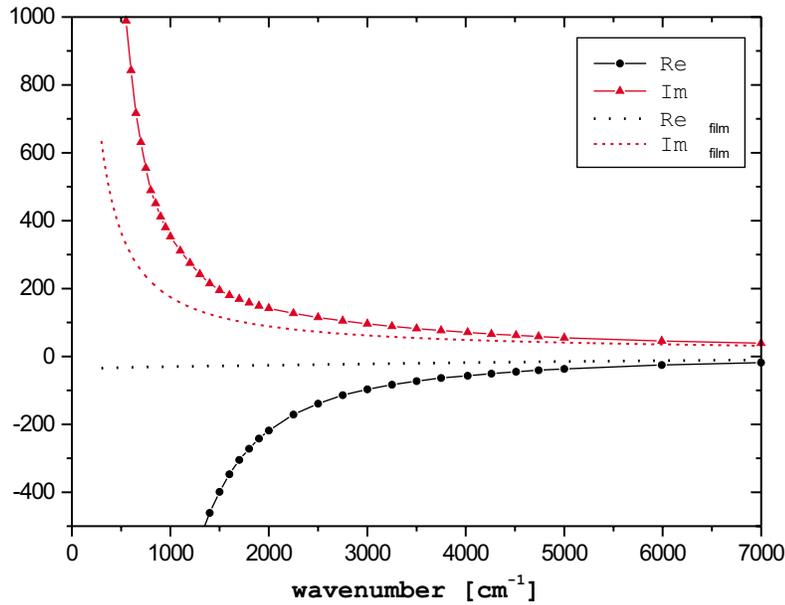


Abbildung 2.3: Einfluss einer klassischen Size-Korrektur auf  $\epsilon_1, \epsilon_2$  für einen 10 Å dicken Fe-Film

Wir müssen uns noch Gedanken über die in den Drude-Formeln 2.14 auftretende Plasmafrequenz  $\omega_p$  machen. In der Literatur finden sich keine konkreten Vorschläge einer Korrekturformel für die Drudesche Plasmafrequenz beim Übergang von bulk-Material zu einem Nanometerfilm.

Aus früheren Arbeiten [Mag99], [Bar98] ist bekannt, dass Dünnschichtspektren auf der Basis der bulk-Plasmafrequenz nur ungenügend beschrieben werden können. Es zeigt sich zwar eine Übereinstimmung im spektralen Verlauf für verhältnismässig dicke Fe-Filme, aber es treten doch enorme Abweichungen in den Absolutwerten der Transmission auf. Die Spektren könnten so nur durch eine im Bereich kleiner Dicken erniedrigte Schichtdicke und bei den dickeren Filmen durch eine im Vergleich zu der tatsächlich aufgedampften Menge erhöhte Schichtdicke erklärt werden. Abhilfe bringt die Einführung eines weiteren Parameters  $\beta$  für die Skalierung der Bulk-Plasmafrequenz ein, und zwar setzen wir:

$$\omega_p^{eff} = \beta \omega_p^{bulk}. \quad (2.22)$$

Aus der Gleichung 2.14 geht hervor, dass die Plasmafrequenz proportional zur Elektronendichte und zur inversen effektiven Masse der quasi freien Elektronen ist. In einem Mischsystem wie Fe auf MgO ist jedoch die Wechselwirkung der beiden Materialien z.B. im Vergleich zu dem in der Arbeitsgruppe untersuchten System Fe/Si relativ gering, so dass wir keine nennenswerte Effekte durch das Vorhandensein einer heterogenen Grenzfläche erwarten würden.

Wir müssen jedoch berücksichtigen, dass die bulk-Plasmafrequenz von einer perfekt

planparallelen Kristalloberfläche ausgeht und eine eventuell vorhandene Oberflächenmorphologie unberücksichtigt lässt. Wie wir noch erläutern werden, bildet aber Fe auf dem MgO-Substrat insbesondere bei höheren Temperaturen vorzugsweise Inseln, so dass wir es selbst nach Schliessen des Fe-Inselfilmes mit einer unebenen, zerfurchten Oberfläche zu tun haben.

Es ist zu erwarten, dass zumindest in der Nähe der Oberfläche eine Veränderung des auf die Elektronen wirkenden lokalen Feldes auftritt, da wir nicht mehr von dem für eine idealisierte planparallele Scheibe gültigen Depolarisationsfaktor ausgehen können.

Ist der Metallfilm sehr dünn, so weicht auf der gesamten Filmdicke das elektrische Feld von dem Wert ab, der sich bei einer perfekt planparallelen Oberfläche ausbilden würde und der Effekt wird essenziell für die Beschreibung der dielektrischen Eigenschaften des Metallfilms, was die Einführung des Skalierungsfaktors  $\beta$  begründet. Wir erwarten aus diesem Grunde auch, dass für einen immer dicker werdenden Fe-Film  $\beta$  gegen den für bulk-Eisen korrekten Wert von 1 streben muss.



## Kapitel 3

# Eisen-Inselfilme auf MgO(001)-Substrat

### 3.1 Entstehung und Wachstum von Inselfilmen

Der besondere Vorteil von MgO als Substrat für einen Eisenfilm ist die geringe Gitterfehlanpassung zwischen einer  $\langle 110 \rangle$  Fe (Gitterkonstante 4.06 Å) und  $\langle 100 \rangle$  MgO (Gitterkonstante 4.20 Å) Oberfläche von nur 0.14 Å bei Raumtemperatur. Dies ermöglicht ein weitgehend epitaktisches Aufwachsen von Fe auf dem MgO-Substrat, wobei die Fe-Atome über den Sauerstoffatomen zu liegen kommen. Bei der Anpassung der später gerechneten Transmissionsspektren an die experimentellen Fe/MgO Daten ist ein angemessenes Wachstumsmodell sowohl für den Insel als auch den Schliessbereich des Films notwendig.

Die höhere Oberflächenenergie von reinem Fe ( $2.9 J/m^2$ ) begünstigt dreidimensionale Inselbildung, wodurch die Fe-Oberfläche im Vergleich zu einer planparallelen Schicht verringert wird. Je nach der Substrattemperatur besitzen die auftreffenden Fe-Atome unterschiedliche Beweglichkeit auf der Substratoberfläche und können in einer Umgebung des Auftreffpunktes mit einer für die Aufdampftemperatur charakteristischen Geschwindigkeit diffundieren, bis sie an eine geeignete Haftstelle treffen. Dies kann entweder ein Oberflächendefekt (Inselkeimstelle) oder eine bereits gebildete Fe-Insel sein.

In dem Artikel [PF99] ist mit Hilfe von He-Atomstrahlexperimenten eingehend der Einfluss der Substrattemperatur auf die Dichte der für die Inselbildung verantwortlichen Kondensationskeime untersucht worden. Im folgenden übernehmen wir auch den dort vorgeschlagenen exponentiellen Ansatz für die Entwicklung der Inselgrundfläche und nehmen an, dass wir für die in senkrechter Aufsicht sichtbare Inselfläche  $A(d)$  in Abhängigkeit von der aufgedampften Dicke  $d$  schreiben können

$$A(d) = A_0 \left(1 - e^{-\frac{\kappa d}{d_0}}\right), \quad (3.1)$$

wobei  $A_0$  für die einer Insel maximal zur Verfügung stehende Fläche steht und  $d_0$  die Dicke einer Fe-Monolage ist. Betrachten wir nun eine ausgedehnte Kristalloberfläche, so hat die Grösse  $q = 1 - e^{-\frac{\kappa s}{d_0}}$  die Bedeutung eines Flächenfüllfaktors, sprich

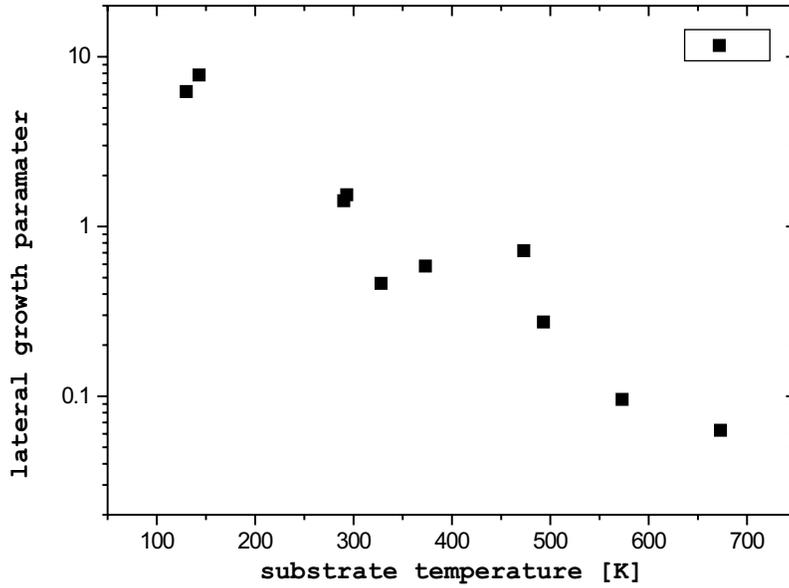


Abbildung 3.1: Verlauf des Wachstumsparameters  $\kappa$  mit der Temperatur [PF99]

des Anteils der Probenfläche, die von Metall bedeckt ist. Umgekehrt kann man auch im 'Löcherbild' einen Füllfaktor  $q_l$  für die unbedeckte Substratoberfläche definieren und wir können für  $q_l = e^{-\frac{\kappa d}{d_0}}$  schreiben.

Für den so eingeführten Wachstumsparameter  $\kappa$  liegen Messwerte aus den HAS-Experimenten vor, die man dem Bild 3.1 entnehmen kann. Leider ist die Absolutgrösse von  $\kappa$  mit verhältnismässig grossem Fehler von  $\approx 50\%$  behaftet, so dass wir uns in den folgenden Abschnitten mit einem geschätzten Wert begnügen müssen. Erschwerend kommt hinzu noch, dass gerade für die hier betrachtete 500K-Messreihe, die HAS-Daten nur mit Mühe interpretiert werden können, da die gemessene spektrale He-Strahlintensität kein deutliches Minimum mehr zeigt.

Eine besondere Bedeutung kommt noch der Grösse  $A_0$  zu, denn sie legt schliesslich die einer Insel maximal zur Verfügung stehende Fläche fest. In den He-Streuexperimenten wurde auch diese Grösse abgeschätzt. Streng genommen handelt sich dabei jedoch nur um die Dichte der für die Inselbildung verantwortlichen Kondensationskeime  $N_s$ . Die Abbildung 3.1 zeigt die so gewonnenen Werte für  $N_s$ . Wir lesen nach linearer Interpolation der Daten die folgenden Werte ab, wobei der bei 500 K vom Trend abweichende Wert nicht berücksichtigt wurde:

$$\begin{aligned}
 N_s^{313K} &= 7.0010^{12} \text{ cm}^{-1} \\
 N_s^{430K} &= 5.6210^{12} \text{ cm}^{-1} \\
 N_s^{500K} &= 5.8110^{12} \text{ cm}^{-1}
 \end{aligned} \tag{3.2}$$

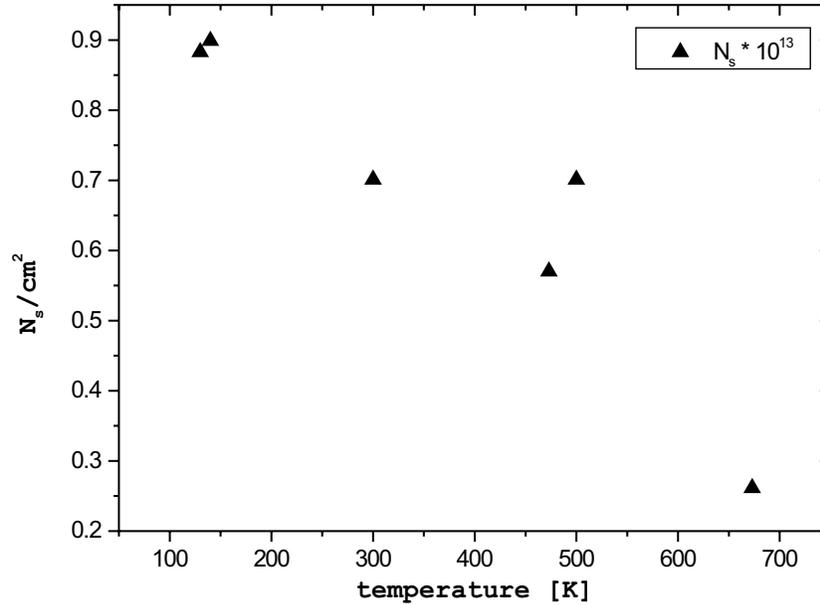


Abbildung 3.2: Mit He-Atomstrahlstreuung bestimmter Verlauf der Inselkeimdichte  $N_s$  [PF99]

Inwiefern kann aber aus  $N_s$  auf  $A_0$  geschlossen werden? Im einfachsten Falle können wir setzen

$$A_0 = \frac{1}{N_s}. \quad (3.3)$$

Dies garantiert Flächenbedeckung für  $d \rightarrow \infty$  lässt jedoch unberücksichtigt, dass bereits für viel kleinere Dicken eine Inselberührung und damit Vernetzung stattfindet, das heisst, die maximal erreichbare reale Fläche ist kleiner. Es kann also für bereits viel kleinere Aufdampfdicken keine Rede mehr von einem Inselfilm sein, vielmehr handelt es sich um einen vernetzten Film mit 'Löchern'. Der Ansatz 3.1 beschreibt genau genommen eine regelmässige, symmetrische und flächenerfüllende Anordnung von Inseln.

Trotz dieser Bedenken nehmen wir für die nachfolgend diskutierten Effektivmedienmodelle auch das Wachstumsgesetz 3.1 an, wobei wir im Kapitel mit den Ergebnissen sehen werden, dass dieser Ansatz geeignet ist, um die Spektrenentwicklung zu beschreiben.

## 3.2 Ein einfaches Wachstumsmodell

Wir wollen hier eine kurze theoretische Motivation für das Wachstumsgesetz 3.1 liefern, damit die Gleichung 3.1 nicht so in der Luft stehen bleibt, wobei wir einfachheitshalber das Aufwachsen eines Materials auf aus gleichem Material bestehendem Substrat betrachten. Die zuvor erwähnten Eigenschaften des Mischsystems Fe/MgO

lassen vermuten, dass sich die Ergebnisse grösstenteils auch auf das Aufwachsen von Eisen auf Magnesiumoxid übertragen lassen.

Betrachten wir eine idealisierte Insel, die aus mehreren, gleich dicken Atomlagen besteht. Zwischen den einzelnen Atomlagen soll kein Materialtransfer stattfinden (Annahme einer Transportbarriere am Lagenrand), so dass zum Wachstum der  $i$ -ten Lage nur die unbedeckte Fläche der  $(i-1)$ -ten Lage beiträgt. Bezeichnen wir die Bedeckung der  $i$ -ten Lage mit  $\xi_i = \frac{A(d)}{A_{max}}$  so ergibt sich für unseren modellhaften Wachstumsprozess folgendes gekoppeltes Differenzialgleichungssystem

$$\frac{d\xi_i}{dt} = c(\xi_{i-1} - \xi_i) \quad (3.4)$$

mit einer von der Aufdampftrate abhängigen Konstanten  $c$ .

Wie wir gleich zeigen werden, kann die Lösung der Gleichung 3.4 durch Induktion nach  $i$  erhalten werden, wobei mit der Randbedingung  $\xi_0 = 1, \xi_i = 0, i > 0$ , dass das Substrat eine vollkommen bedeckte Lage beschrieben werden kann, sich als Lösung von Gleichung 3.4 ergibt

$$\xi_i(t) = 1 - e^{-ct} \sum_{k=0}^{i-1} \frac{(ct)^k}{k!}. \quad (3.5)$$

Für die Bedeckung der ersten Lage  $\xi_1$  ergibt sich trivialerweise der Induktionsanfang, denn setzen wir  $i = 1$  und differenzieren Gleichung 3.5 nach  $t$  so ist

$$\frac{d\xi_1}{dt} = \frac{d}{dt}(1 - e^{-ct}) = ce^{-ct} = c(1 - (1 - e^{-ct})) = c(\xi_0 - \xi_1). \quad (3.6)$$

Machen wir nun den Induktionsschritt  $n \rightarrow n+1$ , setzen die Induktionsvoraussetzung ein, und beachten, dass wir die Gleichung 3.5 für die  $i$ -te Lage auch schreiben können als

$$\xi_{i+1} = \xi_i - e^{-ct} \frac{(ct)^i}{i!} \quad (3.7)$$

und erhalten damit nun durch Einsetzen in die ursprüngliche Differentialgleichung 3.4:

$$\begin{aligned} \frac{d\xi_{i+1}}{dt} &= c(\xi_{i-1} - \xi_i) - \frac{d}{dt}\left(e^{-ct} \frac{(ct)^i}{i!}\right) \\ &= c(\xi_{i-1} - \xi_i) + ce^{-ct} \frac{(ct)^i}{i!} + ce^{-ct} \frac{(ct)^{i-1}}{(i-1)!} \\ &= c(\xi_{i-1} - \xi_i) + ce^{-ct} \frac{(ct)^i}{i!} - c(\xi_{i-1} - \xi_i) \\ &= ce^{-ct} \frac{(ct)^i}{i!} \\ &= c(\xi_i - \xi_{i+1}), \end{aligned} \quad (3.8)$$

das heisst gerade den oben behaupteten Zusammenhang 3.5. Wir finden so das bereits in den HAS-Experimenten gefundene Wachstumsgesetz 3.4, denn für die

erste Insellage, d.h. die Inselgrundfläche mit  $i = 1$  ergibt sich der einfache Ausdruck

$$\xi_1(t) = 1 - e^{-ct}. \quad (3.9)$$

Problematisch ist natürlich die zur Herleitung benutzte Anfangsbedingung  $\xi_0 = 0$ , denn streng genommen handelt es sich bei  $\xi_0$  um die MgO-Substratlage. Dies ist aber gerechtfertigt, falls alle auf das MgO-Substrat aufprallenden Eisentome zur Inselbildung beitragen.

Es sind an dieser Stelle noch andere Wachstumsmodelle für isolierte Inseln auf einer Substratoberfläche vorstellbar, wir könnten zum Beispiel unseren ursprünglichen Ansatz 3.4 um einen Transportterm  $\eta$  zwischen den einzelnen Lagen erweitern. In der Literatur findet man eine Reihe von anderen Wachstumsmodellen, wie z.B. das Wachstumsmodell von Zinsmeister für Inselwachstum an einem einatomaren Kondensationskeim (siehe [WH95]), wobei wir diesmal im Gegensatz zu 3.4 mit  $\rho_k$  nicht die Lagenbedeckung, sondern die Dichte k-atomarer Keime meinen

$$\frac{d\rho_0}{dt} = \zeta - \frac{\rho_0}{\tau_s} - 2c_0\rho_0 - \sum_{k>0} c_k\rho_k, \quad (3.10)$$

wo  $\rho_0$  die Dichte der an der Oberfläche sorbierten Atome bezeichnet. Der Parameter  $\zeta$  hat die Bedeutung einer Sorptionsrate neuer Teilchen an der Kristalloberfläche, der Term  $\frac{\rho_0}{\tau_s}$  beschreibt hingegen die Desorption von bereits an der Oberfläche befindlichen Teilchen mit einer mittleren Desorptionsrate  $\tau_s$ . Der dritte Term beschreibt die Bildung von Atompaaaren, für die jeweils zwei Atome verbraucht wurden. Analog beschreibt die Summe die Raten, mit der die Einzelatome verschwinden, indem sie sich an bereits gebildete Keime mit k Atomen anlagern. In den Gleichungen für  $\rho_j, j > 0$  treten nun grössenabhängige Konstanten  $c_k$  auf. Wir wollen dieses schwer lösbare (bei Kenntnis von  $c_k$  numerisch integrierbare) System hier nicht betrachten, beschränken uns also im Folgenden nur noch auf den vereinfachten Ansatz 3.4 und dessen Lösung 3.9.

Betrachten wir eine makroskopische Oberfläche mit vielen Inseln, so kann man zwar nicht mehr davon sprechen, dass jedes auf das Substrat auftreffende Atom zur Flächenvergrößerung der ersten Insellage beiträgt, da die einzelnen Inseln miteinander konkurrieren (was sich später dadurch bemerkbar macht, dass grössere Inseln auf Kosten kleinerer weiter wachsen und die kleineren 'verschlingen' können), trotzdem können wir uns einen Einzugsbereich der betrachteten Insel denken, der mit einem effektiven, von der Grösse der gesamten Insel weitgehend unabhängigen Teilchenstrom versorgt wird, so dass 3.4 für  $i = 1$  ihre Gültigkeit doch noch behält.



## Kapitel 4

# Effektivmedientheorie für dünne Metallfilme

In vielen praxisrelevanten Fällen haben wir es nicht mit einem homogenen Material zu tun, sondern mit einer Mischung von mehreren Substanzen, die z.B. auf einer Oberfläche adsorbiert sind. In der Regel kann eine solche Mischschicht nicht einfach mit den summarischen Eigenschaften ihrer Bestandteile erklärt werden, man denke z.B. an die Oberfläche einer Seifenblase, die aus orientierten Seifen- und Wassermolekülen besteht und keine Ähnlichkeit mehr mit einem Seifenstück hat. Die Existenz einer effektiven Dielektrizitätskonstanten ist nach wie vor ein intensiver Forschungsschwerpunkt.

Oft interessiert man sich speziell für dielektrische Eigenschaften eines solchen Systems, wie z.B. Transmissions- oder Adsorptionsverhalten in einem bestimmten Frequenzbereich oder eben die Dielektrizitätskonstante. Die Hauptaufgabe eines Effektivmedienmodells besteht darin, durch Herleitung einer effektiven Dielektrizitätskonstanten einen Weg zur Berechnung der eigentlich interessierenden Größen wie  $T(\omega)$ ,  $A(\omega)$  usw. über bekannte Zusammenhänge aus der Mehrschichtoptik (siehe [Bar98]) zu eröffnen.

Im einfachsten Fall einer von unter den ins Dielektrikum eingebetteten metallischen Partikeln herrschenden Wechselwirkung freien Schicht, kann man sich mit Hilfe der Maxwell'schen Gleichungen überlegen, dass zumindest solange die einzelnen Partikel ihre bulk-artigen Eigenschaften beibehalten, eine summarische Dielektrizitätskonstante bestimmt werden kann, solange sich die von den einzelnen Materialien hervorgerufenen Polarisierungen addieren. Die relative Dielektrizitätskonstante wird in der Regel aus den makroskopischen Maxwellgleichungen hergeleitet und zwar können wir für die dielektrische Verschiebung schreiben

$$\vec{D} = \epsilon\epsilon_0\vec{E} = \vec{P} + \epsilon_0\vec{E}. \quad (4.1)$$

Falls sich nun ein tensorieller Zusammenhang zwischen dem angelegten äusseren Feld  $\vec{E}$  und der in dem Material hervorgerufenen Polarisierung  $\vec{P}$  der Art

$$P_i = \chi_{i,j}E_j \quad (4.2)$$

finden lässt, können wir für die effektive Dielektrizitätskonstante des Mediums schreiben

$$\epsilon_{eff} = \frac{\chi + \epsilon_0}{\epsilon_0}. \quad (4.3)$$

Diese Gleichung bildet die Grundlage für hier die hier betrachteten Effektivmedienmodelle. Bei dieser Art der Herleitung sollte man allerdings nicht vergessen, dass die hierfür als Ausgangspunkt benutzte makroskopische Maxwellgleichung 4.1 eigentlich nur sog. Dipolnäherung darstellt, wobei nur Dipolbeiträge bei dem Übergang zu dem makroskopischen Feld  $\vec{D}$  berücksichtigt wurden. Betrachten wir eine dünne Schicht, in der sich aus Symmetriegründen die von den Dipolen herrührenden Beiträge zum lokalen Feld  $\vec{E}_{loc}$  kompensieren, so ist die Gleichung 4.1 zwar in der Dipolnäherung korrekt, doch zur Bestimmung einer effektiven Dielektrizitätskonstanten ungeeignet.

Die Kenntnis der komplexen Grösse  $\epsilon(\omega)$  genügt, um bei bekannter Schichtfolge die optischen Eigenschaften berechnen zu können, was in der Regel mit dem z.B. in [Bar98] Mehrschichtformalismus erfolgen kann. Die AG Pucci verwendet hierfür die Spezialsoftware SCOUT (siehe [Sci]), auf die wir noch im Anhang eingehen.

Wir gehen nun auf die zur Anpassung der Fe/MgO Spektren benötigten Effektivmedienmodelle ein, wobei wir im weiteren Verlauf ein etwas komplizierteres Verfahren kennenlernen werden, mit dem es möglich ist, weitgehend auch eine globale Film-morphologie zu berücksichtigen.

## 4.1 Yamaguchi-Modell für isolierende Fe-Inselfilme

Das sogenannte Yamaguchi-Modell ist im Laufe der Jahre von seinem Erfinder zu einer recht brauchbaren Effektivmedientheorie entwickelt worden. Es existiert hierzu eine ganze Fülle von Publikationen, wobei wir uns nur auf die Ergebnisse konzentrieren, die für die später betrachtete Gitterrenormierung benötigt werden. Ursprünglich ist dieses Modell zur Beschreibung von dünnen Silberfilmen auf einer Kunststoffolie entwickelt worden.

Wir geben hier ein kurze Herleitung der Yamaguchi-Formel an, wobei wir eine Reihe von Vereinfachungen verwenden. [Dav39] gibt für die Polarisierbarkeit eines im Vergleich mit der Wellenlänge des einfallendes Lichts kleines ellipsoidalen Partikels pro Volumen an

$$\alpha = \frac{\epsilon_i - \epsilon_e}{1 + f \frac{\epsilon_i - \epsilon_e}{\epsilon_e}}, \quad (4.4)$$

wobei  $\epsilon_i$  die relative Dielektrizitätskonstante der ellipsoidalen Insel,  $\epsilon_e$  analog die Dielektrizitätskonstante des die Insel umgebenden Mediums (environment) ist. Die Gestalt der Inseln wird durch den Depolarisationsfaktor  $f$  des Partikels in der durch das  $\vec{E}$ -Feld des einfallenden Lichtes ausgezeichneten Raumrichtung berücksichtigt.

Für einen Inselfilm auf einer weitgehend ebenen Oberfläche liegt es nahe,  $\epsilon_e = 1$

zu setzen, da der von den Inseln unbesetzter Zwischenraum durchaus mit Vakuum indentifiziert werden darf. Dies berücksichtigt jedoch nicht den sogenannten Durchgriff des Feldes in das Substrat hinein, so dass wir für den Fall einer metallischen Insel auf dielektrischer Unterlage von  $\epsilon_e > 1$  ausgehen dürfen.

Für die durch eine solche Partikelschicht erzeugte dielektrische Polarisierung können wir schreiben

$$\vec{P} = \alpha q \vec{E}_0 \quad (4.5)$$

mit einem Volumenfüllfaktor der Schicht  $q$  und können nun Gebrauch von 4.3 machen, wobei wir einfachheit halber  $\epsilon_0 = 1$  setzen und erhalten

$$\epsilon_{eff} = 1 + q \frac{\epsilon_i - \epsilon_e}{1 + f \frac{\epsilon_i - \epsilon_e}{\epsilon_e}}. \quad (4.6)$$

Dies ist eine zu der von Yamaguchi et al. (siehe [SYK70]) vorgestellten analoge Formel für die effektive Dielektrizitätskonstante einer aus ellipsoidalen Inseln bestehenden dünnen Oberflächenschicht.

Im weiteren Verlauf werden wir uns noch Gedanken machen müssen, wie der geometrische Depolarisationsfaktor  $f$  in der Formel 4.6 durch die Wechselwirkung des Dipols mit seinem Spiegelbild im Substrat zu modifizieren ist. Eine streng theoretische Herleitung muss noch Retardierungseffekte berücksichtigen, wir wollen diesen Weg im Folgenden kurz skizzieren.

Wir möchten das lokale elektrische Feld  $\vec{E}_l$  am Ort des Bezugspartikels, den wir in den Ursprung legen, ausrechnen. Das Feld setzt sich aus dem angelegten Feld  $\vec{E}_e$  und den Beiträgen aller anderen umgebenden Partikel  $\vec{E}_k$  zusammen, so dass wir für  $\vec{E}_l$  schreiben können

$$\vec{E}_l = \vec{E}_e + \sum_k \vec{E}_k. \quad (4.7)$$

Wir können nun annehmen, dass die Wellenlänge des einfallenden Lichts gross gegenüber der Ausdehnung der einzelnen Partikel ist, was auch eine Voraussetzung für die Gültigkeit der Gleichung 4.4 ist. Da im Allgemeinen die Filmausdehnung grösser als die Wellenlänge  $\lambda$  der Lichtstrahlung ist, müssen wir noch die Phasenverschiebung der von den entfernten Partikel kommenden Beiträge berücksichtigen. Für den Beitrag der  $k$ -ten Insel mit dem Dipolmoment  $\vec{p}_k$  am Koordinatenursprung zum lokalen Feld  $\vec{E}_l$  gilt

$$\begin{aligned} \vec{E}_k &= \frac{(1 - 3 \cos^2 \theta_0)}{4\pi\epsilon_e r_k^3} \vec{p}_k \\ &= \frac{(1 - 3 \cos^2 \theta_0) V_k \alpha_k \vec{E}_l}{4\pi\epsilon_e r_k^3} \exp\left(\frac{i2\pi}{\lambda} (r_k \sin \theta_k \sin \phi_0 + r_k)\right), \end{aligned} \quad (4.8)$$

wobei wir  $(r_k, \theta_k)$  die Polarkoordinaten des  $k$ -ten Partikels,  $\theta_{0,k}$  der Winkel zwischen dem Dipolmoment  $\vec{p}_k$  und dem Ortsvektor  $\vec{r}_k$  und  $\phi_0$  der Einfallswinkel der Lichtstrahlung ist. Die Gleichung 4.8 stellt nichts anderes dar, als das mit einem durch

Retardierungseffekte bedingten Phasenfaktor multiplizierte Dipolfeld, wie z.B. in [Jac83] nachzulesen ist, wobei wir angenommen haben, dass das lokale Feld überall die gleiche harmonische Zeitabhängigkeit besitzt, die nicht betrachtet werden muss.

Für den praxisrelevanten Fall des senkrechten Einfalls  $\phi_0 = 0$  nimmt die Gleichung 4.8 die vereinfachte Form an:

$$\vec{E}_k = \frac{(1 - 3 \cos^2 \theta_0) V_k \alpha_k \vec{E}_l}{4\pi \epsilon_e r_k^3} \exp\left(\frac{i2\pi}{\lambda} r_k\right). \quad (4.9)$$

Wir können nun die beiden Gleichungen 4.8 und 4.7 nach dem lokalen Feld  $\vec{E}_l$  auflösen und erhalten auf diese Weise

$$\begin{aligned} \vec{E}_l &= \frac{\vec{E}_e}{1 - \sum_k A_k V_k \alpha_k} \\ A_k &= \frac{(1 - 3 \cos^2 \theta_0) V_k \alpha_k \vec{E}_l}{4\pi \epsilon_e r_k^3} \exp\left(\frac{i2\pi}{\lambda} (r_k \sin \theta_k \sin \phi_0 + r_k)\right). \end{aligned} \quad (4.10)$$

Wir können nun einen Ansatz für die effektive Dielektrizitätskonstante einer  $d_0$  dicken Inselschicht wie in [TYK73a] machen:

$$d_0(\epsilon_{eff} - \epsilon_a) \vec{E}_e = \sum_k \vec{p}_k = \sum_k V_k \alpha_k \vec{E}_l = \frac{\vec{E}_e \sum_k V_k \alpha_k}{1 - \sum_k A_k V_k \alpha_k}. \quad (4.11)$$

Für die effektive Dielektrizitätskonstante finden wir so die einfache Beziehung

$$d_0(\epsilon_{eff} - \epsilon_a) = \frac{\vec{E}_e \sum_k V_k \alpha_k}{1 - \sum_k A_k V_k \alpha_k}, \quad (4.12)$$

da sich das lokale Feld  $\vec{E}_l$  wegekürzt. Wie in [SYK70] gezeigt, kann diese Gleichung für eine Schicht aus ellipsoidalen Inseln mit gleichem Volumen und Achsverhältnis in eine zu der schon vorhin hergeleiteten Gleichung analoge 4.6 umgeformt werden

$$\epsilon_{eff} - \epsilon_a = \frac{\epsilon_i - \epsilon_a}{1 + (f - \delta) \frac{\epsilon_i - \epsilon_a}{\epsilon_a}} q, \quad (4.13)$$

wobei  $q = d_w/d_o$  mit  $d_w = \text{Aufdampfdicke}$  wieder für den Füllfaktor steht. Der so eingeführte Korrekturfaktor  $\delta$  hat seinen Ursprung in der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen dem in jeder Insel induzierten Dipolmoment  $\vec{p}$  und dem im Substrat influenzierten, ursprünglichen Dipolmoment  $\vec{p}$  entgegengesetzten Spiegeldipol  $\vec{p}'$ , die wir durch eine Modifikation am geometrischen Depolarisationsfaktor  $f$  berücksichtigen werden. Wir wenden uns nun der Berechnung dieses Korrekturfaktors  $\delta$ .

Betrachten wir eine zweidimensionale Substratoberfläche mit der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_s$ , auf der metallische Partikel angeordnet sind. Wir nehmen im Folgenden wie schon bei der Herleitung der Yamaguchi-Formel ein parallel zum Substrat anliegendes elektrisches Feld  $\vec{E}_{||}$  an.

Ein metallisches Partikel auf der Oberfläche erfährt unter dem Einfluss von  $\vec{E}_{\parallel}$  ein Dipolmoment  $\vec{p}$ , welches im Substrat ein  $\vec{p}'$  entgegengerichtetes Bilddipolmoment  $\vec{p}'$  hervorruft. Falls das Substrat ans Vakuum grenzt ( $\epsilon = 1$ ), besteht zwischen den beiden Dipolmomenten der Zusammenhang (siehe [TYK73b]):

$$\vec{p}' = \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1} \vec{p}. \quad (4.14)$$

Wir interessieren uns nun für das lokale elektrische Feld am Ort des Dipols  $\vec{p}$ . Für den Beitrag  $E_{\parallel}^s$  des Spiegeldipols  $\vec{p}'$  zum lokalen Feld am Ort des Bezugdipols  $\vec{p}$  können wir schreiben

$$\vec{E}_{\parallel}^s = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 d^3} \vec{p}' = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 d^3} \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1} \vec{p}, \quad (4.15)$$

wobei für  $d$  der Abstand zwischen dem Dipol  $\vec{p}$  und seinem Spiegelbild einzusetzen ist.

Wir möchten nun auch noch die Wechselwirkung mit benachbarten Dipolmomenten berücksichtigen und berechnen zu diesem Zweck den Beitrag zum lokalen Feld am Ort des Dipols  $\vec{p}$ , der vom  $j$ -ten Teilchen mit dem Dipolmoment  $p_j$  an der Stelle  $\vec{r}_j(r_j, \theta_j)$  kommt. Nehmen wir noch den praxisnahen Fall an, dass  $r_j \gg d$  und der Winkel  $\phi_j \approx 0$  unter dem das Dipolpaar ( $\vec{p}_j, \vec{p}'_j$ ) vom Aufdipol erscheint, so können wir das Dipol-Spiegeldipolpaar durch eine effektives Dipolmoment an der Stelle  $r_j$  ersetzen und zwar können wir schreiben, wenn wir die Gleichung 4.15 verwenden:

$$p_{\parallel,j}^{\vec{e}ff} = p_{\parallel,j} - p'_{\parallel,j} = \frac{2}{\epsilon_s + 1} p_{\parallel,j}. \quad (4.16)$$

Um die Änderung des lokalen Feldes am Ort des Aufdipols  $\vec{p}$  aufgrund der Dipol-Dipol-Wechselwirkung auszurechnen, ist über alle Nachbarn d.h. den ganzen Film zu summieren:

$$\vec{E}_{\parallel}^n = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2}{\epsilon_s + 1} \sum_j \frac{1 - 3 \cos^2(\theta_j)}{r_j^3} p_{\parallel,j} \vec{p}. \quad (4.17)$$

Nehmen wir noch den einfachen früher schon verwendeten Ansatz für die Polarisierung der Partikel an, wobei wieder die Lichtwellenlänge gross im Vergleich zu der Ausdehnung der Inseln sein muss, so gilt:

$$\vec{p}_{\parallel} = \alpha V \vec{E}_{loc}. \quad (4.18)$$

Das lokale Feld am Ort des Bezugdipols  $\vec{E}_{loc}$  setzt sich zusammen aus dem von aussen angelegten Feld  $\vec{E}_0$ , dem Beitrag  $\vec{E}_{\parallel}^s$  des Spiegeldipols  $\vec{p}'$  und der benachbarten effektiven Dipole  $p_{\parallel,j}^{\vec{e}ff}$ ,  $\vec{E}_{loc} = \vec{E}_0 + \vec{E}_{\parallel}^s + \vec{E}_{\parallel}^n$  und wir können schreiben

$$\vec{E}_{loc} = \frac{\vec{E}_0}{1 + \alpha_{\parallel} \delta_{\parallel}}, \quad (4.19)$$

wobei wir zur Abkürzung einen Korrekturfaktor  $\delta_{\parallel}$  eingeführt haben:

$$\delta_{\parallel} = -\frac{V}{4\pi\epsilon_0 d^3} \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1} + \frac{2}{\epsilon_0(\epsilon_s + 1)} C_{\parallel}. \quad (4.20)$$

Die Grösse  $C_{\parallel}$  ist die Summe über alle anderen Nachbarn des Aufdipols  $\vec{p}$  für die wir nun schreiben:

$$C_{\parallel} = \frac{V}{4\pi} \sum_j \frac{1 - \cos^2 \theta_j}{r_j^3}. \quad (4.21)$$

Diese Summe kann numerisch ausgewertet werden, z.B. mit Maple, wobei wir für den Fall einer regulären quadratischen Anordnung der Partikel mit der Gitterweite  $a$  den genäherten Wert bekommen:

$$C_{\parallel} = -0.716 \frac{d_w}{2a}, \quad (4.22)$$

mit der oben schon definierten Aufdampfdicke (weight thickness)  $d_w$ . Setzen wir noch ellipsoidale Inseln (Rotationsellipsoide) mit dem Achsverhältnis  $\gamma = \frac{a}{c}$  ( $c$  = Rotationshalbachse senkrecht zur Substratoberfläche), so ist das Volumen  $V$  der Partikel (Inseln) gegeben durch:

$$V = \frac{4\pi}{3} \gamma^2 c^3. \quad (4.23)$$

Für den Korrekturfaktor  $\delta_{\parallel}$  erhalten wir nun den folgenden Ausdruck:

$$\epsilon_0 \delta_{\parallel} = -\frac{\gamma^2}{24\eta^3} \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1} - 0.716 \frac{2}{\epsilon_s + 1} \frac{d_w}{2a} \quad (4.24)$$

mit  $\eta = \frac{d}{2c}$ . Wir können noch von der in [BDK89] angegebenen Formel profitieren

$$\frac{d_w}{a} = \sqrt{\frac{6q^3}{\pi\gamma^2}}, \quad (4.25)$$

so wird  $\delta_{\parallel}$  unabhängig von der Gitterweite  $a$  und hängt nur noch von der Dielektrizitätskonstanten des Substrats, der des Mediums, dem Achsverhältnis der Ellipsoide und dem Füllfaktor ab. Wir können nun zur Gleichung 4.13 zurück gehen, den Korrekturfaktor  $\delta_{\parallel}$  anbringen und erhalten mit der zuvor erwähnten Annahme  $\epsilon_a \approx 1$  die von Yamaguchi et al. hergeleitete Formel:

$$\begin{aligned} \epsilon_{eff} &= 1 + \frac{q}{F_{\parallel} + G} \\ G &= \frac{1}{\epsilon_i - 1} \\ F_{\parallel} &= f_{\parallel} - \frac{\gamma^2}{24} \frac{\epsilon_s - 1}{\epsilon_s + 1} - 0.716 \frac{1}{\epsilon_s + 1} \sqrt{\frac{6q^3}{\pi\gamma^2}}, \end{aligned} \quad (4.26)$$

wobei wieder mit  $f_{\parallel}$  der geometrische Depolarisationsfaktor in Richtung des angelegten elektrischen Feldes gemeint ist. Für ein Rotationsellipsoid lässt sich  $f_{\parallel}$  als

Funktion des Achsverhältnisses  $\gamma$  geschlossen angeben und zwar ist

$$\begin{aligned}
 f &= \frac{1}{3}, \gamma = 1 \\
 f &= \frac{(1 + \zeta^2)(\zeta - \arctan(et))}{\zeta^3}, \gamma > 1 \\
 f &= \frac{(1 - \zeta^2)(\ln((1 + \zeta))}{2\zeta^3((1 - \zeta) - 2\zeta)}, \gamma < 1 \\
 \zeta &= \sqrt{|1 - \gamma^2|}.
 \end{aligned} \tag{4.27}$$

Die Grösse  $f(\gamma)$  ist entgegen der Vermutung eine stetige, differenzierbare Funktion des Achsverhältnisses  $\gamma$ . Wir könnten nun im Prinzip das so entwickelte Yamaguchi-Modell zur Beschreibung einer aus ellipsoidalen Inseln bestehenden Inselfschicht benützen.

Werfen wir noch einen Blick auf die Gleichung 4.26, so stellen wir fest, dass dieses Modell die unschöne Eigenschaft hat, eine 'Resonanz' im Verlauf der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_{eff}$  aufgetragen gegen das Achsverhältnis  $\gamma$  zu besitzen. Setzen wir nämlich  $f - \delta = 0$ , so wird an der so bestimmten Nullstelle der Nenner in 4.26 minimal und damit auch  $\epsilon_{eff}$  maximal.

Natürlich hängt das nun vom angenommenen Wachstumsmodell ab, inwiefern sich diese Resonanz bei der Beschreibung der Transmission bemerkbar macht, jedenfalls wird sich bei einer als fest vorausgesetzten Inselfdichte das Achsverhältnis  $\gamma$  mit zunehmender Aufdampfdicke ändern und damit auch der Korrekturfaktor  $\delta$ . Als Beispiel sehen wir in Abbildung 4.1 den Verlauf von  $f - \delta$  für eine 30 Å dicke Inselfschicht, wobei wir für die Keimdichte der Inseln den Zimmertemperaturwert  $N_s = 710^{12}/cm^2$  benützt haben. Wie wir sehen können, besitzt der Faktor  $f - \delta$  zwei Nullstellen bei zwei für eine Anwendung relevanten Werten von  $\gamma$ , was eine Anwendung des Yamaguchi-Modells auf eine Messreihe mit veränderlichem Füllfaktor und Achsverhältnis erschwert.

Was ist aber nun für den Füllfaktor  $q$  und das Achsverhältnis einzusetzen, wenn wir eine Fe/MgO Aufdampfreihe bei einer gegebenen Temperatur  $T_a$  beschreiben möchten? Nun, der Füllfaktor ist nichts anderes als das Verhältnis von aufgedampfter Massenbelegung  $d_w$  zu der optischen Schichtdicke  $d_o$ , die auch in SCOUT zur Transmissionsberechnung übergeben werden muss. Die Massenbelegung ist für die mit der OPUS-Software aufgenommenen Spektren aus der Aufdampftratenreichung mit der Quarzwaage bekannt, bzw. kann aus der bekannten Aufdampftrate und der Aufdampfzeit pro Spektrum ausgerechnet werden (wie für die messr14-Aufdampfreihe geschehen).

Wir müssen uns demnach nur noch Gedanken über den Verlauf von  $d_o(d_w)$  machen. Aus dem vorhin abgeleiteten Wachstumsgesetz ohne Teilchentransport zwischen den Wachstumslagen einer Insel, ergibt sich wenn man das Aussehen der Insel nach Gleichung 3.5 betrachtet, dass die Insel die Form einer Gaussglocke, besser gesagt einer Zipfelmütze hat. Die Gestalt ist nun eher kubusförmig als ellipsoid, was sich für unse-

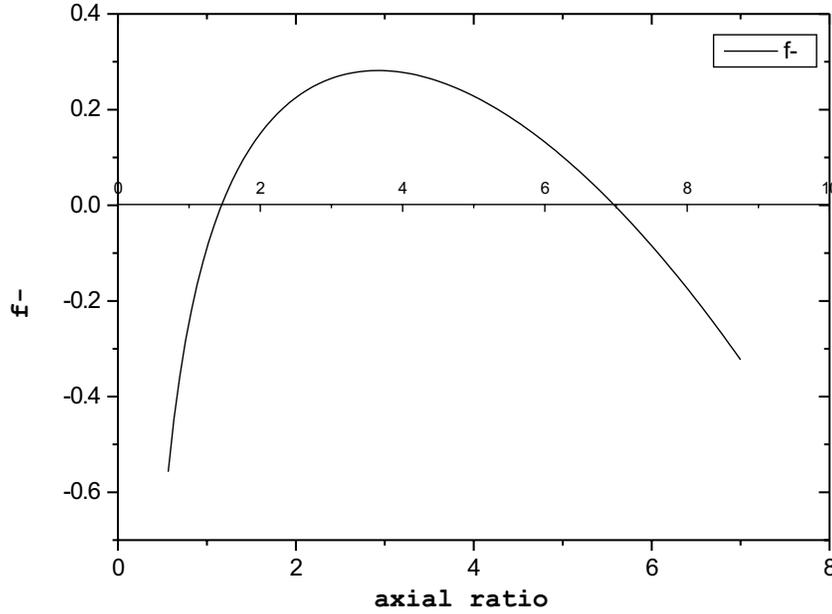


Abbildung 4.1: Verlauf des Korrekturfaktors  $f - \delta$  für eine  $30 \text{ \AA}$  dicke Inselfschicht bei  $T=313 \text{ K}$

re späteren Rechnungen auf einem quadratischen Gitter noch als vorteilhaft erweisen wird, aber wieder mal mehr gegen die Verwendung eines reinen Yamaguchi-Modells spricht.

Trotz all dieser Schwierigkeiten ist es notwendig, eine Annahme über das Aussehen von  $d_o(d_w)$  zu machen, falls wir das hier vorgestellte Yamaguchi-Modell auf einer Messreihe anwenden wollen. Es liegt nahe von Volumengleichheit einer aus Rotationsellipsoiden gebildeten Schicht und einer als eben angenommenen  $d_w$  dicken Aufdampfschicht auszugehen. Wir können nun den Ansatz für  $\gamma$  machen:

$$\frac{4}{3}\pi\gamma^2 c^3 N = A d_w \quad (4.28)$$

mit  $\gamma = \frac{a}{c}$  wie oben,  $N$  Anzahl der Inseln pro Fläche  $A$  und erhalten so

$$\gamma = \frac{4}{3}\pi a^3 \frac{N}{A} \frac{1}{d_w} = \frac{4}{3}\pi a^3 n_s \frac{1}{d_w}, \quad (4.29)$$

wobei wir noch die aus den He-Streudaten bekannte normierte Inseldichte  $n_s$  eingesetzt haben und aus Bequemlichkeitsgründen auf die kleine Halbachse  $a$  der Ellipsoide umgeformt haben. Setzen wir noch für die Entwicklung des Querschnitts unseres Modellellipsoids das Wachstumsgesetz 3.9 ein, so lässt sich auch  $a$  bestimmen und wir bekommen für die kleine Halbachse

$$a(d_w) = \sqrt{\frac{1 - e^{-\frac{\kappa d_w}{d_0}}}{\pi n_s}}. \quad (4.30)$$

Für die 'optische' Schichtdicke setzen wir nun die Höhe der Inselellipsoide ein, d.h.  $d_o = 2c = \frac{2a}{\gamma}$ . Damit sind alle wesentlichen Modellparameter bestimmt und wir können eine effektive Dielektrizitätskonstante einer aus Rotationsellipsoiden bestehenden Schicht ausrechnen. Als experimenteller 'Input' verbleiben die Keimdichte  $n_s(T)$ , der Wachstumsparameter  $\kappa$  und die aus den Ordalaten zu bestimmende dielektrische Funktion der metallischen Inseln  $\epsilon_i$ .

Wo liegen nun die Grenzen des Yamaguchi-Modells? Nun wir haben eine Reihe von Vereinfachungen gemacht, wie:

- die Wellenlänge der Lichtstrahlung muss wesentlich grösser sein als die Ausdehnung der Ellipsoide,
- die Ellipsoide sind gross genug, um die makroskopischen Maxwellgleichungen anwenden zu können,
- wir haben nur ein durch das Licht induziertes Dipolmoment berücksichtigt, höhere Multipole werden vernachlässigt
- wir nehmen weiterhin für den Querschnitt der Ellipsoide das Wachstumsgesetz 3.9 an, welches streng genommen für die erste Lage des transportlosen Wachstums zwischen den Atomlagen hergeleitet wurde,
- wir haben angenommen, dass die Inselabstände gross genug für die Näherung mit einem effektiven Dipolmoment wie in 4.16 sind, was mit einschliesst, dass der Füllfaktor  $q$  nicht zu gross gewählt werden darf.

Wenden wir uns noch dem letzten Aspekt zu. Wächst der Inselquerschnitt gemäss 3.9 an, gibt es einen kritischen Füllfaktor  $q_{crit}$ , ab dem sich die Seitenflächen der Ellipsoide berühren würden, da wir für die maximal erreichbare Querschnittsfläche ja  $\frac{1}{n_s}$  angenommen haben, d.h. von einer vierzähligen Geometrie ausgegangen sind. Es existiert demnach eine bereits vor Zusammenbrechen der Effektivdipolnäherung auftretende Grenze für den Filmfüllfaktor  $q$ . Für  $q > q_{crit}$  hätten wir es nicht mehr mit einem isolierenden Inselfilm zu tun, der Film würde bereits vernetzen.

Wir möchten nun mit den aus den HAS-Experimenten gewonnenen Daten eine Abschätzung für die Anwendbarkeit des Yamaguchi-Modells vornehmen. Der kritische Füllfaktor  $q_{crit}$  wird erreicht, wenn die a-Achse des Ellipsoids halb so gross wird wie die Wurzel aus der maximal zur Verfügung stehenden Inselfläche  $\frac{1}{n_s}$ , d.h.

$$\sqrt{\frac{1}{n_s}} = 2a = 2\sqrt{\frac{1 - e^{-\frac{\kappa d_o}{d_0}}}{\pi n_s}}. \quad (4.31)$$

Aufgelöst nach der kritischen Aufdampfdicke  $d_{crit}$  ergibt sich

$$d_{crit} = -\frac{d_0 \ln(1 - \frac{\pi}{4})}{\kappa}, \quad (4.32)$$

also ein Wert, der nicht mehr von der Inseldichte  $n_s$  abhängt. Natürlich verbleibt noch die Geschwindigkeit des Wachstums beeinflussende Grösse  $\kappa$  und damit eine potentielle Temperaturabhängigkeit von  $d_{crit}$ . Nehmen wir wie aus den HAS-Experimenten bekannt für  $\kappa \approx 0.1$  und  $d_0 = 1.33 \text{ \AA}$  an, so erhalten wir damit für

die kritische Dicke  $d_{crit} \approx 20.47 \text{ \AA}$ , also ein Wert der sehr am Anfang des experimentell verfügbaren Dickenbereichs ist! Erschwerend kommt noch hinzu, dass wir auch noch an die Effektivdipolnäherung denken müssen, so dass der tatsächlich mit Yamaguchi nutzbare Dickenbereich bei noch kleineren Dicken endet. Realistisch ist in etwa  $d_{crit} \approx 10 \text{ \AA}$ . Wir werden uns Gedanken über ein besseres Modell machen müssen.

Wenden wir uns noch einem anderen, für das später betrachtete Berthier-Modell benötigten Effektivmedienmodell zu.

## 4.2 Cohen-Modell

Cohen et al. [CA73] entwickelten ein zur Beschreibung von durch Sputtern mit Argongas erhaltenen Metallfilmen auf  $SiO_2$  geeignetes Effektivmedienmodell. Die Beschreibung basiert in ihrem Ursprung auf der Maxwell-Garnet-Theorie und setzt wie schon beim Yamaguchi-Modell hinreichend kleine im Vergleich zur Wellenlänge der einfallenden Strahlung Inselpartikel voraus, die in ein dielektrisches Medium eingebettet sind. Natürlich darf wie auch schon zuvor die Inselgröße nicht zu klein gewählt werden, da wir die makroskopischen Maxwell-Gleichungen anwenden möchten.

Für eine aus sphärischen Metallpartikeln bestehende Schicht, können wir mit der Clausius-Mosotti Beziehung (siehe [Jac83]) für die effektive Dielektrizitätskonstante  $\epsilon$  schreiben

$$\frac{\epsilon(\omega) - 1}{\epsilon(\omega) + 2} = \frac{4}{3} \pi \eta \alpha(\omega), \quad (4.33)$$

wobei  $\alpha$  wieder die Polarisierbarkeit der Partikel und  $\eta$  die Volumendichte bezeichnet. Betrachten wir Inseln, die in ein Medium mit einer von Vakuum unterschiedlichen Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_s$  eingebettete sind, so muss die Beziehung 4.33 modifiziert werden, da wir bei der Herleitung der Clausius-Mosotti Gleichung nun nicht mehr von einem für die Berechnung des lokalen elektrischen Feldes konstruierten evakuierten Hohlraum ausgehen können. Stattdessen setzen wir für die dielektrische Konstante des Hohlraums nun  $\epsilon_s$  ein und bekommen:

$$\frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_s(\omega)}{\epsilon(\omega) + 2\epsilon_s(\omega)} = \frac{4}{3} \pi \eta \alpha(\omega). \quad (4.34)$$

Jackson (siehe [Jac83]) gibt für die Polarisierbarkeit einer von einem Medium mit der effektiven Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_i$  umgebenen Metallsphäre an:

$$\alpha = \frac{3}{4\pi} \frac{\epsilon_m(\omega) - \epsilon_i(\omega)}{\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_i(\omega)} \quad (4.35)$$

mit  $\epsilon_m$  Dielektrizitätskonstante der Metallpartikel. Durch Einsetzen in die obige Gleichung, erhalten wir das Ergebnis von Maxwell-Garnet:

$$\frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_s(\omega)}{\epsilon(\omega) + 2\epsilon_s(\omega)} = (1 - x) \frac{\epsilon_m(\omega) - \epsilon_i(\omega)}{\epsilon_m(\omega) + 2\epsilon_i(\omega)} \quad (4.36)$$

wo  $x$  der Volumenanteil des umgebenden Mediums ist. Leider berücksichtigt dieser im Rahmen der Maxwell-Garnett-Theorie abgeleiteter Ausdruck nicht eine von der sphärischen Geometrie abweichende Gestalt der Metallpartikel. Wir möchten nun analog wie beim Yamaguchi-Modell den Einfluss der Partikelgestalt durch einen weiteren Parameter, den Depolarisationsfaktor  $f$  berücksichtigen.

Galeener hat in [Gal71] eine einfache Behandlung des Depolarisationsfaktors  $f$  vorgeschlagen, für den Fall, dass die Richtung der Polarisation mit einer der Hauptachsen des Ellipsoids zusammenfällt. Es wird ein konstantes Achsverhältnis der Ellipsoide angenommen, es werden jedoch keine Bedingungen an die Grösse der Partikel gestellt, so dass die hier vorgestellte Formel auch für eine Verteilung der Inselgrössen mit festem Achsverhältnis anwendbar ist. Setzen wir für die Polarisierbarkeit der Inseln  $\alpha$  Galeeners Ergebnis ein, so folgt:

$$\frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_s(\omega)}{\epsilon(\omega) + 2\epsilon_s(\omega)} = \frac{1}{3}(1 - x) \frac{\epsilon_m(\omega) - \epsilon_i(\omega)}{f\epsilon_m(\omega) + (1 - f)\epsilon_i(\omega)}. \quad (4.37)$$

Wie man sich an zwei einfachen Beispielen überlegen kann, ist die Gleichung 4.37 nicht ganz richtig, ferner wurde dieses Ergebnis von Galeener für den Fall  $x \approx 1$  abgeleitet.

Betrachten wir zum Beispiel flache metallische Platten, wobei das elektrische Feld parallel zu den Platten anliegt d.h.  $f \approx 0$ , wissen wir, dass ausserhalb der plattenförmigen Partikel kein induziertes Depolarisationsfeld existiert und das lokale Feld gleich dem angelegten sein muss. Die effektive Dielektrizitätskonstante eines solchen Mediums sollte dann einfach ein mit dem Volumenanteil gewichteter Mittelwert der beiden Materialkonstanten sein. Leider ergibt sich dieser Grenzfall nicht aus 4.37, ausser für den Grenzfall sehr kleiner Metallkonzentration.

Analog können wir auch den Fall eines zu den Metallplatten senkrechten Feldes betrachten ( $f \approx 1$ ), welcher äquivalent zu einer unendlichen Reihenschaltung von Kondensatoren ist. Auch hier versagt die Formel 4.37.

Die Gleichung 4.37 muss nun modifiziert werden, um die soeben diskutierten Inkonsistenzen zu vermeiden. Wir erhalten die beiden Grenzfälle erst dann korrekt heraus, wenn wir von einer modifizierten Clausius-Mosotti-Beziehung ausgehen, und zwar verwenden wir zur Konstruktion des lokalen elektrischen Feldes keinen sphärischen Hohlraum, sondern eins, dessen Gestalt kongruent zu der im Hohlraum eingeschlossenen metallischen Inklusion und dem gleichen Depolarisationsfaktor  $f$  ist. Cohen gibt an dieser Stelle die Beziehung an:

$$\frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_i(\omega)}{f\epsilon(\omega) + (1 - f)\epsilon_i(\omega)} = (1 - x) \frac{\epsilon_m(\omega) - \epsilon_i(\omega)}{f\epsilon_m(\omega) + (1 - f)\epsilon_i(\omega)}. \quad (4.38)$$

Wie man sich durch Einsetzen von  $f = 0$  respektive  $f = 1$  und den Grenzübergang  $x \rightarrow 1$  überzeugen kann, werden die beiden kritischen Grenzfälle durch die neue Formel 4.38 reproduziert. Wir erhalten natürlich für sphärische Partikel mit  $f = \frac{1}{3}$  wieder die Beziehung von Maxwell-Garnett.

Wir möchten im Folgenden die Gleichung 4.38 zur Beschreibung eines vernetzen aber mit Löchern versehenen Metallfilmes anwenden. Wir interessieren uns nun für den noch nicht betrachteten Fall  $x \rightarrow 0$ . Wie auch schon beim Yamaguchi-Modell stoßen wir hier wieder auf das Problem von sich berührenden Partikel, sobald sich der Volumenfüllfaktor  $x$  dem Wert null nähert. Um dem Rechnung zu tragen, vertauschen wir die Rollen von Dielektrikum und Metall, nehmen also die Transformation vor:

$$\begin{aligned} \epsilon_m &\rightarrow \epsilon_i \\ \epsilon_i &\rightarrow \epsilon_m \\ (1-x) &\rightarrow x, \end{aligned} \tag{4.39}$$

wobei von nun an für den Depolarisationsfaktor  $f$  derjenige der dielektrischen Inseln einzusetzen ist. Wir können hiermit für die dielektrische Konstante eines solchen Mediums schreiben:

$$\frac{\epsilon(\omega) - \epsilon_m(\omega)}{f\epsilon(\omega) + (1-f)\epsilon_m(\omega)} = x \frac{\epsilon_i(\omega) - \epsilon_m(\omega)}{f\epsilon_i(\omega) + (1-f)\epsilon_m(\omega)}. \tag{4.40}$$

Wir werden diese Gleichung von jetzt an als 'Cohen-Modell' bezeichnen und sie zur Beschreibung von metallreichen Konfigurationen bei der noch zu besprechenden Gitterrenormierung benützen.

## Kapitel 5

# Renormierung auf dem Gitter

Wir möchten nun zu einem Effektivmedienmodell übergehen, der eine Variation der Filmmorphologie über das gesamte Substrat berücksichtigt. Natürlich werden wir auch diesmal eine Reihe von Vereinfachungen und Annahmen machen müssen, wie z.B. über die Form der elementaren Oberflächenstrukturen und ihre Beschreibung mit einem der vorhin entwickelten 'globalen' Effektivmedienmodelle. Das im folgenden vorgestellte Berthier-Modell geht auf die von L. Kadanoff entwickelte Renormierungstheorie im Ortsraum zurück (siehe [Kad66]). Wir möchten zuerst allgemein auf das Verfahren eingehen, uns dann einer programmtechnischen Realisierung wenden und danach die Eigenschaften dieses Modells diskutieren, wobei wir einige Modifikationen des Modells insbesondere auf das System Fe/MgO besprechen werden. Im nächsten Kapitel wollen wir dann die Anwendung auf die in der AG Pucci gemessenen Transmissionsspektren erläutern.

### 5.1 Das Berthier-Modell

In der Originalarbeit [BDK89] hat Berthier eine Möglichkeit beschrieben, wie die dielektrische Funktion eines auf MgO aufgedampften Goldfilmes mit einem rekursiven Verfahren bestimmt werden kann. Dazu wendete Berthier sein Verfahren auf mit Rastertunnelmikroskopie erhaltene Scans einer Au/MgO Probe und konnte so für die noch zu besprechende Renormierung eine Ausgangsstruktur benützen, die weitgehend mit der Oberflächenstruktur der Probe übereinstimmte. Bei dieser Herangehensweise bleibt das Modell weitgehend parameterfrei, obgleich Berthier weitgehend nur den Trend in der Spektrenentwicklung reproduzieren und weniger die genaue Übereinstimmung erreichen konnte.

Der Anspruch des Berthier-Modells besteht darin, den gesamten Dickenbereich einer Messreihe beschreiben zu können, im Gegensatz zum reinen Drude-Modell (wie in den Vorgängerarbeiten erläutert, (siehe [Mag99])) oder einem reinen Yamaguchi-Modell, das wie wir gesehen haben, bei bereits kleinen Aufdampfdicken  $d_w$  zusammenbricht. Das Modell von Berthier funktioniert gleichermassen für einen 2d beziehungsweise einen 3d Film, wobei je nach Dimensionalität ein anderes elementares Effektivmedienmodell zugrunde gelegt werden muss. Der Fall eines vernetzten Inselfilmes stellt einen Grenzfall dar und wir werden später sowohl ein 2d als auch ein 3d Modell zugrunde legen.

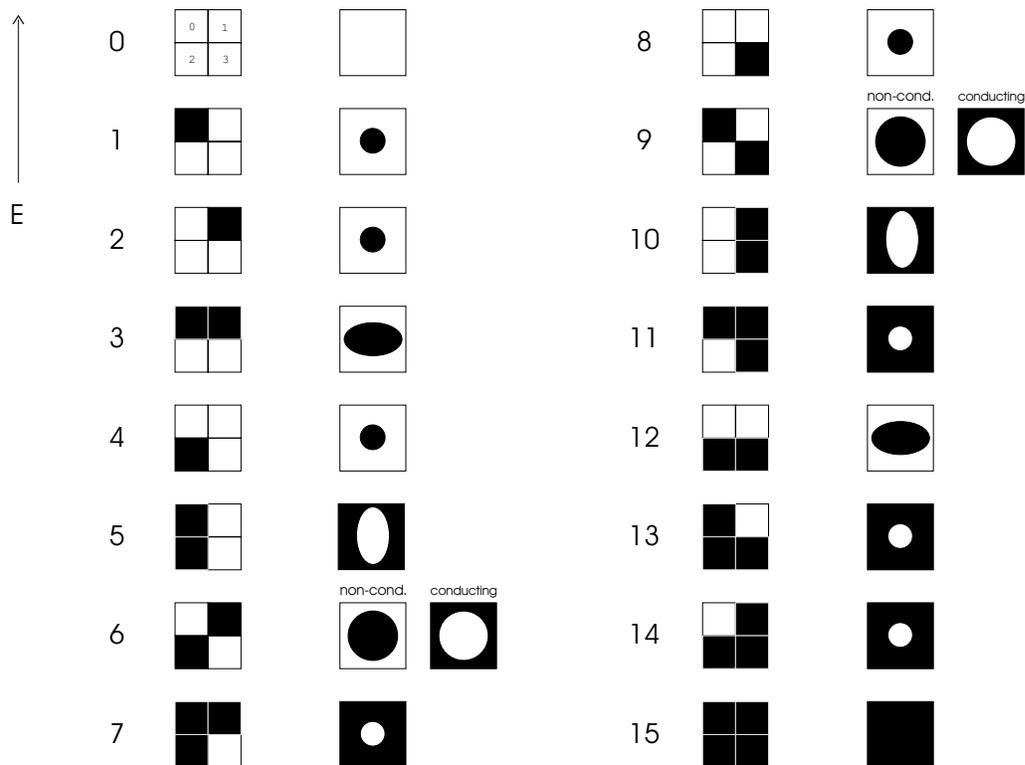


Abbildung 5.1: Renormierungsregeln des 2d Berthier-Modells

Um eine Einbeziehung der Filmmorphologie zu ermöglichen betrachten wir ein quadratisches, zweidimensionales Gitter der Grösse  $n = 2^p$  im kartesischen Koordinatensystem  $(i, j)$  mit  $(0, 0)$  in der oberen linken Ecke, wobei wir  $p$  als die Gitterordnung bezeichnen. Wir teilen nun das Gitter in kleinere Untereinheiten, im Folgenden gehen wir immer von einer Unterteilung in 4 gleich grosse Untergitter aus, so dass wir am Ende zu einer effektiven Elementarzelle mit der Grösse von 4 'Gittermaschen' gelangen. Die Wahl von  $n$  als Zweierpotenz garantiert ein 'Aufgehen' dieser Unterteilung. Wir können uns den Vorgang natürlich auch anders herum vorstellen, und zwar betrachten wir zuerst alle 4er Zellen ausgehend von der linken oberen Ecke, fassen dann die 4er Zellen (sprich 4 Gittermaschen) zu je vier Stück zusammen usw., bis wir schliesslich bei einer Zelle der ursprünglichen Gittergrösse gelangen.

Die Gittermaschen können anfänglich nun entweder mit dem aufgedampften Material oder mit dem Substrat 'belegt' (markiert) werden, so dass eine Elementarzelle wie in Bild 5.1 zu sehen in 16 unterschiedlichen Konfigurationen vorliegen kann (Metall schwarz). Natürlich müssen wir uns später auch noch Gedanken über eine entsprechende Verteilung der beiden Materialien auf unserem Gitter und dem damit verbundenem Gitterfüllfaktor  $\mu = \frac{\text{Anzahl Metallmaschen}}{2^p}$  machen. Wir haben einfachheitshalber die 16 Möglichkeiten mit ihrem Binärkode  $b_j$  numeriert, wobei die 'Dezimalen' bei der ersten Konfiguration angedeutet sind (links oben  $2^0$ , dann rechts  $2^1$  usw.) und wir können für den Binärkode ('Adresse') einer gegebenen Konfigura-

tion  $c_{i,j} = \{d_0, d_1, d_2, d_3\}$  schreiben

$$b = \sum_i d_i 2^i \quad (5.1)$$

wenn wir  $d_i \in \{0 = MgO, 1 = Metall\} = \mathfrak{A}$  setzen. Im allgemeinen können wir einem Gitterpunkt (Masche)  $(i, j)$  eine entsprechende dielektrische Funktion  $\epsilon_{i,j}$  zuordnen oder besser gesagt, an der Position  $i, j$  speichern. Wir sind an der dielektrischen Funktion der gesamten simulierten Oberfläche interessiert, brauchen natürlich jetzt eine Vorschrift wie

- wir bei gegebener Struktur (Konfiguration) der betrachteten Zelle eine effektive dielektrische Zellenfunktion ausrechnen können (Definition einer Ersatzzelle)
- von einer Elementarzelle auf übergeordnete Zellen nächst höherer Grösse schliessen, sprich die Elementarzellen zu grösseren Einheiten zusammenfassen können

Berthier gibt in seinem Artikel folgende Vorgehensweise zur Bestimmung einer eff. dielektrischen Funktion an: wir reduzieren zuerst die 4 Komponenten  $\epsilon_{i,j}$ ,  $\epsilon_{i+1,j}$ ,  $\epsilon_{i,j+1}$ ,  $\epsilon_{i+1,j+1}$  der Zelle  $(i, j)$  auf 2 gemittelte Bestandteile und zwar ein gemitteltes Dielektrikum  $\epsilon_D^*$  und ein gemitteltes Metall  $\epsilon_M^*$ . Dies ist wichtig, da wir es nur auf dem Niveau von Gittermaschen mit entweder Substrat oder Metall zu tun haben und daraus eine effektive Dielektrizitätskonstante ausrechnen können, aber bereits auf nächst höherer Ebene Zellen auftreten, die 4 effektive, bereits renormierte und sonst wie geartete dielektrische Funktionen enthalten. Wir setzen also

$$\begin{aligned} \epsilon_D^* &= \sum_k q_k \epsilon_D^k \\ \epsilon_M^* &= \sum_k q_k \epsilon_M^k \end{aligned} \quad (5.2)$$

wobei  $q_k$  den jeweiligen Füllfaktor der Komponente  $\epsilon_{\dots}^k$  bezeichnet (bei Viererzellen-geometrie  $\frac{1}{4}$ ) und jeweils über metallische respektive dielektrische Komponenten zu summieren ist.

Mit diesen beiden Zellkomponenten können wir nun nach den noch zu besprechenden Regeln eine effektive Dielektrizitätskonstante einer 4er Zelle ausrechnen. Zu diesem Zweck wird eine 4er Zelle durch eine effektive Zelle mit einer ellipsoidalen Inklusion ersetzt, was wir im Bild 5.1 jeweils in der rechten Spalte angedeutet haben, wobei jeweils die effektiven Füllfaktoren  $q_{\dots}^*$  der gemittelten Bestandteile durch Aufsummieren der Teilfüllfaktoren  $q_j$  erhalten werden, d.h. die Materialmenge bleibt konstant. Für die Depolarisationsfaktoren der ellipsoidalen Inklusion gilt für die gezeigte Richtung des  $\vec{E}$ -Feldes:

$$\begin{aligned} f_0 &= f_{15} = 0 \\ f_1 &= f_2 = f_4 = f_6 = f_7 = \\ f_8 &= f_9 = f_{11} = f_{13} = f_{14} = \frac{1}{3} \\ f_3 &= f_{12} = 0.4278 \\ f_5 &= f_{10} = 0.2364 \end{aligned} \quad (5.3)$$

Wir müssen natürlich auch noch eine Bedingung dafür finden, ob die aus einer Ersatzzelle berechnete effektive dielektrische Funktion als eine metallische oder dielektrische Komponente in die nächst höhere Zelle eingehen soll. Berthier macht dies davon abhängig, ob wir bei der gezeigten Richtung des angelegten Feldes von der unteren Kante der Zelle zu der oberen Kante über einen metallischen Kontakt gelangen können. Ist dies der Fall, trägt die so berechnete effektive Zellenfunktion das Attribut 'metallisch' und wir haben eine dielektrische Insel auf einem metallischen Substrat, sonst 'dielektrisch' und unsere Ersatzzelle besteht aus einer metallischen Inklusion auf einem dielektrischen Substrat.

Wir sehen natürlich sofort, dass sich im Fall der beiden Zellkonfigurationen 6 und 9 nicht ohne weiteres eine Bedingung dafür finden lässt, denn je nach Betrachtungsweise der metallischen Ecke in der Zellenmitte, können wir 2 Ersatzzellen konstruieren. Berthier nennt diese beiden Fälle einmal *conducting case* (die Ecke ist leitend) bzw. *non-conducting case* (die Ecke ist isolierend), das heisst wir können im Prinzip zwei unterschiedliche Modelle konstruieren, die eventuell je nach unserem Metall/Substrat System unterschiedlich gut geeignet sind. Diese beiden Fälle verhalten sich natürlich auch unterschiedlich in bezug auf den kritischen Gitterfüllfaktor  $\mu_c$ , bei dem die effektive Gitterfunktion  $\epsilon_{0,0}$  von 'dielektrisch' nach 'metallisch' umschlägt, d.h. die 'mathematische' Perkolationschwelle des Modells. Wie man sich überlegen kann, hängt diese im Limes  $p \rightarrow \infty$  nur von zur Renormierung benützten Abbildung  $R(c_{i,j}) \rightarrow \mathfrak{A}$  der Zellkonfiguration  $c_{i,j} = \{d_0, d_1, d_2, d_3\}$  auf die Menge  $\mathfrak{A}$ . Berthier gibt für die beiden Fälle die kritischen Füllfaktoren

$$\begin{aligned} \mu_c^{\text{conducting}} &\approx 0.378 \pm 0.005 \\ \mu_c^{\text{non-cond}} &\approx 0.575 \pm 0.005 \end{aligned} \tag{5.4}$$

an, was für ein quadratisches vierzähliges Gitter nicht dem erwarteten Wert von  $q_c \approx 0.5$  entspricht. Wir werden sehen, dass das Berthier-Modell so modifiziert werden kann, dass der kritische Füllfaktor eben diesen Wert annimmt.

Auf die so erhaltene effektive Zelle wenden wir nun lokal ein geeignetes Effektivmedienmodell an und berechnen die Dielektrizitätskonstante der Zelle  $\epsilon_{i,j}$ , wenn  $(i,j)$  die Gitterkoordinaten der linken oberen Zellenkomponente sind. Dieser Prozess von Mittelung und Beschreibung durch eine effektive Zelle wird mit immer grösseren, durch Verdopplung erhaltenen 'Schrittweiten' so lange fortgesetzt, bis wir schliesslich zu einer Zelle der Grösse  $n$  gelangen. Die effektive dielektrische Funktion  $\epsilon_{0,0}$  der Zelle 0,0 beschreibt nun die gesamte, durch die anfängliche Verteilung der beiden Ausgangsmaterialien beschriebene Probenoberfläche.

Berthier schlägt in seinem Originalartikel [BDK89] vor, alle 16 Zellkonfigurationen mit dem vorhin vorgestellten Yamaguchi-Modell zu beschreiben. Wir möchten im folgenden einen anderen Weg einschlagen und die 'metallischen' Zellkonfigurationen mit dem vorgestellten 'metall rich limit' der Cohen-Formel beschreiben. Man beachte an dieser Stelle noch, dass die Dielektrizitätskonstante der Zellentypen 0 und 15 alleine durch Mittelung über alle 4 Komponenten zustande kommt, es findet keinerlei Wechselwirkung zwischen den einzelnen Bestandteilen statt (wobei man nicht

vergessen sollte, dass sich 4 'schwarze' Maschen in ihren Dielektrizitätskonstanten unterscheiden können). Im Grenzfall eines voll mit metallischen Zellen (MgO) belegten Gitters, muss natürlich die in die Prozedur herein gesteckte ursprüngliche dielektrische Funktion des Metalls (bzw. MgO) herauskommen, was sich z.B. zu einer anfänglichen Überprüfung des Programms auf grobe Fehler ausnützen lässt (boundary check).

## 5.2 Umsetzung des Berthier-Modells in C++

Wir möchten nun eine kurze Diskussion des zur Berechnung der relativen Transmissionsspektren geschriebenen Programms anschliessen. In die Routinen sind einige Optimierungen und Verbesserungen gegenüber dem Originalmodell eingegangen, die wir nun diskutieren werden. Wir haben in der Kernroutine einige Elemente der objektorientierten Programmierung (OOP) verwendet, obgleich ein strikter OOP-Aufbau nicht angestrebt wurde. Es ist natürlich noch eine kompliziertere Abstraktionsebene als die hier vorgestellte denkbar, obwohl selbst so das Programm eine potentiellen Änderungen gegenüber flexible Struktur hat.

Als Eingangsdaten des Modells verwenden wir die schon früher erwähnten Ordal-Daten für Bulk-Fe bzw. das  $\gamma$ -Modell, die wir durch Interpolation mit einem kubischen Spline an diskreten, zur Berechnung der effektiven dielektrischen Funktion benötigten Stützstellen  $\omega_i, i = 0 \dots N - 1$  bestimmen. Was den Programmaufbau betrifft, spricht auch nichts gegen unregelmässig verteilte Stützstellen, doch wegen einer Einschränkung in den Übergabeformaten von SCOUT verwenden wir äquidistant verteilte Stützpunkte

$$\omega_i = \omega_{low} + i \frac{\omega_{high} - \omega_{low}}{N}. \quad (5.5)$$

Die Werte für die Drudeschen Parameter  $\omega_\tau, \omega_p$  sowie die Stützstellen selber werden in den globalen Arrays `ordalwt[]`, `ordalwp[]` und `ordalw[]` gespeichert. Der gesamte 'experimentelle' Input befindet sich in der Projektdatei `ordaldata.cpp` und kann bei Bedarf durch z.B. Daten eines anderen Materials wie Kupfer auf Silizium o.ä. ausgetauscht werden.

Definieren wir nun einen autonomen Datentyp (Klasse) *Lentry* (lattice entry) als Platzhalter für eine dielektrische Funktion, der 4 Zustände

$$z_i \in \{iron, constant, metallic, dielectric\} = etype \quad (5.6)$$

annehmen kann, welche bei der Konstruktion des Objekts durch die Argumente des Konstruktors festgelegt werden. Übergibt man einen Complex-Pointer, so wird ein Objekt des Typs *iron* konstruiert, dagegen erzeugt ein einfaches Complex-Argument ein Objekt des Typs *constant*. Die beiden anderen Varianten können durch direkte Angabe des Typs als erstes Argument konstruiert werden, wobei als zweites Argument ein Pointer auf ein Complex-Array übergeben werden kann.

Diese Klimmzüge dienen zur Optimierung des Speicherplatzbedarfs, denn es würde

wenig Sinn machen, das Gitter anfänglich mit vielen Kopien der metallischen dielektrischen Funktion zu belegen. Statt dessen wird der Fall *iron* gesondert behandelt und es wird geschickt nur eine einzige Kopie der dielektrischen Funktion bei allen Rechenoperationen verwaltet, die ausserhalb unseres Platzhalterdatentyps erzeugt und dann wieder freigegeben werden muss. Das Substrat wird mit einem konstanten  $\epsilon_s = 3.014$  beschrieben, natürlich steht nichts im Wege, auch hier eine Funktion (Array) zu verwenden. Da wir uns bei den Rechnungen auf den Bereich ab 2000 Wellenzahlen beschränken, ist dies eine akzeptable Näherung, da MgO erst unterhalb dieser Schwelle eine Absorptionskante zeigt. Der Speicherplatz für die anderen Lentry-Typen wird innerhalb der Lentry-Klasse selbstständig verwaltet.

Auf der Menge  $\mathfrak{L}$  der Lentry's sind folgende Abbildungen definiert:

$$\begin{aligned} a, b, c \in \mathfrak{L}, v \in \mathbb{C} \\ c = a \\ c = a \oplus b \\ c = a \otimes v \end{aligned} \tag{5.7}$$

das heisst die Lentry's können einander zugeordnet (dabei wird natürlich geachtet, dass bei Bedarf Speicherplatz belegt oder freigegeben werden muss, z.B. bei der Zuordnung  $\text{Lentry}(\text{constant}) = \text{Lentry}(\text{metallic})$ ), addiert und durch eine komplexe Zahl dividiert werden. Dies sind genau die Rechenoperationen, die wir beim ersten Schritt des Berthier-Verfahrens brauchen (Mittelung). Darüber hinaus stehen Funktionen zur Verfügung, um die in einem Lentry gespeicherte dielektrische Funktion in einem von der gängigen Software lesbaren Format auszugeben. Die Auflösung der in unserem Lentry gespeicherten Funktion wird einfachheitshalber durch die globale Variable *numw* festgelegt, da wir im ganzen Programm mit einer festen Anzahl der Punkt/Stützstellen arbeiten. Auf die Werte der dielektrischen Funktion kann über die public-Variable `Complex* data` zugegriffen werden. Wir verwenden direkt den standard Complex Datentyp, da das Programm so eine halbwegs überschaubare Struktur beibehält.

Auf unserem Platzhalter aufbauend definieren wir nun einen weiteren Datentyp *lattice*, das heisst ein aus Lentry's bestehendes zweidimensionales quadratisches Gitter. Bei der Konstruktion einer Gittervariablen muss die Grösse *size* (nicht notwendigerweise Zweierpotenz, fürs Berthier-Verfahren aber nicht sinnvoll) im Konstruktionsaufruf übergeben werden, wobei ein *size \* size* grosses Netz aus 'angehefteten' dielektrischen Funktionen erzeugt wird.

Mit der so definierten Gittervariablen können wiederum unterschiedliche Operationen ausgeführt werden und zwar kann durch den Aufruf der Member-Funktion *lattice.randmaterial(Complex\* material, float  $\mu$ )* das durch *material* repräsentierte Metall (wobei die früher erwähnte Sonderbehandlung des Typs *iron* zum Tragen kommt) auf die Gittermaschen zufällig mit einem Füllfaktor  $\mu$  verteilt werden, wobei bei jedem Gitterpunkt jeweils eine Zufallszahl  $\rho_{i,j} \in [0, 1]$  ziehen und falls  $\rho_{i,j} < \mu$  den Gitterpunkt (i,j) mit Metall 'markieren'. Die verbleibenden Gitterpunkte werden mit konstanten Lentry's vom Typ *constant* belegt.

Man beachte, dass bei diesem Prozess sehr wenig Speicherplatz verbraucht wird, da wir entweder nur eine komplexe Zahl benötigen, falls der Gitterpunkt mit MgO markiert werden soll, bzw. nur mit einem Verweis auf die dielektrische Funktion des Metalls arbeiten. Nur so lassen sich verhältnismässig grosse Strukturen von  $512 \times 512$  oder darüber erzeugen. Würden wir mit einem trivialen Ansatz herangehen und jeweils eine Kopie der ursprünglichen dielektrischen Funktion speichern, hätten wir selbst bei der relativ geringen Auflösung von 100 Punkten bereits einen Speicherplatzverbrauch von ca.  $512 * 512 * 8 * 100 + 512 * 512 * 4 = 210763776 \text{ bytes} = 201 \text{ MB}$  (8 bytes = Grösse einer komplexen Zahl auf einer i386 Architektur, 4 bytes = Grösse eines 32bit Pointers), was im allgemeinen die Möglichkeiten einer einfachen Workstation sprengen würde. Durch die effiziente Speicherung werden nur noch max. ca.  $512 * 512 * 8 + 512 * 512 * 4 = 3 \text{ MB}$  verbraucht. Dieses Problem wird uns weiter unten noch mal beschäftigen.

Es taucht hier noch die Frage auf, wie die Zufallszahlenfolge  $\rho_{i,j}$ ,  $i = 0 \dots N - 1$ ,  $j = 0 \dots N - 1$  generiert wurde und wie gut der verwendete Generator ist. Gängige Zufallszahlengeneratoren benötigen immer einen Start(Samen)wert (seed), den wir aus der Systemzeit errechnen. In den ersten Testläufen wurde natürlich auch die Zuverlässigkeit des Zufallszahlengenerators unter die Lupe genommen, wobei der Standard-Generator von C verwendet wurde. Gegeben einen Gitterfüllfaktor  $\mu$  können wir für den Erwartungswert des Berthierkästchens (Konfiguration)  $c_k = \{d_0, d_1, d_2, d_3\}$ ,  $k = 0 \dots 15$  auf einem  $N = 2^p$  Zellen grossen Gitter

$$N_k = N \mu^{q_M^k} \cdot (1 - \mu)^{4 - q_M^k} \quad (5.8)$$

$$q_M^k = \frac{1}{4} \sum_i d_i$$

schreiben, wobei  $q_M^k$  den Zellenfüllfaktor des Metalls angibt. Die Erwartungswerte folgen einer simplen Bernoulli-Verteilung. Durch Abzählen der Häufigkeiten der 16 Elementarzelltypen kann man sich einen ersten Überblick über die Güte des Zufallszahlengenerators verschaffen, obgleich natürlich kompliziertere statistische Tests von nöten wären. Eine signifikante Abweichung der durch Abzählen errechneten Erwartungswerte von der theoretischen Erwartung ist nicht aufgetreten, doch darf eine Software mit wissenschaftlichen Anspruch nicht in einem essentiellen Bestandteil von einer externen Routine abhängen, die sehr plattform(implementations-)abhängig ist. Um diesem Problem aus dem Weg zu gehen, haben wir den standardmässigen Zufallszahlengenerator durch ein speziell für Monte-Carlo-Simulationen entwickeltes 'Modell' ersetzt (siehe [AL]). Die schöne Eigenschaft des neuen Generators ist, dass er gleich Zufallszahlenblöcke (Folgen) beliebiger Grösse liefern kann und nicht für jede Zufallszahl neu 'anlaufen' muss.

Wir nutzten diese Eigenschaft und schalteten der Originalroutine einen schnellen Zwischenspeicher (Cache) nach, so dass wir formal genauso wie mit dem alten Generator mit einem Aufruf von `doubledrand()` arbeiten können. Beim ersten Aufruf von `doubledrand()` wird gleich ein Array von Zufallszahlen der Grösse `preload` erstellt, die im Modul `drand.cpp` eingestellt werden kann, in dem sich auch die übrigen Cache-Routinen befinden. Die folgenden Aufrufe von `drand()` lesen nur noch suk-

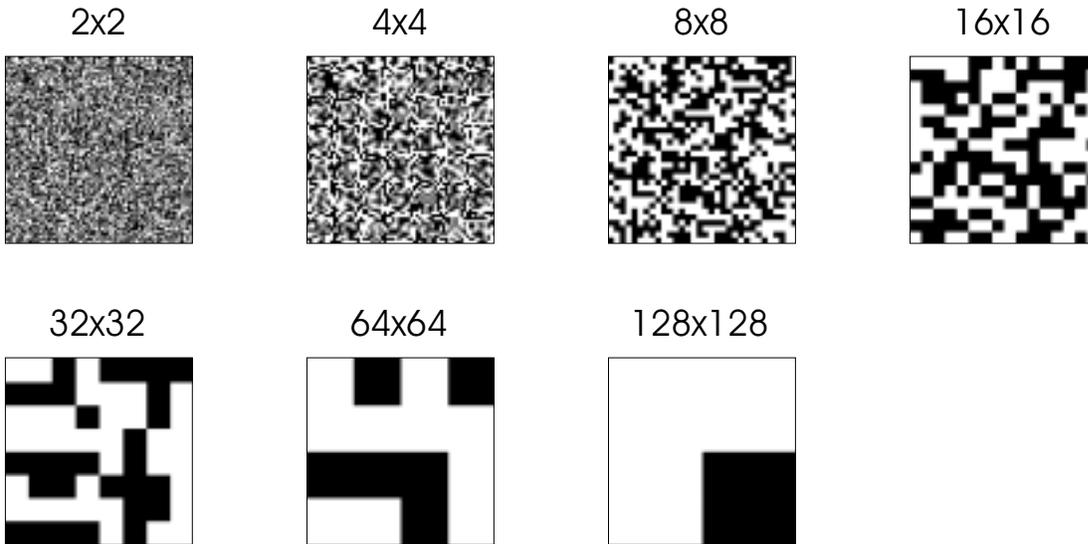


Abbildung 5.2: Renormierung eines 128x128 Gitters bei einem Füllfaktor  $\mu = 0.528$ , es ist jeweils die Grösse der beim Übergang zur nächst grösseren Schrittweite berechneten Zellen angegeben. Man sieht in den letzten Stadien des Verfahrens sehr deutlich, wie die Berthier-Regeln angewendet werden.

zessive einen Array-Wert heraus, bis entweder *preload* überschritten oder ein neuer Samenwert gesetzt wurde, wobei wieder ein neuer Zahlenblock berechnet wird. Die Prozedur arbeitet so völlig transparent. Insbesondere im Hinblick auf die noch zu besprechenden Fits ist darauf zu achten, dass *preload* korrekt für die benutzte Gittergrösse gesetzt wird, sinngemäss verwendet man  $preload = 2^p + 1$ , denn sonst nützt der Zahlencache recht wenig. Der Geschwindigkeitsvorteil durch einen geschickt eingesetzten Cache beim Fitzen von Spektren (bei einer 'one shot' Rechnung profitiert man kaum davon) beträgt zirca nochmal 20%.

Als weitere Operation auf einer Gittervariablen kann noch *lattice.xy(x, y)* aufgerufen werden, wobei eine Referenz auf den Platzhalter am Gitterpunkt (x,y) geliefert wird. Darüber hinaus kann noch die snapshot-Funktion *lattice.snapshot()* aufgerufen werden, die wir noch im Zusammenhang mit einer verbesserung des Berthier-Modells diskutieren werden. Durch einen snapshot-Aufruf wird eine zweite Attributmatrix erzeugt, die eine Momentaufnahme des Netzes aufnimmt. Es werden nur die Attribute  $z_{i,j} \in etype$  gespeichert. Wir können so den Zustand des Netzes in irgendeinem Stadium einfrieren. Zum Auslesen der gespeicherten Attribute dient eine weitere Member-Funktion *lattice.sxy(x, y)*.

Betrachten wir nun den folgenden Algorithmus (A) zur Berechnung der effektiven Gitterfunktion  $\epsilon_{0,0}$ :

- 1 man berechne sich zwei Ausgangsfunktionen einer metallischen respektive dielektrischen Gittermasche  $\epsilon_M, \epsilon_D$  sowie den Gitterfüllfaktor  $\mu$
- 2 das Gitternetz wird nach dem Zufallsprinzip mit den beiden Bestandteilen gemäss dem Füllfaktor  $\mu$  markiert
- 3 setze Schrittweite  $step = 1$
- 4 die Maschen  $(0, 0), (0, step), (0, 2 * step), \dots, (N - 1, N - 1)$  werden mit der Schrittweite  $step$  zu 4er Zellen zusammengefasst, die Mittelungsregel 5.2 wird auf die 4 Bestandteile angewendet
- 5 mit den gemittelten Zellkomponenten wird ein entsprechend einer der 16 Konfigurationen ein Effektivmedienmodell  $EF$  angewendet und eine lokale dielektrische Funktion  $\epsilon_{j,k}^{eff} = EF(\epsilon_{j,k}, \epsilon_{j+step,k}, \epsilon_{j,k+step}, \epsilon_{j+step,k+step})$  ausgerechnet, wobei sie in der linken oberen Zellkomponente gespeichert wird
- 6 die Schrittweite wird verdoppelt,  $step = 2 * step$ , falls  $step == N$  ENDE, sonst gehe zu Punkt 4

In Bild 5.2 ist das Verfahren für ein Gitter der Ordnung 7 mit der jeweils betrachteten Zellengrösse angedeutet (Metall schwarz). Dies wäre die 'naive' Variante des Verfahrens, denn wie man sich überlegen kann, handeln wir uns an dieser Stelle wieder ein Speicherplatzproblem ein. Auf dem Level von Gittermaschen wird zwar eine recht effiziente Verwaltung der beiden Ausgangskomponenten M/D bewerkstelligt, doch bereits bei der Schrittgrösse  $step = 2$  hätten wir es mit einer explosionsartigen Vermehrung von 'selbstständig gewordenen' dielektrischen Funktionen zu tun, denn es müssten  $N/4$  diskretisierte Funktionen gespeichert werden, was unsere Bemühung um eine Speicherplatzreduktion zunichte machen würde (die Speicherkomplexität des Problems wäre wieder von der Ordnung  $o(n)$  nur mit einer verkleinerten Proportionalitätskonstanten).

Viel effizienter, wenngleich auch wenig undurchschaubarer ist das folgende rekursive Verfahren (Algorithmus B):

- 1 man berechne sich zwei Ausgangsfunktionen einer metallischen respektive dielektrischen Gittermasche  $\epsilon_M, \epsilon_D$  sowie den Gitterfüllfaktor  $\mu$
- 2 das Gitternetz wird nach dem Zufallsprinzip mit den beiden Bestandteilen gemäss dem Füllfaktor  $\mu$  markiert
- 3 setze Schrittweite  $step = N/2$  und  $x = 0, y = 0$
- 4 man berechne die effektive Dielektrizitätskonstante des Netzes an der Stelle  $(x, y)$   $\epsilon_{x,y}^{eff} = EF(\epsilon_{x,y}, \epsilon_{x+step,y}, \epsilon_{x,y+step}, \epsilon_{x+step,y+step})$ , dazu ist natürlich Kenntnis von  $\epsilon_{x,y}^{eff}, \epsilon_{x+step,y}, \epsilon_{x,y+step}$  und  $\epsilon_{x+step,y+step}$  erforderlich, falls noch nicht bekannt ( $step \neq 1$ ), berechne man also  $\epsilon_{x,y}, \epsilon_{x+step,y}, \epsilon_{x,y+step}$  und  $\epsilon_{x+step,y+step}$ , d.h.  $step = \frac{step}{2}$  und gehe zu 4 mit den Startkoordinaten  $(x,y), (x+step,y), (x,y+step), (x+step,y+step)$ , sonst speichere  $\epsilon_{x,y}^{eff}$  an der Gitterstelle  $(x,y)$  und gib die drei nicht mehr benötigten Zellkomponenten frei (programmtechnisch ordnen wir an dieser Stelle den Gittermaschen einen 'dummy' Lentry vom Typ 'constant' zu, womit der Speicherplatz freigegeben wird)

Durch diese Massnahme wird der Speicherplatzbedarf auf ein Minimum reduziert, denn wir betrachten einen vollständigen 'Tertiärbaum', an dem wir voll berechnete 'Äste' abschneiden. Der ungünstigste Fall tritt ein, wenn wir die drei oberen linken Teiläste berechnet haben und immer weiter nach rechts verzweigen, wobei auf jeder Ebene jeweils immer 3 linke Teiläste berechnet bleiben und wir bis zur 'Krone' gelangen. Der Speicherplatzbedarf lässt sich damit auf  $3 * h * 100 * 8 = 19.2kB$  ( $h$ =Baumhöhe) für ein 512x512 Gitter abschätzen, ist also verschwindend gering.

Als weitere Optimierung kann man sich die 'low-level' Funktionen der Schrittweite  $step = 1$  gesondert abspeichern, d.h. wir spendieren der Routine einen low-level Cache, in dem sich das Programm merkt, ob eine der ja nur 16 möglichen Elementarfunktionen berechnet worden ist. Falls das der Fall ist, kann man sich eine erneute Berechnung sparen und die Zelfunktion einfach übernehmen. Es hat sich gezeigt, dass die Programmstruktur noch ein wenig mehr optimiert werden kann, wenn die 16 Elementarfunktionen im Voraus berechnet und gespeichert werden. So muss man nicht mehr während der Laufzeit überprüfen, ob eine Elementarkonfiguration bereits berechnet worden ist.

Weitere Optimierungspunkte könnten die numerischen Routinen selber sein, doch führt eine Auflösung der Cohenformel 4.40 bzw. der Yamaguchiformel 4.26 nach den Real- bzw. Imaginärteilen zu recht unhandlichen Ausdrücken, so dass wir bei einer direkten komplexen Rechnung geblieben sind. Zuletzt ist noch anzumerken, dass ein Kompilat mit Debugger-Informationen um ca. 50% langsamer läuft als ein debug-freier Pendant. Eine optimierte Renormierungsroutine nach Algorithmus B um ca. einen Faktor 5 schneller und verbraucht so gut wie keinen Speicherplatz im Vergleich zu der naiven Variante.

Das Modul *berthier.cpp* enthält alle zur Berechnung der Gitterfunktion benötigten Routinen. Dazu konstruiere man eine Variable *gitter* des Typs *lattice*, rufe die erwähnte Member-Funktion *gitter.randmaterial(...)* mit einer die metallischen Gitterstellen beschreibenden Funktion auf und übergebe das Gitterobjekt an die Routine *renormrec(Lattice&gitter, intx, inty, intstep)* mit  $x = 0$ ,  $y = 0$ ,  $step = N/2$ , wenn  $N$  die Gittergrösse (Zweierpotenz) ist. Die berechnete Dielektrizitätskonstante kann dann mit *gitter.xy(0,0)* ausgelesen werden, beziehungsweise über den Aufruf der Member-Funktionen *lattice.xy(0,0).export()*, *lattice.xy(0,0).exportscout()* im Origin-Format oder SCOUT-Format gespeichert werden.

### 5.3 Berthier-Modell für das System Fe/MgO(001)

Nach der recht allgemeinen Beschreibung des Verfahrens im vorigen Abschnitt möchten wir nun zu einer Anwendung des Berthier-Verfahrens auf das in der Ag Pucci untersuchte Mischsystem Fe auf MgO(001) gelangen. Es sind noch ein paar Details bezüglich Eingangsdaten und freier Parameter vonnöten, da das ursprüngliche Berthier-Verfahren ein sehr geschlossenes Modell bildet. Wir möchten nicht nur einen Trend reproduzieren, sondern auch durch Anfiten von Parametern die dielektrische Funktion der Fe/MgO Proben ausrechnen. Wir werden hier bei Gelegenheit

eine Erweiterung des Berthier-Verfahrens präsentieren.

Wir verfügen nun über eine Routine, die gegeben eine Eingangsfunktion der metallischen Stellen des Gitters und die Dielektrizitätskonstante des Substrats, die effektive Gitterfunktion  $\epsilon_{0,0}$  berechnet. Was ist aber nun für die primitive Gittermasche und deren dielektrische Funktion einzusetzen? Wir stellen uns nun vor, unser Maschenetz besteht entweder aus unbelegten Substratflächen oder aus Fe-Quadern (wie in Abschnitt 3 erläutert beschreibt das Wachstumsmodell 3.4 'zipfelmützenförmige' Inseln, die nicht weit von einer Quaderform entfernt sind) und wir können analog wie beim Yamaguchi-Modell vorgehen, das heisst wir benützen size-korrigierte Ordal-Daten von Fe, mit den beiden Korrektur(Fit-)parametern  $\alpha, \beta$ , wobei wir eine auf die Grösse des Fe-Würfels gemittelte Dimension  $d_e$  verwenden, indem das Würfelvolumen gleich einer Kugel gesetzt und der Kugelradius als Korrekturdimension benützt wird

$$\begin{aligned} width^2 height &= \frac{4}{3}\pi d_e^3 \\ d_e &= \left(\frac{3}{4\pi} width^2 height\right)^{\frac{1}{3}} \end{aligned} \quad (5.9)$$

wenn wir mit *height* die Höhe und *width* die Breite (Länge) der metallischen Insel bezeichnen. Wie sind diese beiden Grössen jedoch zu wählen? Nun, das Wachstumsgesetz 3.9 gibt uns die Entwicklung der Inselgrundfläche an, wobei sich  $A_0$  aus der Inseldichtekurve ermitteln lässt. Es liegt nun auf der Hand (Fall A), für die Grösse der Gittermaschen je nach Materialmenge die Fläche  $A(d)$  anzunehmen, was natürlich den Nachteil hat, dass je nach Aufdampfmenge ein physikalisch unterschiedlich grosser Ausschnitt der Oberfläche beschrieben wird. Es wäre vielleicht anschaulicher (Fall B), ein Gitter einer festen Ausdehnung zu betrachten, auf dem je nach Aufdampfmenge unterschiedlich Grosse Würfel plaziert werden, welche im Limes  $d_w \rightarrow \infty$  die Ausdehnung einer Gittermasche erreichen.

Die beiden Sichtweisen werden äquivalent, falls wir im zweiten Fall eine mit einer auch so kleinen Insel belegte Masche als schwarz markieren und von einem Zellenfüllfaktor 0.25 ausgehen. Im Prinzip liesse sich der Fall B durch Berücksichtigung der einzelnen Füllfaktoren innerhalb einer Gittermasche behandeln, doch stellt sich hier je nach Maschenfüllfaktor wieder die Frage nach der korrekten Entscheidung für entweder eine 'weisse' oder 'schwarze' Masche. Berthier hat den ersten Weg eingeschlagen, den wir hier auch verfolgen werden, wobei die Unzulänglichkeiten des Modells mit einem weiteren, noch zu besprechenden Parameter  $s$  berücksichtigt werden.

Betrachten wir eine ausgedehnte Probenoberfläche  $A_p$ , so entspricht der flächenhafte Anteil der mit Metall bedeckten Probe dem Exponentialfaktor in 3.9, denn wir können für  $A_p = A_0 N$  mit der Anzahl der Inseln  $N$  schreiben, so dass für die bedeckte Probenfläche (Gitterfüllfaktor) folgt

$$\mu = \frac{A_{inseln}}{A_p} = \frac{N A_0 (1 - e^{-\frac{\kappa d}{d_0}})}{A_0 N} = 1 - e^{-\frac{\kappa d}{d_0}}. \quad (5.10)$$

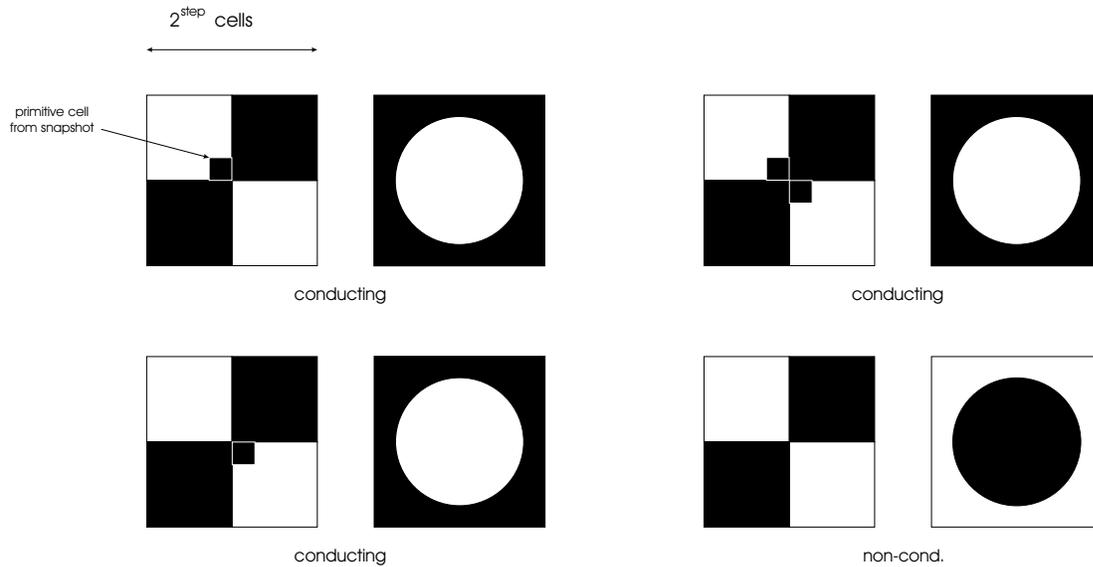


Abbildung 5.3: Adaptives Berthier-Modell am Beispiel der 6ten Zellkonfiguration

Wie schon im Kapitel 3 über Filmwachstum erwähnt, wäre es unter Umständen von Vorteil, ab einem bestimmten Füllfaktor  $\mu^*$  die Probe im Löcherbild zu betrachten, denn unser Ansatz 5.10 führt dazu, dass wir für hohe Füllfaktoren  $\approx 1$  mit einer Oberfläche mit wenigen aber dafür grossen Löchern enden. Ein möglicher Ausweg wäre, ab  $\mu = 0.5$  einen Löcher-Füllfaktor  $\mu_H$  zu betrachten und die Ausdehnung des Gitters wieder zu verkleinern, so dass die Gitterabmessung eine stetige Funktion der Massenbelegung  $d_w$  ist. Zu bestimmen ist nur noch die Höhe der Würfel, was einfach aus der Volumengleichheit aufgedampfte Materialmenge = Volumen aller Metallmaschen errechnet werden kann, wobei sich ergibt:

$$height = \frac{d_w}{q}. \quad (5.11)$$

Wir verfügen nun über die dielektrische Funktion einer primitiven Metallmasche sowie über die Kenntnis über den Gitterfüllfaktor  $\mu$ . Als Modellparameter verbleiben uns  $\alpha, \beta$  (lokal) und  $\kappa, N_s$  (global). Es stellt sich natürlich noch die Frage, inwiefern die Beschreibung mit einem Effektivmedienmodell bei kleinen Schrittweiten (beispielsweise auf dem Niveau von Gittermaschen) gerechtfertigt ist. Natürlich könnten wir hergehen und eine Gittermasche als ein makroskopischer Ausschnitt der Probenoberfläche 'definieren', auf dem eine bestimmte Metallmenge aufgedampft ist. Bereiche mit mehr als 50% Metall könnten als 'metallisch' (schwarz) und welche mit weniger als 50% als 'dielektrisch' bezeichnet werden. Dann wäre eine selbst so gesehen lokale Beschreibung mit Hilfe eines Effektivmedienmodells völlig berechtigt und weitgehend unproblematisch. Man kann sich aber überlegen, dass für zu grosse Maschen dieses Verfahren keinen Sinn macht, da wir am Ende je nach Grösse von  $\mu$  mit

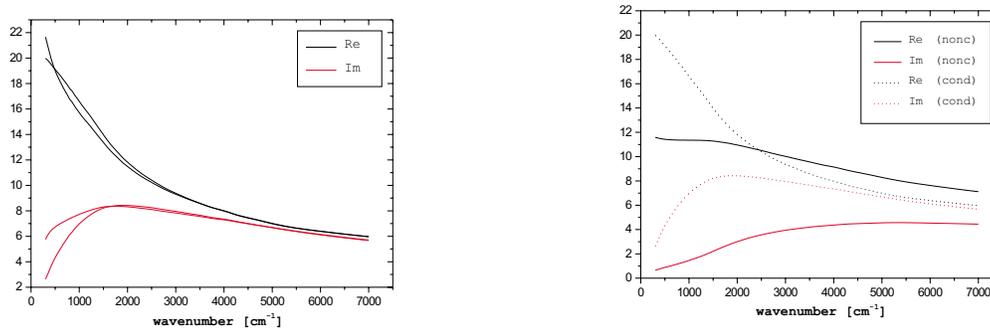


Abbildung 5.4: Rechts der Vergleich des conducting mit dem non-conducting case für ein  $256 \times 256$  Gitter des Füllfaktors  $\mu = 0.3$  und links die durch Schwankungen der Anfangsverteilung bedingte Variation der Gitterfunktion  $\epsilon_{0,0}$

entweder nur weissen oder nur schwarzen Gitterstellen enden würden. Daraus folgt, dass eine Gittermasche von der Größenordnung der Oberflächenstrukturen wie eben z.B. Inseln sein muss, womit wir uns aber potentiell das Problem einhandeln, dass wir ein für eine ausgedehnte Probe unter Einbeziehung von Nachbardipolen entwickeltes Modell wie z.B. das von Yamaguchi auf einen sehr kleinen Ausschnitt der Probe anwenden. Es spräche natürlich nichts dagegen, anstatt von Metallquadraten und MgO-Flächen von 16 (je eine pro Konfiguration) auf das System optimierten Funktionen auszugehen, doch ist das eine sehr undankbare Optimierungsaufgabe, die wir hier nicht angehen wollen.

Berthier übergeht diese Fragestellung völlig. Wir möchten statt dessen einen weiteren Parameter einführen, eine lokale Korrektur  $s$  des Füllfaktors, der wie sich in den ersten Testläufen gezeigt hat, notwendig für eine Anpassung an die experimentellen Spektren ist, da ohne diese Korrektur gerechneten Spektren am Anfang des Aufdampfbereichs (bis ca.  $\approx 10 \text{ \AA}$ ) einen zu metallischen Charakter zeigen. Der Parameter  $s$  soll also erstens den durch den variablen Ausschnitt gemachten Fehler 'absorbieren', sowie lokal für eine Reduktion der Wechselwirkung der Zellen untereinander sorgen. Wir schreiben nun

$$q' = s \cdot q_{zelle} \quad (5.12)$$

so dass  $q'$  einen um den Faktor  $s$  reduzierten Metallfüllfaktor einer Zelle beschreibt. Bei der programmiertechnischen Umsetzung ist darauf zu achten, dass wirklich die

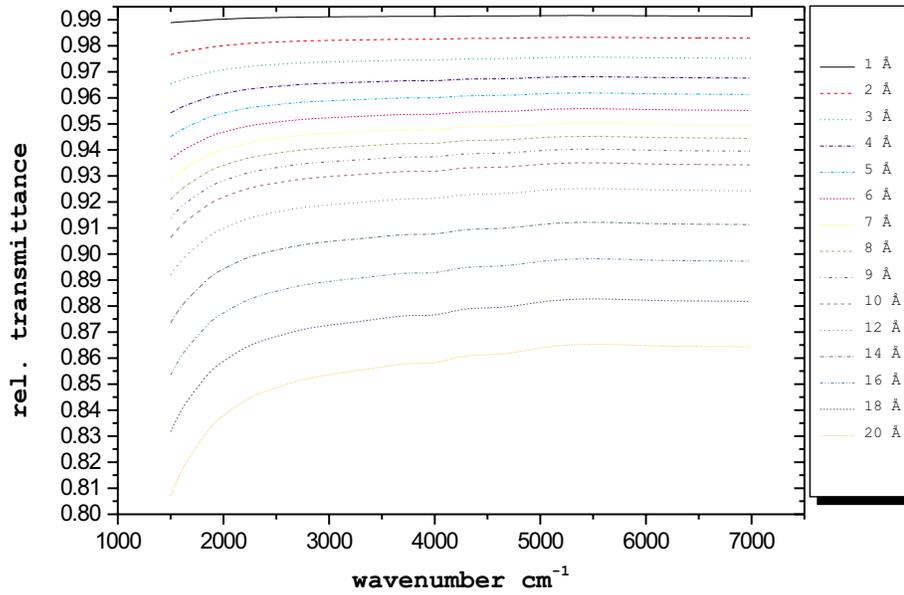


Abbildung 5.5: Verlauf des berechneten Transmissionsvermögens für  $\kappa = 0.1$  bei Renormierung mit vereinfachter Maxwell-Garnet Formel (no particle shape), wobei wir jedoch keinen Fit durchgeführt sondern  $\alpha = 0.5, \beta = 1$  gesetzt haben.

Metallmenge 'erniedrigt' wird und nicht etwa die des Substrats, da die Füllfaktoren bei der Yamaguchiformel 4.26 respektive Cohenformel 4.40 unterschiedliche Bedeutung haben.

Es fehlt nur noch eine Überlegung zu den beiden möglichen Fällen des conducting bzw. non-conducting case. Durch eine physikalisch recht plausible Überlegung kann man sowohl die beiden Fälle miteinander vereinen als auch 'mathematische' Perkolationsschwelle von  $\mu_c \approx 0.5$  erreichen, die ja auch unserer Erwartung für ein quadratisches zweidimensionales Gitter entspricht. Wir erweitern nun das Berthier-Modell um folgende Überlegung: die problematischen Zellkonfiguration 6 und 9 werden während der Renormierungsprozedur adaptiv mit Hilfe der direkt nach Aufbringen der beiden Materialien eingefrorener Inselverteilung ausgewählt. Das motiviert nun auch die Einführung der Member-Funktion `lattice.snapshot()`, die wir genau für das adaptive Berthier-Modell benötigen. Die Grundidee illustriert das Bild 5.3. Betrachten wir eine Gitterzelle der Größe  $m = 2^s, s \leq p$  und es tritt einer der problematischen Fälle 6 oder 9, so entscheidet die Anfangsverteilung der Inseln, ob der Kontakt als leitend oder als isolierend angenommen wird. Auf dem Niveau von Gittermaschen haben wir uns jedoch für den non-conducting case entschlossen, da eine so kleine atomare Struktur wie ein Inselberührungspunkt klassisch als nicht leitend betrachtet werden kann. Mit dem so modifizierten adaptiven Berthier-Modell erreicht

die mathematische Perkolationsschwelle genau den Wert

$$\mu_c^{adaptive} = 0.500 \pm 0.005 \quad (5.13)$$

was wir durch Intervallschachtelung auf einem 512x512 Gitter errechnet haben. Das Programmmodul *berthier.cpp* enthält zu diesem Zweck zwei Konfigurationssätze, einmal für den conducting (cfgtabc) und einmal für den non-conducting case (cfgtablen), die nach unserem adaptiven Verfahren für jede betrachtete Zelle ausgewählt werden können.

Darüber hinaus enthalten diese Konfigurationstabellen noch Verweise auf das für eine bestimmte Zellenkonfiguration anzuwendende Effektivmedienmodell. Es wäre auch nicht schwer, jede der 16 Möglichkeiten mit einem eigenen Modell zu beschreiben, wozu lediglich die Modellfunktion programmiert werden und die Routine *applymodell()* um die zusätzlichen Modelle erweitert werden müsste. Natürlich muss noch gezeigt werden, ob das so modifizierte Verfahren unser Fe/MgO System besser beschreibt als einer der beiden von Berthier eingeführten Fälle. Dies werden wir noch in im nächsten Kapitel diskutieren. Wie in Bild 5.4 erkennbar, kann die Frage des 'richtigen' case nicht ignoriert werden, denn offensichtlich beschreiben beide Fälle ein durchaus unterschiedliches dielektrisches Verhalten einer mit Inseln besetzten Probenoberfläche. Wir haben die dielektrische Funktion in einem erweiterten Wellenzahlbereich von  $300\text{cm}^{-1} \dots 8000\text{cm}^{-1}$  errechnet.

Wenden wir uns noch kurz einigen charakteristischen Eigenschaften dieses Modells und dem Einfluss der oben eingeführten Parameter zu, bevor wir zum Kapitel über Filtergebnisse und Bezug zum Experiment übergehen. Es stellt sich hier die Frage, ob das Fe/MgO System nicht doch mit einem vereinfachten Effektivmedienmodell wie das von Maxwell-Garnet (siehe Kapitel 4.2, 4.36) beschrieben werden könnte? Wir ignorieren den Einfluss des Partikel-Shape und erhalten für die Parameterwerte (Inseldichte) bei 430 K den Spektrenverlauf wie er in Bild 5.5 zu sehen ist.

Offensichtlich wird selbst nach Renormierung der spektrale Verlauf des Transmissionsvermögens von Fe auf MgO für die einfache Maxwell-Garnet-Formel nicht korrekt wiedergegeben. Es existiert weder ein reiner Inselbereich, noch wird ein optischer Crossover fast konstanter Transmission vorausgesagt. Wir müssen also auf jeden Fall trotz der Schwierigkeiten mit der Nichtlokalität der Yamaguchi-Formel (bzw. der Cohenformel) den Einfluss der Partikelform (Achsverhältnis) berücksichtigen, was im Rahmen des Berthier-Modells wie die Ersatzbilder in 5.1 zeigen, geschieht.

Die wohl schönste Eigenschaft des Berthier-Verfahrens ist die Skaleninvarianz, was bedeutet, das Verfahren ist weitgehend unempfindlich gegenüber Fluktuationen der anfänglichen Metallverteilung auf dem Gitternetz. Durch das 'zufällige' Verstreuen der Metallquadrate wäre es prinzipiell möglich, dass die renormierte Gitterfunktion  $\epsilon_{0,0}$  von dem Startwert (seed) des Zufallszahlengenerators abhängt. Selbstverständlich existiert durchaus eine gewisse Abhängigkeit des  $\epsilon$ -Verlaufs von der genauen Lage der schwarzen 'Kästchen', doch strebt diese Schwankung sehr schnell mit zunehmender Gittergröße gegen Null. Bereits ab ca. 512x512 Punkten ist in einem Graph der dielektrischen Funktion 'mit blosssem Auge' kaum noch eine Schwankung

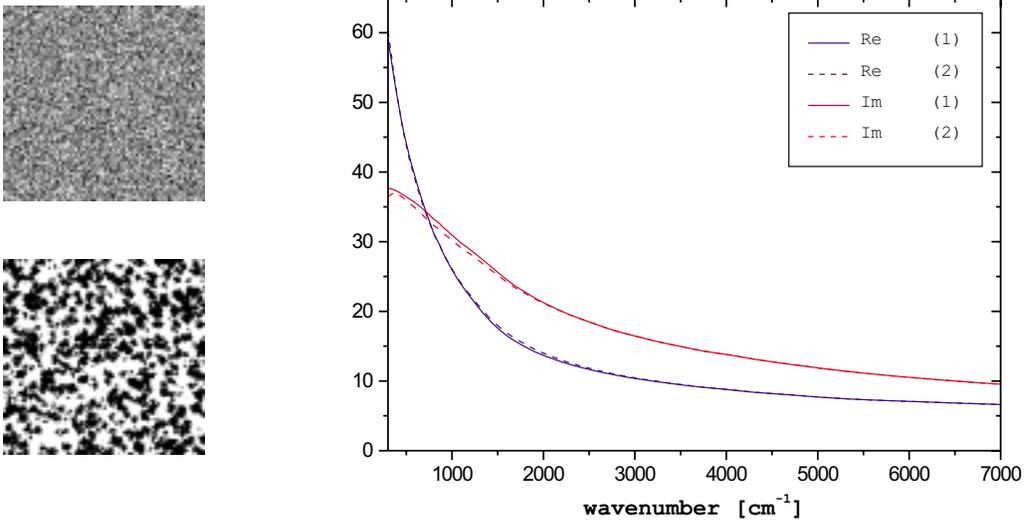


Abbildung 5.6: Skaleninvarianz des Berthier-Modells am Beispiel von  $\mu = 0.45$ ,  $\lambda = 0.995$ ,  $256 \times 256$  Gitter, Realteil unten für  $\omega > 1000 \text{ cm}^{-1}$

erkennbar.

Um jedoch die Unabhängigkeit des Verfahrens gegenüber der Anfangsverteilung zu demonstrieren, betrachten wir ein modifiziertes 'Wachstumsmodell' mit einem Verklumpungsparameter  $\lambda$ , wobei es primär um die Herstellung einer von zufälliger Geometrie abweichender Struktur und nicht um eine Nachbildung eines realen Wachstumsvorgangs geht. Wir gehen nun nicht mehr alle Gitterpunkte Zeilenweise durch, sondern möchten  $N_M = N\mu = 2^p \mu$  schwarze Kästchen auf unserem Netz verteilen nach dem einfachen Algorithmus:

- 1] es sei  $N_M = 2^p \cdot \mu$
- 2] solange  $N_M > 0$  ziehe ein Koordinatenpaar  $(x, y)$   $x = 0 \dots N-1$ ,  $y = 0 \dots N-1$
- 3] setze  $n = \sum_{c_{i,j} \text{ schwarz}} 1$  wobei die Summe über die vier nächsten Nachbarn geht und berechne  $p = 1 - \frac{1}{4}n\lambda$
- 4] ziehe  $\rho \in [0, 1]$
- 5] falls  $\rho < p$  markiere  $(x, y)$  mit 'schwarz' und setze  $N_M = N_M - 1$
- 6] gehe zu 2

Ein  $\lambda = 0$  entspricht übrigens unserem ursprünglichen Verteilungsalgorithmus, es wird wieder eine Art Schneedeckenstruktur erzeugt. Bei einem  $\lambda = 1$  würde der

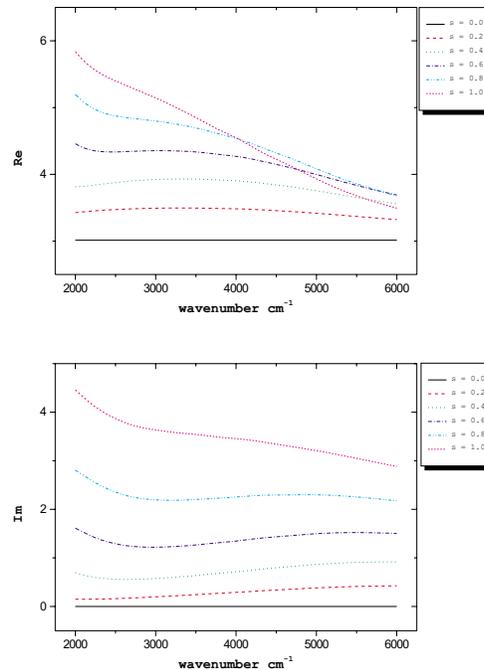


Abbildung 5.7: Einfluss von  $s$  auf den Verlauf der Gitterfunktion eines  $5 \text{ \AA}$  dicken Fe-Filmes

Algorithmus niemals abbrechen, so dass  $\lambda \in [0, 1)$  sein muss. Ein 'sichtbarer' Effekt ist erst ab einem  $\lambda > 0.8$  zu bemerken. Wir sehen im Bild 5.3, wie wenig empfindlich das Berthier-Verfahren auf die Anfangsschwankungen ist. Die Real- bzw. Imaginärteile der beiden Strukturen fallen fast zusammen. Selbst mit einem  $\lambda = 0.995$  und einer offensichtlich sehr unterschiedlicher Ausgangsverteilung erhalten wir so gut wie die gleiche dielektrische Gitterfunktion, natürlich nur solange die Verteilung einen zufälligen Charakter hat. Würden wir z.B. die eine Gitterhälfte schwarz, die andere weiss machen, so würde kein Effektivmedienmodell mehr angewendet werden und wir bekämen eine aus den beiden Bestandteilen gemittelte effektive Funktion.

Wir haben vorhin ad hoc einen neuen Parameter  $s$  eingeführt, es ist nun notwendig, das so modifizierte Berthier-Verfahren gegenüber einer Änderung von  $s$  zu untersuchen. Es besteht die Hoffnung, dass sich ein Wert von  $s$  finden lässt, der für eine gesamte Messreihe einer bestimmten Temperatur konstant bleibt. Damit würde die Anzahl der Fitparameter reduziert und wir könnten uns nur noch auf die Betrachtung der physikalisch anschaulichen Größen  $\alpha, \beta$  beschränken. Wir sehen in 5.3, dass der Parameter  $s$  eine gutartige Variable ist, durch eine kleine Variation von  $s$  um einen Wert  $s_0$  lässt sich die dielektrische Funktion weitgehend stetig verschieben. Der Wertebereich von  $s$  darf das Intervall  $(0, 1]$  nicht verlassen, wobei  $s = 0$  keinen Sinn macht, da so kein Metall in den Berthierzellen berücksichtigt würde. Der Wert  $s = 1$  entspricht dem 'vollen' Berthier-Modell.



# Kapitel 6

## Ergebnisse und Diskussion

### 6.1 Gitterrenormierung nach Berthier

In diversen Vorgängerarbeiten ([Mag99], [Bar98]) sind bereits Fe Filme auf MgO-Substrat untersucht worden, wobei die für relative dicke Filme entwickelte Drude-Theorie für die Berechnung der Dielektrizitätskonstanten zum Einsatz kam. Wir präsentieren in dieser Arbeit ein Modell, was zumindest den Anspruch erhebt, den gesamten Dickenbereich respektive alle Wachstumsphasen von der Inselbildung, über Perkolation bis hin zu einem homogenen, glatten Eisenfilm zu beschreiben.

Unser Modell enthält die bereits in allen früheren Arbeiten diskutierten Parameter  $\alpha, \beta$  sowie einen weiteren, neuen Parameter  $s$ , dessen Aufkommen wir im vorigen Kapitel diskutiert haben. Als Ziel des neuen Modells sollte in erster Linie die Anzahl der freien Parameter so weit wie möglich reduziert werden, um aus dem Verlauf der übrig gebliebenen Variablen möglichst eindeutige Schlüsse auf die physikalische Entwicklung des untersuchten Systems ziehen zu können.

Es wäre eindeutig falsch, anzunehmen, unser Parametersatz  $\alpha, \beta, s$  wäre bis auf die dritte Variable von ihrer Bedeutung her identisch mit den in einer einfachen Drude-Theorie auftretenden Größen  $\alpha_{Drude}, \beta_{Drude}$ , so dass die hier vorgelegten Resultate nicht unbedingt direkt mit denen aus den früheren Arbeiten verglichen werden können. Man führe sich vor die Augen, dass erst für verhältnismässig dicke Filme von einer Gleichheit zwischen  $\alpha_{Drude}, \beta_{Drude}$  und  $\alpha, \beta$  die Rede sein kann, denn für hohe Gitterfüllfaktoren  $\mu$  führt unser Algorithmus fast nur noch Mittelung über 'schwarze' Gittermaschen durch, was bei genügend hohem  $\mu$  zu der als Input herein gesteckten 'Kästchenfunktion' und damit direkt auf Drude-Theorie führt.

Problematisch ist schon alleine die Grösse  $\alpha$ , denn wir beschreiben unabhängig vom Füllfaktor alle Gitterbereiche mit ein und demselben Parameter, wo eigentlich richtiger die Annahme von zwei Größen  $\alpha_{Film}$  und  $\alpha_{Insel}$  wäre, da unser Korrekturansatz 2.21 streng genommen für einen in wenigstens 2 Dimensionen ausgedehnten Film gedacht ist. Inwiefern das Modell die aufgedampften Filme beschreibt, werden wir an dem Vergleich zwischen den gerechneten und gemessenen Transmissionskurven sehen.

Eine Sonderbedeutung kommt noch dem neuen Parameter  $s$  zu, denn er geht nicht gleichermassen in alle Konfigurationen des Berthier-Modells ein. Im Anfangsdickenbereich muss ja eine grosse Menge an unbedeckten Stellen der Probe (Konfigurationstyp 0) verarbeitet werden (bzw. für hohe Bedeckungen eine grosse Anzahl von Konfigurationen des Typs 15), an denen keine  $s$ -Korrektur durchgeführt wird. So gesehen verliert  $s$  für hinreichend hohe Gitterfüllfaktoren seine Bedeutung als Fitparameter. Der Bereich kleiner Füllfaktoren ist jedoch nicht so kritisch, da selbst für eine fast unbedeckte Oberfläche die dielektrische Funktion durch die wenigen Inseln recht empfindlich modifiziert wird.

Gehen wir nun zu den gefiteten Spektren über, so ist wichtig zu wissen, dass für die 313 K die originalen Ordal-Daten verwendet wurden, die ja von Ordal für den Zimmertemperaturbereich bestimmt worden sind. Für die höheren Temperaturen von 430 K beziehungsweise 500 K verwendeten wir dagegen das  $\gamma$ -Modell (siehe [Mag99]), welches sich besser für den Hochtemperaturbereich eignet. Die Simulationen entstanden auf einem 256x256 Gitter (Ordnung 8), eine Grösse, bei der die statistische Schwankung bereits akzeptabel ist.

Da ein Fitalgorithmus wie das in Anhang B vorgestellte Subplex-Verfahren mehrere Funktionsauswertungen (sprich Berechnung der Gitterfunktion, Einlesen in SCOUT inkl. Parameterübergabe) benötigt und wir ja für jede Funktionsauswertung eine Anfangsverteilung brauchen, stellt sich die Frage, ob für jeden Schritt der Fitroutine ein konstanter oder veränderlicher Samenwert genommen werden soll. Die Wahl ist auf einen für je ein Spektrum konstanten Seed gefallen, da wir so eine zusätzliche Schwankung (Rauschen) in den Fitparametern eliminieren. Der Nachteil ist, dass insbesondere für sehr kleine Gitterfüllfaktoren die Anfangsverteilung doch sehr von Fall zu Fall schwanken kann, da wir bei  $N$  Counts bekanntlich mit einer Schwankung von der Grössenordnung  $\sqrt{N}$  rechnen müssen. Mit der Wahl eines konstanten Seed verzichten wir somit auf eine womöglich vorteilhafte Mittelung für extreme und aus den oben erwähnten Gründen problematische Gitterfüllfaktoren.

Die Auflösung der gerechneten Gitterfunktionen ist auf 50 Punkte festgelegt worden, was ungefähr halb so gross wie die experimentelle Auflösung ist, die bei der Messung der Spektren in der Spektrometersoftware gewählt wurde. Dies ist jedoch keine wesentliche Einschränkung, denn die Spektren sind wie eingangs erwähnt verhältnismässig strukturlos. Diese Massnahme ist notwendig, denn selbst die schon erwähnten Optimierungsaufnahmen reichen nicht, um den Zeitverbrauch auf ein akzeptables Niveau zu drücken und die Reduktion der Punktzahl die am beste geeignete Methode ist, da der Algorithmus näherungsweise (zumindest für hohe Punktzahlen, wenn der Overhead nicht mehr ins Gewicht fällt) linear mit der Auflösung der Gitterfunktion  $\epsilon_{0,0}$  skaliert. Wir haben 50 äquidistante Punkte  $\omega_i = 2000\text{cm}^{-1} + 80i$  als Stützstellen gewählt.

Es spräche nichts dagegen, eine adaptive Verteilung der Stützstellen zu verwenden, so dass im Bereich stärkerer Krümmung mehr Punkte zu liegen kommen, doch scheitert dieser Gedanke vorerst an der Einschränkung der SCOUT-Software, die nur das

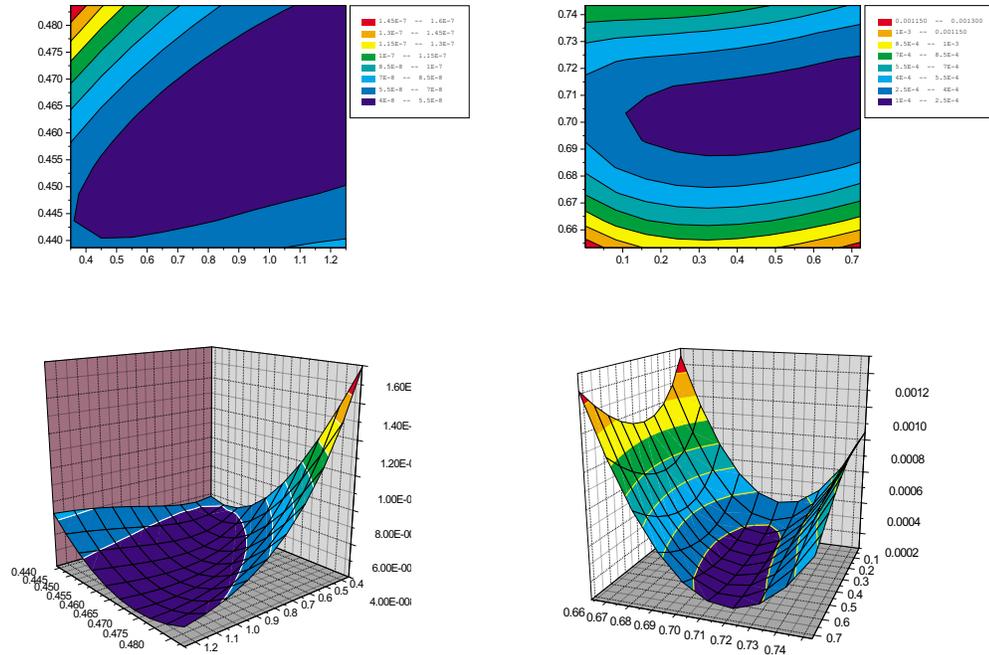


Abbildung 6.1: Durch Abtasten des Fitraumes gewonnener Verlauf der mittleren quadratischen Abweichung für 6.8 Å (links) beziehungsweise 44.9 Å (rechts) jeweils für 313 K Substrattemperatur.

so genannte std-Format als Übergabeformat für dielektrische Funktionen akzeptiert, welches eine äquidistante Punkteverteilung voraussetzt. Es wäre durchaus möglich, mit einer adaptiven Stützstellenverteilung zu rechnen und dann auf eine äquidistante Verteilung zu Übergabezwecken zu interpolieren, doch irgendeine wesentliche Verbesserung der Rechnungen ist wegen der Strukturlosigkeit der Spektren nicht zu erwarten. Das könnte sich für andere Material/Substrat Kombinationen ändern.

Mit diesen Massnahmen liegen die Fitzeiten leider immer noch abhängig von den Startwerten der Fitroutine und des Dickenbereichs (man beachte, dass je nach Gitterfüllfaktor unterschiedlich viele Rechenoperationen gebraucht werden, da wir mehrere Effektivmedienmodelle unterschiedlicher Rechenkomplexität verwenden) zwischen 5 und 30 Minuten pro Spektrum, was bei einer Messreihe von 200 Spektren selbst nach einer Reduktion der Spektrenzahl eine Fitzeit im Tagebereich ergibt.

Zu diskutieren wäre zuerst der Fehler, der beim Anfiten der Modellparameter aufgetreten ist. Nun wie im Anhang über Optimierung erläutert, verlangt unser Fitalgorithmus die Angabe einer relativen Fehlertoleranz  $rtol$ , die wir bei den Rechnungen auf 0.01 d.h. 1 % gesetzt haben. Dies ist natürlich nicht mit dem Fehler der Fitparameter gleich zu setzen, denn  $rtol$  gibt nur die untere Fehlerschranke an, obwohl der vom Fitalgorithmus gemachte reale Fehler durchaus grösser ist. Dies liegt daran, dass  $rtol$  eigentlich nur ein internes Haltekriterium von subplex darstellt, läuft das Verfahren in ein flaches Tal in der 'Parameterlandschaft' herein, so ist ein Abbre-

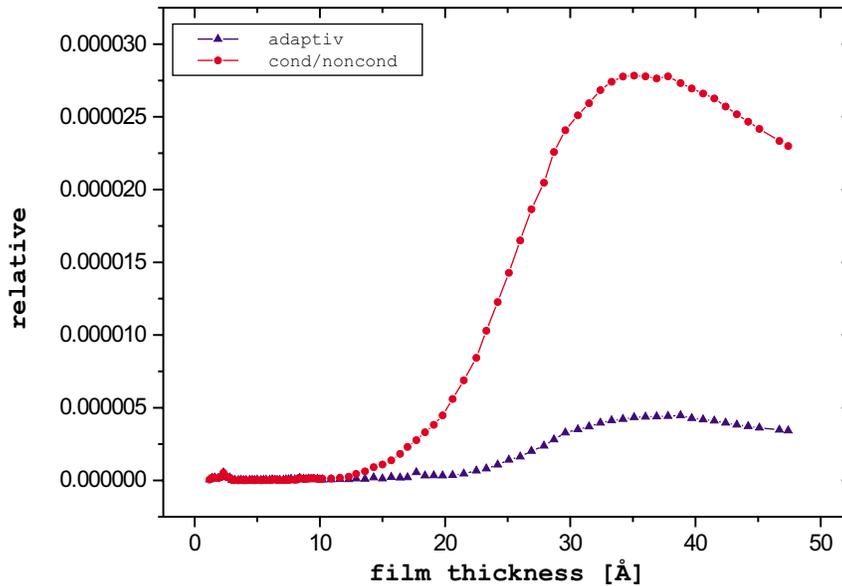


Abbildung 6.2: Verlauf der mittleren quadratischen Abweichung  $\sigma_{rel}$  bezogen auf die Schichtdicke für 313 K. Adaptives Modell unten.

chen an einem verhältnismässig vom absoluten Minimum der optimierten Funktion entfernten Punkt möglich. Wie gross der Fehler tatsächlich ist, kann man nur durch Abtasten des Fitraumes auf einem Netz von Stützstellen feststellen. Dieser Vorgang dauert jedoch wegen der benötigten Rechenzeit sehr lange, so dass wir uns nur exemplarisch über den Fitraum einen Überblick verschaffen werden. Es stellt sich tatsächlich heraus, dass die Fitminima in einem relativ langen, flachen Tal liegen.

Abbildung 6.1 zeigt eine Abtastung des Fitraumes entsprechend einer Wachstumstemperatur von 430 K für 6.8 und 44.9 Schichtdicke. Wie man sehen kann, reagiert unser Modell nicht sehr empfindlich auf die Grösse von  $\alpha$ , der Fehler von  $\beta$  hingegen ist jedoch kleiner. Der Fehler in den Fitwerten für  $\alpha$  lässt sich so auf  $\approx 50\%$  abschätzen, wird aber zunehmend kleiner für dickere Filme. Das ist ein Wert, der sogar gut unter dem von in [Mag99] für reine Drude-Theorie abgeschätzten ( $\frac{\Delta\alpha}{\alpha} > 100\%$ ) liegt, was nicht zuletzt auf einen verbesserten und komplizierteren Fitalgorithmus zurückzuführen ist. Aus der Abtastung der Fitlandschaft lesen wir für  $\beta$  bei kleinen Schichtdicken einen Fehler von  $\approx 17\%$  ab, der am Ende der Messreihe auf  $\approx 5.7\%$  fällt. Auch hier können wir die in [Mag99] vorgestellten Ergebnisse ( $\frac{\Delta\beta}{\beta} \approx 53\%$  respektive 6%) einer reinen Drude-Theorie übertreffen, wobei wir experimentelle Fehler (wie Bestimmungsfehler in der Schichtdicke, siehe entsprechend [Mag99]) nicht berücksichtigt haben. Wir werfen diese Frage noch mal bei dem Problem der Stabilität der Fitparameter auf.

Gehen wir nun zu der noch ausgebliebenen Diskussion der in Kapitel 5 vorgestellten Varianten des Berthier-Verfahrens, die wir exemplarisch am Beispiel der 313 K Messreihe (messr05r) durchführen möchten. Gesucht ist ein Kriterium für die Güte der Anpassung der Theoriekurven an die experimentellen Daten. Die einzige verwertbare Grösse, die von der Fitsoftware direkt geliefert wird, ist die mittlere quadratische Abweichung  $\sigma_{absolut}$ , mit der wir natürlich bereits einen Vergleich der unterschiedlichen Modellvarianten anstellen können. Zur Beurteilung der Fitgüte bezüglich Schichtdicke  $d_w$  ist  $\sigma_{absolut}(d_w)$  natürlich nicht so gut geeignet, denn je nach absoluter Lage der Transmissionskurve kann ein bestimmter Wert der quadratischen Abweichung eine andere Bedeutung haben, sprich, wir müssen  $\sigma$  auf die Lage der Grundlinie (Transmissionsvermögen für grosse Wellenzahlen  $\omega$ ) der Transmissionskurve beziehen. Näherungsweise können wir die absolute Abweichung durch die Schichtdicke teilen, da die Lage der Grundlinie recht gut zu der Schichtdicke proportional ist, d.h.

$$\sigma_{rel} = \frac{\sigma_{abs}}{d_w}. \quad (6.1)$$

In Abbildung 6.3 ist eine Übersicht der angepassten Grössen zu sehen, Abbildung 6.2 zeigt dagegen den Verlauf der relativen quadratischen Abweichung für den non-conducting case beziehungsweise für das von uns gewählte adaptive Modell. Für den Wert des Parameters  $\kappa$  haben wir aus den HAS-Daten mit der bekannten Perkolationsschwelle von  $\approx 9 - 10 \text{ \AA}$  den Wert

$$\kappa_{313K} = \frac{d_0}{d_{c,313K}} \cdot \ln(2) \approx 0.1 \quad (6.2)$$

gewählt, für die Inseldichte die Werte wie in Gleichung 3.2. In Bild 6.3 fällt sofort auf, dass sowohl conducting als auch non-conducting case den gleichen Verlauf der Abweichung  $\sigma_{abs}$  ergeben, wogegen das adaptive Modell entscheidend darunter liegt, zumindest ab einer Schichtdicke von ca.  $10 \text{ \AA}$ . Auch für kleine Filmdicken ist die Überlegenheit des adaptiven Verfahrens nicht zu unterschätzen. Hier wird der Vorsprung zwar langsam immer kleiner, doch liegt conducting/non-conducting case durchgehend oberhalb des kombinierten Verfahrens, was ja bei so kleinen Filmdicken durchaus entscheidend sein kann. Wenn man die relative Abweichung aller drei möglichen Modelle betrachtet, so sieht man, dass sich der Fehler des von Berthier vorgeschlagenen conducting/non-conducting case für dicke Filme dem des unseren nähert, was nicht verwunderlich ist, schliesslich laufen alle drei Varianten bei hohen Gitterfüllfaktoren auf klassische Drude-Theorie hinaus. Die Messreihe bei 313 K reicht leider nicht so weit, dass sich die mittleren Fehler einander angleichen könnten, doch trotz des Eindrucks, den man aus dem Bild 6.3 gewinnen könnte, dass das adaptive Verfahren weit besser auch für dicke Eisenfilme wäre, lehrt uns der Verlauf von  $\sigma_{rel}$ , dass der tatsächliche Fehler beim c/nc case in der Tat bei ca. nach unten knickt. Das adaptive Modell ist in der Tat den ursprünglich von Berthier vorgeschlagenen Fällen nicht nur wegen der besseren spektralen Übereinstimmung, sondern auch wegen der anschaulichen Perkolationsschwelle von 0.5 überlegen.

Betrachten wir nun den Verlauf des Fitparameters  $s$  mit zunehmender Filmdicke.

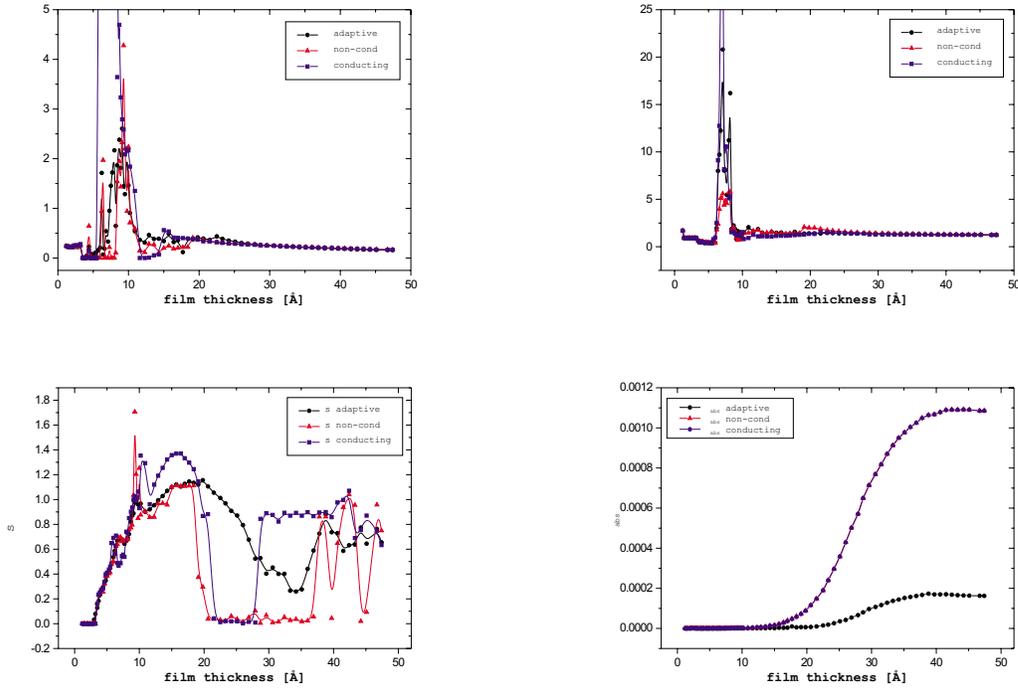
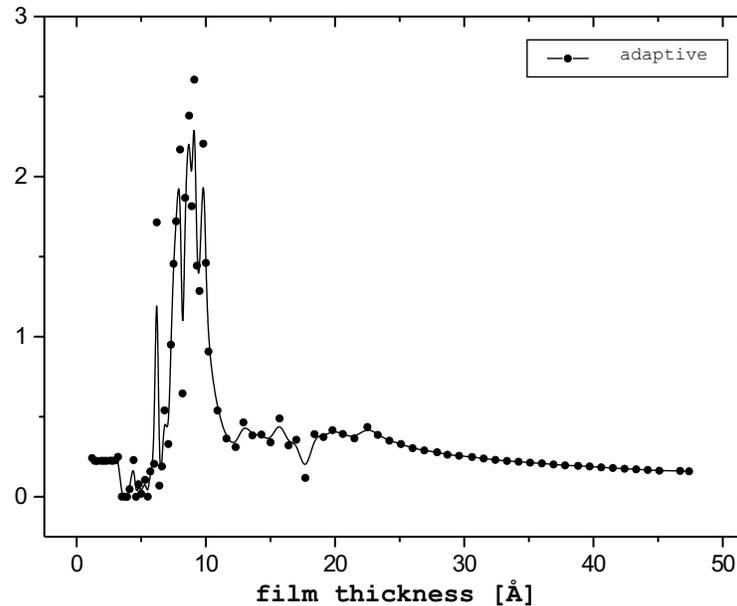


Abbildung 6.3: Übersicht des Parameterverlaufs für die 313 K Messreihe

Die Erwartung, es liesse sich ein mittlerer Wert  $\bar{s}$  für eine ganze Messreihe bestimmen, konnte sich leider nicht erfüllen, denn der Verlauf von  $s$  entspricht eher einem linearen Anstieg, denn einem weitgehend konstantem Wert. Die starken Schwankungen nach der Perkolationschwelle sind darauf zurückzuführen, dass, wie bereits erklärt,  $s$  mit wachsender Filmdicke die Bedeutung als Fitparameter verliert. Es handelt sich mehr um ein Artefakt des Fitprogramms und der verwendeten Startwerte, und zwar verliert  $s$  um so schneller seine Bedeutung, je grösser auch  $\kappa$  ist. Es hat sich gezeigt, dass eine 'manuelle' Änderung von  $s$  bei festgehaltenen  $\alpha, \beta$  oberhalb von ca. 15...20 Å keine signifikante Änderung des Transmissionsverlaufs ergibt, wenngleich Schwankungen von  $\sigma$  auftreten. Streng genommen haben wir aber mit  $s$  keinen weiteren Fitparameter, der zusätzlich zu den beiden anderen hinzukommt, denn wie wir sehen, muss  $s$  nicht unbedingt angefitet werden, sondern kann mit einem linearen Modell bis zu  $d_c$  sehr gut beschrieben und danach auf den Wert  $s = 1$  gesetzt werden. Die Vorstellung ist die, dass  $s$  den Fehler durch Anwendung des Yamaguchi-Modells auf vereinzelte Inseln und die Variation der Maschenweite auf-fängt.

Interessant ist selbstverständlich noch der Verlauf der beiden anderen Fitparameter mit der Schichtdicke des Eisenfilms. Wir konnten für dicke Filme weit oberhalb des optischen Crossover den in Vorgängerarbeiten gefundenen Verlauf von  $\alpha, \beta$  nur teilweise reproduzieren. Je nach verwendetem Modell (siehe [Mag99]) ergibt sich ein Endwert für den Rauigkeitskoeffizienten  $\alpha$  von 0.2 bis 0.6, wir finden hier einen Wert von 0.17, was im Rahmen der Fittoleranz ist. Mit zunehmender Grösse sollte

Abbildung 6.4: Verlauf von  $\alpha$  für 313 K (Bezier-interpoliert)

sich  $\alpha$  langsam dem Wert 0 nähern, denn unser Korrekturansatz 2.21 beschreibt ja die Streuung an der Filmoberfläche, die mit wachsender Filmdicke immer weniger zu der gesamten Streurrate  $\omega_\tau$  beiträgt. Dieser Trend ist zumindest deutlich erkennbar.

Wie ist aber die Variation von  $\alpha$  mit Annäherung an die Perkolationschwelle zu verstehen? Nun die Vorstellung über das Wachstums von Fe auf MgO(001) ist die, dass sich zuerst Inseln an Keimen (Oberflächendefekten) ausbilden, die ab ungefähr der kritischen Dicke  $d_c$  anfangen zu vernetzen, bis sich ein zunächst rauher, dann immer glatter werdender Eisenfilm ausbildet. So können wir den Anstieg von grossen Dicken herkommend bis an die Perkolationschwelle als immer grösser werdende Filmrauigkeit interpretieren. Im Bereich der kritischen Filmdicke zeigt sich eine starke Schwankung der Parameterwerte, einerseits durch Ungenauigkeiten in den gemessenen Spektren, da die Messreihen ohne Shutter aufgenommen worden sind (es wird gemessen, während der Film auf das MgO-Substrat aufwächst, was vor allem im Bereich von starker morphologischer Änderung wie an der Perkolationschwelle zu einem Transmissionsverlauf führt, der nicht mehr genau einem 'metallischen' oder einem Inselfilm zugeordnet werden kann), andererseits durch die Unzulänglichkeiten unseres  $\alpha$ -Modells, da wir die erwähnte Mittelung über  $\alpha_{Insel}$  und  $\alpha_{Film}$  durchführen.

Von kleinen Dicken herkommend lässt sich auch ein Anstieg von  $\alpha$  von einem Wert nahe Null erkennen, der zu einer Divergenz an der kritischen Dicke  $d_c$  führt, denn der strukturelle Übergang von einem Inselfilm zu einem geschlossenem Film ist ein

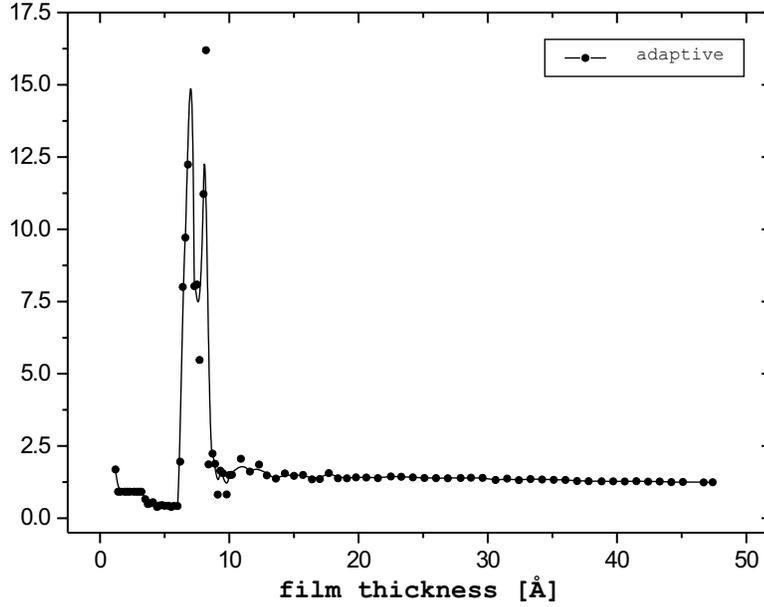


Abbildung 6.5: Verlauf von  $\beta$  für 313 K (Bezier-interpoliert)

Phasenübergang zweiter Ordnung, der durch Divergenzen in den Ordnungsparametern gekennzeichnet ist (wobei die Frage nach den richtigen Ordnungsparametern sehr schwierig ist). Wir können davon ausgehen, dass wir unterhalb  $d_c$  mit  $\alpha_{Insel}$  zu tun haben, wobei ein Wert nahe Null eine fast vollständig fehlende Streuung an der Oberfläche der Insel bedeuten würde. In diesem Dickenbereich ist aber leider auch unser Ansatz 2.21 zumindest fraglich, da eine solch kleine Insel einen Elektronenresonator bildet, in dem quantenmechanische Effekte nicht mehr vernachlässigt werden können. So gesehen kann  $\alpha \approx 0$  auch auf ein Versagen unseres kollektiven Streumodells, sprich der Herleitung der dielektrischen Inselfunktion aus den Bulk-Daten hindeuten.

Der Verlauf von  $\beta$  folgt näherungsweise dem von  $\alpha$  mit der typischen Divergenz an der kritischen Dicke  $d_c$ . Eine physikalische Interpretation ist schwierig, da wir kein konkretes Modell wie das bei  $\alpha$  als Korrekturfaktor für die Streuung an der Oberfläche der Fall war, besitzen. Wir haben  $\beta$  aus der Überlegung über den Depolarisationsfaktor der Filmoberfläche eingeführt, so dass für einen geschlossenen Film eine Abnahme von  $\beta$  mit zunehmender Schichtdicke einer Abnahme des Depolarisationsfaktor entspricht, was mit dem Glatte werden des Films übereinstimmt. Interessant ist auch noch, dass wir auch die unerwartete Abweichung wie auch schon in [Mag99] ( $\beta^2 \approx 1.4$ ) beobachtet für  $d_w \rightarrow \infty$  von der Erwartung  $\beta \rightarrow 1$  feststellen, wobei sich  $\beta$  dem Wert 1.25 nähert. Der Interpretation als ein Fehler in der Dickeneichung wie in [Mag99] andiskutiert, können wir hier auch nicht zustimmen, denn der Film ist bei 313 K selbst noch bei 4.5 nm viel zu dünn, um bulk-artige

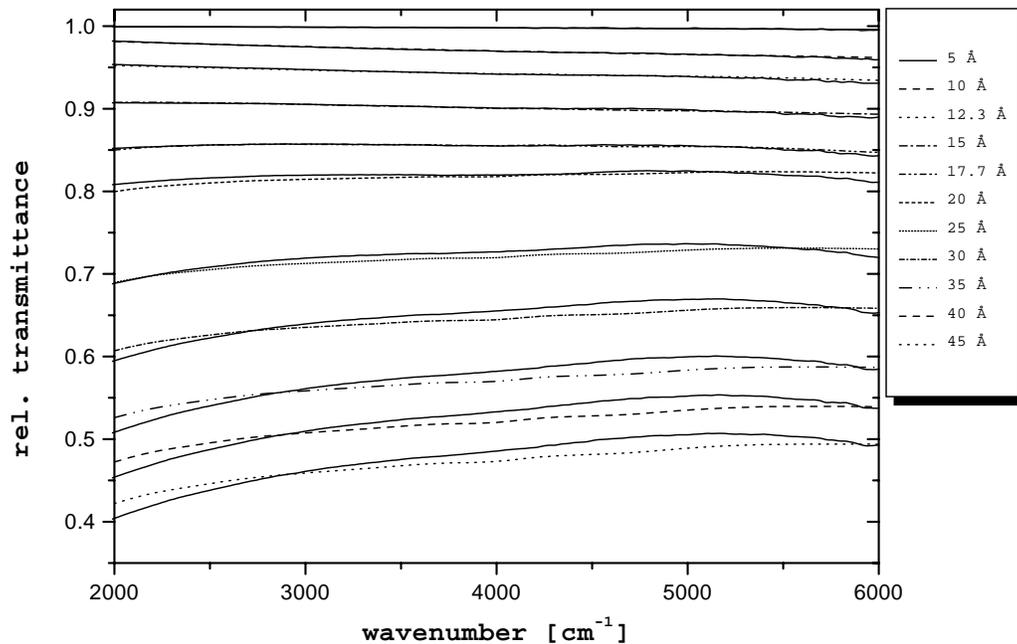


Abbildung 6.6: Vergleich der gerechneten und gemessenen Transmissionskurven für 313 K (Experiment durchgeführt)

Eigenschaften zu besitzen. Diese Vermutung über einen systematischen Fehler in der Dickeneichung der Messreihen gründen darauf, dass  $\beta$  nur in der Kombination  $\beta^2 \cdot d$  in die Strahlungsabsorption eingeht, d.h. wir haben es hier mit einer effektiven Dicke zu tun, so dass sich ein Faktor  $c$  in der Filmdicke als  $\frac{1}{\sqrt{c}}$  im  $\beta$ -Verlauf bemerkbar machen würde. Es ist zu vermuten, dass für noch höhere Schichtdicken  $\beta$  tatsächlich den Wert 1 erreichen wird, zumal die Steigung der  $\beta(d_w)$ -Kurve selbst für dicke Fe-Filme immer noch negativ ist.

Für das Verständnis der  $\alpha(d), \beta(d)$ -Kurven ist noch wichtig anzumerken, dass sich qualitativ der gleiche Parameterverlauf bei festgehaltenem  $s$ -Parameter ergibt, mit der typischen Divergenz an der Stelle  $d_c$ , wobei natürlich quantitative Abweichungen auftreten. Insbesondere stimmen die Kurven für einen 2 und einen 3-parametrischen Fit nach der Divergenzstelle fast vollständig überein. Es fällt an manchen Stellen auf, dass Punkte aus der Reihe tanzen, was zum einen ein Artefakt des Fitalgorithmus ist und zum anderen darauf zurückzuführen ist, dass bei manchen Spektren in einer Messreihe anscheinend eine etwas ungenaue Grundlinienkorrektur durchgeführt worden ist, so dass sie den Trend betrachtet entweder ein wenig zu hoch oder zu tief liegen, was insbesondere bei kleinen Schichtdicken zu sehr grossen Sprüngen in den Fitparametern führt. Man sollte auch nicht vergessen, dass speziell die Transmissionspektren weit unterhalb der Sprungstelle einen fast linearen, horizontalen Verlauf haben, der schon fast an der Rechengenauigkeit von SCOUT liegt (beim Hereinzoomen an die von SCOUT berechnete Transmissionskurve  $T(\omega)$  entdeckt

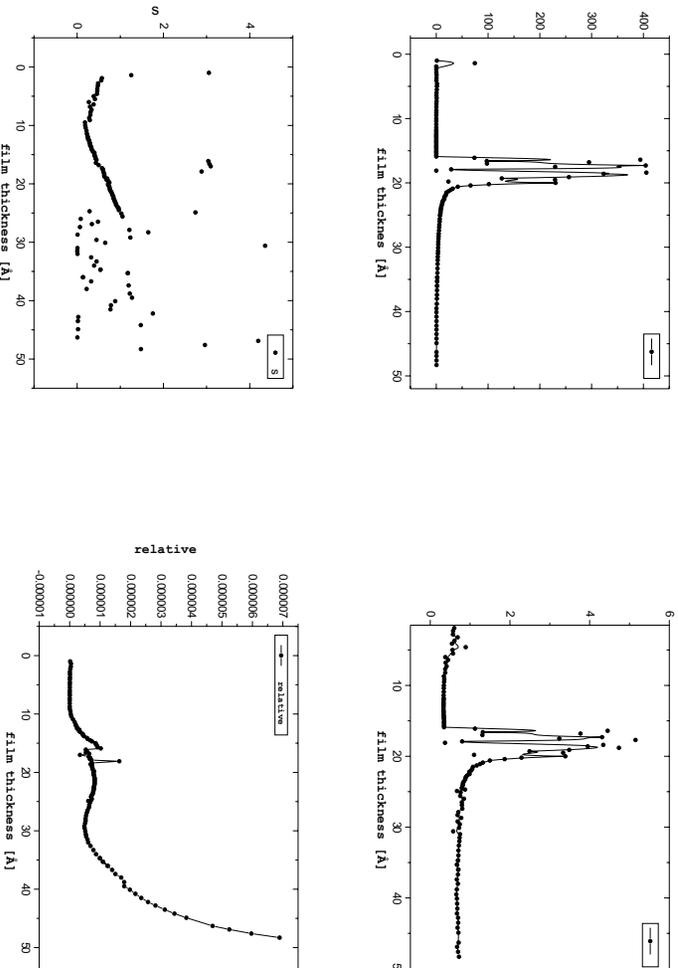


Abbildung 6.7: Übersicht über die Fitparameter der 430 K Messreihe.

man in den gerechneten Transmissionskurven Stufen der Grösse  $5 \cdot 10^{-6}$ , die von Rundungsfehlern im Mehrschichtformalismus herrühren, auf dieses Problem ist der Hersteller hingewiesen worden), was zusätzlich eine Anpassung an das Experiment erschwert.

Interessanterweise finden wir mit unserem modifizierten Berthier-Model sowohl bei  $\alpha$  als auch bei  $\beta$  eine Tendenz, vor Erreichen der Perkolationschwelle von grossen Dicken herkommend wieder abzufallen, um dann in die Divergenz herein zu laufen. [Mag99] beobachtet diesen Effekt nur im  $\beta(d)$ -Verlauf. Frappierenderweise ist dieser Effekt bei den durchgeführten Fits für die 430 K Aufdampftemperatur nicht im Verlauf von  $\beta$  zu sehen! Eine physikalische Erklärung ist bis heute ausgeblieben. In Frage käme natürlich auch wieder eine Unzulänglichkeit des Fitalgorithmus bzw. ein Einfluss der für den Fit benützten Startwerte  $\alpha_0, \beta_0$ , doch der Verlauf der quadratischen Abweichung schliesst in diesem Dickenbereich eine Fehlanpassung an die experimentellen Transmissionskurven weitgehend aus, zumal die gerechneten  $T(\omega)$ -Kurven den beobachteten Verlauf des Transmissionsvermögens doch recht gut beschreibt.

Das qualitativ andere Verhalten von  $\alpha$  im Vergleich zu [Mag99] könnte evntl. auch auf die unterschiedliche Bedeutung unseres  $\alpha$ -Parameters wie oben schon erklärt zurückzuführen sein. Die Grösse dieses Effektes im  $\alpha(d)$ -Verlauf entspricht mehr einem Abflachen der Kurve als einem plötzlichen Abfall, wir finden mehr einen Dickenbereich mit  $\alpha \approx const$ , der dann in den Divergenzbereich mündet. Auch in der  $\beta$ -Kurve

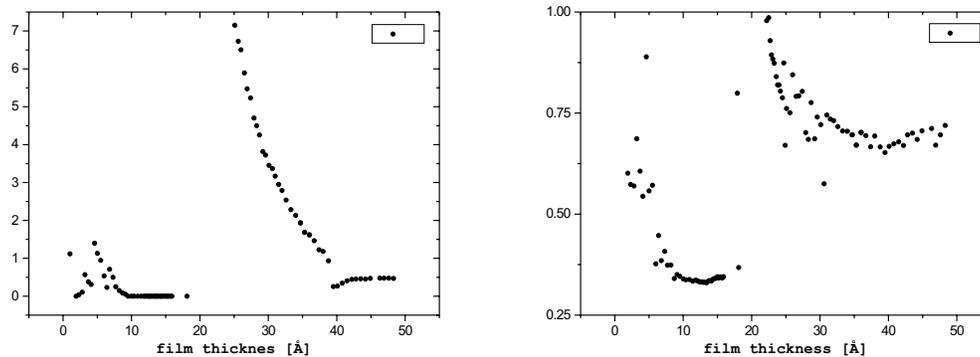


Abbildung 6.8: Für die Aufdampftemperatur von 430 K finden wir keinen deutlichen Abflacheffekt nach der Perkolationschwelle im Verlauf des Korrekturparameters  $\beta$

zeigt sich eher ein Bereich mit einem  $\beta$ , das um einen Mittelwert schwankt, als ein rapider Abfall wie in [Mag99] beobachtet. Nehmen wir die Bedeutung unserer Parameter  $\alpha, \beta$  an dieser Stelle ernst, so würde ein Bereich mit weitgehend konstanten Werten von  $\alpha, \beta$  auf eine Wachstumsphase des Films mit einer sich nicht ändernder Morphologie hindeuten. Betrachten wir noch das Bild 6.6 mit dem Vergleich der gerechneten und gemessenen Kurven genauer, so fällt auf, dass der Bereich der im Mittel konstanten Parameter sehr gut mit dem Bereich von konstanter Transmission übereinstimmt, in dem sich nicht mehr die Form der Transmissionskurve sondern fast nur noch das Transmissionsniveau (Grundlinie) verändert. Es handelt sich um den Bereich kurz nach der Perkolation von  $d \approx 10 \dots 20 \text{ \AA}$ .

Inwieweit ist aber eine Annahme einer Wachstumsmode mit unveränderter Morphologie (sprich mit nur zunehmender Schichtdicke ohne Strukturänderung) plausibel? Besonders in dem Dickenbereich kurz nach dem Ende eines reinen Inselfilmes erwarten wir im Gegensatz zu einer Wachstumsmode mit weitgehend unveränderter Morphologie starke Veränderungen an der Filmoberfläche, vor allem einen Abfall der Filmrauigkeit, den wir jedoch erst später registrieren. Erklärbar wäre dieser Verlauf vielleicht damit, dass kurz nach der Perkolationschwelle zwar die vorhandenen unbedeckten Substratstellen mit Eisenatomen zugedeckt werden, doch wachsen während dessen die bereits vorhandenen Erhebungen (ehemalige Inseln) selbst in die Höhe, so dass sich die mittlere Tiefe der 'Löcher' im weitgehend vernetzten Film in einem Dickenbereich nicht ändert. Dagegen spricht jedoch ein Fehlen dieses Effektes

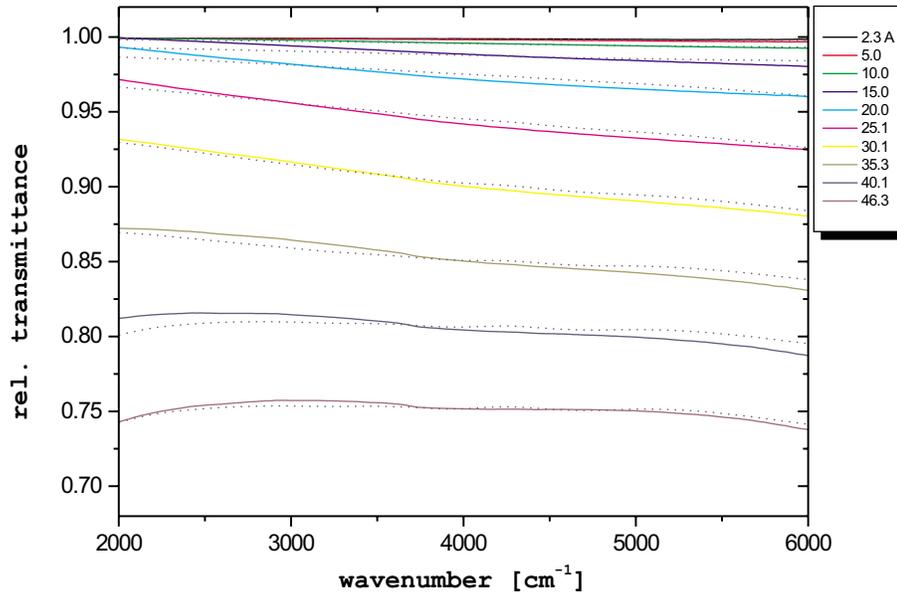


Abbildung 6.9: Auch für 430 K erreichen wir eine rel. gute spektrale Übereinstimmung. Der Knick um  $3500\text{cm}^{-1}$  herum ist auf die in [Bar98] erwähnte 'MgO-Schulter' zurückzuführen und von messtechnischer Natur (Rechnung gestrichelt).

bei 430 K im  $\beta$ -Verlauf, zumindest ist keine signifikante Abflachung weder bei 2 parametrischen noch bei 3 parametrischen Fits erkennbar. Eine solche Wachstumsmode ist auch erst gar nicht in unserem Modell mit einer zufälligen Anfangsverteilung enthalten, so dass die Vermutung mehr auf ein Versagen des Fitalgorithmus gekoppelt mit unserem stochastischen Modell liegt.

Eine weitere Schwierigkeit, die mehr von prinzipieller Natur ist, können wir bereits aus dem Bild 6.10 erahnen. Wie man sehen kann, verhält sich nur der Imaginärteil von  $\epsilon$  gutartig beim Überqueren der kritischen Dicke  $d_c$ . Das verwundert insofern nicht, weil wir unsere gerechneten dielektrischen Funktionen nur an den Transmissionsverlauf anpassen, wobei näherungsweise  $T_{rel} \sim 1 - Im(\epsilon)$  gilt. Es wäre notwendig, gleichzeitig sowohl das Transmissionsvermögen und z.B. die Reflektivität des Films anzupassen, um beide 'Freiheitsgrade' der dielektrischen Funktion vollständig erfassen zu können, doch dazu fehlen entsprechende Messdaten. Wäre unser Verfahren lückenlos, so müssten wir auch dem Realteil die gleiche Bedeutung zustehen, wie dem Imaginärteil, selbst wenn wir nur de facto nur eine der beiden Größen anfiten. Hier zeigt sich also wieder eine Schwäche des einfachen stochastischen Ansatzes.

Das gleiche Verhalten zeigen auch die für die beiden anderen Temperaturen gerechneten  $Re(\epsilon(\omega, d))$ -Kurven, so dass es sich hier um ein grundlegendes Problem des nur auf Transmissionsanpassung basierten Verfahrens handelt. Der Imaginärteil zeigt dagegen auch hier dem Transmissionsverlauf folgend ein gutartiges Verhalten.

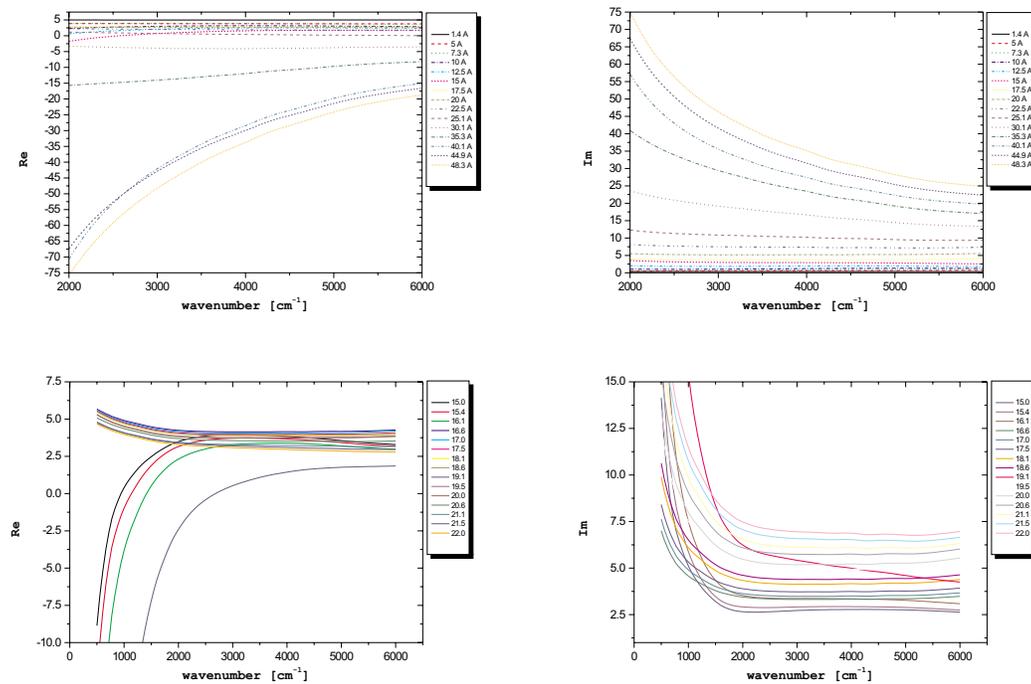


Abbildung 6.10: Verlauf der gerechneten dielektrischen Funktion am Beispiel der 430 K Messreihe. Der kritische Bereich wurde noch mal mit 100pt Auflösung in einem erweiterten Wellenzahlbereich errechnet.

Eine denkbare Verbesserung unseres einfachen Modells wäre ein Übergang zu mikroskopisch geordneten Strukturen, bzw. zu einer nach bestimmten Regeln gleichmässig mit Inseln übersäten Oberfläche, da wir nur bei Zimmertemperatur oder gar erst darunter von dem schon erwähnten 'Ausbilden einer Schneedecke' ausgehen können. Dies stößt jedoch wieder an ressourcenbedingte Grenzen, denn es wäre notwendig, nicht mehr eine Gittermasche mit einer einzelnen Insel zu identifizieren, sondern um eine Aufrechterhaltung der Symmetrie über einen weiten Filmdickenbereich zu gewährleisten, eine Insel mit mehreren Gitterpunkten 'anzunähern', was für ein repräsentatives Ergebnis ein entsprechend grösseres Gitter als der Ordnung 8 erfordern würde.

Die 430 K Messreihe zeigt bis auf das Fehlen des erwähnten Abflacheffektes bei  $\beta(d)$  qualitativ ein ähnliches Verhalten wie die Zimmertemperaturmessung. Auffällig ist jedoch noch ein Knick im Anfangsbereich von  $s$ , der Verlauf ist erst dann ansteigend linear wie schon bei 313 K beobachtet. Aus diesem Verhalten lässt sich mehr ein Mittelwert ausrechnen, den wir zu  $\bar{s} \approx 0.34 \pm 0.05$  bestimmt haben. Die Abbildung 6.1 zeigt den Vergleich zwischen einem 2 und 3 parametrischen Fit der 430 K Messreihe. Der qualitative Verlauf von  $\alpha, \beta$  des 3 parametrischen Fits wird bei einer Einschränkung auf nur 2 Fitparameter immer noch recht gut reproduziert, der hier nicht gezeigte mittlere quadratische Fehler liegt in der gleichen Grössenordnung bei beiden

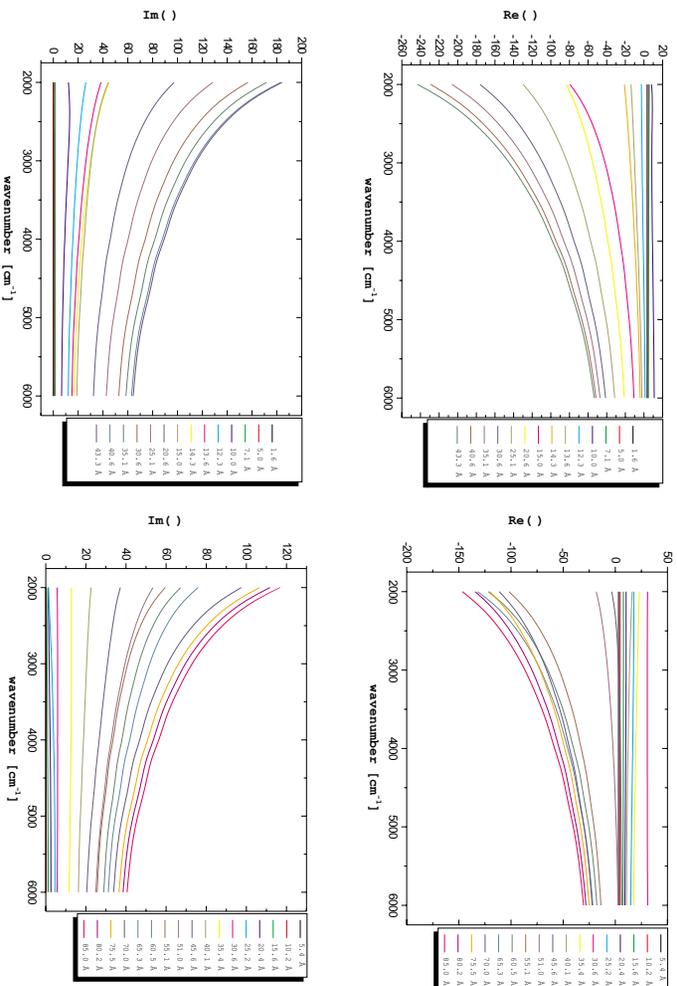


Abbildung 6.11: Übersicht über die Dielektrizitätskonstanten für sowohl 313 K (links) als auch 500 K (rechts) Substrattemperatur. Man erkennt eine Unstetigkeit in  $\text{Re}(\epsilon)$  mit zunehmender Dicke.

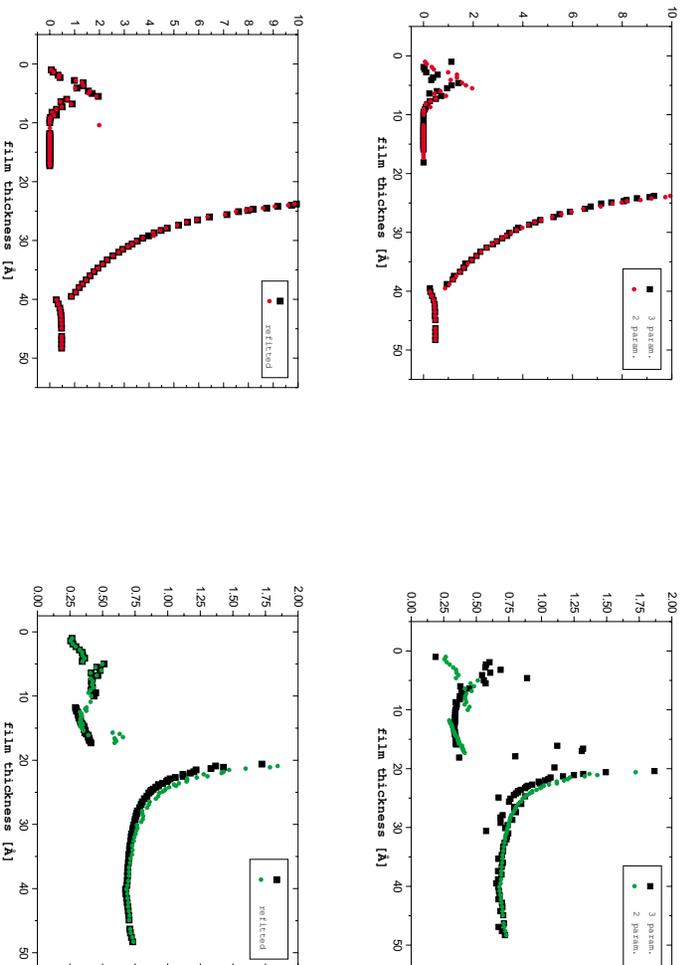


Abbildung 6.12: Vergleich zwischen 2 und 3 parametrischen Fits für 430 K Substrattemperatur. In der unteren Hälfte eine erneute Anpassung mit Fitwerten als Startwerte (2 parametrisch).

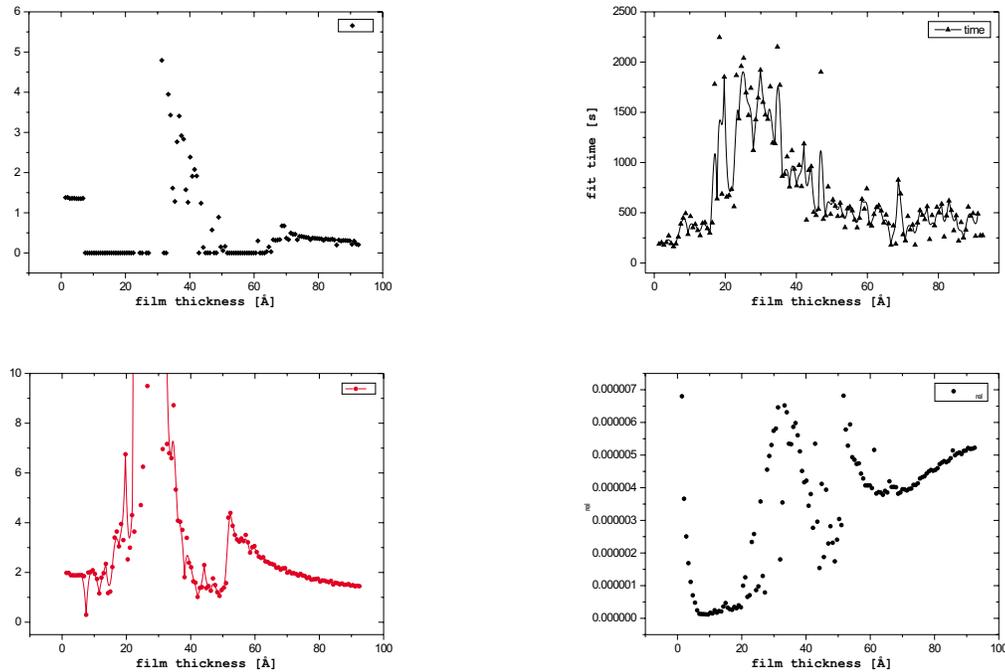


Abbildung 6.13: Parameteranpassung für 500 K Aufdampftemperatur. Die sehr starke Schwankung ist teilweise auf den kleinen Wert des  $\kappa$ -Parameters von  $\approx 0.025$  zurückzuführen. Zu sehen ist auch der Zeitverbrauch pro gefittetes Transmissionsspektrum.

Fitprozeduren, wenngleich der Quotient  $\frac{\sigma_2}{\sigma_3}$  über 1 liegt, d.h. die Einschränkung auf nunmehr 2 Parameter verschlechtert die spektrale Übereinstimmung zwischen dem gerechneten und gemessenen Transmissionsverlauf, insbesondere im Bereich starker Schwankungen in  $\alpha, \beta$ .

Kehren wir an dieser Stelle noch mal zu der Frage zurück: wie gut lassen sich eigentlich die gefiteten Parameterverläufe reproduzieren? Wir haben nicht nur einen Durchlauf der Fitroutine (Stapelverarbeitungsdatei) durch die Messdaten herangezogen, insgesamt wurde die 313 K Reihe 3 mal 3 parametrig und 2 mal 2 parametrig mit dem adaptiven Verfahren angefitet (es gingen mehrere Fits mit conducting/nonconducting case, Maxwell-Garnett, reinem Cohen-Modell usw. voraus), wobei sich bei gleichen Startwerten  $\alpha_0, \beta_0$  jeweils kein Unterschied im Parameterverlauf ergeben hat. So gesehen sind die Fitwerte von  $\alpha, \beta$  als stabil anzusehen, was aber nicht selbstverständlich ist, da wir bei jedem Fitdurchlauf auf einer anderen Zufallszahlenfolge aufbauen. Dieses potentielle Problem ist in den Vorgängerarbeiten [Mag99], [Bar98] nicht aufgetaucht, weil die reine Drude-Theorie keine stochastische Komponente enthält.

Zu untersuchen bleibt vielleicht noch die Stabilität der Parameterverläufe gegenüber einer Variation der Startwerte, ein Problem was besonders in vorherigen Arbeiten im Zusammenhang mit dem Vorgängeralgorithmus simplex aufgetaucht ist. Schau-

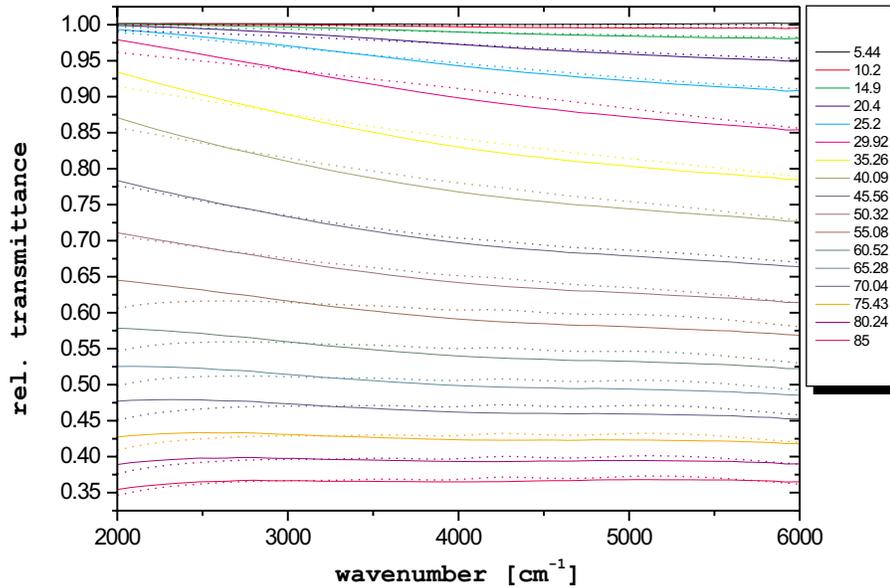


Abbildung 6.14: Gerechneter Transmissionsverlauf im Vergleich zu Messung bei 500 K, Messung durchgezogen.

en wir uns zu diesem Zweck die Abbildung 6.1 an, aus der hervorgeht, dass wir erstens qualitativ den gleichen Parameterverlauf sowohl mit einem 3 ( $\alpha, \beta, s$ ) wie auch 2-parametrigem Fit ( $\alpha, \beta$ ) reproduzieren können und zweitens bei Verwendung der bereits gerechneten Fitwerte als neue Startwerte für einen erneuten Fitdurchlauf auch qualitativ den gleichen Verlauf bekommen. So gesehen sind 2 und 3 dimensionale Fits als gleichwertig bezüglich der Güte bei der Parameteranpassung zu betrachten, wenngleich wir bei Verzicht auf  $s$  insbesondere für kleine Dicken ein wenig an spektraler Übereinstimmung einbüßen. Alle gesammelten Fitergebnisse wie auch die gesamte Software ist übers Web [PS] zu beziehen.

Schauen wir uns noch die Fitergebnisse für die 500 K Aufdampftemperatur an. Es fällt eine noch stärkere Streuung bei den Fitwerten von  $\alpha$  auf, was nicht zuletzt auf die höhere Aufdampftemperatur und so einen sehr grossen Bereich von Inselwachstum mit sehr flachen Spektren zurückzuführen ist. Die Werte des Parameters  $\alpha$  sind leider nicht schlüssig, nur der Anfangsbereich mit  $\alpha \approx 0$  und der Abflachbereich nach dem turbulenten Perkolationsbereich mit anschliessendem 'Ast' liessen sich ob durch erneutes Anfiten oder Refiten reproduzieren.

Es ist auch deutlich erkennbar, dass der Anfangsbereich unterhalb  $d_w \approx 8$  viel schlechter beschrieben wird als bei den vorausgegangenen Messreihen, was aber nicht auf das verhältnismässig kleine Simulationsgitter von  $256 \times 256$  zurückzuführen ist, wie man vielleicht wegen des kleinen Gitterfüllfaktors  $\mu_{1.5} \approx 0.025$  denken könnte.

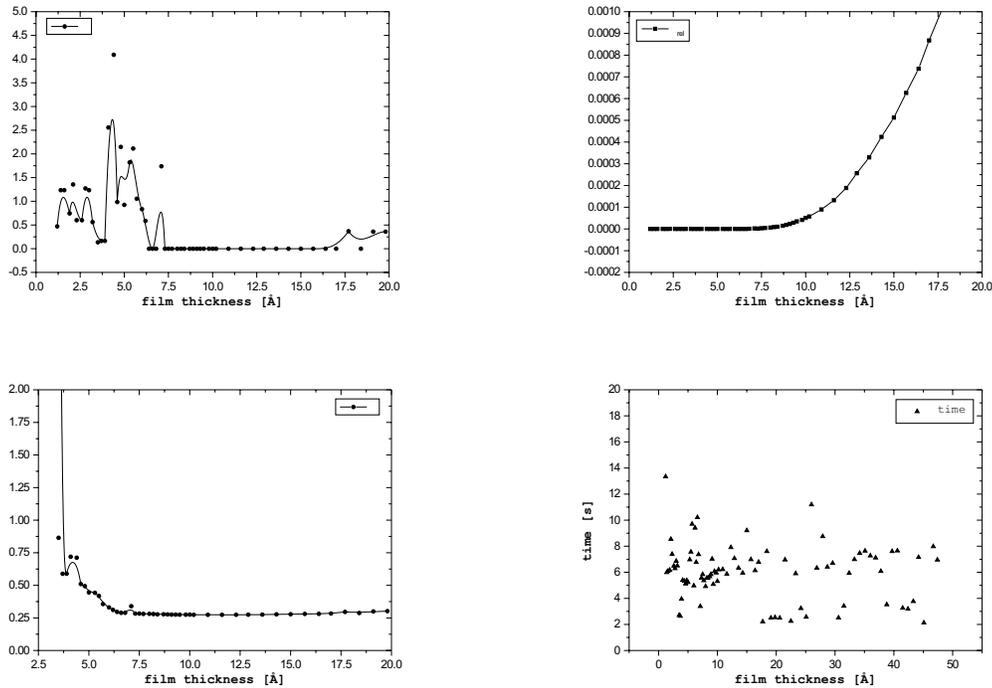


Abbildung 6.15: Parameteranpassung für 313 K Substrattemperatur mit einfachem Yamaguchi-Modell

Selbst für diesen kleinen Wert ist eine Gitterordnung von  $p = 8$  ausreichend, man überlege sich, dass wir immer viele 'schwarze' Kästchen haben, denn der Erwartungswert ist immer noch  $N_{\text{schwarz}} \approx 1200$  und die Absolutschwankung  $\Delta N_{\text{schwarz}} \approx 35$ . Vielmehr ist dieser Effekt auf ob wegen ungenauer Grundlinienkorrektur verschobene Fe/MgO Spektren zurückzuführen, denn bei einer genaueren Betrachtung der 500 K Messreihe, stellen wir fest, dass die Relativtransmission bis ca.  $10 \text{ \AA}$  grösser als 1 ist, was zwar physikalisch nicht unsinnig ist (man denke z.B. an die Vergütung von Brillengläsern), doch verändert sich die Grundlinie bei  $10 \text{ \AA}$  sprunghaft, was auch deutlich im Verlauf von  $\alpha$  zu sehen ist. Die Rohdaten der 500 K Messreihe sind so erst ab ca.  $10 \text{ \AA}$  brauchbar.

Wir finden auch hier sowohl im  $\alpha$  als auch  $\beta$ -Verlauf einen Abflacheffekt nach der Perkolationschwelle. Die Grösse dieses Effektes scheint insbesondere beim Korrekturparameter  $\beta$  signifikant zu sein. Bezüglich spektraler Übereinstimmung mit dem Experiment können wir auch bei 500 K auf jeden Fall den Trend reproduzieren, es war sehr schwer geeignete Startwerte für die Fitprozedur zu finden, so dass anfängliche Fits so gut wie gar keine Übereinstimmung in einem Dickenbereich von  $20 \text{ \AA}$  bis  $50 \text{ \AA}$  ergeben haben. Durch langes Probieren hat sich der Verlauf wie in 6.1 ergeben, wobei der mittlere Perkolationsbereich nach wie vor nur bedingt beschrieben wird.

Werfen wir noch zum Vergleich einen kurzen Blick auf die Parametrisierung von  $\alpha, \beta$  bei Anpassung an das vereinfachte (homogene Inselverteilung auf der Oberfläche)

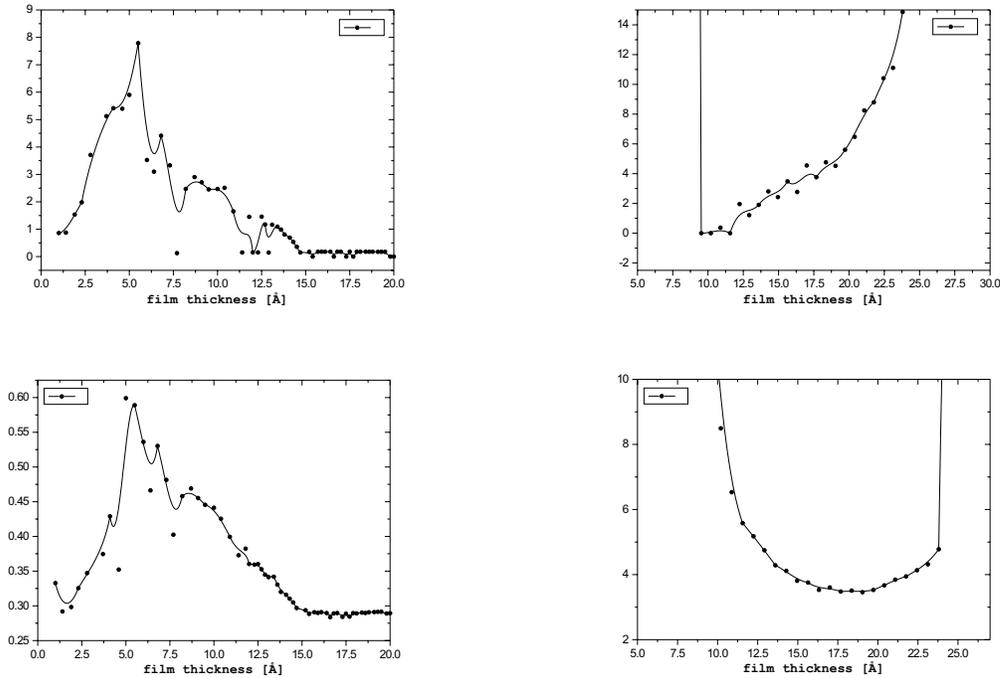


Abbildung 6.16: Parameterverlauf für 430 K (links) und 500 K (rechts) nach Anpassung mit einfachem Yamaguchi-Modell

Yamaguchi-Modell, wie in Bild 6.15 und 6.16 zu sehen ist. Es fällt auf, dass analog wie bei der Gitterrenormierung bei allen 3 Messtemperaturen im Anfangsbereich jeder Messreihe nach wie vor starke Schwankungen der Fitparameter auftreten. So können wir weitgehend ausschliessen, dass diese Streuung auf prinzipielle Unzulänglichkeiten unseres Gitterverfahrens zurückzuführen ist. Viel mehr handelt es sich hierbei tatsächlich um inhärente Schwankungen, die mit den sehr flachen Spektren für Filme bei sehr kleinen Schichtdicken zu tun haben.

Wir haben auch hier mit sehr grossen Fehlern in den Parameterwerten zu kämpfen, eine Abtastung des Fitraumes hat sogar gezeigt, dass die beiden Parameter  $\alpha$ ,  $\beta$  noch viel stärker korrelieren als das beim Gitterverfahren der Fall ist, so dass den Werten des reinen Yamaguchi-Modells nicht getraut werden kann. Es wäre vermutlich vorteilhafter, nicht  $\alpha$ ,  $\beta$  sondern eins von beiden und noch die optische (effektive) Schichtdicke anzupassen.

Interessanterweise finden wir mit vereinfachten Yamaguchi-Modell auch ein Absinken von  $\alpha$  kurz vor Zusammenbrechen des Modells, so dass der Verdacht von  $\alpha_{insel} \approx 0$  wie wir beim Berthier-Verfahren gefunden haben, erhärtet werden kann. Sehr deutlich ist auch am Beispiel der 313 K Messreihe zu sehen, wie die mittlere quadratische Abweichung bereits ab ca. 10 Å zu explodieren beginnt, so dass wir unsere Vermutung aus Kapitel 4 über die schlechte Eignung des Yamaguchi-Modells bereits ab 10 Å vollends bestätigen können. Das einfache Yamaguchi-Modell ist

sogar nicht bis zu der kritischen Dicke anwendbar, sondern viel mehr erst ab einer minimalen Dicke  $d_{min}$ , was einerseits auf die sehr flachen Spektren für ganz dünne Filme und andererseits auf die zugleich sehr kleinen (wenige Atome) Inseln zurückzuführen ist, die nicht klassisch beschrieben werden können. Allerdings erreicht man in dem Dickenbereich von  $d_{min} \dots d_{crit}$  durchaus auch spektrale Übereinstimmung mit den gemessenen Transmissionsverläufen.

Zum Abschluss dieses Kapitels können wir noch einen Korrelationskoeffizienten zwischen den berechneten und gemessenen Daten in Betracht ziehen. Gegeben seien zwei Datensätze  $\{x_i\}$ ,  $\{y_i\}$ ,  $i = 1 \dots N$ , so ist der relative, normierte, lineare Korrelationskoeffizient  $\sigma_{x,y}$  (normierte Kovarianz) definiert durch:

$$\sigma_{x,y} = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^N (y_i - \bar{y})^2}}, \quad (6.3)$$

was sich durch Auflösen auf eine für programmiertechnische Auswertung besser geeignete Form bringen lässt:

$$\begin{aligned} \sigma_{x,y} &= \frac{s_{xy} - \frac{s_x s_y}{N}}{(s_{x^2} - \frac{s_x^2}{N})(s_{y^2} - \frac{s_y^2}{N})} \\ s_x &= \sum_{i=1}^N x_i \quad s_y = \sum_{i=1}^N y_i \\ s_{x^2} &= \sum_{i=1}^N x_i^2 \quad s_{y^2} = \sum_{i=1}^N y_i^2 \\ s_{xy} &= \sum_{i=1}^N x_i y_i. \end{aligned} \quad (6.4)$$

Die Grösse  $\sigma_{x,y}$  macht eine Aussage über die zwischen den Parametern  $\{x_i\}$  und  $\{y_i\}$  bestehende Abhängigkeit und zwar nennt man x, y maximal linear korreliert, falls  $\sigma_{x,y} = 1$ , maximal gegenkorreliert für  $\sigma_{x,y} = -1$  und unkorreliert für  $\sigma_{x,y} = 0$ . Ein Lauf der Korrelationsroutine durch die 3 parametrischen Fitwerte von  $\alpha, \beta$  hat folgendes Bild ergeben:

$$\begin{aligned} \sigma_{\alpha,\beta}^{313K} &= 0.1967699925 \\ \sigma_{\alpha,\beta}^{430K} &= 0.7632557885 \\ \sigma_{\alpha,\beta}^{500K} &= 0.9907387450, \end{aligned} \quad (6.5)$$

das heisst, mit zunehmender Temperatur verstärkt sich die bereits aus der Abtastung des Fitraumes vermutete (flaches Minimaltal) Abhängigkeit der beiden Korrekturparameter  $\alpha$  und  $\beta$ . Die Korrelation ist insofern nicht verwunderlich, da in den Ausdruck für die Absorption eines dünnen Films zumindest für dickere Filme wie in [Mag99] gezeigt:

$$T \approx 1 - A \approx 1 - \frac{\omega_p^2 d_w}{\omega_\tau} \quad (6.6)$$

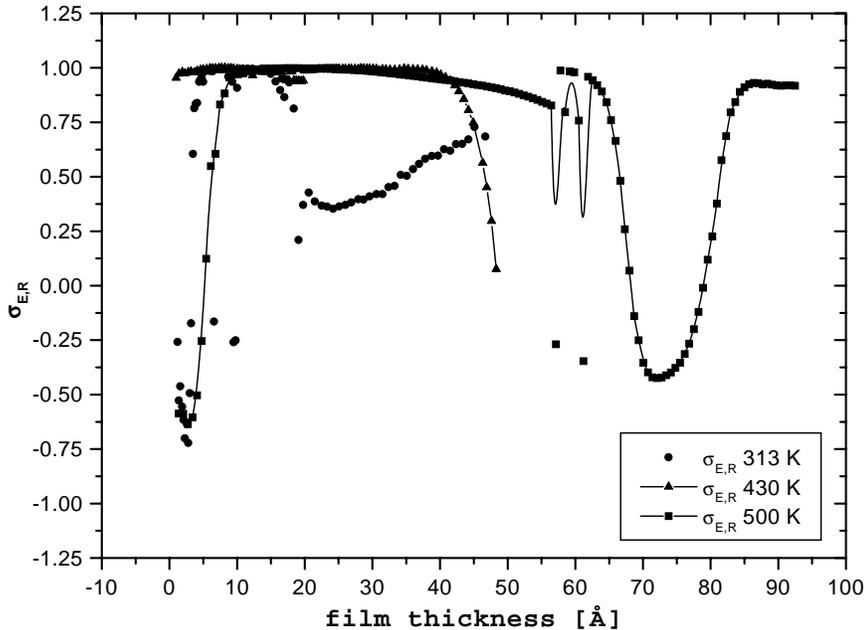


Abbildung 6.17: Der nach der Formel 6.4 berechnete Korrelationskoeffizient zwischen den gemessenen und gerechneten Transmissionsverläufen für alle 3 Substrattemperaturen

der Quotient  $\frac{\alpha}{\beta^2}$  eingeht. So reicht zumindest an der Sprungstelle, dass durch Unzulänglichkeiten des Modells (von kleinen Dicken herkommend) oder zunehmende Filmrauhigkeit, wenn man sich von dem Drudebereich nähert, bereits  $\alpha$  zu divergieren beginnt und  $\beta$  folgen muss. Eben aus diesem Grunde müssen grundsätzlich beide Größen  $\alpha$  und  $\beta$  gleichzeitig angefitet werden, wenn auch der Eindruck entstehen könnte, es handle sich nicht um unabhängige Parameter. Ein wenig anders sieht die Lage aus, wenn wir die Korrelationskoeffizienten nur für den Anfangsbereich (bis zu der Sprungstelle) ausrechnen, dort fällt  $\sigma_{\alpha,\beta}$  im Vergleich zu den Werten in 6.5 ungefähr um Faktor  $\frac{1}{3}$  ab, eine genaue Angabe ist wegen der Willkür der Wahl der Punktezahl nicht so ohne weiteres möglich.

Wir können auch einen Korrelationskoeffizienten  $\sigma_{E,R}$  zwischen den gemessenen und gerechneten Transmissionsverläufen berechnen, das Ergebnis ist in Bild 6.17 zu sehen. Zusammen mit dem Verlauf der mittleren quadratischen Abweichung erlaubt uns das noch mal abschliessend die Güte der Simulationen zu beurteilen. Wie man sehen kann, sind insbesondere die 430 K Rechnungen für so gut wie alle Filmdicken hervorragend, wengleich am Ende der Spektrenreihe stärkere Abweichungen auftreten. Hier wäre möglicherweise noch eine leichte Variation der Schichtdicke wie in früheren Arbeiten erwähnt eine Abhilfe, doch können wir das Ergebnis bis ca. 45 Å auf jeden Fall akzeptieren.

Für die 500 K Messreihe ist auch der bereits im Bild 6.1 zu gewinnende Eindruck

auffallend, unser Verfahren hätte Probleme in dem Dickenbereich von ca. 60 bis 80 Å, da dort auch der rein 'visuelle' Vergleich Differenzen zwischen Rechnung und Experiment offenbart. Möglicherweise lassen sich hier noch bessere Startwerte für das Fitverfahren finden, die auf eine kleinere quadratische Abweichung führen. Mit hoher Wahrscheinlichkeit liegen in diesem Dickenbereich zwei konkurrierende Minima in der Fitlandschaft vor, was aber nur durch ein sehr zeitaufwendiges Abtasten des Fitraumes (Rechenzeit mit vorhandener Hardware für die in Frage kommenden ca. 30-40 Spektren ungefähr 2 Monate!) geklärt werden könnte.

Dem Korrelationskoeffizienten nach zu urteilen, wären die Ergebnisse für 313 K weniger erfreulich, doch bestätigt sich dieser Eindruck nicht beim Betrachten der beiden Transmissionsverläufe in Bild 6.6. Man sollte nicht vergessen, dass  $\sigma_{x,y}$  ein sehr schwaches Mass für die Übereinstimmung zwischen zwei Kurven darstellt, so führt z.B.  $y_1 = a + bx$  und  $y_2 = a + 100bx$  auf ein  $\sigma_{y_1,y_2} = 1$ , obwohl beide Kurven überhaupt nicht übereinstimmen. Analog ergeben  $y_3 = a + 0.001x$  und  $y_4 = a - 0.001x$  einen Korrelationskoeffizienten von  $\sigma_{y_3,y_4} = -1$ , wogegen wir diesmal von perfekter Übereinstimmung reden könnten. Der Verlauf von  $\sigma_{E,R}$  offenbart hier lediglich Schwierigkeiten für sehr dünne Fe-Filme, wo wir auch schon mit Abweichungen in  $\alpha(d_w)$  und  $\beta(d_w)$  zu tun hatten. Die Übereinstimmung für dickere Filme lässt sich vermutlich durch Verwendung des  $\gamma$ -Modells verbessern, da wir für die 313 K von original Ordal-Daten ausgegangen sind.

## 6.2 Zusammenfassung und Ausblick

In den Kapiteln 2 bis 6 haben wir ausgehend von einfacher Drude-Theorie, über einfache Effektivmedienmodell kombiniert mit Gesetzmässigkeiten über das Wachstum von Inselfilmen auf einem Substrat wie das MgO ein Gitterverfahren vorstellen, mit dem sich im Gegensatz zu schon früher benutzten Modellen wie das Yamaguchi-Modell für Inselfilme oder die Drude-Theorie für geschlossene Filme, mit dem sich weitgehend die gesamte morphologische Entwicklung von Fe-Filmen auf MgO(001) beschreiben lässt.

Wir finden eine Parametrisierung der zur Anpassung der noch recht rohen Theorie verwendeten Parameter  $\alpha$  (Rauigkeitskoeffizient) und  $\beta$  (Korrektur der Plasmafrequenz), die uns erlaubt, Aussagen über die Wachstumsmode des Metallfilmes zu machen und auf die kritische Dicke, ab der der Film weitgehend als bereits vernetzt betrachtet werden kann zu schliessen.

Wir finden bezüglich der Perkolationsschwelle auch eine gute Übereinstimmung mit den Daten aus der He-Atomstrahlstreuung, wobei noch angemerkt werden muss, dass die Lage der Perkolationsschwelle relativ unempfindlich gegenüber Änderungen des Inselwachstumsparameters  $\kappa$  ist. Der Verlauf von  $\alpha$  entspricht von kleinen Filmdicken her kommend einem Ansteigen von 0 bis zu einer Divergenz an der kritischen Stelle, nach der sich wieder ein Abfall anschliesst mit einem kleinen Bereich mit konstantem  $\alpha$  bzw. einem Abfall unter den Drude-Ast, der sich dann für dickere Filme anschliesst und sich  $\alpha$  dem erwarteten Wert von 0 nähert. Der Verlauf von  $\beta$

entspricht weitgehend dem von  $\alpha$ , wobei wir auch in dieser Arbeit eine geringfügige Abweichung von dem erwarteten Wert  $\beta \approx 1$  für dicke Filme finden.

Es ist uns darüber hinaus gelungen, den Transmissionsverlauf der gemessenen Spektren in Simulationsrechnungen zu reproduzieren, wobei wir mit 2 Parametrischen Fits im Vergleich zu 3 parametrischen ein wenig an spektraler Übereinstimmung einbüßen. Auch der Versuch, den Verlauf von Imaginärteil der dielektrischen Funktion mit zunehmender Filmdicke zu bestimmen, ist von Erfolg gekrönt worden. Dies war bisher nur in sehr aufwendigen Ellipsometrieexperimenten möglich. Der Realteil von  $\epsilon(\omega)$  wird von dem optimierten Gitterverfahren hingegen nur näherungsweise reproduziert.

Die künftige Weiterentwicklung könnte dahin gehen, dass man das hier vorgestellte Verfahren auf noch andere Materialkombinationen wie das z.B. auch in der Ag Pucci untersuchte Si/Fe System anwendet und sich von der allgemeinen Verwendbarkeit überzeugt. Ein weiterer interessanter Aspekt wäre eine Konzentration auf die Herstellung einer geeigneten, geordneten Ausgangsstruktur bzw. eine Kopplung der Simulation mit RTM-Aufnahmen von Probenoberflächen für die Gitterrechnungen, wobei die Hoffnung besteht, eine noch bessere Übereinstimmung in der Transmission und vielleicht auch bessere Parametrisierung der Aufdampfreihen zu erhalten.

# Anhang A

## Hinweise zum Umgang mit SCOUT

Zur Simulation der Transmissionsspektren setzt die AG Pucci die Spezialsoftware SCOUT ein. Für den uneingeweihten Leser merken wir an, dass die Software den z.B. in [Bar98] vorgestellten Mehrschichtformalismus implementiert. Es lassen sich selbst komplizierte Schichtsysteme (layer stacks) definieren und deren optische Eigenschaften wie Reflexions-, Transmissionsvermögen und vieles mehr entweder mit den bereits in Software vorhandenen Modellen oder benutzerdefinierten Dielektrizitätskonstanten simulieren.

### A.1 OLE-Automation Library

Während der Diplomarbeit ist eine spezialisierte C++-Klasse zur Ansteuerung von SCOUT entstanden. Um mit dem auf Windows basierten Programm SCOUT innerhalb eines C++-Programms arbeiten zu können, bindet man die Headerdatei `<scoutole.hpp>` in das Projekt ein und linkt das Projekt mit der bereits vorcompilierten Bibliothek `scout.lib`. Das Aufrufen von SCOUT geschieht durch Allokierung einer neuen Variablen des Typs `SCOUT`, wobei beliebig viele Instanzen (SCOUT-Fenster) erzeugt werden können. Üblicherweise definiert man:

```
Scout* myscoutptr = new Scout;
```

bzw.

```
Scout myscout;
```

wobei im zweiten Falle das Cleanup durch verlassen des Variablenscopes automatisch sichergestellt ist. Bei beiden Aufrufen wird der Standardkonstruktor der Klasse `SCOUT` aufgerufen, wobei die sog. CLSID (Class ID) aus der in der Windows-Registry eingetragenen Programm ID generiert wird. Damit dies funktioniert, muss `SCOUT` als Application registriert sein, was man durch Doppelklicken auf ein `SCOUT`-Projekt und Auswählen von `SCOUT` als Standardapplikation für diesen Datentyp gewährleistet wird.

Mit dem So erstellten Pointer bzw. Variablen können nun OLE-Funktionen von `SCOUT` aufgerufen werden, die einzelnen Funktionen der OLE-Schnittstelle findet man recht gut dokumentiert in der Hilfedatei von `SCOUT` [Sci], z.B.:

```
// parameterless method
myscoutptr->invoke("Show");

// string valued property
myscoutptr->set("configuration_file", scoutfile);

// more than one arguments:
myscoutptr->set("fit_parameter_value", 1, height*1e-4);
```

```
// get function return VARIANTS
float dev = myscoutptr->get("fit_deviation").fltVal;
```

Nicht zu vergessen ist in diesem Falle noch ein Cleanup, was man mit

```
delete myscoutptr;
```

bewerkstelligt. Man beachte dabei, dass die 'get'-Funktionen jeweils eine Variable vom typ VARIANT zurückgeben (siehe <scoutole.hpp>. Ferner entspricht der in SCOUT verwendete REAL-Datentyp einem float in C/C++.

## A.2 Tips

In diesem Abschnitt sollen die während der Diplomarbeit gesammelten Erfahrungen mit dem Programm SCOUT Ver. 98 weitergegeben werden.

Ein grosses Problem beim Umgang mit SCOUT über OLE ist die Absturzgefahr, falls man ein experimentelles Spektrum oder eine dielektrische Funktion zu laden versucht und dabei das falsche Dateiformat ausgewählt hat. In der Praxis kommen hauptsächlich die Filetypen 2 (xy-Format) und 7 (Opus) vor. Versucht man das falsche Dateiformat in SCOUT zu laden, resultiert das unweigerlich mit einem kompletten Absturz des Betriebssystems (VORSICHT!) und aller anderen laufenden Programme.

Bei näherer Untersuchung der OLE-Schnittstelle von SCOUT ist mir ein Fehler in der Funktion 'load\_experiment' aufgefallen, der in einem Briefwechsel mit W. Theiss zu folgender Übergangslösung führte: anstatt den Befehl 'load\_experiment' zu verwenden, ist stattdessen folgende Kombination von undokumentierten Befehlen einzusetzen:

```
// load experiment file 2=xy, 7=opus
myscoutptr->set("file_format", EXPFORMAT);
myscoutptr->set("measurement", 1, FILENAME);
```

Darüber hinaus ist noch zu beachten, dass um ein Absorptionsspektrum zu erhalten nicht die Wahl Absorbance getroffen werden darf, da dies nur ein  $-\log(\text{Transmittance})$  Spektrum ergibt, vielmehr muss man die SCOUT-Einstellung 1-R-T wählen.

Die vielfältigen von SCOUT unterstützten Dateiformate lassen sich auch zu Spektrenkonvertierung von z.B. dem unhandlichen OPUS-Format, der von der Spektrometersoftware geschrieben wird, in das Origin-lesbare xy-Format übertragen. Dazu lädt

man wie oben angegeben das Experiment mit Hilfe von OLE-Aufrufen in SCOUT ein, liest dabei die Transmission mittels 'experimental\_spectrum\_value' aus und schreibt sie im geeigneten Format in eine neue Datei. Die gleiche Methode kann auch verwendet werden, um z.B. Schnitte durch Messspektren zu erstellen.

Zuletzt ist noch festzuhalten, dass es keine direkte Möglichkeit gibt, Schichtdicken des Layer-Stacks über OLE zu setzen. Um dieses Manko zu umgehen, nimmt man die zu varierende Schichtdicke in die Fitparameterliste auf und kann sie von hier an über das Setzen von 'fit\_parameter\_value' verändern.



## Anhang B

# Globale Optimierung

Es kommt in der Praxis recht häufig vor, dass ein theoretisches Modell an gemessene Daten angepasst werden muss. Es kann dabei darum gehen, zu entscheiden, ob Modell A besser zum Experiment passt als Modell B, oder auch darum, wie Modellparameter eingestellt werden müssen, um eine Übereinstimmung mit der Messung zu erreichen. Der Parameterverlauf liefert uns dann Informationen über die physikalischen Vorgänge, die zu den gemessenen Daten führten.

Dies ist ein Beispiel für eine typische Optimierungsaufgabe, für die eine Vielzahl von Algorithmen existiert. Wir betrachten hier kurz 3 gradientenfreie Algorithmen für die sogenannte 'unconstrained optimization of general multivariate functions', die während der Diplomarbeit zum Anpassen der IR-Spektren getestet worden sind. Die vorcompilierten Programme befinden sich in der Bibliothek `linear.lib` mit dem zugehörigen Headerfile `optimise.hpp`. Die ursprünglich als FORTRAN-Quelltexte vorliegenden Routinen wurden mit `f2c` in C-Code umgewandelt. Die Lauffähigkeit ist anschliessend anhand von einfachen Testfunktionen ( $x^2 + y^2$ ,  $\sin(x * y)$ ,  $\exp(x^2 + y^2)$ ) überprüft worden.

Aus diesem Grunde sind immer zusätzlich noch die Bibliotheken `libi77.lib` und `libf77.lib` mitzulinken. Eine Zusammenstellung befindet sich in [MS] und [Pro], die Algorithmen sind detailliert in [Bre76] beschrieben.

Gesucht ist ein Optimum  $(x_1^0, \dots, x_n^0)$ , so dass  $f(x_1, \dots, x_n)$  minimal wird. Die triviale Vorgehensweise wie in [Mag99] vorgestellt, baut auf einem Abtasten des Parameterraumes auf. Dabei werden die relevanten Parameter  $x_{i1}, \dots, x_{im}$  in einem geeigneten Bereich in bestimmten Schritten variiert und aus den berechneten Funktionswerten wird der minimale herausgepickt.

Dies ist das sogenannte direct search Verfahren. Es zeichnet sich durch eine gute Konvergenz aus, solange der abgetastete Bereich das Optimum enthält, ist jedoch i.a. sehr langsam.

Eine Modifikation erhält man durch die Einführung einer temperaturartigen Grösse  $\rho \in (0, 1)$ , die die Verkleinerung der Suchschrittweite steuert. Der Aufruf des Algorithmus `hooke` hat folgende Gestalt:

```
int hooke(nvars, startpt, endpt, rho, epsilon, itermax)
```

wobei `int nvars` die Anzahl der zu variierenden Parameter ist, `double* startpt` der Ausgangsparametervektor, `double* endpt` der Fitparametervektor nach halten des Algorithmus, `epsilon` die Fehlertolleranz und `int itermax` max. Anzahl von Funktionsauswertungen ist.

Die Fitparametersuche bricht ab, wenn entweder `itermax` überschritten wurde, oder die Variation der Fitparameter zu einer kleineren relativen Änderung des Funktionswertes führt als `epsilon`. Der Benutzer muss dabei eine Funktion `f(double* x, n)` zur Verfügung stellen, die aus den Parametern in `x[0], ..., x[n]` einen Funktionswert ausrechnet und als `double` an das Programm zurückgibt. Üblicherweise wird `f(...)` eine Art mittlere quadratische Abweichung zwischen einer Modellkurve und Messkurve berechnen.

Eine verbesserte Methode bietet der Algorithmus `praxis` an, der u.a. auch am CERN für die Anpassung von Daten aus den Messungen am Teilchenbeschleuniger eingesetzt wird. Die Aufrufparameterliste hat folgende Gestalt:

```
double praxis(t0, machep, h0, n, prin, x, f, fmin)
```

wobei `double* t0` die Tolleranz, `double* macheps` die Maschinengenauigkeit, `double* h0` die Startschrittweite, `long* n` die Parameterzahl, `double* x` der Startvektor bzw. nach Halten des Algorithmus das gefundene Minimum, `double (*f)(double*, int)` die zu optimierende Funktion und `double fmin` der berechnete Minimalwert der Funktion  $f(x_1, \dots, x_n)$  nach Beendigung des Fits ist. Die Bedeutung des Tolleranzparameters ist: `praxis` versucht das Optimum  $x$  so zu bestimmen, dass gilt:

$$|x^0 - x| < t0 + \sqrt{\text{macheps}} * |x| \quad (\text{B.1})$$

wenn  $x^0$  das wahre Optimum der Funktion  $f(x_1, \dots, x_n)$  ist.

Eine weiterer Algorithmus baut auf dem in [Mag99] vorgestelltem Simplexverfahren auf. Es handelt sich um einen verbesserten Unterraumfiter, der besonders gut für 'verrauschte' Funktionen optimiert worden ist. Wir zitieren an dieser Stelle [Xu]:

*subplex is a subspace-searching simplex method for the unconstrained optimization of general multivariate functions. Like the Nelder-Mead simplex method it generalizes, the subplex method is well suited for optimizing noisy objective functions. The number of function evaluations required for convergence typically increases only linearly with the problem size, so for most applications the subplex method is much more efficient than the simplex method.*

Die Aufrufparameterliste sieht folgendermassen aus:

```
subplx_(f, n, t0, maxnfe, mode, scale, x, fx, nfe, work, iwork, iflag)
```

Die zusätzlich zu den oben erklärten Parametern müssen noch `long* maxnfe` die max. Anzahl von Funktionsauswertungen, `double* scale` die Anfangsschrittweiten zu den in `double* x` abgelegten Startwerten, `double* work` der Fließkommahilfsspeicher sowie `long* iwork` der Ganzzahlhilfsspeicher übergeben werden.

Die Grösse der Tabellen `work` und `iwork` lässt sich für ein Fitproblem mit  $n$  Parametern bequem mit folgenden Faustformeln berechnen:

```
sizeof(work)=2*n+50
sizeofiwork=n+n/2+1
```

Gesteuert wird der Fitvorgang durch den Flag `mode`, der gesetzt auf 0 einen Neuanlauf von `subplex` veranlasst, eine 1 dagegen eine fortgesetzte Suche um ein früher bestimmtes Optimum bewirkt (lässt sich nutzen, um beispielsweise eine Serie von sich wenig verändernden Daten anzupassen, wobei als Startwerte die Fitwerte des vorausgehenden Fits genommen werden). Die Routine liefert nach Erreichen eines Haltkriteriums die berechneten optimalen Parameter in dem Array `double* x`, wobei gleichzeitig in `fx` der Wert von  $f$  im bestimmten Optimum und `nfe` die Anzahl der benötigten Funktionsauswertungen enthält.

Besonders wichtig ist der Wert der Variablen `iflag`, denn er zeigt den Grund für den Stop des Fitvorgangs an, und zwar bedeutet im einzelnen:

```
iflag == 0 geforderte Tolleranz erreicht
iflag ==-1 max. Fkt.auswertungen erreicht, Ergebnis unzuverlässig
iflag ==-2 ungültige Eingabe (z.b. zu viele Fitparameter)
iflag == 1 Maschinengenauigkeit ausgeschöpft, Ergebnis unzuverlässig
iflag == 2 Ergebnis unzuverlässig
```

Die Fitresultate können nur unter der Bedingung `iflag==0` akzeptiert werden !

Der grosse Vorteil des `subplex`-Algorithmus besteht im Vergleich zu `simplex` in der Vorgabe von nur einem Startvektor anstatt drei, wie das beim alten [Mag99] Algorithmus der Fall war. `subplex` führt eine eigene lokale Suche eines geeigneten Fitraumes durch. Dabei setzt man üblicherweise die `scale`-Argumente auf einen Bruchteil `RAT` des geratenen Eingangsoptimums z.B. mit:

```
scale[0] = x[0]*RAT
.
.
.
```

Im Verlauf des Fitvorgangs passt `subplex` die lokale Schrittweite adaptiv an, so dass auch bei ungünstigen Eingabevektoren  $x$  meistens eine Konvergenz in ein Optimum vorliegt und die so bestimmten Werte nicht auf die Intervalle

$$I_i = (x[i] - scale[i], x[i] + scale[i]) \quad (\text{B.2})$$

beschränkt bleiben. Trotzdem ist i.a. bei allen 3 Algorithmen eine Konvergenz gegen das globale Optimum nicht gesichert! Entscheidend bleibt natürlich immer noch der 'visuelle' Vergleich zwischen einer angepassten und gemessenen Kurve.

Besondere Beachtung muss man noch dem Problem von Einschränkung der Fitparameter auf einen zulässigen Bereich schenken. Es kommt doch recht häufig vor, dass eine Grösse  $x_i$  auf ein Intervall  $I_i = (x_{i,min}, x_{i,max})$  beschränkt werden soll, z.B. es sollen negative Schichtdicken vermieden werden, oder unser Modell setzt eine obere Schranke für den zulässigen Parameterwert.

Im Prinzip kann so eine Einschränkung dadurch realisiert werden, dass man in der zu optimierenden Funktion eine Parameterabfrage einbaut, die beim Verlassen des zulässigen Parameterbereiches eine grosse Abweichung zurückliefert. Eine Mögliche Umsetzung besteht darin, sich das jeweils gefundene Optimum zu merken, mit einer Konstanten  $c > 1$  zu multiplizieren und diesen Wert als Funktionswert zu übergeben. Alternativ dazu übergibt man einfach eine Konstante Abweichung  $f_{max}$  an die Fitroutine. Dadurch entsteht natürlich eine Unstetigkeit in dem durch  $x_1, \dots, x_n$  aufgespannten Fitraum und es steht zu befürchten, dass u.U. eine Beeinträchtigung der Konvergenz des Verfahrens herbeigeführt werden kann, falls das Optimum zu nahe an der so erzeugten Unstetigkeitsstelle liegt. Eine etwas sanftere Vorgehensweise besteht im folgenden Ansatz:

$$f(x_1, \dots, x_n) = c f_{min} \prod_j e^{((x_j - x_{j,0})/d_j)} \quad \text{falls } x_j \notin I_j \quad (\text{B.3})$$

damit werden zumindest näherungsweise Sprünge an den Rändern vermieden und die Funktion nimmt exponentiell an den Rändern zu. In der Praxis hat sich zumindest für die in dieser Arbeit untersuchten Probleme bereits die einfache Variante als ausreichend erwiesen.

Witere Optimierungsprogramme können von [Xu] und [GD] bezogen werden.

# Anhang C

## Berthier-Modell in C/C++

### C.1 Programmaufbau

Im Rahmen dieser Diplomarbeit sind mehrere Rechenprogramme zur Berechnung des IR-Transmissionsvermögens dünner Filme auf MgO(001) entstanden. Die komplette Softwaresammlung befindet sich auf dem beigelegten Datenträger.

Erwähnenswert ist zuerst ein einfaches Excel-Rechenprogramm für das Yamaguchi-Modell, mit dem man manuell die Eingabegrößen variieren kann und über die OLE-Schnittstelle von SCOUT zugleich eine Berechnung der Infrarottransmission oder anderer optischer Größen durchgeführt werden kann. Bild C.1 zeigt ein Screenshot des Excelprogramms. Auf eine Ausführlichere Beschreibung wird hier bewusst verzichtet, da sowohl das Programm als auch die darin enthaltene Routinen weitgehend selbsterklärend sind.

Im folgenden soll noch kurz die Struktur der Berthier-Routinen beschrieben werden, so wie sie zur Beschreibung der IR-Transmission benutzt worden sind. Das Programm `fitnew` besteht im wesentlichen aus folgenden Komponenten:

- einem Hauptprogramm `main.cpp`, der die Kommandozeile verarbeitet und eine Umrechnung der dort übergebenen Werte vornimmt.
- Datentypdeklarationen für die Gitterrenormierung `error.hpp`, `berthier.hpp` sowie zugehöriger Rechenroutine `berthier.cpp`
- Steuerungsmodul für die OLE-Automation `scoutole.hpp`, `scoutole.cpp`, wahlweise kann man an dieser Stelle auch mit der vorgefertigten Bibliothek `scout.lib` linken
- Eingangsdaten zur Beschreibung des für die Inselbildung involvierten Materials `ordaldata.cpp`, `ordaldata.hpp`. Hier wird die Anzahl sowie die Lage der gerechneten Stützstellen der dielektrischen Funktion festgelegt, in dem die Felder `ordalw[]`, `ordalwt[]`, `ordalwp[]` mit geeigneten Daten versorgt werden.
- Optimierungsprozeduren, wie sie im Appendix B erläutert werden. Wahlweise kann man auch mit `linear.lib` und den zugehörigen `f2c`-Bibliotheken linken.

	A	B	C	D	E	F	G	H
1	<b>Yamaguchi-Modell</b>							
2								
3								
4								
5								
6	<b>General Configuration</b>							
7								
8	Scout.exe Location		d:\work\scout\scout_98.exe					
9	Scout Project File		d:\work\yamaguchi\yamaguchi_rev.09					
10	Scout Dielectric Temp. File		d:\work\yama.stf					
11	Scout Experiment File		d:\work\exp.stf					
12	Transmission Export File		d:\work\transrol.stf					
13	Transmission xy-Export File		d:\work\transrol_d30.0_473.xy					
14								
15								
16	<b>Worksheet Configuration</b>							
17								
18	Ordal Data Begin		64					
19	Ordal Data End		734					
20								
21								
22								
23								
24								
25								
26	<b>Modell Input Data</b>							
27								
28	Fermi Velocity		1.56E+08					
29	Growth Density		5.62E+17					
30	Growth Parameter		1.00					
31	Plasma Coefficient		1.00					
32	Roughness		0.10					
33	Epsilon My0		3.00					
34	Epsilon Cavity		1.00					
35								
36	Axis Ratio							
37	Thickness [Å]							
38								

Abbildung C.1: EXCEL-Oberfläche zur Berechnung der Transmission nach Yamaguchi

- und einem wissenschaftlichen Zufallszahlengenerator r250 (file myrandom.c), wie er von [AL] zu beziehen ist.

Aus Geschwindigkeitsgründen ist bewusst auf ein Allround-Programm verzichtet worden, stattdessen wird die Programmfunktionalität durch Vordefinieren von Pre-compiler-Makros gesteuert, so dass unterschiedliche Varianten durch Neucopieren generiert werden können. Dies soll im Folgenden für die zuletzt entstandene Programmversion für die 'Nachfolgeneration' kurz dokumentiert werden.

Im Programmteil main.cpp stehen folgende Schalter zur Verfügung und können mit #define Schalter benützt werden. Die Funktionsweise der Schalter ist im einzelnen:

- `_PRAXIS`, `_HOOKE`, `_SUBPLEX` wählen den eingesetzten Optimierungsalgorithmus aus
- `_FIT` wählt das Anfiten aus, sonst wird nur ein einzelnes Spektrum mit den Eingangswerten der übergebenen Parameter gerechnet
- `_FITSOFT` veranlasst einen 3-parametrischen Fit für  $\alpha, \beta, s$ , sonst werden nur  $\alpha, \beta$  angepasst
- `_BATCH` bewirkt einen unmittelbaren Abbruch nach des Programms, nachdem die Fitroutine gehalten hat, sonst muss man noch mit Tastendruck bestätigen. Möchte man eine Messreihe Anfiten, so definiert man `_BATCH` und schreibt die Aufrufe an fitnew.exe in eine Stapelverarbeitungsdatei.

- `_PROGRESSWORK` hat zur Folge, dass bei jedem Schritt des Fitalgorithmus (Auswertung der quadratischen Abweichung) die Zwischenwerte ausgegeben werden. Nützlich, falls man während des Fits die Änderungen der Fitgrößen beobachten möchte.
- `_UPDATEPLOT` bewirkt eine Aktualisierung des SCOUT-Fensters bei jedem Schritt, so dass man die Möglichkeit einer visuellen Kontrolle über das gefitete Spektrum bekommt.
- `_CHECK` veranlasst eine Ausgabe der Häufigkeit von Elementarkonfigurationen für die gewürfelte Anfangsverteilung und kann zur Begutachtung des Zufallszahlengenerators eingesetzt werden.

Darüber hinaus befinden sich in `berthier.hpp` zwei weitere Schalter und zwar:

- `_SCIRAND` wählt den 'wissenschaftlichen' Zufallszahlengenerator (siehe [AL]) aus, sonst wird der compilerinterne Generator aus `stdlib.lib` benützt.
- `_MAKEBITMAPS` veranlasst, dass eine Folge von Bitmap-Bildern mit dem Zustand der Renormiermatrix für die Blockgrößen 2, 4, 6, ... erzeugt und auf den Datenträger geschrieben wird.

Das compilierte Programm erzeugt eine Ergebnisdatei namens `fitresult.txt`, in die nach jedem beendeten Aufruf die angefiteten Werte der Parameter  $\alpha, \beta, s$  sowie die mittlere quadratische Abweichung und die Fitzeit geschrieben werden, wobei die Datei 'fail safe' nur kurz für den Schreibvorgang geöffnet wird (so werden Datenverluste aufgrund von Stromausfällen oder Rechnerabstürzen vermieden). Es wird jeweils auch eine Ergebnisdatei pro Spektrum geschrieben, indem an den Namen der Spektrendatei `fit.txt` angehängt wird. Zugleich wird auch im gleichen Ordner die dielektrische Funktion (Erweiterung `df.dat`) sowie der Transmissionsverlauf (`spectrum.dat`) gespeichert.

## C.2 Programmlisting

```

/*****
*                                     *
*      Berthier Model                 *
*                                     *
*****/

#include "berthier.hpp"
#include "Myrandom.hpp"

//      Setup
const char* ctype = "Adaptive";
double soft = 1;
double ssoft = 1;

//      depolarisation factors
const double f1 = 0.2364;
const double f2 = 0.4278;

```

```
const double f3 = 1.0/3.0;
```

```
//      conducting configuration setup:
Config cfgtablec[16] = {{dielectric,  0,      1,  0,      NULL,  meandi},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},
                        {dielectric,  0.5,    2,  f2,      NULL,  yamaguchi},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},
                        {metallic,    0.5,    2,  f1,      NULL,  metall1},

                        {metallic,    0.5,    1,  f3,      NULL,  metall1},

                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},

                        {metallic,    0.5,    1,  f3,      NULL,  metall1},

                        {metallic,    0.5,    2,  f1,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {dielectric,  0.5,    2,  f2,      NULL,  yamaguchi},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0,      1,  0,      NULL,  meanmet}
};
```

```
//      NON-conducting configuration setup:
Config cfgtablen[16] = {{dielectric,  0,      1,  0,      NULL,  meandi},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},
                        {dielectric,  0.5,    2,  f2,      NULL,  yamaguchi},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},
                        {metallic,    0.5,    2,  f1,      NULL,  metall1},

                        {dielectric,  0.5,    1,  f3,      NULL,  yamaguchi},

                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {dielectric,  0.25,  1,  f3,      NULL,  yamaguchi},

                        {dielectric,  0.5,    1,  f3,      NULL,  yamaguchi},

                        {metallic,    0.5,    2,  f1,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {dielectric,  0.5,    2,  f2,      NULL,  yamaguchi},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0.25,  1,  f3,      NULL,  metall1},
                        {metallic,    0,      1,  0,      NULL,  meanmet}
};
```

```
//      creates a constant lentry
Lentry::Lentry(const Complex val)
{
    if(!(data = new Complex(val)))
        throw error("Lentry:new");
    type = constant;
    *data = val;
}
```

```
//      for startup purposes, creates a iron-lentry, do not delete data !
Lentry::Lentry(Complex* val)
{
    data = val;
    type = iron;
}
```

```
//      creates a copy of metallic/dielectric lentry
Lentry::Lentry(const Lentry& lent)
{
    if(lent.type == constant || lent.type == iron)
        throw error("Lentry:Lentry(const Lentry&)");
    if(!(data = new Complex[numw]))
```

```

        throw error("Lentry.new []");
    type = lent.type;
    for(int i=0; i<numw; i++)
        data[i] = lent.data[i];
}

//      creates a met/di lentry from array
Lentry::Lentry(etype tp, Complex* val)
{
    if(tp == iron || tp == constant)
        throw error("Lentry.type");
    if(!(data = new Complex[numw]))
        throw error("Lentry.new []");
    type = tp;
    if(val)
        for(int i=0; i<numw; i++)
            data[i] = val[i];
}

//      creates a met/di const lentry from a complex value
Lentry::Lentry(etype tp, const Complex val)
{
    if(tp == iron || tp == constant)
        throw error("Lentry.type");
    if(!(data = new Complex[numw]))
        throw error("Lentry.new []");
    type = tp;

    for(int i=0; i<numw; i++)
        data[i] = val;
}

//      cleanup
Lentry::~Lentry()
{
    if(type == constant) {
        delete data;
    }
    else if(type != iron) {
        delete[] data;
    }
}

//      assign rules
Lentry::operator =(const Lentry& lent)
{
    //      assign iron
    if(lent.type == iron) {
        if(type == constant) {
            delete data;
            data = lent.data;
        } else if(type == iron)
            data = lent.data;
        else {
            delete[] data;
            data = lent.data;
        }
        type = iron;
    }
    //      assign constant:
    else if(lent.type == constant) {
        if(type == constant)
            *data = *lent.data;
        else if(type == iron) {
            if(!(data = new Complex(*lent.data)))
                throw error("Lentry:=");
        }
        else {
            delete[] data;
            if(!(data = new Complex(*lent.data)))
                throw error("Lentry:=");
        }
        type = constant;
    }
}

```

```

//      assign metallic/dielectric:
else {
    if(type == constant) {
        delete data;
        if(!(data = new Complex[numw]))
            throw error("Lentry:=[]");
        for(int i=0; i<numw; i++)
            data[i] = lent.data[i];
    }
    else if(type == iron) {
        if(!(data = new Complex[numw]))
            throw error("Lentry:=[]");
        for(int i=0; i<numw; i++)
            data[i] = lent.data[i];
    }
    else {
        for(int i=0; i<numw; i++)
            data[i] = lent.data[i];
    }
    type = lent.type;
}
}

//      change metallic<->dielectric
void Lentry::chgtype(etype tp)
{
    if(tp == iron || tp == constant)
        throw error("Lentry:chgtype");

    if(type == iron || type == constant)
        throw error("Lentry:chgtype");

    type = tp;
}

//      overwrite with constant value
void Lentry::set(Complex val)
{
    if(type == iron) {
        if(!(data = new Complex(val)))
            throw error("Lentry::set");
        type = constant;
    }
    else if(type == constant)
        *data = val;
    else
        for(int i=0; i<numw; i++)
            data[i] = val;
}

//      adds values from another lentry
Lentry& Lentry::operator += (const Lentry& lent)
{
    if(type == iron || type == constant)
        throw error("Lentry:+=");

    for(int i=0; i<numw; i++)
        data[i] += lent.data[i];

    return *this;
}

//      divides a Lentry by a constant Complex
Lentry& Lentry::operator /= (const Complex& val)
{
    if(type == iron)
        throw error("Lentry:/=");
    if(type == constant)
        *data /= val;
    else
        for(int i=0; i<numw; i++)
            data[i] /= val;

    return *this;
}

```

```

}

void Lentry::print()
{
    printf("\n");

    if(type==iron)
        printf("\nTYPE=IRON");
    else if(type==dielectric)
        printf("\nTYPE=DIELECTRIC");
    else if(type==constant)
        printf("\nTYPE=CONSTANT");
    else if(type==metallic)
        printf("\nTYPE=METALLIC");
    else
        throw error("Lentry:print");

    printf("\n");

    for(int i=0; i<numw; i++)
        printf("\nFRQ=%lf\tR=%lf\tI=%lf", ordalw[i], data[i].real(), data[i].imag());
}

void Lentry::printtype()
{
    printf("\n");

    if(type==iron)
        printf("\nTYPE=IRON");
    else if(type==dielectric)
        printf("\nTYPE=DIELECTRIC");
    else if(type==constant)
        printf("\nTYPE=CONSTANT");
    else if(type==metallic)
        printf("\nTYPE=METALLIC");
    else
        throw error("Lentry:print");

    printf("\n");
}

//      exports Origin readable
void Lentry::export(const char* outname)
{
    ofstream out(outname);

    for(int i=0; i<numw; i++)
        out << "\n" << ordalw[i] << "\t" << data[i].real() << "\t" << data[i].imag();

    out << "\n";
}

//      exports Scout readable
void Lentry::exportscout(const char* outname)
{
    ofstream out(outname);

    out << ordalw[0] << "\n";
    out << ordalw[numw-1] << "\n";
    out << numw-1 << " " << "2";

    for(int i=0; i<numw; i++)
        out << "\n" << data[i].real() << "\t" << data[i].imag();

    out << "\n";
}

//      our lattice
int Lattice::ofm (int v)
{

```

```

    if(v<0)
        return (lsize-1)-((-v)%lsize);
    if(v>=lsize)
        return v%lsize;

    return v;
}

//      they can only be quadratic
Lattice::Lattice(int size) : lsize(size)
{
//      generate via std. constructor (sets to constant, val=0)
    if(!(lent = new Lentry[size*size]))
        throw("Lattice:new []");
    sdata = NULL;
}

//      cleanup
Lattice::~Lattice()
{
    delete[] lent;
    if(sdata)
        delete[] sdata;
}

//      get Lentry at x,y
Lentry& Lattice::xy(int x, int y)
{
    if(x<0 || y<0 || x>=lsize || y>=lsize)
        throw error("Lattice:xy");
    return lent[x+y*lsize];
}

//      construct a random lattice filled with material
void Lattice::randmaterial(Complex* material, float fillfactor, float)
{
//      uses Lentry(Complex*) -> iron type
    Lentry ment(material);

#ifdef _YMSUPRESS
    if(fillfactor <= YMSUPRESS) {
#endif
        for(int i=0; i<lsize*lsize; i++) {
#ifdef _SCIRAND
            float p = irand();
            p /= MYRANDMAX;
//            printf("\t%f", p);
//            getchar();
#else
            float p = rand();
            p /= RAND_MAX;
#endif
        #endif
            if(p <= fillfactor)
                lent[i] = ment;
            else
                lent[i].set(Complex(mgoreal, mgoimag));
        }
#ifdef _YMSUPRESS
    }
    else {
        for(int i=0; i<lsize; i+=2)
            for(int j=0; j<lsize; j+=2) {
                int cfg = 0;
                while(cfg < 5 || cfg == 8 || cfg == 12) {
                    for(int x=0; x<2; x++)
                        for(int y=0; y<2; y++) {
                            float p = rand();
                            p /= RAND_MAX;

                            if(p <= fillfactor)
                                lent[(i+x) + lsize*(j+y)] = ment;
                            else
                                lent[(i+x) + lsize*(j+y)].set(Complex(mgoreal, mgoimag));
                        }
                    }
            }
    }
}

```

```

        }
        cfg = getadr(*this, i, j, 1);
    }
}
}
#endif
}

/*
//      hmm anealed growth mode...
void randmaterial(Complex* material, float fillfactor, float str)
{
//      uses Lentry(Complex*) -> iron type
Lentry ment(material);

for(int i=0; i<lsize*lsize; i++)
    lent[i].set(Complex(mgoreal, mgoimag));

int maxp = lsize*lsize*fillfactor;

//      str = annealing strength (0=no 1=clusters wouldn't growth)
while(maxp > 0) {
    int x = rand() % lsize;
    int y = rand() % lsize;

    if(xy(x,y).type == ment.type)
        continue;

    int n =0;

    if(xy(ofm(x+1),y).type != ment.type)
        n++;

    if(xy(ofm(x-1),y).type != ment.type)
        n++;

    if(xy(x,ofm(y+1)).type != ment.type)
        n++;

    if(xy(x,ofm(y-1)).type != ment.type)
        n++;

    float p = 1.0-0.25*n*str;

    float z = rand();
    z /= RAND_MAX;

    if(z < p) {
        lent[x+y*lsize] = ment;
        maxp--;
    }
    else
        lent[x+y*lsize].set(Complex(mgoreal, mgoimag));
}

}
*/

//      'print' lattice
Lattice::print()
{
    printf("\n");

    for(int i=0; i<lsize; i++) {
        for(int j=0; j<lsize; j++) {
            int n = i*lsize+j;
            if(lent[n].type == constant)
                printf("*");
            else if(lent[n].type == iron)
                printf("F");
            else if(lent[n].type == dielectric)
                printf("D");
        }
    }
}

```

```

        else if(lent[n].type == metallic)
            printf("M");
        else
            printf("?");

        printf(" ");
    }
    printf("\n");
}

printf("\n");
}

//      get current x,y-size
int Lattice::getsize()
{
    return lsize;
}

//      make snapshot
void Lattice::snapshot()
{
    if(!sdata)
        if(!(sdata=new etype[lsize*lsize]))
            throw error("Lattice:snapshot");

//      save state:
    for(int i=0; i<lsize*lsize; i++)
        sdata[i] = lent[i].type;
}

//      get snapshot
etype Lattice::sxy(int x, int y)
{
    if(!sdata)
        throw error("Lattice.No snapshot");
    if(x<0 || y<0 || x>=lsize || y>=lsize)
        throw error("Lattice:sxy");
    return sdata[x+y*lsize];
}

//      initial dielectric function of iron cluster
Complex* makeironeps(double clustx, double clusty, double r, double b)
{
    Complex* feps;

    if(!(feps = new Complex[numw]))
        throw error("makeironeps");

//      fermi velocity [cm/s]
    const double vferm = 1.98e8;

//      size correction value: [cm]
    double siz = 1e-8*pow(3*clustx*clustx*clusty/(4*M_PI), 1.0/3.0);
//      double siz = 1e-8 * (clusty);

    Complex I(0,1);

//      factor 2*M_PI*3e10 ???
    double scal = r * vferm / (2 * siz)/(2*M_PI*3e10);

//      printf("\n FE-eps using a = %lf  b = %lf", r, b);

    for(int i=0; i<numw; i++) {
        double wpeff = ordalw[i]*b;
        double wteff = scal + ordalwt[i];
        double w = ordalw[i];
        feps[i] = 1.0-wpeff*wpeff/(w*(w+I*wteff));
//      feps[i] = Complex(1-wpeff*wpeff/(w*w+wteff*wteff), wpeff*wpeff*wteff/(w*(w+wteff*wteff)));
    }
}

```

```

return feqs;
}

//      print a dielectric function
void printeps(Complex* eps)
{
    for(int i=0; i<numw; i++)
        printf("\nFRQ=%lf\tR=%lf\tI=%lf", ordalw[i], eps[i].real(), eps[i].imag());
}

//      returns configuration due to lattice entries at x,y,stp
Config& getconfig(Lattice& lat, int x, int y, int stp)
{
    int adr = 0;
    adr |= (lat.xy(x,y).type == iron || lat.xy(x,y).type == metallic) ? 0x0001 : 0x0;
    adr |= (lat.xy(x+stp,y).type == iron || lat.xy(x+stp,y).type == metallic) ? 0x0002 : 0x0;
    adr |= (lat.xy(x,y+stp).type == iron || lat.xy(x,y+stp).type == metallic) ? 0x0004 : 0x0;
    adr |= (lat.xy(x+stp,y+stp).type == iron || lat.xy(x+stp,y+stp).type == metallic) ? 0x0008 : 0x0;

    //      decide which config table to use:

    //      on lowest level use always nonconducting
    if(stp==1)
        return cfgtablen[adr];

    //      on higher levels look at the initial island configuration
    if(adr == 6)
        if(lat.sxy(x+stp,y+stp) == metallic || lat.sxy(x+stp,y+stp) == iron ||
           lat.sxy(x+stp-1,y+stp-1) == metallic || lat.sxy(x+stp-1,y+stp-1) == iron)

            return cfgtablec[adr];

    if(adr == 9)
        if(lat.sxy(x+stp-1,y+stp) == metallic || lat.sxy(x+stp-1,y+stp) == iron ||
           lat.sxy(x+stp,y+stp-1) == metallic || lat.sxy(x+stp,y+stp-1) == iron)

            return cfgtablec[adr];

    return cfgtablen[adr];
}

int getadr(Lattice& lat, int x, int y, int stp)
{
    int adr = 0;
    adr |= (lat.xy(x,y).type == iron || lat.xy(x,y).type == metallic) ? 0x0001 : 0x0;
    adr |= (lat.xy(x+stp,y).type == iron || lat.xy(x+stp,y).type == metallic) ? 0x0002 : 0x0;
    adr |= (lat.xy(x,y+stp).type == iron || lat.xy(x,y+stp).type == metallic) ? 0x0004 : 0x0;
    adr |= (lat.xy(x+stp,y+stp).type == iron || lat.xy(x+stp,y+stp).type == metallic) ? 0x0008 : 0x0;
    return adr;
}

//      gathers statistics about lattice
void check(Lattice& lat, float ffact)
{
    int counts[16];
    int q[16] = {0, 1, 1, 2, 1, 2, 2, 3, 1, 2, 2, 3, 2, 3, 3, 4};
    float p[5] = {1, 0.25, 1.0/6.0, 0.25, 1};

    int lsize = lat.getsize();
    float numadr = lsize*lsize/4;

    for(int n=0; n<16; n++)
        counts[n] = 0;

    for(int i=0; i<lsize; i+=2)
        for(int j=0; j<lsize; j+=2)
            counts[getadr(lat, i, j)]++;

    //      print statistics

```

```

int sum = 0;
for(n=0; n<16; n++) {
    float tpos = pow(ffact, float(q[n]))*pow((1-ffact), 4.0-q[n]);
    float pos = float(counts[n])/numadr;
    int nset = 0;
    nset += (n & 0x01) == 1;
    nset += (n & 0x02) == 2;
    nset += (n & 0x04) == 4;
    nset += (n & 0x08) == 8;
    printf("\n#SET %d\tCNT %5d\tPOS %1.5f\tTHR %1.5f\tP/T %1.5f", nset, counts[n], pos, tpos, pos/tpos);
    sum += counts[n];
}

printf("\n\nSUM = %d/%d\n", sum, (int)numadr);
}

// finds first entry of given type at x,y,stp
Lentry& findtype(etype type, Lattice& lat, int x, int y, int stp)
{
    for(int i=0; i<=stp; i+=stp)
        for(int j=0; j<=stp; j+=stp)
            if(lat.xy(x+j,y+i).type == type)
                return lat.xy(x+j,y+i);

    throw error("findtype:notfound");
}

// calculate Yamaguchi function from substrate(lsub), inclusion(linc), due to fillfactor, depol, axratio
void yamaguchidf(Lentry& eff, const Lentry& lsub, const Lentry& linc, double q, double depol, double y)
{
    static Complex emgo(mgoreal, mgoimag);
    q = q*soft;

    for(int i=0; i<numw; i++) {
        Complex es(lsub.data[i]);
        Complex ei(linc.data[i]);
        // Complex f(depol - (y*y/24) * (es - ei) / (es + ei) - (ei/(es + ei)) * 0.716 * sqrt(6.0*q*q*q/M_PI)/y);
        Complex f(depol - (y*y/24) * (emgo - es) / (emgo + es) - (es/(emgo + es)) * 0.716 * sqrt(6.0*q*q*q/M_PI)/y);
        eff.data[i] = es + q*es/(f+es/(ei-es));
    }
}

// Cohen Modell
void cohendf(Lentry& eff, const Lentry& lsub, const Lentry& linc, double q, double depol, double y)
{
    q = (1-q*soft); //consequent
    // q = (1-q);
    for(int i=0; i<numw; i++) {
        Complex em(lsub.data[i]);
        Complex ei(linc.data[i]);
        Complex a( q*(ei-em) / (depol*ei+(1-depol)*em) );
        eff.data[i] = (em+a*(1-depol)*em)/(1-a*depol);
    }
}

// applies df-modell to a two component matrix due to cfg:
const Lentry& applymodell(const Lentry& lm, const Lentry& ld, const Config& cfg, int stp=0)
{
    static Lentry out(dielectric);

    // for Cohen at stepsize = 1
    // static Lentry vac(dielectric, Complex(1,0));

    // depolarisation factor:
    double depol = cfg.depol;
    double y = cfg.axratio;

    out.chgtype(cfg.type);

    // only dielectric, return mean dielectric:

```

```

        if(cfg.modell == meandi)
            return ld;

//      return mean metall
        if(cfg.modell == meanmet)
            return lm;

//      Yamaguchi
        if(cfg.modell == yamaguchi)
            yamaguchidf(out, ld, lm, cfg.fillfactor, depol, y);

//      Cohen
        if(cfg.modell == metall1)
//          if(stp == 1)
            cohendf(out, lm, ld, cfg.fillfactor, depol, y);
//          else
//              yamaguchidf(out, lm, ld, cfg.fillfactor, depol, y);

//      return locally effective df
        return out;
    }

//      setup cached df for config cfg:
    setup_cfg(Config& cfg, Lentry& lm, Lentry& ld)
    {
        if(!(cfg.cached = new Lentry))
            throw error("setup_cfg:cache");

        *cfg.cached = applymodell(lm, ld, cfg, 1);
    }

//      optimisation, it is smart to setup caches before renormalisation
    void setup_cache(Complex* material)
    {
        Lentry ment(metallic, material);
        Lentry dent(dielectric, Complex(mgoreal, mgoimag));

        for(int i=0; i<16; i++)
            setup_cfg(cfgtablen[i], ment, dent);

        for(i=0; i<16; i++)
            setup_cfg(cfgtablec[i], ment, dent);
    }

//      renormalisation at given x,y,stp
    void renorm(Lattice& lat, int x, int y, int stp)
    {
//      local configuration at x,y:
        Config& cfg = getconfig(lat, x, y, stp);

//      holds the averaged dielectric component
        static Lentry ld(dielectric);

//      holds the averaged metallic component
        static Lentry lm(metallic);

//      dummy:
        static const Lentry dummy(0);

//      some copy optimisation:
        int ld_not_set = 1;
        int lm_not_set = 1;

//      on steps > 1 there are only metallic & dielectric components
        if(stp > 1) {

//      first calc mean dielectric & metallic df's:
            for(int i=0; i<=stp; i+=stp)

```

```

for(int j=0; j<=stp; j+=stp)
    if(lat.xy(x+j,y+i).type == metallic)
        if(lm_not_set) {
            lm = lat.xy(x+j,y+i);
            lm_not_set = 0;
        }
        else
            lm += lat.xy(x+j,y+i);
    else
        if(ld_not_set) {
            ld = lat.xy(x+j,y+i);
            ld_not_set = 0;
        }
        else
            ld += lat.xy(x+j,y+i);

if(cfg.fillfactor == 0 && cfg.type == metallic) {
    lm /= 4;
}
else if(cfg.fillfactor == 0 && cfg.type == dielectric) {
    ld /= 4;
}
else {
    if(cfg.type == dielectric) {
        lm /= 4*cfg.fillfactor;
        ld /= (4-4*cfg.fillfactor);
    }
    else {
        ld /= 4*cfg.fillfactor;
        lm /= (4-4*cfg.fillfactor);
    }
}

// some sanity check ;-
if(lm_not_set && ld_not_set)
    throw error("CABBAGES: lm_not_set && ld_not_set");

// so now lm holds the averaged metallic, ld the averaged dielectric on every step size stp:

if(lm_not_set)
    lat.xy(x,y) = applymodell(ld, ld, cfg, stp);
else if(ld_not_set)
    lat.xy(x,y) = applymodell(lm, lm, cfg, stp);
else
    lat.xy(x,y) = applymodell(lm, ld, cfg, stp);

// free unused memory:
lat.xy(x+stp,y) = dummy;
lat.xy(x,y+stp) = dummy;
lat.xy(x+stp,y+stp) = dummy;
}

// here we are on the stp-level == 1:
else {
// read it from cache:
lat.xy(x,y) = *cfg.cached;
}
}

void startrenorm(Lattice& lat, int x, int y, int stp, Complex* material)
{
// clear caches ... otherwise nice things happens
for(int i=0; i<16; i++) {
    if(cfgtablec[i].cached) {
        delete cfgtablec[i].cached;
        cfgtablec[i].cached = NULL;
    }
    if(cfgtablen[i].cached) {
        delete cfgtablen[i].cached;
        cfgtablen[i].cached = NULL;
    }
}
}

```

```

//      now setup caches:
      setup_cache(material);

      renormrec(lat, x, y, stp);
}

//      recursion removes memory wasting ;- )
void renormrec(Lattice& lat, int x, int y, int stp)
{
  static char lfname[256];
  static char wrmark[16] = {0,0,0,0,0,0,0,0,0,0,0,0,0,0,0,0};

  if(stp!=1) {
    renormrec(lat, x, y, stp/2);
    renormrec(lat, x+stp, y, stp/2);
    renormrec(lat, x, y+stp, stp/2);
    renormrec(lat, x+stp, y+stp, stp/2);
  }
  renorm(lat, x, y, stp);

#ifdef _MAKEBITMAPS
  int widx = log2(stp);
  if(!wrmark[widx]) {
    sprintf(lfname, "lattice%d.bmp", stp);
    writebitmap(lat, lfname, stp);
    wrmark[widx] = 1;
  }
#endif
}

// naive algorithm
void renormnaive(Lattice& lat, Complex* material)
{
  static char lfname[256];

  //      clear caches ... otherwise nice things happens
  for(int i=0; i<16; i++) {
    if(cfgtablec[i].cached) {
      delete cfgtablec[i].cached;
      cfgtablec[i].cached = NULL;
    }
    if(cfgtablen[i].cached) {
      delete cfgtablen[i].cached;
      cfgtablen[i].cached = NULL;
    }
  }

  //      now setup caches:
  setup_cache(material);

  int size = lat.getsize();

#ifdef _MAKEBITMAPS
  sprintf(lfname, "lattice%d.bmp", 1);
  writebitmap(lat, lfname, 1);
#endif

  for(int step=2; step<size; step*=2) {

    for(int i=0; i<size; i+=step)
      for(int j=0; j<size; j+=step)
        renorm(lat, i, j, step/2);

#ifdef _MAKEBITMAPS
    sprintf(lfname, "lattice%d.bmp", step);
    writebitmap(lat, lfname, step);
#endif

  }

}

```



# Literaturverzeichnis

- [AL] IWR Heidelberg Andreas Linke. *Zufallszahlengenerator r250*. <http://www.iwr.uni-heidelberg.de>, contact: <http://linkesoft.de/>.
- [BA85] M. Ordal R. Bell and R. Alexander. Optical properties of fourteen... *Applied Optics Vol. 24, 24*, pages 4493–4499, December 1985.
- [Bar98] A. Bartel. *Diplomarbeit*. Universität Heidelberg, 1998.
- [BDK89] S. Berthier and K. Driss-Khodja. Calculation of 2d optical dielectric function of inhomogenous media by real space renormalisation. *Optics Communications, Vol. 70,1*, pages 29–32, February 1989.
- [Bre76] P. Brent. *Algorithms For Finding Zeros And Extrema Of Functions Without Calculating Derivatives*. 1976.
- [CA73] R. Cohen G. Cody M. Coutts and B. Abeles. Optical properties of granular silver and gold films. *Physical Review B, Vol. 8,8*, pages 3689–3701, March 1973.
- [Dav39] E. David. Deutung der anomalien der optischen konstanten dünner metallschichten. *Zeitschrift für Physik Bd. 114*, pages 389–407, August 1939.
- [Gal71] F. L. Galeener. 1971.
- [GD] E. Grosse and J. Dongarra. *NetLib Repository at UTK and ORNL*. <ftp://www.netlib.org/opt/index.html>.
- [Hun97] S. Hunklinger. *Skript zur Vorlesung Festkörperphysik*. Universität Heidelberg, 1997.
- [Jac83] J. D. Jackson. *Klassische Elektrodynamik*. Walter de Gruyter, 1983.
- [Kad66] L. Kadanoff. 1966.
- [Kra99] O. Krauth. *Dissertation*. Universität Heidelberg, 1999.
- [Mag99] N. Magg. *Diplomarbeit, FTIR-Spektroskopie an Fe/MgO(001) bei verschiedenen Temperaturen*. Universität Heidelberg, 1999.
- [MS] H.D. Mittelmann and P. Spellucci. *Decision Tree for Optimisation Software*. <http://plato.la.asu.edu/guide.html>.
- [PF99] A. Pucci and G. Fahsold. Growth of fe on mgo(001) studied by he-atom scattering. *PACS numbers 61.18.B, 68.55, 68.55.J*, July 1999.

- [Pro] Computational Science Education Project. *Mathematical Optimisation*. <http://csep1.phy.ornl.gov/CSEP/MO/MO.html>.
- [PS] Uni-Heidelberg Paul Starzetz. *Diplomarbeit online, inkl. Software und gesammelten Fitdaten*. <http://www.starzetz.de/paul/diplom>, contact: paul@starzetz.de.
- [Sci] Fa. Soft Science. *SCOUT98, SCOUT OLE-Automation help file*.
- [SYK70] T. Yamaguchi S. Yoshida and A. Kinbara. Optical properties of aggregated silver films. *Journal of the Optical Society of America*, pages 62–69, February 1970.
- [TYK73a] S. Yoshida T. Yamaguchi and A. Kinbara. Optical effect of the substrate on the anomalous absorption of aggregated silver films. pages 173–187, October 1973.
- [TYK73b] S. Yoshida T. Yamaguchi and A. Kinbara. Optical effect of the substrate on the anomalous absorption of aggregated silver films. *Thin Solid Films*, pages 173–187, October 1973.
- [WH95] C. Weissmantel and C. Hamann. *Grundlagen der Festkörperphysik*. Johann Ambrosius Barth Verlag, Hüthing GmbH, 1995.
- [Xu] Jiefeng Xu. *List of Interesting Optimisation Codes in Public Domain*. <http://markov.kaist.ac.kr/software.html>.
- [ZTM86] Marko V. Jaric Zlatko Tesanovic and Sadamichi Mackawa. Quantum transport and surface scattering. *Physical Review Letters Vol. 57, 21*, pages 2760–2763, August 1986.

# Index

- $\gamma$ -Modell, 17
- (messr05r), 10
- (messr11g), 10
- (messr14), 11
- <scoutole.hpp>, 82
- #define Schalter, 90
- \_BATCH, 90
- \_CHECK, 91
- \_FIT, 90
- \_FITSOFT, 90
- \_HOOKE, 90
- \_MAKEBITMAPS, 91
- \_PRAXIS, 90
- \_PROGRESSWORK, 91
- \_SCIRAND, 91
- \_SUBPLEX, 90
- \_UPDATEPLOT, 91
- l-R-T, 82
- Absorbance, 82
- adaptives Berthier-Modell, 54
- Aufdampfdicke, 34
- Berthier-Modell, 41, 89
- berthier.cpp, 89
- berthier.hpp, 89, 91
- Bitmap, 91
- boundary check, 45
- bulk, 18
- bulk Eisen, 17
- bulk-Fe, 16, 17
- cfgtablec, 55
- cfgtablen, 55
- Class ID, 81
- Clausius-Mosotti, 38
- Cleanup, 81, 82
- CLSID, 81
- Cohen-Formel, 44
- Cohen-Modell, 40
- conducting case, 44, 53, 54
- Dielektrizitastkonstante, 29
- direct search, 85
- Drude-Formel, 13, 15, 16
- Drude-Theorie, 13
- Durchgriff, 31
- Elementarzelle, 42
- error.hpp, 89
- f2c, 85, 89
- FFT, 9
- Filmmorphologie, 42
- fitnew, 89
- float, 82
- FORTRAN, 85
- FTIR, 8
- FTIR-Apparatur, 7
- FTIR-Spektrometer, 8
- Globar, 9
- hooke, 85
- iwork, 87
- Keimdichte, 37
- klassischer Size-Effekt, 18
- Leitfahigkeitskriterium, 44
- Lentry, 45
- libf77.lib, 85
- libi77.lib, 85
- linear.lib, 85, 89
- main.cpp, 89, 90
- Maschinengenauigkeit, 86
- Matthiesen'sche Regel, 18
- Maxwell-Garnet-Theorie, 38
- messr05r, 63
- messr14, 35

- Michelson Interferometer, 8
- myrandom.c, 90
- non-conducting case, 44, 53, 54
- normierte Kovarianz, 77
- OLE, 82
- OLE-Schnittstelle, 81, 82
- Optimierung, 85
- optimise.hpp, 85
- OPUS, 9
- Opus, 82
- OPUS-Format, 82
- Ordal-Daten, 45
- ordaldata.cpp, 89
- ordaldata.hpp, 89
- ordalw[], 89
- ordalwp[], 89
- ordalwt[], 89
- Origin, 82
- Origin-Format, 50
- Perkolationsschwelle, 44, 54
- Polarisation, 29
- praxis, 86
- Programm ID, 81
- r250, 90
- Rauhigkeitskoeffizient, 19
- REAL, 82
- Rechengenauigkeit von SCOUT, 67
- relative Dielektrizitätskonstante, 29
- Renormiermatrix, 91
- Renormierungstheorie, 41
- rtol, 61
- SCOUT, 11, 30, 35, 60, 67, 81–83, 91
- Scout class, 81
- SCOUT-Format, 50
- scout.lib, 81, 89
- scoutole.cpp, 89
- scoutole.hpp, 89
- Seed, 60
- seed, 47, 55
- simplex, 73, 87
- Simplexverfahren, 86
- Size-Korrektur, 19, 20
- Spektrrenkonvertierung, 82
- Spline, 17
- Stapelverarbeitungsdatei, 90
- std-Format, 61
- stdlib.lib, 91
- subplex, 61, 86, 87
- VARIANT, 82
- weight thickness, 34
- work, 87
- xy-Format, 82
- Yamaguchi-Formel, 30, 32
- Yamaguchi-Model, 89
- Yamaguchi-Modell, 30, 35, 44, 51, 64

# Danksagung

Ich danke allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Pucci für die freundliche Aufnahme in ihre Arbeitsgruppe und die gute Atmosphäre, die ich ein Jahr lang geniessen durfte. Insbesondere danke ich Frau Prof. Dr. Annemarie Pucci für die Betreuung der Diplomarbeit und die sehr konstruktive Zusammenarbeit und insbesondere Ihre Unterstützung bei theoretischen Problemen, die während der einjährigen Zusammenarbeit aufgetaucht sind.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Bernd Jähne für die Übernahme der Zweitkorrektur.

Ich möchte mich bei Dr. Gerhard Fahsold für die Unterstützung sowohl bei den experimentellen als auch theoretischen Fragen und zusammen mit Mathias Sinther für die zur Verfügung gestellten experimentellen Daten bedanken.

Ich danke auch Herrn Jochen Solbrig für die Hilfe bei den Messungen des MgO-Systems, was für mich im Kontrast zu mehr theoretischer Arbeit auch eine interessante Erfahrung war.

Ich möchte mich auch bei allen anderen Mitgliedern der Ag Pucci bedanken, insbesondere bei Andreas Priebe für die Unterstützung bei Fragen experimenteller Natur und bei Kilian Singer für die Zusammenarbeit im Softwarebereich, mit denen ich auch ein Jahr lang ein Arbeitszimmer geteilt habe.

# Erklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den .....

Unterschrift .....