



UNIVERSITÄT POTSDAM

BACHELORARBEIT

---

# Hyperschall und akustische Solitonen in Dysprosiumscandat

---

Autor:

Maximilian MATTERN

Betreuer und Erstgutachter :

Prof. Dr. Matias BARGHEER

Zweitgutachter :

Prof. Dr. Markus GÜHR

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät

Institut für Physik und Astronomie

20. September 2018



## Kurzfassung

Diese Arbeit bietet einen Einblick in die lineare und nichtlineare Propagation einer Hyperschallwelle in Dysprosiumscandat. Die Zielstellung dieser Arbeit ist die Anregung von akustischen Solitonen im Dysprosiumscandat-Substrat, die aus einer dazu angeregten Hyperschallwelle großer Amplitude hervorgehen. Die Anregung einer solchen Hyperschallwelle erfolgt in einer wenige Nanometer dicken, metallischen Strontiumruthenatschicht mittels eines ultrakurzen Laserpulses.

Zunächst wird eine lineare Fluenzabhängigkeit der Reflektivitätsänderung des Strontiumruthenats gezeigt und eine Eindringtiefe des anregenden Laserpulses der Wellenlänge 800 nm von 51 nm bestimmt. Die transiente Reflektivitätsänderung bestätigt eine Thermalisierungszeit von etwa 200 fs für das Elektron-Phonon-System in Strontiumruthenat nach der Laserpulsanregung des elektronischen Systems. Die resultierende Expansion der Metallschicht durch die Anregung des phononischen Systems innerhalb weniger Pikosekunden konnte in Übereinstimmung mit Simulationen festgestellt werden.

Die ultraschnelle Expansion des Strontiumruthenats tritt im Substrat eine bipolare Hyperschallwelle los. Deren breites Phononenspektrum mit Frequenzen im Giga- bis Terahertz-Bereich wird durch zeitaufgelöste Brillouin-Streuung über einen substantiellen Frequenzbereich als Dispersionsrelation dargestellt. Die aus der Dispersionsrelation folgende longitudinale akustische Schallgeschwindigkeit in Dysprosiumscandat wird zu 6,79 nm/ps bestimmt. Messungen mit unterschiedlich polarisiertem Abfragepuls zeigen die doppelbrechende Eigenschaft des Dysprosiumscandats mit einem anisotropen Brechungsindex durch die Änderung der Oszillationsperiode des Brillouin-Streusignals um rund 2%.

Für die Untersuchung der nichtlinearen Propagation der Hyperschallwelle und einer möglichen Solitonenbildung wurden Fluenzserien unter verschiedenen Bedingungen aufgenommen, deren Interpretation durch den Vergleich mit Simulationen erfolgt. In den Experimenten konnte keine Bildung von Solitonen beobachtet werden, sondern lediglich ein Aufsteilen der Hyperschallwelle in Folge der nichtlinearen Propagation. Diese wird durch eine dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit bereits für Fluenzen von  $4 \text{ mJ/cm}^2$  experimentell und in Simulationen belegt. Als Ursache der ausbleibenden Solitonenbildung wurde die hohe, laserinduzierte lokale Temperatur und die damit einhergehende starke phononische Dämpfung identifiziert. Als Indikator der lokalen Temperatur der Probe diente dabei die temperaturabhängige Schallgeschwindigkeit in Dysprosiumscandat. Trotz Tieftemperaturmessungen bei einer Kryostattemperatur von 20 K wurde aufgrund der schlechten Wärmeleitfähigkeit der Probe in den Experimenten eine lokale Temperatur von mehreren 100 K festgestellt.

Die in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse sind fundamental für weitere und experimentell optimiertere Untersuchungen zur Erzeugung und Dynamik von Solitonen in kristallinen Festkörpern.

### Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle bei Allen bedanken, die diese Arbeit ermöglicht haben. Zuerst möchte ich mich bei meinem Betreuer Prof. Dr. Matias Bargheer für seine richtungsweisenden Hinweise an kritischen Punkten der experimentellen Untersuchungen und seine Unterstützung bei der Interpretation der Ergebnisse bedanken.

Des Weiteren möchte ich mich bei der Arbeitsgruppe „Ultrafast Dynamics in Condensed Matter“ für die tolle Atmosphäre und die vielen physikalischen und nicht physikalischen Gespräche bedanken.

Besonders möchte ich mich bei Marc Herzog bedanken, der die Leitung des Projekts als Postdoc übernommen hat und mich tatkräftig bei experimentellen Schwierigkeiten und der Interpretation der Messergebnisse unterstützt hat. Weiterhin möchte ich mich für die vielen physikalischen Gespräche auch mal fernab der eigentlichen Frage, die mich sehr bereichert haben, bedanken.

Des Weiteren möchte ich mich bei Jan-Etienne Pudell für die Unterstützung bei den Simulationen und der Handhabung des Kryostats bedanken. Sein Wissen und seine Erfahrungen haben mich zusammen mit seinen vielen gestalterischen Hinweisen in Bezug auf Abbildungen sehr vorangebracht. Außerdem möchte ich mich bei ihm für die Auswertung der Reflektometriedaten für die Schichtdickenbestimmung bedanken, die er für mich durchgeführt hat. Julia Kirchner möchte ich für die gemeinsame Arbeit und entspannte Atmosphäre im Labor und die Unterstützung bei Justierungsarbeiten danken. Lisa Willig möchte ich für ihre Geduld und ihre vielen Hinweise bei der Lösung meiner am Anfang noch recht trivialen Probleme bei der Auswertung der Messdaten mit Python danken. Für die Anfertigung eines speziellen Probenhalters danke ich Elko Hannemann.

Zum Schluss möchte ich meinen Eltern und meiner Freundin danken, die die Messzeiten bis tief in die Nacht und am Wochenende toleriert, mich immer unterstützt und auch nach anstrengenden Wochen ertragen haben.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Charakterisierung der Probe</b>	<b>3</b>
<b>3</b>	<b>Entstehung und lineare Propagation von Hyperschallwellen</b>	<b>7</b>
3.1	Anregung einer Hyperschallwelle . . . . .	7
3.2	Experimenteller Aufbau . . . . .	10
3.3	Detektion der propagierenden Hyperschallwelle . . . . .	11
3.4	Auswertung der experimentellen Ergebnisse . . . . .	14
3.4.1	Entstehung der Hyperschallwelle . . . . .	15
3.4.2	Lineare Propagation der Hyperschallwelle . . . . .	17
<b>4</b>	<b>Nichtlineare Propagation von Hyperschallwellen und Bildung von Solitonen</b>	<b>23</b>
4.1	Bildung von Solitonen aus einer Hyperschallwelle . . . . .	23
4.1.1	Nichtlineare Wellengleichung und Eigenschaften von Solitonen . . . . .	23
4.1.2	Abhängigkeit von Anregungsenergie und Dämpfung . . . . .	25
4.2	Experimenteller Aufbau . . . . .	28
4.3	Auswertung der experimentellen Ergebnisse . . . . .	29
4.3.1	Nichtlineare Propagation einer Hyperschallwelle . . . . .	30
4.3.2	Bestimmung der lokalen Temperatur als Ursache der unterdrückten Bildung von Solitonen . . . . .	35
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>41</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>V</b>



# 1 Einleitung

Phononen als quantisierte Gitterschwingungen von Festkörpern sind aufgrund ihrer Kopplung sowohl an das elektronische System über die Änderung der Energieeigenwerte der Bandstruktur durch das dehnungsabhängige Gitterpotential [1] als auch an das magnetische Spinsystem des Festkörpers in Form einer beispielsweise für die seltenen Erden beobachteten Magnetostraktion [2] im Fokus aktueller Forschung. In Zeiten der Nanotechnologie, vor allem in elektronischen Geräten, und für die Entwicklung von stark temperatursensitiven magnetischen Speichermedien ist Wärmetransport auf kleinen Skalen von großem Interesse [3]. Auf diesen Skalen kann der Wärmetransport von der ballistischen Ausbreitung von Phononen dominiert werden, da die mittlere freie Weglänge in der Größenordnung der Strukturgröße liegt. Weiterhin kommt es auf kleinen Skalen in Metallen aufgrund der Elektron-Phonon-Kopplung zu interessanten Phänomenen bei der Wärmeleitung von Nanoschichtsystemen wie zum Beispiel einem überraschend langsamen Wärmetransport auf Zeitskalen von 100ps zwischen wenige Nanometer dünnen, in Kontakt stehenden Metallfilmen [4]. Der ballistische Wärmetransport der Phononen wird zum einen durch den Wärmeleitwiderstand den phononischen Wärmetransport unterdrückenden schlechten Impedanzanpassung, der zu einer signifikanten Abnahme der Wärmeleitfähigkeit führt, [3] und zum anderen durch die anharmonischen phononischen Streuprozesse bestimmt. Die phononische Streurrate nimmt mit der Frequenz der Phononen zu, sodass die Frequenz der wärmeleitenden Phononen einen wesentlichen Einfluss auf die Wärmeleitung in einer Nanostruktur hat [3]. Die Manipulation des über die Dispersionsrelation mit der Phononenfrequenz verknüpften Wellenvektors wurde beispielsweise für Strontiumruthenat mit der Erzeugung eines quasi-monochromatischen Wellenpakets durch Multilayer [5]- und Multipulsanregungen [6] bereits experimentell realisiert. Zusammenfassend ist die anharmonische Kopplung von Phononen in einem kristallinen Festkörper entscheidend für die Wärmeleitung von Isolatoren auf Nanoskala.

Um das für die Wärmeleitung interessante nichtlineare Verhalten von Phononen in Perovskiten zu verstehen, wurden bereits verschiedene Experimente zur nichtlinearen Propagation einer Hyperschallwelle, die kohärenter Phononendynamik entspricht, durchgeführt. So wurde bereits die Zeitskala der Bildung der zweiten Harmonischen eines quasi-monochromatischen Wellenpakets in Folge der Propagation durch Strontiumtitanat [7] untersucht. Weiterhin wurde mit zeitaufgelöster Brillouin-Streuung eine aus dem anharmonischen Gitterpotential folgende dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit und das resultierende Aufsteilen der durch einen metallischen Transducer optisch angeregten bipolaren Hyperschallwelle zu einer N-förmigen Schallwelle mit steilen Phasenfronten in Strontiumtitanat [8] und in Dysprosiumscandat [9, 10] beobachtet. Im Zusammenhang der in Ref. [10] bestimmten nichtlinearen Kopplungskonstanten  $C_{3,DSO}$  und der beobachteten geringen phononischen Dämpfung kann es in Folge einer nichtlinearen Propagation einer Hyperschallwelle durch das Dysprosiumscandat zu einer Bildung von Solitonen kommen. Solitonen sind stabile nicht dispersive Wellenpakete, die aufgrund eines Gleichgewichts zwischen Dispersion und Nichtlinearität entstehen und erstmals 1834 in Wasser beobachtet wurden. Die erste experimentelle Detektion von akustischen Solitonen in kristallinen Festkörpern erfolgte 2001 [11] mit optischer Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Mittlerweile sind akustische Solitonen in verschiedenen Materialien wie  $Al_2O_3$  [11, 12], Si [11],  $SiO_2$  [11], MgO [11] und GaAs [13, 14] experimentell unter Ausnutzung des optoelastischen Effekts [11], mit Brillouin-Streuung [12], Interferometrie [14] und Verschiebung der Energieresonanz in einem Quantentopf (engl. *quantum well*) [13] detektiert worden.

Die definierte Form und die Beschreibung der Breite, Amplitude und Geschwindigkeit der Solitonen durch einen gemeinsamen Parameter [14] zusammen mit ihrer zeitlichen und räumlichen Schärfe prädestinieren Solitonen als eine Alternative zur Laserpulsanregung von Festkörpern, da die Anregung mit Schallwellen keine zusätzliche Wärme in das System einbringt. Dabei spielt die Kopplung der Phononen und damit der Dehnung eines Solitons an das elektronische beziehungsweise magnetische System eine entscheidende Rolle. Es wurde beispielsweise bereits die Änderungen der optischen Eigenschaften eines Quantentopfs durch die Anregung eines akustischen Solitonenzuges untersucht [15], um eine Technik der ultraschnellen Kontrolle von Elektronenzuständen in Halbleiternanostrukturen zu entwickeln [13]. Für nichtlinear aufgesteilte Schallpulse mit scharfen Phasenfronten wurde weiterhin eine inverse Magnetostriktion [16], ein Umschalten der Magnetisierung einer ferromagnetischen Schicht [17] und die Beeinflussung des Stromflusses einer Tunnel diode [18] beobachtet. Ein fundiertes Verständnis der nichtlinearen Hyperschallpropagation ist somit von fundamentalem Interesse für die Nanotechnologie.

In der vorliegenden Arbeit wird die Erzeugung einer Hyperschallwelle durch die Anregung einer Strontiumruthenat-Schicht und deren Propagation durch  $100\mu\text{m}$  Dysprosiumscandat in Hinblick auf die Bildung von Solitonen bei einer nichtlinearen Propagation untersucht. Dabei werden zunächst die Probe charakterisiert und wichtige Eigenschaften der verwendeten Materialien sowie Literaturwerte für die experimentell und simulativ interessanten physikalischen Größen angegeben. Anschließend wird die Erzeugung einer Hyperschallwelle bei der Anregung einer Strontiumruthenat-Schicht durch einen kurzen Laserpuls sowohl theoretisch erläutert als auch experimentell untersucht und mit Simulationen verglichen. Die Detektion einer Dehnung des Transducers sowie der Propagation der bipolaren Schallwelle mit zeitaufgelöster Brillouin-Streuung wird nach der Beschreibung des experimentellen Aufbaus zur Untersuchung der in der Probe induzierten Dynamik theoretisch erläutert. Anschließend folgen experimentelle Untersuchungen zur Entstehung und linearen Propagation einer Hyperschallwelle, wobei das fluenzabhängige Verhalten des angeregten Transducers, die Eindringtiefe von Licht der Wellenlängen  $560$  und  $800\text{nm}$  in Strontiumruthenat, die Zeitskalen der Entstehung der Hyperschallwelle, das spektral breite hochfrequente Spektrum sowie die Doppelbrechung des Dysprosiumscandats beobachtet beziehungsweise untersucht, beschrieben und analysiert werden.

Im zweiten Teil der Arbeit wird näher auf die nichtlineare Propagation der Hyperschallwelle in Dysprosiumscandat eingegangen. Dazu werden zunächst aus der nichtlinearen Wellengleichung Eigenschaften der zu Solitonenbildung führenden nichtlinearen Propagation abgeleitet und die Stabilität der Solitonen als Gleichgewicht zwischen Dispersion und Nichtlinearität herausgestellt. Mithilfe von Simulationen wird das Verhalten der nichtlinear propagierenden Hyperschallwelle in Abhängigkeit von der Anregungsenergie und der Dämpfung untersucht und diskutiert. Anschließend werden die nötigen Modifikationen des Aufbaus der im ersten Teil der Arbeit dargestellten Messungen für die Detektion der durch das Dysprosiumscandat propagierten Hyperschallwelle beschrieben und die damit gewonnenen Messergebnisse präsentiert. Die Interpretation der detektierten Reflektivitätsänderungen als Phasenfronten der durch die Propagation zur N-förmig aufgestellten Hyperschallwelle erfolgt im Vergleich der Messergebnisse mit Simulationen verschiedener Dämpfungen und Fluenzen. Die nichtlineare Propagation wurde dabei fluenz- und temperaturabhängig untersucht. Abschließend werden als Grund für die nicht detektierten Solitonen die hohe laserinduzierte lokale Temperatur aufgrund der schlechten Wärmeleitfähigkeit der Probe identifiziert und anhand der Messdaten Lösungsmöglichkeiten diskutiert.

## 2 Charakterisierung der Probe

In diesem Kapitel werden der schematische Aufbau der untersuchten Festkörperprobe dargestellt sowie die Eigenschaften der in der Probe verwendeten Materialien beschrieben. Weiterhin werden Literaturwerte der für die experimentellen Untersuchungen und durchgeführten Simulationen wichtigen Größen der verschiedenen Materialien angegeben.

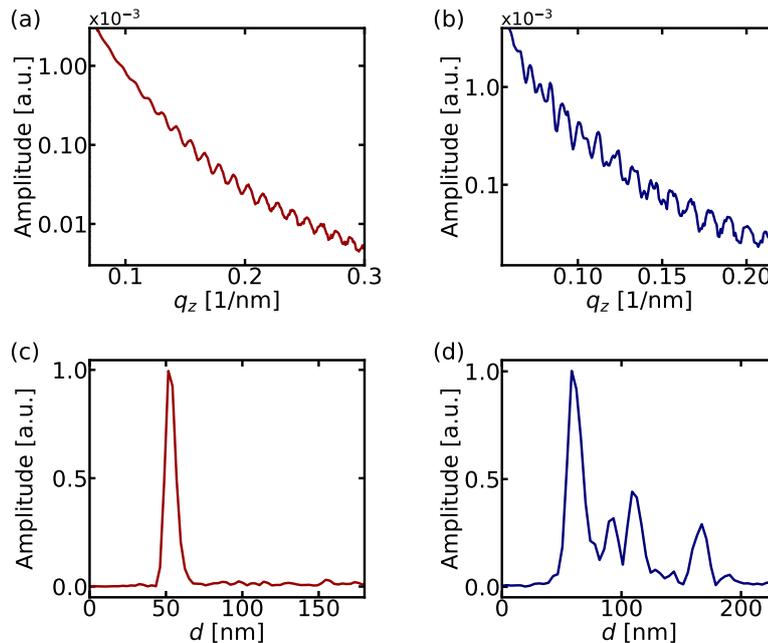
Der schematische, nicht maßstabsgetreue Aufbau der experimentell untersuchten Probe ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Die Probe besteht aus einem  $100\mu\text{m}$  dicken, mit metallorganischer Gasphasenepitaxie am IKZ-Berlin von der Arbeitsgruppe Jutta Schwarzkopf gewachsenen, in 110-Richtung geschnittenen Dysprosiumscandat-Substrat ( $\text{DyScO}_3$ ). An dessen Vorder- und Rückseite ist eine  $53\text{nm}$  beziehungsweise  $61\text{nm}$  dicke Strontiumruthenatschicht ( $\text{SrRuO}_3$ ) als optomechanischer Umwandler von Licht in Gitterschwingungen (engl. *transducer*) gewachsen. Auf der Rückseite ist zusätzlich eine  $104\text{nm}$  dicke Strontiumtitanatschicht ( $\text{SrTiO}_3$ ) gewachsen. Die beidseitig aufgebraute Strontiumruthenatschicht ermöglicht die Detektion einer an einer Probenseite angeregten und durch das Substrat propagierten Schallwelle an der anderen Seite. Diese Eigenschaft ist wesentlich für die experimentelle Untersuchung von Solitonen in Dysprosiumscandat. Die laterale Abmessung der Probe beträgt  $6\text{mm}$  in der Breite und  $10\text{mm}$  in der Länge. Die Probe zeichnet sich durch ein besonders dünnes Substrat aus, das jedoch im Verlauf der Messungen bei Anregungen mit  $35\text{mJ}/\text{cm}^2$  aufgrund der großen Temperaturgradienten und der schlechten Wärmeleitfähigkeit in mehrere Fragmente zerbrochen ist.



**Abbildung 2.1:** Aufbau der untersuchten Probe. Als Transducer dient auf beiden Seiten eine  $53\text{nm}$  beziehungsweise  $61\text{nm}$  dicke Strontiumruthenatschicht (SRO) auf einem  $100\mu\text{m}$  dicken Dysprosiumscandat-Substrat (DSO). Im Folgenden wird die Seite mit der zusätzlichen  $104\text{nm}$  dicken Strontiumtitanatschicht (STO) als Rückseite der Probe bezeichnet.

Alle in der Probe verwendeten Materialien weisen eine Perovskit-Struktur auf, deren allgemeine Formel  $\text{ABO}_3$  lautet. Für den Fall von kubischen Einheitszellen befinden sich die A-Atome an den Ecken jeder Einheitszelle, die B-Atome jeweils im Zentrum und die O-Atome zentriert auf den Seitenflächen der Einheitszellen. Die Schichtdicken der Strontiumruthenat-Transducer und der Strontiumtitanatschicht wurden mithilfe von in Abbildung 2.2 abgebildeten Röntgenreflektrometriedaten bestimmt. Dabei wurde bei konstanter Energie der Röntgenphotonen ein  $\theta$ - $2\theta$ -Scan an der Vorderseite und an der Rückseite durchgeführt und die integrierte Intensität für jeden Winkel aufgenommen. Die Winkel lassen sich über die Energie der Röntgenphotonen von  $9\text{keV}$  in einen Wellenvektor  $q_z$  senkrecht zur Probenoberfläche umrechnen. Die resultierenden auf die Totalreflexion normierten Intensitäten in Abbildung 2.2(a) und (b) weisen eine einer Schichtdickeninterferenz entsprechende Oszillation auf. Mithilfe einer Fouriertransformation lassen sich daraus die Schichtdicken bestimmen.

Für die Fouriertransformation der Reflexion an der Rückseite in Abbildung 2.2(d) sind vier Peaks zu erkennen, die beiden mittleren werden dabei beim Fitten zu einem Peak zusammengefasst, da es einen Peak vom STO, einen vom SRO und einen Peak für die Gesamtschichtdicke geben sollte. Nach dem Fitten der durch Fouriertransformation gewonnenen Peaks erhält man für die SRO-Schicht auf der Vorderseite  $d = 53 \text{ nm}$ , für SRO auf der Rückseite  $d = 61 \text{ nm}$  und für die STO-Schicht  $d = 104 \text{ nm}$ . Im Folgenden werden für die drei verwendeten Materialien wichtige Eigenschaften und Konstanten zusammengefasst dargestellt.



**Abbildung 2.2:** Röntgenreflektivitätsmessungen für die Bestimmung der Schichtdicken der aufgewachsenen Schichten. Die in (a) und (b) dargestellten Röntgenreflektivitäten zeigen die Reflektivität von der Vorder- beziehungsweise Rückseite der Probe mit Schichtdickeninterferenzen. Eine Fouriertransformation liefert die in (c) und (d) zu erkennenden Schichtdicken, wobei für die Rückseite drei Schichtdicken aufgrund der Interferenz zwischen den Reflexionen an den drei Grenzschichten zu erwarten ist. Deshalb werden der zweite und dritte Peak in (d) gemeinsam gefittet und geben Auskunft über die Dicke der STO-Schicht.

### Strontiumruthenat (SRO)

Die SRO-Schichten erfüllen in der Probe die Rolle des metallischen Transducers beziehungsweise die der optischen Detektionsschicht. Die wesentliche Eigenschaft eines Transducers, die Absorption des eingestrahnten Laserlichts, erfüllt SRO durch eine mit der Schichtdicke vergleichbaren Eindringtiefe von  $\xi = 52 \text{ nm}$ . Weitere Eigenschaften, die SRO als Transducer zur Erzeugung von Hyperschallwellen prädestinieren, sind eine schnelle Elektronen-Phononen-Wechselwirkung auf einer Zeitskala von  $150 \text{ fs}$  [19], sowie eine hohe Zerstörschwelle und ein großer linearer Ausdehnungskoeffizient, die die Anregung von großen Dehnungsamplituden von mehreren Prozent zulassen.

Ein Vergleich der dem Produkt aus Massendichte und Schallgeschwindigkeit entsprechenden Impedanzen von SRO und DSO ergibt ein Verhältnis der beiden Impedanzen von  $1,16$ . Diese zeigt, dass sich SRO als Transducer für das DSO-Substrats aufgrund der guten Impedanzanpassung zwischen den Materialien, welche Reflexionen der Hyperschallwelle an der Grenzfläche unterdrückt, sehr gut eignet. Das Unterdrücken der Reflexionen der Hyperschallwelle an der Grenzfläche zwischen Transducer und Substrat führt zu einer größeren, die Detektion und Untersuchung der Hyperschallwelle begünstigenden Dehnungsamplitude im Substrat.

Physikalische Größe	SRO	DSO	STO
Schallgeschwindigkeit $v_s$ [nm/ps]	6,31 [20]	6,78 [21]	7,8 [22]
Gitterkonstante $c$ [Å]	3,95 [23]	3,94 [21]	3,91 [24]
Masse der Einheitszelle $m$ [u]	236,69 [25]	255,45 [25]	183,46 [25]
Akustische Impedanz $Z$ [kg/(m <sup>2</sup> s)]	40228	47006	38303
Eindringtiefe $\xi$ (800nm) [nm]	52 [26]	–	–
Wärmekapazität $C$ (300K) [J/(molK)]	111 [20]	118 [27]	128 [28]
Lin. therm. Expansion $a$ (300K) [1/K]	$1,03 \cdot 10^{-5}$ [20]	–	–
Wärmeleitfähigkeit $\kappa$ (300K) [W/(mK)]	5,72 [20]	2,06 [27]	10 [29]
Nichtlin. elast. Konst. $C_3$ [kg/(m <sup>2</sup> s <sup>2</sup> )]	–	$-2,4 \cdot 10^{12}$ [10]	$-1,8 \cdot 10^{13}$ [8]
Bandlücke $E_g$ [eV]	0 [30]	5,7 [31]	3,8 [32]

**Tabelle 2.1:** Literaturwerte für Simulation und Experiment wichtiger physikalischer Größen von Strontiumruthenat, Strontiumtitanat und Dysprosiumscandat vergleichend dargestellt.

### Dysprosiumscandat (DSO)

Das als Isolator wirkende DSO-Substrat ist für den verwendeten Spektralbereich von 400 bis 800 nm transparent, da die in Tabelle 2.1 angegebene Bandlücke größer als die Energie der Photonen von 1,5 – 3,0 eV ist. Somit kann das elektronische System im DSO keinerlei Energie vom Laser absorbieren. Für DSO wurde bereits die Anharmonizität des Potentials in Form einer Aufspaltung der Schallgeschwindigkeit [9, 10], sowie eine geringe phononische Dämpfung, indiziert durch langlebige Brillouin-Oszillation [10], nachgewiesen. Diese Eigenschaften sind wichtige Voraussetzungen für eine Erzeugung und Detektion von akustischen Solitonen, wie in Kapitel 4.1.2 gezeigt wird.

In einer vorangegangenen Arbeit [10] wurde die nichtlineare elastische Konstante  $C_{3,DSO}$  durch den Vergleich eines gemessenen Phononenspektrums einer propagierenden Hyperschallwelle mit einem simulierten Phononenspektrum bestimmt. Weiterhin ist die temperaturabhängige und für kleinere Temperaturen ansteigende Schallgeschwindigkeit für DSO dokumentiert. [9]

### Strontiumtitanat (STO)

Die als Isolator wirkende STO-Schicht ist ebenso wie DSO für den verwendeten Spektralbereich von 400 bis 800 nm transparent. Die zusätzliche STO-Schicht auf der Rückseite der Probe erlaubt durch Drehen der Probe, wie in Abschnitt 3.1 noch beschrieben wird, eine Änderung der Form der erzeugten Hyperschallwelle und bedingt eine mit der räumlichen Trennung einhergehende zeitliche Trennung des kompressiven und expansiven Teils der Schallwelle.

Die im Gegensatz zu DSO wesentlich höhere nichtlineare elastische Konstante  $C_{3,STO}$  wurde, wie für DSO, durch den Vergleich des sich zeitlich ändernden gemessenen Phononenspektrums einer durch STO propagierenden Hyperschallwelle mit dem durch Simulationen erzeugten Phononenspektrum bestimmt [8]. Trotz seiner hohen mit der Nichtlinearität korrelierten Anharmonizität und guten Impedanzanpassung bezüglich SRO eignet sich STO nicht als Substrat für die Untersuchung von Solitonen, da bei 105 K ein struktureller Phasenübergang vorliegt, der auch bei niedrigen Temperaturen für eine hohe phononische Dämpfung sorgt [9, S.40].



## 3 Entstehung und lineare Propagation von Hyperschallwellen

In diesem Kapitel erfolgt zunächst eine theoretische Beschreibung der Erzeugung einer Hyperschallwelle durch die Laseranregung eines dünnen metallischen Transducers auf einem Substrat. Anschließend wird der Aufbau und die Vorgehensweise zur experimentellen Untersuchung von Hyperschallwellen in der im vorherigen Kapitel beschriebenen Probe dargestellt. Vor der abschließenden Präsentation der Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen werden aus theoretischer Sicht die Funktionsweise der Detektion einer Hyperschallwelle sowie die erwarteten Signaturen im Messergebnis diskutiert.

### 3.1 Anregung einer Hyperschallwelle

In diesem Abschnitt wird dargestellt, wie die Anregung einer in Kapitel 2 beschriebenen Probe mit einem Femtosekunden-Laserpuls zur Erzeugung einer propagierenden bipolaren Hyperschallwelle führt. Dabei wird auf die Generierung einer thermoelastischen mechanischen Spannung (engl. *stress*) und das zugrundeliegende Zwei-Temperatur-Modell eingegangen sowie eine Simulation der Anregung einer Hyperschallwelle dargestellt.

Ein ankommender Laserpuls wird von dem elektronischen System des SRO-Transducers gemäß dem Lambert-Beer-Gesetz mit der Eindringtiefe  $\xi$  absorbiert und führt durch die Anregung der Elektronen über die Fermienergie zu einer von der Fermi-Dirac-Verteilung abweichenden Verteilung eines Nichtgleichgewichtszustandes des Elektronensystems. Auf Grund einer inkohärenten Elektron-Elektron-Streuung kommt es zum Ausbilden einer einem thermischen Gleichgewichtszustand entsprechenden Fermi-Dirac-Verteilung höherer Temperatur. Diese Temperatur ist über die von der Sommerfeldkonstanten  $\gamma_S$  und der Elektronen-Temperatur  $T_e$  abhängenden Wärmekapazität  $C_e$  mit dem durch die Anregung der Elektronen induzierten Energiedichteprofil  $\rho_E(z) = dI(z)/dz$  verknüpft. [33, S.6f] Dabei beschreibt  $I(z)$  das nach Lambert-Beer exponentiell abfallende Intensitätsprofil des Anregepulses bei der Absorption im Transducer.

Neben dem elektronischen System spielt in den verwendeten Materialien das phononische System eine wichtige Rolle. Die Wechselwirkung der beiden Systeme wird durch das sogenannte Zwei-Temperatur-Modell beschrieben, das sich unter der für SRO berechtigten Annahme vernachlässigbarer Wärmeleitung auf Zeitskalen der Elektron-Phonon-Wechselwirkung [19] durch die Gleichungen 3.1 [34] beschreiben lässt.

$$\begin{aligned} C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= -g(T_e - T_p) \\ C_p(T_p) \frac{\partial T_p}{\partial t} &= g(T_e - T_p) \end{aligned} \quad (3.1)$$

Die resultierende Entwicklung des Elektron-Phonon-Systems für eine Anregung durch einen kurzen Laserpuls ist ein exponentieller Abfall der Elektronentemperatur  $T_e$  und ein exponentiell beschränkter Anstieg der Phonontemperatur  $T_p$  zu einer gemeinsamen Thermalisierungstemperatur  $T_\infty$ . Die Zeitskala der Thermalisierung in Folge der Laserpulsanregung des elektronischen Systems wird durch die Elektron-Phonon-Kopplung  $g$  sowie die Wärmekapazität der Elektronen  $C_e$  und die

Wärmekapazität der Phononen  $C_p$  gemäß der aus der Lösung der gekoppelten Differentialgleichungen 3.1 resultierenden Gleichung 3.2 bestimmt. [1, S.6]

$$\tau = \frac{1}{g} \cdot \frac{C_p C_e}{C_p + C_e} \quad (3.2)$$

Das resultierende Temperaturprofil  $T_\infty(z)$  des Kristalls folgt dem bereits angesprochenen Energiedichteprofil  $\rho_E(z)$ , welches durch das Unterdrücken von ballistischem und diffusivem Wärmetransport aufgrund der geringen freien Weglänge der Elektronen von 0,5 nm [35] und der schnellen Elektron-Phonon-Kopplung von 150 fs [19] in SRO erhalten bleibt. Das Konzept des in Gleichung 3.3 beschriebenen Grüneisen-Parameters  $\gamma$  [33] erklärt das Ausbilden eines aus der Kristalltemperatur resultierenden Spannungsprofils  $\sigma(z)$ .

$$\gamma = V \left[ \frac{\partial p}{\partial U} \right]_V \quad (3.3)$$

Der Grüneisenparameter beschreibt die Änderung des Drucks  $p$  bei Änderung der inneren Energie  $U$  eines Gases bei konstantem Volumen  $V$ . Anstelle von Druck wird in Festkörpern das Konzept von Spannung verwendet. Die resultierende Spannung  $\sigma(z)$  setzt sich aus der Spannung des Elektronengases  $\sigma_e$  und der Spannung des Phononengases  $\sigma_p$  zusammen. Nach der Thermalisierung der beiden Systeme kann die durch das Elektronengas generierte Spannung aufgrund der gegenüber der phononischen Wärmekapazität sehr kleinen elektronischen Wärmekapazität  $C_e$  vernachlässigt werden, sodass sich das durch Gleichung 3.4 mit der Zunahme der Temperatur des Festkörpers um  $\Delta T_\infty$  beschriebene Spannungsprofil ergibt. [1, S.7f]

$$\sigma(z) = -\tilde{\gamma}_p C_p(T_\infty) \Delta T_\infty(z) \quad (3.4)$$

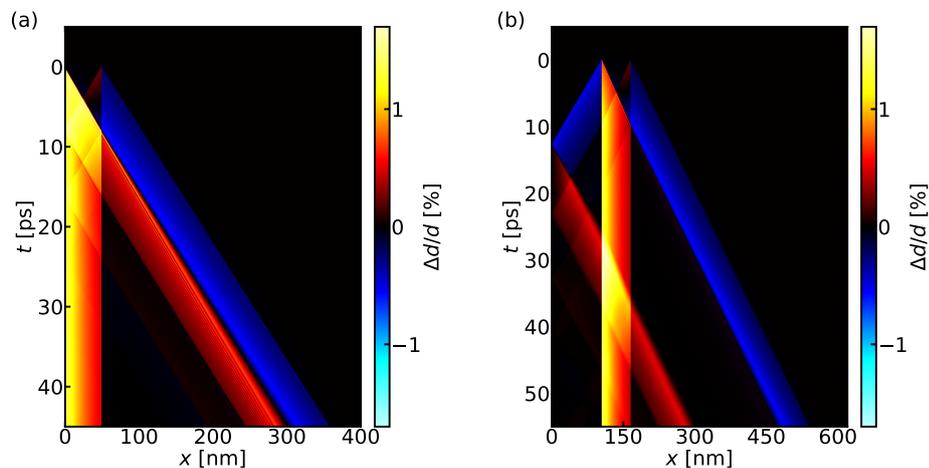
Unter der Annahme einer konstanten phononischen Wärmekapazität  $C_p$  und unter Ausnutzung von  $\rho_E = \rho C_p \Delta T_\infty$  und  $\tilde{\gamma}_p = 3B\alpha/C_p$  ergibt sich für das Spannungsprofil die in Gleichung 3.5 dargestellte Beziehung mit dem Kompressionsmodul  $B$ , dem linearen Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha$  und dem aus der laserinduzierten Anregung erhaltenen Energiedichteprofil  $\rho_E(z)$  [33, S.8]. Diese Beziehung gilt für isotrope Festkörper [36], welche eine gute Näherung für SRO darstellen.

$$\sigma(z) = -\frac{3B\alpha}{\rho C_p} \rho_E(z) \quad (3.5)$$

Der angeregte Transducer mit dem dahinterliegenden Substrat kann aufgrund des Unterschieds in der Größenordnung zwischen der Dicke des Transducers und der durch den Anregestrahldurchmesser bedingten Anregungsfläche als eindimensionale Kette gekoppelter Oszillatoren betrachtet werden. Die durch die Laserpulsanregung eingebrachte Spannung kann in diesem Modell als zum Zeitpunkt  $t = 0$  zwischen den Einheitszellen des Transducers eingebrachte inkompressible Abstandshalter, deren Länge von dem Betrag des Spannungsprofils  $\sigma(z)$  abhängt, interpretiert werden. Die eingebrachten Abstandshalter verschieben die Gleichgewichtslage der einzelnen Einheitszellen und stauchen die Federn zwischen diesen. An den Grenzflächen des Transducers ist die Spannung aufgrund des großen Gradienten der potentiellen Energie der Federn nicht im Gleichgewicht und es bildet sich für  $t > 0$  infolge der Ausdehnung der komprimierten Federn eine Dehnung (engl. *strain*)  $\varepsilon = \Delta d/d$ , also eine Verschiebung der Einheitszellen relativ zur ursprünglichen Gleichgewichtslage, aus. Diese von den Grenzflächen ausgehende Expansion breitet sich im Transducer gemäß des Spannungsprofils aus. Eine mathematische Beschreibung der Propagation einer solchen Dehnung unter Einbeziehung der Anharmonizität des DSO-Substrats erfolgt in Kapitel 4.1.

Zusammenfassend führt die Anregung eines großen Spannungsgradienten entsprechenden, dünnen Transducers bei einer energiedichteprofilerhaltenden schnellen Elektron-Phonon-Kopplung zu einer kohärenten Dehndynamik mit großer Amplitude und scharfer Form. Diese Dehndynamik ist spektral breit und beinhaltet Frequenzkomponenten im Terahertzbereich. Aufgrund des breiten Spektrums und der hohen Frequenzen der resultierenden Schallwelle wird diese auch als Hyperschallwelle bezeichnet.

In Abbildung 3.1 ist die, mit der in Ref. [37] beschriebenen Toolbox *udkm1Dsim* simulierte, resultierende Dynamik nach der Anregung eines SRO-Transducers mit einer Fluenz von  $31 \text{ mJ/cm}^2$  und Vernachlässigung der phononischen Dämpfung dargestellt. Dabei wurde sowohl eine Anregung der Vorderseite (a) der in Kapitel 2 charakterisierten Probe, als auch eine Anregung von der Rückseite (b) simuliert. Für beide Fälle sind die von den Grenzflächen des SRO-Transducers in das Substrat laufende Kompression und Expansion zu erkennen. Nachdem die kohärente Dehndynamik den SRO-Transducer verlassen hat, ist das unter Vernachlässigung von Wärmeleitung konstante, dem Spannungsprofil  $\sigma(z)$  proportionale Dehnungsprofil  $\varepsilon(z)$  des Transducers zu erkennen.



**Abbildung 3.1:** Die simulierte Anregung einer Hyperschallwelle mit einer Fluenz von  $31 \text{ mJ/cm}^2$  und vernachlässigter Dämpfung an beiden Seiten der Probe. Es ist die Dehnung in Abhängigkeit von der Zeit nach der Anregung und der Tiefe der Probe dargestellt, wobei negative Dehnung einer Kompression und positive Dehnung einer Expansion entspricht. Die Anregung der SRO-Schicht an der Vorderseite in (a) zeigt die Entstehung der Dehnung im Transducer und die resultierende bipolare Schallwelle. Die Form unterscheidet sich von der in (b) beim Anregen der Rückseite entstehenden bipolaren Schallwelle aufgrund der in diesem Fall zunächst erfolgenden Kompression der STO-Schicht.

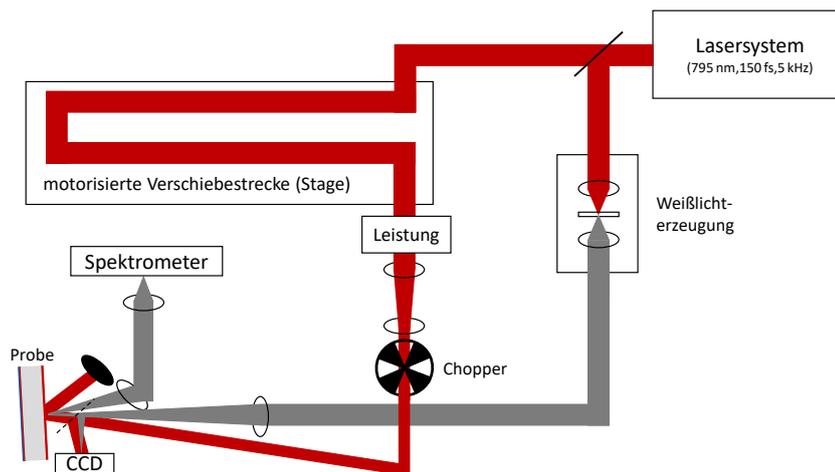
Für die Anregung an der Vorderseite führt die Expansion des SRO-Transducers an der Grenzfläche Transducer-Substrat zu einer in das DSO-Substrat propagierenden Kompression mit einer dem Spannungsprofil  $\sigma(z)$  entsprechenden Form. Die Kompression des Substrats erfolgt bis zur Ankunft der von der Grenzfläche Transducer-Luft durch den Transducer propagierten Expansion, welche aufgrund der guten Impedanzanpassung aus dem Transducer in das Substrat propagiert. Die Amplitude der Reflexion an der SRO-DSO-Grenzschicht aufgrund der nicht perfekten Impedanzanpassung ist sehr gering und die Propagation in das Substrat nach der Reflexion an der Oberfläche kaum erkennbar. Als Resultat der Anregung erhält man eine bipolare Schallwelle mit einer der Expansion vorauslaufenden Kompression im DSO-Substrat. Die Beschreibung der nichtlinearen Propagation im Substrat erfolgt in Kapitel 4.1.

Im Gegensatz zu der in Abbildung 3.1(a) dargestellten Anregung der Vorderseite befindet sich bei der in Abbildung 3.1(b) dargestellten Anregung der Rückseite eine STO-Schicht in Anregungs-

richtung vor dem SRO-Transducer. Dieser wird durch die Expansion des Transducers in Folge der Laserpulsanregung komprimiert. Diese Kompression propagiert zur Grenzschicht STO-Luft, an der die Kompression durch die Reflexion am losen Ende zu einer durch den Transducer in das DSO-Substrat propagierenden Expansion wird. Der kompressive und expansive Teil der bipolaren Schallwelle haben an der Grenzfläche Transducer-Substrat einen durch die Schallgeschwindigkeit im STO und die Dicke der STO-Schicht bestimmten zeitlichen Abstand von 26,7ps.

### 3.2 Experimenteller Aufbau

Das in dieser Arbeit verwendete experimentelle Vorgehen ist ein Anrege-Abfrage-Experiment (engl. *pump-probe*). Dabei wird der von dem aus einem Oszillator (Mai-Tai, Spectra-Physics), einem Pump Laser (Ascend, Spectra-Physics) und einem regenerativen Verstärker (Spitfire, Spektra-Physics) bestehenden Lasersystem mit einer Repetitionsrate von 5 kHz emittierte, 150fs lange Puls mit einer Zentralwellenlänge von 795 nm und einer Pulsenergie von 0,22mW mithilfe eines Strahlteilers in einen intensiven Anregepuls (engl. *pump*) und einen schwachen Abfragepuls (engl. *probe*) aufgeteilt. Der Anregepuls regt dabei die Probe an, während der Abfragepuls die infolge der Anregung veränderten optischen Eigenschaften detektiert.



**Abbildung 3.2:** Aufbau für die Hyperschalluntersuchungen an der Vorderseite der Probe. Das Lasersystem erzeugt 150fs lange Pulse mit einer Zentralwellenlänge von 795nm, in der Abbildung mit rot gekennzeichnet. Der Strahl wird in einen Anrege- und einen Abfragestrahl geteilt, deren relativer Zeitversatz über eine motorisierte Verschiebestrecke eingestellt werden kann. Die Leistung des Anregepulses wird mit Hilfe einer Kombination aus  $\lambda/2$ -Wellenplatte und Polarisator eingestellt, seine Größeneinstellung erfolgt über ein Linsenteleskop. Der mit einer festen Frequenz rotierende Chopper erlaubt ein wechselndes Messen zwischen laserangeregter und nicht angeregter Probe. Der Abfragepuls wird in ein Saphir-Plättchen fokussiert und erzeugt dort ein in der Abbildung grau dargestelltes Weißlicht, welches auf die Probe fokussiert wird und dessen Reflexion in ein Spektrometer geleitet wird. Die durch das Reinklappen des als gestrichelte Linie gekennzeichneten Klappspiegels integrierbare CCD-Kamera erlaubt die Messung der Spotgrößen auf der Probe.

Der experimentelle Aufbau für die Hyperschalluntersuchungen ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Der vom Lasersystem emittierte Puls wird von einem Strahlteiler in einen intensiven Anregepuls und einen schwächeren Abfragepuls geteilt. Der Abfragepuls wird für die Erzeugung eines

Superkontinuum-Weißlichts unter Ausnutzung des Kerr-Effekts und der Selbstphasenmodulation [38] in ein Saphirplättchen fokussiert und anschließend von einer Zerstreulinse wieder kollimiert. Der kollimierte in der Abbildung 3.2 mit grau gekennzeichnete Weißlicht-Abfrage-Strahl wird nun auf die Probe fokussiert und die Reflexion für eine spektral breitbandige Detektion der Änderungen der optischen Eigenschaften der Probe in ein Spektrometer geleitet. Der Anregepuls wird nach dem Durchlaufen einer Kombination aus  $\lambda/2$ -Platte und Polarisator für die Leistungseinstellung mit einer Maximalleistung von 900mW sowie einem aus Sammel- und Zerstreulinse bestehenden Teleskop für die Einstellung der Größe des Anregestrahls ebenfalls auf die Vorderseite der Probe gelenkt.

Der zeitliche Abstand des Anrege- und Abfragepulses lässt sich über eine motorisierte Verschiebestrecke einstellen, die der Anregepuls durchläuft. Ein rotierender Chopper moduliert den Anregestrahl mit 125 Hz und erlaubt das abwechselnde Messen einer angeregten und nicht angeregten Probe für die Bildung einer relativen Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R$ . Dieses abwechselnde Messen der Reflektivität der angeregten Probe  $R_a$  und der Reflektivität der nicht angeregten Probe  $R$  unterdrückt Einflüsse von Langzeitdrifts der Laserleistung und des Weißlichts in den Messergebnissen und trägt so zur Signalverbesserung bei. Die Einstellmöglichkeit der Leistung und der Größe des Anregestrahls erlaubt die Einstellung der sogenannten Fluenz [ $\text{mJ}/\text{cm}^2$ ]. Diese entspricht der Pulsenergie pro durch die *Full-Width-Half-Maximum*-Breite (FWHM) vorgegebenen Fläche des Anregestrahls und ist proportional zu der durch den Anregepuls deponierten Energie in der Probe. Die Position der eingezeichneten CCD-Kamera relativ zum Klappspiegel wird so gewählt, dass der nach dem in Abbildung 3.5 dargestellten Signal justierte räumliche Überlapp von Anrege- und Abfragepuls auf der Kamera abgebildet wird. Durch diese Positionierung entspricht das von der CCD-Kamera aufgenommene Bild einer genauen Abbildung der Laserlichtverteilung auf der Probe, sodass sich mit Hilfe der Kamera sowohl der räumliche Überlapp überprüfen als auch die Spotgrößen der einzelnen Strahlen auf der Probe messen lassen.

Die Probe wurde mithilfe von Silberleitpaste an der Vorderseite eines Kupferhalters der Breite 10mm und der Länge 15mm mit einer Aussparung mit den Abmessungen 4,5mm in der Breite und 8,5mm in der Länge befestigt, sodass die Ränder der Probe im Kontakt zum Kupfer stehen und eine Transmission der Laserstrahlen durch die Probe möglich ist. Dieser Kupferhalter wird auf einem befestigbaren, drehbaren, aus Kupfer bestehenden Probenhalter mit Silberleitpaste aufgeklebt, welcher entsprechend Abbildung 3.2 mit der Vorderseite zum erzeugten Weißlicht positioniert wird.

### 3.3 Detektion der propagierenden Hyperschallwelle

Nachdem in Abschnitt 3.1 die Erzeugung einer Hyperschallwelle und in Abschnitt 3.2 der experimentelle Aufbau zur Untersuchung der Hyperschallwellen in DSO beschrieben wurden, werden in diesem Abschnitt der Detektionsmechanismus und die zugrundeliegenden physikalischen Gesetze der Detektion der Hyperschallwelle dargestellt.

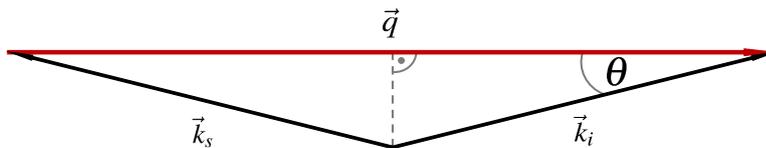
Wie in Abbildung 3.2 zu erkennen ist, wird im Experiment die Reflektivität der Probe gemessen und anschließend die relative Reflektivitätsänderung ausgewertet. Es wird also der Einfluss der Hyperschallwelle auf die Reflektivität der Probe experimentell untersucht. Eine Reflexion von Licht findet gemäß den Fresnelschen Formeln [39, S.224] immer nur an der Grenzfläche eines sich ändernden Brechungsindex statt. Der Brechungsindex hängt von der komplexen dielektrischen Funktion  $\epsilon$  des Mediums ab [40, S.581], die wiederum von der elektronischen Bandstruktur des Festkörpers bestimmt wird. [41, S.234] Die Bandstruktur eines periodischen Festkörpers lässt sich mit dem Bloch-Formalismus beschreiben, der unter Annahme eines gitterperiodischen Potentials bei einer Fouriertransformation der zugehörigen Ein-Elektron-Schrödinger-Gleichung Energieeigenwerte  $E_n(\vec{k})$  liefert. Diese Beschreibung führt zu einer wellenvektorabhängigen Bandstruktur

einzelner, durch Bandlücken getrennter Energiebänder in der Brillouin-Zone. [40, S.317ff] Da die Energieeigenwerte der Bandstruktur von dem durch die Atome der Einheitszelle bedingten gitterperiodischen Potential abhängen, führt eine Verschiebung der Atome der Einheitszelle zu einer lokalen Änderung der Bandstruktur und somit zu einer Veränderung der dielektrischen Funktion und des Brechungsindex. Diese Abhängigkeit der Energieeigenwerte von der Dehnung wird in der Halbleiterphysik auch als Deformationspotential  $\partial E_e(\vec{k})/\partial \varepsilon$  bezeichnet. [1, S.8] Die durch die Änderung der dielektrischen Funktion implizierte lokale Änderung des Brechungsindex erlaubt die Detektion eines Dehnungsgradienten durch eine Änderung der Reflektivität.

Die makroskopische Änderung des Brechungsindex und die resultierende Reflektivitätsänderung lässt sich mikroskopisch auch als Streuung der Photonen des Weißlichts an den akustischen Phononen des Phononenspektrums der Hyperschallwelle verstehen. Diese sogenannte Brillouin-Streuung muss den Energie- und Impulserhaltungssatz erfüllen. Im verwendeten Spektralbereich von 400 bis 800nm kann aufgrund der vergleichsweise geringen Energie der akustischen Phononen die Annahme einer quasi-elastischen Streuung der Photonen getroffen werden. Damit gilt für den in Abbildung 3.3 schematisch dargestellten Streuprozess für die Wellenvektoren des einfallenden Photons  $\vec{k}_i$  und des gestreuten Photons  $\vec{k}_s$  die Beziehung  $|\vec{k}_s| = |\vec{k}_i|$ . Unter Berücksichtigung der Impulserhaltung gemäß der in Abbildung 3.3 illustrierten Laue-Bedingung ergibt sich für den Wellenvektor des Phonons  $\vec{q}$  die Beziehung nach Gleichung 3.6, in der der Wellenvektor des Photons durch seine Wellenlänge  $\lambda$  und den Brechungsindex  $n$  ausgedrückt wird.[10, S.62]

$$\begin{aligned} |\vec{q}| &= 2\vec{k}_i \cdot \frac{\vec{q}}{|\vec{q}|} \\ &= n \frac{4\pi}{\lambda} \cos(\theta) \end{aligned} \quad (3.6)$$

Der Winkel  $\theta$  bezeichnet den aus dem Einfallswinkel des Weißlichts auf die Probe über das Snelliussche Brechungsgesetz bestimmbar, in Abbildung 3.4 eingezeichneten Einfallswinkel in der Probe. Der durch den Strahlengang des Abfragestrahls vorgegebene Einfallswinkel  $\theta$  ist über den wellenlängenabhängigen Brechungsindex von DSO ebenfalls wellenlängenabhängig. Photonen unterschiedlicher Wellenlängen  $\lambda$  streuen gemäß Gleichung 3.6 an Phononen des entsprechenden Wellenvektors  $\vec{q}$ . Die Streuamplitude einer Abfragewellenlänge ist somit proportional zur spektralen Amplitude  $A(q)$  der Schallwelle.

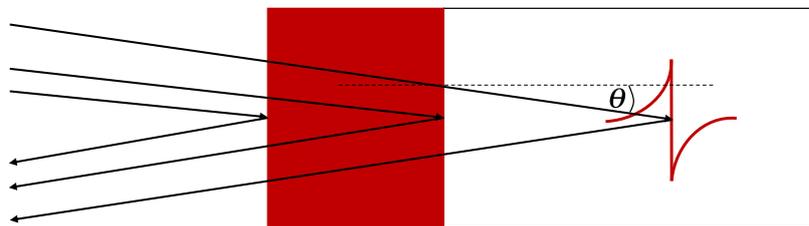


**Abbildung 3.3:** Grafische Darstellung des Impulserhaltungssatzes für den Brillouin-Streuprozess zwischen einem einfallenden Photon mit einem Wellenvektor  $\vec{k}_i$ , einem Phonon mit dem Wellenvektor  $\vec{q}$  und dem gestreuten Photon mit dem Wellenvektor  $\vec{k}_s$  unter der Annahme eines quasi-elastischen Streuprozesses. Der eingezeichnete Winkel  $\theta$  bezeichnet den Einfallswinkel des Weißlichts in der Probe.

Insgesamt lässt sich das aufgenommene relative Reflektivitätsänderungssignal theoretisch durch Gleichung 3.7 beschreiben. [10, S.61]

$$\frac{R_a - R}{R} = \frac{|r'|^2 - |r|^2}{|r|^2} + \frac{2|r_s||r'| \cos(\phi(t))}{|r|^2} + \frac{|r_s|^2}{|r|^2} \quad (3.7)$$

Dabei entspricht  $|r|^2$  der Reflektivität des nicht angeregten und  $|r'|^2$  der des angeregten Transducers sowie  $|r_s|^2$  der Reflektivität der Schallwelle. Zu den Reflektivitäten gehören die mit Kleinbuchstaben bezeichneten Reflexionsamplituden. Die Reflektivität des angeregten Transducers wird dabei von der Anregung des elektronischen Systems auf der einen Seite und der Modulation der dielektrischen Funktion durch eine propagierende Dehnung auf der anderen Seite beeinflusst. Die Phasenbeziehung zwischen den Reflexionen vom Transducer und von der propagierenden Schallwelle wird, wie in Abbildung 3.4 dargestellt, durch die zeitabhängige Phase  $\phi(t)$  ausgedrückt. Für die weitere Betrachtung wird, wie schon in Abbildung 3.4 und allgemein üblich [1, 33, 10], nur die Reflexion der Schallwelle als Ganzes und nicht die Reflexion an jeder einzelnen Dehnungsänderung betrachtet. Weiterhin wird nur die Interferenz der Reflexion von der Schallwelle und von der Grenzschicht Luft-Transducer berücksichtigt, da die Reflexion von der Grenzschicht Transducer-Substrat aufgrund der Absorption des Abfragestrahls durch den metallischen Transducer vernachlässigt werden kann.



**Abbildung 3.4:** Die Reflexion des durch schwarze Pfeile gekennzeichneten Weißlichts an der Probe. Es sind die Reflexion an den Grenzflächen Transducer-Luft und Transducer-Substrat sowie an der im Substrat propagierenden bipolaren Schallwelle zu erkennen. Bei der Detektion des reflektierten Abfragestrahls kommt es zu einer Interferenz der verschiedenen reflektierten Anteile. Der Strahlverlauf beinhaltet hier vereinfachend keinerlei Brechungen an den Grenzflächen, welche in der Probe jedoch eine Rolle spielen.

Äquivalent zur Phase  $\phi(t)$  ist eine Betrachtung der Interferenzbedingung für konstruktive Interferenz zwischen der Reflexion an der Schallwelle und der an der Oberfläche der Probe. Diese Bedingung ist in Gleichung 3.8 dargestellt. Dabei beschreibt  $m\lambda$  die ganzzahligen Vielfachen der Wellenlänge. Da die Schallwelle in das Substrat propagiert vergrößert sich der Abstand  $s$  zwischen Hyperschallwelle und Oberfläche der Probe mit der Zeit gemäß  $s(t) = v_{s,DSO}t$  mit der Schallgeschwindigkeit  $v_{s,DSO}$  im DSO-Substrat.

$$m\lambda = 2s \cdot n \cdot \cos(\theta) \quad (3.8)$$

Durch Einsetzen der Bedingung für  $s(t)$  ergibt sich Gleichung 3.9 für die Oszillationsperiode des zweiten Terms in Gleichung 3.7 aufgrund der sich zeitlich ändernden Phase  $\phi(t)$  zwischen den interferierenden Strahlen.

$$\tau = \frac{t}{m} = \frac{\lambda}{2v_{s,DSO}n \cos(\theta)} \quad (3.9)$$

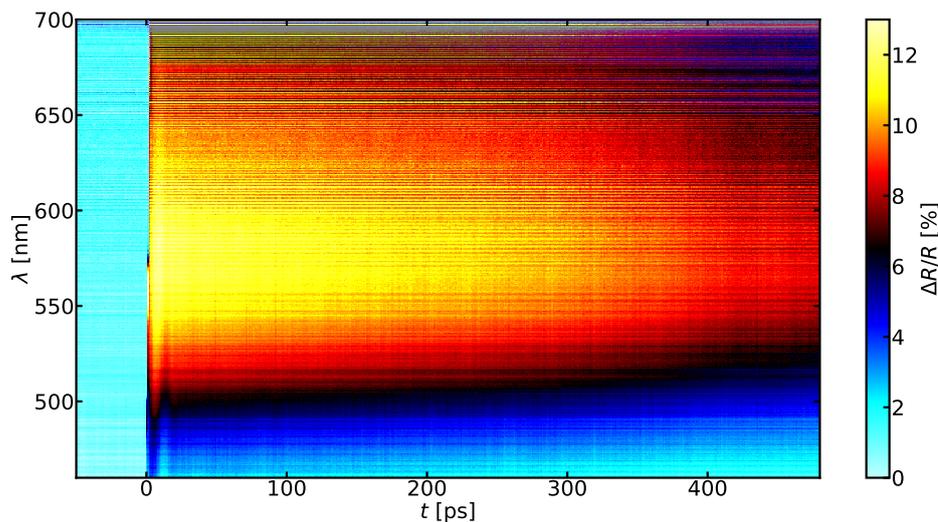
Zusammenfassend wird neben einer wellenlängenabhängigen Oszillation der durch das Substrat propagierenden Hyperschallwelle, welche dem zweiten Term in Gleichung 3.7 entspricht, auch eine mit der Zeit aufgrund von Diffusion exponentiell abklingende Reflektivitätsänderung des angeregten Transducers über einen breiten Spektralbereich gemäß dem ersten Term in Gleichung 3.7 erwartet.

Weiterhin sollte eine Reflektivitätsänderung des Transducers durch die zur Bildung einer Hyperschallwelle führende Dehnung im SRO gemäß den Betrachtungen in Kapitel 3.1 zu beobachten sein. Der dritte Term kann aufgrund der geringen Reflektivität der Schallwelle vernachlässigt werden.

### 3.4 Auswertung der experimentellen Ergebnisse

Für alle in diesem Teil der Arbeit präsentierten Messungen wurde die Spotgröße des Anregepulses mit einer Halbwertsbreite um  $600\mu\text{m}$  und für den Abfragepuls mit einer Halbwertsbreite um  $40\mu\text{m}$  eingestellt. Für die Fluenzangaben wird als Fläche die durch die *FWHM*-Breite definierte Fläche verwendet und der Einfallswinkel der Laserstrahlen für die effektive Fläche auf der Probe berücksichtigt.

In diesem Abschnitt wird zunächst eine typische Messung eines optischen zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Experiments gezeigt und mit den in Abschnitt 3.3 erläuterten Ursachen der Reflektivitätsänderung verglichen. Anschließend wird die Entstehung der Hyperschalldynamik im SRO näher untersucht und abschließend mit zeitaufgelöster Brillouin-Streuung die Schallgeschwindigkeit einer propagierenden Hyperschallwelle in DSO bestimmt.



**Abbildung 3.5:** Darstellung des Messsignals für die Durchführung eines vorderseitigen Anrege-Abfrage-Experiments mit dem in Abbildung 3.2 dargestellten Aufbau. Die Fluenz des Anregepulses betrug  $37\text{mJ}/\text{cm}^2$  und der Einfallswinkel auf der Probe betrug  $5^\circ$ . Gezeigt ist die relative Reflektivitätsänderung zwischen angeregter Probe (Chopper offen) und nicht angeregter Probe (Chopper geschlossen) in Abhängigkeit vom zeitlichen Versatz von Anrege- und Abfragepuls für einen Abfragewellenlängenbereich von 450 bis 700nm. Beim zeitlichen Überlapp der beiden Pulse ist ein sprunghafter Anstieg der relativen Reflektivitätsänderung zu erkennen, welcher anschließend auf großen Zeiten abfällt.

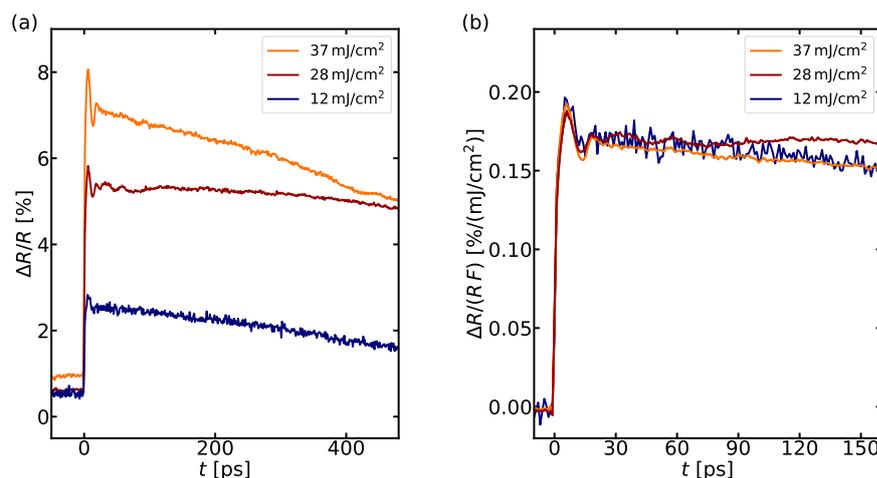
Wird eine Messung mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Aufbau bei einer Fluenz von  $37\text{mJ}/\text{cm}^2$  unter einem Einfallswinkel des Abfragestrahls von  $5^\circ$  mit annähernd p-polarisiertem Weißlicht durchgeführt, erhält man das in Abbildung 3.5 dargestellte Ergebnis. In der Messung sind die in Kapitel 3.3 besprochenen Signaturen zu erkennen.

Zum einen ist bei gleicher Ankunftszeit von Anrege- und Abfragepuls über den dargestellten Spektralbereich von 450 bis 700nm eine sprunghafte Änderung der relativen Reflektivitätsänderung von bis zu 12% zu erkennen. Diese Änderung beruht auf der Anregung des Transducers durch

den Anregepuls und die damit verbundene Änderung der dielektrischen Funktion aufgrund des heißen Elektronengases. Weiterhin ist in den folgenden 10 ps im Bereich von 450 bis 550 nm besonders deutlich eine Abnahme mit darauf folgender Zunahme der Reflektivität zu erkennen. Diese Beobachtung lässt sich als eine im Transducer induzierte, über den optoelastischen Effekt, eine dehnungsbedingte Modulation der Bandstruktur, detektierte Schalldynamik interpretieren. Diese Dynamik wird im Zuge der Auswertung von Abbildung 3.7 näher untersucht. Zum anderen lässt sich auf größeren Zeitskalen eine schwache wellenlängenabhängige Oszillation in der Reflektivitätsänderung beobachten, die eine propagierende Schallwelle indiziert. Insgesamt ist auf langen Zeitskalen eine Abnahme der Reflektivitätsänderung des angeregten Transducers zu erkennen. Diese Abnahme lässt sich als Wärmetransport vom Transducer in das Substrat verstehen.

### 3.4.1 Entstehung der Hyperschallwelle

Im Folgenden wird die Reflektivitätsänderung aufgrund der Hyperschalldynamik innerhalb des angeregten SRO-Transducers näher analysiert. Dazu ist die von 480 bis 530 nm gemittelte Reflektivitätsänderung für verschiedene Fluenzen in Abhängigkeit vom zeitlichen Abstand von Anrege- und Abfragepuls in Abbildung 3.6(a) dargestellt.



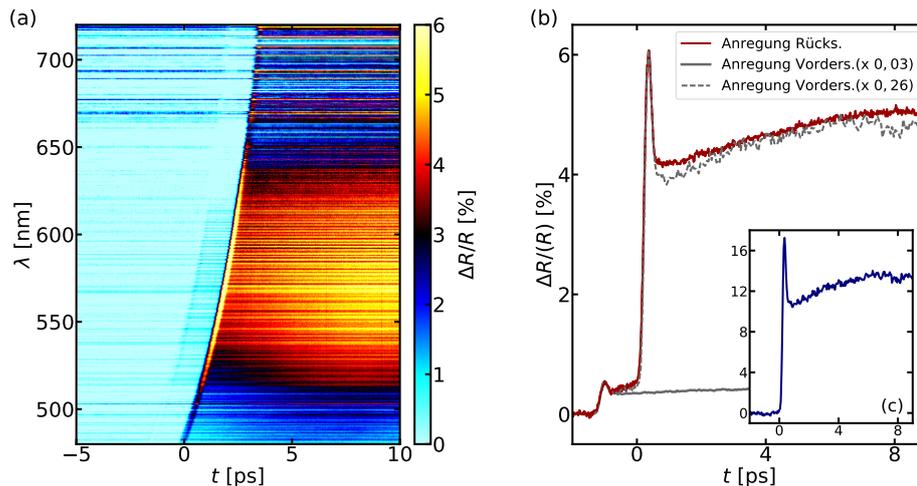
**Abbildung 3.6:** Untersuchung der Reflektivitätsänderung durch Laserpulsanregung des Transducers. In (a) ist die von 480-530 nm gemittelte, zeitabhängige Reflektivitätsänderung für verschiedene Fluenzen dargestellt. Diese Reflektivitätsänderungen werden in (b) auf die Fluenz normiert. Diese Normierung führt zu einer gleichen Amplitude, welche einem linearen Verhalten der Signalamplitude mit der Fluenz entspricht.

Für größere Fluenzen ist ein größerer sprunghafter Anstieg bei gleicher Ankunftszeit von Anrege- und Abfragepuls zu beobachten. Weiterhin ist die bereits in Abbildung 3.5 beobachtete Schalldynamik im SRO für größere Fluenzen stärker ausgeprägt. Das unterschiedliche Abklingverhalten für große Verzögerungszeiten wird durch eine unterschiedliche unbeabsichtigte Entwicklung des Überlapps durch Verschiebung der motorisierten Verschiebestrecke bedingt.

Um die Fluenzabhängigkeit der laserinduzierten Reflektivitätsänderung näher zu untersuchen, wird die Reflektivitätsänderung der Messungen in Abbildung 3.6(a) auf die Fluenz normiert und die Reflektivitätsänderung vor  $t = 0$  auf Null gesetzt. Diese Reflektivitätsänderung pro mJ/cm<sup>2</sup> ist in Abbildung 3.6(b) dargestellt. Für die unterschiedlichen Fluenzen ist in dieser normierten Darstellung die Amplitude der sprunghaften Änderung der Reflektivität bei gleichzeitiger Ankunft von Anrege- und Abfragepuls gleich. Diese Beobachtung lässt auf eine lineare Beziehung zwischen der Fluenz

und der durch die Anregung des Transducers induzierten Reflektivitätsänderung schließen. Das größere Rauschen der Messung bei  $12 \text{ mJ/cm}^2$  lässt sich durch die kürzere Messzeit und die damit verbundene schlechtere Statistik begründen.

Mit Kenntnis des linearen Zusammenhangs zwischen der Fluenz und der Reflektivitätsänderung des angeregten Transducers lässt sich unter Ausnutzung der beidseitig auf dem DSO-Substrat gewachsenen SRO-Transducer die Eindringtiefe der  $800 \text{ nm}$  der Anregestrahlung im SRO-Transducer bestimmen. Dazu wird der in Abbildung 3.2 beschriebene Aufbau mittels Umleiten des Anregestrahls von der Vorderseite auf die Rückseite modifiziert (siehe Kapitel 4.2).



**Abbildung 3.7:** Bei einer Messung mit einem vorderseitigen Abfragestrahl und einem rückseitigen Anregestrahler erhält man das in (a) dargestellte Messergebnis für eine Fluenz von  $25 \text{ mJ/cm}^2$ . Die in (b) dargestellte von  $555$  bis  $565 \text{ nm}$  gemittelte Reflektivitätsänderung weist zwei sprunghafte Anstiege der Reflektivität unterschiedlicher Amplitude auf. Diese lassen sich jeweils mit einer unterschiedlich skalierten, in (c) abgebildeten Reflektivitätsänderung bei vorderseitigem Anrege- und Abfragestrahl und einer Fluenz von  $30 \text{ mJ/cm}^2$  modellieren.

In Abbildung 3.7(a) ist das Messergebnis des modifizierten Aufbaus mit einem Einfallswinkel von  $5^\circ$  zu erkennen. In dieser kleinschrittigen Messung um den Zeitnullpunkt ist der bei der Weißlichterzeugung entstehende Chirp des Abfragepulses mit einer späteren Ankunftszeit der Photonen mit größerer Wellenlänge zu erkennen. Dies bedingt einen wellenlängenabhängigen Zeitnullpunkt von Anrege- und Abfragepuls. Weiterhin fällt im Vergleich zu Abbildung 3.5 die Stufe mit einem Maximum  $1,2 \text{ ps}$  vor der eigentlichen sprunghaften, als Anregung des Transducers identifizierten Änderung der Reflektivität auf. Unter Berücksichtigung des Brechungsindex von DSO von ungefähr 2 im verwendeten Spektralbereich [10, S.67] entspricht dieser Abstand einer Propagation von Licht durch  $200 \mu\text{m}$  DSO. Damit ergibt sich eine Interpretation der Stufe als Reflektivitätsänderung der SRO-Schicht auf der Rückseite und die stärkere sprunghafte Änderung als Reflektivitätsänderung des SRO-Transducers an der Vorderseite. Die Verschiebung der detektierten Reflektivitätsänderungen des vorderseitigen beziehungsweise rückseitigen Transducers um die zweifache Propagationszeit von Licht durch die Probe ergibt sich, da der Anregepuls relativ zur gleichzeitigen Ankunft mit dem Abfragepuls an der Vorderseite der Probe für eine gleichzeitige Ankunft an der Rückseite gemäß seiner Propagationszeit und zusätzlich der Propagationszeit des Abfragepulses durch die Probe später kommen muss. Dabei entspricht ein späterer Anregepuls einer negativen Verzögerungszeit zwischen Anrege- und Abfragepuls.

Die von  $555$  bis  $565 \text{ nm}$  gemittelte Reflektivitätsänderung in Abbildung 3.7(b) kann durch unterschiedliche Skalierung der in (c) dargestellten von  $555$  bis  $565 \text{ nm}$  gemittelten Reflektivitätsänderung

bei vorderseitigem Anrege- und Abfragestrahl und einer Fluenz von  $30\text{mJ}/\text{cm}^2$  modelliert werden. Die mit grau dargestellte Modellierung zeigt die Überlagerung zweier Anteile, zum einen der Reflektivitätsänderung des vorderseitigen und zum anderen die Reflektivitätsänderung des rückseitigen Transducers. Die Reflektivitätsänderung der bei rückseitiger Anregung zuerst erfolgenden Anregung des Transducers auf der Rückseite der Probe zeigt unter Berücksichtigung des Fluenzverhältnisses einen Skalierungsfaktor von 0,04. Die Amplitude der von der Rückseite stammenden Reflektivitätsänderung ist sehr klein, da das Weißlicht zweimal durch das absorbierende SRO transmittiert werden muss und durch die resultierende Abschwächung im Vergleich zur unveränderten Reflektivität des Transducers auf der Vorderseite kaum ins Gewicht fällt. Weiterhin ist die Reflektivität der SRO-Schicht auf der Vorderseite aufgrund der unterschiedlichen Grenzflächen nach den Fresnelschen Formeln [39, S.224] 4-mal so groß wie der Reflektivität der rückseitigen SRO-Schicht. Unter Berücksichtigung dieser Erkenntnisse ergibt sich für SRO eine Eindringtiefe von  $\xi = 55\text{nm}$  für Licht der Wellenlänge von  $560\text{nm}$ .

Für die  $1,2\text{ps}$  später hinzukommende Reflektivitätsänderung des angeregten Transducers auf der Vorderseite ergibt sich mit dem Fluenzverhältnis zu der in Abbildung 3.7(c) dargestellten Messung ein Skalierungsfaktor von 0,30. Die Reflektivitätsänderung der vorderseitigen SRO-Schicht ist bei rückseitiger Anregung kleiner als bei vorderseitigen Anregung, da der Anregepuls bei der Transmission durch das SRO auf der Rückseite abgeschwächt wird. Daraus folgt nach Lambert-Beer mit einer  $61\text{nm}$  dicken rückseitigen SRO-Schicht und der im Vorfeld gezeigten linearen Beziehung zwischen Reflektivitätsänderung des angeregten Transducers und Anregungsenergie dichte eine Eindringtiefe für Licht der Wellenlänge  $800\text{nm}$  von  $\xi = 51\text{nm}$ . Die experimentell bestimmten Eindringtiefen sich sowohl mit dem Literaturwert (Vergleich Tabelle 2.1) als auch mit den über den Imaginärteil des Brechungsindex in Ref. [42] berechneten Eindringtiefen konsistent.

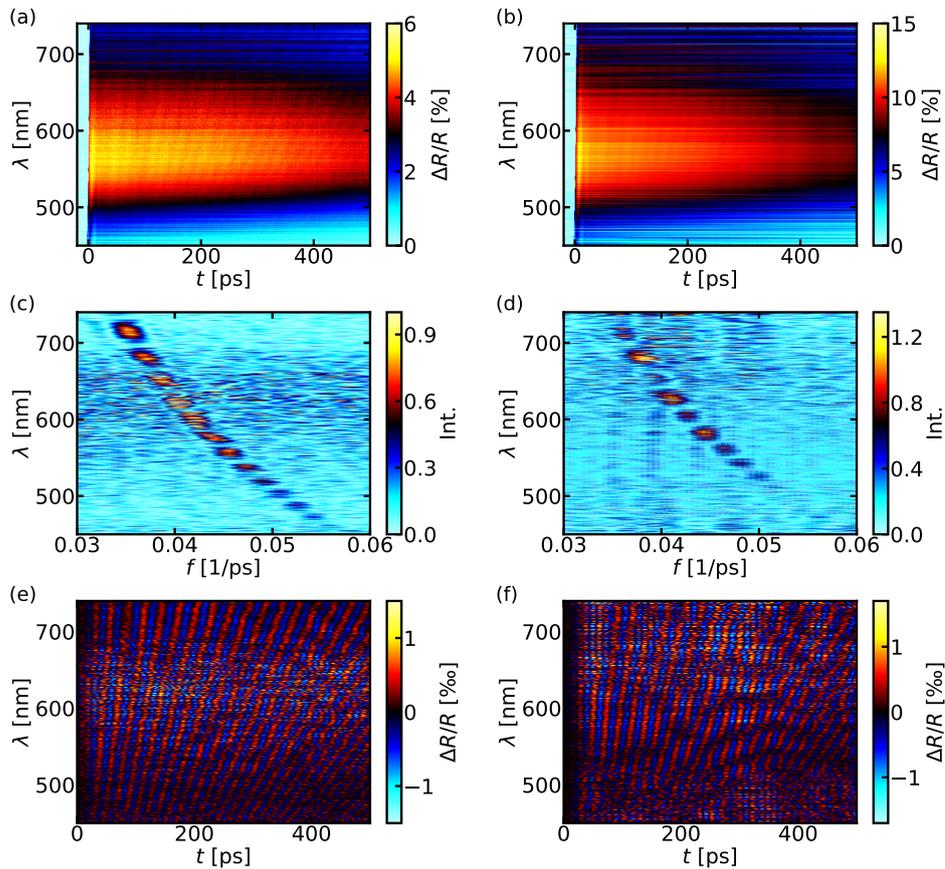
Die über die Eindringtiefe definierte, im Transducer durch den Anregepuls deponierte Energie führt zum Ausbilden einer kohärenten, akustischen Gitterdynamik. Diese beginnt gemäß der in Abbildung 3.1 dargestellten Simulation an den Grenzflächen in Form von Expansionswellen. Die Expansion des Transducers und damit auch die Änderung dessen dielektrischer Funktion ist maximal, wenn die von der Oberfläche der Probe zum Substrat propagierende Expansion die SRO-DSO-Grenzfläche erreicht. Dieser Zeitpunkt ist gemäß der Schallgeschwindigkeit von SRO (vgl. Tabelle 2.1) in Übereinstimmung mit der Simulation  $8\text{ps}$  nach der Anregung. Für die beiden in Abbildung 3.7(b) und (c) dargestellten Messungen stimmt diese Zeitskala aus der Simulation mit dem Maximum der Reflektivitätsänderung nach dem Absinken dieser in der ersten Pikosekunde überein, sodass das detektierte Messsignal als Expansionsdynamik im Transducer interpretiert werden kann. Demzufolge muss das vorausgehende Absinken der Reflektivität auf einer Zeitskala von  $200\text{fs}$  der Abnahme der Energie der angeregten Elektronen aufgrund des Thermalisierens des Elektron-Phonon-Systems entsprechen. Die Messungen entsprechen den Erwartungen aufgrund der in Abschnitt 3.1 beschriebenen theoretischen Prozesse der Erzeugung einer Hyperschallwelle mithilfe eines metallischen Transducers.

### 3.4.2 Lineare Propagation der Hyperschallwelle

Um nach der Erzeugung der Hyperschallwelle im Transducer nun auch die Propagation der bipolaren Schallwelle im DSO untersuchen zu können, muss das schwache Brillouin-Fächer-Signal aus Abbildung 3.5 verbessert werden. Dazu wird der in Abbildung 3.2 gezeigte Aufbau so modifiziert, dass der Abfragestrahl unter  $45^\circ$  auf die Probe fällt.

Dieser Aufbau nutzt die geringe Reflektivität für p-polarisiertes Licht in der Nähe des Brewster-Winkels von ungefähr  $60^\circ$  für den verwendeten Spektralbereich gemäß des Realteils des Brechungsindex von SRO [42]. Für eine schwache Reflexion an der Oberfläche des SRO-Transducers wäre der Effekt der konstruktiv oder destruktiv interferierenden Reflexion an der propagierenden Schallwelle größer, sodass die Brillouin-Oszillation einen höheren Kontrast hätte. Die Ergebnisse der

Messungen für diesen Aufbau mit p- beziehungsweise s-polarisiertem Weißlicht sind in Abbildung 3.8 dargestellt. Trotz des Ausnutzens des Brewster-Winkels sind in Abbildung 3.8 die Brillouin-Oszillationen für p-polarisiertes Weißlicht schlechter zu erkennen. Dies könnte seine Ursache in der durch den Brewsterwinkel bedingten kleineren Reflektivität der Schallwelle sowie der größeren relativen Reflektivitätsänderung des angeregten Transducers für p-polarisiertes Weißlicht aufgrund der kleineren Reflektivität der nicht angeregten Probe für einen Einfallswinkel von  $45^\circ$  haben.



**Abbildung 3.8:** Die mit Brillouin-Streuung untersuchte Hyperschallwelle für s- und p-polarisiertes Weißlicht mit einem Einfallswinkel von  $45^\circ$  und einer Fluenz von  $24 \text{ mJ/cm}^2$ . Die in (a) dargestellten Reflektivitätsänderungen für s-polarisiertes Weißlicht werden ab einem Zeitversatz von 5 ps fouriertransformiert. Der in (c) dargestellte Frequenzbereich mit der Dispersionsrelation der akustischen Phononen wird für die Rücktransformation ausgewählt und das Ergebnis in (e) dargestellt. Dieses Verfahren wird auch für das p-polarisierte Weißlicht durchgeführt (b),(d),(f). In den Rücktransformationen ((e) und (f)) sind die sich in den Reflektivitätsdaten andeutenden, durch die Transformation extrahierten Brillouin-Fächer zu erkennen.

In Abbildung 3.8(a) und (b) sind jeweils die aufgenommenen Reflektivitätsänderungen, in denen die Oszillationen der Brillouin-Streuung schwach zu erkennen sind, dargestellt. Die Detektion der propagierenden Schallwelle erweist sich bei der in dieser Arbeit untersuchten Probe im Vergleich zu vorangegangenen Experimenten [9, 10] als schwierig, da der von der Schallwelle reflektierte Abfragestrahl insgesamt zweimal die metallische SRO-Schicht durchlaufen muss und entsprechend abgeschwächt wird. Für die weitere Untersuchung werden die Brillouin-Oszillationen deshalb aus der Reflektivitätsänderung extrahiert.

Zunächst wird eine schnelle Fouriertransformation (FFT) der Reflektivitätsdaten durchgeführt. Um die hohen Frequenzkomponenten der scharfen Kante am Zeitnullpunkt im Spektrum zu vermeiden, wird die FFT nur auf den Zeitbereich  $t > 5$  ps angewendet. Weiterhin werden zur Verbesserung der spektralen Auflösung vor und nach der Messreihe dem jeweils ersten beziehungsweise letzten Messwert entsprechende Datenpunkte angehängt. Anschließend wird ein Bandpassfilter, der die spektralen Amplituden aller Frequenzen außerhalb von 30 bis 60 GHz Null setzt, angewendet. Das Resultat ist für die beiden Polarisierungen in Abbildung 3.8(c) und (d) dargestellt. Die für beide Abbildungen erkennbaren Strukturen entsprechen der Dispersionsrelation longitudinal akustischer Phononen, wie in Abbildung 3.9 näher erläutert wird. Durch eine inverse Fouriertransformation der in Abbildung 3.8(c) und (d) dargestellten Spektren erhält man die in Abbildung 3.8(e) und (f) dargestellten isolierten Brillouin-Oszillationen, die sehr viel deutlicher zu erkennen sind und für beide Polarisierungen eine ähnliche Amplitude aufweisen.

Um die Schallgeschwindigkeit der detektierten Hyperschallwelle zu bestimmen, wird das Spektrum der Reflektivitätsänderung in Abbildung 3.8(c) und (d) über die Beziehungen 3.10 als Dispersionsrelation mit dem Wellenvektor  $\vec{q}$  und der zugehörigen Kreisfrequenz  $\omega$  des akustischen Phonons interpretiert.

$$\begin{aligned} |\vec{q}| &= \frac{4\pi n(\lambda)}{\lambda} \cos(\theta) \\ \omega &= 2\pi f \end{aligned} \quad (3.10)$$

Dabei wird der wellenlängenabhängige, nach Gleichung 3.11 beschriebene, mit Ellipsometrie bestimmte Brechungsindex  $n(\lambda)$  [10, S.67], der über das Snelliussche Brechungsgesetz bestimmte Einfallswinkel  $\theta$  des Weißlichts in der Probe sowie die Frequenz der Brillouin-Oszillation genutzt. Der in Gleichung 3.11 verwendete Parameter  $z$  beträgt  $z = 10^9 \text{ m}^{-1}$ .

$$n(\lambda) = 1,997 + \frac{16350}{(\lambda \cdot z)^2} + \frac{0,5949}{(\lambda \cdot z)^4} \quad (3.11)$$

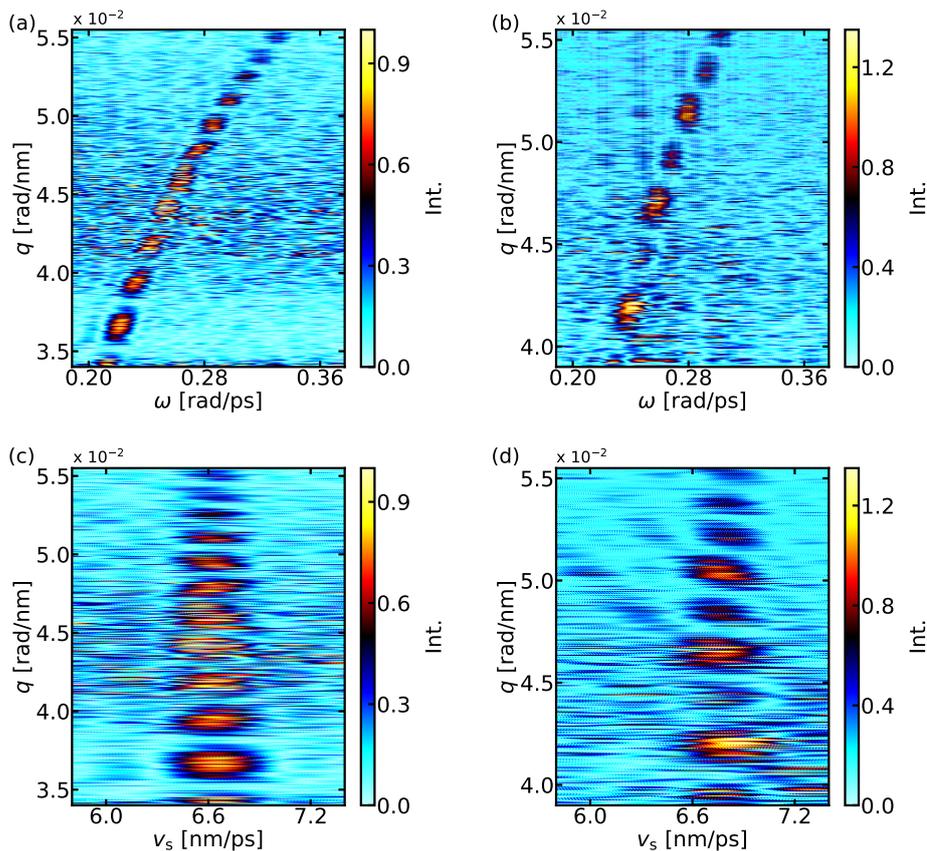
Die resultierenden gemessenen Dispersionsrelationen sind in Abbildung 3.9(a) und (b) dargestellt. Während die dargestellte inverse Dispersionsrelation für p-polarisiertes Weißlicht annähernd der linearen Dispersionsrelation longitudinal akustischer Phononen entspricht, ist für s-polarisiertes Weißlicht eine signifikante Abweichung zu erkennen. Die regelmäßigen schon in Abbildung 3.8(c) und (d) erkennbaren Bereiche verschwindender spektraler Amplitude sind durch die schlechte spektrale Auflösung aufgrund der Reflektivitätsdaten begründet. Sie entstehen bei der künstlichen Verbesserung der spektralen Auflösung mit dem Anhängen zusätzlicher Datenpunkte an die Messwerte, die keine Informationen beitragen. Die Identifikation der Fourieramplitude der Brillouin-Streuung als Dispersionsrelation der Phononen erlaubt eine Bestimmung des Phonenspektrums der Hyperschallwelle, welches, ganz der Definition und der theoretischen Erläuterungen in Abschnitt 3.1 folgend, spektral breit ist.

Der aus der Dispersionsrelation folgende Zusammenhang für die Schallgeschwindigkeit abhängig vom Wellenvektor  $\vec{q}$  und der Kreisfrequenz  $\omega$  wird unter Ausnutzung der Beziehungen 3.10 durch Gleichung 3.12 beschrieben.

$$v_s = \frac{f \cdot \lambda}{2n(\lambda) \cos(\theta)} \quad (3.12)$$

Mit dieser Beziehung lassen sich die Dispersionsrelation in Abbildung 3.9(a) und (b) in die in (c) und (d) zu erkennenden Darstellungen einer wellenvektorabhängigen Schallgeschwindigkeitsamplitude umwandeln. Für die beiden Polarisierungen ist ein unterschiedlicher Zentralwert der Schallgeschwindigkeitsverteilungen zu erkennen. Eine Summation über alle Wellenvektoren und Normierung der resultierenden Schallgeschwindigkeitsamplitude auf ihr Maximum führt zu der Darstellung in Abbildung 3.10.

Für s-polarisiertes Weißlicht ist eine Verteilung der Schallgeschwindigkeit um 6,62 nm/ps zu erkennen, während die aus der Verteilung bestimmte Schallgeschwindigkeit für p-polarisiertes Weißlicht 6,80 nm/ps beträgt. Die Schallgeschwindigkeit sollte jedoch für beide Polarisierungen gleich sein, da alle experimentellen Parameter bis auf die Polarisation des Abfragestrahls konstant gehalten wurden. Da der Brechungsindex der einzige freie Parameter bei der Bestimmung der Schallgeschwindigkeit ist, lässt die polarisationsabhängige Schallgeschwindigkeiten auf einen anisotropen Brechungsindex von DSO schließen.



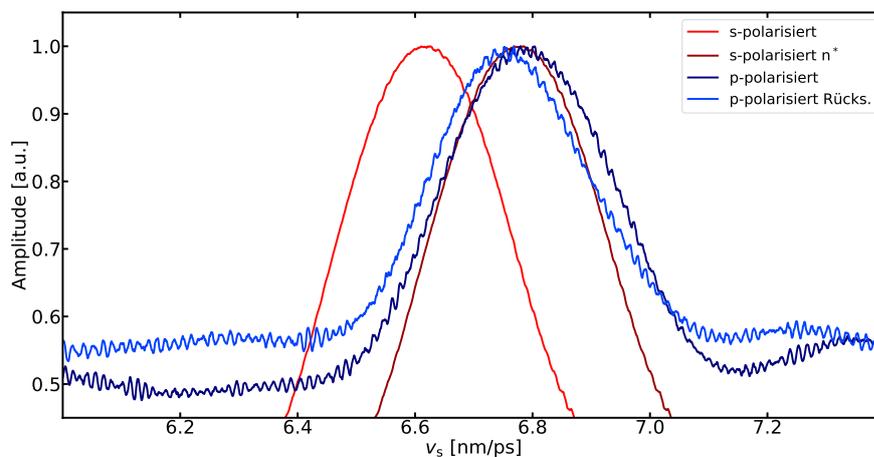
**Abbildung 3.9:** Bestimmung der Schallgeschwindigkeit der Hyperschallwelle in DSO (a) für s-polarisiertes und (b) für p-polarisiertes Weißlicht. Die Fouriertransformationen der Reflektivitätsänderungen aus Abbildung 3.8(c) und (d) sind unter Berücksichtigung der Gleichung 3.10 als inverse Dispersionsrelation in (a) und (b) dargestellt. Dabei ist für s-polarisiertes Weißlicht eine deutliche Abweichung zur linearen Dispersionsrelation longitudinal akustischer Phononen im Zentrum der Brillouin-Zone zu erkennen. Mit Hilfe von Gleichung 3.12 lassen sich aus den Dispersionsrelationen die in (c) und (d) dargestellten Schallgeschwindigkeit  $v_s(q)$  mit einer unterschiedlichen zentralen Schallgeschwindigkeit für s- und p-polarisiertes Weißlicht bestimmen.

Mit der Annahme einer von der Polarisation des Abfragepulses unabhängigen Schallgeschwindigkeit ergibt sich für s-polarisiertes Weißlicht im Vergleich zu p-polarisiertem Weißlicht ein 2,4% kleinerer Brechungsindex. Dieser Zahlenwert folgt aus der Skalierung der Schallgeschwindigkeit für s-polarisiertes Weißlicht durch eine Änderung des Brechungsindex nach der Beziehung aus Gleichung 3.12 auf die Schallgeschwindigkeit für p-polarisiertes Weißlicht. Diese Änderung bezieht sich also ausschließlich auf die Polarisationsrichtungen des Abfragepulses und nicht auf den Unterschied zwischen ordentlicher und außerordentlicher Richtung, da der anisotropen Brechungsindex von DSO

nicht dokumentiert ist. Neben dem unterschiedlichen Betrag des anisotropen Brechungsindex indiziert die Abweichung der in Abbildung 3.9(a) dargestellten inversen Dispersionsrelation von der linearen Dispersionsrelation akustischer Phononen im Zentrum der Brillouin-Zone eine anisotrope Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex.

Nach Berücksichtigung der durch die polarisationsabhängige Schallgeschwindigkeit indizierten Doppelbrechung des DSO-Substrats ergeben sich unter Annahme einer Gaußverteilung für die Geschwindigkeitsverteilungen in Abbildung 3.10 für s-polarisiertes Weißlicht 6,79 nm/ps und für p-polarisiertes Weißlicht 6,80 nm/ps als resultierende Schallgeschwindigkeiten. Zusätzlich ist auch die Schallgeschwindigkeit von 6,78 nm/ps für p-polarisiertes Weißlicht bei einer rückseitigen Anregung aufgetragen, die konsistent mit den für vorderseitige Anregung bestimmten Schallgeschwindigkeiten ist. Die Angabe der Schallgeschwindigkeiten bis zur zweiten Nachkommastelle ist bei einer Unsicherheit des Einfallswinkels von ungefähr  $0,5^\circ$  mit einer resultierenden Unsicherheit der Schallgeschwindigkeit von  $0,01$  nm/ps gerechtfertigt. Die Unsicherheiten der weiteren nach Gleichung 3.12 relevanten Größen für die Bestimmung der Schallgeschwindigkeit sind im Vergleich zur Unsicherheit des Einfallswinkels vernachlässigbar.

Die bestimmten Schallgeschwindigkeiten in DSO stimmen gut mit dem Literaturwert aus Tabelle 2.1 überein. Jedoch sind die in dieser Arbeit bei einer Fluenz von  $24$  mJ/cm<sup>2</sup> bestimmten Schallgeschwindigkeiten kleiner als die in den Arbeiten Kuxhaus [9] und Leisering [10] mit einer Fluenz von  $5$  mJ/cm<sup>2</sup> bestimmten Schallgeschwindigkeiten von  $6,83$  nm/ps bei  $300$  K. Mit der in [9] dokumentierten temperaturabhängigen, für große Temperaturen abnehmende Schallgeschwindigkeit ist das ein erster Hinweis auf die in Abschnitt 4.3.2 ausführlich thematisierte laserinduzierte Zunahme der lokalen Temperatur bei zunehmender Fluenz des Anregepulses.



**Abbildung 3.10:** Vergleich der Schallgeschwindigkeit der Hyperschallwelle für verschiedene Polarisationen des Weißlichts bei gleicher Fluenz. Die dargestellten Kurven ergeben sich durch eine auf das Maximum normierte Summation über alle Wellenvektoren in Abbildung 3.9(c) und (d). Die bestimmte Schallgeschwindigkeit für s-polarisiertes Weißlicht unter Berücksichtigung des anisotropen Brechungsindex ( $n^*$ ) entspricht der für p-polarisiertes Weißlicht. Zusätzlich ist die Schallgeschwindigkeit bei rückseitiger Anregung und p-polarisiertem Weißlicht dargestellt.

Insgesamt konnte durch die Laseranregung des SRO-Transducers eine propagierende Hyperschallwelle mit einem breiten hochfrequenten phononischen Spektrum erzeugt und detektiert sowie ihre Schallgeschwindigkeit bestimmt werden. Dabei wurde ein signifikanter Unterschied des Betrags und der Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex für die verschiedenen Polarisationen des Weißlichts aufgrund der Doppelbrechung von DSO beobachtet.



## 4 Nichtlineare Propagation von Hyperschallwellen und Bildung von Solitonen

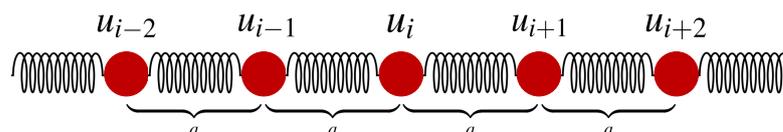
In diesem Kapitel wird die zu akustischen Solitonen führende nichtlineare Propagation einer Hyperschallwelle durch das DSO-Substrat experimentell und mittels numerischer Simulationen mit *udkm1Dsim* [37] untersucht. Zunächst werden die nichtlineare Propagation mit der nichtlinearen eindimensionalen Wellengleichung charakterisiert und die Entstehung von Solitonen abgeleitet. Anschließend wird, durch die Darstellung von Ergebnissen einer Simulation unterstützt, die Bildung von Solitonen an der kompressiven Front der bipolaren Schallwelle beschrieben. Nach diesen theoretischen Betrachtungen werden die Besonderheiten des experimentellen Aufbaus herausgestellt und abschließend die Ergebnisse aus Experiment und Simulation vergleichend präsentiert.

### 4.1 Bildung von Solitonen aus einer Hyperschallwelle

Die Beschreibung der Schwingungen eines komplexen dreidimensionalen Festkörpers lässt sich zu einer Beschreibung durch eine eindimensionale Kette gekoppelter Oszillatoren vereinfachen. Dabei wird die experimenteller Realität entsprechende Annahme einer im Vergleich zur Schichtdicke des Transducers großen Anregungsfläche und der ausschließlichen Betrachtung longitudinal akustischer Schwingungen getroffen. Bei typischen Anregestrahldurchmessern von  $600\mu\text{m}$  und Abfragestrahldurchmessern von  $40\mu\text{m}$  erfolgt die Anregung des abgefragten Bereichs des Transducers in der Oberfläche homogen, sodass sich nur senkrecht zur Oberfläche ein dehnungsgenerierender Spannungsgradient und eine daraus resultierende Dynamik ausbildet.

#### 4.1.1 Nichtlineare Wellengleichung und Eigenschaften von Solitonen

Die Beschreibung des Festkörpers erfolgt über eine in Abbildung 4.1 dargestellte eindimensionale Kette gekoppelter Oszillatoren. Die einzelnen Einheitszellen des Festkörpers sind über Federn, die dem durch einen anharmonischen und einen dämpfenden Term ergänzten Hookschen Gesetz entsprechen, miteinander gekoppelt. Dabei stehen immer nur die nächsten Nachbarn in Wechselwirkung miteinander.



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung der linearen Kette mit der Auslenkung des  $i$ -ten Oszillators  $u_i$ . Die nächsten Nachbarn der Kette sind über die schematisch eingezeichneten Federn gekoppelt.

Unter diesen Annahmen lässt sich die in Gleichung 4.1 dargestellte Bewegungsgleichung für die Auslenkung  $u_i$  der  $i$ -ten Einheitszelle aufstellen.

$$\begin{aligned} m\ddot{u}_i &= k[(u_{i+1} - u_i) - (u_i - u_{i-1})] \\ &+ \alpha [(u_{i+1} - u_i)^2 - (u_i - u_{i-1})^2] \\ &+ \delta [(\dot{u}_{i+1} - \dot{u}_i) - (\dot{u}_i - \dot{u}_{i-1})] \end{aligned} \quad (4.1)$$

Dabei beschreibt  $m$  die Masse der Einheitszelle,  $k$  die lineare Kraftkonstante der Kopplung,  $\alpha$  die Nichtlinearität und  $\delta$  die Dämpfung. Dieses Gleichungssystem nichtlinearer gekoppelter Differentialgleichungen für alle Einheitszellen lässt sich für die geringen Abstände der Einheitszellen im Festkörper mit dem Übergang von einer diskreten zu einer stetigen Beschreibung in eine nichtlineare Wellengleichung überführen.

Mit der Notation  $u(x \pm a, t) = u_{i \pm 1}$  für den Übergang von diskreten zu stetigen Koordinaten ergibt sich mit der in Gleichung 4.2 dargestellten Taylorentwicklung für kleine Abstände  $a$  zwischen den Einheitszellen die beschriebene Bewegungsgleichung 4.3 des nun stetig beschriebenen Festkörpers.

$$u(x \pm a, t) = u \pm a \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{a^2}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \pm \frac{a^3}{6} \frac{\partial^3 u}{\partial x^3} + \frac{a^4}{16} \frac{\partial^4 u}{\partial x^4} + \mathcal{O}(a^5) \quad (4.2)$$

Dabei werden im ersten Summanden in Gleichung 4.1 die Taylorentwicklung bis zur vierten Ordnung und im zweiten und dritten Summanden bis zur zweiten Ordnung unter der Annahme genügend kleiner Dämpfung und Nichtlinearität eingesetzt. [10, S.11]

$$m\ddot{u}_i = k \left[ a^2 \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right] + \alpha \left[ 2a^3 \left( \frac{\partial u}{\partial x} \right) \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right] + k \left[ \frac{a^4}{12} \frac{\partial^4 u}{\partial x^4} \right] + \delta \left[ a^2 \frac{\partial^2 \dot{u}}{\partial x^2} \right] \quad (4.3)$$

Die Gleichung 4.3 lässt sich unter Berücksichtigung der Beziehungen für die elastische Konstante  $C_1 = k/a$ , die nichtlineare elastische Konstante  $C_3 = 2\alpha$  und die Massendichte  $\rho = m/a^3$  zur nichtlinearen gedämpften Wellengleichung 4.4 [11] umschreiben.

$$\rho \ddot{u} = \underbrace{\left( C_1 + C_3 \frac{\partial u}{\partial x} \right) \frac{\partial^2 u}{\partial x^2}}_{\text{I}} + \underbrace{2\rho v_s \gamma \frac{\partial^4 u}{\partial x^4}}_{\text{II}} + \underbrace{\frac{\delta}{a} \frac{\partial^2 \dot{u}}{\partial x^2}}_{\text{III}} \quad (4.4)$$

Dabei beschreiben  $v_s$  die wellenvektorunabhängige Schallgeschwindigkeit im Zentrum der Brillouinzone und  $\gamma$  die Dispersionskonstante aus der Dispersionsrelation  $\omega(q)$  für longitudinal akustische Phononen in Gleichung 4.5 [10, S.11].

$$\omega(q) = \underbrace{a \sqrt{\frac{k}{m}}}_{v_s} q - \underbrace{\frac{a^3}{24} \sqrt{\frac{k}{m}}}_{\gamma} q^3 + \mathcal{O}(q^5) \quad (4.5)$$

Die nichtlineare gedämpfte Wellengleichung 4.4 lässt sich mit Hilfe dieser Betrachtungen in eine nichtlineare dämpfungs- und dispersionsfreie Wellengleichung (Term I), einen Term für die Dispersion der Welle (Term II) und einen Dämpfungsterm (Term III) zerlegen.

Im Folgenden werden die Terme I und II für die Bildung von Solitonen näher untersucht. Vergleicht man Term I mit einer linearen Wellengleichung, erhält man für die Schallgeschwindigkeit einer Dehnung  $\varepsilon = \Delta d/d$  nicht verschwindender Amplitude ( $\partial u / \partial x \neq 0$ ) eine von der Dehnung abhängige Schallgeschwindigkeit.

$$v_s = \sqrt{\frac{C_1 + C_3 \varepsilon}{\rho}} \quad (4.6)$$

Für DSO und STO gilt  $C_3 < 0$  (vgl. Kapitel 2), sodass eine Kompression eine größere und eine Expansion eine kleinere Schallgeschwindigkeit im Vergleich zum linearen Fall aufweist. Diese Eigenschaft führt zu einer Selbstaufteilung der bipolaren Schallwelle, da die größten Dehnungsamplituden zu den Rändern der Schallwelle laufen. Durch die Änderung der Form der Hyperschallwelle kommt es auch zu einer Änderung des über die Fouriertransformation verknüpften Phononspektrums. Die scharfen, auch Schockwellen genannten [13] Phasenfronten der sogenannten *N-Wave* [8] entsprechen hohen Frequenzen und über die Dispersionsrelation in Gleichung 4.5 auch großen Wellenvektoren im Phononenspektrum. Die über die Ableitung der Kreisfrequenz  $\omega(q)$  nach dem Wellenvektor  $\vec{q}$  definierte und in Gleichung 4.7 beschriebene Gruppengeschwindigkeit  $v_g$  nimmt für große Wellenvektoren und große Frequenzen aufgrund der Dispersion  $\gamma$  ab.

$$v_g = v_s - v_s \frac{a^2 q^2}{8} \quad (4.7)$$

Zusammenfassend impliziert Term I der nichtlinearen Wellengleichung 4.4 mit der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit in Gleichung 4.6 die Bildung scharfer, hohen Frequenzen entsprechenden Dehnungen großer Amplitude an den Phasenfronten, die im Falle von Kompressionen größere Schallgeschwindigkeiten als die restliche Hyperschallwelle aufweisen. Im Gegensatz dazu impliziert der dispersive Term II für hohe Frequenzen eine kleinere Schallgeschwindigkeit als die der Hyperschallwelle. Dieses Gegenspiel aus Nichtlinearität und Dispersion führt im Gleichgewicht zur Bildung eines stabilen, dispersionsfreien Wellenpakets, eines Solitons. Solitonen zeichnen sich durch eine feste Geschwindigkeit, eine feste Breite und eine feste Amplitude aus, welche alle durch den gleichen Parameter beschrieben werden können. [13, 14]. Diese Eigenschaft zeigt sich bei der Lösung der aus der nichtlinearen Wellengleichung im Grenzwert  $a \rightarrow 0$  ableitbaren Korteweg-de-Vries-Gleichung [10, S.19], die hier jedoch nicht weiter thematisiert wird. Das für die Solitonenbildung notwendige Gleichgewicht aus Dispersion und Nichtlinearität impliziert die Notwendigkeit einer propagierenden Hyperschallwelle mit hochfrequenten Komponenten. Die durch Term III in Gleichung 4.4 ausgedrückte Dämpfung der Hyperschallwelle ist unter der Annahme der Vertauschbarkeit der partiellen Ableitungen von der zeitlich-räumlichen Änderung des Dehnungsprofils abhängig. Diese zeitlich räumliche Änderung ist bei Solitonen besonders groß, sodass diese von der für große Frequenzen zunehmenden Dämpfung besonders betroffen sind. Die starke Dämpfung von hohen Frequenzen in nichtlinearen Medien wurde beispielsweise für die zweite Harmonische eines quasi-monochromatischen phononischen Wellenpakets beobachtet [5, 7].

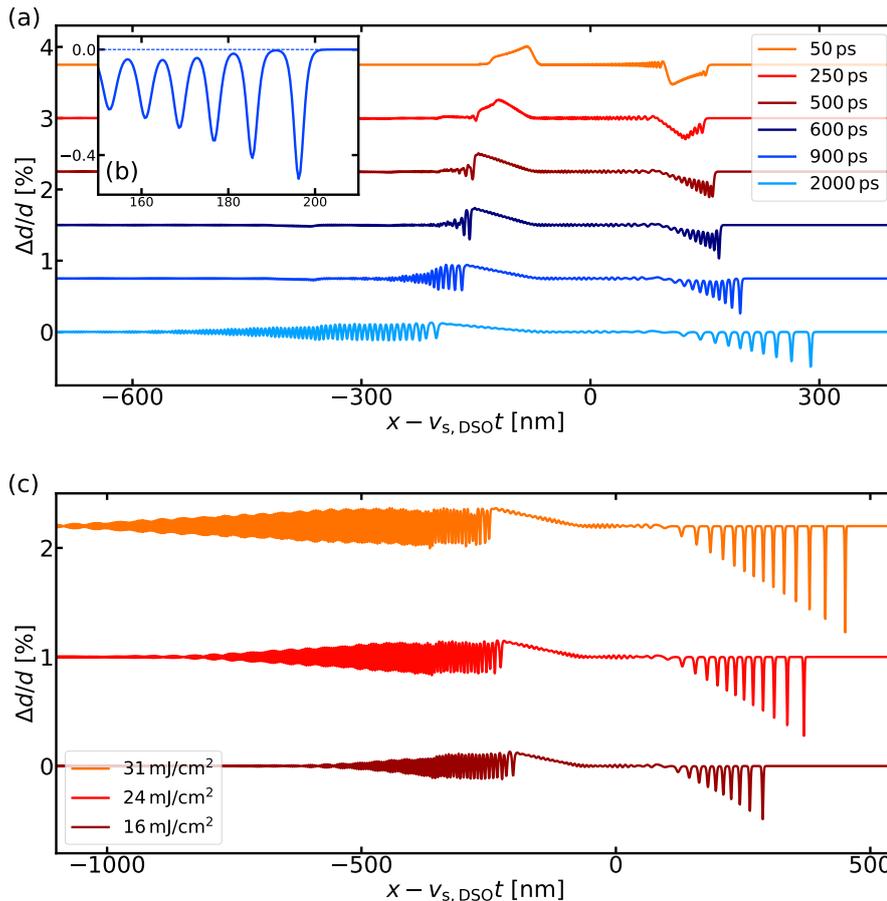
#### 4.1.2 Abhängigkeit von Anregungsenergiedichte und Dämpfung

Nachdem die für die Solitonenbildung wichtigen Eigenschaften der nichtlinearen Propagation anhand der nichtlinearen Wellengleichung thematisiert wurden, wird nun die Bildung von Solitonen aus einer propagierenden Hyperschallwelle sowie die Fluenz- und Dämpfungsabhängigkeit anhand von Simulationen illustriert.

In Abbildung 4.2(a) ist für verschiedene Zeiten nach der Anregung des SRO-Transducers auf der Rückseite der Probe die simulierte räumliche Struktur des Dehnungsprofils der erzeugten bipolaren Hyperschallwelle für eine Fluenz von  $16 \text{ mJ/cm}^2$  im DSO dargestellt. Auf der  $y$ -Achse ist die Dehnung  $\varepsilon$  in % aufgetragen und die einzelnen Momentaufnahmen sind entlang der  $y$ -Achse aus Gründen der Übersichtlichkeit verschoben. Auf der  $x$ -Achse ist der Ort in der Probe in einem sich mit der Hyperschallwelle mitbewegenden Bezugssystem aufgetragen. Dies erlaubt einen Vergleich der Form der Hyperschallwelle zu verschiedenen Zeiten.

Zum Zeitpunkt  $t = 50 \text{ ps}$  entspricht die Form der bipolaren Schallwelle den in Abbildung 3.1(b) dargestellten Dehndynamiken. Sowohl der vorauslaufende kompressive als auch der zeitversetzte expansive Teil weisen eine dem Absorptionsprofil nach Lambert-Beer proportionale, exponentiell

zu den Rändern der Schallwelle hin abklingende Form auf. Während der Propagation durch das Medium erfolgt in den ersten 500 ps eine Selbstaufteilung der Hyperschallwelle aufgrund der im vorherigen Abschnitt hergeleiteten dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit, die zu einer Verschiebung der Maxima der Dehnung zu den Rändern der Schallwelle führt und in dem Ausbilden einer scharfen Form der Hyperschallwelle mündet. Aufgrund der zusätzlichen STO-Schicht auf der Rückseite kommt es bei einer rückseitigen Anregung zu einer Trennung des kompressiven und expansiven Teils der Hyperschallwelle, sodass sich im Zuge der Selbstaufteilung keine typische *N-Wave* ausbildet.

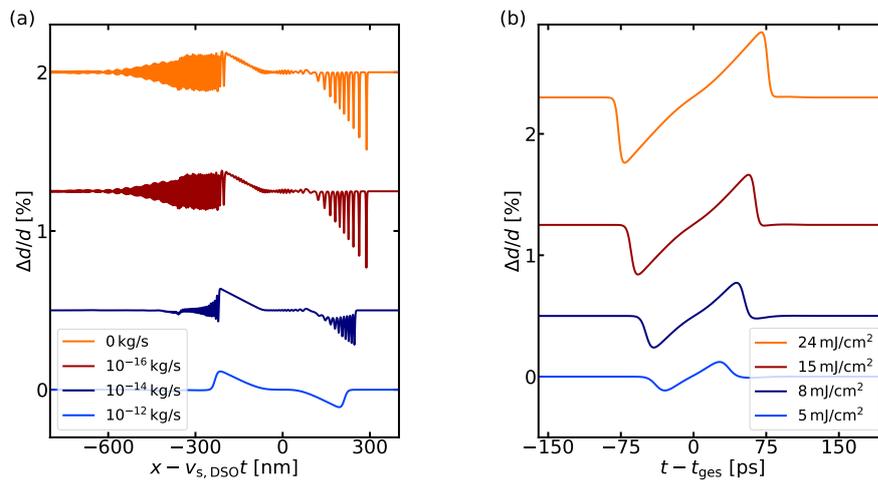


**Abbildung 4.2:** Die fluenzabhängige Bildung von Solitonen an der kompressiven Phasenfront der Hyperschallwelle. In (a) ist die zeitliche Entwicklung der Form der Hyperschallwelle nach der Anregung mit  $16 \text{ mJ/cm}^2$  und vernachlässigter Dämpfung während der Propagation in ihrem Ruhesystem dargestellt. Die erkennbaren Einschnürungen der kompressiven Front zu einzelnen Wellenpaketen führt zum Zeitpunkt  $t = 900 \text{ ps}$  zum Ablösen eines ersten Solitons. Dieses Ablösen ist in der vergrößerten Darstellung (b) des kompressiven Teils der Schallwelle detailliert zu erkennen. In (c) sind für verschiedene Fluenzen unter Vernachlässigung der Dämpfung die resultierenden Formen der bipolaren Schallwelle 2 ns nach der Anregung zu erkennen.

Das resultierende Ausbilden einer scharfen Phasenfront ist äquivalent zur Erzeugung von hohen Frequenzen im Phononenspektrum der Hyperschallwelle. Im Verlauf der weiteren Propagation sind Einschnürungen der kompressiven Phasenfront der bipolaren Schallwelle zu erkennen. Diese Einschnürungen weisen auf den Beginn des sich einstellenden Gleichgewichts zwischen Dispersion und Nichtlinearität hin. Dieser Prozess mündet in dem aufeinanderfolgenden Ablösen einzelner

stabiler Solitonen an der kompressiven Phasenfront und dem, bei weiterer Propagation, Auseinanderlaufen dieser aufgrund der durch die unterschiedlichen Amplituden bedingten unterschiedlichen dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeiten. Das Ablösen der Solitonen wird in Abbildung 4.2(b) durch eine Abgrenzung zum kompressiven Teil der Hyperschallwelle in Form eines nicht gedehnten Bereiches ( $\varepsilon = 0$ ) deutlich. Weiterhin ist insgesamt eine räumliche Verbreiterung der Hyperschallwelle mit zunehmender Zeit wegen der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit zu erkennen. Die Dispersion der Hyperschallwelle zeigt sich an dem sich mit fortschreitender Propagation bildenden Schwanz hochfrequenter Phononen, die nach Gleichung 4.7 eine kleinere Gruppengeschwindigkeit als Phononen kleinerer Frequenzen aufweisen.

Die entstehende Form der Hyperschallwelle nach 2 ns Propagationszeit ist für verschiedene Fluenzen und vernachlässigte Dämpfung in Abbildung 4.2(c) zu erkennen. Für zunehmende Fluenz sind eine Zunahme der Anzahl, der Amplitude sowie der Geschwindigkeit der Solitonen zu beobachten. Jedoch zeigt sich gemäß der Eigenschaft der in Abschnitt 4.1.1 erwähnten Lösung der Korteweg-de Vries-Gleichung, dass für die unterschiedlichen Fluenzen Solitonen gleicher Amplitude eine gleiche an der vorausgelaufenen Strecke erkennbare Schallgeschwindigkeit aufweisen. Weiterhin ist die durch höhere Fluenz implizierte größere Dehnungsamplitude anhand der zunehmenden räumlichen Ausdehnung der Hyperschallwelle zu erkennen.



**Abbildung 4.3:** Der Einfluss der phononischen Dämpfung auf die Bildung von Solitonen. In (a) sind die resultierenden Formen der Hyperschallwelle 2 ns nach einer Anregung mit  $16 \text{ mJ/cm}^2$  für unterschiedliche Dämpfungen in ihrem Ruhesystem dargestellt. Für zunehmende Dämpfung ist ein Unterdrücken der Bildung von Solitonen zu beobachten. Für die Dämpfung  $10^{-12} \text{ kg/s}$  sind in (b) fluenzabhängig die Formen der Hyperschallwelle nach der Propagation durch  $100 \mu\text{m}$  DSO zu erkennen. Die Zeitachse wurde dabei auf die Mitte der Hyperschallwelle zentriert. Dabei führt eine größere Fluenz über die in Gleichung 4.6 beschriebene dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit zu einem stärkeren Auseinanderlaufen der kompressiven und expansiven Phasenfront.

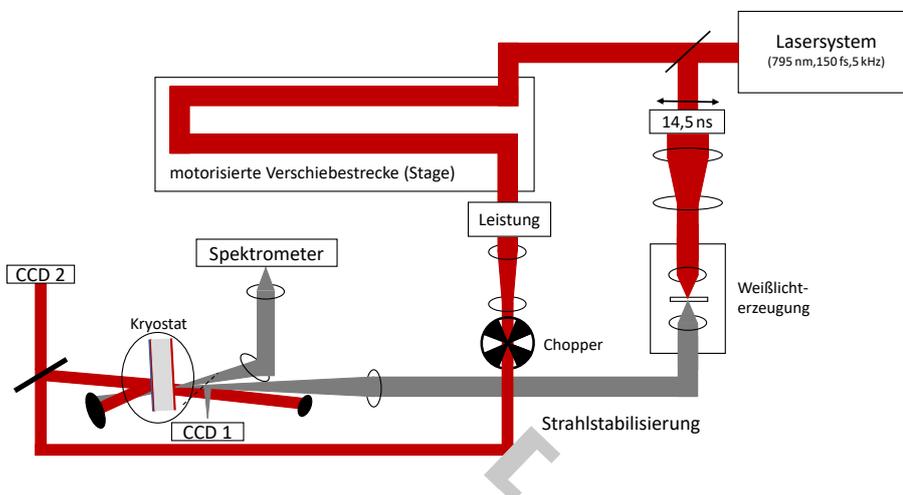
Der Einfluss einer nicht vernachlässigten Dämpfung ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Die resultierende Form einer mit  $16 \text{ mJ/cm}^2$  angeregten bipolaren Schallwelle nach 2 ns Propagationszeit für verschiedene Dämpfungen ist in Abbildung 4.3(a) im Ruhesystem der Schallwelle dargestellt. Zunächst ist zwischen der ungedämpften Propagation und der mit  $\delta = 10^{-16} \text{ kg/s}$  gedämpften Propagation kein signifikanter Unterschied zu beobachten. Mit zunehmender Dämpfung nehmen die Amplitude und die Anzahl der sich bildenden Solitonen ab, bis hin zur vollständigen Unterdrückung der Solitonenbildung. Da die Dämpfungsrate proportional zum Quadrat der Frequenz ist, werden hohe Frequenzen stärker gedämpft. Für große Dämpfungen werden die hohen Frequenzen

demzufolge so stark gedämpft, dass sich die für die Solitonen notwendigen Frequenzkomponenten trotz Anharmonizität nicht bilden können.

Für den Fall einer Solitonenbildung unterdrückenden Dämpfung von  $10^{-12}$  kg/s ist das Ergebnis der nichtlinearen Propagation durch  $100\mu\text{m}$  DSO für verschiedene Fluenzen in Abbildung 4.3(b) dargestellt. Für zunehmende Fluenz ist eine Zunahme der Dehnungsamplitude zu erkennen. Diese Zunahme der Dehnungsamplitude verstärkt den Effekt der durch Gleichung 4.6 beschriebenen dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit, welche in einem größeren zeitlichen Abstand der kompressiven und expansiven Phasenfront zum Ausdruck kommt. Weiterhin wird durch die nichtlineare Propagation der in Abbildung 4.2 erkennbare zunächst nicht gedehnte Bereich zwischen der Kompression und der Expansion gedehnt, sodass sich eine typische *N-Wave* bildet. Dieser Prozess scheint seine Ursache in der hohe Frequenzkomponenten unterdrückenden Dämpfung zu haben. Der scharfe Übergang von Kompression beziehungsweise Expansion zum nicht gedehnten Teil der Hyperschallwelle entspricht hohen, stark gedämpften Frequenzkomponenten, sodass dieser Übergang verschwimmt und der nichtgedehnte Bereich gedehnt wird.

## 4.2 Experimenteller Aufbau

Für die Untersuchung der nichtlinearen Propagation und Bildung von akustischen Solitonen wird der Aufbau für die Hyperschalluntersuchungen in Abbildung 3.2 gemäß der Darstellung in Abbildung 4.4 umgebaut. Zunächst wird der Anregestrahl auf die Rückseite der Probe geleitet und seine Position durch eine aus einem motorisierten Spiegel und einer CCD-Kamera (CCD 2) bestehende Strahlstabilisierung fixiert.



**Abbildung 4.4:** Aufbau für die Untersuchung der nichtlinearen Propagation von Hyperschallwellen. Um die an der Rückseite der Probe durch den Anregepuls erzeugte Hyperschallwelle an der Vorderseite detektieren zu können, muss ein Zeitversatz gemäß der Schallgeschwindigkeit und der Dicke des DSO-Substrats für den Abfragepuls aufgebaut werden. Für qualitativ hochwertige Messungen wird der Überlapp, welcher mit Hilfe der CCD-Kamera 1 justiert wurde, durch die Strahlstabilisierung konstant gehalten und die Aufweitung des Abfragestrahls aufgrund der langen Laufstrecke mit einem Linsenteleskop kompensiert. Weiterhin befindet sich die Probe in einem Kryostat, um bei niedrigen Temperaturen messen zu können.

Die Strahlstabilisierung ist nötig, da die Position des Anregestrahls auf der Probe für große Verfahrstrecken der motorisierten Verschiebestrecke nicht konstant bleibt. Der letzte Spiegel im Anregestrahlengang, der aufgrund seiner polierten Rückseite einen Teil des Strahls transmittiert, muss dabei so ausgerichtet werden, dass die Transmission durch die Probe nicht in den Weißlichtstrahlengang eingekoppelt wird, um die Weißlichterzeugung vor dem intensiven Anregepuls zu schützen.

Um die an der Rückseite der Probe angeregte Hyperschallwelle an der Vorderseite detektieren zu können, muss für den Abfragepuls eine mit Hilfe eines fahrbaren Spiegels manuell integrierbare Verzögerungsstrecke von 14,5 ns gemäß der Differenz der Schallgeschwindigkeit in DSO und der Lichtgeschwindigkeit aufgebaut werden. Die aufgrund des nicht perfekt kollimierten Laserstrahls aus dem Lasersystem mit der langen Verzögerungsstrecke einhergehende Aufweitung des Abfragestrahls wird durch ein Teleskop kompensiert, um die Strahlparameter in Hinsicht auf eine stabile und spektral optimierte Weißlichterzeugung zu verbessern.

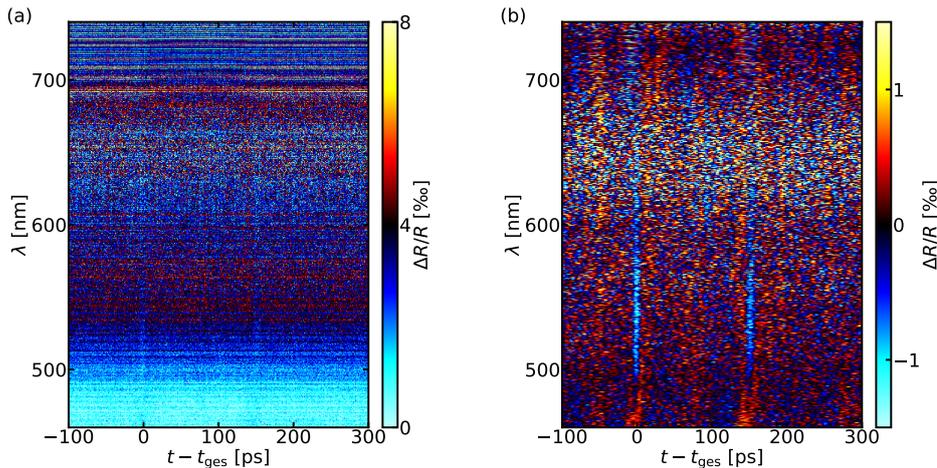
Wie in Kapitel 4.1.2 anhand der Simulationen zu erkennen ist, ist die Dämpfung ein wesentlicher Parameter für die Solitonenbildung. Da die Dämpfung in DSO zu tiefen Temperaturen hin abnimmt, werden Messungen bei tiefen Temperaturen von bis zu 18 K durchgeführt. Dazu befindet sich der Probenhalter für die Messungen zur Untersuchung von nichtlinearer Propagation und akustischen Solitonen in einem heliumbasierten Kryostat mit Isolationsvakuum, welches ein Vereisen der Probe verhindern soll. Dessen Güte ist bei Messungen von bis zu 14 Stunden für ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis besonders wichtig. Die Justierung des räumlichen Überlapps für die Untersuchung der nichtlinearen Propagation erfolgt in mehreren Schritten. Zunächst wird ohne die 14,5 ns-Zeitverzögerung des Abfragepulses durch Variation der Position des Abfragepulses auf der Probe das gemessene Signal der transienten relativen Reflektivitätsänderung maximiert. Diese Maximierung impliziert einen optimierten räumlichen Überlapp von Anrege- und Abfragepuls auf der Probe. Anschließend wird die Position des Weißlichts nach dem Reinklappen des Klappspiegels auf der CCD-Kamera 1 markiert. Im zweiten Schritt wird die 14,5 ns Verzögerungsstrecke integriert und das Weißlicht auf den zuvor markierten Ort auf der CCD-Kamera 1 eingestellt, sodass der zuvor justierte Überlapp wiederhergestellt ist.

### 4.3 Auswertung der experimentellen Ergebnisse

In diesem Abschnitt werden zunächst aufgenommene Reflektivitätsdaten gezeigt und das verwendete Auswerteverfahren zur Extraktion der interessanten Reflektivitätsänderungen besprochen. Anschließend werden mit diesem Verfahren ausgewertete, fluenzabhängige Messungen mit einer Variation sowohl der Leistung als auch der Strahlgröße des Anregestrahls dargestellt und die Ergebnisse verglichen. Die Interpretation der Messergebnisse erfolgt über den Vergleich mit den in Abschnitt 4.1.2 gezeigten Simulationen. Diese Interpretation lässt auf eine große Dämpfung, die einer hohen Proben temperatur entspricht, schließen. Abschließend erfolgt deshalb eine Untersuchung der lokalen Temperatur der Probe mithilfe von Brillouin-Streuung und des Wissens über die temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit in DSO.

In Abbildung 4.5 ist für eine Fluenz von  $27 \text{ mJ/cm}^2$  ein typisches Signal der mithilfe einer Verzögerungsstrecke für den Abfragepuls detektierten, an der Vorderseite der Probe ankommenden Hyperschallwelle dargestellt. Die in Abbildung 4.5(a) abgebildeten Reflektivitätsdaten zeigen zwei scharfe Minima über einen breiten Spektralbereich in der relativen Reflektivitätsänderung. Die Zeitachse ist dabei auf das erste Minimum zentriert und zeigt einen zeitlichen Abstand der beiden aufgenommenen Minima von 152 ps. Für die weitere Untersuchung der zeitlich scharfen Reflektivitätsänderungen wurde das im Folgenden beschriebene, auf Fouriertransformation beruhende Verfahren angewendet, um die scharfen Reflektivitätsänderungen zu extrahieren.

Zunächst werden vor und nach den Messdaten 10000 dem ersten beziehungsweise dem letzten Wert entsprechende Punkte angehängt, um die spektrale Auflösung zu verbessern. Anschließend wird eine Fouriertransformation durchgeführt, deren Amplitude durch einen Frequenz-Bandpassfilter außerhalb von 6 bis 100 GHz Null gesetzt wird. Der Bandpassfilter dient dem Unterdrücken des Rauschens sowie langwelliger Oszillationen im Untergrund. Der Frequenzbereich ist dabei gemäß einer Erhaltung der Amplitude in der Reflektivitätsänderung gewählt. Das Ergebnis dieses Verfahrens, angewendet auf die in Abbildung 4.5(a) gezeigten Messdaten, ist in Abbildung 4.5(b) zu erkennen. Die beiden Minima sind nun deutlicher auch über einen breiten Spektralbereich zu erkennen.



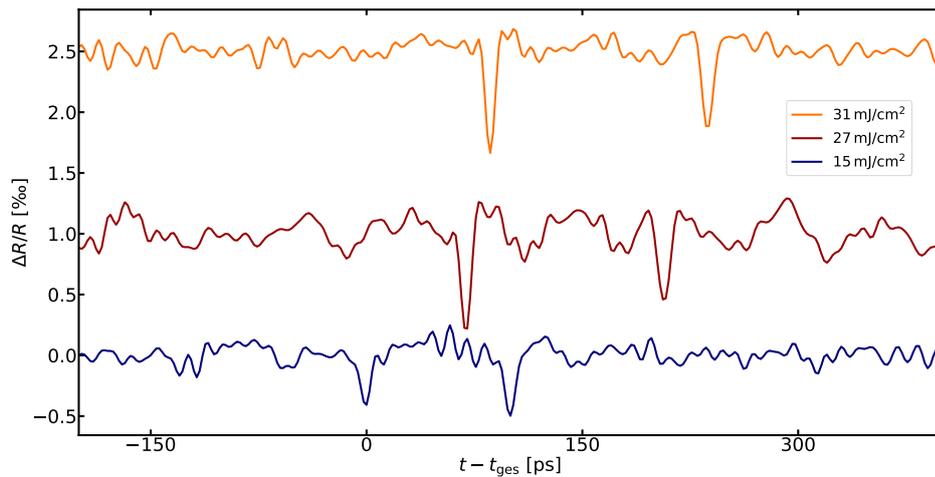
**Abbildung 4.5:** Mit dem in Abbildung 4.4 beschriebenen Aufbau gemessenes Signal der auf der Vorderseite ankommenden Hyperschallwelle für eine Fluenz von  $27 \text{ mJ/cm}^2$  und einer auf den ersten Peak zentrierten Zeitachse. Die in (a) dargestellten Reflektivitätsdaten werden im ersten Schritt fouriertransformiert. Nach Anwendung eines Frequenz-Bandpassfilters erfolgt eine inverse Fouriertransformation deren Ergebnis in (b) zu erkennen ist. Dieses Verfahren extrahiert die zwei schwachen wellenlängenunabhängigen Minima in der relativen Reflektivitätsänderung aus (a), sodass sie in (b) sehr viel deutlicher in Erscheinung treten.

### 4.3.1 Nichtlineare Propagation einer Hyperschallwelle

Um die in Hinblick auf die zeitliche Schärfe solitonartigen Reflektivitätssignale näher untersuchen und interpretieren zu können, werden fluenzabhängige Messungen mit Variation der Pulsenergie des Anregepulses durchgeführt, deren Ergebnisse in Abbildung 4.6 vergleichend dargestellt sind. Es sind jeweils die über den Wellenlängenbereich von 500 bis 560 nm gemittelten und mit dem zuvor beschriebenen Verfahren bearbeiteten Reflektivitätsänderungen über einer auf das erste Minimum zentrierten Zeitachse aufgetragen. Die Wellenlängenunabhängigkeit der beobachteten Minima der Reflektivitätsänderung lässt auf eine Dynamik im SRO-Transducer auf der Vorderseite der Probe schließen. Im Zusammenhang mit den in Kapitel 3.3 besprochenen Einflüssen einer Dehnung des Transducers auf die dielektrische Funktion und somit auf den Brechungsindex, lassen sich die im Experiment beobachteten Reflektivitätsänderungen als in den Transducer propagierte Dehnung interpretieren. Die weitere Interpretation der Ursache der zeitlich scharfen Reflektivitätsänderungen erfolgt im Folgenden anhand verschiedener Fluenzserien und Simulationen.

In der Fluenzserie in Abbildung 4.6 zeigen sich für größere Fluenzen eine Zunahme des zeitlichen Abstands zwischen den Minima in der Reflektivität sowie eine Verschiebung des ersten Minimums zu späteren Zeiten. Die Fluenzabhängigkeit der Reflektivitätsänderungen deutet auf einen nichtlinearen

Effekt und somit auf eine nichtlineare Propagation der Hyperschallwelle hin. Die Zunahme des Abstands für größere Fluenzen wäre gemäß Abbildung 4.2(c) konsistent mit einer Interpretation der scharfen Peaks als Solitonen, da die Dehnungsamplitude und somit die Geschwindigkeit von Solitonen bei höheren Fluenzen zunimmt. Gegen eine Interpretation der zeitlich scharfen Reflektivitätsänderungen als Solitonen spricht zum einen die spätere Ankunft der ersten Dehnung, da aufgrund der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit die Geschwindigkeit mit steigender Fluenz zunehmen müsste. Zum anderen nimmt die Anzahl der Solitonen mit steigender Fluenz, wie in Abbildung 4.2(c) erkennbar, zu, während die Anzahl der experimentell beobachteten Reflektivitätsänderungen für die untersuchten Fluenzen konstant bleibt.

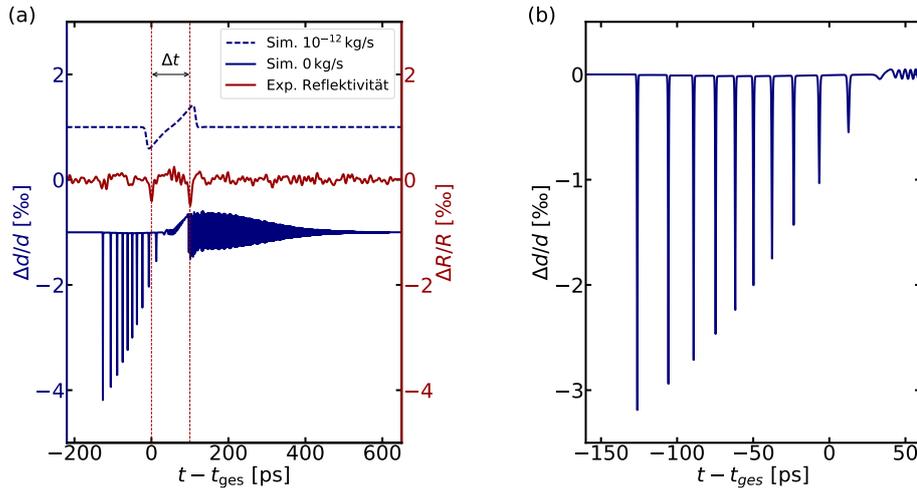


**Abbildung 4.6:** Fluenzserie mittels Variation der Leistung des Anregestrahls bei einer Kryostattemperatur von 20K. Die in Abbildung 4.5(b) dargestellte bearbeitete Reflektivitätsänderung für verschiedene Fluenzen jeweils gemittelt über einen Wellenlängenbereich von 500 bis 560nm. Die Zeitachse wurde auf den schnellsten Peak zentriert und die Messreihen entlang der  $y$ -Achse verschoben. Für größere Fluenzen sind eine spätere Ankunftszeit des ersten Minimums sowie ein größerer Abstand der beiden Peaks und eine Zunahme der Amplitude der Reflektivitätsänderungen zu beobachten.

Die über die fluenzabhängige Zunahme des Abstands der Ankunftszeiten der Dehnungen indizierte dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit weist eindeutig auf eine nichtlineare Propagation hin. Da die beobachteten fluenzabhängigen Reflektivitätsänderungen trotz beobachteter Nichtlinearität nicht mit den erwarteten Signalen für Solitonen übereinstimmen, sollte ein weiterer Parameter aus den Simulationen in Kapitel 4.1.2, die phononische Dämpfung  $\delta$ , in die Interpretation der Reflektivitätsdaten mit einbezogen werden. Der in Abbildung 4.7 dargestellte Vergleich der Reflektivitätsdaten bei einer Fluenz von  $15 \text{ mJ/cm}^2$  mit simulierten Dehnungsprofilen der Hyperschallwelle nach der Propagation durch  $100 \mu\text{m}$  DSO bei gleicher Anregungsfluenz und unterschiedlichen phononischen Dämpfungen lässt eine Interpretation der Reflektivitätsdaten zu.

Die beobachtete Zeitskala im Experiment weist, wie in Abbildung 4.7(a) zu erkennen, eine Korrelation mit dem zeitlichen Abstand des Gradientens der kompressiven und expansiven Phasenfront der bipolaren Schallwelle bei einer Dämpfung von  $10^{-12} \text{ kg/s}$  auf. Im Gegensatz dazu ist zwischen den Zeitskalen der gebildeten Solitonen bei ungedämpfter Propagation durch  $100 \mu\text{m}$  DSO, deren zeitlicher Abstand in Abbildung 4.7(b) dargestellt ist, keinerlei Übereinstimmung zu erkennen. Dieser Vergleich der experimentellen Reflektivitätsdaten mit der Simulation führt zu der Interpretation der beiden Reflektivitätsminima als in den Transducer propagierte kompressive beziehungsweise expansive Phasenfront der bipolaren Schallwelle. Die schnelle zeitliche Dehnungsänderung an

den beiden Phasenfronten führt zu einer großen, zeitlich scharfen Änderung der Reflektivität aufgrund des dehnungsabhängigen Brechungsindex, während die schwachen Dehnungsamplitudenänderungen der restlichen bipolaren Schallwelle zu keiner signifikanten Reflektivitätsänderung führen. Die beiden resultierenden Reflektivitätsänderungen haben das gleiche Vorzeichen trotz des unterschiedlichen Vorzeichens der Dehnung, weil der für die Änderung der Reflektivität relevante Dehnungsgradient der Phasenfronten das gleiche Vorzeichen hat.



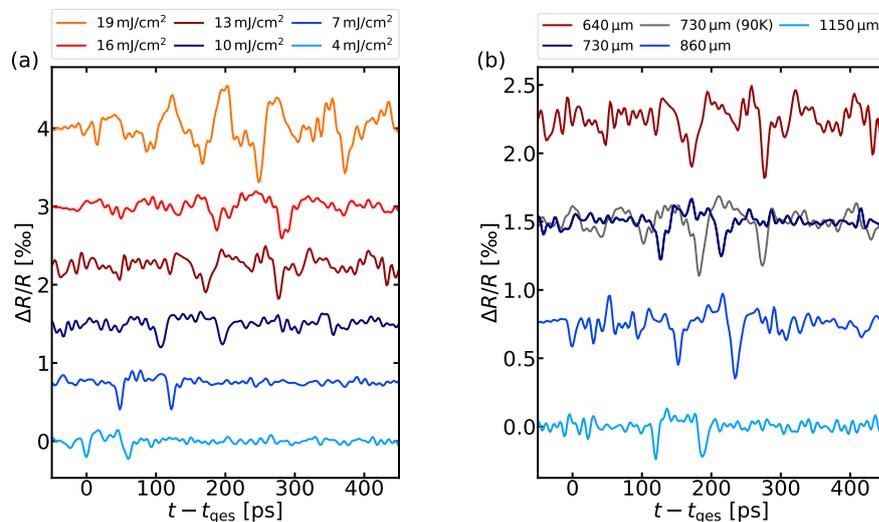
**Abbildung 4.7:** Vergleich von experimentellen Ergebnissen mit Simulationen. Der in (a) dargestellte Vergleich zwischen experimentell aufgenommener relativer Reflektivitätsänderung bei  $15 \text{ mJ/cm}^2$  und Simulationen unterschiedlicher Dämpfung mit  $15 \text{ mJ/cm}^2$  zeigt eine Korrelation zwischen den Zeitskalen der Dehnungen nach  $100 \mu\text{m}$  Propagation für  $\delta = 10^{-12} \text{ kg/s}$  und der gemessenen Reflektivitätsänderung. Für die Zeitskalen der bei vernachlässigter Dämpfung entstandenen, in (b) abgebildeten Solitonen mit einem durchschnittlichen zeitlichen Abstand von  $16 \text{ ps}$  gibt es in der Messung kein entsprechendes Pendant.

Diese Interpretation wird durch bereits durchgeführte vergleichbare Messungen unterstützt. Die in Ref. [11] gezeigten Reflektivitätsänderungen für kleine, nicht zur Anregung von Solitonen führende Fluenzen weisen wie die zuvor präsentierten Messdaten dieser Arbeit zwei zeitlich scharfe Reflektivitätsänderungen auf. Die Interpretation der Reflektivitätsdaten als an der Vorderseite der Probe ankommende Phasenfronten erklärt sowohl die fluenzunabhängige Anzahl der beobachteten Minima als auch den bei steigender Fluenz zunehmenden zeitlichen Abstand  $\Delta t$  der beiden Reflektivitätsminima unter Berücksichtigung der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit und den Simulationen aus Abbildung 4.3(b). Allerdings ist die zunehmende Propagationszeit der Kompression mit zunehmender Fluenz nicht erklärbar, da die Zunahme der Fluenz mit der folgenden größeren Dehnungsamplitude und der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit einer Abnahme der Propagationszeit der Kompression entsprechen müsste. Die Korrelation der Reflektivitätsdaten mit der Simulation bei großer Dämpfung ist ein Zeichen auf eine hohe lokale Temperatur der Probe.

Um diese Hypothese einer hohen, große Dämpfungen induzierenden, lokalen Temperatur der Probe zu überprüfen und die mögliche Solitonenbildung bei kleineren Fluenzen zu untersuchen, werden weitere in Abbildung 4.8 dargestellte Fluenzserien sowohl mit Variation der Pulsenergie  $E_p$  als auch mit Variation der *FWHM*-Breite des Anregepulses aufgenommen. Da die lokale Temperatur proportional zur Pulsenergie ist, sollte für die verschiedenen Fluenzen bei gleicher Pulsenergie des Anregepulses eine Abweichung zu der Fluenzserie mit Variation der Pulsenergie zu beobachten sein. Leider musste für diese Messungen ein anderes Fragment der im Zuge der in Kapitel 3 präsentierten

experimentellen Untersuchung zerbrochenen Probe gewählt werden, da sich das Fragment der vorherigen Fluenzserie vom Probenhalter und der restlichen Probe gelöst hatte.

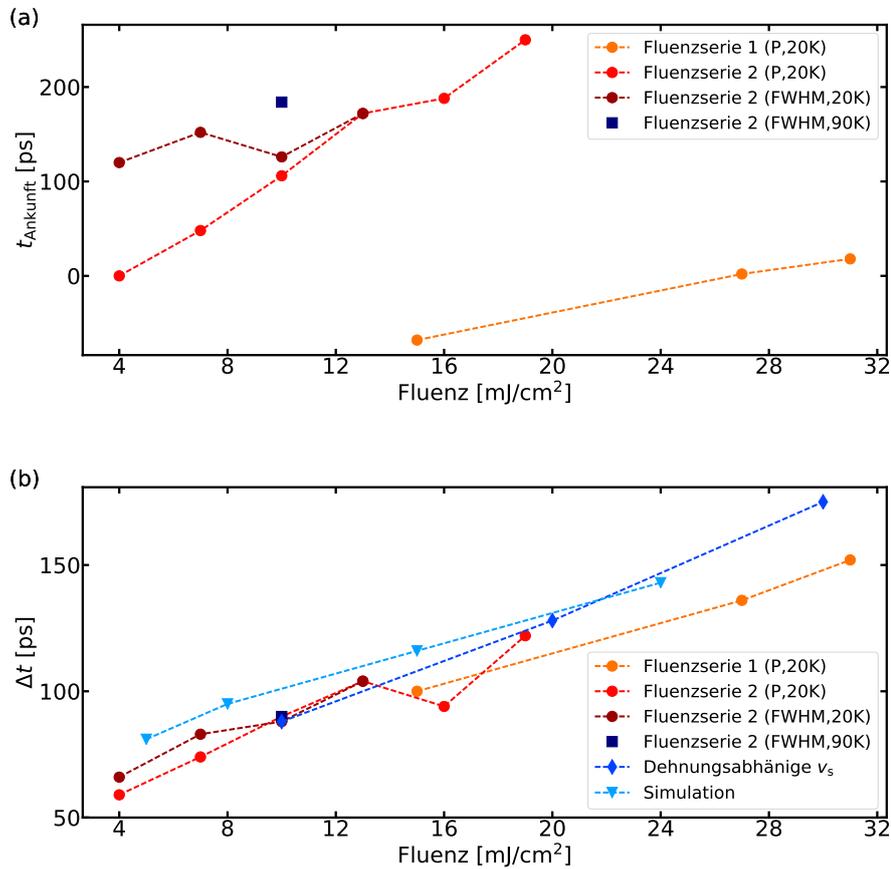
Trotz der leicht geänderten experimentellen Bedingungen zeigt sich für die in Abbildung 4.8(a) dargestellte Leistungsvariation für alle Fluenzen qualitativ keinerlei Unterschied zu der ersten Fluenzserie in Abbildung 4.6. Auch für kleine Fluenzen von  $4$  und  $7 \text{ mJ/cm}^2$  kommt es nicht zur Bildung von Solitonen an der kompressiven Phasenfront der bipolaren Schallwelle. Für beide in Abbildung 4.8 dargestellten Fluenzserien zeigt sich für große Fluenzen eine Zunahme des zeitlichen Abstands der Kompression und der Expansion der bipolaren Schallwelle. Die auf die schnellste Kompression zentrierte Zeitachse zeigt auch für die Leistungsserie in (a) eine spätere Ankunftszeit der Kompression mit zunehmender Fluenz. Das Auftragen der Fluenzserie in Abbildung 4.8(b) über der gleichen Zeitachse zeigt keinerlei fluenzabhängige Zunahme der Propagationszeit bei konstanter,  $13 \text{ mJ/cm}^2$  entsprechender Pulsenergie. Allerdings ist insgesamt eine Zunahme der Propagationszeit in den Messungen der Spotgrößenserie im Vergleich zu den Messungen gleicher Fluenz der Leistungsserie zu beobachten.



**Abbildung 4.8:** Fluenzserien auf einem anderen Fragment der Probe bei einer Kryostattemperatur von  $20\text{K}$  und Variation sowohl der Leistung als auch der FWHM-Breite des Anregestrahls. Für die in (a) dargestellte Fluenzserie über Variation der Leistung des Anregestrahls wurde ein Strahldurchmesser von  $640 \mu\text{m}$  eingestellt. Für die in (b) dargestellte Fluenzserie durch Variation der Strahlgröße wurde eine Leistung des Anregestrahls von  $213 \text{ mW}$  eingestellt. Die Messung bei einer Fluenz von  $13 \text{ mJ/cm}^2$  ist in beiden Fluenzserien enthalten und Messungen gleicher Fluenz der beiden Fluenzserien sind durch gleiche Farben gekennzeichnet. Die in (b) mit grau dargestellte Messung wurde abweichend zu den restlichen Messungen bei einer Kryostattemperatur von  $90\text{K}$  durchgeführt. Die in Abbildung 4.6 und 4.8(a) beobachtete Zunahme der Propagationszeit bei höheren Fluenzen ist jedoch nicht für die Spotgrößenserie in (b) zu beobachten.

Abbildung 4.9 trägt die bisher gewonnenen Erkenntnisse aus den experimentellen Untersuchungen zusammen und vergleicht diese mit den Ergebnissen der Simulationen. Abbildung 4.9(a) zeigt für die verschiedenen Fluenzserien die fluenzabhängige Ankunftszeit der Kompression der Hyperschallwelle im SRO auf der Vorderseite der Probe über einer auf die schnellste Kompression der zweiten Fluenzserie (Vergleich Abbildung 4.8(a)) zentrierten Zeitachse. Während für die Fluenzserie der Variation der Anregestrahlleistung eine Zunahme der Propagationszeit mit höheren Fluenzen zu erkennen ist, zeigt die Fluenzserie bei gleicher Leistung und unterschiedlichen Anregestrahldurchmessern keine fluenzabhängige Propagationszeit.

Die Proportionalität zwischen Leistung des Anregestrahls und eingebrachter Wärme führt mit dieser Beobachtung zu einer Interpretation der Zunahme der Propagationszeit bei hohen Fluenzen als eine Abnahme der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit [9] aufgrund zunehmender lokaler Temperatur.



**Abbildung 4.9:** (a) Vergleich der fluenzabhängigen Ankunftszeit der kompressiven Phasenfront für die verschiedenen Fluenzserien. Alle Fluenzserien mit Ausnahme einer Messung aus Abbildung 4.8(b) wurden bei einer Kryostattemperatur von 20K aufgenommen, die einzelne Messung wurde bei einer Kryostattemperatur von 90K aufgenommen. Es werden sowohl die Fluenzserien mit Variation der Leistung (P) des Anregestrahls aus Abbildung 4.6 und 4.8(a) als auch die Fluenzserie mit Variation des Strahldurchmessers (FWHM) des Anregestrahls aus Abbildung 4.8(b) miteinander verglichen. In (b) ist der fluenzabhängige zeitliche Abstand  $\Delta t$  der Reflektivitätsminima der verschiedenen Fluenzserien vergleichend dargestellt. Weiterhin sind die aus der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit in Ref. [9] folgenden zeitlichen Abstände der kompressiven und expansiven Phasenfront bei rückseitiger Anregung sowie die aus Abbildung 4.3(b) extrahierten Abstände der Phasenfronten der simulierten Hyperschallwellen dargestellt.

Weiterhin zeigt der Vergleich der Ankunftszeiten der in Abbildung 4.8(b) dargestellten Messungen bei gleicher Leistung und Strahlgröße aber unterschiedlicher Kryostattemperatur eine Zunahme der Propagationszeit bei einer höheren Kryostattemperatur. Diese Korrelation zwischen der Schallgeschwindigkeit und der Temperatur stützt die Interpretation der in den Messungen in Abbildung 4.6 und 4.8(a) beobachteten Zunahme der Propagationszeit für hohe Fluenzen als Zunahme der laserinduzierten lokalen Proben temperatur mit einer resultierenden Abnahme der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit [9]. Die klar erkennbare unterschiedliche Propagationszeit der Fluenzserien

auf den verschiedenen Fragmenten der Probe kann zum einen durch experimentell beobachtete Inhomogenitäten der Probe und zum anderen durch nicht parallele Oberflächen des DSO-Substrats erklärt werden.

Die in Abbildung 4.9(b) für alle Fluenzserien aufgetragene zeitliche Divergenz von Kompression und Expansion aufgrund der nichtlinearen Propagation zeigt einen messserienübergreifenden Trend. Die beobachtete Zunahme des Abstands der Phasenfronten bei hohen Fluenzen stimmt mit der theoretisch abgeleiteten dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit aus Gleichung 4.6 überein. Die mit der in Ref. [9] gemessenen, dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit berechneten fluenzabhängigen Abstände der Phasenfronten der bipolaren Schallwelle passen sehr gut zu dem in dieser Arbeit detektierten fluenzabhängigen Abstand der Phasenfronten in Folge der nichtlinearen Propagation. Die eingezeichneten zeitlichen Abstände der Simulationen beziehen sich auf die zeitlichen Abstände der Phasenfronten der in Abbildung 4.3(b) gezeigten Dehnungsprofile der Hyperschallwellen und passen sehr gut zum Trend der verschiedenen Fluenzserien.

Zusammenfassend untermauern die Fluenzserien in Abbildung 4.8 und der Vergleich mit den Ergebnissen der Simulation in Abbildung 4.9 die anhand von Abbildung 4.7 gefundene Interpretation der beiden Minima der Reflektivitätsänderung als im SRO-Transducer ankommenden kompressiven beziehungsweise expansiven Teil der Hyperschallwelle. Der mit der Fluenz zunehmende zeitliche Abstand zwischen Kompression und Expansion indiziert die in Abschnitt 4.1 herausgearbeitete aus der nichtlinearen Wellengleichung 4.4 folgende dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit, da die Fluenz über die eingebrachte Energiedichte ins Elektronensystem proportional dem dehnungsgenerierenden Spannungsprofil ist. Die resultierende größere Dehnung bei hohen Fluenzen verstärkt den Effekt der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit, sodass die Schallgeschwindigkeitsdifferenz zwischen Kompression und Expansion zunimmt. Die mit der dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit einhergehende Selbstaufsteilung der Hyperschallwelle und die resultierenden, steilen Phasenfronten zeigen sich in der Schärfe und der großen Amplitude der Reflektivitätsänderungen, da die großen Dehnungsgradienten eine kurze, starke Änderung des Brechungsindex induzieren. Diese Nichtlinearität kommt schon bei Anregungen mit  $4\text{ mJ/cm}^2$  zum Tragen, da der gemessene zeitliche Abstand der Phasenfronten größer als die in Abbildung 3.1 zu erkennende zeitliche Ausdehnung der Schallwelle unmittelbar nach der Entstehung an der Rückseite der Probe ist. Die Abhängigkeit der Reflektivität von den Dehnungsgradienten der Phasenfronten und nicht von der Dehnung impliziert für beide Phasenfronten das gleiche Vorzeichen in der Reflektivitätsänderung.

Es konnte jedoch keine zur Solitonenbildung führende Propagation der Hyperschallwelle detektiert werden. Der Vergleich mit den Simulationen in Abbildung 4.7 indiziert eine starke, hohen Temperaturen entsprechende Dämpfung. Diese große Dämpfung unterdrückt die Bildung von Solitonen an der kompressiven Phasenfront, sodass die lokale Temperatur der Probe in Folge der Laseranregung als problematisch für die Solitonenbildung identifiziert werden kann. Die fluenzabhängige Temperatur der Probe wurde in einer Zunahme der Propagationszeit bei höheren Fluenzen indirekt beobachtet.

### 4.3.2 Bestimmung der lokalen Temperatur als Ursache der unterdrückten Bildung von Solitonen

Die im vorherigen Abschnitt beobachtete Korrelation zwischen den aufgenommenen Reflektivitätsdaten und für große Dämpfung simulierten Hyperschallwellen deutet auf eine hohe lokale Temperatur der Probe hin. Weiterhin wurde eine Zunahme der Propagationszeit für hohe Fluenzen festgestellt und diese im Zusammenhang der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit von DSO als Zunahme der Temperatur interpretiert. Die Zunahme der Propagationszeit im Zusammenhang mit zunehmender Dämpfung der Hyperschallwelle durch eine laserinduzierte Temperatur der Probe wurde bereits für Galliumarsenid festgestellt. [14] Um die Schlussfolgerung einer dämpfungsunterdrückten Bildung von Solitonen aufgrund einer hohen Proben temperatur

zu überprüfen und zu quantifizieren, wird in diesem Abschnitt explizit die lokale Temperatur der Probe indiziert durch die temperaturabhängige Schallgeschwindigkeit untersucht.

In den Solitonenuntersuchungen in der Literatur werden die Experimente bei Temperaturen unter 35 K durchgeführt [11, 13, 14]. Für Galliumarsenid wird ein signifikanter Anstieg der phononischen Dämpfung bei 70 K angegeben [14]. Insgesamt sollte die Temperatur der Probe also auch bei hohen Fluenzen für die Entstehung von Solitonen deutlich weniger als 100 K betragen. Die experimentell untersuchte Probe zeichnet sich durch eine schlechte Wärmeleitfähigkeit aus (siehe Tabelle 2.1), so sind die Wärmeleitfähigkeiten der Materialien der Probe 40–200 mal kleiner als die von Kupfer [43]. Weiterhin kommt es aufgrund der beidseitig gewachsenen SRO-Schichten zum zusätzlichen Einbringen von Wärme auf der Rückseite der Probe. Zur Abschätzung der Zeitskala der Verteilung der eingebrachten Wärme kann aus der Wärmeleitfähigkeit  $\kappa$ , der Wärmekapazität  $C$  und der Dichte  $\rho$  die thermische Diffusivität  $a$  der Probe nach Gleichung 4.8 berechnet werden.

$$a = \frac{\kappa}{\rho C} \quad (4.8)$$

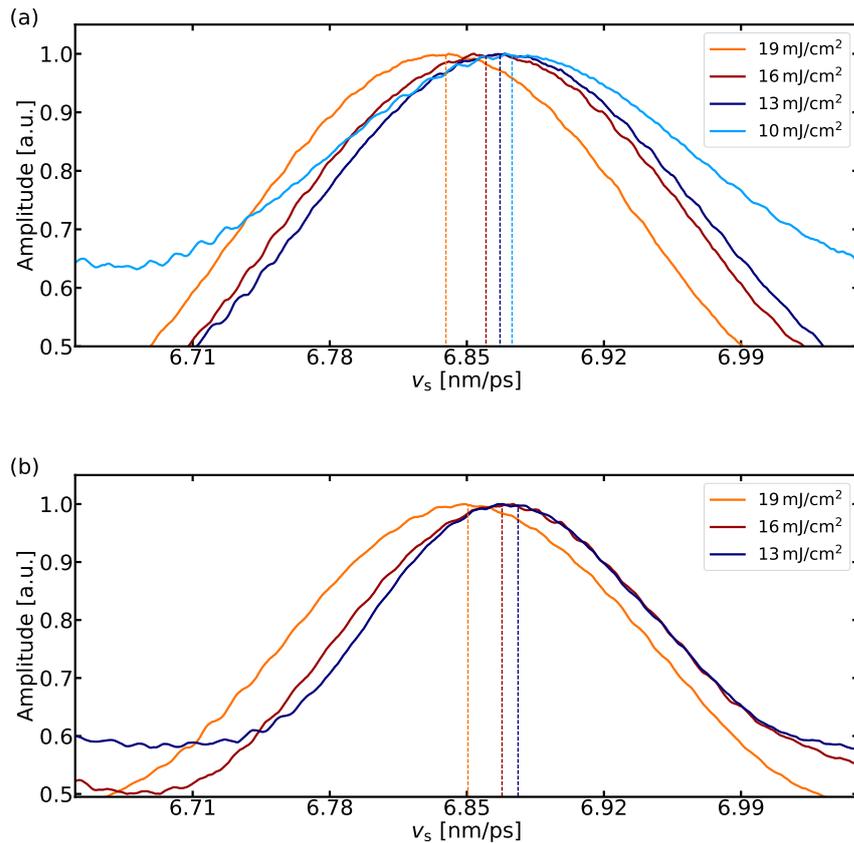
Für die Probe ergibt sich eine thermische Diffusivität von  $1 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{ms}$ , das entspricht einer Zunahme der angeregten Fläche von  $0,5 \text{ mm}^2$  um  $2 \cdot 10^{-4} \text{ mm}^2$  in der Zeit zwischen den ankommenden Anregepulsen gemäß der Repetitionsrate des Lasersystems. Diese Werte ergeben sich für eine Temperatur von 300 K, da keine Wärmekapazität beziehungsweise Wärmeleitfähigkeit für tiefe Temperaturen dokumentiert ist [27]. Allerdings wird es auch mit einer wesentlich größeren Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen zu keinem signifikanten Wärmeaustausch mit dem Kupferhalter kommen. Die schlechte Verteilung der eingebrachten Wärme auf der Zeitskala des zeitlichen Abstands der Anregepulse führt somit zu einer statischen Aufheizung der Probe.

Um die Verteilung der eingebrachten Wärme zu verbessern, wurde für die in diesem Abschnitt durchgeführte lokale Temperaturbestimmung neben dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Probenhalter ein weiterer Probenhalter verwendet. Dieser besteht aus einer Kupferplatte, in die Löcher mit einem Durchmesser von 1 mm gebohrt wurden, über denen die einzelnen Fragmente der Probe mittels Silberleitpaste aufgeklebt werden können. Dieser Probenhalter vergrößert den Kontakt zwischen Probe und dem gut wärmeleitenden Kupferhalter und reduziert gleichzeitig die Entfernung des angeregten Spots zum Kupfer, sodass die vom Laser deponierte Wärme besser abgeführt werden kann. Bei den im vorherigen Kapitel präsentierten Messungen auf dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Probenhalter betrug der Abstand vom untersuchten Spot auf der Probe zum Kupfer in eine Richtung mehrere  $100 \mu\text{m}$  während in den anderen Richtungen der Abstand mehrere Millimeter betrug. Dieser wird auf dem neuen Halter auf maximal  $0,5 \text{ mm}$  begrenzt.

In Abbildung 4.10 ist für beide Probenhalter die über Brillouinstreuung an der Vorderseite bestimmte Schallgeschwindigkeit für s-polarisiertes Weißlicht gezeigt, wobei die Änderung des Brechungsindex aufgrund der Doppelbrechung beachtet wurde (siehe Kapitel 3.4.2). In den Messungen wurden die gleichen Anregestrahlparameter wie für die vergleichbaren Fluenzen der Leistungsserie in Abbildung 4.8(a) eingestellt. Für beide Probenhalter ist eine Zunahme der Schallgeschwindigkeit mit abnehmender Fluenz zu erkennen, wobei die Schallgeschwindigkeiten immer noch sehr viel kleiner als die bestimmte Schallgeschwindigkeit von  $6,92 \text{ nm/ps}$  für 20 K [9] sind. Weiterhin wurden, wie anhand der Konstruktion der beiden Probenhalter zu erwarten ist, auf dem speziell konstruierten Probenhalter für alle Fluenzen eine höhere Schallgeschwindigkeit experimentell bestimmt.

Um die lokale Temperatur auf der Probe über einen weiten Fluenzbereich abschätzen zu können und die in Abbildung 4.9(a) beobachtete längere Propagationszeit der Kompression für zunehmende Fluenz auszuwerten, werden die Ankunftszeiten der Kompression in Schallgeschwindigkeiten übersetzt. Dazu wird die Annahme einer Proben temperatur von 20 K entsprechenden Schallgeschwindigkeit von  $6,92 \text{ nm/ps}$  für eine Fluenz von  $4 \text{ mJ/cm}^2$  getroffen. Diese Annahme ist berechtigt, da die Bestimmung der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit mit einer Fluenz von  $5 \text{ mJ/cm}^2$  erfolgte [9]. Weiterhin wurden die Ankunftszeiten der ersten Fluenzserie so verschoben, dass

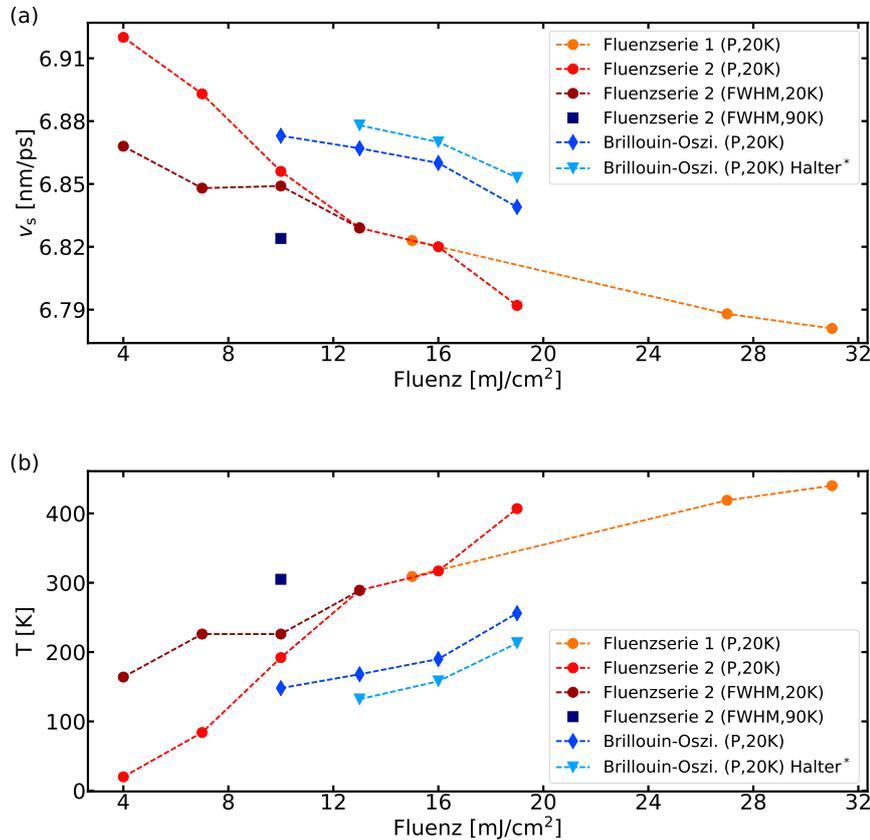
die Ankunftszeit der Kompression für  $15 \text{ mJ/cm}^2$  bei der Darstellung aller Fluenzserien über der Zeitachse in Abbildung 4.9(a) zwischen der Ankunftszeit von  $13$  und  $16 \text{ mJ/cm}^2$  liegt. Um die über die Ankunftszeit der Kompression bestimmte Schallgeschwindigkeit mit der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit vergleichen zu können, muss die gemessene Zunahme der fluenzabhängigen, dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit für die Kompression in Ref. [9] berücksichtigt werden. Die resultierenden fluenzabhängigen, dehnungsunabhängigen Schallgeschwindigkeiten in DSO der verschiedenen Fluenzserien und der Brillouinstreuung-Messungen sind vergleichend in Abbildung 4.11(a) dargestellt.



**Abbildung 4.10:** Vergleich der über Brillouin-Streuung bestimmten fluenzabhängigen Schallgeschwindigkeiten mit dem für die bisher präsentierten Messungen verwendeten Probenhalter (a) und dem speziell für die Reduzierung der lokalen Temperatur designten Probenhalter (b). Für beide Probenhalter ist eine Zunahme der Schallgeschwindigkeit mit abnehmender Fluenz zu erkennen. Für den speziell angefertigten Halter ergibt sich systematisch für alle Fluenzen eine höhere Schallgeschwindigkeit.

Es ist eine Abnahme der Schallgeschwindigkeit mit zunehmender Fluenz für alle Messserien zu beobachten. Die Messungen der Fluenzserie mit Variation der Spotgröße (FWHM) zeigen eine systematisch kleinere Schallgeschwindigkeit als die Messungen der Fluenzserie mit Variation der Leistung des Anregestrahls ( $P$ ). Da für alle Messungen der Spotgrößenserie eine  $13 \text{ mJ/cm}^2$  entsprechende Leistung eingestellt wurde, zeigt der Unterschied in der Schallgeschwindigkeit zwischen den Fluenzserien eine signifikante Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit von der Leistung des Anregestrahls. Die aus der Abhängigkeit von der Leistung folgende Abhängigkeit der Schallgeschwindigkeit von der Temperatur der Probe wird durch die Schallgeschwindigkeitsdifferenz bei gleicher Anregestrahleneinstellung aber unterschiedlicher Kryostattemperatur untermauert. Die Abweichung

der mit Brillouinstreuung bestimmten fluenzabhängigen Schallgeschwindigkeiten gegenüber den aus der Ankunftszeit bestimmten Schallgeschwindigkeiten lässt sich über den nicht berücksichtigten temperaturabhängigen Brechungsindex in der Auswertung der Brillouin-Oszillationen erklären. Die schon in Abbildung 4.10 erkennbare größere Schallgeschwindigkeit für die Messungen auf dem speziell angefertigten Probenhalter sind auch in dieser vergleichenden Abbildung zu erkennen.



**Abbildung 4.11:** In (a) ist die aus den Ankunftszeiten der Kompression bestimmte, dehnungsunabhängige und fluenzabhängige Schallgeschwindigkeit der verschiedenen Fluenzserien mit der durch Brillouin-Streuung bestimmte fluenzabhängige Schallgeschwindigkeit vergleichend dargestellt. Die mit der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit von DSO [9] aus der fluenzabhängigen Schallgeschwindigkeit folgende fluenzabhängige Proben­temperatur ist für die verschiedenen Messserien in (b) dargestellt. Alle Messserien wurden bei einer Kryostattemperatur von 20K mit Ausnahme einer einzelnen Messung der Spotgrößen­serie (FWHM) in Abbildung 4.8(b) aufgenommen. Es sind die Fluenzserien sowohl über Variation der Leistung des Anrege­strahls (P) als auch mit Variation des Anrege­strahl­durchmessers (FWHM) abgebildet. Weiterhin sind die über Brillouin-Streuung bestimmten Schallgeschwindigkeiten und resultierenden Proben­temperaturen sowohl auf dem für die Fluenzserien verwendeten Halter als auch auf dem speziell angefertigten Halter (Halter\*) dargestellt.

Unter Berücksichtigung der dokumentierten temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit in DSO [9, S.48] lassen sich die in Abbildung 4.11(a) beschriebenen fluenzabhängigen Schallgeschwindigkeiten in eine fluenzabhängige, in Abbildung 4.11(b) dargestellte lokale Temperatur der Probe übersetzen. Demnach ist für zunehmende Fluenz ein Anstieg der lokalen Temperatur auf bis zu 400K trotz der eingestellten Kryostattemperatur von 20K erkennbar. Die Abschätzung der lokalen Temperatur anhand der Ankunftszeiten ist trotz der Unsicherheit der genauen Dicke des Substrats

valide, da der bei gleicher Anregestrahleinstellung durch eine um 70 K höhere Krystattemperatur definierte Temperaturunterschied für die Messungen bei  $10 \text{ mJ/cm}^2$  gut abgebildet wird. Auffällig ist die Abweichung der über die Schallgeschwindigkeit bestimmten Temperatur für eine Fluenz von  $10 \text{ mJ/cm}^2$  relativ zum Trend der Fluenzserie, diese könnte ein Indiz für die laserinduzierte Zerstörung der beschädigten Probe auf mikroskopischer Ebene sein, die Messungen mit  $22 \text{ mJ/cm}^2$  und höheren Anregungsfluenzen auf dem Fragment der zweiten Fluenzserie (Abbildung 4.8) verhindert hat. Die entsprechenden Messungen bei 20 beziehungsweise 90 K sind die letzten aufgenommenen Messungen auf diesem Fragment der Probe. Die Zerstörung wurde experimentell in Form einer signifikanten Änderung des reflektierten Weißlichtspektrums der nicht angeregten Probe sowie eines Verschwindens der Reflektivitätsänderungen der ankommenden Hyperschallwelle in Testmessungen vor und nach der Anregung der Probe beobachtet.

Insgesamt zeigt Abbildung 4.11 eine Zunahme der lokalen, laserinduzierten Temperatur bei zunehmender Fluenz. Dabei indiziert die wesentlich größere Temperatur der Messungen der Spotgrößenserie die Abhängigkeit der lokalen Temperatur auf der Probe von der Leistung des Anregestrahls, da die konstante Anregestrahlleistung der Spotgrößenserie größer als die für kleine Fluenzen abnehmende Anregestrahlleistung der Leistungsserie ist. Die lokale Temperatur der Probe steigt schon für eine Anregungsfluenz von  $10 \text{ mJ/cm}^2$  auf über 100 K und liegt somit deutlich über der Krystattemperatur von 20 K und den in der Literatur für die Untersuchung von Solitonen eingestellten Temperaturen. Während die fluenzabhängige lokale Proben temperatur für die beiden Probenhalter nur eine geringe Abnahme der Temperatur um 30 K für den speziell konstruierten Probenhalter (Halte\*) zeigt, indiziert der Vergleich der Messungen der Leistungs- und Spotgrößenserie bei  $4 \text{ mJ/cm}^2$  eine Reduzierung der Proben temperatur um 130 K. Die Messung der Spotgrößenserie wurde bei der vierfachen Leistung des Anregestrahls der Messung der Leistungsserie durchgeführt (Vergleich Abbildung 4.8), sodass die Abnahme der Temperatur auf eine Reduktion der Leistung des Anregestrahls zurückgeführt werden kann.

Weiterhin ist die Fluenzabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit in Zusammenhang der fluenzabhängigen Temperatur der Probe konsistent mit der Differenz von  $0,05 \text{ nm/ps}$  zwischen der in Kapitel 3.4.2 bestimmten Schallgeschwindigkeit bei  $24 \text{ mJ/cm}^2$  zu der in Ref. [9, 10] bestimmten Schallgeschwindigkeit bei  $5 \text{ mJ/cm}^2$ . Die höhere Fluenz impliziert nach Abbildung 4.11(b) eine Zunahme der lokalen Proben temperatur um ungefähr 260 K. Mit dieser Zunahme der Temperatur ergibt sich nach der in Ref. [9] bestimmten Änderung der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit mit zunehmender Proben temperatur von  $-2,6 \cdot 10^{-4} \text{ nm/(psK)}$  eine Schallgeschwindigkeitsdifferenz von  $0,067 \text{ nm/ps}$ . Die gute Übereinstimmung zwischen den Differenzen lässt auf eine valide Temperaturbestimmung schließen.

Zusammenfassend wird die Beobachtung einer stark gedämpften, nichtlinearen Propagation der Hyperschallwelle anhand der Reflektivitätsänderungen im vorherigen Kapitel mit der durchgeführten Temperaturbestimmung plausibel. Die ermittelten statischen Proben temperaturen liegen trotz Tieftemperaturmessungen bei 20 K deutlich über den in der Literatur verwendeten Temperaturen [11, 13, 14]. Die hohe statische Proben temperatur von über 300 K bedingt eine hohe phononische Dämpfung, die die Solitonenbildung an der kompressiven Phasenfront der bipolaren Schallwelle unterdrückt. Die Untersuchungen dieser Arbeit stellen somit die Relevanz der Wärmeleitfähigkeit neben der Nichtlinearität und der phononischen Dämpfung für die Entstehung von Solitonen in einem Substrat heraus. Der für die Reduzierung des statischen Aufheizens angefertigte Probenhalter führte zu keiner signifikanten Reduktion der lokalen Proben temperatur, trotz eines besseren Kontakts zum gut wärmeleitenden Kupfer [43] aufgrund der kleinen Löcher. Der Vergleich der Messungen bei  $4 \text{ mJ/cm}^2$  zeigt jedoch eine deutliche Reduktion der Temperatur für kleinere Leistungen des Anregestrahls bei kleinerer Anregungsfläche. Eine deutliche Reduzierung der Anregefläche ohne eine inhomogene Anregung des abgefragten Teils der Probe ist aufgrund einer 400-mal kleineren Abfragefläche möglich. Diese Möglichkeit der Verkleinerung der Anregefläche erlaubt bei gleicher Anregungsenergie dichte eine Reduzierung der Leistung des Anregestrahls und somit eine Reduzierung der lokalen Proben temperatur.



## 5 Zusammenfassung

Diese Arbeit bietet einen Einblick in die lineare und nichtlineare Propagation einer mit dem metallischen Transducer Strontiumruthenat angeregten Hyperschallwelle in Dysprosiumscandat. Die experimentelle Untersuchung erfolgte mithilfe von optischer Anrege-Abfrage-Spektroskopie, wobei die Reflektivität der Probe als Indikator für die induzierte Dynamik diente. Zunächst wurden die Anregung und die resultierende Dynamik im Transducer als Ursache der Entstehung einer Hyperschallwelle untersucht. Für die aus der Anregung des Strontiumruthenats folgende Reflektivitätsänderung wurde eine lineare Abhängigkeit von der Fluenz festgestellt. Weiterhin wurde für die Thermalisierung des Elektron-Phonon-Systems, indiziert durch ein Abkühlen des elektronischen Systems, eine Zeitskala von 200 fs beobachtet. Die folgende Anregung des phononischen Systems in Form einer sich ausbildenden expansiven Dehnung des 53 nm dicken Transducers erreicht ihr Maximum in Übereinstimmung mit Simulationen 8 ps nach der Anregung. Der beidseitig gewachsene Transducer erlaubte unter der im ersten Schritt bestätigten Annahme einer linearen Beziehung zwischen Reflektivitätsänderung durch Anregung des Transducers und Anregungsenergiegedichte eine Bestimmung der Eindringtiefe in Strontiumruthenat für Licht der Wellenlänge 800 nm zu 51 nm und für Licht der Wellenlänge 560 nm zu 55 nm.

Die Propagation der in Folge der Anregung des Transducers entstandenen Hyperschallwelle wurde mithilfe zeitaufgelöster Brillouin-Streuung untersucht. Dabei wurde ein substantieller Teil des breiten Spektrums der Hyperschallwelle in Form einer gemessenen Dispersionsrelation longitudinal akustischer Phononen detektiert und darauf aufbauend die Schallgeschwindigkeit in Dysprosiumscandat zu 6,79 nm/ps bestimmt. Diese Schallgeschwindigkeit ist im Zusammenhang der fluenzabhängigen Abnahme der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit bei zunehmender Temperatur konsistent mit der bestimmten Schallgeschwindigkeit in vorangegangenen Arbeiten [9, 10]. Bei Messungen mit unterschiedlich polarisiertem Abfragepuls zeigt sich eine mit der Doppelbrechung des Dysprosiumscandats begründete Diskrepanz in Form unterschiedlicher Schallgeschwindigkeiten unter der Annahme eines konstanten Brechungsindex für unterschiedliche Polarisierungen. Die Änderung des Brechungsindex von Dysprosiumscandat für optisches Weißlicht unter einem Einfallswinkel von  $45^\circ$  zwischen s- und p-Polarisation beträgt rund 2%.

Die durch die nichtlineare gedämpfte Wellengleichung beschriebene nichtlineare Propagation der Hyperschallwelle durch das Dysprosiumscandat wurde zunächst durch Simulationen visualisiert, wobei die anregende Fluenz und die Dämpfung variiert wurden. Dabei zeigte sich, dass in den Simulationen für Dämpfungen oberhalb von  $10^{-12}$  kg/s keine Solitonenbildung an der kompressiven Phasenfront der bipolaren Schallwelle stattfindet. Weiterhin wurde aus der nichtlinearen Wellengleichung eine dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit abgeleitet und das resultierende Auseinanderlaufen der Schallwelle fluenzabhängig untersucht. Die aus den Messungen gewonnenen Reflektivitätsdaten wurden über einen Vergleich mit den Simulationen als in das Strontiumruthenat propagierte Phasenfronten der aufgesteilten Hyperschallwelle interpretiert. Diese Selbstaufteilung ist das Resultat einer dehnungsabhängigen Schallgeschwindigkeit, die eine nichtlineare Propagation einer Hyperschallwelle indiziert. Die experimentell beobachtete fluenzabhängige Schallgeschwindigkeitsdifferenz zwischen Kompression und Expansion in Form der Zunahme des Abstands der Ankunftszeiten von Kompression und Expansion passt sowohl zum Abstand der Phasenfronten in Simulationen für eine Dämpfung von  $10^{-12}$  kg/s als auch zu der gemessenen Schallgeschwindigkeitsdifferenz zwischen Kompression und Expansion in früheren Arbeiten. Die Korrelation zwischen den durchgeführten Simulationen bei großer Dämpfung und den aufgenommenen Reflektivitätsänderungen lässt vermuten, dass experimentell keine Solitonen detektiert wurden. Anhand der

experimentellen Untersuchungen konnte jedoch die Ursache der unterdrückten Solitonenbildung identifiziert werden. Die Solitonenbildung wird nicht durch eine zu geringe Nichtlinearität von Dysprosiumscandat unterdrückt, da eine nichtlineare Selbstaufteilung der Hyperschallwelle und eine signifikant dehnungsabhängige Schallgeschwindigkeit bereits für Fluenzen von  $4 \text{ mJ/cm}^2$  experimentell und in Simulationen beobachtet werden konnten. Die Bildung der Solitonen wird durch eine temperaturbedingte, große Dämpfung unterdrückt. Die Solitonen sind als zeitlich und räumlich scharfe Wellenpakete besonders anfällig für die mit großen Frequenzen zunehmende phononische Dämpfung. Mit der Interpretation der über zeitaufgelöste Brillouin-Streuung bestimmten Schallgeschwindigkeiten mithilfe der temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit für Dysprosiumscandat wurden lokale Proben Temperaturen von bis zu 250K trotz Tieftemperaturmessungen bei 20K für Fluenzen unter  $20 \text{ mJ/cm}^2$  bestimmt. Die Ursache für diese hohen lokalen Temperaturen ist die schlechte Wärmeleitfähigkeit der Probe und die große Entfernung der angeregten Probe zum gut wärmeleitenden Kupferhalter. Die Verbesserung des Kontakts zum Kupfer mit einem speziell angefertigten Probenhalter reduzierte die Proben Temperatur allerdings nur um 30K. Im Gegensatz dazu zeigt der Vergleich der lokalen Temperatur bei gleicher Fluenz aber einem Viertel der Leistung des Anregestrahls eine Reduzierung der Temperatur um 130K. Da das Verhältnis von Anrege- und Abfragefläche in den Messungen ein Verhältnis von 400 : 1 aufweist, ist eine weitere Reduzierung der Anregefläche möglich, ohne den abgefragten Teil der Probe inhomogen anzuregen. Die Reduzierung der Anregefläche erlaubt bei gleicher Anregungsenergie dichte eine Reduzierung der nötigen Pulsenergie des Anregepulses und somit die Reduzierung der eingebrachten Wärme. Die resultierende Abnahme der lokalen Proben Temperatur ist die vielversprechendste Möglichkeit, um Solitonen in Dysprosiumscandat zu detektieren.

Um aufbauend auf den Erkenntnissen dieser Arbeit Untersuchungen von akustischen Solitonen in Dysprosiumscandat experimentell zu realisieren, sollte zunächst das Problem der hohen lokalen Temperatur der Probe aufgrund der schlechten Wärmeleitung des Dysprosiumscandat-Substrats gelöst werden. Die aufgenommenen Messwerte zeigen eine Reduzierung der lokalen Temperatur bei der Reduzierung der Leistung des Anregestrahls, da diese proportional der eingebrachten Wärme ist. Um die eingebrachte Wärme weiter zu reduzieren, könnte in Richtung des Anregestrahls eine wärmeisolierte Blende mit einer Öffnung in der Größenordnung des Abfragepulses in den Strahlengang einbracht werden. Diese reduziert das unnötige Einbringen von Wärme in den durch den Abfragepuls nicht untersuchten Teil der Probe. Die Größe der Öffnung der wärmeisolierenden Blende ist allerdings nach unten aufgrund der Vermeidung lateral großer Energiedichtegradienten in der Probe begrenzt. Falls die Temperatur eine Solitondetektion erlaubt, könnte man mit einer kombinierten Fluenz- und Temperaturserie die nichtlineare elastische Konstante sowie die temperaturabhängige Dämpfung untersuchen. Weiterhin könnte Strontiumtitanat als Detektionsschicht für Röntgenbeugungsmessungen verwendet werden, um die fluenz- und dämpfungsabhängige Dehnung der Solitonen zeitaufgelöst und quantitativ zu untersuchen. Weiterhin zeigen die bestimmten Schallgeschwindigkeiten in Dysprosiumscandat eine Anisotropie des Brechungsindex von Dysprosiumscandat. Zur weiteren Untersuchung dieser Anisotropie könnten ein Vergleich mit einem reflektrometrisch bestimmten wellenlängenabhängigen Brechungsindex und systematische Messungen mit Variation der Temperatur durchgeführt werden.

---

## Literaturverzeichnis

- [1] A. Bojahr. *Hypersound Interaction Studied by Time-Resolved Inelastic Light and X-Ray Scattering*. Doktorarbeit, Universität Potsdam, 2015.
- [2] F. J. Darnell. *Temperature Dependence of Lattice Parameters for Gd, Dy, and Ho*. Physical Review, 130, 1825–1828, 1963.
- [3] D. G. Cahill, P. V. Braun, G. Chen, D. R. Clarke, S. Fan, K. E. Goodson, P. Keblinski, W. P. King, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris, S. R. Phillpot, E. Pop, and L. Shi. *Nanoscale thermal transport. II. 2003–2012*. Applied Physics Reviews, 1, 011305, 2014.
- [4] J. Pudell, A. A. Maznev, M. Herzog, M. Kronseder, C. H. Back, G. Malinowski, A. von Reppert, and M. Bargheer. *Layer specific observation of slow thermal equilibration in ultrathin metallic nanostructures by femtosecond X-ray diffraction*. Nature Communications, 9, 3335, 2018.
- [5] R. Shayduk, M. Herzog, A. Bojahr, D. Schick, P. Gaal, W. Leitenberger, H. Navirian, M. Sander, J. Goldshteyn, I. Vrejoiu, and M. Bargheer. *Direct time-domain sampling of subterahertz coherent acoustic phonon spectra in SrTiO<sub>3</sub> using ultrafast x-ray diffraction*. Physical Review B, 7, 184301, 2013.
- [6] 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*. Optics Express, 21(18), 21188–21197, 2013.
- [7] A. Bojahr, M. Gohlke, W. Leitenberger, J. Pudell, M. Reinhardt, A. von Reppert, M. Roessle, M. Sander, P. Gaal, and M. Bargheer. *Second Harmonic Generation of Nanoscale Phonon Wave Packets*. Physical Review Letters, 115, 195502, 2015.
- [8] A. Bojahr, M. Herzog, D. Schick, I. Vrejoiu, and M. Bargheer. *Calibrated real-time detection of nonlinearly propagating strain waves*. Physical Review B, 86, 144306, 2012.
- [9] V. Kuxhaus. *Breitbandige zeitaufgelöste Brillouin-Streuung an Perovskiten*. Diplomarbeit, Universität Potsdam, 2015.
- [10] P. Leisering. *Theoretische und experimentelle Untersuchungen von Hyperschallwellen in Dysprosium-Scandat und Galliumarsenid im Hinblick auf Solitonen*. Masterarbeit, Universität Potsdam, 2015.
- [11] H.-Y. Hao and H. J. Maris. *Experiments with acoustic solitons in crystalline solids*. Physical Review B, 64, 064302, 2001.
- [12] O. L. Muskens and J. I. Dijkhuis. *High Amplitude, Ultrashort, Longitudinal Strain Solitons in Sapphire*. Physical Review Letters, 89, 285504, 2002.
- [13] A. V. Akimov, A. V. Scherbakov, P. J. S. van Capel, J. I. Dijkhuis, T. Berstermann, D. R. Yakovlev, and M. Bayer. *Acoustic solitons in semiconductor nanostructures*. Journal of Physics. Conference Series, 92, 012002, 2007.

- [14] E. Péronne, N. Chuecos, L. Thevenard, and B. Perrin. *Acoustic solitones: A robust tool to investigate the generation and detection of ultrafast acoustic waves*. Physical Review B, 95, 064306, 2017.
- [15] A.V. Scherbakov, P.J.S. van Capel, A.V. Akimov, J.I. Dijkhuis, D.R. Yakovlev, T. Berstermann, and M. Bayer. *Chirping of an Optical Transition by an Ultrafast Acoustic Soliton Train in a Semiconductor Quantum Well*. Physical Review Letters, 99, 057402, 2007.
- [16] J. V. Jäger, A. V. Scherbakov, T. L. Linnik, D. R. Yakovlev, M. Wang, P. Wadley, V. Holy, S. A. Cavill, A. V. Akimov, A. W. Rushforth, and M. Bayer. *Picosecond inverse magnetostriction in galfenol thin films*. Applied Physics Letters, 103, 032409, 2013.
- [17] A. Casiraghi, P. Walker, A. V. Akimov, K. W. Edmonds, A. W. Rushforth, E. De Ranieri, R. P. Campion, B. L. Gallagher, and A. J. Kent. *Fast switching of magnetization in the ferromagnetic semiconductor (Ga,Mn)(As,P) using nonequilibrium phonon pulses*. Applied Physics Letters, 99, 262503, 2011.
- [18] E.S.K. Young, A.V. Akimov, M. Henini, L. Eaves, and A.J. Kent. *Subterahertz Acoustical Pumping of Electronic Charge in a Resonant Tunneling Device*. Physical Review Letters, 108(22), 226601, 2012.
- [19] A. Bojahr, D. Schick, L. Maerten, M. Herzog, I. Vrejoiu, C. v. Korff Schmising, C. 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 SrRuO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> superlattice*. Physical Review B, 85, 224302, 2012.
- [20] S. Yamanaka, T. Maekawa, H. Muta, T. Matsuda, S. Kobayashi, and K. Kurosaki. *Thermophysical properties of SrHfO<sub>3</sub> and SrRuO<sub>3</sub>*. Journal of Solid State Chemistry, 177(10), 3484–3489, 2004.
- [21] M. Janovská, P. Sedlák, H. Seiner, M. Landa, P. Marton, P. Ondrejko, and Jiri Hlinka. *Anisotropic elasticity of DyScO<sub>3</sub> substrates*. J. Phys.: Condens. Matter, 24(38), 385404, 2012.
- [22] Y. H. Ren, M. Trigo, R. Merlin, V. Adyam, and Qi Li. *Generation and detection of coherent longitudinal acoustic phonons in the La<sub>0.67</sub>Sr<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> thin films by femtosecond light pulses*. Appl. Phys. Lett., 90(25), 251918, 2007.
- [23] D. Schick, M. Herzog, A. Bojahr, W. Leitenberger, A. Hertwig, R. Shayduk, and M. Bargheer. *Ultrafast lattice response of photoexcited thin films studied by X-ray diffraction*. Structural Dynamics, 1, 064501, 2014.
- [24] M. Schmidbauer, A. Kwasniewski, and J. Schwarzkopf. *High-precision absolute lattice parameter determination of SrTiO<sub>3</sub>, DyScO<sub>3</sub> and NdGaO<sub>3</sub> single crystals*. Acta Crystallographica Section B, 68, 8–14, 2012.
- [25] S. Slade. Elements and the Periodic Table. The Rosen Publishing Group, 2007.
- [26] M. Herzog, D. Schick, P. Gaal, R. Shayduk, C. v. Korff Schmising, and M. Bargheer. *Analysis of ultrafast X-ray diffraction data in a linear-chain model of the lattice dynamics*. Applied Physics A, 106(3), 489–499, 2011.
- [27] J. Hiddea, C. Guguscheva, S. Ganschowa, and D. Klimma. *Thermal conductivity of rare-earth scandates in comparison to other oxidic substrate crystals*. Journal of Alloys and Compounds, 738, 415–421, 2018.

- [28] D. de Ligny and P. Richet. *High-temperature heat capacity and thermal expansion of SrTiO<sub>3</sub> and SrZrO<sub>3</sub> perovskites*. Physical Review B, 53(6), 3013, 1996.
- [29] Y. Wang, K. Fujinami, R. Zhang, C. Wan, N. Wang, Y. Ba, and K. Koumoto. *Interfacial Thermal Resistance and Thermal Conductivity in Nanograined SrTiO<sub>3</sub>*. Applied Physics Express, 3, 031101, 2010.
- [30] David J. Singh. *Electronic and magnetic properties of the 4d itinerant ferromagnet SrRuO<sub>3</sub>*. Journal of Applied Physics, 79, 4818, 1996.
- [31] N. M. Murari, R. Thomas, S. P. Pavunny, J. R. Calzada, and R. S. Katiyar. *DyScO<sub>3</sub> buffer layer for a performing metal-ferroelectric-insulator-semiconductor structure with multiferroic thin film*. Applied Physics Letters, 94, 142907, 2009.
- [32] R. F. Berger, C. J. Fennie, and J. B. Neaton. *Band Gap and Edge Engineering via Ferroic Distortion and Anisotropic Strain: The Case of SrTiO<sub>3</sub>*. Physical Review Letters, 107, 146804, 2011.
- [33] M. Herzog. *Structural Dynamics of Photoexcited Nanolayered Perovskites Studied by Ultrafast X-ray Diffraction*. Doktorarbeit, Universität Potsdam, 2012.
- [34] M. Bonn, D. N. Denzler, S. Funk, and M. Wolf. *Ultrafast electron dynamics at metal surfaces: Competition between electron-phonon-coupling and hot-electron transport*. Physical Review B, 61(2), 1101, 2000.
- [35] B. Nadgorny, M. S. Osofsky, D. J. Singh, G. T. Woods, R. J. Soulen, M. K. Lee, S. D. Bu, and C. B. Eom. *Measurements of spin polarization of epitaxial SrRuO<sub>3</sub> thin films*. Appl. Phys. Lett., 82, 427, 2003.
- [36] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. *Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses*. Physical Review B, 34(6), 4129, 1986.
- [37] D. Schick, A. Bojahr, M. Herzog, R. Shayduk, C. v. Korff Schmising, and M. Bargheer. *udkm1Dsim-A simulation toolkit for 1D ultrafast dynamics in condensed matter*. Computer Physics Communications, 185(2), 651–660, 2014.
- [38] M. Bradler, P. Baum, and E. Riedle. *Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- $\mu$ J pump pulses*. Applied Physics B, 97(3), 561-574, 2009.
- [39] W. Demtröder. *Experimentalphysik 2 Elektrizität und Optik*. Springer, Berlin, 2017.
- [40] R. Gross and A. Marx. *Festkörperphysik*. De Gruyter, Berlin, 2014.
- [41] K. Kopitzki and P. Herzog. *Einführung in die Festkörperphysik*. Springer, Berlin, 2017.
- [42] R. B. Wilson, Brent A. Apgar, Lane W. Martin, and David G. Cahill. *Thermoreflectance of metal transducers for optical pump-probe studies of thermal properties*. Optics Express, 20(27), 28829-28838, 2012.
- [43] C. Y. Ho, R. W. Powell, and P.E. Liley. *Thermal Conductivity of the Elements: A Comprehensive Review*. J. Phys. Chem. Ref. Data 3, 3, 1974.

# Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Bachelorarbeit selbstständig und ohne Hilfe Dritter verfasst habe. Andere als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel wurden nicht verwendet. Die den benutzten Quellen wörtlich oder inhaltlich entnommenen Abschnitte sind als solche kenntlich gemacht. Diese Bachelorarbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen und wurde auch nicht veröffentlicht.

Potsdam, 20.9.2018

(Maximilian Mattern)