



Universität Potsdam
Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät
Institut für Physik und Astronomie

Breitbandige zeitaufgelöste Brillouin-Streuung an Perovskiten

Diplomarbeit

Viktor Kuxhaus

geboren am 22. November 1981

Gutachter:	Prof. Dr. M. Bargheer
Zweitgutachter	Prof. Dr. R. Menzel
Matrikelnummer	725293

28. April 2015

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Physikalische Grundlagen	7
2.1	Perowskit-Struktur	7
2.2	Erzeugung der kohärenten Phononen	10
2.2.1	Optische Anregung von Metallen	11
2.2.2	Schmalbandige Phononenanregung	14
2.2.3	Brillouin-Streuung	14
2.3	Prinzip der Auto- und Kreuzkorrelation	17
2.4	Weißlichterzeugung (<i>supercontinuum</i>)	19
3	Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse	21
3.1	Optischer Pump-Probe-Aufbau	21
3.1.1	Der Gitterkompressor	22
3.1.2	Autokorrelator	22
3.1.3	Aufbau des Puls-Oktett-Erzeugers	24
3.1.4	Kreuzkorrelation	26
3.2	Auswertung einer Pump-Probe-Messung	27
4	Ergebnisse und Diskussion	33
4.1	Verhältnis von Pump/Probe-Spot	33
4.2	Auswertung der Messergebnisse LSMO37-Probe	34
4.2.1	Auswertung der zeitaufgelösten breitbandigen Brillouin-Streuung	35
4.2.2	Fluenzabhängige Messungen	37
4.2.3	Temperaturabhängige Messungen	38
4.2.4	Temperaturabhängigkeit der Dämpfungsrate	39
4.2.5	Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit	42
4.3	Schallpropagation in Dysprosiumscandat	45
4.3.1	Fluenzabhängige Messungen	46
4.3.2	Temperaturabhängige Messungen	48
5	Zusammenfassung und Ausblick	51

1 Einleitung

Vor 55 Jahren hat Theodore Maiman kurz nach der Erzeugung des ersten Laserlichts den Laser als “Eine Lösung, die ihr Problem sucht” bezeichnet [1]. Und in der Tat hat diese Erfindung ganz hohe Wellen geschlagen. Ob in der Medizin, Maschinenbau, auf den Baustellen oder Smartphones, die Anwendungsmöglichkeiten von Lasern sind scheinbar unerschöpflich. Doch die größten Erfolge hat Laser unter Anderem in der Forschung hervorgebracht. Die Kohärenz [2], Monochromie-, sowie die definierte Ausbreitungsrichtung machen diese Lichtquelle einzigartig. Aber es sind vor allem die im Verlaufe der Jahre hinzugekommenen Weiterentwicklungen des Laserlichts, die diese Erfindung so wertvoll machen. Das Einsetzen der Methoden der Güteschaltung [3], der Modenkopplung [4] und der Kerr-Linse [5] sorgen dafür, dass Lasersysteme mit Pulslängen im Bereich von Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) der Forschung zur Verfügung stehen. Die ultrakurzen Laserpulse eignen sich hervorragend für die Untersuchung der Gitterschwingungen im Festkörper, der sogenannten Phononen, da die Periodendauer dieser auch im Bereich von 100 fs liegen. Experimentell wird dazu häufig die sogenannte Anrege-Abfrage-Technik (engl. pump-probe) verwendet. Dabei wird beim Durchlaufen eines Strahlteilers jeder der ultrakurzen Laserpulse aufgeteilt und auf zwei unterschiedliche optische Bahnen geschickt. Mit einem der beiden Pulse wird in dem untersuchten Festkörper eine Dynamik angeregt (“Pump-puls”) und mit dem anderen wird diese Dynamik nach einer zeitlichen Verzögerung “fotografiert” (“Probepuls”). Die zeitliche Verzögerung kann durch die Variation des optischen Weges für den Probepuls eingestellt werden. Durch die Messungen vieler unterschiedlicher Verzögerungen und dem anschliessenden Zusammensetzen der “geschossenen Bilder” kann man die Dynamik zeitaufgelöst untersuchen. Diese Technik ermöglicht es, für die Gitterschwingungen nicht nur die Frequenz sondern auch die Phase zu bestimmen, was zum Beispiel mit der Raman-Spektroskopie nicht möglich ist. Desweiteren ist es mit den kurzen Pulsen möglich, in sehr vielen unterschiedlichen Materialien kohärente Prozesse zu induzieren solange die Pulsdauer klein gegenüber der üblichen Zeitskala der entsprechenden Dynamik ist. Mit Hilfe der zeitlichen Beobachtung der Schwingungsdämpfung lassen sich Rückschlüsse auf Wechselwirkungsprozesse des Gitters mit anderen Subsystemen, zum Beispiel dem

1 Einleitung

elektronischen System, treffen. Eine indirekte Messung kann rein optisch über die Änderung der optischen Eigenschaften des Festkörpers (wie Transmissivität oder Reflektivität) erfolgen, die aus der Anregung resultiert [6].

Die Erzeugung der kohärenten Phononen kann mit Hilfe eines Übergitters erfolgen [7], welche aus abwechselnden Metall-Isolator-Doppelschichten auf einem Substrat besteht. Dabei absorbieren nur die Metallschichten das Laserlicht und sorgen mit ihrer schnellen, annähernd instantanen thermischen Ausdehnung für die Erzeugung einer propagierenden Gitterschwingung.

Diese Arbeit hat die Erzeugung schmalbandiger Phononen in Perovskit-Materialien als Ziel. Für die Umsetzung dieser Aufgabe wurde eine neue Methode für die Erzeugung der Phononen getestet. Die Phononeneigenschaften werden mit Hilfe der zeitaufgelösten breitbeindigen Brillouinstreuung temperaturabhängig untersucht, die eine Pump-Probe-Methode verwendet. Mit dem Pump-Strahl wird das notwendige schmalbandige Phonon erzeugt, welches die photoelastischen Eigenschaften der Probe verändert. Mit dem Probe-Strahl, welcher aus dem Laserpuls in ein breitbandiges Weißlicht umgewandelt wird, werden die durch den Pump-Strahl in der Probe verursachten Veränderungen der optischen Eigenschaften untersucht. Zusätzlich werden diese Messungen bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt, um die Temperaturabhängigkeit der Phononeneigenschaften, hauptsächlich ihre Dämpfung, an Phasenübergängen der Perovskite zu untersuchen.

Die Arbeit wird in drei große Abschnitte unterteilt. Zuerst werden die wichtigen physikalischen Grundlagen dargelegt, welche im Weiteren notwendig sind. Es wird drauf eingegangen, wie die Phononen erzeugt werden. Desweiteren wird erläutert, wie die Brillouin-Streuung für die Untersuchungen der Phononeneigenschaften genutzt wird und wie die Pump-Probe-Spektroskopie bei den Untersuchungen zum Tragen kommt. In dem zweiten Abschnitt wird der Versuchsaufbau beschrieben. Dabei werden einzelne Abschnitte mit Beispielmessungen vorgestellt. Zusätzlich wird die Auswertung der einzelnen Messungen genau dargestellt. Im letzten Abschnitt folgt die Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse und es wird auch auf die Möglichkeiten für weitere Messungen eingegangen.

2 Physikalische Grundlagen

2.1 Perowskit-Struktur

In dieser Arbeit werden vier Materialien genauer untersucht. Dabei handelt es sich um folgende vier Materialien, die in der sogenannten Perowskit-Struktur kristallisieren. Diese sind

- Strontiumtitanat (SrTiO_3)
- Strontiumruthenat (SrRuO_3)
- Lanthan-Strontium Manganat ($(\text{La}_{0.7}, \text{Sr}_{0.3})\text{MnO}_3$)
- Dysprosiumscandat (DyScO_3)

Alle Perowskite haben die gleiche Struktur wie das im Jahre 1839 vom russischen Mineralogen L. A. Perowski entdeckten Mineral CaTiO_3 *Perowskit*. Die allgemeine chemische Formel für die Perowskite ist ABX_3 , wobei in den meisten Fällen es sich bei X -Atomen um Sauerstoff handelt. In Abbildung 2.1 ist die Struktur gezeigt, wobei auf den Ecken der Einheitszelle die größeren A -Ionen und im Zentrum die B -Ionen (in Abbildung 2.1 in grün und blau gezeichnet) sitzen. Die Sauerstoffionen sind flächenzentriert auf den Seiten angeordnet. Die Perowskitstruktur ist dafür bekannt, durch kleine Änderungen der Kristallstruktur, zum Beispiel durch Veränderung der Ionenradien, unterschiedlichste physikalische Eigenschaften wie zum Beispiel Metall-Isolator, Ferromagnet-Paramagnet, oder auch ferroelektrische Phasenübergänge in sehr ähnlichen Materialien zu ermöglichen. Dies ist möglich durch die Verkipfung, Drehung und auch zusätzlich durch die Verzerrung der Sauerstoffoktaeder, wodurch rhomboedrische, orthorhombische und andere Gitterverzerrungen erzeugt werden. Aus den Ionenradien der allgemeinen ABO_3 -Struktur kann ein Toleranzfaktor t nach Goldschmidt [8] berechnet werden:

$$t := \frac{r(A) + r(O)}{\sqrt{2}(r(B) + r(O))} \quad (2.1)$$

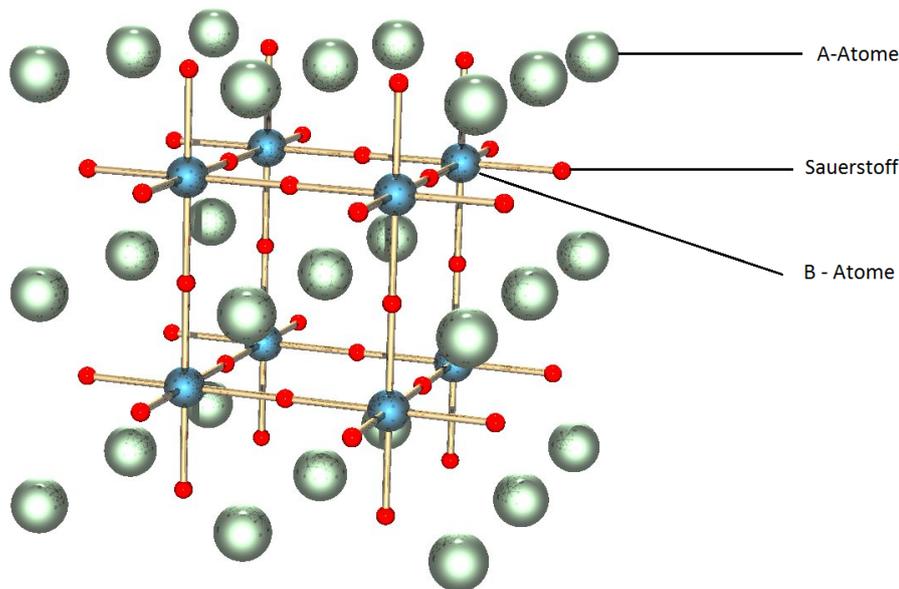


Abbildung 2.1: Die Perovskit-Struktur mit dem B-Atom (blau) in der Mitte der Einheitszelle und den A-Atomen (grün) in den Ecken eines Quaders. Die Sauerstoffatome (rot) bilden einen Oktaeder um die A-Atome.

$r(A)$ und $r(B)$ bezeichnen die mittleren Ionenradien der A - und B -Ionen, $r(O)$ ist der Radius des O^{2-} -Ions. Dabei erhält man für die ungestörte kubische Struktur $t = 1$, was der unverzerrten Struktur von Strontiumtitanat bei Raumtemperatur entspricht. Es existieren aber stabile verzerrte perowskitartige Strukturen im Bereich von $0,89 < t < 1,02$ [9].

Strontiumtitanat

Bei Zimmertemperatur ist STO paraelektrisch und hat eine kubische Struktur mit dem Gitterparameter $a = 3,905 \text{ \AA}$. Beim Unterschreiten der Temperatur von 105 K findet ein Phasenübergang zu einer leicht tetragonalen Struktur statt [10, 11]. Dabei kommt es zur Verdrehung der Sauerstoff-Oktaedern der Einheitszelle um eine der kubischen Achsen. Die Oktaeder in benachbarten Einheitszellen rotieren in die entgegengesetzte Richtungen um ungefähr 2 Grad bei 4 K [12, 13], wie in der Abbildung 2.2 dargestellt. Die entgegengesetzte Verdrehung der Oktaeder führt dabei zur Verdopplung der Einheitszelle. Diese Anordnung wird als antiferrodistortive (AFD) Phase bezeichnet. Die tetragonale Verzerrung beträgt nur ungefähr $\frac{c-a}{a} \approx 4 \cdot 10^{-4}$ [10], hat aber dramatische Auswirkungen auf die dielektrischen Eigenschaften von STO bei tiefen Temperaturen. Es wird als sogenanntes Quantenparaelektrikum bezeichnet, welches einen ferroelektrischen Grundzustand hat, die langreichweitige ferroelektrische Ordnung aber durch Quantenfluktuationen unterdrückt wird [14].

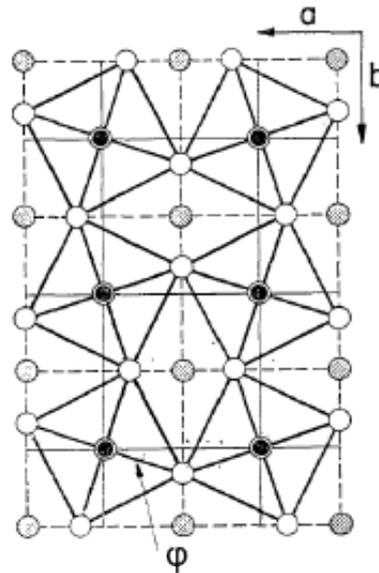


Abbildung 2.2: Die Verdrehung der Einheitszellen um einen Winkel ϕ im STO bei tiefen Temperaturen [13]. Die Sauerstoffatome sind mit weißen, Strontiumatome mit grauen und Titan mit schwarzen Kreisen dargestellt.

Dadurch ergibt sich eine ausserordentlich hohe Dielektrizitätskonstante bei tiefen Temperaturen, die für viele physikalische Beobachtungen in STO-basierten Dünnschichtsystemen relevant sind.

Strontiumruthenat

Strontiumruthenat (SRO) hat eine orthorhombische Symmetrie bei Zimmertemperatur mit folgenden Gitterparametern: $a_o = 5,536 \text{ \AA}$, $b_o = 7,852 \text{ \AA}$ und $c_o = 5,573 \text{ \AA}$. Auch hier ist die Abweichung von kubischen Symmetrie sehr klein und SRO kann durch eine pseudokubische Einheitszelle mit $a_{pk} = 3,928 \text{ \AA}$ beschrieben werden¹. Bei SRO handelt es sich um ein Material mit metallischen Eigenschaften. Nach einer optischen Anregung liegt die Elektron-Phonon-Kopplungszeit im Bereich von 100 fs [7]. Da die Gitterkonstanten von SRO und STO vergleichbar sind und beide Materialien die Perowskit-Struktur aufweisen, ist es möglich, dünne SRO-Filme epitaktisch auf STO aufzuwachsen. Da STO eine indirekte Bandlücke von 3,25 eV aufweist und für das Pumplicht mit der Wellenlänge von $\lambda = 795 \text{ nm}$ (1,5 eV) transparent ist, ist das System SRO/STO sehr gut dazu geeignet, kohärente Phononen anzuregen und im STO-Substrat zu beobachten. Außerdem erzeugt die SRO-Schicht eine sehr große Phononenamplitude, die die Bedingung für die Untersuchung nicht-

¹Die Indizes "o" und "pk" stehen dabei für orthorhombisch und pseudokubisch.

linearer (anharmonischer) Gitterdynamik in STO ist. Dabei nutzt man aus, dass SRO als Metall das Pumplicht sehr gut absorbiert², und die in dieser Schicht erzeugten Phononen in das STO-Substrat propagieren und dort mit dem Probe-Licht detektiert werden können³.

Lanthan-Strontium Manganat

LSMO kristallisiert ebenfalls in einer orthorhombischen Kristallstruktur, wird aber häufig pseudokubisch betrachtet und hat mit $a_{pk} = 3,871 \text{ nm}$ ([16]) eine Gitterkonstante ähnlich der von STO. Auch beim LSMO handelt es sich um ein Metall. LSMO wächst epitaktisch auf STO und wird somit auch oft zur Erzeugung kohärenter Phononen verwendet. Die Elektron-Phonon-Kopplungszeit nach einer optischen Anregung wurde noch nicht genau bestimmt. Die Messergebnisse der Kollegen in der Arbeitsgruppe weisen darauf hin, dass die Elektron-Phonon-Kopplungszeit im LSMO der von SRO ähnlich ist.

Dysprosiumscandat

Beim DSO handelt es sich um einen Perovskit aus dem seltenen Erden Element Dysprosium und dem Nebengruppenelement Scandium. Es besitzt bei Raumtemperatur eine orthorhombische Struktur mit den Gitterparameter $a = 5,449 \text{ \AA}$, $b = 5,739 \text{ \AA}$, $c = 7,929 \text{ \AA}$ [17]. Mit einer Bandlücke von $E_g = 5,7 \text{ eV}$ ist DSO ein Isolator, und wird zusammen mit den anderen Seltenen-Erden-Perovskiten wie zum Beispiel GdScO_3 , TbScO_3 als Substrat zum epitaktischen Wachstum von Dünnschichten aus anderen Perovskiten wie BiFeO_3 , EuTiO_3 , BaTiO_3 , SrTiO_3 , SrRuO_3 uvm. verwendet. Diese wachsen auf der (110) Fläche von DSO auf, die eine effektive Gitterkonstante von $a^{[110]} = (\sqrt{a^2 + b^2})/2 = 3,957 \text{ \AA}$ aufweist. Durch die Variation des seltenen Erden Elements kann man feinfühlig die Gitterkonstante variieren und somit bestimmten Spannungszustand in der Schicht einstellen (“strain engineering”) [18].

2.2 Erzeugung der kohärenten Phononen

Es existieren verschiedene Methoden für die Erzeugung von kohärenten Phononen. Die impulsive stimulierte Ramanstreuung ist stark verbreitet im Bereich der schwachen Anregungen [19]. Geht man in den Bereich der Anregung mit hohen

²Die Eindringtiefe des Lichts der Wellenlänge von 795 nm beträgt im SRO etwa 52 nm.([15])

³Diese für die Erzeugung von Phononen genutzte Schicht wird in den Publikationen als *transducer* bezeichnet.

Fluenzen, so ist die “displacive excitation” der kohärenten Phononen sehr stark verbreitet([20, 21]). Im Rahmen der Arbeit nutzen wir die rapide thermische Ausdehnung einer Metallschicht, nach einer optischen Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls, um kohärente Phononen zu erzeugen [7]. Die Elektron-Elektron-Streuung sorgt für die schnelle Thermalisierung der angeregten Elektronen und die Energie der Elektronen wird anschließend in das Phononensystem überführt. Der Prozess der Thermalisierung kann mit dem sogenannten Zwei-Temperaturen-Modell beschrieben werden, siehe Abschnitt 2.2.1. Die thermische Ausdehnung der angeregten metallischen Schicht erzeugt einen *strain pulse*, welcher in dem Substrat propagiert und an den Grenzflächen – je nach Impedanz – teilweise reflektiert und/oder transmittiert wird.

2.2.1 Optische Anregung von Metallen

Die Spannung in einem Festkörper und die Energieänderung der Elektronenverteilung können mit Hilfe des Verformungspotentials (*deformation potential*) in Zusammenhang gebracht werden. Wird die Elektronenverteilung zum Beispiel durch Absorption eines Laserpulses geändert, so führt es zur Veränderung von Kation-Kation-, Elektron-Kation- und Elektron-Elektron-Wechselwirkungen in sehr vielen Materialien. Die zwischenatomaren Kräfte hängen sehr stark von der Elektronenverteilung ab. Werden die zwischenatomaren Kräfte verändert, so verändert sich auch die Gleichgewichtslage im Gitter, was letztendlich nach einer bestimmten Zeit zur Verformung des Kristalls führt, zum Beispiel wird ein Phonon emittiert. Diese Beziehung kann folgendermaßen beschrieben werden:

$$\frac{\delta V}{V} = \frac{\delta U}{d_{eh}} \quad (2.2)$$

wobei ist $d_{eh}(eV)$ der Koeffizient für das Verformungspotential, U die elektronische Energie und $\delta V/V$ die durch das akustische Phonon verursachte Spannung im Festkörper (V ist das Volumen). Diese Gleichung unterstreicht den direkten Zusammenhang zwischen der Gitterspannung und der Änderung der Elektronenenergie. Für die Metalle gilt nach dem Anwenden des Sommerfeld-Modells für den Elektronendruck im thermodynamischen Gleichgewicht:

$$P = \frac{E}{V} \cdot \frac{2}{3} \quad (2.3)$$

wobei E die Gesamtenergie der (quasi) freien Elektronen und V Volumen des Metalls sind. Nach einer Anregung der Elektronen mit dem Laserpuls erhöht sich die die

2 Physikalische Grundlagen

Energie um den Betrag δE und der Betrag für die Druckänderung beträgt

$$\delta P = \frac{\delta E}{V} \cdot \frac{2}{3} \quad (2.4)$$

Mit $\delta E/V = C_e \delta T_e$ und unter Betrachtung eines 1-dimensionalen Falls gilt für den photoinduzierte Spannung:

$$\sigma_{DP} = -\gamma_e \frac{\delta E(z, t)}{V} = -\gamma_e C_e \delta T_e(z, t) \quad (2.5)$$

wobei C_e , T_e und γ_e für die elektronische Wärmekapazität, elektronische Temperatur und Grüneisenkonstante stehen. Die photoinduzierte Spannung ist negativ und das Metall dehnt sich aus. Da die Spannung im Allgemeinen von k abhängt (die Grüneisenkonstante ist k -abhängig), so gilt dann:

$$\sigma_{DP} = - \sum_k \delta n_e(k) E_k \gamma_k = \sum_k \delta n_e(k) \frac{\partial E_k}{\partial \eta} \quad (2.6)$$

wobei $\delta n_e(k)$ ist die Änderung der elektronischen Konzentration und für die Grüneisenkonstante gilt: $\gamma_k = -\frac{1}{E_k} \cdot \frac{\partial E_k}{\partial \eta}$. Vernachlässigt man die Thermalisierung der Elektronen, so kann das sogenannte Zwei-Temperaturen-Modell (2TM) eingeführt werden. Dieses Modell beschreibt die zeitliche Änderung der Temperatur T_e des elektronischen Subsystems unter dem Wechselwirken mit dem phononischen Subsystem mit der Temperatur T_L . Dieses Modell wird mit zwei Differentialgleichungen beschrieben:

$$\begin{aligned} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \kappa_e \frac{\partial^2 T_e}{\partial z^2} - g(T_e - T_L) + S(z, t) \\ C_L \frac{\partial T_L}{\partial t} &= g(T_e - T_L) \end{aligned} \quad (2.7)$$

Wo C_L , g , κ_e und S sind Wärmekapazität des Gitters, Elektron-Phonon-Kopplungsparameter, (elektronische) Wärmeleitfähigkeit und Quellterm für die Anregungslichtquelle sind. Die theoretische Grundlage für dieses Modell wurde bereits in den 50er Jahren des 20. Jahrhunderts präsentiert [22], und zwar noch vor der Erfindung der ersten Lasern. In den 70er-Jahren wird erstmals die Formulierung als System zweier gekoppelter Differentialgleichungen (DGL) in den Energiedichten der elektronischen und phononischen Subsysteme veröffentlicht [23].

Häufig wird die optische Anregung von Metallen mit Hilfe der Thermoelastizität beschrieben, da man das Verformungspotential einfacher nur in den Halbleitern verlässlich nachweisen kann. Bei Thermoelastizität handelt es sich um ein Phänomen, welches die Temperatur und Elastizität des Festkörpers verknüpft. Die Wärmeaus-

dehnung verursacht eine thermoelastische Spannung $\eta = \delta V/V = 3\beta B\delta T_L$, dabei sind β die Konstante der Wärmeausdehnung und δT_L die Erhöhung der Gittertemperatur. Daraus lässt sich der thermoelastische Druck berechnen:

$$\sigma_{TE} = -3B\beta\Delta T_L \quad (2.8)$$

Nach der Erhöhung der Temperatur spricht man von sogenannten “heißen Elektronen”, die durch die Wechselwirkung mit dem Gitter relaxieren und dabei ein Phonon emittiert wird. Wie stark die Wechselwirkung ist, hängt von der Elektron-Phonon-Kopplung in dem Material ab. Für edle Metalle ist die Elektron-Phonon-Kopplung sehr groß, was zu einer sehr schnellen Übergabe der Energie von heißen’ Elektronen an das Gitter führt. $L = \sqrt{(\kappa_e/g)}$ ist der charakteristische Weg, den die Elektronen bis zu Abgabe der Energie zurückgelegt haben, dabei ist κ_e die elektronische Wärmeleitfähigkeit und g die Elektron-Phonon-Kopplung. Der charakteristische Weg in Metallen liegt in dem Bereich der Eindringtiefe des Anregungslichts. Das führt zur Erzeugung kohärenter Phononen, die sowohl zeitlich als auch räumlich gleiche Phase haben [24].

Grüneisen-Parameter

In den vorherigen Abschnitten wurde schon häufig die Grüneisenkonstante verwendet, im Folgenden wird sie noch explizit erläutert. Eduard Grüneisen entwickelte das Modell zur Beschreibung der Wärmeausdehnung in den Festkörpern. In diesem Modell wird die Abhängigkeit der relativen Frequenzänderung der Gitterschwingungen (Phononen) in einem kristallinen Festkörper in Abhängigkeit von der relativen Volumenänderung beschrieben 2.9.

$$\frac{\delta\omega_{\mathbf{q},j}}{\omega_{\mathbf{q},j}} = -\gamma\frac{\delta V}{V} \quad (2.9)$$

γ ist der Grüneisen Parameter, der in erster Näherung unabhängig von der Frequenz, dem Wellenvektor \mathbf{q} und dem Phononenast ist. Unter Berücksichtigung der thermodynamischen Identitäten bekommt man die Grüneisen-Relation [25]

$$\alpha_{th} = \frac{\gamma C_V}{3B}. \quad (2.10)$$

Diese Relation verbindet die Wärmeausdehnung α_{th} des Kristalls mit dessen Wärmekapazität bei konstantem Volumen und dessen Kompressionsmodul B mit Hilfe der Grüneisen-Konstante. Außerdem zeigt diese Relation, dass die lineare Wärmeausdehnung die gleiche Temperaturabhängigkeit wie die Wärmekapazität aufweist.

Bei Betrachtung einer thermisch verursachten Ausdehnung, nehmen wir $\Delta V = V3\alpha_{th}\Delta T = 3\alpha_{th}E/C_V = \gamma E/B$ an, wobei E dem System zugeführte Energie ist. Da B nur sehr gering von der Temperatur abhängt, ist die Ausdehnung ΔV nur von dem Betrag der zugeführten Energie abhängig. Was aber bedeutet, dass die verursachte Volumenänderung unabhängig von der Ausgangstemperatur ist.

2.2.2 Schmalbandige Phononenanregung

Bei der Erzeugung eines schmalbandigen Phonons benutzt man das Prinzip der Unschärferelation. Regt man die Metallschicht mit einem kurzen Laserpuls an, so ist die absorbierte Energie klar definiert. Betrachtet man dabei aber die dabei erzeugten k -Raum der Phononen in der Schicht, so stellt man fest, dass diese “unscharf” und damit stark verbreitert ist. Dies hat als Ursache, dass die in der Schicht erzeugten Phononen zwar die vorgegebene Richtung haben, aber die Wellenlänge und damit der k -Vektor nicht klar vorgegeben ist. Regt man die Schicht jedoch mit mindestens zwei kurz (kürzer als die Wiederholrate des Lasersystems) aufeinander folgenden Laserpulsen an, so wird durch die Unschärferelation der Energieraum vergrößert und der k -Raum gleichzeitig verkleinert. In der Abbildung 2.3 ist eine Simulation der Pulszug-Anregung einer LSMO-Schicht dargestellt. Die Simulation zeigt, wie die Anzahl der Laserpulse in einem Anregungszug die spektrale Breite des Phononenvektors verändert. ([26, 21, 27])

Bei der Variation der Breite der Laserpulse hat sich gezeigt, dass diese im Bereich von 5 ps -10 ps liegen sollte (Abbildung 2.4). In diesem Bereich ist der Wellenvektor des angeregten Phonons schmal genug und zusätzlich werden die Wellenvektoren der höheren Ordnungen fast komplett unterdrückt.

2.2.3 Brillouin-Streuung

Fällt das Laserlicht mit der Wellenlänge λ auf die Oberfläche eines kristallinen Festkörpers, so kann dieses entweder reflektiert oder an der Oberfläche beim Eintritt in das Substrat gebrochen werden. Findet bei der Reflektion ein Energietransfer von dem einfallenden Photon an das Kristallgitter statt, so wird ein longitudinales Phonon erzeugt. Das Phonon verändert lokal den Brechungsindex im Kristall. Trifft das gebrochene Laserlicht ($\lambda_m = \lambda/n(\lambda)$) auf das propagierende Phonon im kristallinen Festkörper, so können sie an diesem “Gitter” gestreut werden. Hier sind die λ und $n(\lambda)$ die Wellenlänge des einfallenden Laserlichts im Vakuum und der wellenlängenabhängige Brechungsindex im Substrat. Den Streuwinkel kann man mit der Bragg -

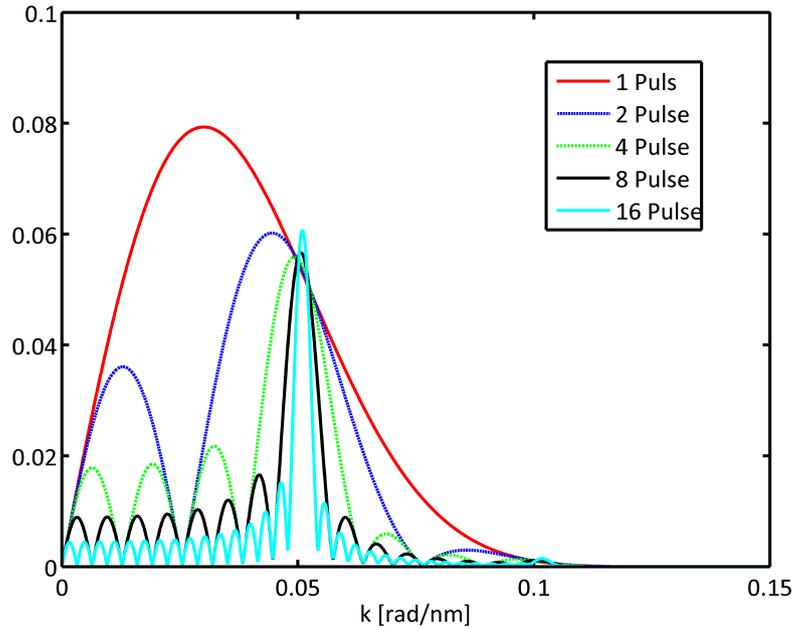


Abbildung 2.3: Die Variation der Anzahl der Laserpulse in einem Anregungsstrahl zeigte, dass bereits mit 8 Pulsen ein schmalbandiger Phononenvektor im Substrat erzeugt wird. Es wäre auch möglich die Probe mit einem 16fachen Puls anzuregen, wobei die Energie der einzelnen Pulse aber zu gering wäre, um noch genaue Messungen durchführen zu können.

Gleichung

$$\lambda_m = 2\lambda_s \cdot \sin \theta \quad (2.11)$$

mit dem optischen Photon der Wellenlänge $\lambda_m = 2\pi n/|\vec{k}|$ an dem durch Phononen der Wellenlänge $\lambda_s = 2\pi/|\vec{k}|$ erzeugten Brechungsindex-Gitter berechnen, siehe Abbildung 2.5 (a). Breitet sich das Phonon senkrecht zu der Einfallsoberfläche aus, so liegt der Streuwinkel θ zwischen dem Wellenvektor des einfallenden Photons im Substrat und der Substratoberfläche, und mit Hilfe des Snellius-Gesetz kann der Streuwinkel berechnet werden. Der Wellenvektor $Q(\lambda)$ des erzeugten Phonons kann aus den Brillouinstreuexperimenten bestimmt werden:

$$k(\lambda) = \frac{4\pi}{\lambda} n(\lambda) \cdot \sin \theta \quad (2.12)$$

wobei hier $n(\lambda)$ der wellenlängenabhängige Brechungsindex des Mediums ist und $\sin \theta$ der konstante Streuwinkel (siehe Abbildung 2.5). Nach der Streuung kann das Laserlicht beim Verlassen von Kristall mit dem reflektierten Teil des Lichts kon-

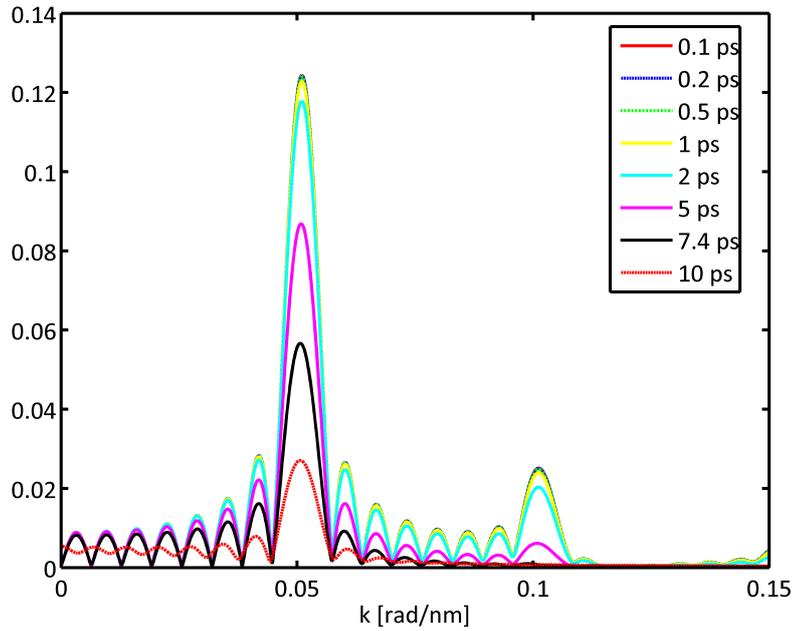


Abbildung 2.4: Die Variation der Laserpulsbreite bei einer Anregung mit 8 Pulsen hat gezeigt, dass diese in dem Bereich zwischen 5 und 10 ps liegt, wenn der Abstand der Pulse bei 15,4 ps liegt.

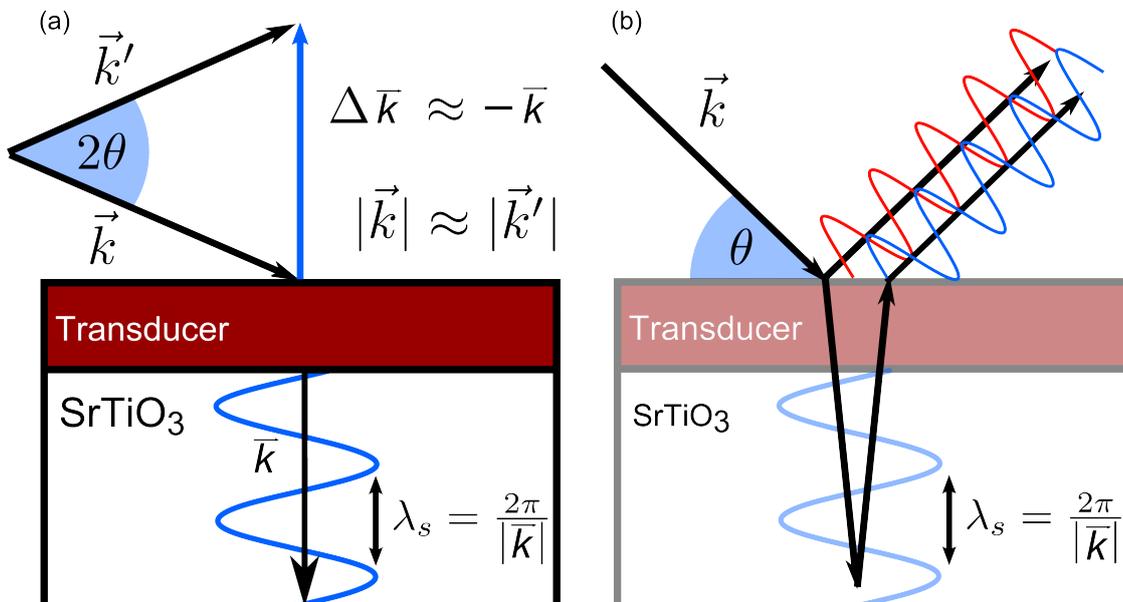


Abbildung 2.5: (a) Bei der Reflexion des Pumplichts an der Obeffläche wird das longitudinale akustische Phonon erzeugt. (b) Der gestreute und der an der Oberfläche reflektierte Probelicht interferieren konstruktiv.

struktiv interferieren (Abbildung 2.5 (b))[28]. Die Propagation der Schallwelle sorgt dabei für eine Phasenänderung in der gestreuten Welle. Die Phase hängt dabei von dem Pump-Probe-Verzögerung⁴ ab. Die am Detektor gemessene Intensität ist proportional zu $\cos(\omega_s t) = \cos(2\pi t/T_s)$ mit der der Periodendauer von

$$T_s = \frac{\lambda}{2\nu_s n(\lambda) \sin \theta} \quad (2.13)$$

Kombiniert man dies mit der Gleichung 2.12, so erhält man $\nu_s \cdot k = 2\pi/T_s = \omega_s$, was der Kreisfrequenz des Phonons mit dem Wellenvektor \vec{k} entspricht. Diese Oszillation wurden bereits bei optischen Experimenten nachgewiesen, bei denen ein einfacher optischer Pump-Puls und ultrakurzer breitbandiger Probe-Puls verwendet wurden [29, 7].

2.3 Prinzip der Auto- und Kreuzkorrelation

Dieser Prozess kann nur bei zeitlichen und räumlichen Überlapp der beiden Pulse in einem optisch nichtlinearen Kristall, zum Beispiel einem BBO-Kristall⁵, beobachtet werden. Dabei muss die Phasenanpassung erfüllt sein, damit eine hohe Effizienz dieses Prozesses erreicht werden kann. Für die räumliche Trennung des eingestrahnten und SHG konvertierten Laserlichts sorgt hier die Nichtkollinearität, wobei man bewusst die schlechtere Effizienz in Kauf nimmt. Eine Lichtwelle mit der elektrischen Feldstärke $E = E_0 \cos(\omega t - kz)$, die auf ein dielektrisches Medium fällt, verschiebt die darin befindlichen elektrischen Ladungen mit der Frequenz des Lichtes. Die auf diese Weise induzierten molekularen Dipolmomente sorgen in ihrer Vektorsumme pro Volumen für eine Polarisation, die sich in der Form einer Potenzreihe als

$$\begin{aligned} P &= \epsilon_0[\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots] \\ &= P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots \end{aligned} \quad (2.14)$$

darstellen lässt. Ist der Betrag E der elektrischen Feldstärke klein, verhält sich die Auslenkung der einzelnen Ladungen zu der durch E hervorgerufenen Kraft linear, die Polarisation ist als Ergebnis von harmonischen Oszillationen der Ladungen gegen die Atomrümpfe approximierbar und Terme höherer Ordnung in E in Gleichung (2.14) spielen keine Rolle. Zu höheren Feldstärken hin versagt die harmonische Nähe-

⁴Der zeitliche Versatz zwischen dem Anrege- und Abfrage-Puls

⁵Abkürzung für Bariumborat. Ist ein Feststoff, welches sich durch Eigenschaften wie optische Doppelbrechung und optische Nichtlinearität auszeichnet.

2 Physikalische Grundlagen

rung und die nichtlinearen Terme in der Gleichung (2.14) beginnen zur Polarisation beizutragen. Dies äußert sich z.B. darin, dass neben den Frequenzkomponenten der ursprünglichen Anregung im emittierten Spektrum zusätzliche Anteile höherer Harmonischen auftauchen. Nimmt man eine in z-Richtung einfallende, ebene Welle an, die sich als Überlagerung zweier Wellen mit den gleichen Frequenzen ω zu

$$E = E_1 \cos(\omega_1 t + k_1 z) + E_2 \cos(\omega_2 t + k_2 z) \quad (2.15)$$

ergibt, die an einem bestimmten Ort im Material ein zeitabhängiges Strahlungsfeld $E = E_1 \cos(\omega_1 t) + E_2 \cos(\omega_2 t)$ erzeugt, dann ergibt sich der quadratische Beitrag $P^{(2)}$ in Gleichung (2.14) zu

$$|P^{(2)}(\omega)| = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} [(E_1 + E_2)^2 + (E_1 - E_2)^2 \cos(2\omega t)], \quad (2.16)$$

woran die damit im Medium erzeugte Strahlung der doppelten Frequenz (SHG) ablesbar ist. Überlegt man sich außerdem, dass die Intensität der induzierten atomaren Dipolmomente quadratisch mit ihrer Amplitude skaliert, wird an den Gleichungen (2.14) und (2.17) deutlich, dass die Intensität einer erzeugten Oberwelle $I(2\omega)$ proportional zur vierten Potenz der Feldstärken der beteiligten Lichtwellenfelder sein muss. Für diesen Prozess ist ein gepulster Laser geradezu prädestiniert. Bei der Überlagerung der beiden Lichtpulse in dem BBO-Kristall kann man die Intensität des Laserpulses mit der doppelten Frequenz nach der Gleichung (2.17) berechnen. Dabei sind die $I(t)$ und $I(t - \tau)$ die jeweiligen Intensitäten der Pulse auf den festen und verfahrbaren Strecken. Dabei entspricht τ dem zeitlichen Unterschied der Laufwege unter Berücksichtigung der Lichtgeschwindigkeit. Die Intensitätskorrelation ist eine symmetrische Größe mit einem Maximum bei $\tau = 0$:

$$I_{SHG} = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (2.17)$$

Zwar weicht die Autokorrelationsfunktion von der tatsächlichen Pulsform ab, was man aber mit einem Faktor von $\sqrt{2}$ korregieren kann. Dabei gilt die Gleichung (2.18) [30]

$$\sigma_{AK} = \sqrt{2} \cdot \sigma_{Puls} \quad (2.18)$$

Dabei ist Pulsbreite der Autokorrelation σ_{AK} um einen Faktor von $\sqrt{2}$ größer als die tatsächliche Breite σ_{Puls} des Laserpulses [31]. Diese Beziehung gilt auch für die FWHM⁶- Werte der Gaußglocke.

Bei der Kreuzkorrelation wird im Vergleich zu Autokorrelation der Puls nicht mit

⁶Ein Akronym von englischen *Full With at Half Maximum*

sich selbst überlagert, sondern mit einem anderen gekreuzt. Die Pulsform von dem einen der Pulse sollte dabei bekannt sein. Dabei gilt für die gemessene Pulsbreite der Kreuzkorrelation $\sigma_{KK} = \sqrt{\sigma_1 + \sigma_2}$, wobei die σ_1 und σ_2 die jeweiligen Pulsbreiten der gekreuzten Pulse sind. Liegt die Pulsbreite von dem ersten Laserpuls jedoch um einige Größenordnungen über der Pulsbreite des anderen ($\sigma_1 \gg \sigma_2$), so entspricht die gemessene Pulsbreite σ_{KK} in etwa der Breite des ersten Pulses ($\sigma_{KK} \approx \sigma_1$).

2.4 Weißlichterzeugung (*supercontinuum*)

Bei der Erzeugung eines Weißlichtkontinuums werden in einem nichtlinearen Medium durch intensive schmalbandige Lichtpulse Wellen unterschiedlichster Frequenzen induziert, so dass Licht in einem breiten Spektralbereich emittiert wird. Dieses Phänomen entsteht durch die Selbst-Phasen-Modulation des Lichts, ein Prozess dritter Ordnung ($\chi^{(3)}$). In einem Medium mit einer Gitterstruktur, das kein Inversionszentrum besitzt, ist der niedrigste, nichtverschwindende, nichtlineare Term von dritter Ordnung. Die Prozesse zweiter Ordnung löschen sich in diesen Medien aus. Der kubische Term führt zu einem intensitätsabhängigen Brechungsindex n , der sich für kleine Brechungsindexänderungen vereinfacht als $n = n_1 + n_3|E|^2$ schreiben lässt. Femtosekundenpulse weisen eine sehr hohe Spitzenintensität auf, so dass dadurch der Brechungsindex an einem Ort x zeitlich stark variiert. In diesem Fall wirkt sich die Nichtlinearität des Brechungsindex über die Wellenzahl $k = 2\pi n/\lambda$ direkt auf die Phase der Lichtpulse aus. Nimmt man an, dass der Puls an der Stelle x im Medium mit dem Feldverlauf $E(x, t) = E_0(t)\cos(-\varphi(x, t))$ und der Phase

$$\varphi(x, t) = kx - \omega_0 t = -\omega_0 t + 2\pi x/\lambda_0(n_1 + n_3 I(t)) \quad (2.19)$$

beschrieben werden kann, so berechnet man die Frequenz zu

$$\omega(t) = -\partial\phi(x, t)/\partial t \quad (2.20)$$

Das heißt, die Frequenz des Lichtimpulses wird zeitabhängig. Da die Intensität von Null auf einen Normalwert ansteigt und dann wieder auf Null abfällt, wird zu Beginn des Pulses die Frequenz zu kleineren Werten (Rotverschiebung $\partial I(t)/\partial t > 0$), und am Ende des Pulses zu höheren Werten hin verschoben (Blauverschiebung $\partial I(t)/\partial t < 0$). Mit diesem Prozess, Selbst-Phasen-Modulation genannt, wird das Spektrum des Lichtpulses verbreitert. Man erhält für Femtosekundenpulse mit $\lambda = 795$ nm ein breites Weißlichtkontinuum zwischen 450 und 850 nm. Die Pulse sind jetzt spektral breit, aber durch die Frequenzmodulation in der Zeitdomäne (*chirp*)

2 Physikalische Grundlagen

in ihrer Pulsdauer verlängert. Das Weißlichtkontinuum wird in den optischen parametrischen Verstärkern eingesetzt, um dem durch die Phasenanpassung vorgegebenem Prozess Startphotonen (*seed*) zu geben. Die optisch parametrischen Prozesse beginnen aus diesem Grunde nicht aus dem Rauschen und laufen dadurch wesentlich intensitätsstabiler.

In dem experimentellen Aufbau erfolgt die Weißlichterzeugung mit Hilfe eines Teleskops, welches aus zwei Linsen besteht. Dabei wird der Laserstrahl mit Hilfe der ersten Linse gebündelt und mit dem Einbau einer weiteren Linse, welche hinter dem Fokus der vorderen Linse platziert wird, wird der Laserstrahl wieder parallelisiert. Setzt man in den Fokus nun das Saphir-Plättchen kommt es zur Erzeugung von Weißlicht.

3 Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse

Im Verlaufe der letzten Jahrzehnte wurden immer schnellere Vorgänge untersucht. So spielen sich die Gitterschwingungen typischerweise im Bereich von einigen Piko-sekunden ab. Die Elektron-Phonon-Kopplung läuft sogar im Bereich von Hunderten von Femtosekunden ab. Um diese untersuchen zu können, benötigt man einen sehr kurzen Anregungspuls um die kohärente Bewegung zu starten und einen Abfrageprozess mit einer sehr kurzen Detektionszeit. Dies wird mit Hilfe einer stroboskoptartigen Technik realisiert. Dabei wird mit einem ultrakurzen Lichtpuls, dem sogenannten Anregepuls, die Dynamik in dem System gestartet. Mit dem zweiten Puls, dem Abfragepuls, der mit einer zeitlichen Verzögerung die Probe erreicht, werden die Änderungen der optischen Eigenschaften des Festkörpers, wie Reflektion oder Transmission, bei dieser zeitlichen Verzögerung untersucht. Durch die Variation der zeitlichen Verzögerung zwischen dem Anrege- und Abfragepuls kann die Dynamik in der Probe zeitabhängig aufgelöst werden.

3.1 Optischer Pump-Probe-Aufbau

Als Lichtquelle dient für die Messungen das Coherent Maitai/Spitfire-Lasersystem. In Abbildung 3.1 ist schematisch der Aufbau des Pump-Probe-Aufbaus gezeigt. Der MAITAI-Oszillator (1) emittiert Laserpulse mit einer mittleren Wellenlänge von 800 nm der gemittelten Laserleistung $P = 1,5 \text{ W}$ bei einer Wiederholfrequenz von $f = 80 \pm 1 \text{ MHz}$. Einer dieser Laserpulse wird dann im SPITFIRE-Lasersystem (2) auf eine mittlere Ausgangsleistung von $P = 1,6 \text{ W}$ (bei 800 nm) und einer Wiederholrate von $f = 5 \text{ kHz}$ verstärkt [32]. Diese Laserpulse mit der Länge von 100 fs werden an einem Strahlteiler (3, BS für das englische “*beam splitter*”) in den Anrege- (*pump*) und Abfrage- (*probe*) Strahl aufgeteilt, die unterschiedliche Wege zurücklegen. Diese werden im Folgenden beschrieben.

Der Anregestrahl durchläuft nacheinander zuerst einen Gitterkompressor, den Puls-Oktett-Erzeuger und fällt anschließend hinter der verstellbaren Verzögerungs-

3 Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse

strecke (7, *stage*) und einem Teleskop auf die Probe. Mit Hilfe des Teleskops kann dabei die Größe des Anregespots auf der Probe variiert werden. Bei den Messungen für diese Arbeit wurde diese auf einen Durchmesser von etwa 300 μm eingestellt.

Der Abfragestrahl durchläuft eine Kompensationsstrecke, damit alle zusätzlich zurückgelegten Strecken des Anregestrahls im Gitterkompressor und Puls-Oktett-Erzeuger kompensiert werden. Kurz vor der Probe wird das Weißlicht mit Hilfe eines Saphir-Plättchens erzeugt. Das Weißlicht wird dann auf die Stelle der Anregung fokussiert. Dabei betrug die Größe des Abfragespots etwa einem fünfundzwanzigstel des Anregespots. Der an der Probe reflektierte Abfragestrahl wird danach in eine Glasfaser eingekoppelt und in das Faserspektrometer *Model von Avantes* geleitet, wo die Intensität wellenlängenabhängig bestimmt wird. Durch die Verschiebestrecke kann dabei der Laufweg des Anregepulses maximal um etwa 2 m verlängert werden. Dies entspricht einer zeitlichen Verzögerung zwischen dem Anrege- und Abfragepuls von bis zu knapp 8 ns. Dadurch wird es möglich, Phononen mit einer kleinen Dämpfung und somit längeren "Lebenszeit" zu untersuchen. Im Folgenden werden die einzelnen Elemente genauer beschrieben.

3.1.1 Der Gitterkompressor

Die Länge der von dem Verstärker emittierte Laserpulse lag bei etwa 100 fs, was für die weitere Verwendung bei der Erzeugung des Laserpuls-Oktetts unvorteilhaft war. Um die Pulse zu verlängern wurde ein Gitterkompressor benutzt, dessen Aufbau in Abbildung 3.2 gezeigt ist [33]. Das Aufweiten bzw. die Kompression ist in der Abbildung schematisch dargestellt. Das erstes Gitter fächert das Licht frequenzabhängig auf. Ein zweites Gitter wird so aufgestellt, dass es das Licht parallelisiert, dabei aber ebenfalls eine Aufweitung bzw. Kompression bewirkt. Ein Spiegel reflektiert das Laserlicht so, dass der Strahl die Gitter erneut passiert und dabei weiter aufgeweitet bzw. komprimiert wird. Für die Experimente in dieser Arbeit wurden die Pulse verlängert, zudem erhält man mit parallel zueinander stehenden Gittern eine positive Dispersion (das blaue Licht ist schneller).

3.1.2 Autokorrektor

Für die Vermessung der zeitlichen Länge der Pulse wurde ein Aufbau verwendet, der in Abbildung 3.3 dargestellt ist. Der Laserstrahl wird über Spiegel auf einen Strahlteiler geleitet. Dahinter wird ein Teil über eine einstellbare Verzögerungsstrecke und der andere über einen festen Strahlweg geschickt. Mit einer Linse erfolgt dann eine Fokussierung der beiden Strahlteile auf einen BBO-Kristall, in dem eine

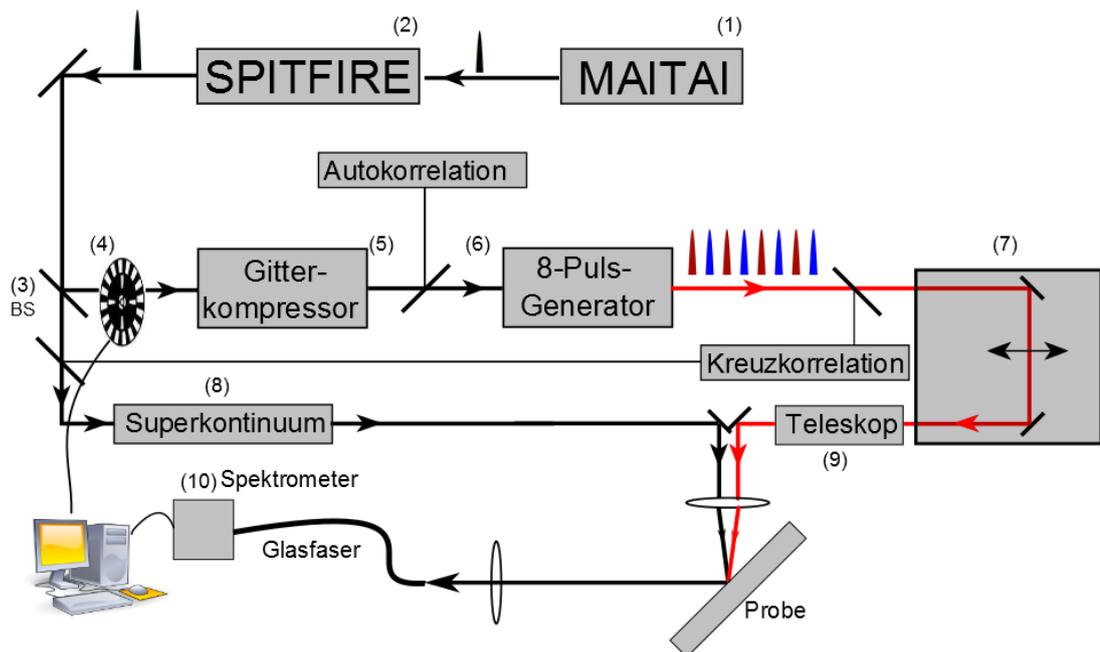


Abbildung 3.1: Als Lichtquelle dient das Ti:Saphir Lasersystem SPITFIRE, wobei die kurzen Laserpulse von dem Oszillator Maitai (1) erzeugt und die Pulsenergie von dem Verstärker Spitfire (2) verstärkt wird. Die durchschnittliche Ausgangsleistung beträgt knapp 1,6 W. Nach dem Strahlteiler (3) durchläuft der Pumpstrahl zuerst den Gitterkompressor (5) und danach den 8-Puls-Generator (6). Anschließend wird er über die Verzögerungsstrecke (7), wo der Delay zu dem Abfrage-Strahl eingestellt werden kann, zu dem Teleskop (9) geleitet, wo seine Größe auf der Probe eingestellt werden kann. Der Abfrage-Strahl wird unmittelbar vor der Probe zu Weißlicht umgewandelt (8), wo gleichzeitig auch seine Größe auf der Probe eingestellt werden kann. Der an der Probe reflektierte Probestrahl wird dann über eine Glasfaser in das Spektrometer (10) eingespeist. Die aufgenommenen Daten werden anschließend zum Verarbeiten an den PC weitergeleitet.

Frequenzverdopplung (SHG¹) des 800 nm Laserlichts zu 400 nm Laserlicht erfolgt. Eine schnelle Photodiode zeichnet die Intensität des konvertierten Lichts auf. Je nach Überlapp ist die Intensität höher oder geringer, die maximale Intensität wird nur bei zeitlichem und räumlichem Überlapp der beiden Strahlen in dem BBO-Kristall beobachtet. Das Auftreffen der beiden Strahlen kann durch die Verzögerungsstrecke eingestellt werden und bei Kenntnis der Wegdifferenz und der Lichtgeschwindigkeit kann somit die Pulslänge bestimmt werden.

¹das englische Akronym für *second harmonic generation*

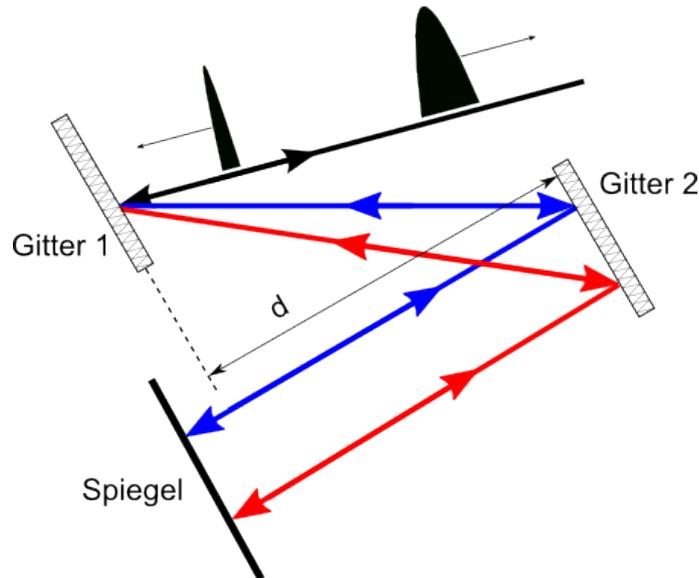


Abbildung 3.2: In dem Gitterkompressor (links) wird der Puls an dem ersten Gitter wellenlängenabhängig aufgefächert auf das zweite Gitter reflektiert, an dem die Lichtstrahlen unterschiedlicher Wellenlängen wieder parallelisiert werden und auf einen Spiegel mit hoher Reflektivität geschickt werden. Nach der Reflektion von dem Spiegel laufen die Strahlen wieder zurück über die beiden Gitter, wobei sie dann wieder zusammengeführt werden. Durch eine sehr kleine Verkippung des Spiegels wird der Strahl dabei an dem Einkoppelspiegel vorbei geleitet.

3.1.3 Aufbau des Puls-Oktett-Erzeugers

In Abbildung 3.4 ist schematisch der Aufbau des Puls-Oktett-Erzeugers gezeigt. Dieser erzeugt aus einem einfallenden *s*-polarisierten ² Laserpuls einen Pulszug aus bis zu 8 einzelnen Pulsen. Dabei sollen sowohl die Intensität der einzelnen Pulse als auch die Abstände zwischen den einzelnen Pulsen identisch und einstellbar sein. Um das zu erreichen, muss der Ausgangspuls mehrfach aufgeteilt und wieder zusammengeführt werden. Dies geschieht, in dem der Laserstrahl nacheinander drei Interferometer durchläuft. Mit der Hilfe eines 50:50 Strahlteilers (Thorlabs BS017, nichtpolarisierend) werden zwei Laserstrahlen erzeugt und über zwei getrennte optische Wege gelenkt. Dabei wird ein Weg konstant gehalten, während der andere Weg mit Hilfe einer verstellbaren Plattform veränderbar ist. Damit können die beiden Strahlen mit einem zeitlichen Versatz mit Hilfe der Spiegel auf dem nächsten Strahlteiler wieder zusammengeführt werden. Nach dem Durchlaufen des zweiten Strahlteilers wird wieder der einer der Pulse aufgeteilt und durchläuft zwei sich in der

²Bei dem Aufbau wurden die E-03 Spiegel von Thorlabs verwendet, die minimal bessere Reflektivität für das *s*-polarisiertes Laserlicht haben

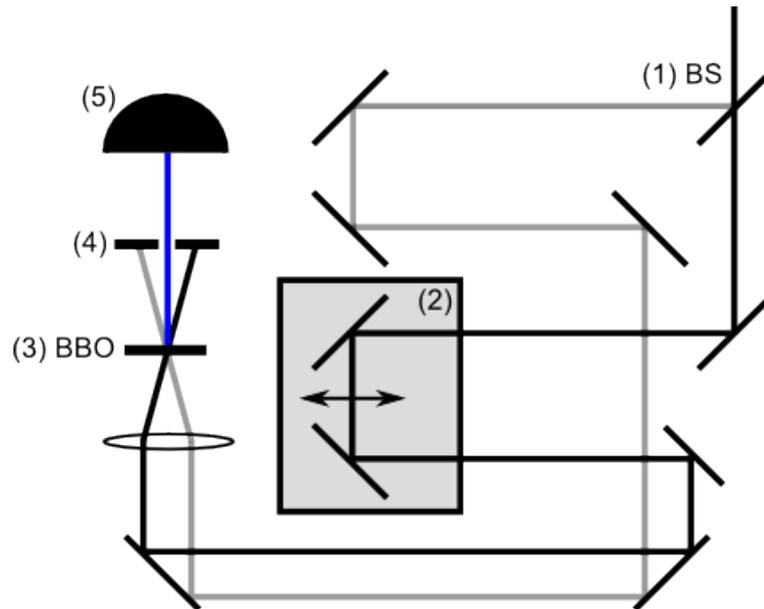


Abbildung 3.3: In dem Autokorrelator wird der Laserstrahl (800 nm) in dem Strahlteiler (1) aufgeteilt und auf zwei unterschiedliche optische Wege geschickt. Die Länge des einen Weges wird dabei festgehalten, während die andere mit Hilfe einer beweglichen Plattform (2) in der Länge variierbar ist. Die beiden Teilstrahlen werden dann in einem BBO-Kristall (3) zusammengeführt. Durch die nichtlinearen Prozesse in dem Kristall kommt es zur Emission des 400 nm-Laserlichts, was der verdoppelten Frequenz des eingestrahnten Laserlichts von 800 nm entspricht. Mit Hilfe einer Blende (4) werden die Laserstrahlen der Wellenlänge 800 nm abgeschnitten. Hinter der Blende wird das Laserlicht der Wellenlänge 400 nm mit Hilfe einer schnellen Diode (5) detektiert.

Länge unterscheidene optische Wege. Zusätzlich läuft aber in diesem Fall noch jeweils ein zweiter Puls hinterher. Die beiden Pulspaare durchlaufen nach dem Absolvieren der unterschiedlichen optischen Wege den dritten Strahlteiler, wobei dahinter dann zwei Puls-Quartette auf die nächsten beiden optischen Wege geschickt werden. Um aus den beiden Puls-Quartette ein Oktett zu machen, werden diese auf dem letzten Strahlteiler (Thorlabs BS202, polarisierend) zusammengeführt. Die Besonderheit des Strahlteilers ist, dass dieser die p-polarisierten Anteile des Lichts durchlässt und den s-polarisierten Anteil reflektiert. Die Polarisation der beiden Puls-Quartette wird so eingestellt, dass diese als ein Puls-Oktett herauskommen: Dabei ist mit der verstellbaren Plattform in der letzten optischen Bahn eingestellt worden, dass die Pulse abwechselnd p- und s-polarisiert den letzten Strahlteiler verlassen, wobei in einem der beiden Wege ein $\lambda/2$ Plättchen die Polarisation dieses Quartetts von s zu p-Polarisation gedreht hat.

3 Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse

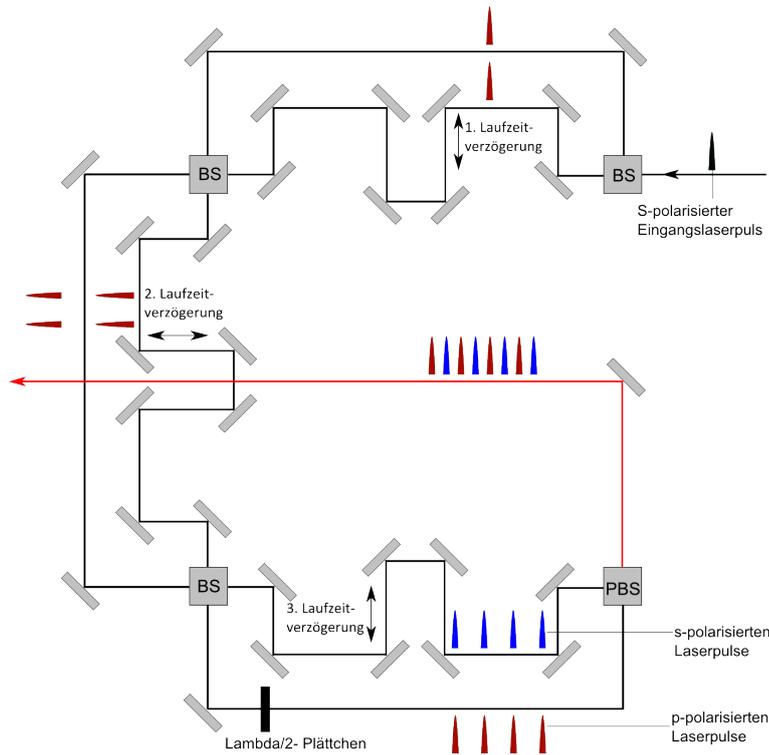


Abbildung 3.4: Der Eingangsstrahl durchläuft hintereinander drei Interferometer, die aus einem Strahlteiler (BS), einem festen und einer durch den Einbau einer Verzögerungsstrecke variierbaren optischen Bahn bestehen. Nach dem Durchlaufen von jedem Interferometer verdoppelt sich die Anzahl der hintereinander laufenden Laserpulse. Nach dem Durchlaufen des dritten Interferometers laufen die Strahlen in einem polarisierenden Strahlteiler (PBS) zusammen. Da sie vorher parallel bzw. senkrecht polarisiert werden, werden diese in dem PBS transmittiert bzw. reflektiert. Dadurch kommen die Laserpulse hinter PBS als ein Puls-Oktett raus, wobei die Polarisation der Pulse alterniert.

3.1.4 Kreuzkorrelation

Um sowohl die Pulsbreite als auch die Abstände in dem Puls-Oktett zu messen, wurde die Kreuzkorrelation benutzt. Dies erfolgt ähnlich der Autokorrelation. Der Unterschied hier besteht nur darin, dass die 8 Pulse nacheinander mit dem unverbreiterten Abfragepuls im BBO überlagert wurden. In der Abbildung 3.5 ist die angenommene Kreuzkorrelation des Puls-Oktetts zusammen mit einem Gauß-Fit dargestellt. Da in diesem Fall die Pulslängen der einzelnen Oktett-Pulse in etwa zwei Größenordnungen über dem von dem Abfragepuls liegen, entspricht die gemessene Pulsbreite der Kreuzkorrelation σ_{KK} den tatsächlichen Breiten der Oktett-Pulse σ_{Puls} . Die gemessene Breite der Pulse im Oktett beträgt $\sigma_{Pulse} = 3,1 \pm 0,2$ ps (das entspricht FWHM von $7,4 \pm 0,4$ ps). Der mittlere Abstand zwischen den Pulsen in

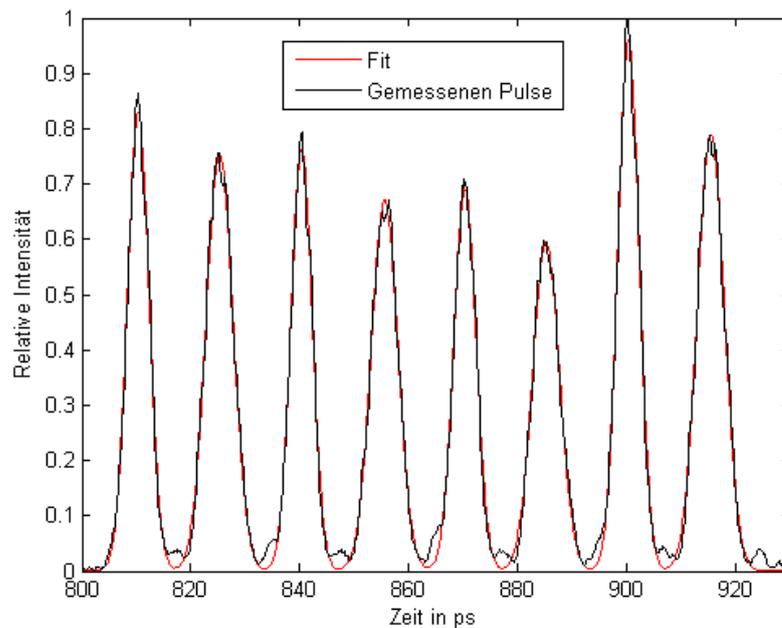


Abbildung 3.5: Die gemessene Kreuzkorrelation des Anregungszuges normiert auf sein Maximum. Mit rot ist der Gaußfit der acht Pulse eingezeichnet.

dem Oktett beträgt $15,2 \pm 0,2$ ps.

3.2 Auswertung einer Pump-Probe-Messung

Für die Demonstration der Auswertung wurde eine LSMO/STO Probe ausgewählt. Diese Probe besteht aus einem $500\text{ }\mu\text{m}$ -dicken STO-Substrat, auf dem eine 15 nm Schicht LSMO aufgewachsen wurde. Die Anregungsfluenz betrug in diesem Beispiel 30 mJ/cm^2 . Mit dem Aufbau, der in Abbildung 3.1 gezeigt wurde, wird die Änderung der Reflektivität der untersuchten Probe gemessen. Wird die Reflektivität vor dem Anregen mit dem Pump-Puls gemessen, so spricht man von dem ungepumpten Zustand der Probe R_0 , während man nach der Anregung man vom gepumpten Zustand R spricht. Die beiden Reflektivitäten werden kurz hintereinander gemessen, wobei ein schnell rotierendes chopper-Rad den Strahl für einige Zeit blockt und kurz darauf wieder durchlässt. Dadurch kann das Signal-zu-Rauschenverhältnis verbessert werden, da die Schwankung der Laserintensität herausgemittelt wird. In der Abbildung 3.6 sind die beiden gemessenen Reflektivitäten dargestellt. Während die Reflektivität der ungepumpten Probe über die Zeit relativ konstant bleibt³, verändert sich der Sachverhalt bei der gepumpten Probe gravierend.

³Die kleinen Veränderungen sind durch das sehr geringe Wandern des Pump-Strahls auf der Probe zu erklären.

3 Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse

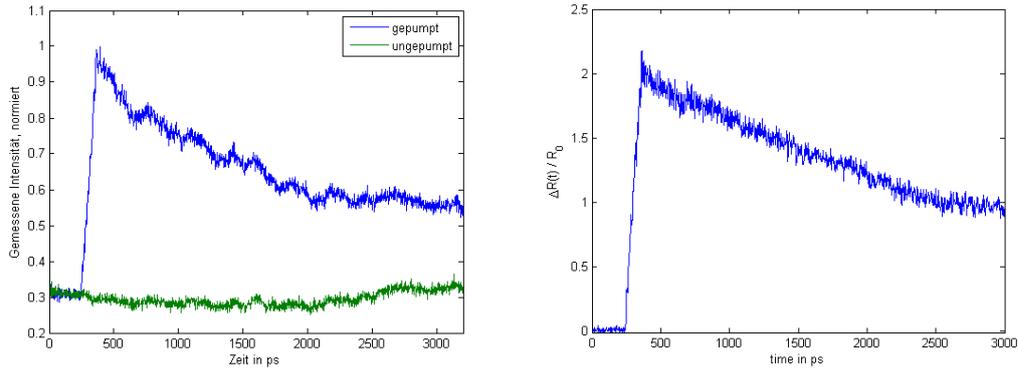


Abbildung 3.6: Links: Die gemessene normierte Reflektivität des Abfragepulses mit (blau) und ohne (grün) Anregepuls vorher. Rechts: Die ausgerechnete Reflektivitätsänderung über die Zeit.

Während der ersten knapp 120 bis 130 ps kommt es zu einem steilen Anstieg in der Reflektivität. Das ist genau die Zeit, wo die 8 Laserpulse des Anregungszuges die LSMO-Schicht nach und nach erreichen. Der stufenweise Anstieg auf der steilen Flanke ist zu erkennen. Für die weitere Auswertung ist jedoch die Reflektivitätsänderung berechnet nach Gleichung 3.1 von Interesse. Diese ist in der Abbildung 3.6 rechts dargestellt.

$$\Delta R/R_0 = \frac{R - R_0}{R_0} \quad (3.1)$$

$\Delta R/R_0$ zeigt dabei einen exponentiellen Abfall. Man erkennt aber bereits jetzt, dass auf der Kurve kein statistisches Rauschen, sondern auch eine weitere periodische Modulation sitzt. Um an diese Oszillationen ranzukommen, ist eine kleine Rechnung notwendig. Für die Intensität des von der ungepumpten Probe reflektierten Probe-Lichts gilt die Beziehung:

$$I_u = |r_0|^2 \cdot E_{in}^2 \quad (3.2)$$

Dabei sind I_u die Intensität des reflektierten Abfragepulses von der unangeregten Probe und E_{in} ist das auf die Probe einfallende Licht. r_0 ist der komplexe Reflexionsfaktor der Probe. Wird die Probe nach der Anregung von dem Abfragepuls bestrahlt, so kommen weitere Faktoren, die zur Reflektion beitragen, hinzu:

$$I_p = |r_0 + \Delta r_e + \Delta r_{ph}|^2 \cdot E_{in}^2 \quad (3.3)$$

Dabei ist Δr_e der Reflexionsfaktor, der durch die Wärme der Probe und durch die höhere Energie der Elektronen dazu kommt. Δr_{ph} ist der durch die in diesem Fall

im STO propagierenden Schallwellen erhaltene Faktor. Durch die Kombination der Gleichungen 3.2 und 3.3 mit der Gleichung 3.1 folgt:

$$S = \frac{I_p - I_u}{I_u} = \frac{|r_0 + \Delta r_e + \Delta r_{ph}|^2 \cdot E_{in}^2 - |r_0|^2 \cdot E_{in}^2}{|r_0|^2 \cdot E_{in}^2} . \quad (3.4)$$

Für $\Delta r_e \gg \Delta r_{ph}$ folgt:

$$S \approx \frac{|r_0 + \Delta r_e|^2 + 2 \cdot |r_0 + \Delta r_e| |\Delta r_{ph}| \cos(\omega_{ph}\tau) - |r_0|^2}{|r_0|^2} , \quad (3.5)$$

wobei $\omega_{ph}\tau$ die Phasenverschiebung zwischen dem von der Probe und von den Phononen reflektierten Anteilen ist. Jetzt kann man die Formel 3.5 in einen Teil der hohen Frequenz S_H (z. B. mit der Reflektion an den schnellen Schallwellen) und einen langsameren Teil S_L (z.B. die Wärmediffusion durch Elektronen) zerlegen:

$$S_H = 2 \cdot \frac{|r_0 + \Delta r_e|}{|r_0|} \cdot \frac{|\Delta r_{ph}| \cos(\omega_{ph}\tau)}{|r_0|} \quad (3.6)$$

$$S_L = \frac{|r_0 + \Delta r_e|^2 - |r_0|^2}{|r_0|^2} \Rightarrow S_L + 1 = \frac{|r_0 + \Delta r_e|^2}{|r_0|^2} \quad (3.7)$$

Durch die Division des S_H -Terms durch die Wurzel aus der Summe $S_L + 1$ kommt man auf den Term:

$$\frac{S_H}{\sqrt{S_L + 1}} = 2 \cdot \frac{|\Delta r_{ph}| \cos(\omega_{ph}\tau)}{|r_0|} . \quad (3.8)$$

Dieser Term enthält keine elektronischen Anteil mehr, womit nur die gesuchten Oszillation als Rest bleiben. In der Abbildung 3.7 ist das Signal nach Ausführen des gerade beschriebenen Verfahrens dargestellt. Die Periodendauer dieser Oszillation wurde mit 15,2 ps bestimmt, was dem Abstand zwischen den Laserpulsen in dem Anregungszug entspricht. Damit wurde in dem STO-Substrat eine Schallwelle mit exakt der gewünschten Frequenz (bzw. Wellenvektor) erzeugt.

Die in der Abbildung 3.7 gezeigte Oszillationen weisen eine leichte Abschwächung mit der Zeit auf. Die Abklingzeit kann nicht direkt abgelesen werden, aber man kann an diese auf kleinen Umweg kommen. Über die Oszillationen wird ein 250 ps breites Fenster gelegt. Die Daten, die sich in dem Fenster befinden, werden nun in den Frequenzraum Fourier transformiert (die anderen Daten werden 0 gesetzt). Danach wird das Fenster um ein fünftel der Fensterbreite nach rechts verschoben, und die sich nun darin befindlichen Daten werden wiederum Fourier transformiert. In der

3 Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse

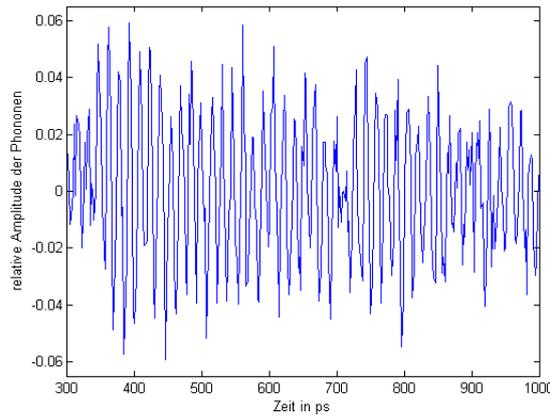


Abbildung 3.7: Die gemessenen Oszillationen in dem STO-Substrat, nach der Anregung mit einem Zug aus 8 Laserpulsen. Die Periodendauer beträgt 15,2 ps

Abbildung 3.8 sind unter anderem die ersten drei Ausschnitte der Messung dargestellt (die Ausschnitte sind mit den Zahlen 1 bis 3 nummeriert). Die dazugehörigen Fourier-Transformationen sind in der Abbildung 3.9 zu sehen. Bereits im dritten Fenster erkennt man, wie bei der Frequenz von 0,066 THz (was der Periodendauer $T = 15,2$ ps entspricht) langsam ein Peak ansteigt. Fährt man nun mit dem Fenster auf das Maximum der Oszillation (hier ist es das Fenster Nummer 8), so erhält man bei der Frequenz der Phononen den höchsten Peak. Schiebt man das Fenster sukzessive weiter nach rechts, so reduziert sich die Phononenfrequenz langsam, bis sie komplett verschwindet (Das Ergebnis der Fourier-Transformation in den Fenstern 13, 20 und 40 in der Abbildung 3.9).

Der ausgerechneten Fläche unter dem Peak bei 0,066 THz wird nun die Zeit, wo die Mitte des Fensters liegt, zugeordnet. Die Abbildung 3.10 zeigt integrierte Fläche als Funktion der Zeit. Die Messreihe zeigt einen exponentiellen Abfall, was auch durch den exponentiellen Fit nochmal verdeutlicht wird. Die Abklingzeit τ der Phononen beträgt bei einer Anregung mit ~ 30 mJ/cm² $\tau = 934,7$ ps. Dies entspricht einer Abklingrate der Phononen von 1,07 GHz bei Raumtemperatur.

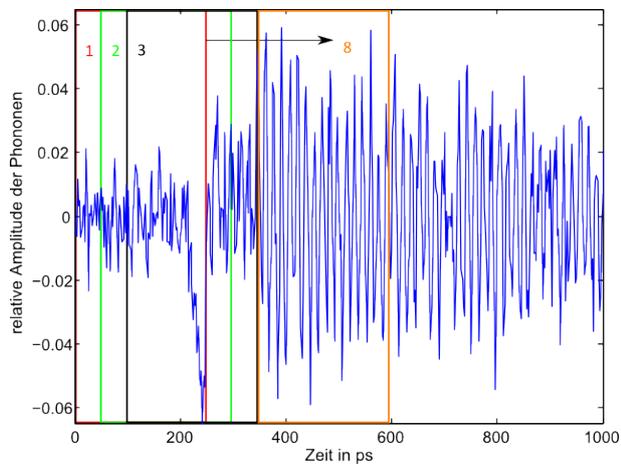


Abbildung 3.8: Das oszillierende Signal wird stückweise Fourier transformiert. Die gesamte Kurve wird sukzessive mit einem 250 ps langen Fenster abgetastet, wobei zwischen den Fenstern ein Überlapp von 80% besteht.

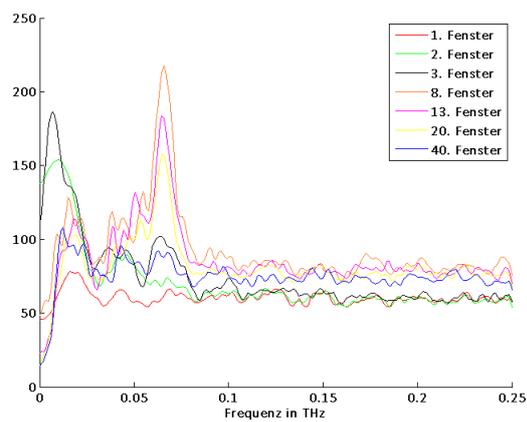


Abbildung 3.9: Das oszillierende Signal wird stückweise (oben) Fourier transformiert. Hier sind nun die entsprechenden Fourier-Transformationen dargestellt. Nach dem Erreichen des Anregungszuges kann man das Signal als Maximum in der Frequenzdomäne erkennen.

3 Aufbau der Versuche und Auswertung der Messergebnisse

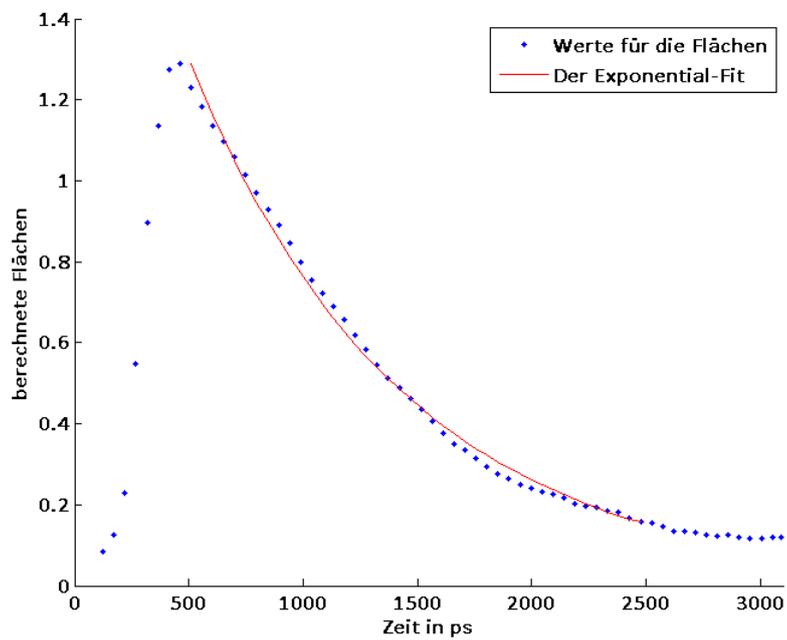


Abbildung 3.10: Die integrierten Flächen unter dem Peak bei 0,066 THz sind als Funktion der Zeit aufgetragen (blaue Diamante). Die Reihe zeigt einen exponentiellen Abfall. Der exponentielle Fit (rot) gib für diese Messung einen Wert für die Abklingzeit $\tau = 934,7$ ps

4 Ergebnisse und Diskussion

Im Folgendem werden die Ergebnisse der Messungen an verschiedenen Proben präsentiert, die mit dem neuen Puls-Oktett-Erzeuger gemessen wurden. Hiermit wurde der Pulszug aus 8 Laserpulsen mit einem Abstand von 15,2 ps erzeugt (siehe Kapitel 3.1.4), der zur Anregung der Probe verwendet wurde. Die Energiedichte (Fluenz) des Anregungszugs wurde im Bereich von 5 mJ/cm^2 bis 50 mJ/cm^2 variiert. Dabei liefern die Messungen mit der integralen Fluenz von 5 mJ/cm^2 noch auswertbares Signal mit einem guten Signal-Rauschen-Verhältnis, wohingegen die Energiedichten von über 50 mJ/cm^2 zu der kontinuierlichen Zerstörung des Transducers führte. Durch die gute Anpassung der Schallimpedanzen der Transducer SRO bzw LSMO und des Substrats STO bzw DSO werden die Reflektionen an der Grenzfläche stark reduziert und ein großer Teil der Schallwellenamplitude wird in das Substrat eingekoppelt [26, 34]. Das führt zur Erzeugung eines bipolaren Wellenzugs in dem jeweiligen Substrat. Die Streuung des Lichts an diesem Wellenzug wird breitbandig mit Weißlicht und zeitaufgelöst aufgezeichnet (siehe Erklärung in Abschnitt??). Die Dynamik im Substrat kann mit dem Model der linearen schwingenden Kette (LCM¹) simuliert werden. Das Model berücksichtigt auch die Anharmonizität der Potentiale zwischen den Atomen, wobei diese vor allem bei hohen Anregungsfluenzen eine immer wichtigere Rolle spielen[26, 34]. Bei einer Anregung der metallischen Filme mit einem Laserpulszug in dem die Pulse einen Abstand von ΔT haben, wird eine im Substrat propagierende Welle mit der fundamentalen Frequenz $\nu = 1/\Delta T$ erzeugt.

4.1 Verhältnis von Pump/Probe-Spot

Während der Messungen und deren Auswertung hat sich herausgestellt, dass der Einfluss des Verhältnisses von Pumpstrahldurchmesser zu Probstrahldurchmesser einen großen Einfluss auf die erlatenen Ergebnisse hat. Deshalb wurde dies zusätzlich untersucht. Die Abbildung 4.1 sind schematisch zwei Fälle dargestellt: Auf der linken Seite ist die Spotfläche des Pumpstrahls etwa neunmal so groß wie die des Probstrahls. Dies hat zur Folge, dass der Probespot nur den Bereich abtastet, wo die

¹Das Akronym für das englische *linear – chain – model*

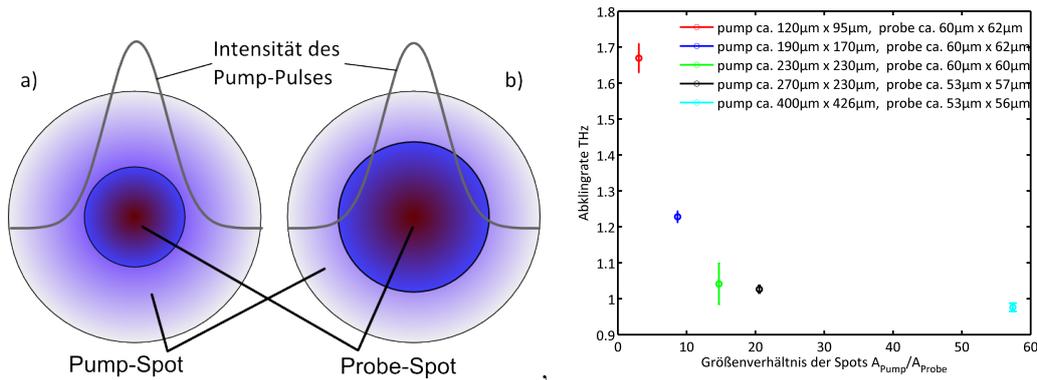


Abbildung 4.1: Links: Das Verhältnis zwischen den Pump- Probespots ist schematisch dargestellt. Sind die Größen der Spots richtig gewählt (a) so probt man eine gleichmäßig angeregte Fläche. Im Vergleich dazu ist die zu große Probe-Fläche dafür verantwortlich, dass die gemessene Abklingraten nicht genau sind (b). Rechts: Die Abklingrate der Oszillationen ist über das Flächenverhältnis der Pump- und Probespots dargestellt. Erst ab einem Verhältnis von über 15 verändert sich die Abklingrate nicht mehr so stark, da ab dort die geprobte Fläche homogen angeregt ist.

höchste Intensität des Pumpstrahls den Transducer anregt. Die mittlere Intensität des detektierten Probestrahls ist somit sehr homogen und es werden keine Intensitätsunterschiede herausgemittelt. Das Gegenteil passiert wenn man den Pumpstrahl zu klein wählt, wobei die Fluenz konstant gehalten wird. Die von Probestrahl detektierte Fläche ist nicht mehr gleichmäßig angeregt und somit ist die detektierte Intensität des Probestrahls eine Mittelung über verschiedene Anregefluenzen, was die Auswertung verfälscht. Dies führt dazu, dass mehr Licht destruktiv interferiert und somit die Abklingrate anscheinend nach oben geht. Ist das Verhältnis der Pumpfläche zu Probeffläche größer als 20, so ist dieser Effekt bereits nicht mehr so gravierend wie in Abbildung 4.1 in dem rechten Bild gezeigt ist. Für die weiteren Messungen wurde stets drauf geachtet, dass das Verhältnis der Spotflächen größer als 40 ist.

4.2 Auswertung der Messergebnisse LSMO37-Probe

Die Messungen wurden an einer 37 nm-dicken $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ Schicht durchgeführt. Im weiteren Verlauf wird diese Probe mit Abkürzung LSMO37 bezeichnet. Diese Schicht wurde mit der Laserverdampfungsverfahren (Pulsed Laser Deposition, PLD) auf ein (100)-STO-Einkristall-Substrat aufgewachsen (CrysTec, Berlin, Fehlschnittwinkel $0,1^\circ$ [35]) und die Anregungsfluenzen betragen zwischen $5 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ und $50 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Bei der Anregung handelt es sich um die aufintegrierte Fluenz, das be-

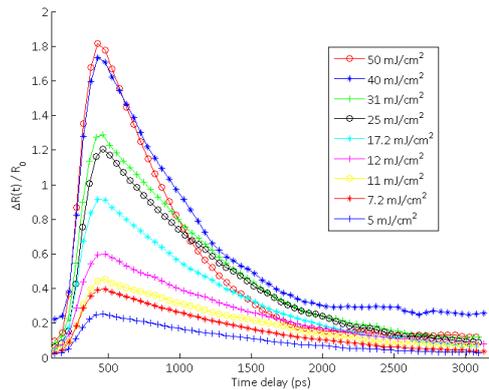


Abbildung 4.2: Die Reflektivitätsänderung ist proportional zu der Anregungsfluenz des Laserpulszuges.

deutet, sie verteilt sich auf die 8 Anregungspulse. Somit beträgt die Fluenz der Einzelpulse gerade ein Achtel der Anregungsfluenz. Die Pulsbreite der Laserpulse in dem Anregungszug beträgt 7,5 ps mit einem Abstand zwischen den Pulsen von 15,2 ps wie schon im Abschnitt 3.1.4 in Abbildung 3.5 gezeigt. Die Messung der Laserleistung erfolgte zwischen dem Teleskop und der letzten Sammellinse vor der Probe mit einer kalibrierten Diode.

Die fluenzabhängigen Messungen mit einem einzelnen Anregungspuls haben gezeigt, dass es in dem Substrat die Fronten der Schallwelle für die höheren Fluenzen aufgrund der ausgeprägten Anharmonizität in STO auseinander laufen, was zu einer Schwebung führt, die auf dem Messsignal liegt. Dies kann man vorstellen, in dem der vordere Teil der Welle eine Kompression verursacht und somit die Schallgeschwindigkeit erhöht wird. Der hintere tensile Teil der Welle wird im Gegensatz dazu etwas langsamer, da in dem gedehnten Bereich die Schallgeschwindigkeit reduziert ist. Zusätzlich führt das Aufsteilen der Schallwellenflanken aufgrund der Anharmonizität zu einer Vergrößerung der Wellenlänge (oder Verkleinerung des Wellenvektors). In Einzelpulsexperimenten wird die gesamte Energie in einem Puls übertragen, wobei die Anharmonizität des Materials deutlich zum Tragen kommt. Dadurch kommt es zur frequenzunabhängigen kontinuierlichen Phasenverschiebung und somit zu der schon vorher erwähnten Schwebung, die in dem Messsignal enthalten ist.

4.2.1 Auswertung der zeitaufgelösten breitbandigen Brillouin-Streuung

In der Abbildung 4.2 sind die gemessenen fluenzabhängigen Reflektivitätsänderungen der Probe LSMO37 bei der Wellenlänge $\lambda = 560$ nm dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Reflektivitätsänderung proportional zu Anregungsfluenz ist. Nach dem Subtrahieren des tieffrequenten elektronischen und langsam variierenden thermischen Untergrunds erhält man die wellenlängenabhängige hochfrequente

4 Ergebnisse und Diskussion

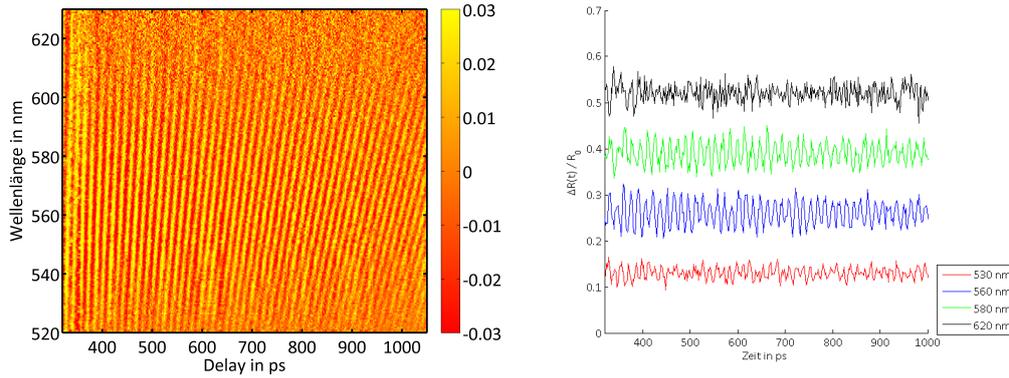


Abbildung 4.3: Das Messergebnis der LSMO/STO-Probe bei Raumtemperatur nach dem Anregen mit dem Laserpulszug mit der Fluenz von $\sim 30 \text{ mJ/cm}^2$. Links: Die breitbandige zeitaufgelöste Brillouin Streuung nach dem Abziehen des tieffrequenten elektronischen Untergrunds. Rechts: Die bereinigten $\Delta R/R_0$ -Oszillationen für unterschiedliche Probe-Wellenlängen.

Reflektivitätsänderung, die charakteristisch für eine BZBS-Messung² nach der Anregung mit einem Laserpulszug der Fluenz 31 mJ/cm^2 ist. In der Abbildung 4.3 sind links die Oszillationen der Reflektivitätsänderung für die Probe-Wellenlängen zwischen 520 nm bis 630 nm in dem Zeitbereich weit nach der elektronischen Antwort und bis zu 1 ns deutlich erkennbar. Für die unterschiedlichen Wellenlängen des Probe-Lichts haben die Oszillationen der Reflektivitätsänderung unterschiedliche Amplitude, was dafür spricht, dass nur Gitterschwingungen eines bestimmten Wellenvektors k hauptsächlich angeregt werden. Der Wellenvektor lässt sich gemäß

$$k = \frac{4\pi}{\lambda} n(\lambda) \cos(\beta) = \frac{2v}{\lambda} \cdot \sqrt{n(\lambda)^2 - \sin^2(\theta_{ext})} \quad (4.1)$$

berechnen. Dabei ist $n(\lambda)$ der wellenlängenabhängige Brechungsindex von STO [36] und λ die Wellenlänge des Probe-Lichts. θ_{ext} ist der Einfallswinkel des Probe-Lichts auf die untersuchte Probe relativ zum Lot der Einfallsebene. Nach der Konvertierung der Wellängen des Probe-Lichts zu Wellenvektoren der Streuphononen kann man bestimmen, bei welchem Wellenvektor die Streuamplitude am größten ist. In Abbildung 4.4 kann man erkennen, wie die Amplitude der unterschiedlichen Phonon-Wellenvektoren mit der Zeit abfällt. Die größte gemessene Amplitude wird bei dem Wellenvektor von etwa $52 \mu\text{m}^{-1}$ und der spektralen Breite $\sigma = 10,7 \mu\text{m}^{-1}$ beobachtet. Dies entspricht einer Wellenlänge des Probe-Lichts von 560 nm . In Abbildung 4.4 wird in dem rechten Bild die entsprechende Simulation des Experiments gezeigt,

²Akronym für die breitbandige zeitaufglöste B Brillouin-Streuung

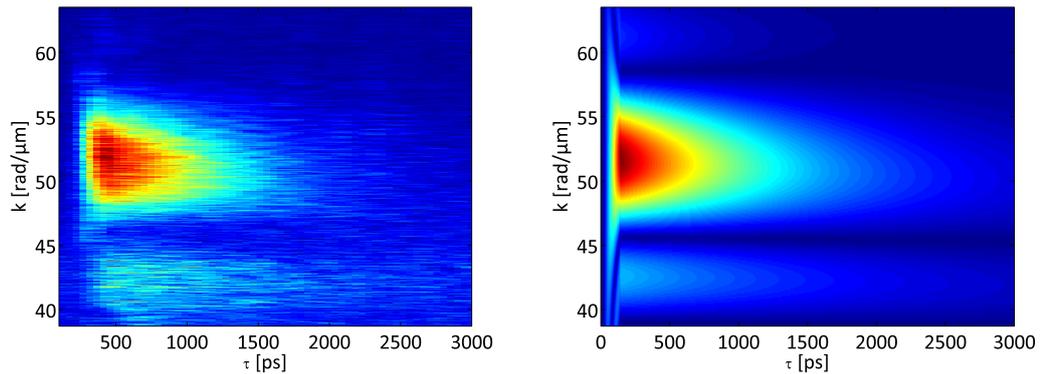


Abbildung 4.4: Links: Die gemessenen Amplituden für die Phononen mit den Wellenvektoren im Bereich von 38 bis $63 \mu\text{m}^{-1}$ in Abhängigkeit von der Zeit. Die BZBS-Messung wurde nach einer Anregung mit dem Laserpulszug mit der Fluenz von $31 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ durchgeführt. Rechts: Die Simulation der Messung mit Hilfe des LCM unter Annahme einer Anregung von $31 \text{ mJ}/\text{cm}^2$. Der Pulsabstand bzw. die Pulsbreite wurden auf $15,2 \text{ ps}$ bzw. $7,5 \text{ ps}$ gesetzt.

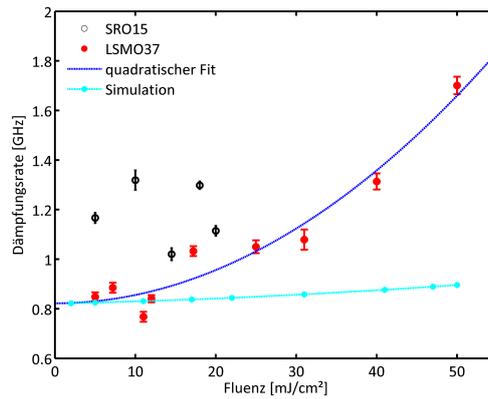
wobei wieder das Modell der linearen Kette verwendet wurde. Die Messung und die Simulation stimmen gut überein.

4.2.2 Fluenzabhängige Messungen

Am Anfang dieses Kapitels wurde schon gezeigt, dass die Reflektivitätsänderung proportional zu der Anregungsfluenz des Laserpulszuges ist (siehe Abbildung 4.2). Bei hohen Anregungsfluenzen über $30 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ ist jedoch der besonders starker Abfall der Reflektivitätsänderung beobachtbar. Die wahrscheinliche Ursache dafür ist die Anharmonizität, die wie schon oben erwähnt bei hohen Fluenzen nicht mehr vernachlässigt werden kann. In der Abbildung 4.5 sind die bei Raumtemperatur gemessenen Dämpfungsrate in LSMO37 Probe als Funktion der Anregungsfluenz dargestellt. Die Messdaten zeigen für die Fluenzen unter $12 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ einen schwachen linearen Anstieg der Dämpfungsrate mit der Fluenz. Für höhere Fluenzen steigt die Dämpfungsrate proportional zum Quadrat der Fluenz an. Der quadratische (blau) Fits sind an die Experimentale Daten von LSMO37 Probe hinzugefügt. Der Fit passt gut zu den Messdaten und liefert den extrapolierten Wert für Dämpfungsrate $\Gamma(\text{Fluenz} \rightarrow 0) = 0,824 \text{ GHz}$. Dieser Wert stimmt auch mit den durch die Simulation gewonnenen Werten überein. Die Messergebnisse stimmen mit den simulierten Werten nur für sehr kleine Fluenzen und weichen bereits bei einer Fluenz von $20 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ deutlich ab.

4 Ergebnisse und Diskussion

Abbildung 4.5: Die Abklingrate wurde fluenzabhängig bei Raumtemperatur für LSMO37 (rote gefüllte Kreise) und SRO15 (schwarze gefüllte Kreise) bestimmt. Zusätzlich wird quadratische Fit an die experimentellen Daten von LSMO37 sowie die Simulation der Messung sind hinzugefügt.



SRO/STO Probe (SRO15)

Als Vergleichsprobe wurde ein STO-Substrat mit einer 15 nm dicken Strontiumruthenat-Schicht (SRO15) als Transducer untersucht. Die fluenzabhängigen Messungen wurden sowohl bei der Raumtemperatur als auch an dem AFD Phasenübergang von STO bei $T = 105$ K durchgeführt. Die Messungen erfolgten bei Fluenzen von 5 mJ/cm^2 bis 20 mJ/cm^2 . In diesem Bereich liefern die Werte keinen eindeutigen Trend für die Dämpfungsraten und liegen alle im Bereich der Dämpfungsraten $\Gamma \sim 1,2$ GHz. Die fluenzabhängigen Messungen für die SRO15 Probe sind in Abbildung 4.5 den Messwerten der LSMO37 Probe hinzugefügt.

4.2.3 Temperaturabhängige Messungen

In diesem Abschnitt werden nun die temperaturabhängigen Messungen diskutiert. Alle bisher gezeigten Messungen wurden bei Raumtemperatur durchgeführt, es ist aber von Interesse, wie sich zum Beispiel die Dämpfungsraten als Funktion der Temperatur verändert. Dafür wurden die Proben in einen closed-cycle Kryostaten eingebaut und die BZBS-Messungen wurden für die Temperaturen zwischen 20 K und 300 K durchgeführt. Um die Vibrationen des closed-cycle Kryostaten zu reduzieren, wird der Expander entkoppelt von der Probe und dem Lasertisch aufgebaut. Das Vereisen der Probe wird durch ein Isolationsvakuum verhindert. Als Fenster werden optische Saphirfenster verwendet, die eine hohe Transparenz für den untersuchten Wellenlängenbereich aufweisen. Die Messungen wurden im Fall der SRO-Schicht mit der Anregungsfluenz von 20 mJ/cm^2 und im Fall der LSMO-Schicht 17 mJ/cm^2 bis 19 mJ/cm^2 durchgeführt. Für die Diskussion der Daten wurde angenommen, dass die Laseranregung eine relative Volumenänderung des Transducers hervorruft und diese temperaturunabhängig ist. Somit ist in erster Näherung die Amplitude der Schallwelle ebenfalls temperaturunabhängig und die Daten bei unterschiedlichen

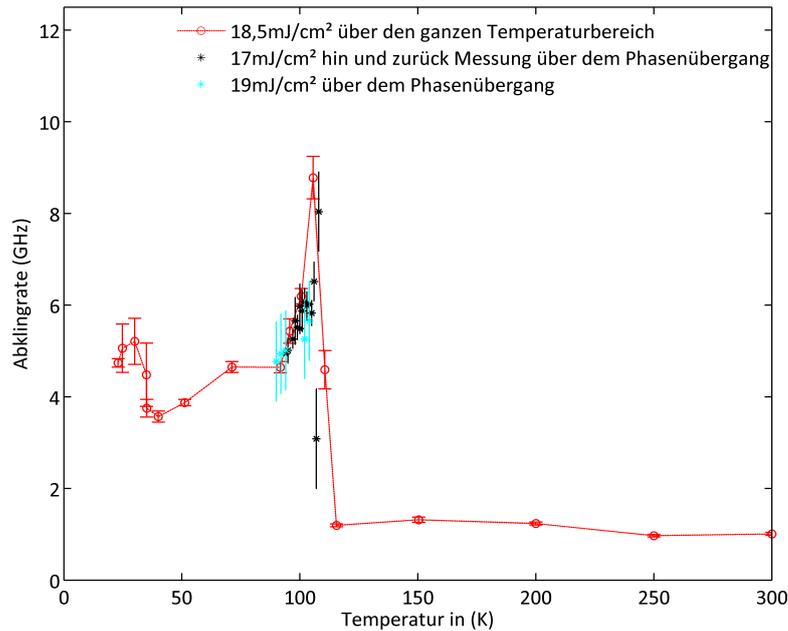


Abbildung 4.6: Die temperaturabhängigen Messungen der Phononendämpfungsrate in LSMO/STO-Probe. Die Anregungsfluenz betrug (17/8) bis (19/8) mJ/cm^2 . An dem Phasenübergang kommt es zu einem Anstieg der Abklingrate um Faktor 5.

Starttemperaturen können verglichen werden. Natürlich wird dabei die temperaturabhängige Veränderung der Metallizität der LSMO/SRO Schichten vernachlässigt.

Sowohl die Anregung als auch die Abfrage der Probe fand von der Rückseite statt. Damit wurde es verhindert, dass das Abfrage-Licht zweimal den Transducer passiert und dabei absorbiert wird. Die Reflektion von der Rückseite der Probe wurde geblockt, und somit das Untergrundrauschen nochmal deutlich gesenkt.

4.2.4 Temperaturabhängigkeit der Dämpfungsrate

In der Abbildung 4.6 sind die Ergebnisse der temperaturabhängigen Messungen an der LSMO37-Probe in Form der Dämpfungsrate der Phononen aufgetragen. Die erste Messung erfolgte über den ganzen Temperaturbereich, um den AFD Phasenübergang des STO Substrates zu lokalisieren (gezeigt als rote nicht ausgefüllte Kreise). Die weiteren Messungen dienten dem detaillierten Bestimmen der Dämpfungsrate am Phasenübergang bei 105 K (cyan- und schwarze Sterne) sowie bei etwa 35 K (blaue unausgefüllte Kreise). Die Abklingrate liegt im Bereich von mehrerer GHz und zeigt ein Maximum bei 105 K, genau der Phasenübergangstemperatur von STO. Im Bereich oberhalb 105 K steigt bzw. fällt die Dämpfungsrate innerhalb weniger

4 Ergebnisse und Diskussion

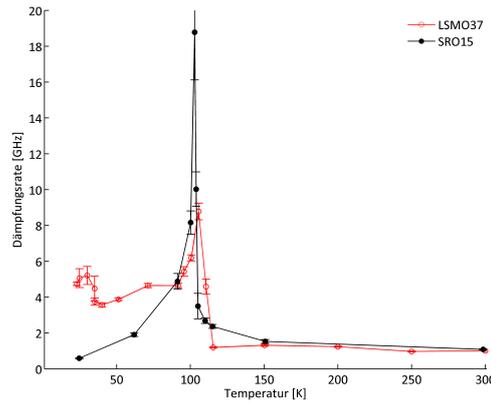


Abbildung 4.7: Die temperaturabhängigen Messungen der Phononendämpfraten in Proben LSMO37 und SRO15. Die Anregungsfluenz betrug 17-19 mJ/cm² und 20 mJ/cm².

Kelvin um fast eine Größenordnung ab. Unterhalb 105 K fällt die Dämpfungsrates langsamer auf ungefähr die Hälfte des Maximums ab. Bei tieferen Temperaturen kann man ein zweites, kleineres Maximum bei ungefähr 35 K erkennen, bei dem die Dämpfungsrates nochmals leicht ansteigt. Dies kann unter Umständen an einem zusätzlichen strukturellen Phasenübergang von STO liegen, wo sich die orthorhombische Symetrie der Einheitszelle in eine rhombohedrale verändert [10].

In der Abbildung 4.7 werden die temperaturabhängigen Dämpfungsrates in SRO15 und LSMO37 Proben miteinander verglichen. Für den Temperaturbereich über dem Phasenübergang sind die Dämpfungsrates für beide Proben identisch. Etwas anders verhält es sich an dem Phasenübergang. Die maximale Dämpfungsrates $\Gamma_{max,LSMO}$ für LSMO37 Probe liegt bei der Temperatur von 106 K und beträgt knapp 9 GHz, während der maximale Wert für SRO bei knapp 19 GHz liegt, und der Peak sich bei etwa 103 K befindet. Für LSMO Probe ist schwer zu sagen, ob die höchste gemessene Dämpfungsrates wirklich den Maximum erreicht. Auf der Seite unterhalb des Phasenübergangs kann man noch eine höhere Dämpfungsrates erwarten, wenn die Temperaturabtastung feiner eingestellt werden kann. Die Verschiebung in Temperatur kann aber leicht durch die unterschiedliche Heiz und Kühlraten erklärt werden. Unterhalb des Phasenübergangs zeigen beide Proben unterschiedlichen Verlauf. Die Dämpfungsrates in SRO sinken mit der Temperatur ohne einen zweiten Peak durchzulaufen.

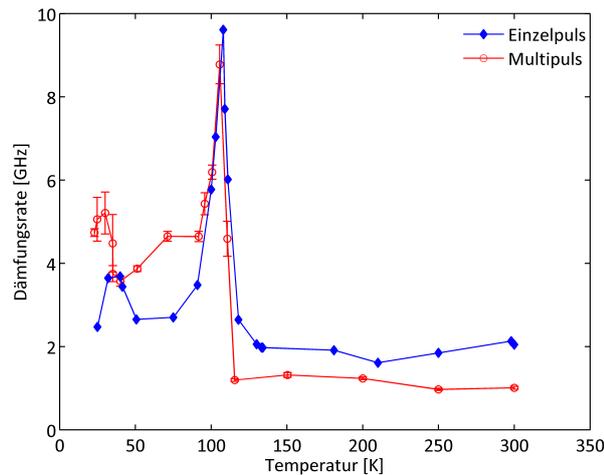


Abbildung 4.8: Die ausgewertete temperaturabhängige Dämpfung in SrTiO_3 gemessen nach der Anregung mit einem Multipuls mit einer Gesamtfluenz von 17 bis 19 mJ/cm^2 (Rote Kreise). Die mit blauen Diamanten dargestellte Messung wurde nach der Anregung mit einem einfachen Laserpuls mit einer Fluenz von 20 mJ/cm^2 durchgeführt. Beide Messung wurden an der Probe mit 37 nm -dicken LSMO-Schicht als Transducer durchgeführt.

Vergleich mit den Einzelpulsmessungen

In der Abbildung 4.8 werden die Messergebnisse der temperaturabhängigen Dämpfungsrate nach der Anregung mit einzelnen Laserpuls der Fluenz 14 mJ/cm^2 ³ und mit einem Anregungszug aus 8 Laserpulsen der Gesamtfluenz von $\approx 20 \text{ mJ/cm}^2$ miteinander verglichen. Die Daten wurden nach dem im Abschnitt 3.2 beschriebenen Prinzip der Fenster-Fourier-Transformation ausgewertet. Bei Temperaturen oberhalb des Phasenübergangs ist die Dämpfungsrate für die Einzelpulsanregung höher als die durch Pulszuganregung. Umgekehrt verhält es sich bei den Temperaturen unterhalb 105 K . Die Dämpfungsrate am Phasenübergang ist für beide Anregungsarten identisch und beide liegen bei knapp 10 GHz . Die Verschiebung des zweiten Maximums zu höheren Temperaturen bei der Einzelpulsanregung kann nicht an den unterschiedlichen Anregungsmechanismen liegen, auch eine Hysterese aufgrund der unterschiedlichen Heiz und/oder Kühlraten und -zyklen kann schon zu der Verschiebung der Maxima um wenige Kelvin führen.

³gemessen von einer Kollegin aus der Arbeitsgruppe

Vergleich mit den anderen Messungen

Die ersten Messungen der Dämpfung von longitudinalen akustischen Phononen im GHz-Bereich wurden vor kurzem von Nagakubo *et al.* [37] publiziert. Für diese Messungen wurde eine 17 nm-dicke Schicht Platin als Transducer auf STO(100) aufgebracht. Diese Messungen wurden mit 800 nm-Pumplicht, einer Anregefluenz von $16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ und einer Wiederholrate von 80 MHz durchgeführt. Geprüft wurde mit dem 400 nm-Licht senkrecht zu der Probenoberfläche. In dem Artikel wird die Dämpfung mit der Einheit $1/\text{cm}$ angegeben. Um diese in die von uns benutzte Einheit umzurechnen, multipliziert man diese mit der extrahierten temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit. Da der Dämpfungsfaktor $\Gamma(q) \propto q^2$, skalieren wir den publizierten Dämpfungsfaktor mit $(q/q_{Lit})^2 = (52/80)^2$. Die sowohl publizierten als auch von uns skalierten Daten von Nagakubo *et al.* werden in Abbildung 4.9 mit unseren Messungen an LSMO37 und SRO15 verglichen. Bei Temperaturen oberhalb des Phasenübergangs sind die Dämpfungsraten identisch. Unterhalb des Phasenübergangs gibt es eine gute Übereinstimmung zwischen unseren SRO15 (schwarz) und skalierten Nagakubo Messdaten (blau). Der zweite Phasenübergang wird jedoch nur bei den Messungen an LSMO37 gemessen, obwohl in diesem Temperaturbereich von Nagakubo *et al.* leider keine Messungen durchgeführt wurden. Somit fällt in diesem Temperaturbereich der direkte Vergleich. Auffällig in Abbildung 4.9 ist der Temperaturversatz des Phasenübergangs von knapp 10 K zwischen unseren (schwarze und rote Kreise) und skalierten Literaturwerten (blaue Diamante). Wie schon vorher erwähnt kann es an unterschiedlichen Heiz und/oder Kühlsystemen und/oder unterschiedlichen Anregungsfluenzen und Wiederholraten der Laser.

4.2.5 Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit

Die Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit entlang der (100)-Richtung in STO ist in der Abbildung 4.11 dargestellt. Die Schallgeschwindigkeiten wurden mit Hilfe der Formel 4.1 für alle Wellenlängen des Abfragelichts extrahiert. Die Schallgeschwindigkeit zeigt einen leichten Anstieg bei sinkender Temperatur im Bereich zwischen 300 K bis auf 116 K. Beim weiteren Abkühlen der Probe kommt es am AFD Phasenübergang zu einem plötzlichen Einbruch der Schallgeschwindigkeit und das Minimum wird bei etwa 104 K (LSMO37) beziehungsweise bei 101 K (SRO15) erreicht. Dies entspricht auch der Temperatur, bei der der Phasenübergang in STO einsetzt. Weiteres Abkühlen der Probe führt wieder zur Erhöhung der Schallgeschwindigkeit und schließlich wird bei tiefen Temperaturen wieder annähernd der Ausgangswert bei Raumtemperatur erreicht. Die Verringerung der Schallgeschwindigkeit geht mit

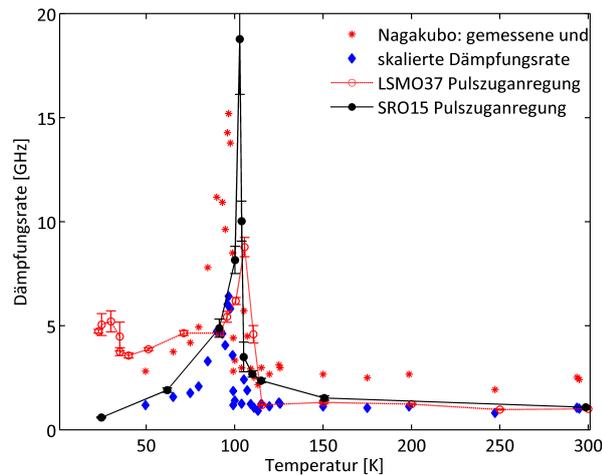


Abbildung 4.9: Rote Sterne: Die temperaturabhängige Dämpfungsrates $\Gamma = 1/\tau$ erzielte bei einer Anregungsfluens von 16 mJ/cm^2 und untersucht mit der Wellenlänge von 400 nm , was $q \approx 80 \mu\text{m}^{-1}$ entspricht [37]. Blaue Diamante: Die mit dem Faktor (q^2/q_{Lit}^2) skalierten Daten für den Vergleich mit unseren Messung an LSMO37 und SRO15 aus der Abbildung 4.7 (unausgefüllte rote und ausgefüllte schwarze Kreise).

einem Weichwerden der elastischen Eigenschaften von STO einher: $v = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}}$, wobei C_{11} die elastische Konstante entlang der (100) Richtung ist und ρ die Dichte von STO. Es ist bekannt, dass der AFD Phasenübergang von einer weichwerdenden Phononmode beschrieben wird [38], somit ist die Verringerung der Schallgeschwindigkeit am Phasenübergang keine Überraschung. Zusätzlich kann eine Kopplung der Schallwelle an Domänenwände dazu führen, dass die Schallgeschwindigkeit weiter reduziert wird (“superelastic effect”, [39, 40]), was aber nicht Teil dieser Arbeit ist. Da der Winkel θ , unter dem das Abfragestrahl auf die Probe fällt, auf 45° abgeschätzt wurde, ist es notwendig, den Einfluss dieser Abschätzung zu untersuchen. Die Abweichungen für die Einfallwinkel werden auf $\pm 5^\circ$ eingeschätzt, wobei er normal 45° betragen sollte. Die Abweichung in der Schallgeschwindigkeit beläuft sich dann auf $\pm 0,07 \text{ nm/ps}$ (Abbildung 4.10) und kann somit in den meisten Fällen vernachlässigt werden. Außerdem wird sich diese Probe bei den temperaturabhängigen Messungen um sehr viel geringere Winkel verdrehen, wenn das überhaupt geschieht.

Vergleich mit Einzelpulsmessungen

Im Falle der Probe LSMO37 wurden die schon oben diskutierten Messungen mit dem Pulszug als Anregung durchgeführt, ausserdem stehen Messungen mit der Einzelpulsanregung zur Verfügung. Beide Datensätze erlauben es nun, den Einfluss der Anregung auf die Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit zu unter-

4 Ergebnisse und Diskussion

Abbildung 4.10: Der Einfluss des Einfallswinkels auf die Auswertung am Beispiel der Messung bei 116 K.

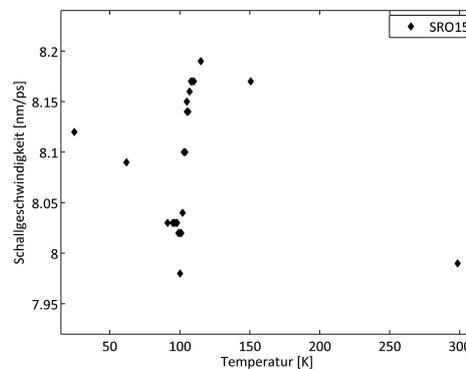
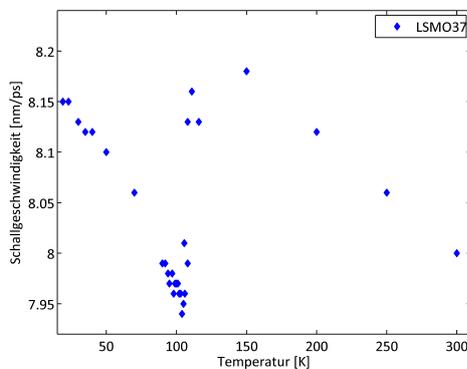
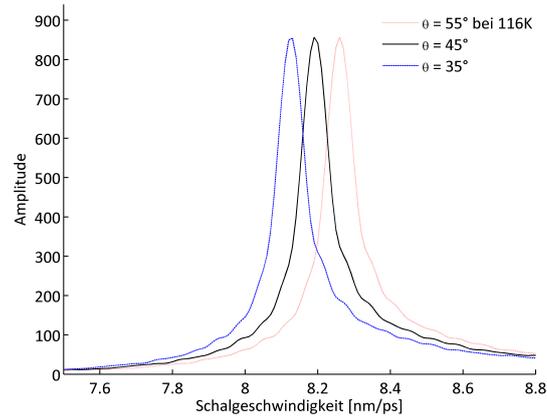


Abbildung 4.11: Links: Die temperaturabhängigen Messungen der Schallgeschwindigkeit in der LSMO37-Probe. Die Anregungsfluenz betrug $18,5 \text{ mJ/cm}^2$. Die Schallgeschwindigkeit hat ihren Minimum bei 104 K. Rechts: Die temperaturabhängige Schallgeschwindigkeit bei Anregung mit 20 mJ/cm^2 der SRO15-Probe. Das Minimum der Schallgeschwindigkeit liegt hier bei etwa 100 K.

suchen. Die Schallgeschwindigkeiten wurden für Temperaturen im Bereich von 25 K bis Raumtemperatur durchgeführt. In Abbildung 4.12 sind die extrahierten Schallgeschwindigkeiten gegenübergestellt. Beide Messungen zeigen den gleichen Verlauf als Funktion der Temperatur und praktisch die gleiche relative Verringerung der Schallgeschwindigkeit am Phasenübergang bei 105 K. Die Einzelpulsmessung liegt in dem gesamten Temperaturbereich etwas unterhalb der Multipulsmessung. Die Abweichung kann jedoch durch die leichte Abweichung in dem Anregungswinkel, wie in Abschnitt 4.2.5 beschrieben, stammen. Die Messwerte unterscheiden sich über dem ganzen Temperaturbereich nur um einen konstanten Faktor.

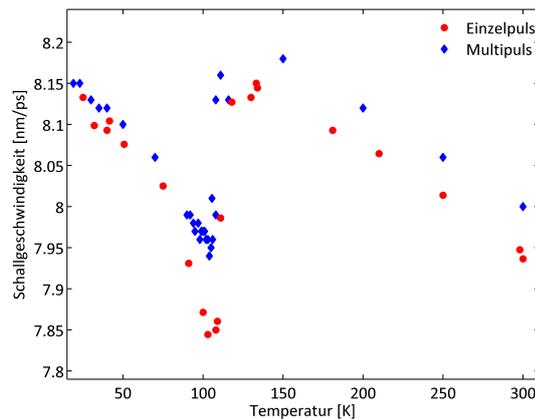


Abbildung 4.12: Die Temperaturabhängigkeit der ausgewerteten Schallgeschwindigkeit im SrTiO_3 gemessen nach der Anregung mit Multi- und Einzelpuls. Die Messungen wurden an der Probe mit einer 37 nm-dicken Schicht $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ als Transducer durchgeführt.

4.3 Schallpropagation in Dyprosiumscandat

Die dritte untersuchte Probe besteht aus einer ungefähr 35 nm dicken SRO Schicht auf (110) DSO. In diesem Abschnitt werden zum ersten Mal zeitaufgelösten Messungen der akustischen Phonondynamik in DSO gezeigt. Wiederum wurde die zeitaufgelöste breitbandige Brillouinstreuung zur Untersuchung verwendet. Da DSO aufgrund von $f - f$ Übergängen bei 795 nm eine Absorptionskante besitzt (Abbildung 4.13) und wir die Probe trotzdem von der Rückseite detektieren wollten, wurde der Pumpstrahl so umgeleitet, dass dieser die Probe von vorn angeregt hat. Somit konnte der zweifache Durchgang des Probelichts durch das ansorbierende SRO umgangen werden. Das orthorhombische Substrat hat in die $(1\bar{1}0)$ -Richtung eine Gitterkonstante $a^{[1\bar{1}0]} = (\sqrt{a^2 + b^2}) = 2 \cdot 3,957 \text{ \AA}$. Die nach Archimedesprinzip gemessene Dichte beträgt $\rho_{Arch} = 6,8 \text{ g/cm}^3$ und die elastischen Konstanten betragen $C_{11} = 302,4 \text{ GPa}$, $C_{12} = 124,4 \text{ GPa}$ und $C_{44} = 103,9 \text{ GPa}$ ⁴ [41]. Damit kann man mit der Beziehung

$$v_{110} = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{12} + 2 \cdot C_{44}}{2 \cdot \rho}} \quad (4.2)$$

den zu erwartenden Wert für die Schallgeschwindigkeit in die (110) -Richtung ausrechnen und erhält $v_{(1\bar{1}0)} = 6,83 \text{ nm/ps}$.

⁴Die Elastizitätsmoduln wurden mit der resonanten Ultraschallspektroskopie (RSU, *resonant ultrasound spectroscopy*) bestimmt

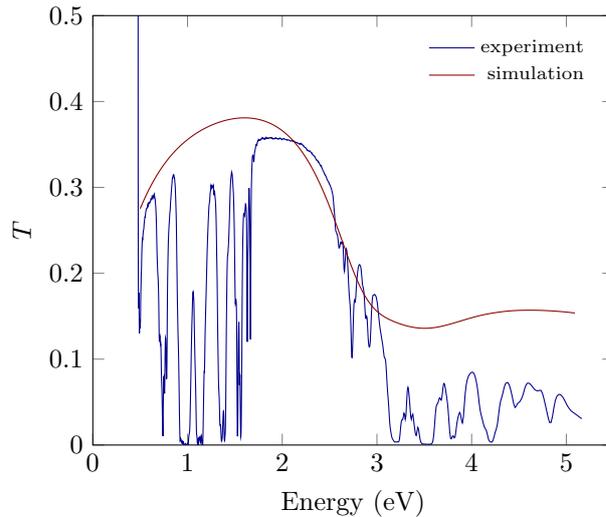


Abbildung 4.13: Die Messung der s-polarisierten Transmission an der SRO/DSO Probe bei Raumtemperatur. Für die Simulation wurde eine 35 nm dicke SRO Schicht aufgewachsen auf DSO angenommen. Die Simulationsparameter wurden aus den Reflektionsmessungen gewonnen.

4.3.1 Fluenzabhängige Messungen

Die Probe wird mit einem Einzelpuls mit Fluenzen zwischen 5 mJ/cm^2 und 30 mJ/cm^2 von der Vorderseite angeregt und mit dem Weißlicht auf der Rückseite abgefragt. Die Abbildung 4.14 zeigt die extrahierten Amplituden der angeregten Wellenvektoren als Funktion der Zeit. Das beobachtete Verhalten ist dem in STO sehr ähnlich. Zum Beispiel beobachtet man bei der Anregung mit 5 mJ/cm^2 einen sehr breitbandigen Phononen-Wellenvektor (linkes Bild in Abbildung 4.14). Die Oszillationen sind im DSO-auch nach fast 4 ns immer noch messbar, was auf eine sehr schwache Dämpfung der Gitterschwingungen in dieser Probe hindeutet. Die extrahierte Dämpfungsrate für die 5 mJ/cm^2 Messung beträgt $\Gamma = 0,23 \text{ GHz}$, was eine Größenordnung unter dem Wert von STO liegt. Die Untersuchung der 30 mJ/cm^2 -Messung (Abbildung 4.14, rechts) bringt etwas anderes Bild zum Vorschein: Es erfolgt weiterhin die Anregung eines breitbandigen Wellenvektors im DSO-Substrat, zusätzlich beobachtet man nun eine zeitlich periodische Auslöschung des Signals. Die Anharmonizität des Potentials zwischen den Ionen, sorgt dafür, dass die Schallwelle auseinander läuft (siehe Abschnitt 4.2). Dabei bewegen sich die Wellenfronten des erzeugten bipolaren Pulses nicht gleich schnell und dadurch entfernt sich die vordere Front von der hinteren und sorgt für die Vergrößerung der Wellenlänge (bzw. der Verkleinerung des Wellenvektors) der Gitterschwingung. Dadurch haben die an der vorderen und hinteren Teilen der Welle gestreuten Photonen eine unterschiedliche Phase. Wenn diese dann eine Phasendifferenz von $\phi = 180^\circ$ erreicht, so kommt es zur destruktiven

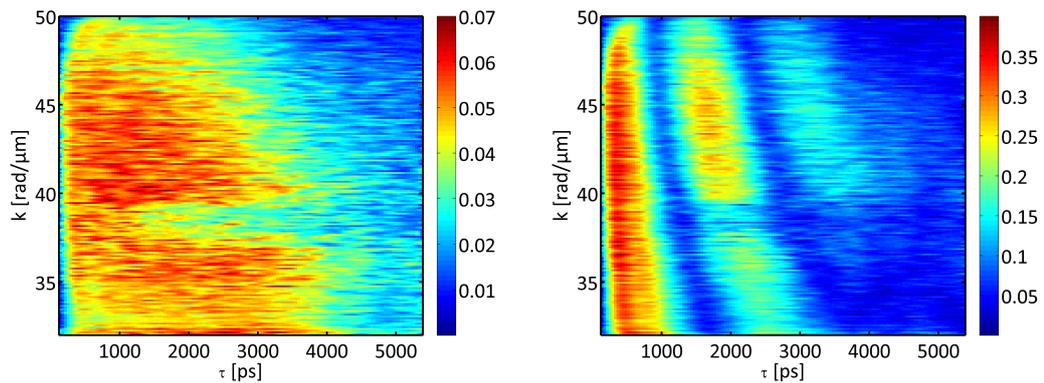


Abbildung 4.14: Links: Nach einer Anregung der SRO/DSO-Probe mit der Fluenz von 5 mJ/cm^2 ist breitbandiger Wellenvektor detektiert worden. Rechts: Die gleiche Probe nach einer Anregung mit Einzelpuls der Fluenz von 30 mJ/cm^2 . Die Anharmonizität im DSO sorgt für die Verschiebung des angeregten Wellenvektors. Die dazukommende Schiebung in der Phase sorgt für periodische Auslöschung (bedingt durch die destruktive Interferenz) des extrahierten Signals.

Interferenz zwischen den beiden gestreuten Lichtanteilen. Da man dort keine Änderung der Reflektivität misst, erscheint es so, als würden die Gitterschwingungen “verschwinden”. Doch sobald die Phasendifferenz wieder im Bereich von $180^\circ < \phi < 360^\circ$ liegt, sind die Gitterschwingungen wieder detektierbar. Dieses Phänomen wurde wie bereits erwähnt auch in Strontiumtitanat beobachtet [34]. Die Abbildung 4.15. Trägt man die extrahierten Schallgeschwindigkeiten für die unterschiedlichen Anregungsfluenzen. Es stellt sich heraus, dass bereits bei einer Anregungsfluenz von 10 mJ/cm^2 das Spektrum der Schallgeschwindigkeit zwei deutlich getrennte Maxima aufweist. Das rechte Maximum wandert bei Erhöhung der Fluenz in Richtung höherer Schallgeschwindigkeiten und scheint bei Fluenzen über 20 mJ/cm^2 zu sättigen. Dagegen zeigen die Maxima auf der linken Seite eine lineare Reduzierung mit der steigender Fluenz. Für diese ist im gemessenen Anregungsreich keine Sättigung erkennbar.

4 Ergebnisse und Diskussion

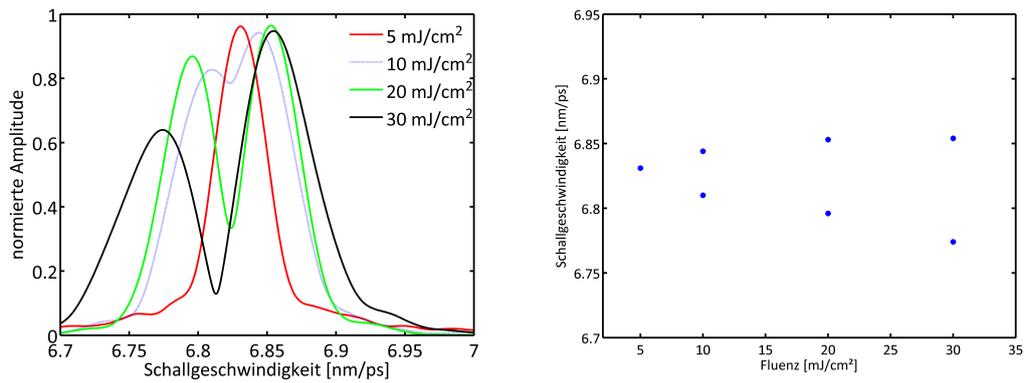


Abbildung 4.15: Die normierte Amplitude der extrahierten Schallgeschwindigkeit zeigt eine Aufspaltung in zwei Peaks für Anregungsfluenzen größer 10 mJ/cm^2 (links). In der rechten Abbildung sind die Maxima der Schallgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Fluenz dargestellt. Der obere Ast (rechter Peak) steigt mit der Fluenz an und sättigt bei hohen Fluenzen. Der untere Ast (linker Peak) verringert die Schallgeschwindigkeit linear mit steigender Fluenz.

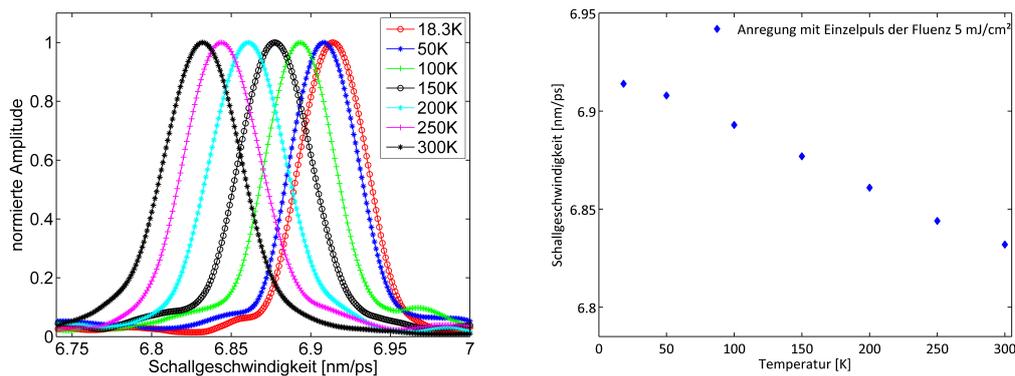


Abbildung 4.16:

4.3.2 Temperaturabhängige Messungen

Nachdem die Probe in den Kryostat eingebaut wurde, wurde wie schon im Fall der LSMO/STO und SRO/STO Proben die Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit in DSO untersucht. Dabei konnten die in der Abbildung 4.16 dargestellten Daten extrahiert werden. Der Temperaturbereich wurde zwischen 18 K und Raumtemperatur variiert. Bei einer Einzelpulsanregung mit einer Fluenz von 5 mJ/cm^2 ergibt sich das in Abbildung 4.16 dargestellte Spektrum der Schallgeschwindigkeit und ist für ausgewählte Temperaturen gezeigt. Es ist eine leichte Verschiebung des Spektrums zu höheren Schallgeschwindigkeiten beim Abkühlen der Probe erkennbar. Noch deutlicher ist der Trend zu sehen, wenn man die Maxima

der Spektren über der Temperatur darstellt (Abbildung 4.16, rechts). Der Anstieg der Schallgeschwindigkeit beträgt ungefähr 1%, unter Umständen ist dieser Effekt der Auswertung geschuldet, weil der Brechungsindex von DSO als temperaturunabhängig angenommen wurde. Das Verhalten der Phononen im DSO ist sehr stark von der Anregungsfluenz abhängig. Bei schwachen Anregungen mit einem Einzelpuls wird ein breitbandiger, aber langlebiger Wellenvektor angeregt. Durch die hohe Anharmonizität führt aber die Anregung mit höheren Fluenzen zu einem Auseinanderlaufen der Schallwellen im DSO, was ein *beating* im gemessenen Signal verursacht. Die Langlebigkeit der Oszillationen deutet auf eine sehr schwache Dämpfung im DSO hin.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Im Verlaufe der Arbeit habe ich die ultraschnelle Dynamik in den Perovskit-Materialien Strontiumtitanat (STO) und Dysprosiumscandat (DSO) mit Hilfe optischer Spektroskopie im Femtosekundenbereich untersucht. Die Hauptaufgabe war es, die Untersuchung der Dynamik kohärenter Phononen in diesen Materialien mit Hilfe der breitbandigen zeitaufgelösten Brillouinstreuung, welche nach dem Prinzip der Anrege-Abfrage-Methode funktioniert. Die kohärenten Phononen wurden durch das ultraschnelle Aufheizen und die darauffolgende schnelle Wärmeausdehnung von dünnen Metallschichten nach einer optischen Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls erzeugt. Die Metallschichten bestanden aus Strontiumruthenat (SRO) und Lanthan-Strontium Manganat (LSMO), bei denen es sich ebenfalls um Materialien handelt, die eine Perovskitstruktur aufweisen und epitaktisch auf die Substrate aufgewachsen wurden. Für Strontiumtitanat war vor allem die Untersuchung der Phononendämpfung in der antiferrodistortiven Phase nahe 105 K von großem Interesse.

Um besonders schmalbandige kohärenten Phonon zu erzeugen, wurde ein 8-Puls-Erzeuger (8PE) aufgebaut und getestet. Aufgebaut wurde der 8PE aus drei aufeinander folgenden Interferometern. Die Abstände der Pulse in dem Pulszug kann eingestellt werden. Die Länge der Pulse kann mit Hilfe eines Gitterkompressors eingestellt und Korrelation überprüft werden. Die Abstände zwischen den einzelnen Pulsen können in jedem der drei Interferometer verändert und mit Hilfe einer Kreuzkorrelation überprüft werden. Das mit dem Laserpulszug erzeugte Phonon in dem STO-Substrat mit einer LSMO-Schicht als Transducer ist sehr schmalbandig.

Die Dämpfungsrate der Phononen im STO wurde sowohl anregungsfluenz- als auch temperaturabhängig gemessen. Zusätzlich wurden die Messergebnisse mit Simulationen verglichen. Die fluenzabhängigen Messungen haben gezeigt, dass die Dämpfungsrate in der LSMO/STO Probe sich anders verhält als von der Simulation vorhergesagt. Auch unterschiedliche Dämpfungsraten bei gleichen Anregungsfluenzen in den Proben LSMO/STO und SRO/STO wurden reproduzierbar gemessen. Der Vergleich mit den Ergebnissen der Einzelpulsanregung der LSMO/STO Probe zeigt das gleiche Verhalten der Dämpfungsrate an dem Phasenübergang und Abweichungen im Verhalten sowohl oberhalb als auch unterhalb des Phasenübergangs. Der

5 Zusammenfassung und Ausblick

Vergleich der temperaturabhängigen Messungen der Schallgeschwindigkeit zeigt für die Proben mit unterschiedlichen Transducern ein identisches Verhalten. Für beide Proben ist an dem Phasenübergang eine Verringerung der Schallgeschwindigkeit beobachtet worden. Dabei gibt es auch nur eine sehr kleine Abweichung der Schallgeschwindigkeit im Vergleich zu den Einzelpulsmessungen. Eine wichtige Erkenntnis wurde beim Vergleich der fluenzabhängigen Messungen mit Multipuls- und Einzelpulsanregung gewonnen. So kann man mit Hilfe der Multipulsanregung den Einfluss der Anharmonizität in dem STO Substrat senken, wodurch die Anharmonizität im SrTiO_3 bei gleicher Anregefluenz unterdrückt werden kann.

Mit Dysprosiumscandat (DSO) wurde ein weiterer Vertreter der Perovskit-Materialien untersucht. Die fluenzabhängigen Messungen nach einer Einzelpulsanregung haben für die höheren Fluenzen einen starken Einfluss der Anharmonizität der Probe gezeigt. Unter dem Einfluss der Anharmonizität bleibt die Schallgeschwindigkeit für den kompressiven und den expansiven Teil des Schallpulses nicht gleich, sondern teilt sich in zwei unterschiedliche Werte auf, die detektiert wurden. Weitere Messungen mit der Multipulsanregung können zeigen, ob auch in DSO wie in STO der Einfluss der Anharmonizität unterdrückt werden kann. Die temperaturabhängigen Messungen zeigten dagegen keinen großen Einfluss der Temperatur auf die Schallgeschwindigkeit im DSO Substrat.

Literaturverzeichnis

- [1] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736):493–494, 1960.
- [2] L. MANDEL and E. WOLF. Coherence properties of optical fields. *Rev. Mod. Phys.*, 37:231–287, Apr 1965.
- [3] F. J. McClung and R. W. Hellwarth. Giant optical pulsations from ruby. *Appl. Opt.*, 1(S1):103–105, Jan 1962.
- [4] Dirk J. Kuizenga and A. E. Siegman. Fm and am mode locking of the homogeneous laser - part i: Theory. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 6(11):694–708, November 1970.
- [5] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, 16(1):42–44, Jan 1991.
- [6] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Phys. Rev. B*, 34(6):4129–4138, Sep 1986.
- [7] A. Bojahr, D. Schick, L. Maerten, M. Herzog, I. Vrejoiu, C. von Korff Schmising, C. J. Milne, S. L. Johnson, and M. Bargheer. Comparing the oscillation phase in optical pump-probe spectra to ultrafast x-ray diffraction in the metal-dielectric $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3$ superlattice. *Phys. Rev. B*, 85(22):224302, Jun 2012.
- [8] V. M. Goldschmidt. *Geochemistry*. Oxford Clarendon Press, 1958.
- [9] C. A. Randall, A. S. Bhalla, T. R. ShROUT, and L. E. Cross. Classification and consequences of complex lead perovskite ferroelectrics with regard to b-site cation order. *Journal of Materials Research*, 5:829–834, 1990.
- [10] Farrel W. Lytle. X-ray diffractometry of low-temperature phase transformations in strontium titanate. *Journal of Applied Physics*, 35(7):2212–2215, 1964.

- [11] G. Shirane and Y. Yamada. Lattice-dynamical study of the 110°k phase transition in SrTiO_3 . *Phys. Rev.*, 177:858–863, Jan 1969.
- [12] Hiromi Unoki and Tunesaro Sakudo. Electron spin resonance of Fe^{3+} in SrTiO_3 with special reference to the 110°k phase transition. *Journal of the Physical Society of Japan*, 23(3):546–552, 1967.
- [13] K. Alex Müller, W. Berlinger, and E. Tosatti. Indication for a novel phase in the quantum paraelectric regime of SrTiO_3 . *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 84(2):277–283, 1991.
- [14] K. A. Müller and H. Burkard. SrTiO_3 : An intrinsic quantum paraelectric below 4 k. *Phys. Rev. B*, 19:3593–3602, Apr 1979.
- [15] P. Kostic, Y. Okada, N. C. Collins, Z. Schlesinger, J. W. Reiner, L. Klein, A. Kapitulnik, T. H. Geballe, and M. R. Beasley. Non-fermi-liquid behavior of SrRuO_3 : Evidence from infrared conductivity. *Phys. Rev. Lett.*, 81(12):2498–2501, Sep 1998.
- [16] B. Wiedenhorst, C. Höfener, Yafeng Lu, J. Klein, L. Alff, R. Gross, B. H. Freitag, and W. Mader. Strain effects and microstructure of epitaxial manganite thin films and heterostructures. *Applied Physics Letters*, 74(24):3636–3638, 1999.
- [17] Pietro Delugas, Vincenzo Fiorentini, Alessio Filippetti, and Geoffrey Pourtois. Conservation of dielectric constant upon amorphization in perovskite oxides. *Phys. Rev. B*, 76:104112, Sep 2007.
- [18] Darrell G. Schlom, Long-Qing Chen, Xiaoqing Pan, Andreas Schmehl, and Mark A. Zurbuchen. A thin film approach to engineering functionality into oxides. *Journal of the American Ceramic Society*, 91(8):2429–2454, 2008.
- [19] Albrecht Bartels, Thomas Dekorsy, Heinrich Kurz, and Klaus Köhler. Coherent zone-folded longitudinal acoustic phonons in semiconductor superlattices: Excitation and detection. *Phys. Rev. Lett.*, 82:1044–1047, Feb 1999.
- [20] H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus. Theory for displacive excitation of coherent phonons. *Phys. Rev. B*, 45(2):768–778, Jan 1992.
- [21] M. Bargheer, N. Zhavoronkov, Y. Gritsai, J. C. Woo, D. S. Kim, M. Woerner, and T. Elsaesser. Coherent atomic motions in a nanostructure studied by femtosecond x-ray diffraction. *Science*, 306(5702):1771–1773, 2004.

- [22] M. I. Kaganov, I. M. Lifshitz, and L. V. Tanatarov. Relaxation between electrons and the crystalline lattice. *Sov. Phys. JETP*, 4(2):173, 1957.
- [23] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Sov. Phys. JETP*, 39:375, 1974.
- [24] Pascal Ruello and Vitalyi E. Gusev. Physical mechanisms of coherent acoustic phonons generation by ultrafast laser action. *Ultrasonics*, 56(0):21 – 35, 2015.
- [25] S. Hunklinger. *Festkörperphysik*. Oldenburg, 2007.
- [26] M. Herzog, D. Schick, P. Gaal, R. Shayduk, C. von Korff Schmising, and M. Bargheer. Analysis of ultrafast x-ray diffraction data in a linear-chain model of the lattice dynamics. *Appl. Phys. A*, 106(3):489–499, February 2012.
- [27] D. Schick, A. Bojahr, M. Herzog, C. von Korff Schmising, R. Shayduk, and M. Bargheer. udkm1dsim - a simulation toolkit for 1d ultrafast dynamics in condensed matter. *Comput. Phys. Commun.*, 185(2):651–660, 2014.
- [28] A. Bojahr, M. Herzog, S. Mitzscherling, L. Maerten, D. Schick, J. Goldshteyn, W. Leitenberger, R. Shayduk, P. Gaal, and M. Bargheer. Brillouin scattering of visible and hard x-ray photons from optically synthesized phonon wavepackets. *Opt. Express*, 21(18):21188–21197, Sep 2013.
- [29] S. Brivio, D. Polli, A. Crespi, R. Osellame, G. Cerullo, and R. Bertacco. Observation of anomalous acoustic phonon dispersion in srTiO_3 by broadband stimulated brillouin scattering. *Appl. Phys. Lett.*, 98(21):211907, 2011.
- [30] Claude [Hrsg.] Rullière, editor. *Femtosecond laser pulses : principles and experiments*. Springer, New York;[Heidelberg], 2. edition, 2005. Includes index. - Previous ed.: 1998; hbk.. - : £54.00.
- [31] Rick Trebino, Kenneth W. DeLong, David N. Fittinghoff, John N. Sweetser, Marco A. Krumbügel, Bruce A. Richman, and Daniel J. Kane. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Review of Scientific Instruments*, 68(9):3277–3295, 1997.
- [32] Sterling Backus, Charles G. Durfee, Margaret M. Murnane, and Henry C. Kapteyn. High power ultrafast lasers. *Review of Scientific Instruments*, 69(3):1207–1223, 1998.

- [33] E. Treacy. Optical pulse compression with diffraction gratings. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 5(9):454–458, Sep 1969.
- [34] A. Bojahr, M. Herzog, D. Schick, I. Vrejoiu, and M. Bargheer. Calibrated real-time detection of nonlinearly propagating strain waves. *Phys. Rev. B*, 86:144306, Oct 2012.
- [35] I. Vrejoiu, Michael Ziese, Annette Setzer, Pablo D. Esquinazi, Balaji I. Birajdar, Andriy Lotnyk, M. Alexe, and Dietrich Hesse. Interfacial strain effects in epitaxial multiferroic heterostructures of $\text{pbzr}_{\text{x}}\text{ti}_{\text{1-x}}\text{o}_3/\text{la}_{\text{0.7}}\text{sr}_{\text{0.3}}\text{mno}_3$ grown by pulsed-laser deposition. *Appl. Phys. Lett.*, 92(15):152506, 2008.
- [36] M. Cardona. Optical properties and band structure of srtio_3 and batio_3 . *Phys. Rev.*, 140:A651–A655, Oct 1965.
- [37] Akira Nagakubo, Akihiro Yamamoto, Kenichi Tanigaki, Hirotsugu Ogi, Nobutomo Nakamura, and Masahiko Hirao. Monitoring of longitudinal-wave velocity and attenuation of srtio_3 at low temperatures using picosecond ultrasound spectroscopy. *Japanese Journal of Applied Physics*, 51(7S):07GA09, 2012.
- [38] J. F. Scott. Soft-mode spectroscopy: Experimental studies of structural phase transitions. *Rev. Mod. Phys.*, 46:83–128, Jan 1974.
- [39] A. V. Kityk, W. Schranz, P. Sondergeld, D. Havlik, E. K. H. Salje, and J. F. Scott. Low-frequency superelasticity and nonlinear elastic behavior of srtio_3 crystals. *Phys. Rev. B*, 61:946–956, Jan 2000.
- [40] L. Maerten, A. Bojahr, M. Gohlke, M. Rössle, and M. Bargheer. Coupling of ghz phonons to ferroelastic domain walls in srtio_3 . *Phys. Rev. Lett.*, 114:047401, Jan 2015.
- [41] M. Janovská, P. Sedlák, H. Seiner, M. Landa, P. Marton, P. Ondrejko, and J. Hlinka. Anisotropic elasticity of dysco_3 substrates. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 24(38):385404, 2012.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Diplomarbeit ohne fremde Hilfe angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Alle Teile, die wörtlich oder sinngemäß einer Veröffentlichung entstammen, sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde noch nicht veröffentlicht oder einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Viktor Kuxhaus

Potsdam, den 28. April 2015

Danksagung

Besonderer Dank gilt André Bojahr, und Lena Maerten, deren engagierte fachliche Unterstützung und Betreuung mir beim Erstellen dieser Arbeit wesentlich geholfen haben. Matthias Rössle bin ich für das schnelle und sorgfältige Lesen meiner Arbeit, sowie die Korrektur zahlreicher Kommafehler, zu Dank verpflichtet. Desweiteren möchte ich mich bei Herrn Prof. Matias Bargheer für das Wecken meines Interesses an der Thematik bedanken. Großer Dank gilt auch den übrigen Mitglieder der Arbeitsgruppe *Ultraschnelle Dynamik kondensierter Materie* der Universität Potsdam, die mich während meiner Zeit in der Arbeitsgruppe stets unterstützten und motivierten. Herrn Prof. R. Menzel gebührt Dank für seine Rolle als Zweitgutachter.

Ganz besonders möchte ich meinen Eltern danken, die mir Kraft und Glauben gaben, diese Arbeit und mein Studium zu beenden. Und es schmerzt besonders, dass mein Vater leider diesen Moment nicht miterleben durfte.