

Ultraschnelle Magnetostriktion von antiferromagnetischem Holmium

Masterarbeit

eingereicht am
Institut für Physik und Astronomie
der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Universität Potsdam



von
Jan-Etienne Pudell
Matrikelnummer: 752442
pudell@uni-potsdam.de

Potsdam, den 2. Juni 2015

Betreuer: Prof. Dr. Matias Bargheer
Zweitgutachter: Prof. Dr. Alexander Föhlisch

Der Hintergrund des Titelbilds zeigt den Kern der verwendeten Plasmaröntgenquelle als Falschfarbenbild. Auf der linken Seite ist die Führung des Kupferbandes sowie eine Plasmakugel im Fokus des Laser kurz vor dem Kupferband zu erkennen.

Kurzfassung

Diese Arbeit bietet einen Einblick in die Dynamik der ultraschnellen Magnetostraktion von Holmium in der antiferromagnetische Phase. Dabei wurde eine dünne Heterostruktur aus seltenen Erden auf einem Saphirsubstrat untersucht, wobei eine Holmiumschicht zwischen Niob- und Yttriumlagen gewachsen wurde. Dabei ist das Material Holmium von Interesse. Es zeigt je nach Temperatur unterschiedliche magnetische Ordnungsphänomene: Oberhalb von 132 K ist es paramagnetische Phase (PM-Phase), unterhalb dieser Temperatur bildet sich eine antiferromagnetische Phase (AFM-Phase) in Form einer Spinspirale im Material aus, welche mit einer starken Magnetostraktion einhergeht.

Mittels ultraschneller Röntgenbeugung wird die Dynamik des Gitters der Holmium- und der unteren Yttriumschicht über einen Zeitraum von 4 ns bei unterschiedlichen Temperaturen untersucht. Die Probe zeigt eine reichhaltige Dynamik, welche durch Wärmetransport, kohärente Phononen und einer Wiederherstellung der magnetischen Ordnung geprägt ist. Um die maximalen Änderungen des transienten Signals für unterschiedliche Temperaturen zu untersuchen, konnte ein Gleichgewichtsmodell entwickelt werden, welches die zu erwartende maximale Gitterkonstantenänderung mit der Wärmekapazität und temperaturabhängigen Gitterkonstante vorhersagt.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Dynamik der kohärenten Phononen in der PM-Phase durch ein laserinduziertes thermisches Spannungsprofil beschrieben und simuliert werden. Es stellte sich heraus, dass in der AFM-Phase ein weiteres Spannungsprofil ergänzt werden muss, welches die Gitteränderung der Holmiumschicht aufgrund der sich ändernden Magnetostraktion durch die Anregung des magnetischen Systems berücksichtigt. Dabei zeigt sich, dass die Änderung innerhalb von wenigen Picosekunden stattfindet und nach einer kurzen Verzögerung von ungefähr $1/2$ ps eintritt.

Danksagung

Ich möchte mich hiermit bei allen Leuten bedanken, die diese Arbeit ermöglicht haben. Zu erst möchte ich Prof. Dr. Matias Bargheer für seine Unterstützung und die richtungweisenden Gespräche danken, die mir immer wieder Motivation und Ideen gebracht haben. Prof. Dr. Hartmut Zabel danke ich für die Herstellung der Probe.

Des Weiteren möchte ich der gesamten Arbeitsgruppe „Ultrafast Dynamics in Condensed Matter“ danken, die mir eine gute Arbeitsatmosphäre gibt und in der ich viel von erfahrenen Postdocs und Doktoranden lernen konnte.

Besonders möchte ich mich bei Alexander von Reppert bedanken, der an einem parallelen Projekt im Rahmen seiner Masterarbeit zu Dysprosium gearbeitet hat und die langen Messtage im Schichtbetrieb erst ermöglicht hat. Auch möchte ich mich für die vielen hilfreichen Gespräche, den Informationsaustausch und die gemeinsamen Reisen zu Konferenzen bedanken.

Auch bei Flavio Zamponi möchte ich mich bedanken, der die Leitung des Projektes als Postdoc übernommen hat, nach dem er zu unserer Arbeitsgruppe gestoßen ist. Seine Ideen und seine Erfahrungen haben mir in vielen Fällen weitergeholfen. Im gleichen Zug möchte Daniel Schick erwähnen, ohne ihn wären die Experimente nicht möglich gewesen. Er hat im Rahmen seiner Doktorarbeit die Plasmaröntgenquelle aufgebaut und startete mit uns die ersten Messungen an Holmium. Auch ermöglichte er uns ein effektives Arbeiten, durch die von ihm erschaffene Infrastruktur an MATLAB- und LabView-Programmen. Bedanken möchte ich mich bei Matthias Rössle, der mich immer wieder mit seinem Wissen zur Festkörperphysik und Vakuumtechnik unterstützt hat und die ellipsometrischen Messungen der Probe ermöglicht hat. Elko Hannemann möchte ich ebenfalls danken, dass er immer Zeit gefunden hat, die benötigten Ersatzteile und Teile zur Verbesserungen des Aufbaus quasi sofort anzufertigen.

Für die Reflektrometriemessungen bedanke ich mich bei Wolfram Leitenberger, der diese am Bessy für ich durchgeführt hat. Für die vielen Gespräche zu physikalischen und nicht physikalischen Themen, die aber immer zu lockeren und entspannten Atmosphäre beigetragen haben und gelegentlich wieder freien Platz im Kopf geschaffen haben, möchte ich mich bei André Bojahr bedanken.

Schlussendlich möchte ich mich bei meinen Eltern für die familiäre und finanzielle Unterstützung und meinen Kommilitonen und Freunden für schöne Zeit, die wir neben dem Studium hatten, bedanken.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	III
Danksagung	V
Abkürzungsverzeichnis	IX
1. Einleitung	1
2. Physikalische Grundlagen	3
2.1. Anrege-Abfrage-Messverfahren	3
2.2. Festkörperphysik	3
2.2.1. Gitter und Orientierungen	4
2.2.1.1. Elastische Eigenschaften	5
2.2.2. Gitterschwingungen: Phononen	5
2.2.2.1. Die lineare Kette	5
2.2.2.2. Die Dispersionsrelation	6
2.2.2.3. Energie der Gitterschwingung und spezifische Wärmekapazität	7
2.2.2.4. Wärmeleitung	7
2.2.2.5. Schall in Festkörpern	8
2.2.2.6. Anregung von Phononen	9
2.2.3. Magnetische Strukturen und der Spin der Gitterionen: Magnonen	10
2.2.3.1. Spin-Wechselwirkungshamiltonoperator und Heisenberg-Modell	10
2.2.3.2. Magnonen (Spinwellen)	10
2.2.4. Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung	11
2.2.5. Magnetostriktion	12
2.2.6. Wechselwirkungen und ihre Zeitskalen	13
2.2.6.1. Drei-Temperaturmodell	14
2.3. Röntgenbeugung	15
3. Plasmaröntgenquelle	17
3.1. Experimenteller Aufbau	17
3.1.1. Lasersystem	17
3.1.2. Plasmaröntgenquelle (Plasma X-Ray Source)	19
3.1.3. Montel-Optik	20
3.1.4. Goniometer	21
3.1.5. Probenumgebung	21
3.1.5.1. Pumpstrahl	21
3.1.5.2. Kryostat	22
3.1.5.3. Probenhalter	22
3.1.5.4. Detektion	22
3.2. Steuerung	23
3.2.1. Fernsteuerung	24
3.3. Datenverarbeitung und Auswertung	24
3.3.1. Zeitnullpunktsermittlung	24
3.3.2. reciprocal-space map (RSM)	25
3.4. Einwinkeldetektion	29
3.5. Datenauswertung	30
4. Charakterisierung der Probe	31
4.1. Holmium	31
4.1.1. Magnetische Eigenschaften	31

4.1.2. Magnetostriktion und Eigenschaften des Gitters	32
4.2. Vergleich zwischen Holmium, Yttrium, Niob und Saphir	36
4.3. Akustische Impedanz und Reflexion	37
4.4. Reflektivität	37
4.4.1. Zeitaufgelöste Reflektivitätsmessungen	37
4.5. Optische Eindringtiefe	39
4.6. Statische Charakterisierung mittels Röntgenbeugung	40
4.6.1. Gitterkonstantenänderung	41
4.6.2. Peakbreitenänderung	41
4.7. Röntgenreflektometrie	44
5. Zeitaufgelöste Messergebnisse	45
5.1. Messungen mit voller RSM	45
5.2. Messungen bei festem Winkel an Holmium	47
5.2.1. Peakpositionsänderung für unterschiedliche Fluenzen bei einer Temperatur	47
5.2.2. Peakpositionsänderung für unterschiedliche Temperaturen bei einer Fluenz	51
5.2.3. Peakbreitenänderung	53
5.3. Messungen bei festem Winkel an Yttrium	54
5.4. Qualität der Messdaten: Standardabweichung	55
6. Auswertung und Simulation	57
6.1. Fluenzstudien	57
6.2. Gleichgewichtsmodell	60
6.3. Charakteristische Zeitpunkte	62
6.3.1. Kritische Fluktuationen	63
6.4. Kühlen und wiederherstellen der magnetische Ordnung	64
6.5. Schallpropagationen	65
6.6. Simulation	67
6.6.1. Paramagnetische Phase	67
6.6.2. Antiferromagnetische Phase	72
Zusammenfassung	79
A. Anhang	XI
A.1. Bestimmung des Eindringprofils	XI
A.2. Messungen	XIII
Literaturverzeichnis	XV
Selbstständigkeitserklärung	XXI

Abkürzungsverzeichnis

AFM-Phase	antiferromagnetische Phase
a.u.	willkürliche Einheiten (arbitrary unit)
bcc	kubisch raumzentrierte (body-centered cubic) Kristallstruktur
BST	Barium Strontium Titanat $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$
cw	continuous wave
ECU	Environment Control Unit
engl.	englisch
FM-Phase	ferromagnetische Phase
FWHM	Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum)
hcp	hexagonal dichtest gepackte (hexagonal close-packed) Kristallsystem
LBO	Lithiumtriborat
LSMO	Lanthan Strontium Manganat $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$
PM-Phase	paramagnetische Phase
PXS	Plasmaröntgenquelle (Plasma X-Ray Source)
RKKY-Wechselwirkung	Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung
RSM	reciprocal-space map
SSA	Einzelpulsautokorrelator (single shot autocorrelator)
vgl.	vergleiche
VPN	Virtual Private Network

1. Einleitung

Im Rahmen dieser Arbeit wird die ultraschnelle Kopplung der Entmagnetisierungsdynamik des Seltenen Erden Metalls Holmium an das Gitter untersucht.

Bereits in den 60er und 70er Jahren hat man sich den ausgezeichneten magnetischen Eigenschaften der Seltenen Erden gewidmet [Gerstein et al. [1957], Darnell [1963], Koehler [1965], Nellis und Legvold [1969], Palmer [1970], Nicklow et al. [1971], Salama et al. [1973]]. Sie zeichnen sich durch die kontinuierliche Füllung des lokalisierten $4f$ -Orbitals aus, wobei das Leitungsband im Falle des untersuchten Holmiums bereits teilweise gefüllt ist. Aufgrund der hundschen Regeln [Blundell, 2001] ergibt sich das große magnetische Moment der Holmiumatome ($^4I_{15/2}$), welche indirekt durch die sogenannte Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung [Ruderman und Kittel, 1954] gekoppelt sind. Je nach Temperatur führt diese Austauschwechselwirkung zu unterschiedlichen magnetischen Ordnungen wie der ferromagnetischen Ausrichtung der Momente in einer Ebene, antiferromagnetischer helikalen (schraubenförmigen) oder ferromagnetischer (kegelförmiger) Strukturen [Jensen und Mackintosh, 1991]. Die Metalle der schwereren Seltenen Erden zeigen zudem eine große Magnetostriktion, dies beutet, das sich die Gitterkonstante aufgrund der starken magnetischen Spin-Gitter-Wechselwirkung ändert [Darnell, 1963].

In dieser Arbeit beobachten wir mit ultrakurzen Röntgenpulsen nach der optischen Anregung der Probe, einer dünnen Holmiumschicht, die induzierte Änderung der Gitterkonstanten als Funktion der Zeit bei unterschiedlichen Temperaturen und Anregefluenzen. Die zeitliche Änderung der Gitterkonstante kann in unterschiedliche Komponenten aufgeteilt werden: Diese können einerseits durch den Wärmetransport in der Probe, andererseits durch kohärente Phononen in Form von Schallwellen, welche an der Probenoberfläche durch den thermisch induzierten Spannung und an den Holmiumgrenzflächen durch die Kontraktion der Holmiumschicht aufgrund der Zerstörung der magnetischen Ordnung erklärt werden.

Diese Arbeit widmet sich dazu zunächst den physikalischen Grundlagen, die im Rahmen dieser Arbeit von Bedeutung sind, sowie dem Aufbau des Anrege-Röntgenabfrage-Experimentes. Anschließend werden die physikalischen Eigenschaften der Probe eingeführt und Charakterisierungsmessungen diskutiert. In den beiden folgenden Teilen werden die zeitaufgelösten Messungen der Gitterkonstantenänderung gezeigt und diskutiert. Dabei werden charakteristische Zeitpunkte gefunden, ein Gleichgewichtsmodell entwickelt sowie die Dynamik der kohärenten Phononen mit einem Anregungsprofil in der ferro- und antiferromagnetischen Phase erklärt und mit einer Simulation bestätigt.

2. Physikalische Grundlagen

Der erste Abschnitt dieses Kapitels soll einen kurzen Überblick über das Prinzip des Anrege-Abfrage-Messverfahrens geben. Es bietet die Möglichkeit Dynamiken auf sehr kurzen Zeitskalen zu beobachten, beispielsweise die kollektive Bewegung von Atomen oder die Dynamik von Molekülen. Des Weiteren wird auf die elementaren Eigenschaften von Festkörpern eingegangen: der Aufbau der Gitters, seine Orientierung im Raum und seine Verformbarkeit. Die Dynamik des Gitters wird betrachtet, dazu zählen die Gitterschwingungen (Phononen), sowie die Magnonen, die eine kollektive Anregung gekoppelter magnetischer Momente beschreiben. Es wird die RKKY-Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten eingeführt. Sie ist besonders wichtig für die Elemente der Lanthanoide, zu denen auch Holmium gehört.

Der letzte Abschnitt beschäftigt sich mit der Theorie der Röntgenbeugung an kristallinen Strukturen. Dort wird erklärt, wie mit Hilfe von Röntgenbeugung die Dynamik des antiferromagnetischen Phasenübergangs von Holmium untersucht wird.

2.1. Anrege-Abfrage-Messverfahren

Vorgänge auf Zeitskalen kleiner 100 ps können mittels elektronischer Systeme nicht mehr zeitlich aufgelöst werden. Es ist jedoch möglich, Lichtpulse zu generieren, die wenige Femtosekunden lang sind. Die Anrege-Abfrage-Technik (engl. pump-probe method) verwendet solch kurze Pulse, um eine hohe Zeitauflösung zu erreichen. Das Prinzip basiert auf einer ähnlichen Technik wie das Stroboskop. Beim Pump-Probe-Verfahren wird nun mit einem Lichtpuls die Probe angeregt (gepumpt) und zu einem zweiten, späteren Zeitpunkt mit einem weiteren Lichtpuls abgefragt (geprobt). Wird die Verzögerung zwischen den Lichtpulsen beispielsweise über eine Verschiebestrecke variiert, so erhält man ein zeitabhängiges Signal. Der prinzipielle Aufbau ist in Abbildung 2.1 skizziert.

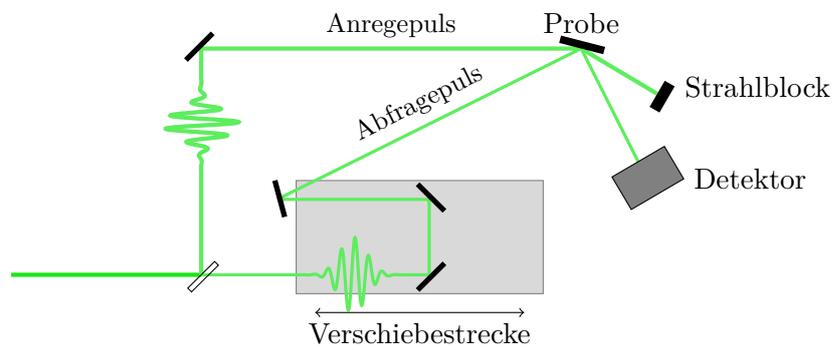


Abbildung 2.1: Pump-Probe-Spektroskopie: Ein kurzer Lichtpuls wird in zwei Pulse aufgeteilt. Die Zeitdifferenz zwischen dem Auftreffen beider Pulse auf der Probe wird über den Weglängenunterschied zwischen den Pulsen generiert und kann mit der Verschiebestrecke eingestellt werden.

In unserem Fall wird die Holmiumprobe mit einem Laserpuls angeregt, welcher die Gitterkonstante der Probe durch die eingebrachte Energie ändert. Mit einem zweiten Puls, welcher in unserem Fall aus Röntgenphotonen besteht, wird die Gitterkonstante gemessen. Wird der zeitliche Abstand zwischen beiden Pulsen variiert, erhalten wir die Gitterkonstante als Funktion der Zeit.

Die Zeitauflösung des Anrege-Abfrage-Messverfahrens ist nicht durch die Integrationszeit des Detektors gegeben, sondern ist durch die Länge des Probepulses begrenzt, über schnellere Dynamiken mittels der Probepulse.

2.2. Festkörperphysik

Dieser Abschnitt widmet sich kristallinen Festkörpern und ihren Eigenschaften. Dazu zählen ihre Struktur, elastische und magnetische Eigenschaften. Neben den statischen Eigenschaften wird

auf die Dynamik in Festkörpern in Form von Phononen und Magnonen eingegangen. Wichtige Eigenschaften, wie die Wärmekapazität, die Wärmeleitung, Phasenübergänge oder der Transport von Schallwellen werden diskutiert.

Am Ende des Abschnittes wird auf die Methode der Röntgenbeugung eingegangen. Mit ihr lässt sich die Struktur eines Festkörpers untersuchen.

2.2.1. Gitter und Orientierungen

Kristalline Festkörper sind aus sich periodisch wiederholenden gleichbleibenden Struktureinheiten, sogenannte Einheitszellen, aufgebaut. Diese bestehen aus einzelnen Atomen oder auch Molekülen, die untereinander eine bestimmte geometrische Anordnung aufweisen. Eine einfache Beschreibung der Geometrie der Struktureinheiten bietet das Bravais-Gitter, welches über

$$\vec{R} = n_1\vec{a} + n_2\vec{b} + n_3\vec{c}, \quad n_i \in \mathbb{N} \quad (2.1)$$

definiert wird. Dabei sind \vec{a} , \vec{b} und \vec{c} die primitiven Gittervektoren und ihre Länge a , b und c werden als Gitterkonstante bezeichnet [Gross und Marx, 2012].

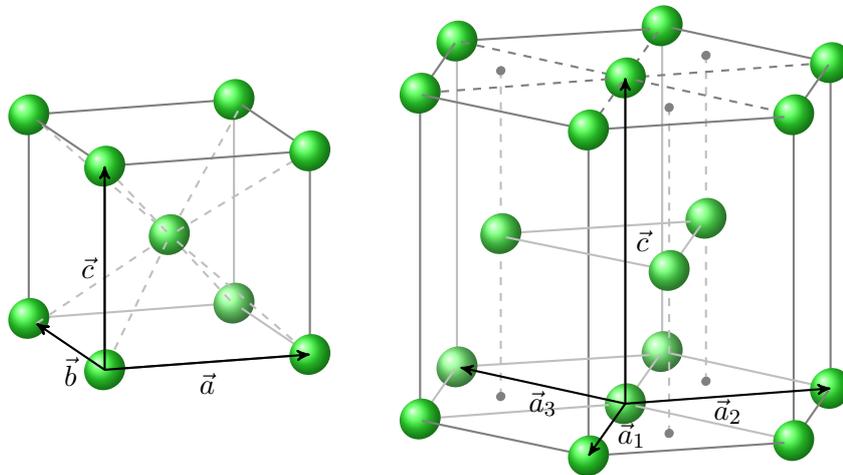


Abbildung 2.2: Die linke Abbildung zeigt das bcc-Gitter und die rechte das hcp-Gitter. In beiden Systemen sind in schwarz die dazugehörigen Gittervektoren \vec{a} , \vec{b} und \vec{c} beim bcc-Gitter, beziehungsweise \vec{a}_1 , \vec{a}_2 , \vec{a}_3 , \vec{c} beim hcp-Gitter eingezeichnet. Ihre Länge entspricht der jeweiligen Gitterkonstante

In Abbildung 2.2 sind die beiden Kristallstrukturen gezeigt, die in dieser Arbeit untersucht werden. Auf der linken Seite ist die kubisch raumzentrierte (body-centered cubic) Kristallstruktur (bcc) abgebildet, welche auch ein Bravais-Gitter ist. Auf den Ecken, sowie im Zentrum eines Würfels befindet sich dabei je ein Atom. Auf rechten Seite ist das hexagonal dichtest gepackte (hexagonal close-packed) Kristallsystem (hcp) abgebildet. Zur Beschreibung ist es sinnvoll das überbestimmte Koordinatensystem

$$\vec{R} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + n_3\vec{a}_3 + n_4\vec{a}_4, \quad n_i \in \mathbb{N}, \quad |\vec{a}_1| = |\vec{a}_2| = |\vec{a}_3|, \quad (2.2)$$

zu verwenden, welches die hexagonale Symmetrie der Kristallstrukturen widerspiegelt, wobei

$$\begin{aligned} \vec{a}_1 &= 2\vec{a} - \vec{b}, & \vec{a}_3 &= -\vec{a} - \vec{b}, \\ \vec{a}_2 &= 2\vec{b} - \vec{a}, & \vec{a}_4 &= \vec{c}, \end{aligned}$$

gilt. \vec{a}_4 wird oft als \vec{c} bezeichnet, wie in Abbildung 2.2 gezeigt. Die Struktur des hcp besteht aus zwei hexagonalen Bravais-Gittern, welche zueinander um $1/2\vec{c} + 5/4\vec{a}_1 + \vec{a}_2$ verschoben wurden (siehe Abbildung 2.2). Beide Strukturen ermöglichen es, feste Kugeln dichtest möglich zu packen.

Im Falle der hcp liegt das Verhältnis bei $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,633$.

2.2.1.1. Elastische Eigenschaften

Die elastischen Eigenschaften werden durch die physikalischen Größen mechanische Spannung (engl. stress) und Dehnung (engl. strain) beschrieben. In erster Näherung werden die Kräfte in Festkörpern durch einen linearen Zusammenhang

$$\sigma_{ij} = C_{ij}^{kl} e_{kl} \quad (2.3)$$

beschrieben. Somit ergibt sich nach dem Hooke'schen Gesetz mit der Proportionalitätskonstante C_{ij}^{kl} , dem sogenannten Elastizitätsmodul. Dabei beschreibt der dreidimensionale Spannungstensor σ_{ij} zweiter Stufe die Kraft pro Fläche, die an einem infinitesimalen Würfel angreift (siehe Abbildung 2.3). Damit kein Drehmoment auftritt, muss der Tensor symmetrisch $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$ sein. Der ebenfalls dreidimensionale symmetrische Dehnungstensor e_{kl} zweiter Stufe beschreibt dabei die Dehnung des Festkörpers. Dazu beschreibt er die Änderung beziehungsweise Verschiebung s_i des ursprünglichen Koordinatensystems (ohne anliegende Kräfte) in das neue Koordinatensystem:

$$e_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{ds_i}{dx_j} + \frac{ds_j}{dx_i} \right) = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial s_i}{\partial x_k} \frac{dx_k}{dx_j} + \frac{\partial s_j}{\partial x_k} \frac{dx_k}{dx_i} \right) \quad (2.4)$$

Beide werden über den Elastizitätstensor C_{ij}^{kl} vierter Stufe verknüpft. Die 81 Komponenten reduzieren sich jedoch aufgrund der Symmetrie des Spannungs- und Dehnungstensor, sowie der quadratischen Abhängigkeit der Energie der elastischen Energie $C_{ij}^{kl} = C_{kl}^{ij}$ auf maximal 21 unabhängige Komponenten im triklinen Kristallsystem. Je nach Kristallsymmetrie reduziert sich die Anzahl der elastischen Konstanten auf 3 für kubische und 5 für hexagonale Kristallsysteme [Gross und Marx, 2012].

Oft verwendet man die vereinfachte Notation nach Voigt $\sigma_{\text{Voigt}} = (\sigma_{11}, \sigma_{22}, \sigma_{33}, \sigma_{23}, \sigma_{13}, \sigma_{14})^T$, wobei diese nur die drei Hauptdiagonal- und die drei symmetrischen Nebendiagonalelemente verwendet. In dieser Arbeit werden die elastischen Eigenschaften vor allem zur Beschreibung von Schallwellen benötigt.

2.2.2. Gitterschwingungen: Phononen

Dieser Abschnitt soll sich der Dynamik der einzelnen Gitterbausteine, der Atome widmen. Diese schwingen zum Beispiel in Folge der thermischen Bewegung um ihre Ruhelage; die rücktreibende Kraft ist dabei die chemische Bindung. Über die Schwingung der Atome lassen sich sowohl die elastischen Eigenschaften, die spezifische Wärme, als auch die Ausbreitung akustischer Wellen beschreiben.

Überträgt man Energie an einen Gitterbaustein, wird diese an ihre Nachbarn weitergeben und auf das ganze Gitter verteilt. Die Anregung einer lokalisierten Schwingung wird als Kollektivschwingung auf das gesamte Gitter weitergegeben. Die Quanten beziehungsweise Quasiteilchen mit einer Energie E und einem Impuls q , die diese Kollektivschwingung beschreiben, nennt man Phononen.

Der folgende Abschnitt widmet sich zunächst den klassischen Bewegungsgleichungen, der spezifische Wärme und der Dispersionsrelation von Phononen in Festkörpern.

2.2.2.1. Die lineare Kette

Eines der einfachsten Modelle um die Schwingungen eines Festkörpers zu beschreiben ist das Modell der linearen Kette. Dabei treten in der Literatur zwei gängige Modelle auf: die lineare

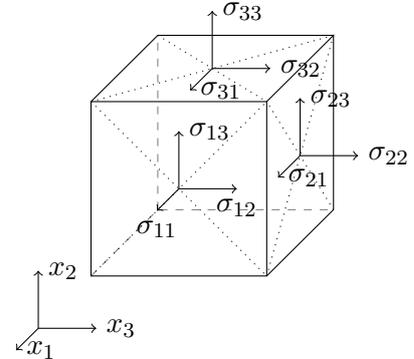


Abbildung 2.3: Infinitesimaler Würfel mit Definition der Spannungskomponenten

Kette ohne und mit Basis. In Abbildung 2.4 ist eine zweiatomige lineare Kette (mit Basis), deren Atome mit den Massen m und M durch identische Feder der Federkonstante f zusammengehalten werden, dargestellt. Das Modell ist linear, da die Rückstellkraft der Feder als lineare Funktion ihrer Auslenkung beschrieben wird.

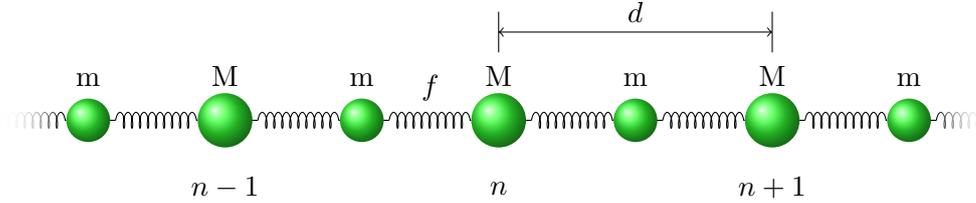


Abbildung 2.4: Zweiatomige lineare Kette mit unterschiedlichen Massen m und M , sowie der Gleichgewichtsgitterkonstante d .

Sei s nun die Auslenkung des Atoms mit der Masse m , S die Auslenkung des Atoms mit der Masse M , dann ergeben sich die Differentialgleichungen

$$m\ddot{s}_n = -f(2s_n - S_n - S_{n-1}), \quad (2.5)$$

$$M\ddot{S}_n = -f(2S_n - s_n - s_{n-1}). \quad (2.6)$$

Durch Einsetzen des Ansatzes nach Madelung [1972]

$$s_n = \frac{c}{\sqrt{m}} e^{i(q(n-\frac{1}{4})d - \omega t)} \quad (2.7)$$

$$S_n = \frac{C}{\sqrt{M}} e^{i(q(n-\frac{1}{4})d - \omega t)} = e^{i\frac{qd}{2}} \frac{C}{c} \sqrt{\frac{m}{M}} s_n \quad (2.8)$$

und Lösen der Determinante, ergibt sich der Zusammenhang zwischen Frequenz ω und Wellenvektor q zu

$$\omega_{\pm}^2 = f \left(\frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right) \pm f \sqrt{\left(\frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right)^2 - \frac{4}{mM} \sin^2\left(\frac{qd}{2}\right)}. \quad (2.9)$$

2.2.2.2. Die Dispersionsrelation

Die Verknüpfung von Wellenzahl q und der Frequenz der Schwingung ω nennt man Dispersionsrelation. In Abbildung 2.5 sind die beiden Zweige der Dispersionsrelation für eine zweiatomige Basis abgebildet. Der untere Zweig ist der sogenannte akustische Zweig, den oberen nennt man optisch. Für den drei dimensional Fall ergeben sich 3 akustische Moden (eine longitudinale (in Ausbreitungsrichtung schwingend) und zwei transversale (senkrecht zur Ausbreitungsrichtung schwingend) und $(3N - 3)$ optische Moden, wobei N die Anzahl der Atome ist.

Mit ultraschneller Röntgenbeugung lassen sich die verschiedenen Bewegungen des Kristallgitters direkt beobachten. Inkohärente Schwingungen führen aufgrund des Debye-Waller-Faktors zu einer Intensitätsänderung, während langwellige akustische Schwingungen zu einem Peakverschiebung im Röntgensignal führen. [Bargheer et al., 2006] Es ist interessant diese experimentellen Messungen mit Simulationen zu vergleichen, dazu lässt sich das Modell der linearen Kette verwenden. Es lässt sich auch für höher dimensionale Gitter erweitern. Zudem ist es möglich weitere Wechselwirkungen zu den übernächsten Nachbarn zu ergänzen oder die lineare Feder durch eine nichtlineare zu ersetzen. Die Differentialgleichung

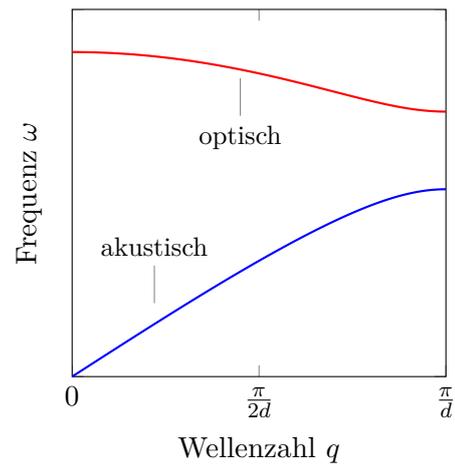


Abbildung 2.5: Dispersionsrelation $\omega(q)$ für die lineare Kette mit Basis

dieser erweiterten Modelle lassen sich zwar nicht mehr analytisch lösen, sie bilden jedoch den Ausgangspunkt für numerische Simulationen [Bojahr et al. [2012], Schick et al. [2014a]].

2.2.2.3. Energie der Gitterschwingung und spezifische Wärmekapazität

Die gekoppelten Einzelschwingungen lassen sich durch entkoppelte Kollektivschwingungen beschreiben. Durch die Verwendung von Normalkoordinaten ergibt sich als Bewegungsgleichung die Differentialgleichung des harmonischen Oszillators. Fasst man die Normalkoordinaten als quantenmechanische Operatoren auf, können die durch sie beschriebenen Kollektivschwingungen als elementare Anregung einer Feldmode interpretiert werden. Diese elementare Anregung wird dann als Phonon bezeichnet. Die Energie des quantenmechanischen Gesamtsystems einschließlich der Nullpunktsenergie ist dabei gegeben als

$$E = \sum_{j\vec{q}} \hbar\omega_j(\vec{q}) \left(\hat{a}_j^\dagger(\vec{q})\hat{a}_j(\vec{q}) + \frac{1}{2} \right), \quad (2.10)$$

wobei $\omega_j(\vec{q})$ die Frequenz der Gittermode j mit dem zugehörigen Phononenvernichter $\hat{a}_j(\vec{q})$ und dem Phononenerzeuger $\hat{a}_j^\dagger(\vec{q})$ ist. Mit der Bose-Einstein-Verteilung als Besetzungswahrscheinlichkeit ergibt sich der Ausdruck

$$E = \sum_{j\vec{q}} \left(\frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_j}{k_B T}} - 1} + \frac{1}{2} \right) \hbar\omega_j(\vec{q}) \quad (2.11)$$

für die Gesamtenergie. Für $k_B T$ groß gegenüber $\hbar\omega_j$ lässt sich die Energie durch $E = 3Nk_B T$ nähern, wobei N die Anzahl der Atome im Kristall ist. Somit ist die Wärmekapazität in diesem Fall $c_V = \frac{dE}{dT} = 3Nk_B$ (Dulong-Petit-Gesetz). Für niedrige Temperaturen bietet sich nach dem Übergang zur Integraldarstellung die Debye-Näherung an. Sie besteht dabei aus drei Annahmen: Vernachlässigung der optischen Zweige, lineare Approximation der akustischen Zweige und Ersetzen der Brillouin-Zone durch eine Kugel gleichen Inhalts unter der Annahme einer Richtungsunabhängigkeit der linearen Näherung in dieser Kugel [Madelung, 1972]. Mit ihr ergibt sich eine gute Näherung für die spezifische Wärme zu

$$c_V = \frac{dE}{dT} = 3Nk_B f_D \left(\frac{\Theta_D}{T} \right) \quad \text{mit} \quad f_D(x) = \frac{3}{x^3} \int_0^x \frac{y^4}{(e^y - 1)^2} dy, \quad (2.12)$$

wobei Θ_D als Debye-Temperaaur bezeichnet wird. Sie beschreibt eine Grenze für die maximale besetzte Phononenmode im jeweiligen Material. Die Wärmekapazität wird mit c_v bezeichnet, da angenommen wird, dass es keine Volumenänderung des Kristalls gibt. Um die Wärmekapazität bei konstantem Druck zu berechnen liefert die Thermodynamik den Zusammenhang $c_p = c_V + \frac{\alpha^2}{\kappa} VT$. Hierbei ist α der Volumenausdehnungskoeffizient und $\kappa = -\frac{1}{V} \left. \frac{\partial V}{\partial p} \right|_T$ die Kompressibilität. Ihr Kehrwert gibt die Kraft pro Fläche an, die bei einer Volumenänderung benötigt wird [Gross und Marx, 2012].

2.2.2.4. Wärmeleitung

In Festkörper wird Wärme durch Elektronen und Phononen transportiert. In Metallen überwiegt dabei der Beitrag der Elektronen [Gross und Marx, 2012]. Die Wärmeleitfähigkeit κ ist die Proportionalitätskonstante zwischen dem Wärmestrom J und dem Temperaturgradient $-\nabla T$:

$$\vec{J} = -\kappa \nabla T. \quad (2.13)$$

Betrachten wir eine Probe der Länge L , so können wir den Temperaturgradienten ∇T durch $-\Delta T/L$ ersetzen. Außerdem lässt sich mit der kinetischen Gastheorie für die Wärmeleitfähigkeit κ der Zusammenhang $\kappa = \frac{1}{3} C_V v l$ herleiten. Dabei ist C_V die spezifische Wärme, l die mittlere

freien Weglänge der Phononen und v ihre Gruppengeschwindigkeit. Man erhält dann

$$J = \frac{1}{3}(c_V \Delta T)(v \frac{l}{L}). \quad (2.14)$$

In dieser Form ist ersichtlich, dass die Überschusswärmedichte $c_V \Delta T$ mit der effektiven Geschwindigkeit $v \frac{l}{L}$ durch die Probe transportiert wird. Der Faktor $1/3$ resultiert aus dem Erwartungswert der Geschwindigkeit in isotropen Festkörpern aus der kinetischen Gastheorie. Die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit ist zum einen durch die Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme, sowie der mittleren freien Weglänge $l \propto 1/\langle n \rangle$ gegeben:

$$\kappa \propto \begin{cases} \frac{1}{T} & \text{für } T \gg \Theta_D \\ T^n e^{-\frac{\Theta_D}{T}} \text{ mit } n \approx 1 \text{ bis } 3 & \text{für } T \ll \Theta_D \end{cases} \quad (2.15)$$

Bei hohen Temperaturen überwiegen Umklapp-Streuprozesse.

2.2.2.5. Schall in Festkörpern

Wenn Festkörper durch eine kurze oder periodische Kraft angeregt werden, können Schallwellen entstehen. Betrachten wir dafür wieder einen infinitesimalen Würfel, dargestellt in Abbildung 2.3, mit dem Volumen $\Delta x \Delta y \Delta z$ und der Dichte ρ auf den eine Spannung $\sigma_{11}(x)$ wirkt. Damit ergibt sich die Kraft [Gross und Marx, 2012]

$$\Delta F_x = (\sigma_{11}(x + \Delta x) - \sigma_{11}(x)) \Delta y \Delta z = \frac{\partial \sigma_{11}}{\partial x} \Delta x \Delta y \Delta z. \quad (2.16)$$

Diese Kraft führt zu einer Verschiebung s_1 des Würfels und unter Verwendung von Gleichung (2.3) und (2.4) in voigtscher Notation ergibt sich

$$\rho \frac{\partial^2 s_1}{\partial t^2} = C_{11} \frac{\partial^2 s_1}{\partial x^2}. \quad (2.17)$$

Mit dem Ansatz für eine Welle $e^{i(kx - \omega t)}$ ergibt sich als Schallgeschwindigkeit für die longitudinale Welle

$$c_{long} = \frac{\omega}{k} = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}}. \quad (2.18)$$

Mittels analoger Rechnung für die transversale Welle ergibt sich für einen kubischen Kristall

$$c_{trans} = \frac{\omega}{k} = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}, \quad (2.19)$$

wobei C_{44} das Elastizitätsmodul in voigtscher Notation ist. Quantenmechanisch lassen sich Schallwellen in Festkörpern als kohärente Phononen

$$|\alpha, q\rangle = e^{-\frac{1}{2}\alpha^2} \sum_n \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n, q\rangle \quad (2.20)$$

beschreiben. Berechnet man den Erwartungswert des Auslenkungsoperators [Hu und Nori [1996], Hübel [2006]]

$$\hat{Q} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega m}} (\hat{a}_q + \hat{a}_q^\dagger) \quad (2.21)$$

ergibt sich

$$\langle \alpha, q | \hat{Q} | \alpha, q \rangle \propto \cos(qr - \omega t + \phi) \quad (2.22)$$

für den kohärenten Zustand. Kombiniert man mehrere kohärente Zustände unterschiedlicher Frequenzen, so lässt sich daraus ein Schallpuls konstruieren.

Ein wichtige Materialgröße für die Schallwelle ist die akustische Impedanz. Sie lässt sich aus dem Produkt seiner Dichte ρ und seiner Schallgeschwindigkeit c_s bestimmen:

$$Z = \rho \cdot c_s. \quad (2.23)$$

und beschreibt den Widerstand, der der Schallausbreitung entgegengesetzt wird. Diese Größe ist wichtig, da an Materialübergängen nur ein Teil der Schallwellenamplitude transmittiert und der Rest reflektiert wird. Die Transmissions- und Reflexionskoeffizienten lassen sich aus den akustischen Impedanz Z der aneinander grenzenden Materialien berechnen. Für die Energie (Gleichung (2.24) und (2.25)) und Auslenkung (Gleichung (2.26) und (2.27)) ergibt sich

$$R = \left(\frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2} \right)^2, \quad (2.24) \quad r = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_1 + Z_2}, \quad (2.26)$$

$$T = \frac{4Z_1Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2}, \quad (2.25) \quad t = \frac{2Z_2}{Z_1 + Z_2}, \quad (2.27)$$

wobei $R + T = 1$ aufgrund der Energieerhaltung gilt [Royer und Dieulesaint, 1999].

2.2.2.6. Anregung von Phononen

Akustische und optische Phononen können durch Phonon-Elektron-Wechselwirkungen angeregt werden. Die vom Laserpuls ins elektronische System eingebrachte Energie wird über Stöße an Phononen ins Gitter abgegeben. Dies kann dabei inkohärent in Form von Wärme oder kohärent als Schallwellen geschehen. Die Verteilung von inkohärent (thermisch) angeregten Phononen wird durch die temperaturabhängige Bose-Einstein-Statistik beschrieben. Eine kohärente Anregung von Phononen liegt vor, wenn beispielsweise die Dauer der Anregung kürzer als die Periode der Phononen ist. In diesem Fall haben alle Phononen eine feste Phasenbeziehung.

Die Erzeugung von kohärenten Phononen basiert auf der Konversion von optischer Energie in mechanische Spannung $\sigma(z)$ im Material. Diese photoinduzierte Spannung hat ein charakteristisches Profil, welches von den Materialparametern (optische, mechanische, thermische,...) und Laserparametern (Intensität,...) abhängt. In unserem Fall handelt es sich bei der Probe um einen dünnen Film, der durch die deutlich größere Fläche des Anregepulses im Vergleich zur kleinen Fläche des Abfragepulses homogen angeregt wird. Unter der Annahme der Homogenität in der x,y -Ebene kann die Dynamik auf eine Dimension (z) reduziert werden. Die Dynamik entlang der z -Achse kann dann mit der Wellengleichung $\partial_t u - C^2 \partial_z^2 u = \frac{1}{\rho} \partial_z \sigma(z,t)$ beschrieben werden, wobei u die Auslenkung, C die Schallgeschwindigkeit, ρ die Dichte und $\sigma(z,t)$ die photoinduzierte Spannung ist [Ruello und Gusev [2015], Matsuda et al. [2015], Schick et al. [2014b]].

Die induzierte Spannung im Festkörper kann als Thermoelastizität beschrieben werden, die vor allem in Metallen vorherrschend ist. Um eine Volumenänderung im Festkörper zu verursachen, ist ein anharmonisches Gitterpotential nötig [Ashcroft und Mermin, 2013], welches durch den Grüneisenparameter γ_L des Gitters gegeben ist. Die thermoelastische Dehnung lässt sich makroskopisch mit dem linearen Ausdehnungskoeffizienten α oder alternativ mit dem Grüneisenparameter beschreiben:

$$\sigma(z,T) = -\frac{3\alpha}{\kappa} \delta T_L(z,T) = -\gamma_L c_L \delta T_L(z,T), \quad (2.28)$$

wobei δT_L die Temperaturerhöhung des Gitters, α der Volumenausdehnungskoeffizient und κ die Kompressibilität ist. Es ergibt sich somit eine lineare Abhängigkeit der Ausdehnung des Gitter von seiner Wärmekapazität c_L und von dem Grüneisenkoeffizienten γ_L . Je nach Metallen kann sich das Anregungsprofil unterscheiden: Im Fall einer starken Elektron-Phonon-Kopplung wird das Gitter instantan erhitzt (in weniger als 1 ps) und das Temperaturprofil des Gitters entspricht dem Eindringprofil des Lasers in der Probe. Bei einer schwachen Kopplung können die heißen

Elektronen mit ihrer Fermigeschwindigkeit propagieren bevor sie ihre Energie über eine größere Eindringtiefe ans Gitter abgeben. Damit unterscheidet sich das Temperaturprofil des Gitters vom Eindringprofil des Lasers. Die Orts- und Zeitabhängigkeit der Profile lässt sich mit einer Mehrtemperaturmodell beschreiben (siehe auch Abschnitt 2.2.6.1) [Ruello und Gusev, 2015].

2.2.3. Magnetische Strukturen und der Spin der Gitterionen: Magnonen

Neben den mechanischen Eigenschaften können Gitter auch magnetische Eigenschaften haben. Aufgrund der LS-Kopplung, welche den Gesamtdrehimpuls in den Lanthanoiden korrekt beschreibt Jensen und Mackintosh [1991], lassen sich für jedes Gitteratom die Spinquantenzahl S und die Gesamtbahndrehimpulsquantenzahl der Elektronen L zu einer nicht verschwindenden magnetischen Gesamtdrehimpulsquantenzahl J zusammenfassen, woraus sich wiederum das magnetische Moment μ eines Gitteratoms ergibt. Gibt es eine direkte oder indirekte Wechselwirkung zwischen den Spins, bilden sich Strukturen wie die Gleichausrichtung aller Spins (Ferromagnetismus), eine alternierende Abfolge, die keinen Nettomoment erzeugt (Antiferromagnetismus) oder eine alternierende Abfolge, die ein Nettomoment erzeugt (Ferrimagnetismus).

In einem magnetischem Material können je nach Temperatur oder anliegendem Magnetfeld andere magnetische Phasen vorliegen. Die Temperatur des Phasenübergang von ferromagnetischer Phase (FM-Phase) zu antiferromagnetischer Phase (antiferromagnetische Phase (AFM-Phase)) oder paramagnetischer Phase (PM-Phase) bezeichnet man als Curie-Temperatur T_C und von AFM-Phase zur PM-Phase als Néel-Temperatur.

Werden solche magnetische Strukturen angeregt, sind kollektive Anregungen möglich, sogenannte Spinwellen, deren Quant als Magnon bezeichnet wird. Kollektivanregungen sind die niedrigsten angeregten Zustände nach dem Grundzustand. Der Grundzustand eines ferromagnetischen Systems ohne Basis ist die Gleichausrichtung aller Spins.

2.2.3.1. Spin-Wechselwirkungshamiltonoperator und Heisenberg-Modell

Im quantenmechanischem Heisenberg-Modell wird Wechselwirkung zwischen den einzelnen Spins beschrieben mit dem Hamiltonoperator [Ashcroft und Mermin, 2013]

$$H = - \sum_{ij} J_{ij} \hat{S}_i \cdot \hat{S}_j. \quad (2.29)$$

Dabei sind \hat{S}_i und \hat{S}_j die vektoriellen Spinoperatoren zu einer gegebenen Spinquantenzahl s . Für den Fall $s = 1/2$ bestehen die Komponenten des Spinoperators aus den Paulimatrizen. Die Kopplungskonstante J_{ij} bestimmt, welche Strukturen sich ausbilden werden. Nimmt man eine konstante Kopplungskonstante an ergibt sich für positive Werte eine parallele Ausrichtung der Spins (Ferromagnetismus), für negative Werte ergibt sich eine antiparallele Ausrichtung (Antiferromagnetismus).

2.2.3.2. Magnonen (Spinwellen)

Vereinfacht man den Hamiltonoperator (2.29), indem man nur Wechselwirkung mit den nächsten Nachbarn ($\delta = 1, 2, \dots, \nu$) mit fester Kopplungskonstante $J_{ij} = J$ zulässt und das System aus seinem Grundzustand mit einer Energie angeregt, die lediglich zum Umklappen eines einzelnen Spins ausreichend ist, reagiert das System, analog zu den Phononen, mit einer Kollektivanregung: einer Spinwelle oder auch einem Magnon. Für dieses Magnon lässt sich analog zu den Phononen eine Dispersionsrelation berechnen: ohne Basis ergibt sich die Dispersionrelation eines ferromagnetischen Systems zu

$$\omega(k) = \frac{2Js}{\hbar} \left(\nu - \sum_{\delta} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \right), \quad (2.30)$$

und mit Basis die eines antiferromagnetischem Systems zu

$$\omega(k) = \frac{2J\nu s}{\hbar} \sqrt{1 - \frac{1}{\nu} \sum_{\delta} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_{\delta}}}, \quad (2.31)$$

dabei ist \vec{r}_{δ} den Abstand zum nächsten Nachbarn. [Madelung, 1972] In Abbildung 2.6 ist eine semiklassische Illustration eines Magnons als Spinwelle dargestellt.

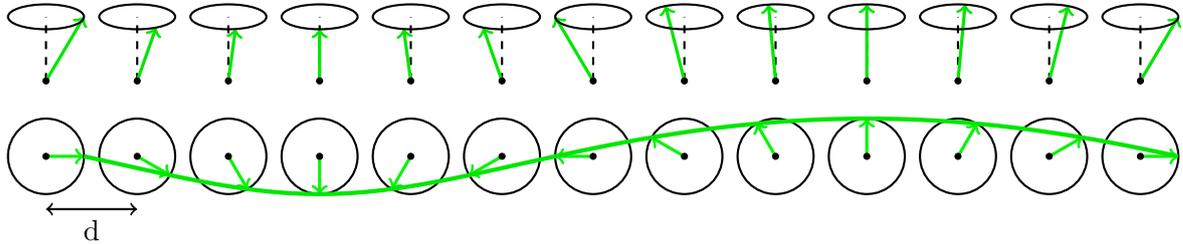


Abbildung 2.6: Semiklassische Illustration der Spinwelle in einer eindimensionalen Kette. Die Spins präzessieren phasenverschoben um die zum Beispiel durch ein Magnetfeld ausgezeichnete Richtung. Oben ist eine perspektivische Ansicht und in der unteren Hälfte ist eine Draufsicht gezeigt. (vgl. [Madelung, 1972])

2.2.4. Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung

Bisher haben wir Magnetismus unter der Annahme betrachtet, dass ein direkter Austausch zwischen den lokalen magnetischen Momenten möglich ist. Dies geht nur, wenn die Orbitale der zum magnetischen Moment beitragenden Elektronen eines Gitterions mit denen eines anderen überlappen [Madelung, 1972]. Ein Austausch kann aber auch indirekt erfolgen. So kann eine magnetische Wechselwirkung zwischen den Elektronen der teilweise gefüllten $4f$ -Schalen der Seltenen Erden auftreten: Die indirekte Austauschwechselwirkung koppelt dabei die $4f$ -Elektronen über die Leitungsbandelektronen [Ashcroft und Mermin, 2013]. Diese Wechselwirkung wird als Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung (RKKY-Wechselwirkung) bezeichnet und ist schematisch in Abbildung 2.7 dargestellt.

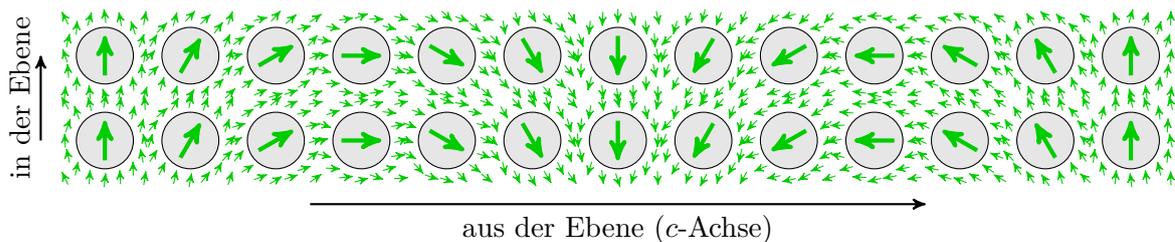


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der RKKY-Wechselwirkung: Die magnetischen Momente der lokalisierten $4f$ -Elektronen (große Pfeile) koppeln über die delokalisierten $5d$ -Leitungsbandelektronen (kleine Pfeile). (vgl.[Gross und Marx, 2012])

Bei den Lanthanoiden tragen die $4f$ -Elektronen das magnetische Moment. Die direkte Wechselwirkung zwischen den $4f$ -Momenten verschiedener Gitterplätze ist aufgrund der geringen Überlappung der Wellenfunktion vernachlässigbar [Jensen und Mackintosh, 1991]. Es findet aber eine indirekte Wechselwirkung durch Polarisierung von Leitungselektronen statt [Nolting, 1986]. Für das Lanthanoid Holmium beträgt die mittlere freie Weglänge $l = v_F \tau$ beispielsweise etwa 13 \AA [Bekkali, 2010], dabei ist v_F die Geschwindigkeit der Elektronen an der Fermikante mit der Ladungsträgerdichte von Holmium und τ die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen, welche linear mit dem spezifischen elektrischen Widerstand ρ skaliert. Damit wirkt die Kopplung deutlich weiter als der einfache

Gitterabstand, somit müssen auch die übernächsten Nachbarn berücksichtigt werden. Die daraus resultierende indirekte Wechselwirkung ist die Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida-Wechselwirkung.

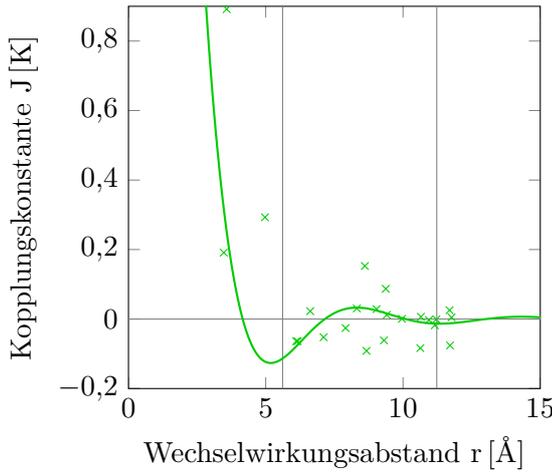


Abbildung 2.8: Änderung der Kopplungskonstante $J(r)$ aus Gleichung (2.32) der RKKY-Wechselwirkung mit dem Wechselwirkungsabstand r für Holmium [Schneider et al. [2000], Tovar und Robertson [2001]]

Kopplungskonstante $J_1 = J(r)$ und $J_2 = J(2r)$, welche jeweils um den Winkel θ zueinander verdreht sind, so lässt sich die Energie und ihre Ableitung nach θ bestimmen

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} \propto \frac{\partial}{\partial \theta} (J_1 \cos \theta + J_2 \cos(2\theta)) \quad (2.33)$$

$$= (J_1 + 4J_2 \cos \theta) \sin \theta \quad (2.34)$$

$$= 0. \quad (2.35)$$

Für diese Gleichung gibt es drei Lösungen

$\theta = 0$	ferromagnetische Ordnung,
$\theta = \pi$	antiferromagnetische Ordnung,
$\theta = \arccos(-\frac{J_1}{4J_2}), J_2 < 0, J_1 < 4 J_2 $	helikale Ordnung.

Im dritten Fall dreht sich das magnetische Moment von Ebene zu Ebene um den Winkel θ , wobei die Wechselwirkung in der Ebene ferromagnetisch ist. Über den gesamten Festkörper gibt es jedoch keine ausgezeichnete Richtung des magnetischen Momentes, der Festkörper ist somit antiferromagnetisch. [Bekkali, 2010]

2.2.5. Magnetostriktion

Die für unsere Experimente wesentliche Eigenschaft von magnetischen Materialien ist die Änderung des Volumens des Festkörpers durch eine Änderung der Ausrichtung und Kopplung der magnetischen Momente. Wird diese Änderung durch Anlegen eines externen Magnetfeldes erzeugt, spricht man von Magnetostriktion. Im Falle einer Volumenänderung durch eine Änderung der magnetischen Momente mit der Temperatur wird die Magnetostriktion als spontan bezeichnet. In Abbildung 2.9 a ist die Änderung der Gitterkonstanten von Holmium mit der Temperatur eingezeichnet: oberhalb der Néel-Temperatur ist eine kontinuierliche Dehnung mit steigender Temperatur durch den phononischen Druck zu beobachten, unterhalb verursacht die Magnetostriktion eine Dehnung des Gitters mit sinkender Temperatur. Die Änderung des Volumenausdehnungskoeffizienten α lässt sich als zweite Ableitung der Freien Energie nach der Temperatur und der Ortes berechnen. Um alleinig die magnetische Komponente der Volumenausdehnung zu bestimmen,

Sie lässt sich ebenfalls mit dem Hamiltonian (2.29) beschreiben, wobei die Kopplungskonstante $J_{ij} = J_{ij}^{\text{RKKY}}$. Für große Abstände oszilliert die Kopplungskonstante um 0 mit dem Abstand r und wird nach Yosida [1957] und Skomski [2012] durch

$$J(r) = J_0 \frac{2k_F r \cos(2k_F r) - \sin(2k_F r)}{(2k_F r)^4} \quad (2.32)$$

beschrieben, dabei ist k_F der Radius der Fermikugel. Die Oszillation der Kopplungskonstante der RKKY-Wechselwirkung ist in Abhängigkeit des Abstandes r in Abbildung 2.8 für Holmium bei $T = 136$ K dargestellt. Diese wurde von Schneider et al. [2000] mittels Neutronenbeugung gemessen und mit Gleichung (2.32) gefittet [Tovar und Robertson, 2001], dabei ist $J_0 \approx -25$ K und $k_F \approx 0,54 \text{ \AA}^{-1}$. Für große Abstände $r \gg 1/k_F = 1,85 \text{ \AA}$ ergibt sich ein Proportionalität zu $\cos(2k_F r)/(2k_F r)^3$ [Blundell, 2001]. Betrachtet man nur die Wechselwirkung zu den nächsten und übernächsten Nachbarn mit der

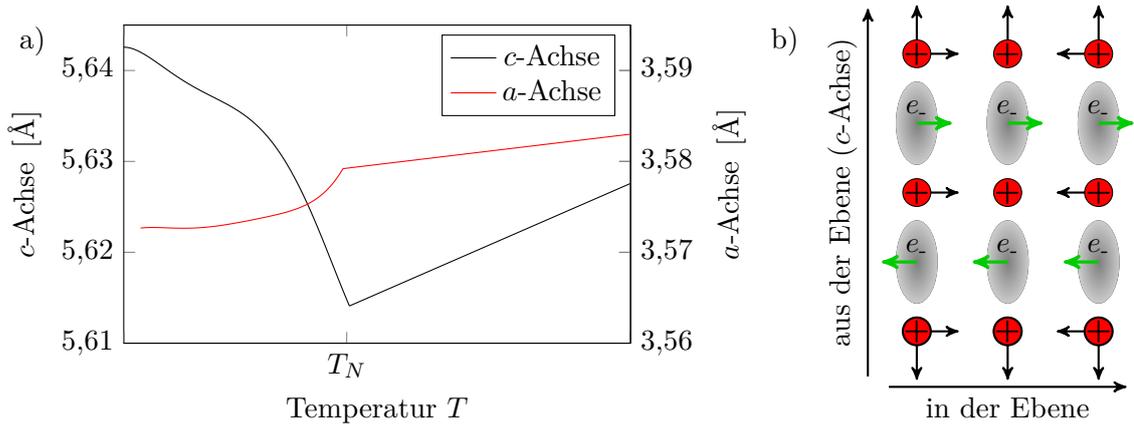


Abbildung 2.9: a) Gitterkonstanten von Holmium: unterhalb der Néel-Temperatur T_N ist eine Gitterdehnung der c -Achse und eine Kontraktion der a -Achse durch Magnetostriktion zu beobachten. b) Die Deformation der $4f$ Ladungsträgerdichte (grau) von Kreisförmig ohne Spin-Bahn-Kopplung zu elliptisch unterhalb der Néel-Temperatur geht mit einer Änderung des magnetischen Moments (grüne Pfeile in AFM Ordnung) einher und führt zu einer spontanen Magnetostriktion, welche sich in einer Ausdehnung des Gitters im Vergleich zur Ausdehnung ohne magnetische Wechselwirkung (schwarze Pfeile) zeigt. Aufgrund der Querkontraktion entsprechend der Poissionzahl führt die Ausdehnung entlang der c -Achse zu einer Kontraktion entlang der a -Achse. Das Volumen bleibt dabei annähernd konstant. (vgl.[Doerr et al., 2005])

müssen die Anteile des elektronischen und phononischen Systems abgezogen werden, welche mit einem Debye-Modell beschrieben werden können [Doerr et al., 2005].

Phänomenologisch lässt sich die Magnetostriktion durch Änderungen des Kristallfeldes und der Zwei-Ionen-Wechselwirkung beschreiben. Das Kristallfeld ist das inhomogene elektrische Feld der Nachbarionen, die mit dem äußeren bindenden Orbitalen der Atome wechselwirken. Durch die RKKY-Wechselwirkung werden die $4f$ -Momente in Holmium über $5d6s$ -Elektronen gekoppelt, beide haben einen gemeinsamen quantenmechanischen Zustand. Wird dieses System angeregt, ergibt sich ein neuer Zustand, in welchem sich die Ausrichtung des magnetischen Momentes des $4f$ -Elektrons ändert [Weinelt [2015], Melnikov et al.]. Aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung wechselwirken die gekoppelten magnetischen Momente der $4f$ - und $5d6s$ -Elektronen mit der Elektronenverteilung in den bindenden Orbitalen. Diese werden im Vergleich zum magnetisch ungeordneten Zustand neu ausgerichtet, so dass sich die Form der Ladungsträgerdichte ändert, wie schematisch in Abbildung 2.9 b dargestellt.

Theoretisch kann diese Änderung mit dem bereits erwähnten Kristallfeld beschrieben werden. Wird das Kristallfeld in Stevens Operatoren nach Doerr et al. [2005] entwickelt, ergibt sich eine Abhängigkeit des Feldes von den Gesamtdrehimpulsoperatoren \hat{J}_i . Die Wechselwirkung zwischen einzelnen magnetischen Momenten kann durch bilineare Zwei-Ionen-Wechselwirkung beschrieben werden, welche zwischen den einzelnen Gesamtdrehimpulsen J unterschiedlicher Kristallatome wirkt. Für das Kristallfeld wird dabei ein Punktladungsmodell verwendet und die Zwei-Ionen-Wechselwirkung wird durch die RKKY-Wechselwirkung beschrieben. Die Änderung des Kristallfeldes durch die Zwei-Ionen-Wechselwirkung führt somit letztendlich zu einer Verzerrung (engl. strain) des Gitters (Abbildung 2.9 b). In diesem neuen Gleichgewicht sind die bindenden Orbitale neu ausgerichtet und es liegt eine neue Gitterkonstante vor.

2.2.6. Wechselwirkungen und ihre Zeitskalen

Hinsichtlich der Holmium Probe sind die Elektron-Phonon-, Elektron-Magnon- und Phonon-Magnon-Wechselwirkungen und ihre Zeitskalen von Interesse. Je nach dem, ob die Elektron-Phonon-Kopplung schnell oder langsam ist, verändert sich das Eindringprofil der Anregung in die Probe und die daraus resultierende Dynamik. Im Falle einer starken Elektron-Phonon-Kopplung, wie zum Beispiel in Nickel, wird das Gitter sofort erhitzt (unter einer ps) und das Eindringprofil entspricht dem des Lasers. Liegt jedoch eine schwache Elektron-Phonon-Kopplung vor, also eine größere Kopplungszeit, wie in Gold oder Kupfer, wird die Energie mit den Elektronen über ungefähr 100 nm mit der Fermigeschwindigkeit in der Probe verteilt. [Ruello und Gusev, 2015]

Die Zeitskalen der Elektron-Magnon-Kopplung liegen im Bereich einiger hundert Femtosekunden. Für Holmium liegt sie bei 350 ± 80 fs, zusätzlich wurde ein langsamer Zerfall der Magnetisierung über 22 ± 2 ps in den Messungen von Trabant [2014] festgestellt. Diese langsame Zeitskala wird als charakteristische Zeitskala der Phonon-Magnon-Kopplung interpretiert [Wietstruk et al. [2011], Trabant [2014]].

2.2.6.1. Drei-Temperaturmodell

Die Dynamik nach der Anregung eines Festkörpers mit elektronischen, phononischen und magnetischen Freiheitsgraden kann durch die Trennung in Elektronen-, Phononen- und Magnonsystem, sowie ihren Wechselwirkungen untereinander im Rahmen des heuristischen Dreitemperaturmodells beschrieben werden. Jedem System wird nun eine Temperatur T_E , T_M , T_{Ph} und jeden Paar von Subsystemen eine Wechselwirkungskonstante g zugewiesen [Beaurepaire et al., 1996].

Nach der Absorption des Lichtpulses durch die Elektronen ist die Energie der Anregung im System der Elektronen. Innerhalb von 10 fs bis 500 fs relaxiert das elektronische System durch Elektron-Elektron-Stöße [Beaurepaire et al., 1996] und kann dann durch eine Fermi-Dirac-Verteilung mit der Temperatur T_E beschrieben werden. Die Energie des angeregten elektronischen Systems kann über Wechselwirkungen mit dem Gitter in Form Phononen und über Wechselwirkungen mit dem magnetischen System in Form von Magnonen abgegeben werden. Diese kann für den Fall nicht kohärenter Anregung durch die Bose-Einstein-Verteilung mit der Temperatur T_M beziehungsweise T_{Ph} beschrieben werden. Der Prozess der Energieübertrages hält so lange an, bis sich die Temperaturen angeglichen haben [von Volkmann, 2010]. Neben diesem Thermalisierungsprozess finden in der Probe weitere Prozesse statt, zum Beispiel Wärmeaustausch mit der Umgebung, welche ebenfalls berücksichtigt werden müssen. Schematisch ist der Temperaturverlauf der einzelnen Systeme in Abbildung 2.10 skizziert.

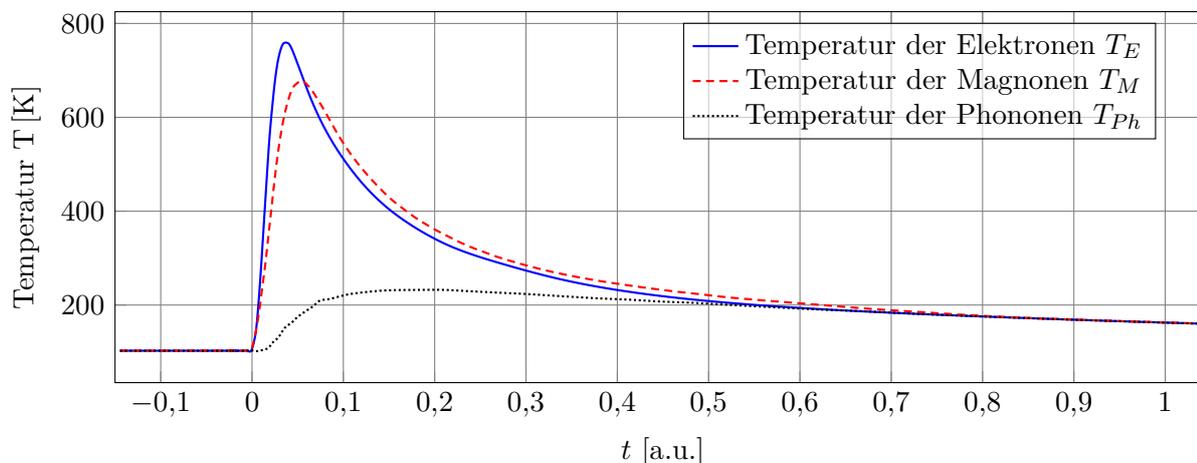


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung eines drei Temperaturmodells für Elektronen, Magnonen und Phononen. Die drei Systeme haben nach der Anregung unterschiedliche Temperaturen, die anschließend equilibrieren. [Müller et al., 2008]

Das Dreitemperaturmodell kann mit den folgenden drei gekoppelten Differentialgleichungen (2.36), (2.37) und (2.38)

$$c_E(T_E) \frac{dT_E}{dt} = -g_{E \rightarrow Ph}(T_E - T_{Ph}) - g_{E \rightarrow M}(T_E - T_M) + P(t), \quad (2.36)$$

$$c_M(T_M) \frac{dT_M}{dt} = g_{E \rightarrow M}(T_E - T_M) + g_{Ph \rightarrow M}(T_{Ph} - T_M), \quad (2.37)$$

$$c_{Ph}(T_{Ph}) \frac{dT_{Ph}}{dt} = g_{E \rightarrow Ph}(T_E - T_{Ph}) - g_{Ph \rightarrow M}(T_{Ph} - T_M) - g_{Ph \rightarrow Umgebung}(T_{Ph} - T_{Umgebung}) \quad (2.38)$$

beschrieben werden, wobei c_E die elektronische Wärmekapazität und c_M (c_{Ph}) der magnetische (phononische) Beitrag zur Wärmekapazität ist. Der Energieübertrag von einem ins andere System wird über die Wechselwirkungskonstanten g beschrieben (vgl.[Beaurepaire et al., 1996]). Die Konstante g kann dabei temperaturabhängig sein, um beispielsweise eine Sättigung des magnetischen Systems zu beschreiben. Mit der Konstante $g_{Ph \rightarrow Umgebung}$ wird das Kühlen über Phononen an den Rest der Probe und das Substrat beschrieben. Um Energie ins System zu bringen, wird der Quellterm $P(t)$ eingeführt. Er beschreibt das Erhitzen des elektronischen Systems. Würden Phononen oder Magnonen durch Licht mit passender Energie und Impuls direkt angeregt, müsste in den entsprechenden Gleichungen (2.37) und (2.38) ebenfalls ein Quellterm vorhanden sein. Die einzelnen Temperaturen und Quellterme können dabei im Modell neben der Zeitabhängigkeit auch ortsabhängig sein.

Dieses Modell wird in Kapitel 6 verwendet, um die Dynamik des magnetischen Systems zu erklären.

2.3. Röntgenbeugung

Die periodische Struktur eines kristallinen Festkörpers sorgt dafür das Licht, dessen Wellenlänge vergleichbar mit der Periodenlänge der Struktur ist, gebeugt wird. Die typische Periodenlänge eines Kristalls ist der Abstand zwischen den einzelnen Atomlagen und er beträgt wenige Ångström. Um Beugungsexperimente an diesen Strukturen durchzuführen wird Röntgenlicht mit einer Energie von mehreren keV beziehungsweise einer Wellenlänge von wenigen Ångström benötigt.

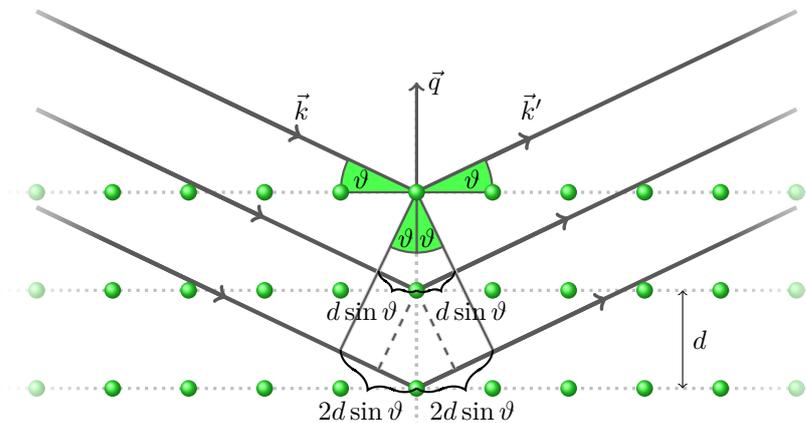


Abbildung 2.11: Skizze zur Herleitung der Bragggleichung 2.39. Licht fällt unter dem Winkel von θ auf die Probe und wird an den Gitterebenen mit dem Abstand d gebeugt.

Anhand der Abbildung 2.11 kann das Auftreten von Beugungsreflexen mit einem einfachen Modell erklärt werden: Trifft das Licht auf eine periodische Struktur wird es an den einzelnen Ebenen beziehungsweise den einzelnen Gitterionen im Bild elektromagnetischer Wellen nach dem Huygensschen Prinzip gestreut. Betrachtet man einzelne Ebenen, so gibt es einen Phasenversatz zwischen dem reflektierten Licht einzelner Ebenen. Dieser beträgt zwischen zwei Ebenen $2d \sin \vartheta$, wobei ϑ der Winkel zwischen einfallendem Licht und der Kristallebene ist. Die Bragggleichung ergibt sich unter der Annahme, dass bei unendlich vielen Ebenen sich immer eine destruktive Interferenz ergibt, solange der Phasenversatz nicht ein Vielfaches der Wellenlänge $n\lambda$ ist. [Gross

und Marx [2012], Kittel [1999]]

$$n\lambda = 2d \sin \vartheta \quad n \in \mathbb{N} \quad (2.39)$$

Ersetzt man

$$\sin \vartheta = \cos \left(\frac{\pi}{2} - \vartheta \right) \text{ durch } -\frac{\vec{q} \cdot \vec{k}}{|\vec{q}||\vec{k}|}, \quad (2.40)$$

$$\text{und } \lambda \text{ durch } \frac{2\pi}{|\vec{k}|}, \quad (2.41)$$

$$\text{sowie } \frac{2\pi n}{d} \text{ durch } |q|, \quad (2.42)$$

und addiert \vec{k}^2 auf beiden Seiten der Gleichung, so erhält man

$$\vec{k}^2 = (\vec{k} + \vec{q})^2, \quad (2.43)$$

führt man die Rechnung analog für \vec{k}' durch, so folgt

$$\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k}. \quad (2.44)$$

Dies ist die sogenannte von Laue Bedingung, wobei \vec{q} ein reziproker Gittervektor ist [Kittel, 1999]. Um die Gitterkonstante beispielsweise der c -Achse eines Materials in einer Heterostruktur zu bestimmen, wird eine ϑ - 2ϑ Geometrie genutzt, diese ist in Abbildung 2.12 dargestellt. Dabei steht die Probe unter einem Winkel ϑ zum einfallendem Strahl, der Detektor unter dem doppeltem Winkel 2ϑ .

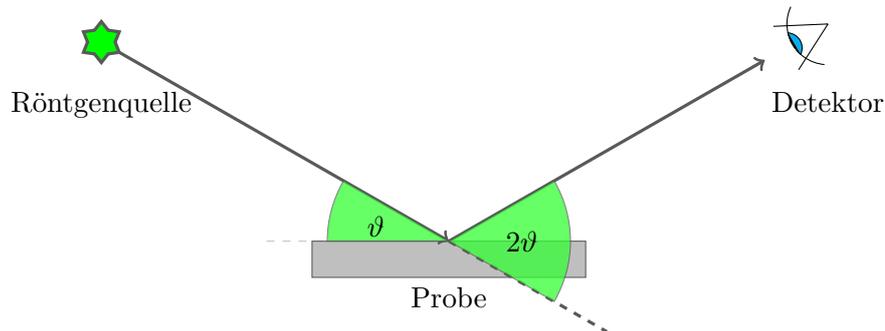


Abbildung 2.12: ϑ - 2ϑ -Geometrie: Der Röntgenstrahl trifft unter einem Winkel ϑ auf die Probe, wo er unter einem Winkel ϑ reflektiert wird. Damit ist der Detektorwinkel 2ϑ .

Wird der Winkel ϑ variiert und gleichzeitig der Detektorwinkel 2ϑ entsprechend angepasst, lassen sich Intensitätsmaxima beobachten, sofern sich geeignete Netzebenen mit dem Abstand d in Reflexionsbedingung befinden. Mit dieser Methode lassen sich Proben mit unterschiedlichen kristallinen Materialien mit unterschiedlichen Gitterkonstanten d untersuchen. Jedes Material zeigt dabei seinen charakteristischen Reflex unter entsprechendem ϑ .

3. Plasmaröntgenquelle

3.1. Experimenteller Aufbau

Das Ziel des Aufbaus ist die Untersuchung von Proben im Pump-Probe-Verfahren, wobei mit ultrakurzen Röntgenpulsen abgefragt wird. Dazu wird eine Plasmaröntgenquelle (Plasma X-Ray Source) (PXS) verwendet, welche auf einem Optiktisch aufgebaut ist. Sie ermöglicht eine zeitliche Auflösung von ungefähr 200 fs. Zum Betrieb der Plasmaröntgenquelle wird ein gepulstes Hochleistungslasersystem verwendet. Näheres zum Lasersystem befindet sich in Abschnitt 3.1.1. Das Lasersystem wird auch zum Pumpen der Probe genutzt. Die Probe befindet sich dabei auf einem Goniometer und kann mittels eines Kryostaten temperiert werden. Eine schematische Darstellung des Aufbaus befindet sich in Abbildung 3.1.

3.1.1. Lasersystem

Als Energiequelle für die Plasmaröntgenquelle wird ein Titan:Saphir-Verstärkersystem genutzt. Er erzeugt 40 fs kurze Pulse mit einer Energie von 8 mJ bei einer Repetitionsrate von 1 kHz. Der Verstärker wird von einem Laser Oszillator des Typs Mantis von Coherent geseedet. Dies ist ein modengekoppelter Titan:Saphir-Laser, welcher einen breitbandigen Puls im Übergangsbereich von sichtbarem zu nah infrarotem Licht erzeugt. Aus der Kavität werden mit einer Repetitionsrate von 80 MHz Pulse mit einer Länge ungefähr 40 fs und einer spektralen Breite von 70 nm um 800 nm ausgekoppelt. [Coherent, 2009c]

Der Verstärker „Coherent Legend Elite“ besteht aus vier Teilen:

- einem Stretcher um den Puls zeitlich lang zu machen,
- einem regenerativen Verstärker (Kavität),
- einem Einwegverstärker (single pass amplifier)
- und einem Kompressor um die gewünschte kurze Pulslänge zu erhalten.

Die beiden Titan:Saphir-Kristalle des regenerativen und des Einwegverstärkers werden mit Peltierelementen gekühlt. Zum Pumpen wird der Laser „Evolution-HE“ von Coherent benutzt, dessen Leistung auf die beiden Kristalle je zur Hälfte verteilt wird. Beim regenerativen Verstärker wird nach dem Durchgang des Pumplichts in den Kristall das restliche Pumplicht in den Kristall zurückreflektiert um die Leistung weiter zu erhöhen. Der Pumplaser ist ein wassergekühlter, mit Dioden gepumpter Festkörperlaser mit einer mittleren Leistung von 45 W bei einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer Pulslänge von < 150 ns. [Coherent, 2009a]

Im Verstärker wird zu Beginn der Seedpuls aus dem „Mantis“ in einem Strecher gechirpt, so dass unterschiedliche Farben zu unterschiedliche Zeiten im Puls vorkommen. Der Puls ist somit deutlich länger und Komponenten des Verstärkers werden nun durch die geringere Intensität des Pulses nicht beschädigt. Anschließend wird der Puls mit einer Pockelszelle in die regenerative Kavität des Verstärkers eingekoppelt, um dort einen leistungsstarken Laserpuls zu stimulieren. Nach einer optimalen Anzahl von Kavitätsdurchläufen wird dieser Puls mittels einer weiteren Pockelszelle ausgekoppelt. Er hat nun eine Leistung von 6,5 W, die sich beim einfachen Durchlauf durch den Einwegverstärker auf 10 W erhöht. Bevor der Puls im letzten Bauteil, dem Gitterkompressor, zeitlich kurz gemacht wird, wird er von wenigen Millimetern Durchmesser auf gut 2,5 cm vergrößert, da ansonsten die Spitzenleistung des kurzen Pulses nach dem zeitlichen Komprimieren die Bauteile zerstören würde. Hinter dem Kompressor ergibt sich eine mittlere Ausgangsleistung von 8 W bei einer Pulsenergie von 8 mJ mit einer Pulslänge von 35 fs. Die Polarisierung des Laserpulses liegt horizontal zum Tisch. [Coherent, 2009b]

Über mehrere Spiegel und Strahlteiler werden 80% der Laserleistung zur Plasmaröntgenquelle geleitet (Abbildung 3.1). Die restlichen 20% werden entweder im Verhältnis 30:70 zwischen Pumpuls und anderen Experimenten oder vollständig für den Pumpuls verwendet.

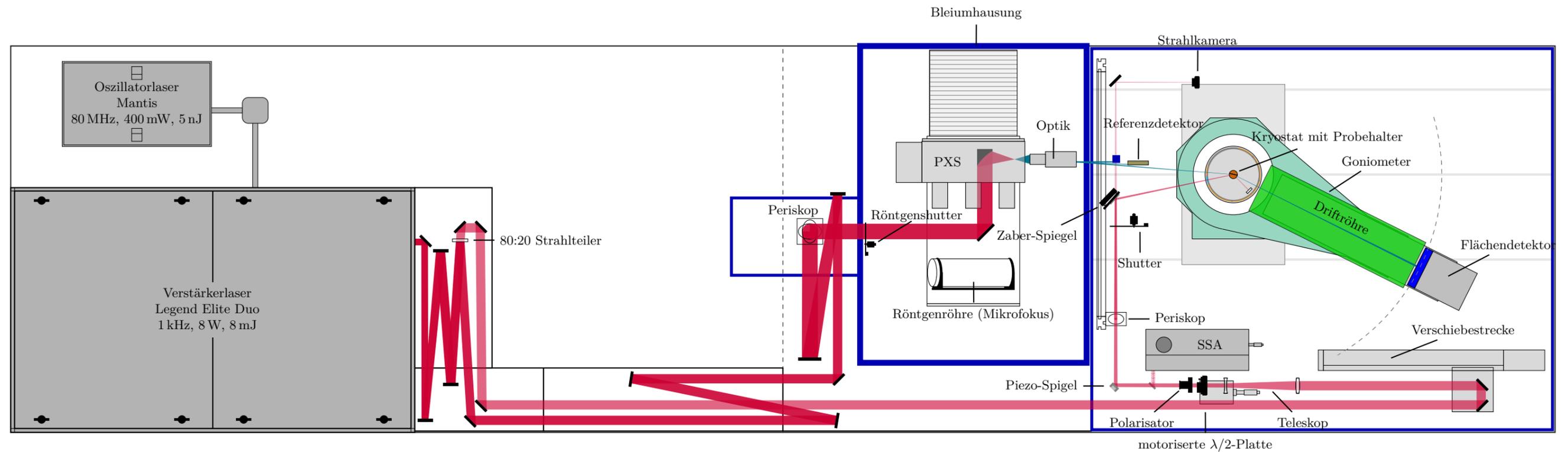


Abbildung 3.1: Aufbau auf dem Lasertisch: Auf der linken Tischhälfte befindet sich das Lasersystem, besteht aus einem Oszillatorlaser „Mantis“ und einem Verstärkerlaser „Legend Elite Duo“. Hinter dem Laser wird der Strahl aufgeteilt: 80% werden zur Plasmaröntgenquelle (Plasma X-Ray Source) (PXS) geführt, die restlichen 20% werden in die hintere Kammer zur Anregung der Probe geführt. Die PXS befindet sich auf dem rechten Tisch in einer Bleiumhausung (dunkel Blau) mit der alternativ nutzbaren Röntgenröhre und der Röntgenoptik (Optik). In der hinteren Bleiumhausung befindet sich das 2 Kreis-Goniometer mit der Probenkammer und dem Flächendetektor „Pilatus“. Im Zentrum des Goniometers befindet sich der an einem Kryostaten befestigte Probehalter. An diesem Punkt treffen sich der fokussierte Röntgen- und Laserstrahl. Ein Teil des nicht fokussierten Röntgenstrahls wird auf einen Referenzdetektor geführt, der zur Kalibrierung des Röntgenflusses dient. Der Laserstrahl wurde bevor er auf die Probe geführt wurde, über eine Verschiebestrecke, ein Teleskop, eine motorisierte $\lambda/2$ -Platte mit Polarisator zur Fluenzeinstellung, zwei motorisierte Spiegel („Piezo-Spiegel“ und „Zaber-Spiegel“) und einem Periskop geleitet. Durch den unteren rückseitig polierten Spiegel des Periskops wird ein kleiner Teil der Laserleistung auf eine Strahlkamera geführt. Mit dem „Piezo-Spiegel“, einem piezoelektrisch motorisiertem Spiegel, wird dann eine aktive Strahlstabilisierung aufgebaut. Zur Charakterisierung der Pulslänge befindet sich außerdem ein Einzelpulsautokorrelator (single shot autocorrelator) (SSA) in der hinteren Kammer. Der Getriebeschrittmotorspiegel „Zaber-Spiegel“ dient zur Herstellung der Überlappung zwischen Pumplaser und Röntgenstrahl.

3.1.2. Plasmaröntgenquelle (Plasma X-Ray Source)

Die Messungen an der Holmiumprobe werden mit der laborbasierten Plasmaröntgenquelle (Plasma X-Ray Source) (PXS) an der Universität Potsdam durchgeführt. Im Vergleich zum Femto-Slicing an Synchrotronquellen, welches ebenfalls eine zeitliche Auflösung von 100 fs erreicht, ist eine ähnliche Anzahl von 10^6 Photonen/s [Holldack et al. [2014], Schick et al. [2012]] auf der Probe möglich. Bei der PXS wird ein kurzer Laserpuls unter 100 fs mit hoher Peakintensität über 10^{18} W/cm² auf ein Metalltarget geschossen, welches dadurch ionisiert wird. In unserem Fall besteht das Target aus 15 μ m oder 20 μ m dickem Kupferband. Beim Auftreffen einer einzelnen Schwingung des Laserpulses werden die Elektronen ins Vakuum und zurück aufs Target beschleunigt. Dieser Effekt ist von Brunel [1987] beschrieben worden. Die Elektronen werden auf eine Energie von mehreren hunderttausend Elektronenvolt in das Target hinein beschleunigt um dort unter anderem K-Schalenelektronen anzuregen. Die Löcher in den K-Schalen werden durch Rekombination von Elektronen aus höheren Schalen gefüllt, dabei werden Photonen mit der charakteristischen Frequenz der Übergänge emittiert. Da diese Form der Anregung nur stattfindet, wenn das elektrische Feld die Elektronen beschleunigt, ist sie zeitlich auf die Länge des Laserpulses beschränkt. Neben den charakteristischen Linien, emittieren die beschleunigten Elektronen Bremsstrahlung. In diesem Fall sind die charakteristischen Übergänge $K_{\alpha 1}$, $K_{\alpha 2}$ und K_{β} von Kupfer. Das Spektrum ähnelt somit dem Spektrum, das eine Röntgenröhre mit Kupferanode emittiert. Die PXS liefert $4 \cdot 10^{10}$ Photonen/s im gesamten Raumwinkel 4π . Davon werden 10^6 Photonen/s mit der Optik auf die Probe fokussiert [Zamponi et al. [2009],for Scientific Instruments GmbH [2009]].

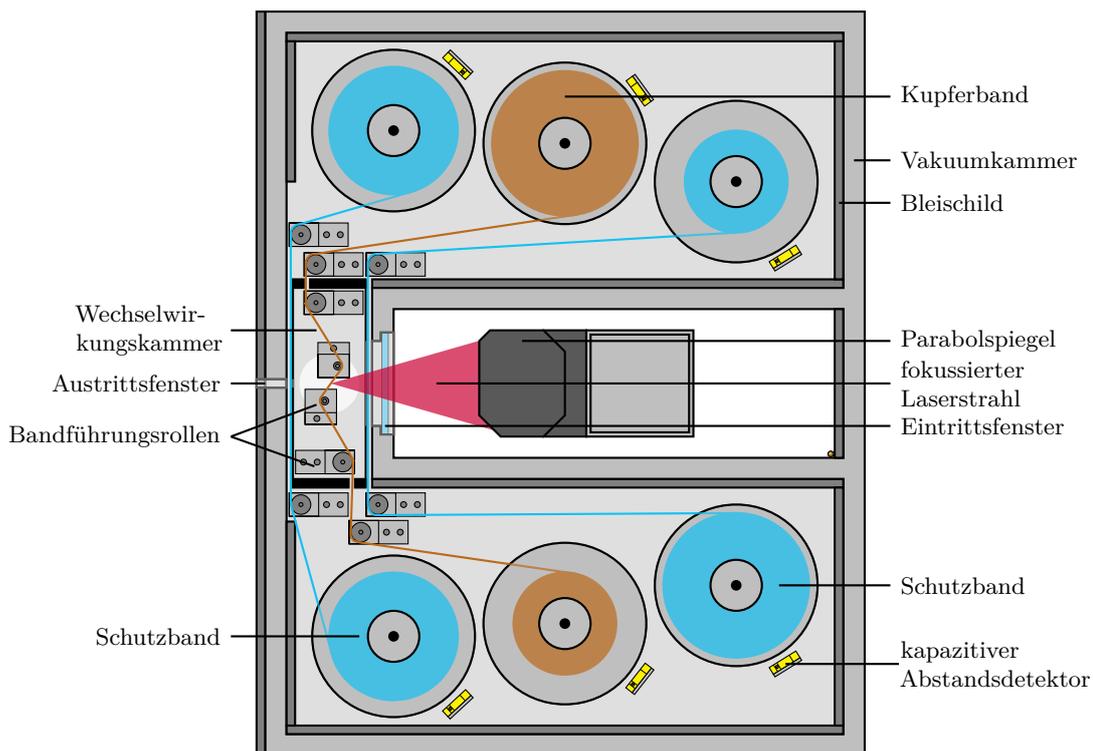


Abbildung 3.2: Aufbau der Plasmaröntgenquelle: In der Wechselwirkungskammer wird der Laser auf das Kupferband fokussiert, welches dann Röntgenstrahlung abstrahlt. Damit sich die Ein- und Austrittsfenster nicht verschmutzen, wird der Kupferdampf von Schutzbändern aufgehalten. Die beiden Schutzbänder sowie das Kupferband befinden sich mit der Wechselwirkungskammer in einer mit Blei ausgekleideten Vakuumbühnen. Die Abstandsdetektoren erkennen, wenn das Band aufgerollt ist und leiten damit einen Richtungs- und Spurwechsel (nur im Fall vom Kupferband) ein.

Da bei diesem Prozess das Kupfertarget zerstört wird, werden alle Bauteile in der Nähe des Targets

mit Kupfer beschichtet. Um zu gewährleisten, dass sowohl das Ausgangsfenster der Vakuumkammer für die Röntgenstrahlung, als auch das Eingangsfenster für den Laserstrahl durchsichtig bleiben, muss ein entsprechender Schutz eingebaut werden.

Die verwendete Plasmaröntgenquelle wurde in Kleinserie vom IFG–Institut for Scientific Instruments GmbH in Zusammenarbeit mit dem Max-Born-Institut und der Universität Potsdam unter Federführung von M. Bargheer entwickelt und gebaut. Ihr schematischer Aufbau befindet sich in Abbildung 3.2. Neben den beiden Rollen für das Kupferband, welche von uns optimiert wurden, gibt es weitere Rollen für ein Schutzband des Austrittsfenster und des Eintrittsfensters. Zum Schutz des Austrittsfenster wird ein 20 μm dickes Mylarband verwendet. Für das Eintrittsfenster wird entweder ein 175 μm dickes Plexiglasband verwendet, welches eine sehr hohe Transmission für das Laserlicht aufweist, jedoch häufig getauscht werden muss, oder ein 53 μm dickes Polyesterband. Das Kupferband läuft in der Mitte und trifft dort unter einem optimierten Winkel um 45° auf den fokussierten Laserstrahl um eine maximale Konversionseffizienz zu gewährleisten. Der Parabolspiegel, der den Laserstrahl auf das Kupferband fokussiert, kann über einen Schrittmotor verschoben werden, um die Position des Fokuspunktes zum Kupferband hinsichtlich der Röntgenausbeute zu optimieren. Neben der Position des Fokus, lässt sich außerdem die Bandgeschwindigkeit und Bandspannung einstellen um einen ruhigen Bandlauf herzustellen und einen Bandriss zu verhindern. Das Kupferband kann mehrfach verwendet werden, in dem die gesamte Kammer mit dem Kupferband nach hinten oder vorne verschoben wird. So werden mehrere Spuren auf das Kupferband geschrieben, ohne das die Position des Fokus, also auch die Position der Röntgenquelle, verändert wird. [Zamponi et al., 2009]

Die Kammer besteht aus einem Edelstahlgehäuse, das innen mit Bleiplatten ausgelegt wurde, um Personen im Labor vor der Strahlung zu schützen. Sie wird von einer Turbopumpe in Kombination mit einer trockenen Vorpumpe auf einen Arbeitsdruck von 10^{-3} mbar bis 10^{-4} mbar gebracht. Das Eintrittsfenster besteht aus einer 5 cm großen, für Transmission von 800 nm Licht beschichteten Glasscheibe, die regelmäßig gereinigt und ausgetauscht wird um eine hohe Transmission zu erreichen. Das Austrittsfenster besteht hingegen nur aus einem Tesa- oder Kaptonfilmstreifen, der bei Beschädigung durch den Laserstrahl zum Beispiel nach einem Durchschuss des Kupferbandes oder eines Kupferbandrisses leicht ausgewechselt werden kann.

Hinter der Vakuumkammer befindet sich eine Monteloptik. Sie fokussiert die Röntgenstrahlung auf die Probenposition mit einer Strahlprofilgröße von 300 μm FWHM. Näheres zur Optik befindet sich in nächsten Abschnitt 3.1.3.

Im Labor wurde um die Plasmaröntgenquelle eine 40 mm dicke Bleiumhausung gebaut. Neben der Plasmaröntgenquelle ist in der Bleiumhausung eine 45 W Röntgenröhre mit Kupferanode eingebaut, welche an die Position der Plasmaröntgenquelle gefahren werden kann und deren Optik nutzt. So kann eine statische Messung in der gleichen Umgebung erfolgen, wie die zeitaufgelösten Messungen mit der Plasmaröntgenquelle. Die Röntgenröhre bietet im Vergleich zur Plasmaröntgenquelle den Vorteil, das sie einen höheren, sowie stabileren Photonenfluss bietet und nicht überwacht werden muss.

3.1.3. Montel-Optik

Bei der Wahl der Röntgenoptik für ultraschnelle Röntgenbeugung muss vor allem darauf geachtet werden, dass die Optik für alle Photonen die gleiche optische Weglänge von der Quelle zum Fokus erzeugt. Ist dies nicht der Fall, wird der Röntgenpuls länger oder der Puls ist räumlich geschirpt, das bedeutet, er erreicht unterschiedliche Probenorte zu unterschiedlichen Zeitpunkten.

Zur Fokussierung der Röntgenstrahlungen der Plasmaröntgenquelle beziehungsweise der Röntgenröhre wird im Aufbau eine Montel-Optik vom Hersteller Incoatec verwendet. Diese besteht aus zwei senkrecht zueinander stehenden gekrümmten Multilayerzylinderspiegeln, wodurch es zwei mögliche optische Wege zum Fokus gibt, wie in Abbildung 3.3 a) gezeigt. Neben dem Fokus gibt es drei weitere Spots, zwei die durch Reflexion an nur einem Multilayer entstehen und einen, der

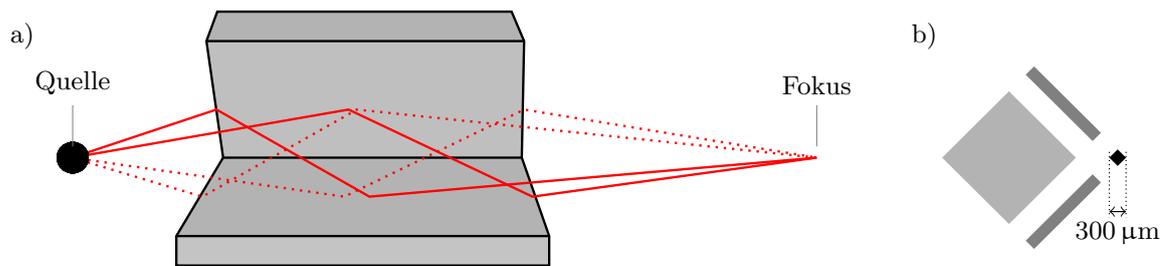


Abbildung 3.3: a) Prinzip einer Montel-Optik: eingezeichnet sind nur die zweifach reflektierten Röntgenstrahlen. b) Strahlprofil: auf der linken Seite ist der direkt Strahl, auf rechten der fokussierte Strahl eingezeichnet. Links ober- und unterhalb der Fokus befindet sich der einfach reflektierte Strahl.

ohne eine Reflexion direkt durch die Optik transmittiert. Das typische Strahlprofil dieser Optik ist in Abbildung 3.3 b) abgebildet.

Der Fokuspunkt der Montel-Optik hat dabei einen Durchmesser von $300\ \mu\text{m}$ bis $400\ \mu\text{m}$. Nach Bargheer et al. [2005] ist diese Optik quasi frei von einer zeitlichen Pulsverbreiterung, hauptsächlich die endliche Quellgröße von $10\ \mu\text{m}$ führt zu einer vernachlässigbaren berechneten Pulsverbreiterung von 6 fs. Dabei beträgt die Konvergenz des Röntgenstrahls $0,3^\circ$.

Die Optik ist optimiert für $\text{Cu-}K_{\alpha}$, somit werden die beiden nahe beieinanderliegenden charakteristischen Linien $K_{\alpha 1}$ und $K_{\alpha 2}$ auf die Probe fokussiert.

3.1.4. Goniometer

In Abbildung 3.1 befindet sich eine schematische Skizze. In dieser ist auf der rechten Seite die Bleiumhausung der Messkammer mit den dort enthaltenen Geräten eingezeichnet. Im Fokuspunkt der Röntgenoptik befindet sich das Drehzentrum des 2-Kreis Goniometers: Das Goniometer lässt sich manuell entlang der Längsachse und motorisiert entlang der Querachse des Tisches verschieben. Es verfügt über zwei Drehkreise in der Tisebene: einen Äußeren, der den Detektor verfährt, sowie einen Inneren, welcher die Probe dreht. Im inneren Drehkreis befindet sich ein x,y,z-Verschiebetisch, mit dessen Hilfe sich die Probe ins Drehzentrum verschieben lässt, sowie die Höhe der Probe einstellen lässt. Dies wird ausgenutzt um die zu untersuchende Probe und eine weitere Probe beispielsweise eine Referenzprobe gleichzeitig zu montieren. Während der Messung kann dann zwischen den Proben gewechselt werden um den Zeitnullpunkt zu bestimmen (Abschnitt 3.3.1).

3.1.5. Probenumgebung

In der hinteren Bleiumhausung befindet sich die Messkammer, in der sich die nötige Infrastruktur zur Temperierung und Orientierung der Probe, zur Einstellung der Strahlparameter des Probepulses und zur Detektion befindet.

3.1.5.1. Pumpstrahl

Auf den Fokuspunkt der Röntgenoptik ist der Pumpstrahl gerichtet. Er tritt an der Seite in die Messkammer ein und wird über eine Verschiebestrecke geführt, mit welcher der Zeitunterschied zwischen dem Pumpstrahl und dem Probepuls, also dem Röntgenpuls, eingestellt wird. Anschließend werden die Strahlparameter des Pumpspots durch ein Teleskop, das die Größe des Strahlprofils einstellt, und eine motorisierte $\lambda/2$ -Platte in Kombination mit einem Polarisator, zum Einstellen der Intensität, festgelegt. Über ein Periskop wird der Strahl auf Höhe der Probe gebracht und über einen elektrisch einstellbaren Spiegel „Zaber-Mirror“ auf die Probe gelenkt. Der Spiegel ist dabei nah neben dem Röntgenstrahl montiert, um einen möglichst gute Überlappung zwischen Pump- und Röntgenstrahl für einen großen Winkelbereich des Goniometers zu garantieren. Hinter

dem Teleskop befindet sich ein Klappspiegel mit dem sich bei Bedarf der Pump Laserstrahl in einen Einzelschussautokorrelator zweiter Ordnung gelenkt werden kann. Mit ihm werden die Pulsdauer, sowie das zeitliche Profil des Pulses überprüft.

Um zu gewährleisten, dass die Stahlqualität über die gesamte Messung gleichbleibend ist, ist die Rückseite des unteren Periskopspiegels poliert. So wird ein Teil des Strahls auf eine Kamera gelenkt. Diese ist im gleichen Abstand vom rückseitig poliertem Spiegel montiert, wie die Probe von Spiegel entfernt ist. Damit sind Bewegungen und Veränderungen des Strahlprofils auf der Kamera identisch mit denen des Lasers auf der Probe. Durch einen aktiven Regelkreislauf lassen sich Bewegungen des Strahlprofils, welche zum Beispiel durch mechanische Ungenauigkeiten in der Verschiebestrecke und einen Tagesdrifts des Lasers verursacht werden, mit einem motorisiertem Spiegel „Piezo-Mirror“, in unserem Fall durch einen Piezoantrieb, ausgleichen. Zusätzlich wurde der mechanische drehbare Halter für die $\lambda/2$ -Platte durch einen motorisierten Halter ersetzt. Zukünftig soll hier durch einen elektronischen Regelkreislauf ein Tages- beziehungsweise Wochendrift der Pumpenergie korrigiert werden und ein automatischer Wechsel der Fluenz zwischen zwei Messungen ermöglicht werden.

3.1.5.2. Kryostat

Als weitere Messparameter lässt sich die Temperatur der Probe variieren. Hierzu kann statt eines einfach Probenhalters, ein vibrationsentkoppelter Kryostat auf dem Goniometer montiert werden. Mit diesem lässt sich ein Temperaturbereich von 15 K bis 325 K abdecken. Der Kryostat kann mit einer LabVIEW-Routine angesteuert werden um eine bestimmte Temperatur anzufahren.

Die Probe befindet sich dabei in einer Vakuumkammer, welche ein 1 Zoll Eintrittfenster aus Glas für das Pumplicht und daneben ein Eintrittfenster aus Kaptonfolie für den Röntgenstrahl besitzt. Nachdem das Röntgenlicht von der Probe gebeugt wurde, tritt es durch ein weiteres Kaptonfenster wieder aus. Das gestreute Pumplicht wird von einem Teflonblock in der Vakuumkammer diffus gestreut, damit es nicht die Kaptonfolie beschädigt.

3.1.5.3. Probenhalter

Der Probenhalter dient zur Montage der Probe und der Referenzprobe. Die Referenzprobe dient zur Herstellung der Überlappung zwischen Laser- und Röntgenspot sowie der Zeitnullpunktsermittlung. Eine Skizze ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Beide Proben werden dabei auf kleine Kupferblöcke montiert, welche mit dem Probenhalter verschraubt werden. Der obere Kupferblock der eigentlichen Probe kann dabei als Keil ausgeführt werden, damit der Röntgenreflex der Probe und der Referenzprobe im begrenzten Messbereich der Vakuumkammer angefahren werden kann. Der Probenhalter besteht vollständig aus Kupfer, damit er die Wärme der Probe möglichst effektiv an den Kryostaten abführt. Auf der Rückseite befindet sich ein Halter für den Temperatursensor. Unter dem Probenhalter kann eine Blende zur Justage des Röntgen- und Laserstrahls angebracht werden. Der Probenhalter wird zum Erreichen tiefer Temperaturen von einem Wärmeschild umgeben.

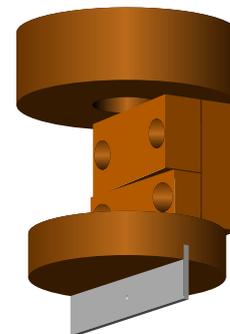


Abbildung 3.4: Probenhalter (oberer Halter: Probe, unterer: Referenzprobe)

3.1.5.4. Detektion

Zur Detektion der gestreuten Röntgenstrahlung wird ein Flächendetektor verwendet. Dieser ist am Arm des äußeren Drehkreises des Goniometers im Abstand von circa 70 cm von der Probe befestigt. Bei unserem Detektor handelt es sich um das Modell „Pilatus 100K“ mit 487×195 Pixeln von Dectris [Dectris, 2010]. Durch die Nutzung eines Flächendetektors ist es möglich bei einer Detektorposition mehrere Reflexe gleichzeitig aufzunehmen. Näheres dazu ist in Abschnitt 3.3

zu finden. Der Detektor kann einzelne Photonen zählen und ist rauschfrei, dennoch gibt es einen Untergrund von detektierten Röntgenphotonen, die nicht aus der Plasmaröntgenquelle kommen. Dies kann zum Beispiel die Strahlung von kosmischen Teilchen oder von radioaktiven Zerfällen sein. Um diesen zu minimieren ist der Detektor bei zeitaufgelösten Messungen getriggert: Er integriert dabei nur Signale, die in einem Zeitfenster von $2 \mu\text{s}$ um den Röntgenpuls auftreten. Somit kann der störende Untergrund um einen Faktor 1000 verringert werden und ist damit vernachlässigbar gering.

Die Plasmaröntgenquelle ist starken Schwankungen in der Röntgenintensität unterworfen. Diese korrelieren zum Einen mit der Sauberkeit des Eintrittsfensters und seiner Schutzfolie, mit der Oszillation der Intensität durch Schwingungen beim Abrollen des Kupferbandes sowie mit weiteren Schwankungen den Laser durch andere äußere Einflüsse. Da sich die Intensität des gestreuten Signals auf dem Detektor mit der Intensität der Quelle ändert, muss das Signal des Pilatusdetektors auf die aktuelle Intensität der Quelle normiert werden. Dies geschieht durch einen Referenzdetektor, der die Intensität eines der beiden einfach reflektierten Strahlen der Monteloptik aufnimmt. [Schick et al., 2012]

Um die Röntgenausbeute auf dem Detektor und der Probe zu erhöhen, soll der Strahlengang des Röntgenstrahls mit evakuierten Röhren ausgestattet werden. Teilweise ist dies bereits geschehen. Diese Röhren sind an den Enden mit Kaptonfolie verschlossen und werden mit einer Vorvakuum-pumpe evakuiert. In der aktuell Ausbaustufe ergibt sich eine Erhöhung des Röntgenflusses von 100 % bis 200 %. Nach vollständiger Umsetzung ist mit einem Faktor um 3 bis 4 zu rechnen. Dies ergibt sich aus der zurückgelegten Weglänge von etwas über 1 m bei einer Absorption von $0.7 / \text{m}$ für Kupfer $K_{\alpha 1}$ Strahlung in Luft [Weber, 2014].

3.2. Steuerung

Die Steuerung der Plasmaröntgenquelle erfolgt über einen separaten Rechner. Hier kann die Position des Parabolspiegels und die Geschwindigkeiten der Bänder eingestellt werden. Des Weiteren lässt sich zwischen der Plasmaröntgenquelle und der cw-Quelle wechseln.

Die eigentliche Messung wird über einen weiteren Rechner gesteuert. Auf diesem laufen mehrere LabVIEW-Programme, welche die einzelnen Geräte ansteuern und auslesen. Neben den Programmen, die die Geräte steuern, gibt es unterschiedliche Messroutinen, wobei die wichtigsten im folgenden aufgezählt werden:

beamStabilizationDevice wertet die Daten hinsichtlich von Position, Breite und Intensität des Strahlprofils des Pumpstrahls der Strahlprofilkamera aus. Die Positionswerte können zur automatischen Nachjustage des Pumpaserspots mit dem Piezo-Spiegel genutzt werden, so wird ein Driften des Spots durch das Verfahren der Verschiebestrecke ausgeglichen. Auch werden Tages oder Wochendriffs des Lasers korrigiert. Geplant ist, dass das Programm auch zur Einstellung und Korrektur der Fluenz genutzt wird. Dazu soll es die motorisierte $\lambda/2$ -Platte ansteuern.

AnalogInScanZaber und PilatusScanZaber dienen zur Herstellung der räumlichen Überlappung zwischen Röntgen- und Laserspot. Die Programme verfährt dazu den „Zaber-Mirror“.

PilatusPumpProbe wird zu Bestimmung des Zeitnullpunktes benutzt, also die Delayeinstellung an dem der Laserpuls und der Röntgenpuls gleichzeitig auf die Probe beziehungsweise Referenzprobe treffen. Dazu wird die Intensität des gestreuten Röntgenlichtes über den Delay, also unterschiedliche Positionen der Verschiebestrecke aufgezeichnet. Zur Bestimmung des Zeitnullpunktes wird die Übergitteroszillation der Referenzprobe genutzt. Näheres zur Auswertung dieser Daten befindet sich im Abschnitt 3.3.1.

PilatusTheta2Theta, -Inhom, -Delay und PilatusScanLakshore messen einen ϑ -2- ϑ über einen eingestellten Winkelbereich. Je nach Bedarf können konstante Winkelschritte oder eine Liste

von Winkeln ϑ gemessen werden. Dies reduziert die Messzeit bei Proben mit mehreren Peaks: schmale Peaks können mit einem feineren gerasterten Messbereich als breite Peaks oder Abschnitte zwischen Peaks gemessen werden. PilatusScanLakshore ermöglicht zudem eine Schleife, die eine Liste von unterschiedlichen Temperaturen mit dem Kryostaten anfährt, abzuarbeiten.

PilatusTheta2ThetaDelay ermöglicht zeitaufgelöste Messungen. Dazu arbeitet es zwei Schleifen mit Listen der zu messenden Delays und Winkel ϑ ab. Bei Bedarf können diese Listen auch mehrfach ausgeführt werden um die Statistik zu erhöhen. Im Gegensatz zu den anderen Programmen lässt sich eine untere Schranke von einer Anzahl von Ereignissen auf dem Referenzdetektor einstellen, bei dem der Messpunkt als gemessen gilt, ansonsten wird dieser wiederholt. Somit lassen sich nicht nutzbare Messpunkte mit schlechter Statistik, die bei schlechter Justage oder beim Bandwechsel auftreten, von Beginn an vermeiden. Gerade die Messpunkte beim Bandwechsel sind kritisch, da zu diesem Zeitpunkt keine Röntgenstrahlung erzeugt wird, da ein Shutter geschlossen wird um ein Zerstoren des Bandes zu verhindern. Beim Kalibrieren des Messpunktes kann es so vorkommen, das durch Zahlen nahe 0 geteilt wird, dies kann zu sehr großen Ausschlägen im Signal führen.

In jedem Programm, welches mit dem Pilatusdetektor arbeitet, ist es möglich ein rechteckige „Region of Interest“ einzustellen um nur einen Teil der Pixel des Detektors zu nutzen. Zusätzlich lassen sich im LabVIEW-Treiber des Pilatusdetektors fehlerhafte Pixel, definieren. Sie werden beim Auslesen auf 0 gesetzt.

3.2.1. Fernsteuerung

Jede Messung mit der Plasmaröntgenquelle muss dauerhaft überwacht werden, da ein gelegentliches Nachjustieren des Parabolspiegel nötig ist. Da ein Arbeiten im Labor durch die Geräuschkulisse, verursacht von Wärmetauschern und einem Kompressor des Kryostaten, unangenehm ist, wurde durch meine Masterarbeit die Möglichkeit geschaffen, weitere Rechner zum Überwachen und Justieren über eine VPN-Verbindung zum Router des Labornetzwerks ins Labornetzwerk aufzunehmen. Mittels Remote-Desktop-Verbindungen oder Fernwartungssoftware lassen sich die Bildschirme des Kontrollrechners der Plasmaröntgenquelle und des Messrechners auf einem anderen Rechner darstellen und diese Rechner bedienen. Zur dauerhaften Steuerung wurde ein Rechner in einem Büro eingerichtet, der die Steuerung und Überwachung der Messung erlaubt. Zusätzlich wird das Signal des Oszilloskopes, das das Signal des Referenzdetektors anzeigt, übertragen. Es erlaubt eine schnelle und einfache Justage der Plasmaröntgenquelle. Zusätzlich wurden zwei Kameras montiert: Eine erlaubt die Überwachung der gesamten Messkammer, so ist die aktuelle Position des Goniometers und des Shutters erkennbar. Die andere Kamera zeigt den Pumpspot auf der Probe. Beide Bilder lassen sich sowohl im Labor als auch am entfernten Rechner einsehen.

3.3. Datenverarbeitung und Auswertung

In diesem Abschnitt werden kurz die verwendeten Auswerteroutinen vorgestellt. Dabei wird auf die Ermittlung des Zeitnullpunktes und die Konvertierung der Detektordaten von Winkelraum in den reziproken q -Raum für statische und zeitabhängige Messungen eingegangen.

3.3.1. Zeitnullpunktsermittlung

Um den Zeitnullpunkt an dem Pump- und Probepuls gleichzeitig an der Probe ankommen, zu bestimmen, wird die Referenzprobe „MV217,“ genutzt, die von Dr. Ionela Vrejoiu hergestellt wurde. Sie zeigt eine praktisch instantane Dynamik und große Intensitätsänderungen bestimmter Braggreflektionen, besonders des sogenannten „SL-1“ Reflex des LSMO/BST Übergitters [Schick et al., 2012]. Bei dieser Probe ist Lanthan Strontium Manganat $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) metallisch und Barium Strontium Titanat $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ (BST) ferroelektrisch. Der Zeitnullpunkt lässt mit

dieser Probe mit einer Genauigkeit von ± 100 fs bestimmen [von Korff Schmising et al., 2007]. Theoretisch lässt sich der Zeitnullpunkt auch an der eigentlichen Probe anhand der Verschiebung des Peaks bestimmen, dies haben wir mit der Holmiumprobe erfolglos probiert. Zudem ist es ohne Bestimmung des Zeitnullpunktes an der Referenzprobe nicht möglich eine Aussage über eine verspätet Dynamik zu treffen. Die Dynamik der Referenzprobe lässt sich durch die Funktion

$$I(t) = \Theta(t - t_0) \left(I_0 e^{-\frac{t-t_0}{\tau}} \sin^2 \omega(t - t_0) \right) \quad (3.1)$$

beschreiben. Damit ist eine Bestimmung des Zeitnullpunktes bis ± 100 fs möglich. In Abbildung 3.5 ist ein Messsignal der Zeitnull mit Fit abgebildet.

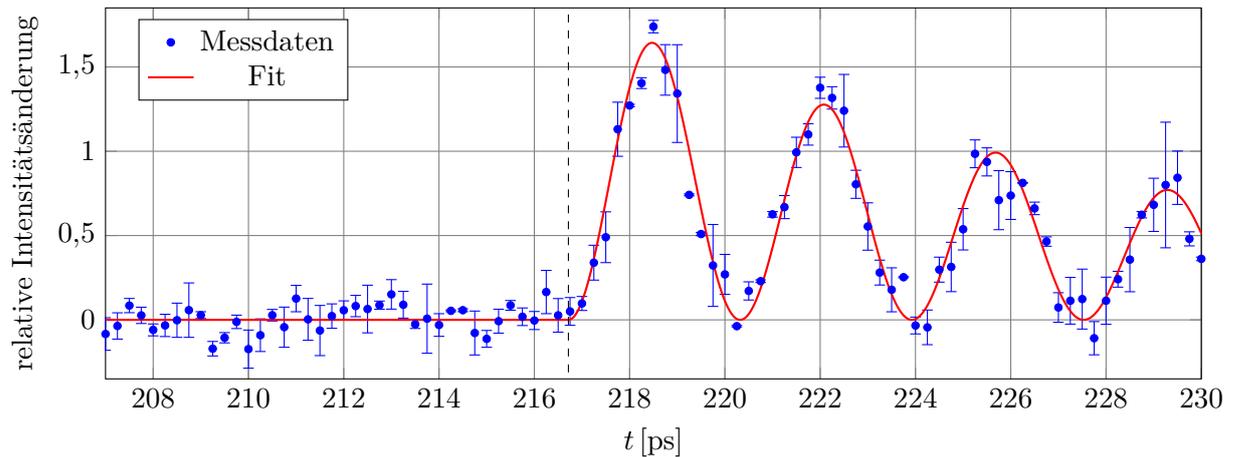


Abbildung 3.5: Die Intensitätsänderungen des „SL-1“-Peaks der Referenzprobe „MV217“ normiert auf die Intensität vor der Zeitnull (blaue Punkte) zeigt die typische Dynamik dieser Probe [Schick et al. [2012], von Korff Schmising et al. [2007]]. Durch die schnelle Dynamik und große Intensitätsänderung eignet sie sich sehr gut um den Zeitnullpunkt zu bestimmen. Mittels der Fitfunktion 3.1 (rot), kann die Zeitnull zu $t_0 = 216.7$ ps bestimmt werden.

Bei dieser Art von Übergittern wird durch den Laserpuls lediglich die metallische Schicht angeregt, welche ein periodisches Spannungsprofil in die Probe induziert. Hieraus ergibt sich die Anregung einer longitudinalen Phononen-Mode, welcher einer gegenphasigen Oszillation der Schichtdicken in jedem Doppellayer entspricht. Die Intensität der gebeugten Röntgenstrahlung ist dabei proportional zur Amplitude des Übergitter Phonons. [Schick et al. [2012], Woerner et al. [2009]]

3.3.2. reciprocal-space map (RSM)

Reciprocal-space mapping ermöglicht einem das Abbilden des Winkelraums (ω, ϑ) in einen reziproken Raum (q_z, q_x) , dies ist der fouriertransformierte Raum des Kristallgitters, wobei die q_z aus der Probenebene zeigt und q_x in der Probenebene liegt (Abbildung 3.8). Dabei lassen sich auch asymmetrisch gebeugte Röntgenphotonen ($\omega \neq \vartheta$) messen. Somit lässt sich die volle Fläche des Pilatusdetektors nutzen ohne an Auflösung zu verlieren. Im folgenden Abschnitt ist die Datenauswertung mittel reciprocal-space mapping anhand eines Datensatzes der continuous wave (cw) Daten der Probe „MBE2057“ gezeigt.

Für jeden angefahrenen Winkel ω beziehungsweise 2ϑ des äußeren Goniometers nimmt der Detektor ein Bild auf. In Abbildung 3.6 ist ein typisches Detektorbild der Holmiumprobe gezeigt.

Die Pixel entlang der Senkrechten zur Goniometerebene (Spalte) enthalten die selben Information wie die Zeilen, dies gilt für Proben die in der q_z, q_x -Ebene symmetrisch sind. Da eine Konvertierung der kompletten Daten einen immensen Rechenbedarf mit sich bringt, werden die Werte der vertikalen Pixel summiert und es ergibt sich für jeden Winkel ω eine Intensitätsverteilung $I(x)$, wobei x die jeweilige Pixelspalte des Detektors identifiziert. Diese Auswertung wird für alle ω in

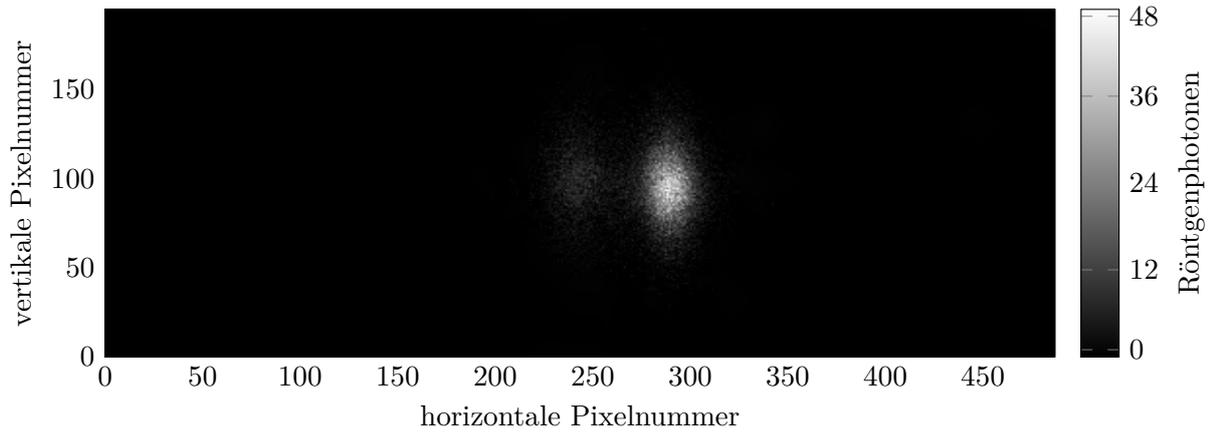


Abbildung 3.6: Einzelbild, wie es vom Detektor nach 4s Belichtung ausgegeben wird. Leicht rechts vom Zentrum ist der Reflex der Holmiumschicht zuerkennen, links daneben der Reflex der Yttriumschicht.

der LabVIEW-Routine durchgeführt und in eine Datenmatrix geschrieben, diese ist in Abbildung 3.7 gezeigt. Würde man erst die Rohdaten in den reziproken Raum konvertieren und anschließend die über die beiden Dimensionen q_x und q_y integrieren, würde sich eine weitere Verbesserung der Qualität der Daten ergeben. Allerdings ist mit einer 180 mal längeren Rechenzeit bei aktuell 15 min für eine statische temperaturabhängige Messung zu rechnen. Zeitaufgelöste Messungen benötigen durch die hohe Anzahl von Verzögerungszeiten noch mehr Rechenzeit.

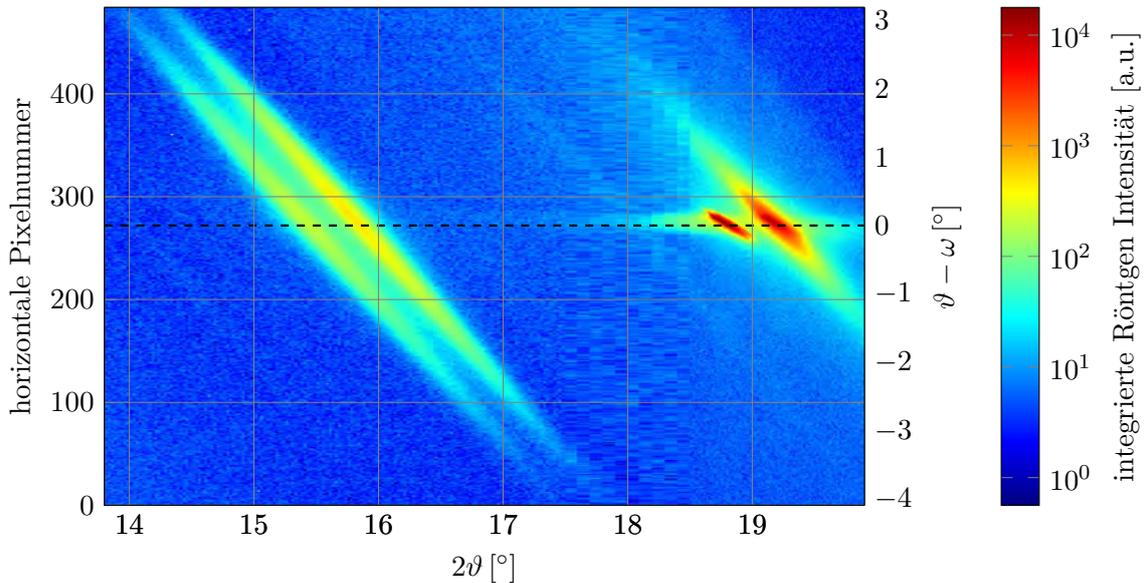


Abbildung 3.7: Aus den integrierten Einzelbildern zusammengesetztes Ergebnis eines ϑ - 2ϑ -Scans bei $T = 300\text{ K}$: Gut zu erkennen ist die unterschiedlich hohe Auflösung der 2θ -Achse, bedingt durch unterschiedlich große Winkelschritte. Würde man direkt aus diesem Ergebnis eine Rockingkurve durch Integration über die Pixel erstellen, wären die Peaks durch stark verbreitert. Die gestrichelte Linie gibt den horizontalen Pixel bei dem $\vartheta = \omega$ ist.

Für die mittlere Pixelspalte gilt $\omega = \vartheta$ (siehe Abbildung 3.8), diese Spalte gibt das Ergebnis eines ϑ - 2ϑ -Scans wieder. Alle anderen Spalten detektieren asymmetrisch gebeugte Röntgenphotonen. Sie lassen sich mittels

$$\vartheta(x) = \Delta\vartheta(x - x_c) + \omega \quad (3.2)$$

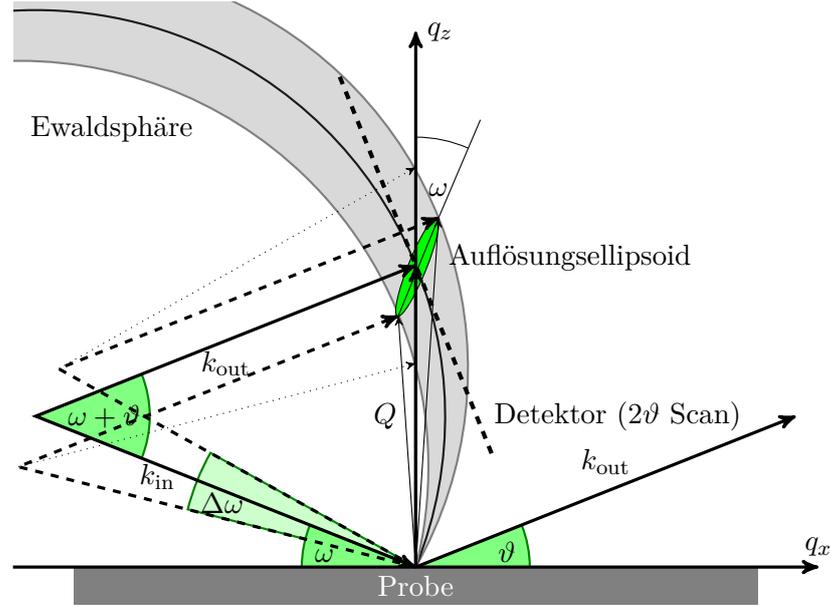


Abbildung 3.8: Reziprokes Koordinatensystem (q_x, q_z) der Probe. Eingezeichnet sind die einfallenden und gestreuten Röntgenstrahlen, k_{in} und k_{out} . Ausgehend von einer Konvergenz $\Delta\omega$ im einfallenden Röntgenlicht, wird ein gewisser Bereich von Ewaldsphären gleichzeitig ausgeleuchtet. Der Detektor wird durch die gestrichelte Linie entlang der zentralen Ewaldsphäre verfahren. Der ϑ - 2ϑ -Scan löst dabei q_z auf, während q_x vom ω -Scan aufgelöst wird. (vgl. [Schick et al., 2013])

einem Winkel ϑ zuordnen, $\Delta\vartheta$ beschreibt dabei die Höhe eines Pixels in Winkel aus Sicht der Probenposition. Anschließend lassen sich die Messdaten aus dem (ω, ϑ) -Raum in den reziproken q -Raum mittels folgender Koordinatentransformation [Schick et al. [2013], Pietsch et al. [2004]]

$$\vec{q} = \begin{pmatrix} q_x \\ q_z \end{pmatrix} = k \begin{pmatrix} \cos \vartheta - \cos \omega \\ \sin \vartheta + \sin \omega \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

überführen. Dabei ist $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ der Betrag des gestreuten k -Vektors. Um die Intensität korrekt zu transformieren, muss außerdem der Betrag der Jacobideterminante

$$|J_{\vec{q}}(\omega, \vartheta)| = \left| \begin{pmatrix} \partial_{\omega} q_x(\omega, \vartheta) & \partial_{\vartheta} q_x(\omega, \vartheta) \\ \partial_{\omega} q_z(\omega, \vartheta) & \partial_{\vartheta} q_z(\omega, \vartheta) \end{pmatrix} \right| \quad (3.4)$$

$$= \left| \begin{pmatrix} \sin \omega & -\sin \vartheta \\ \cos \omega & \cos \vartheta \end{pmatrix} \right| \quad (3.5)$$

$$= |\sin \omega \cos \vartheta + \cos \omega \sin \vartheta| \quad (3.6)$$

für die Integration beziehungsweise Summation berechnet werden. Zusätzlich muss bei einer nichtlinearen ω Liste, die Fläche jedes Datenpunktes berücksichtigt werden. Dies geschieht in dem jeder Datenpunkt mit seiner zugehörigen Fläche $\Delta\omega\Delta\vartheta$ gewichtet wird. Durch den immer gleichen Pixelabstand und die lineare Abbildung 3.2 ist $\Delta\vartheta$ konstant. Um kein neues ω -Punktgitter einzuführen, wird $\Delta\omega$ als die Summe des jeweils halben Abstandes zum rechten und linken Nachbarn definiert. Für die Randpunkte wird jeweils eine symmetrische Fortsetzung auf der Randseite gewählt. Damit ergibt sich die korrigierte Intensität

$$I_q = \Delta\omega(\omega)\Delta\vartheta |J_{\vec{q}}(\omega, \vartheta)| I(\omega, \vartheta) \quad (3.7)$$

für die Transformation. Für die zeitaufgelösten Daten wurde noch eine alte Version verwendet,

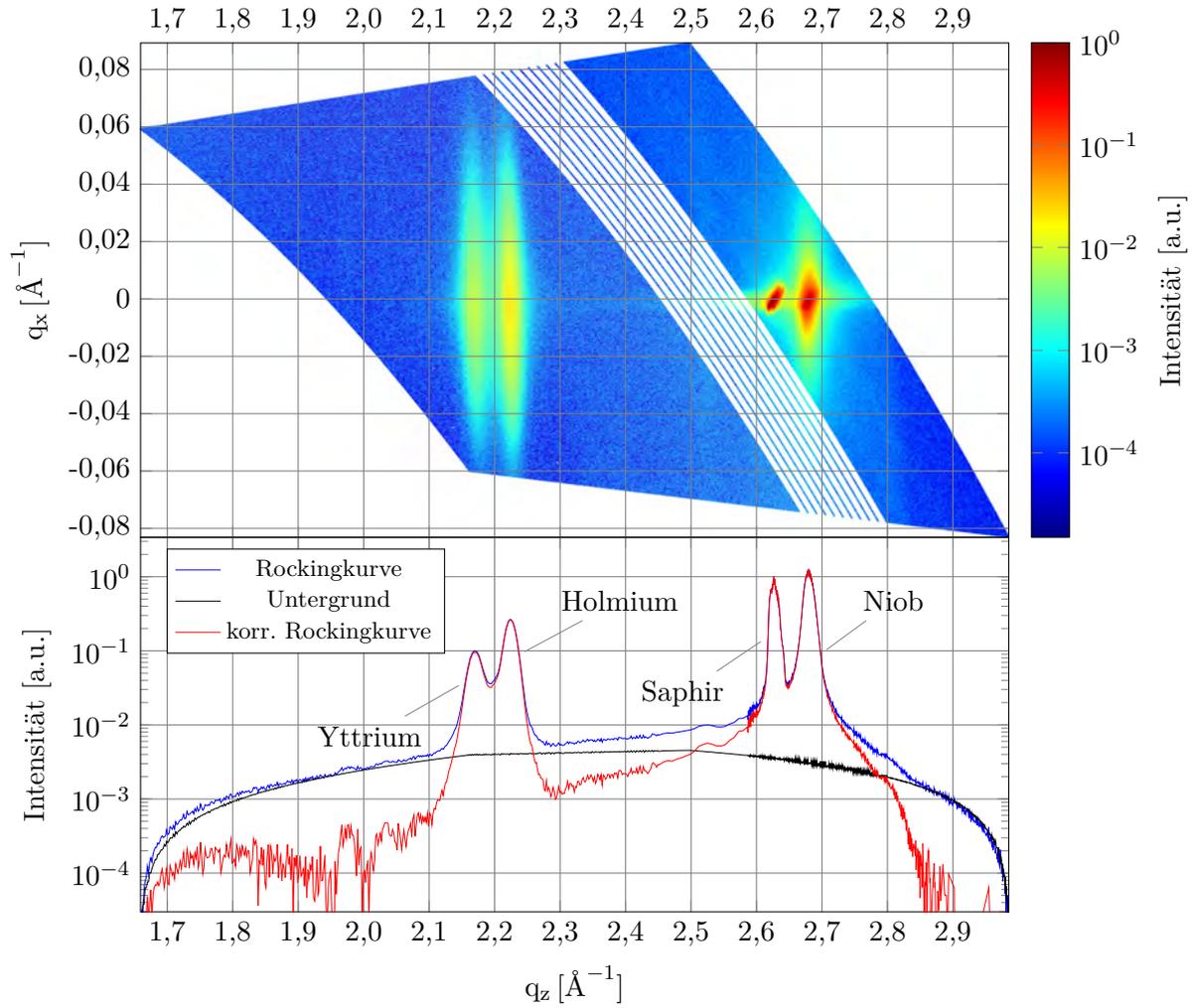


Abbildung 3.9: Darstellung der statischen $\vartheta - 2\vartheta$ -Messung im (q_z, q_x) -Raum (oben) als Punkteplot: Durch die Transformation liegen die Peaks senkrecht zur q_x -Achse und es ergeben sich schmale Peaks im q_z -Raum. In der unteren Abbildung ist die Rockingkurve, der berechnete Untergrund und die korrigierte Rockingkurve eingezeichnet, die durch Integration über die q_z -Werte entstanden ist.

hier wird die Jacobideterminante noch nicht berücksichtigt. Die Korrekturen sind jedoch so klein, das sie im Rahmen der Fehler für die zeitaufgelösten Daten vernachlässigt werden können. Für die Rockingkurve muss nun ein neues Punktgitter q'_z gewählt werden. Im Idealfall ist es das Punktgitter, welches die mittlere Pixelspalte beschreibt, dies entspricht den ω -Werten, die bei der Messung eingestellt waren. Da es sich um ein nichtlineares Punktgitter handelt, muss noch für jeden Punkt i der halbe Abstand zum rechten Nachbarn q'_{zri} und zum linken Nachbarn q'_{zli} bestimmt werden. Nun lässt sich über einfaches Summieren

$$I_r(q'_{zi}) = \sum_{q_{zi} \in [q'_{zli}, q'_{zri}]} \frac{I_q(q_{zi})}{q'_{zli} + q'_{zri}} \quad (3.8)$$

die Rockingkurve I_r berechnen. Die transformierten Daten sind als Punkteplot im zweidimensionalen (q_z, q_x) -Raum und als Rockingkurve in Abbildung 3.9 dargestellt.

Wenn die Routine mit Daten gefüttert wird, bei der jede Intensität $I(2\vartheta, px)$ eine Konstante ist, lässt sich eine Rockingkurve des Untergrundes erstellen. Damit lässt sich der Kontrast nochmal verstärken. In Abbildung 3.9 ist zu erkennen, das der Untergrund für große q_z überbewertet wird. Dies hat seinen Grund in der Art des Untergrundes: Es handelt sich hierbei nicht um ein

elektronisches oder thermisches Rauschen des Detektors, sondern um diffus gestreutes Licht der Quelle. Die Intensität des Streulichtes ist jedoch für kleine Winkel größer, daher ergibt sich eine Reduzierung des Untergrundes für kleine Winkel beziehungsweise große q_z .

Aus der Rockingkurve lassen sich durch Gaußfits die wichtigen Parameter jedes Peaks, wie Position, Breite und bei Bedarf auch Intensität, ermitteln. Mit der Auswerterroutine lassen sich Rockingkurven nicht nur entlang q_z erstellen, sondern auch entlang q_x .

3.4. Einwinkeldetektion

Bei den zeitaufgelösten Messungen liegt das Hauptinteresse bei der Änderung der Peakposition des Holmiumreflexes. Eine Methode die Peakposition zu bestimmen, ist die Durchführung eines ϑ - 2ϑ -Scans um den Holmiumreflex. Dieser Scan ist jedoch sehr zeitintensiv, da für jeden Delay eine Rockingkurve gemessen werden muss. Der Großteil der Messungen misst dabei auf den Flanken der Peaks. Es werden dort deutlich weniger Photonen detektiert, was lange Belichtungszeiten für eine gute Statistik erfordert. Um die Belichtungszeit kurz zu halten misst man üblicherweise bei einem Winkel ϑ etwas versetzt vom Maximum des Reflexes. Man setzt sich auf die Flanken des Reflexes und detektiert die Änderung der diffraktierten Intensität. Dies setzt allerdings voraus, dass bekannt ist, dass der Reflex seine Reflexivität oder Peakposition ändert.

Wir haben diese Messmethode erweitert. Dazu wird bei einem Winkel ϑ gemessen, welcher dem Braggwinkel des Holmiumfilms also dem Maximum des Peaks entspricht. Durch den Flächendetektor und die konvergente Röntgenstrahlung werden jedoch auch Röntgenphotonen detektiert, die unter einem anderen Winkel auf die Probe fallen. Dies ist schematisch in Abbildung 3.10 dargestellt.

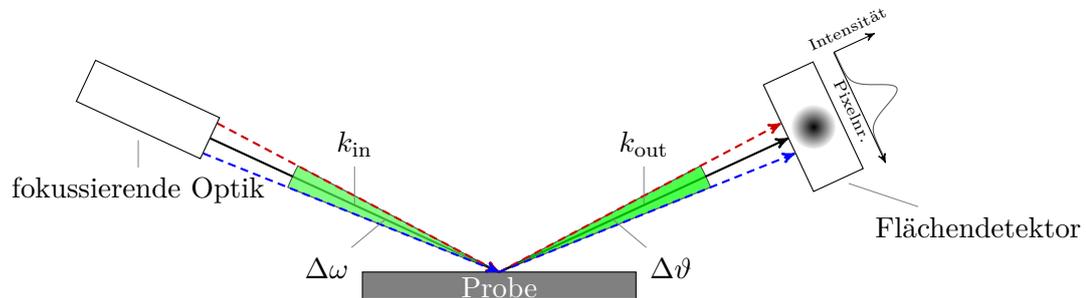


Abbildung 3.10: Prinzip der Einwinkeldetektion mit konvergenter Röntgenstrahlung: Neben der Röntgenstrahlung, die die Braggbedingung erfüllen (**schwarze Pfeile**), gibt es aufgrund der fokussierenden Optik weitere Röntgenstrahlen in einem Winkelbereich von $\Delta\omega$, die unter einem leicht anderem Winkel auf die Probe fallen (*rote und blaue gestrichelte Pfeile*). Diese können aufgrund des Flächendetektors gleichzeitig detektiert werden.

Die Daten werden anschließend als RSM ausgewertet. Es ergibt sich ein Schnitt im (q_z, q_x) -Raum, welcher dann auf die q_z - beziehungsweise q_x -Achse projiziert wird. Damit lassen sich sowohl Aussagen über die Peakposition, als auch die Peakbreite von Holmium in beiden Dimensionen machen. Mit dieser Methode ergibt sich eine deutlich kürzere Messzeit, da zum einen nur ein Winkel gemessen werden muss und zum anderen immer an der Position des Braggpeaks gemessen wird, was einen sehr hohen Photonenfluss und eine gute Statistik bedeutet.

Somit konnte die Messzeit von über 6 Stunden für eine zeitaufgelöste Messung auf 3 Stunden bei deutlich mehr Delaypunkten verringert werden: 120 im Vergleich zu 21 Punkten bei einer deutlich besseren Statistik.

3.5. Datenauswertung

Um eine ausreichende Datenqualität zu erhalten, werden die Delayschleifen einer Einwinkelmessung circa 25 mal wiederholt. Anschließend werden die Rohdaten von je 5 Schleifen, einem „Bunch“, gemittelt und die Peakposition und -breiten ausgewertet. Um alle Daten auszuwerten, werden bei den letzten Schleife auch mehr als 5 Schleifen in einem Bunch gemittelt. Anschließend werden alle Daten der Peaks, Delays, sowie dem Indetifizierer (Datum und Uhrzeit), Bunchnummer und die Anzahl der Messungen, die ein Bunch enthält, in einer Matrix gespeichert. Zur weiteren Auswertung wird nun ein Delaygitter vorgegeben, in dem die Delays unterschiedlicher Messungen mit unterschiedliche absoluten Zeitnullpunkten eingeordnet werden. Dazu werden nun die Peakposition und -breiten, sowie Delays der einzelnen Bunche einer Fluenz, einer Temperatur und einem Delaygitterabschnitt gewichtet gemittelt, sowie die Standartabweichung unter Berücksichtigung Anzahl der Messungen berechnet. Mit dieser Methode ist es möglich Messungen unterschiedlicher Tage zu einer Kurve zusammenzufassen. Außerdem ergibt sich die Möglichkeit durch Wählen eines größeren Delaygitters den Fehler auf Kosten einer schlechteren Zeitauflösung zu minimieren.

4. Charakterisierung der Probe

Die Probe „MBE2057“ hergestellt in der Arbeitsgruppe von Prof. Hartmut Zabel im Institut für Festkörperphysik der Ruhr-Universität Bochum besteht aus mehreren Metallschichten, welche mittels Molekularstrahlepitaxie nach Rhyne et al. [1986] auf ein Saphirsubstrat aufgewachsen wurden. Die Struktur der Probe ist in Abbildung 4.1 dargestellt. Sie besteht aus einer 50 nm Niobübergangsschicht, die erforderlich ist, um die Gitterfehlانpassung zwischen den Seltenen Erden Holmium und Yttrium zum Saphirsubstrat zu überbrücken, einer 70 nm Yttriumschicht, die als Keim für das epitaktische Wachsen der Holmiumschicht dient und deren magnetische Eigenschaften stabilisiert Koehler [1965], daran anschließend die 80 nm Holmiumschicht, welche von zwei Deckschichten aus 3 nm Yttrium und 2,5 nm Niob besteht. Diese verhindern zum einen das Oxidieren der Holmiumschicht und zum anderen ermöglicht der symmetrische Aufbau Tunnelprozesse durch die Holmiumschicht, welche für Rastertunnelspektroskopie Messungen von Interesse sind und symmetrische Randbedingungen ober- und unterhalb erfordern. Die Größe der Probe ist ungefähr $10 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ bei einer Dicke von $0,5 \text{ mm}$.



Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der für die Experimente genutzten Probe „MBE2057“.

4.1. Holmium

Holmium Ho ist ein silbrig weißes Metall der Seltenen Erden. Es steht im Periodensystem an der 67. Position und gehört damit zu den Lanthanoiden. Sie alle weisen eine enge chemische Verwandtschaft auf. Sie zeichnen sich durch das sukzessive Auffüllen der $4f$ -Niveaus aus, diese sind lokalisiert und nehmen nicht an der chemischen Bindung teil.

In den Festkörpern, die aus Metallen der Lanthanoide bestehen, gibt es keine direkte Wechselwirkung zwischen den $4f$ -Schalen, da diese von den delokalisierten $5d$ - und $6s$ -Schalen abgeschirmt werden. Die $4f$ -Schale trägt dabei ein lokales magnetisches Moment, das durch die Orientierung der Spins der $4f$ -Elektronen verursacht wird. Es wird dabei durch die Hundsche Regel beschrieben. Die Momente der $4f$ -Elektronen können über die Leitungsbandelektronen indirekt koppeln. Diese Kopplung wird durch die RKKY-Wechselwirkung beschrieben. Sie weisen daher ferromagnetische, antiferromagnetische und ferrimagnetische Phasen auf. Diese rufen aufgrund ihrer starren Kopplung auch Gitterverzerrungen hervor [Jensen und Mackintosh, 1991]. Die Elektronenkonfiguration des Grundzustandes von Holmium ist $[\text{Xe}]4f^{10}(5d6s)^3$ mit dem Termsymbol $^4I_{15/2}$. Es hat zwei Phasenübergänge: einen erster Ordnung bei 20 K von ferromagnetischer zu antiferromagnetischer Phase und einen zweiter Ordnung bei $131,6 \text{ K}$ von antiferromagnetischer zu paramagnetischer Phase. Erst bei über 1735 K beginnt Holmium zu schmelzen und bei 2993 K liegt der Siedepunkt [Jensen und Mackintosh [1991], Winter [2014a]].

4.1.1. Magnetische Eigenschaften

Holmium ist über der Néel-Temperatur T_N von $131,6 \text{ K}$ paramagnetisch [Koehler, 1965]. Unterhalb dieser Temperatur ist Holmium antiferromagnetisch. Die langreichweitige und oszillierende indirekte Austauschwechselwirkung der $4f$ -Elektronen über die Leitungsbandelektronen ($5d6s$) sorgt dafür, dass sich die für Holmium und Dysprosium typische Spinspirale (helikoidale Ordnung) ausbildet. Dieser Austausch lässt sich mit Hilfe der RKKY-Wechselwirkung beschreiben (Abschnitt 2.2.4). Dabei verursachen die magnetoelastischen Wechselwirkungen Dehnungen um bis zu 1% [Jensen und Mackintosh, 1991].

In Abbildung 4.2 ist das hexagonale Gitter mit den magnetischen Momenten der $4f$ -Elektronen

eingezeichnet. In dieser Darstellung ist die Rotation der Spins um die c -Achse von Gitterebene zu Gitterebene schematisch dargestellt. Die Kopplung innerhalb der einzelnen Ebenen ist ferromagnetisch. Unterhalb der Curie-Temperatur $T_C = 20$ K wird Holmium ferromagnetisch [Koehler, 1965], dabei richten sich die Spins nicht wie zum Beispiel in Dysprosium in eine Richtung aus, sondern es ergibt sich eine Komponente parallel zur c -Achse um welche sich das Magnetische Moment von Ebene zu Ebene um 30° dreht und damit eine makroskopische Magnetisierung aufbaut. Das magnetische Moment entlang der c -Achse ist dabei mit $1,7\mu_B$ deutlich kleiner als das Moment in der Ebene mit $9,7\mu_B$ [Koehler, 1965]. In der Abbildung 4.2 auf der rechten Seite ist dies aus Gründen der Anschaulichkeit übertrieben dargestellt.

Die Winkeländerung des Spins von Ebene zu Ebene ist in Abbildung 4.3 a) oben dargestellt. Diese ändert sich von circa 51° am Néel-Punkt T_N zu 30° am Curiepunkt T_C . In der ferromagnetischen Phase bleibt die Néel-Temperatur dabei konstant. Die Änderung der Periode lässt sich mittels Neutronenbeugung [Koehler, 1965], resonanter Röntgenbeugung [Gibbs et al. [1991], Weschke et al. [2004]] oder auch zeitaufgelöst mittels resonanter Röntgenbeugung [Trabant, 2014] vermessen.

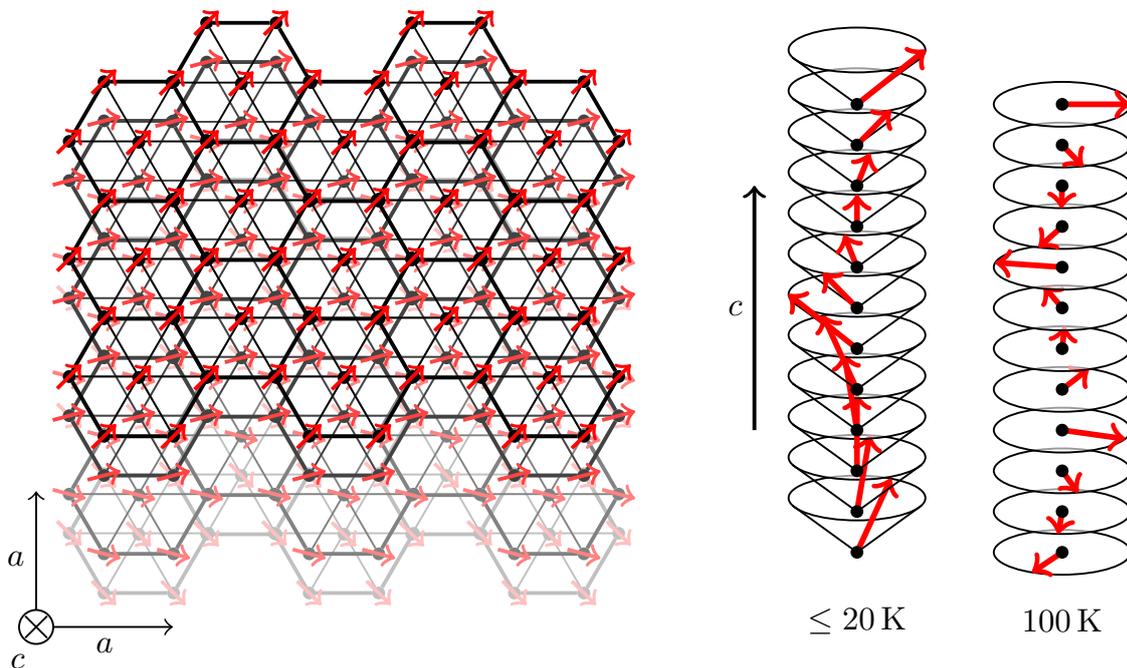


Abbildung 4.2: Auf der linken Seite sind drei übereinanderliegende Ebenen des hexagonalen Holmiumgitters gezeigt. Der rote Pfeil symbolisiert dabei das magnetische Moment der 4f-Elektronen. Innerhalb einer Ebene sind alle Momente parallel ausgerichtet, somit ist jede Ebene für sich ferromagnetisch. Zwischen den Ebenen ändert sich der Winkel um 50° bis 30° je nach Temperatur. Auf der rechten Seite ist eine Periode in der antiferromagnetischen Phase bei 30 K (links) und in der ferromagnetischen Phase (rechts) dargestellt.

4.1.2. Magnetostriktion und Eigenschaften des Gitters

Mit den magnetischen Eigenschaften ändern sich auch weitere Eigenschaften der Probe. Beispielsweise die Gitterkonstante entlang der c - und a -Achse aufgrund der, wie schon erwähnt, starken Kopplung zwischen magnetischen und strukturellen Eigenschaften. Diese wurde von Darnell [1963] mittels Röntgenbeugung gemessen und in der Abbildung 4.3 b,c) als blaue Punkte dargestellt. Während die Änderung der c -Achse im paramagnetischen Bereich über ≈ 100 K bei $2,5\%$ liegt, fällt sie im antiferromagnetischen und ferromagnetischen Bereich mit -5% deutlich größer aus, obwohl sie dem Zusammenziehen des Kristallsystem durch die niedrigere Temperatur entgegenwirkt. Der extrapolierte Fit gibt die zu erwartende c -Achse ohne Magnetostriktion. Die Änderung der a -Achse

fällt in der paramagnetischen Phase etwas geringer aus als die der c -Achse. Beide Größen wurden in der paramagnetische Phase mit einer linearen Funktion und in der ferromagnetischen und antiferromagnetische Phase mit einem Polynom gefittet. Aus dem Fit lässt sich der lineare Ausdehnungskoeffizient $\alpha = \frac{1}{c} \frac{dc}{dT}$, sowie das Volumen $\frac{\sqrt{3}}{2} ca^2$ des hexagonalen Einheitszelle bestimmen. Beides ist in Abbildung 4.3 d) gezeigt. Das Volumen bleibt in der antiferromagnetischen Phase nahezu konstant, da die Ausdehnung der c -Achse durch die schrumpfende a -Achsen kompensiert wird.

Im Vergleich zu den Gitterabständen ist die Änderung der Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit deutlich größer. Diese wurden mittels eines adiabatischen Kalorimeters von Gerstein et al. [1957] und Jayasuriya et al. [1985] gemessen. Beide Größen sind in der Abbildung 4.4 a,b) dargestellt. Die Wärmekapazität weist dabei einen Sprung an beiden Phasenübergängen auf, während die Wärmeleitfähigkeit ein lokales Minimum kurz vor beziehungsweise am zweiten Phasenübergang und ein lokales Maximum am Ersten zeigt. In der ferromagnetischen Phase sinkt die Wärmeleitfähigkeit rapide mit sinkender Temperatur [Nellis und Legvold, 1969]. Holmium ist entlang der c -Achse ein besserer Wärmeleiter, wobei die Wärmeleitfähigkeit κ mit steigender Temperatur T zunimmt. Der phononische Anteil der Wärmekapazität lässt sich dabei mit Gleichung (2.12) und der Debye-Temperatur aus Tabelle 4.1 berechnen und ist mit der elektronischen Wärmekapazität $\gamma_e T$ [Lide, 2001] ebenfalls in Abbildung 4.4 a) dargestellt.

Eine weitere wichtige temperaturabhängige Eigenschaft sind die elastischen Konstanten von Holmium. Der Koeffizient C_{33} ist von Salama et al. [1973] gemessen worden. Er verläuft linear fallend in der antiferromagnetischen Phase und zeigt eine Sprung von circa 4% am Phasenübergang. Anschließend steigt die elastische Konstante auf ihr Maximum bei 170 K um danach langsam wieder zu sinken. Aus der elastischen Konstante lässt sich mittels Gleichung (2.18) die temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit für Holmium entlang der c -Achse für longitudinale Schallwellen berechnen. Mit der elastischen Konstante ist sie (rechte Achse) in der Abbildung 4.4 c) gezeigt. Der elektrische Widerstand von Holmium ist ebenfalls von Nellis und Legvold [1969] gemessen worden und ist in der Abbildung 4.4 d) gezeigt. Aus dem elektrischen Widerstand ρ lässt sich die mittlere freie Weglänge der Ladungsträger

$$l(T) = v_F \tau = \frac{\hbar}{m_e} \sqrt{3\pi^2 n_e} \frac{m_e}{n_e e^2 \rho(T)} \quad (4.1)$$

berechnen. Für die Elektronendichte wurde dabei die dreifache Dichte von Holmium verwendet, da Holmium drei Valenzelektronen besitzt. Die mittlere freie Weglänge ist eine gute Abschätzung für die Reichweite der indirekten magnetische Kopplung der $4f$ -Elektronen (Abschnitt 2.2.4) und ist antiproportional zum Widerstand. Abgebildet ist sie ebenfalls in der Abbildung 4.4 d) (rechte Achse). Entlang der c -Achse hat die mittlere freie Weglänge unterhalb des Phasenüberganges ein lokales Minimum.

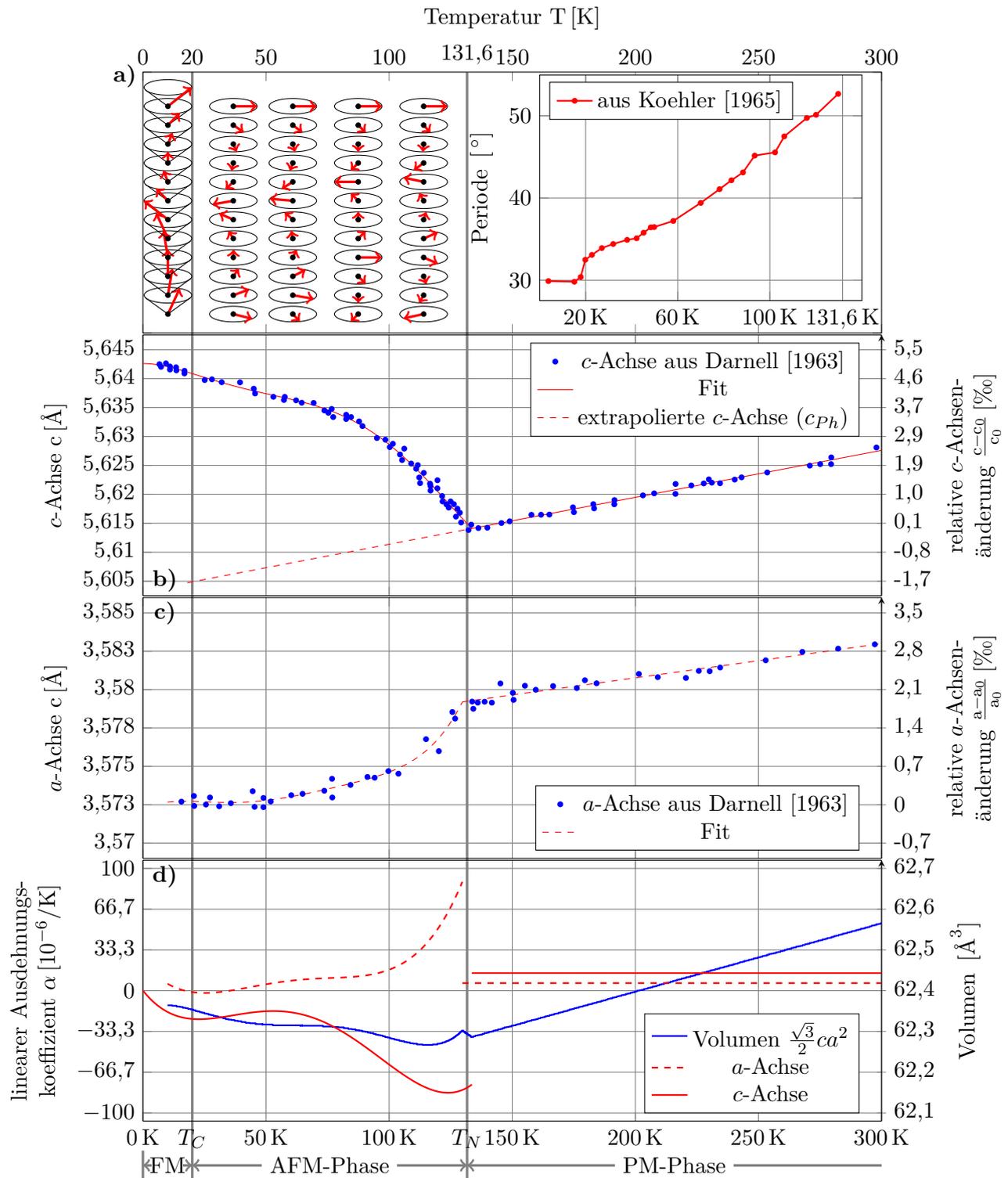


Abbildung 4.3: Im oberen Teil der Grafik (a) ist die Periode sowie die Ausrichtung der magnetischen Momente der einzelnen Gitterebenen eingezeichnet: In der ferromagnetischen Phase entwickeln die Spins eine Komponente entlang der c -Achse. Damit weist Holmium eine makroskopische ferromagnetische Magnetisierung auf. In der antiferromagnetischen Phase ändert sich der Drehwinkel von 30° über 50° . In b) und c) ist die Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten entlang der c -Achse und der a -Achse dargestellt. In der antiferromagnetischen Phase ist aufgrund der magnetischen Wechselwirkung zwischen den Ebenen eine Verringerung der Gitterkonstante der c -Achse bei Anstieg der Temperatur zu beobachten. Die dabei auftretende Änderung des Volumens und des linearen Ausdehnungskoeffizienten sind im unteren Teil der Abbildung (d) gezeigt.

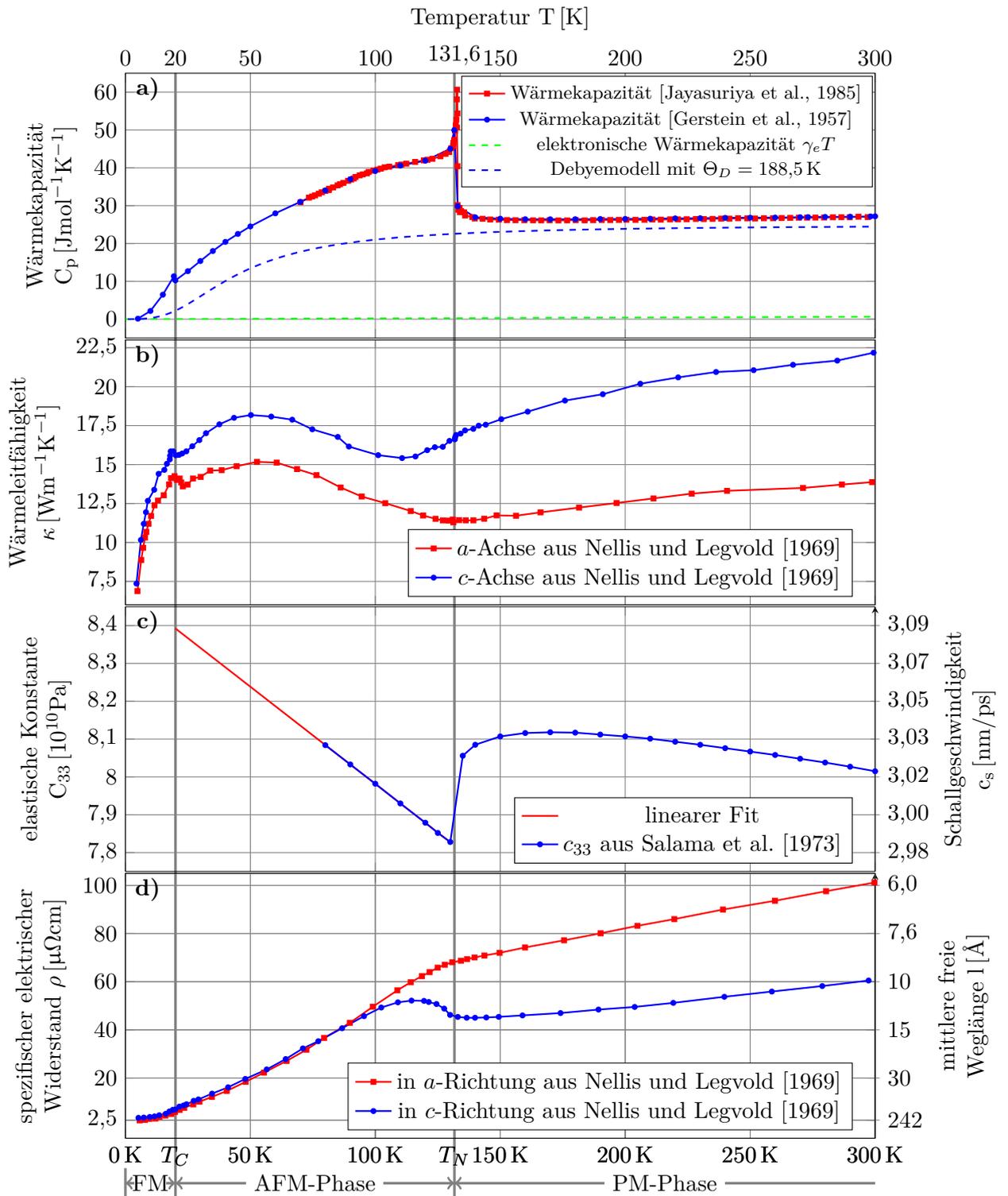
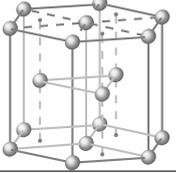
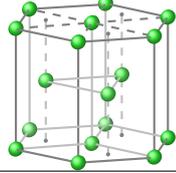
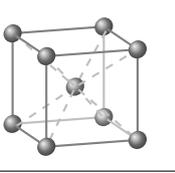


Abbildung 4.4: Im oberen Teil der Abbildung sind die Wärmekapazität (a), die ein Maximum am Phasenübergang von antiferromagnetischer zu paramagnetischer Phase hat, und die Wärmeleitfähigkeit (b), welche innerhalb der antiferromagnetischen Phase annähernd konstant ist, aufgetragen. In c) ist die elastische Konstante mit linearer Regression und Extrapolation in der AFM-Phase abgebildet. In der antiferromagnetischen Phase verringert sich die elastische Konstante und die daraus berechnete longitudinale Schallgeschwindigkeit in c Richtung bis sie am Phasenübergang einen Sprung aufweist. In d) ist der elektrische Widerstand und dazu antiproportionale mittlere freie Weglänge in Abhängigkeit der Temperatur gezeigt. Am zweiten Phasenübergang wird die elektrische Leitfähigkeit anisotrop.

4.2. Vergleich zwischen Holmium, Yttrium, Niob und Saphir

Neben Holmium sind für die Herstellung der Probe noch weitere Materialien verwendet worden, dazu zählen Yttrium, Niob und Saphir. In der folgenden Tabelle 4.1 sind ihre wichtigsten physikalischen Eigenschaften aufgelistet.

Tabelle 4.1: Eigenschaften von Yttrium, Holmium, Niob und Saphir im Vergleich

	Yttrium Y	Holmium Ho	Niob Nb	Saphir Al ₂ O ₃
Elektronenkonf. Termsymbol	[Kr]4d ¹ 5s ² ² D _{3/2}	[Xe]4f ¹⁰ (5d6s) ³ ⁴ I _{15/2}	[Kr]4d ⁴ 5s ¹ ⁶ D _{1/2}	
Kristallstruktur				
Orientierung <i>c</i> -Achse [Å]	hcp (0001) 5,7306 ¹	hcp (0001) 5,616 ²	bcc (110) 3,3004 ¹	hcp (11 $\bar{2}$ 0) 12,9910 ³
<i>a</i> -Achse [Å]	3,6474 ¹	3,577 ²	3,3004 ¹	4,7590 ³
<i>b</i> -Achse [Å]			3,3004 ¹	
Molare Masse [u]	88,90585(2) ⁴	164,93032(2) ⁴	92,90638(2) ⁴	101,9612 ³
Dichte $\rho(T = 300 \text{ K})$ [g/cm ³]	4,472 ⁵	8,795 ⁶	8,589 ⁷	3,97-3,99 ³
Linearer Ausdehnungs- koeffizient $\alpha(T = 300 \text{ K})$ [10 ⁻⁶ /K]	10,6 ⁵	11,2 ⁸	7,3 ⁹	<i>c</i> 5,0, ⊥ <i>c</i> 6.6 ³
Schallgeschwindigkeit <i>c_s</i> [nm/ps]	3,3 ⁵	2,76 ⁸	3,48 ⁹	11,14 ³
Wärmekapazität <i>c_p</i> (<i>T</i> = 300 K) [Jmol ⁻¹ K ⁻¹]	26,54 ¹⁰	27,19 ¹¹	24,60 ¹²	79,13 ³
elektronische Wärmeka- pazität γ_e [Jmol ⁻¹ K ⁻²]		2,1 ¹⁴		
Wärmeleitfähigkeit $\kappa(T = 300 \text{ K})$ [Wm ⁻¹ K ⁻¹]	17,2 ¹³	<i>c</i> 22,2 ¹³ , ⊥ <i>c</i> 13,8 ¹³	53,7 ¹³	<i>c</i> 32,5 ³ , ⊥ <i>c</i> 30,3 ³ , <i>a</i> 46,1 ³
Debeytemperatur θ_D [K]	213,7 ¹⁰	188,5 ¹⁴		

¹aus Wyckoff [1982]

²aus Nicklow et al. [1971]

³aus Dobrovinskaya et al. [2009]

⁴aus Wieser und Berglund [2009]

⁵aus Winter [2015b]

⁶aus Jensen und Mackintosh [1991]

⁷aus Harding [1966]

⁸aus Winter [2014a]

⁹aus Winter [2015a]

¹⁰aus Jennings et al. [1960]

¹¹aus Gerstein et al. [1957]

¹²aus Lide [2001]

¹³aus Ho et al. [1972]

¹⁴aus Palmer [1970]

4.3. Akustische Impedanz und Reflexion

Eine wichtige Eigenschaft für die Probe ist die akustische Impedanz. Mittels ihrer ist es möglich die transmittierten und reflektierten Anteile einer Schallwelle, die in unseren Experimenten generiert wird, an einem Materialübergang zu berechnen. Sie wurde für alle Materialien der untersuchten Probe aus den Werten der Tabelle 4.1 mittels Gleichung (2.23) berechnet. Die Werte sind in Tabelle 4.2 zu finden.

Tabelle 4.2: Akustische Impedanzen der relevanten Materialien

	Yttrium	Holmium	Niob	Saphir
Z [$\text{kgms}^{-1}\text{cm}^{-3}$]	14,8	24,3	29,9	44,3

Wie bereits erwähnt, lässt sich mit den akustischen Impedanzen sowie den Gleichungen (2.26), (2.27), (2.24) und (2.27) ausrechnen, welcher Anteil der Amplitude oder der Energie der Schallwelle am Übergang zwischen den Schichten reflektiert, beziehungsweise transmittiert wird. Im den oberen beiden Zeilen der Tabelle 4.3 ist die jeweils die Transmission und Reflexion für jede Grenzfläche angegeben. Im dritten und sechsten Zeile der Tabelle 4.3 wurde die Transmission in die Probe berechnet. In unseren Experimenten wird die Schallwelle bedingt durch die Eindringtiefe des Lasers jedoch in den oberen drei Schichten erzeugt. Die Berechnung gibt dennoch eine Vorstellung davon, welcher Teil der Amplitude der Schallwelle in der einzelnen Schicht verbleibt. Ein negatives Vorzeichen bedeutet, dass es zu einem Phasenversatz von 180° kommt und somit die Amplitude ihr Vorzeichen umkehrt.

Tabelle 4.3: Reflektivität und Transmission der Amplitude und Energie der Schallwelle

	Nb–Y	Y–Ho	Ho–Y	Y–Nb	Nb–Saphir
Reflexion r (Amplitude)	–34 %	24 %	–24 %	34 %	20 %
Transmission t (Amplitude)	66 %	124 %	75 %	134 %	112 %
Transmission in die Probe (Amplitude)	66 %	82 %	62 %	83 %	100 %
Reflexion R (Energie)	11 %	6 %	6 %	11 %	4 %
Transmission T (Energie)	89 %	94 %	94 %	88 %	96 %
Transmission in die Probe (Energie)	89 %	83 %	79 %	70 %	67 %

4.4. Reflektivität

Zur Charakterisierung der Probe wurde die Reflektivität unter dem Einfallswinkel des Probelasers bei der Einwinkeldetektion (Abschnitt 3.4) gemessen. Hierbei ergab sich eine Reflektivität von $\rho = 38\%$ bei Raumtemperatur. Zusätzlich wurde die Änderung der Reflektivität ρ/ρ_0 mit dem Kryostaten für unterschiedliche Temperaturen gemessen. Dabei ergab sich keine signifikante Änderung der Reflektivität durch die Temperatur, die nicht durch Schwankungen der Laserintensität zu erklären wäre.

4.4.1. Zeitaufgelöste Reflektivitätsmessungen

Neben der Reflektivität ρ wurde die Reflektivitätsänderung $\Delta\rho$ der Probe mittels eines weiteren Pump-Probe-Aufbaus zeitaufgelöst vermessen. Dazu wird ein 5 kHz Lasersystem verwendet, welches

100 fs lange Pulse mit einer zentralen Wellenlänge von ungefähr 795 nm erzeugt. Während der Anregepuls über eine Verschiebestrecke zur Probe geführt wird, wird der Abfragepuls auf ein Saphirplättchen fokussiert um durch Selbstphasenmodulation einen Weißlichtabfragepuls (400 nm bis 800 nm) zu generieren. Die Reflexion dieses Pulses an der Probe wird mit einem Spektrometer detektiert. Um Schwankungen zu minimieren, wird mit einer Lichtzerhacker (engl. chopper) abwechselnd das ungepumpte Referenzsignal zusätzlich zu dem gepumpten Signal aufgenommen. Der Aufbau ist in Abbildung 4.5 schematisch dargestellt.

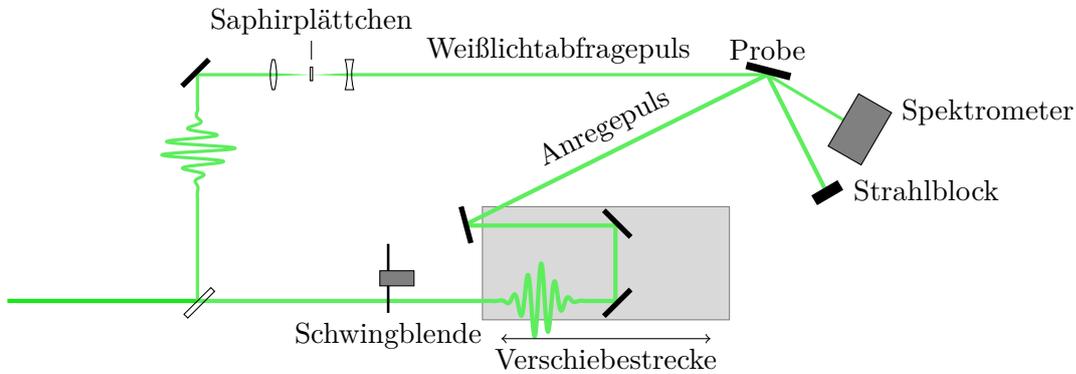


Abbildung 4.5: Pump-Probe-Aufbau: Während in dem oberen Zweig mit einem Saphirplättchen durch Selbstphasenmodulation ein Weißlichtabfragepuls generiert wird, durchläuft der Anregepuls eine Verzögerung über die Verschiebestrecke, bevor sich beide auf der Probe treffen. Der reflektierte Abfragepuls wird anschließend mit einem Spektrometer detektiert.

Die mit diesem Aufbau gemessene Reflektivitätsänderung der Probe ist in Abbildung 4.6 für unterschiedliche Wellenlängen innerhalb der ersten 90 ps gezeigt.

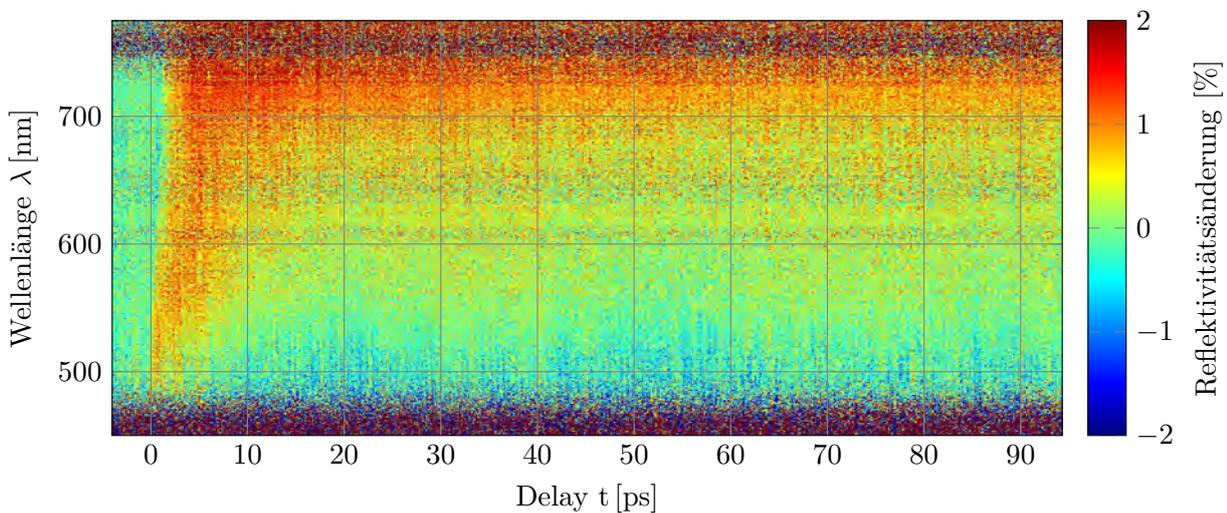


Abbildung 4.6: Die Reflektivitätsänderung der Holmiumprobe nach einer Anregung mit $5 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ bei einer Temperatur von 300 K zeigt eine Anregung, welche eine Änderung in der Reflektivität von bis zu 2% zeigt. Die Verschiebung des Zeitnullpunktes mit größeren Wellenlängen liegt an einem Chirp des Laserpulses.

Schnitte der Daten, welche um 500 nm, 555 nm, 615 nm, 670 nm und 730 nm mit einer Breite von ± 20 nm erzeugt wurden, sind in der Abbildung 4.7 a gezeigt. Der Aufbau ist ebenfalls mit einem Kryostaten ausgerüstet um Reflektivitätsänderungen bei unterschiedlichen Temperaturen durchzuführen. Eine solche Temperaturstudie ist in Abbildung 4.7 b gezeigt.

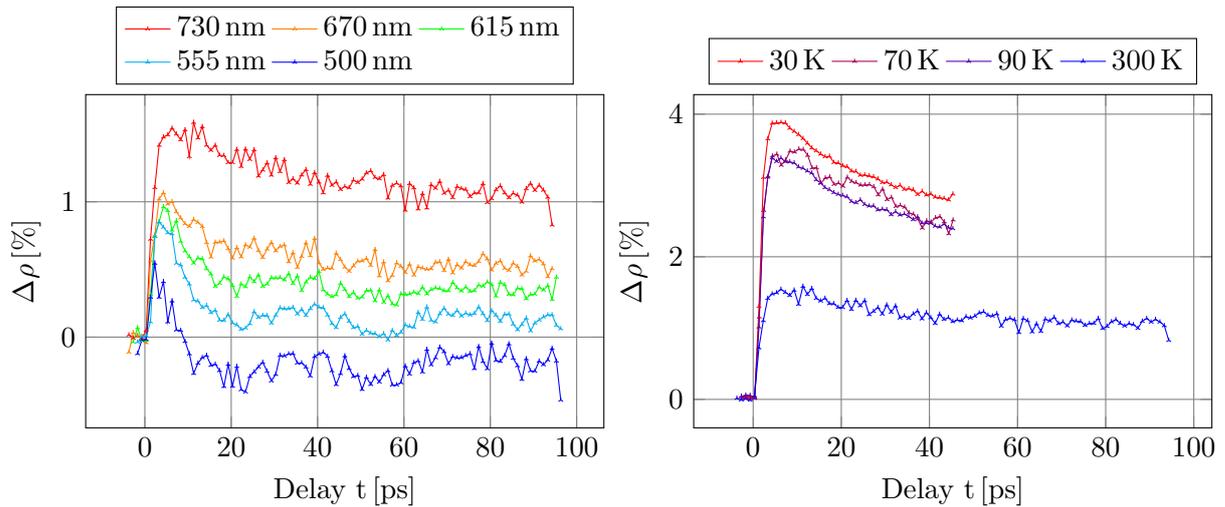


Abbildung 4.7: a) Reflektivitätsänderung für unterschiedliche Abfragewellenlängen bei einer Fluenz entnommen als 40 nm breite Schnitte in Abbildung 4.6. b) Die Schnitte um 730 ± 20 nm bei unterschiedlichen Temperaturen zeigen mehr als eine Verdoppelung der Reflektivitätsänderung für die AFM-Phase.

Die gemessenen Reflektivitätsänderung unterscheiden sich deutlich zwischen PM-Phase und AFM-Phase, dabei ist die Reflektivitätsänderung in der AFM-Phase mehr als doppelt groß. Mit dem Anstieg der Temperatur ist in der AFM-Phase eine Reduzierung der Reflektivitätsänderung zu beobachten. Die Reflektivitätsänderung zeigt eine Anstiegszeit von $\tau = 386 \pm 20$ fs bei 730 nm sowie $\tau = 463 \pm 7$ fs bei 670 nm und die Probe ist selbst nach 1 ns immer noch angeregt.

4.5. Optische Eindringtiefe

Die optische Eindringtiefe in die Probe haben wir mit einem spektroskopischen Ellipsometer ermittelt. Sie beträgt rund 19 nm bei 800 nm, der zentralen Wellenlänge des Lasers, die zur Anregung verwendet wurde. Die bestimmte optische Eindringtiefe ist in Abbildung 4.8 als Funktion der Photonenenergie aufgetragen. Weitere Informationen zum Messverfahren und zur Messung befinden sich in Anhang A.1.

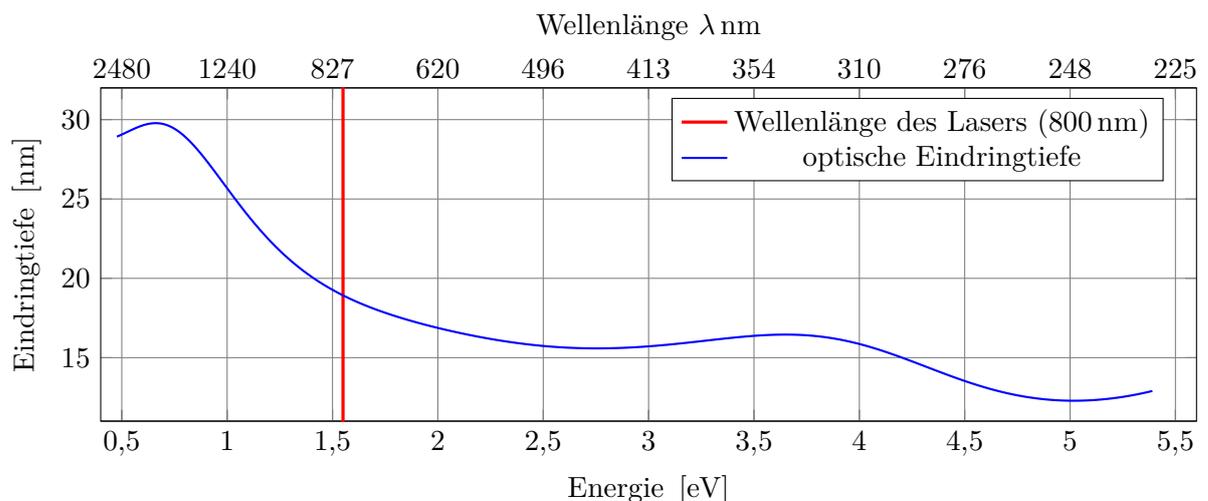


Abbildung 4.8: Eindringtiefe von Licht in die Probe bei unterschiedlichen Energien beziehungsweise Wellenlängen. Bei 800 nm beträgt die Eindringtiefe 18,9 nm

4.6. Statische Charakterisierung mittels Röntgenbeugung

Zur Charakterisierung der Probe wurden temperaturabhängige statische Messungen durchgeführt. Dazu wird als Röntgenquelle die Mikrofokus-cw-Röntgenröhre verwendet. Es werden bei unterschiedlichen Temperaturen Winkelscans durchgeführt. Diese werden dann, wie in Abschnitt 3.3.2 beschrieben, ausgewertet.

Es wird bei Raumtemperatur (300 K) gestartet und in 25 K Schritten in der paramagnetischen Phase bis 175 K herunter gekühlt. Für die nächsten Messpunkte bis 15 K wird die Schrittweite auf 5 K reduziert. Danach wird die Probe mit den selben Schritten wieder von 15 K auf 300 K geheizt. Bei jeder Temperatur wird 300 s gewartet, bevor der Rockingscan durchgeführt wird, um die Temperatur zu stabilisieren. Die Rockingscans starten bei $13,8^\circ$ mit einer Schrittweite von $0,025^\circ$ bis $17,5^\circ$ und decken damit den Yttrium und Holmiumpeak ab. Anschließend wird mit einer Schrittweite von $0,1^\circ$ der Bereich zwischen den Peaks gemessen um dann ab $18,5^\circ$ mit einer Schrittweite von $0,01^\circ$ den Saphir und Niobpeak bis $19,9^\circ$ zu erfassen. Wir haben uns bewusst für eine höhere Punktdichte auf dem Saphirpeak entschieden, da dieser deutlich schärfer als der Yttrium oder Holmiumpeak ist. Die Belichtungszeit beträgt 4 s. Eine exemplarische RSM einer solchen Messung ist in Abbildung 3.9 gezeigt. Einige ausgewählte Rockingkurven sind in Abbildung 4.9 gezeigt.

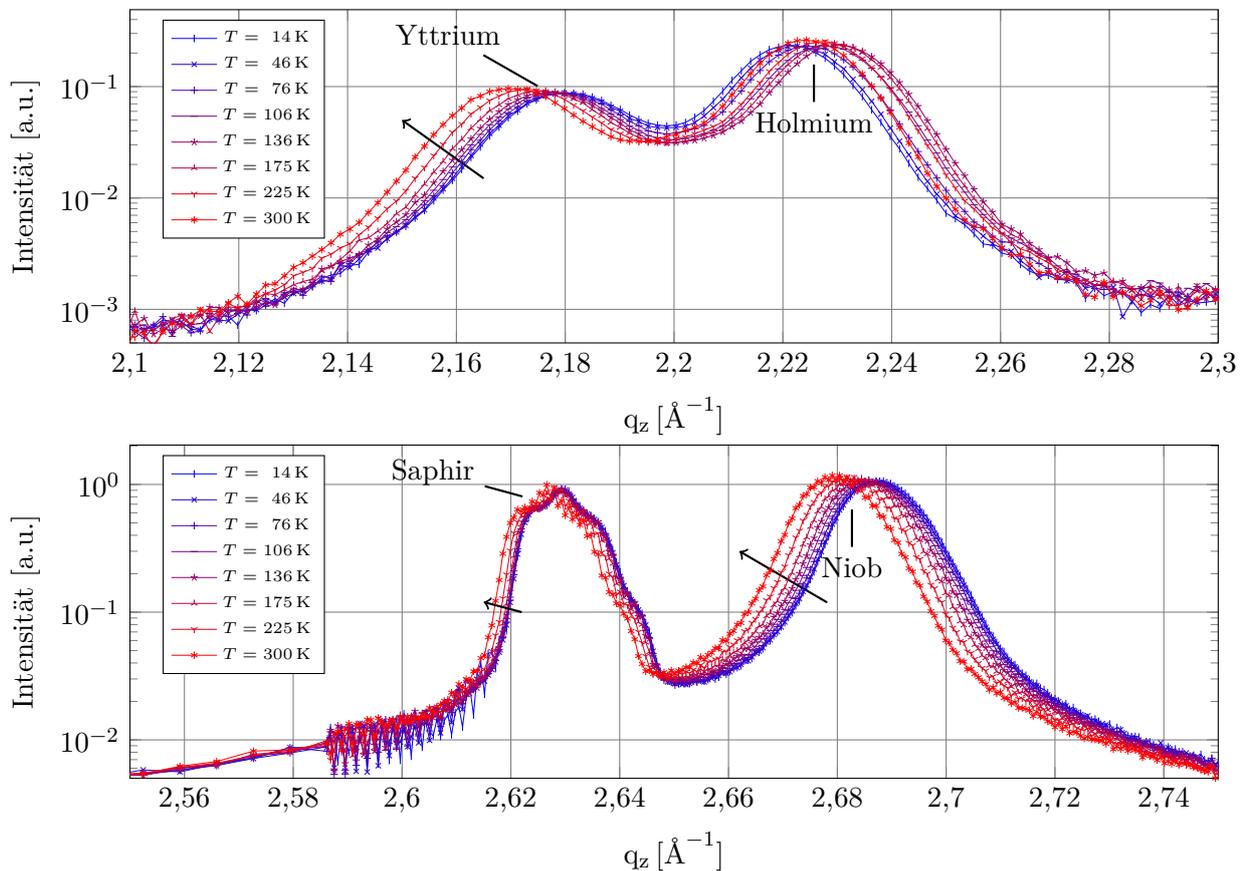


Abbildung 4.9: Temperaturabhängige Peakverschiebung von Yttrium, Holmium, Saphir und Niob: Während sich die Peaks von Yttrium, Saphir und Niob beim Heizen zu kleineren q_z verschieben, zeigt Holmium ein komplexeres Verhalten: von 14 K bis 135 K schiebt der Reflex zu größeren q_z , im Bereich von 135 K bis 300 K wiederum zu kleineren q_z .

Die Peaks von Yttrium, Saphir, Niob und von Holmium bei einer Temperatur über dem Phasenübergang von AFM-Phase zu PM-Phase verschieben sich mit steigender Temperatur zu kleineren q_z -Werten. Dies bedeutet, dass sich die Gitterkonstante $d = \frac{2\pi n}{q_z}$, $n = 2$ vergrößert, dies ist

auch zu erwarten, da durch die steigende Temperatur der expansive Druck durch inkohärente Phonon-Phonon Wechselwirkung zunimmt. Unterhalb des Phasenübergangs zeigt Holmium jedoch eine Verschiebung zu größeren q_z -Werten mit steigender Temperatur. Dies bedeutet, dass sich die Gitterkonstante verringert.

4.6.1. Gitterkonstantenänderung

Die Gitterkonstante des jeweiligen Materials kann mit Hilfe der Bragggleichung 2.39 aus der Peakposition berechnet werden. Dabei muss berücksichtigt werden, dass von Yttrium, Holmium und Niob jeweils die zweite Beugungsordnung, während von Saphir die erste Ordnung gemessen wurde. Zudem liegt Saphir in der $(11\bar{2}0)$ Orientierung in der Probe vor. Somit ergibt sich bei der Messung die halbe Gitterkonstante $a/2$. Beide Effekte wurden in den Plots 4.10 und 4.11 berücksichtigt. Zur Auswertung der Peakverschiebung werden alle Kurven um den gleichen Winkelbetrag so verschoben, dass die interpolierten Literaturwerte von Lucht et al. [2003] mit unseren Messwerten für den Saphirpeak übereinstimmen. Die ausgewerteten Daten sind in den Abbildungen 4.10 und 4.11 dargestellt. Bei hohen Temperaturen zeigen alle Materialien ein nahezu lineares Anwachsen der Gitterkonstante mit der Temperatur. Beim Abkühlen nähern sich die Gitterkonstanten von Saphir und Niob einem Grenzwert an. Bei Yttrium ist dies ebenfalls zu beobachten, jedoch erst bei sehr niedrigen Temperaturen. Ohne magnetostriktive Wechselwirkung wäre zu erwarten, dass Holmium ein ähnliches Verhalten zeigen würde. Jedoch kommt zu dem phononischen Anteil der zusätzliche magnetische Anteil, der zu einem Anwachsen der Gitterkonstante mit sinkender Temperatur in der AFM-Phase führt.

Beim Vergleich der Literaturdaten von Darnell [1963], welche bereits im Abschnitt 4.1 gezeigt wurden, fällt vor allem auf, dass die Gitterkonstante der Probe um circa $0,013 \text{ \AA}$ zu kleineren Werten verschoben sind. Eine mögliche Erklärung ergibt sich dadurch, dass die Daten von Darnell [1963] an einem Holmiumplättchen mit einer Dicke von $0,1 \text{ mm}$ gemessen wurden, während unsere Daten von einer wesentlich dünneren Holmiumschicht stammen. Daher können Spannungen im Gitter, die durch das Aufwachsen auf die Yttriumschicht und die zusätzliche Yttriumdeckschicht verursacht werden, zu einer Verschiebung der Gitterkonstanten führen. Da die a -Achse von Yttrium größer als die von Holmium ist, führt dies bei einer auf Yttrium aufgewachsenen Holmiumschicht zu einer vergrößerten a -Achse. Unter der Annahme, dass sich das Volumen der Einheitszelle nur wenig ändert, da die Packungszahl von Holmium $0,23$ [Winter, 2014b] ist, muss die c -Achse das Anwachsen der a -Achse kompensieren. Somit ist die c -Achse unserer Holmiumschicht kleiner, als die des Holmiumplättchens aus Darnell [1963]. Es ist möglich, dass sich aufgrund dieser Dehnung auch der Phasenübergang zur ferromagnetischen Phase (FM-Phase) zu tieferen Temperaturen verschiebt [Dumesnil et al., 1995].

4.6.2. Peakbreitenänderung

Neben der Peakposition wird auch die Peakbreite ausgewertet. Für die Peakbreite erwartet man zunächst keine Veränderung mit der Temperatur. Die thermischen Schwingung der Atome werden durch den Debye-Waller-Faktors beschrieben, der lediglich die Intensität des Peaks verändert. In den Daten in Abbildung 4.11 zeigt die Saphirpeakbreite kein temperaturabhängiges Verhalten. Die Schwankungen sind vor allem auf den schmalen Saphirpeak zurückzuführen, der durch das Vorhandensein von Kupfer $K_{\alpha 1}$ und $K_{\alpha 2}$ eine nicht gaußförmige Verbreiterung erfährt (siehe hierzu Abbildung 3.9), die schlecht zu fiten ist. Da es sich bei Yttrium, Niob und Holmium um dünne Filme handelt, können Unterschiede zwischen den Ausdehnungskoeffizienten zu temperaturabhängigen Spannungen zwischen den Schichten führen und somit zu einer Peakverbreiterung beitragen.

Bei der Peakbreite von Holmium ist ein weiterer Effekt zu beobachten: Die Peakbreite steigt in der ferro- und antiferromagnetischen Phase mit der Temperatur. Dies wird mit den magnetischen Eigenschaften von Holmium verknüpft sein: Die zusätzliche magnetische Kopplung zwischen den Atomen führt zur einer Stabilisierung des Gesamtsystems und führt somit zu einer Verringerung

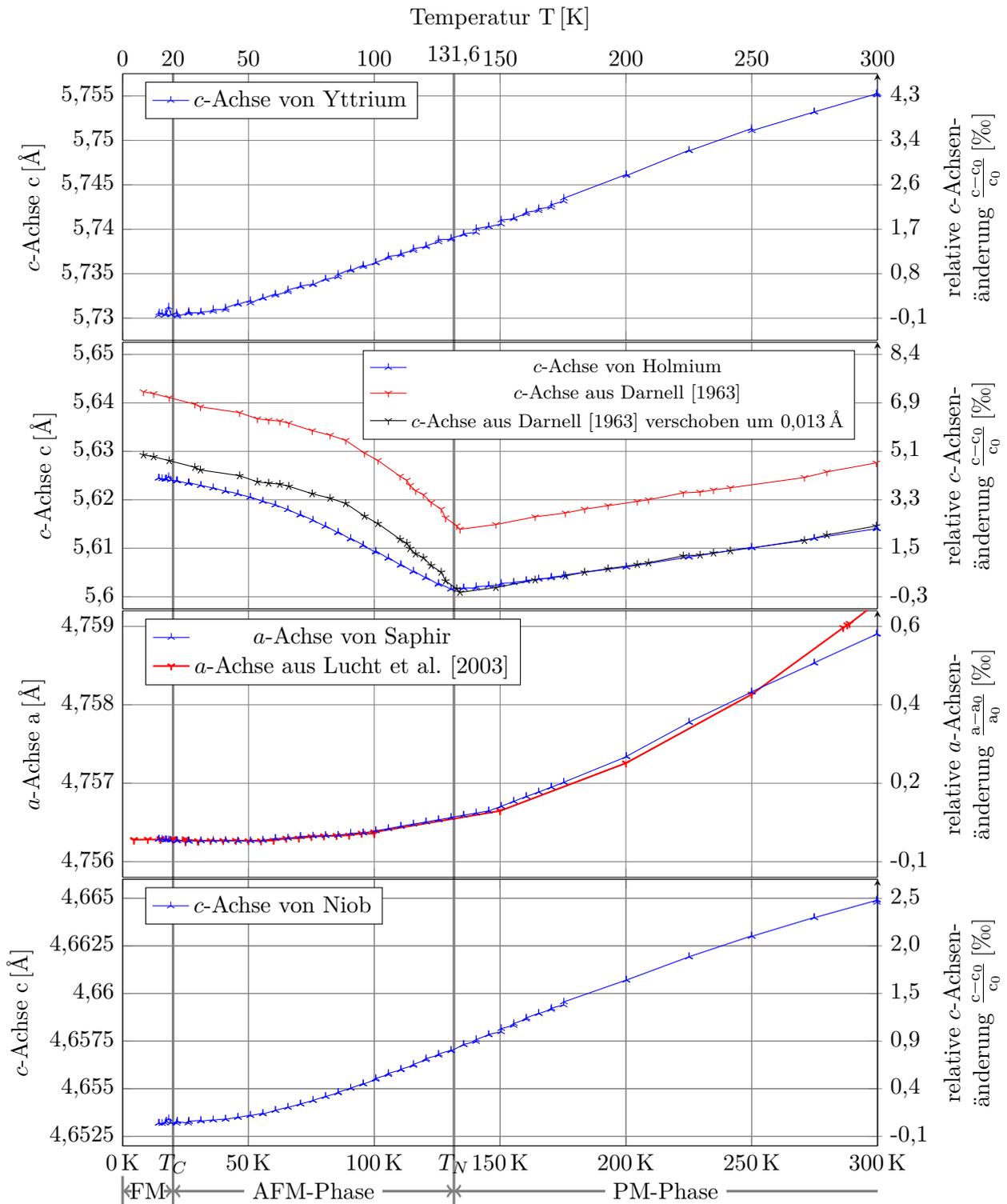


Abbildung 4.10: Statisch bestimmte Gitterkonstanten für unterschiedliche Temperaturen von Holmium, Yttrium, Niob und Saphir im Vergleich mit den Literaturwerten. Die eingezeichneten magnetischen Ordnungen beziehen sich dabei nur auf Holmium.

der Peakbreite. Nahe am Phasenübergang sorgt die Ausbildung von AFM- und PM-Domänen dann für Verbreiterung.

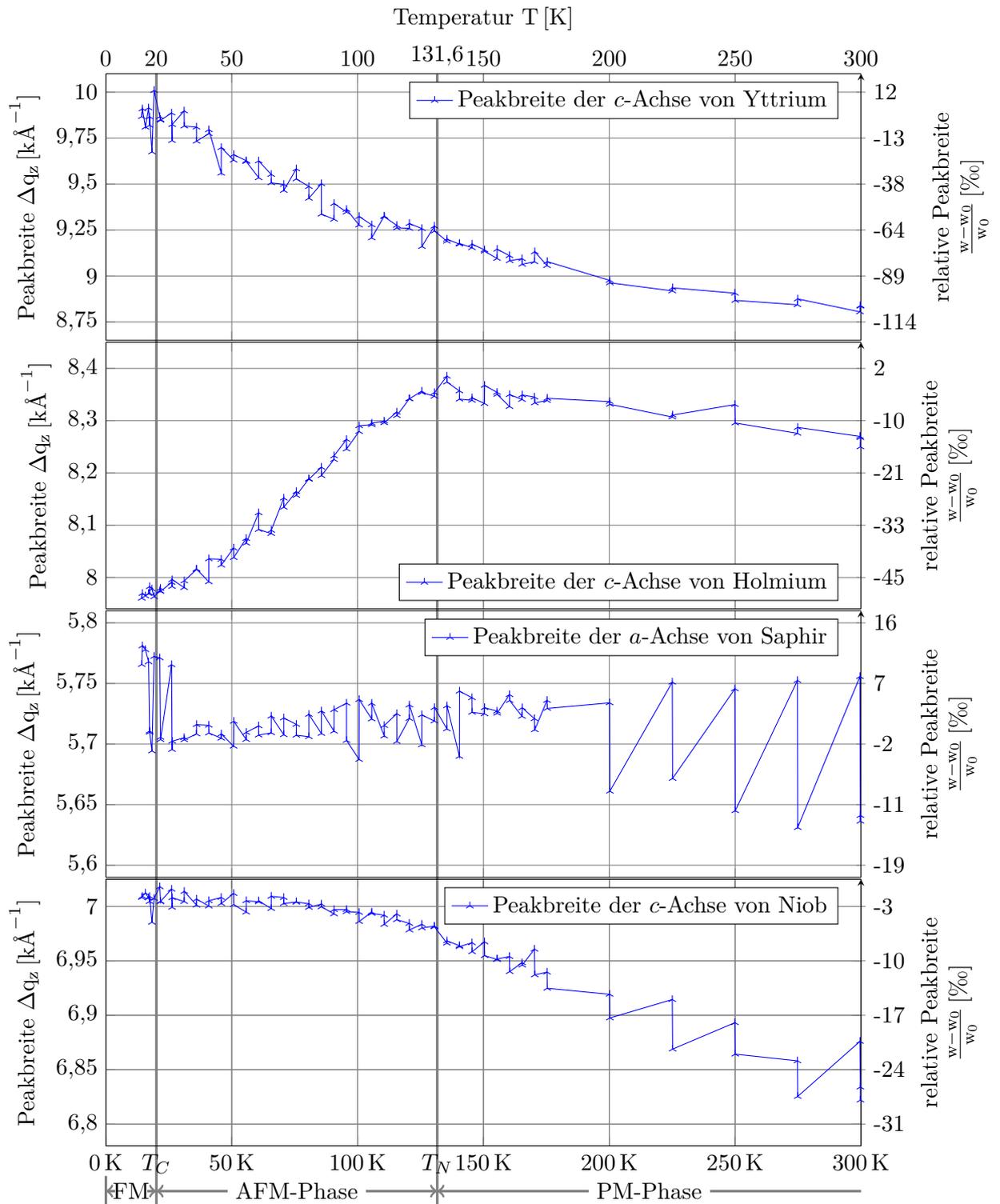


Abbildung 4.11: Temperaturabhängigkeit der Peakbreite von Holmium, Yttrium, Niob und Saphir, die durch die Auswertung der statischen Charakterisierungsmessungen bestimmt wurden. Die eingezeichneten magnetischen Ordnungen beziehen sich dabei nur auf Holmium.

4.7. Röntgenreflektometrie

Um die Schichtdicken der Probe zu ermitteln wurde eine Röntgenreflektometriemessung an der XPP-KMC3-Beamline am Bessy II des Helmholtz Zentrums Berlin durchgeführt. Die Grundidee dieser Methode ist es, Röntgenstrahlung unter einem streifenden Winkel auf die Probe zu schicken, wo sie an den einzelnen Grenzflächen der Schichten reflektiert werden. Das Messsignal ist in Abbildung 4.12 gezeigt. Die Daten wurden mit dem Refl1D Softwarepaket [Kienzle et al., 2014] gefittet, welche die Reflexion an den einzelnen Schichten mit dem Parratt Algorithmus simuliert [Parratt, 1954]. Hierbei war es jedoch nicht möglich, eine Simulation zu erstellen, die alle 5 Schichten mit ihren Grenzflächen berücksichtigt und dabei die Daten korrekt wiedergibt. Den großen Beitrag zu den Kiessig-Oszillationen erzeugt die ... ,der an der Oberfläche und an der Metall-Saphir Grenzfläche reflektiert wird, da hier die größten Brechungsindexunterschiede auftreten. Daher wurde nur eine Metallschicht mit der Elektronendichte von Holmium auf dem Saphirsubstrat für größere reziproke Gittervektoren q_z simuliert. Die Oszillation entspricht einer Schichtdicke von 108 nm, was somit der effektiven Probendicke entspricht. Sie ist damit deutlich dünner als der Probenhersteller angibt (siehe Abbildung 4.1). Das gleiche Ergebnis ergibt sich auch aus der Analyse der kohärenten Dynamik der Probe im Abschnitt 6.5.

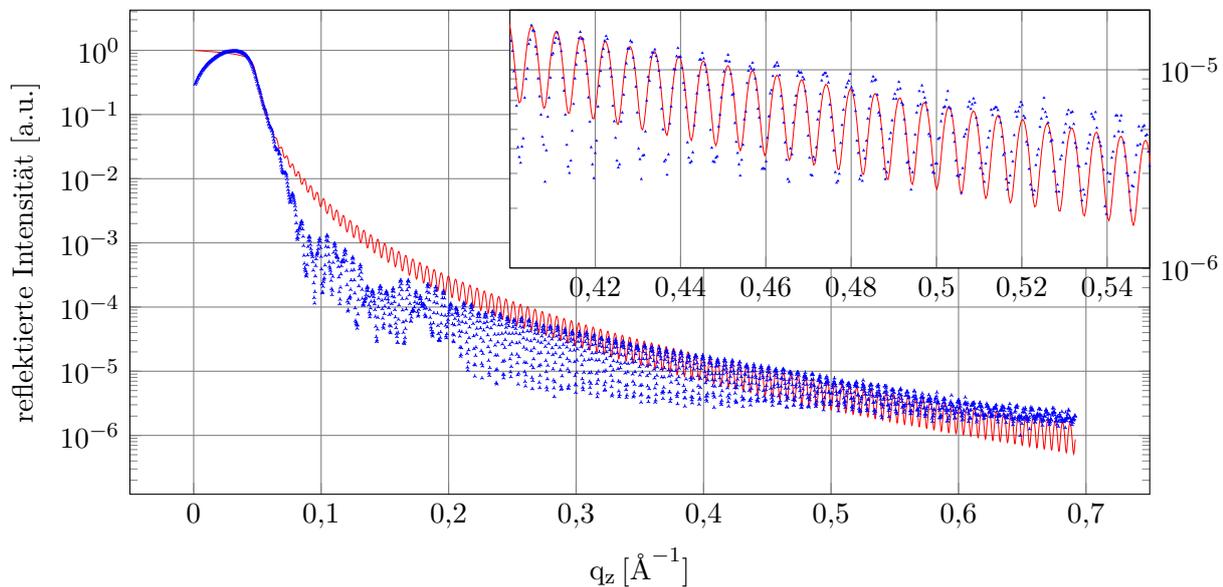


Abbildung 4.12: Gebeugtes Signal einer Röntgenreflektometriemessung (blaue Punkte) an der Probe aufgenommen an der XPP-KMC3-Beamline am Bessy II verglichen mit Röntgensimulation einer 108 nm dicken Metallschicht (rot). Der Zoom zeigt die Schichtdickenoszillationen im Vergleich zur Simulation.

5. Zeitaufgelöste Messergebnisse

Im Rahmen der Arbeit wurde die Dynamik der Holmium- und der unteren Yttriumschicht untersucht, wobei der Schwerpunkt auf die Holmiumschicht gelegt wurde. In diesem und dem folgenden Kapitel wird die Dynamik anhand der Peakposition und -breite des Röntgenreflexes analysiert und diskutiert.

5.1. Messungen mit voller RSM

Die ersten Messungen wurden erstellt, indem für jeden Delayschritt eine komplette Rockingkurve, wie bei der statischen Messung in Abschnitt 4.6 aufgenommen wurde. Um die Messdauer zu verkürzen, wurde jedoch nur der Bereich um Holmium und Yttrium gemessen. Anschließend wurden die Messungen ausgewertet, wie in Abschnitt 3.3.2 beschrieben. In den Abbildungen 5.1, 5.2 und 5.3 sind die Änderungen der Peakpositionen mit der Zeit für unterschiedliche Temperaturen und Fluenzen eingezeichnet. Wir haben uns dabei für eine Temperatur über dem Phasenübergang (140 K), eine knapp unterhalb (110 K) und eine deutlich unter dem Phasenübergang (90 K) entschieden. Zudem wurden bei jeder Temperatur mehrere Fluenzen aufgenommen. Hierbei wurde jeweils bei maximaler, halber und viertel Fluenz gemessen. Die maximale Fluenz wurde zu 5 mJ/cm^2 gewählt, um ein Zerstören der Probe zu vermeiden.

Da die Qualität der Daten uns nicht zufriedenstellte, haben wir die Idee entwickelt, nur bei einem Winkel zu messen: Eine Einwinkelmessung ermöglicht uns ebenfalls die gleichzeitige Auflösung des Holmium und Yttriumpeaks, da die Divergenz der Quelle und Optik genügend groß ist. Genaueres zu dieser Messmethode befindet sich in Abschnitt 3.4. Die Messungen mit vollständiger RSM zeigen, dass die Dynamik mit einer Einwinkelmessung erfassbar ist, da in unserem Fall keine weitere Dynamik senkrecht zur unserer Messung bei einem Winkel im reziproken Raum stattfindet (siehe zur Veranschaulichung Abbildung 3.8).

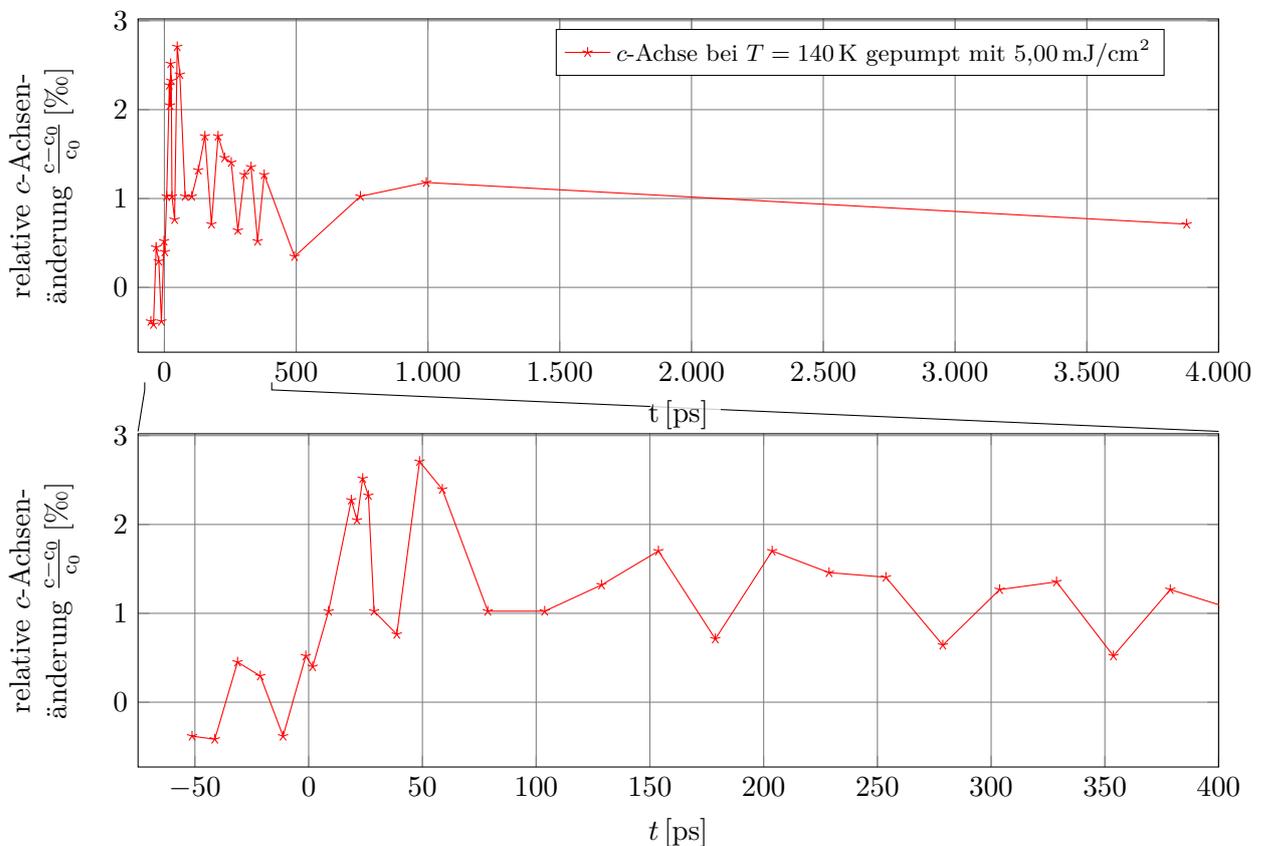


Abbildung 5.1: Dynamik von Holmium in der PM-Phase bei 140 K

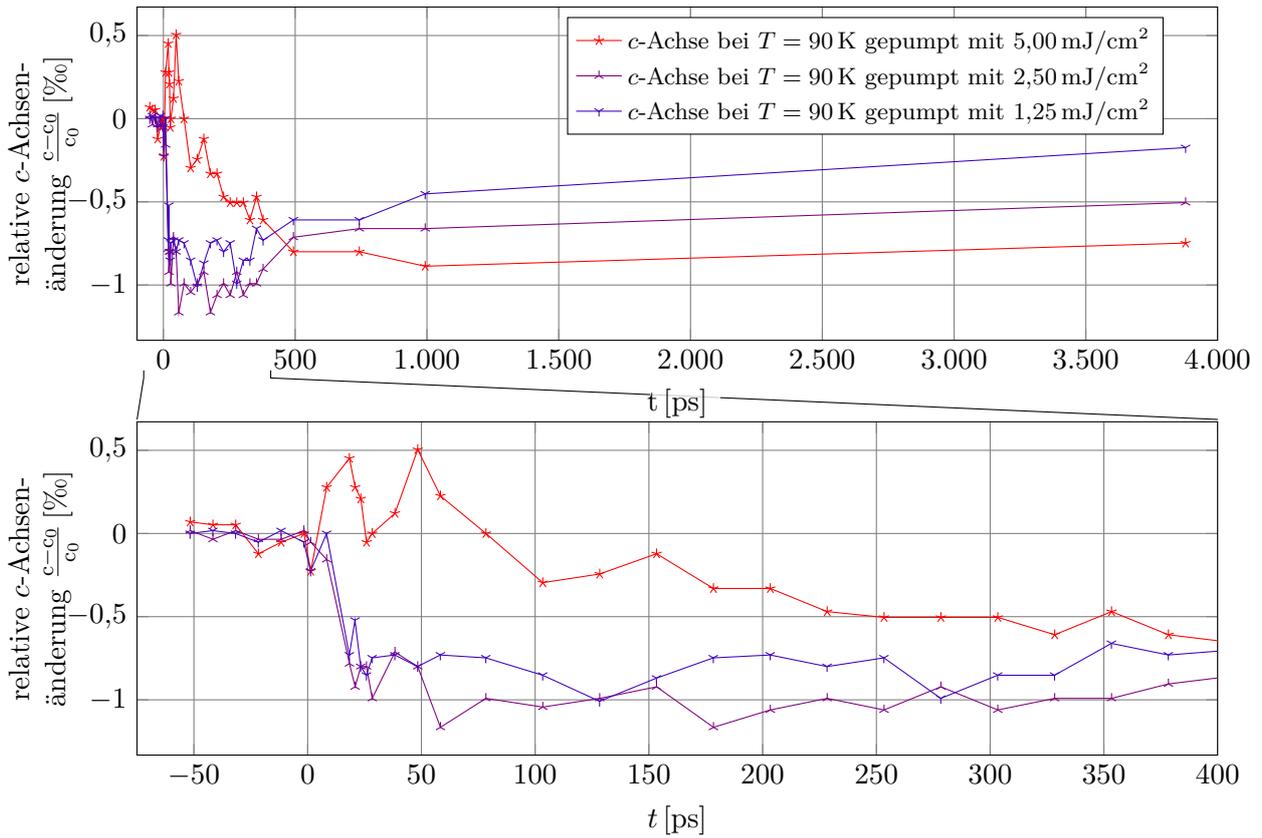


Abbildung 5.2: Dynamik von Holmium knapp unterhalb des AFM-Phasenübergangs bei 90 K

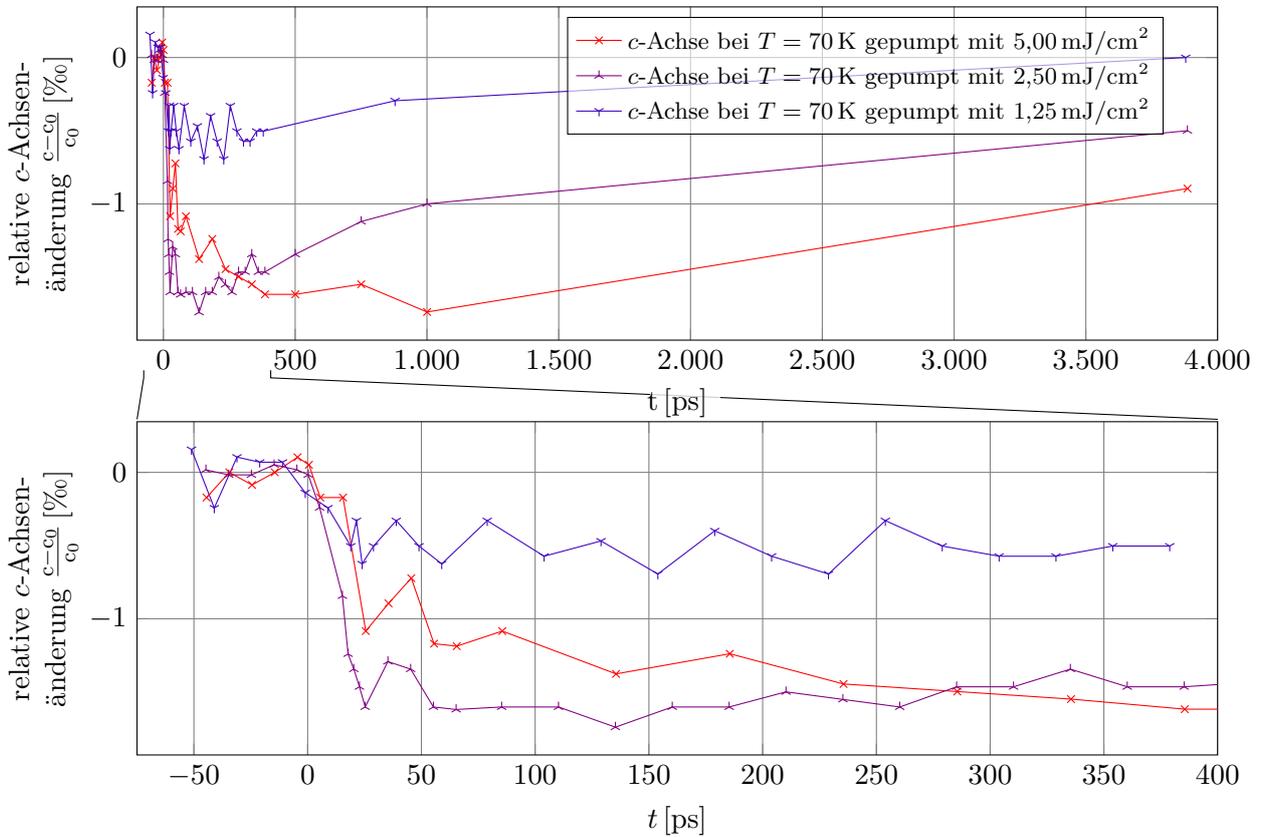


Abbildung 5.3: Dynamik von Holmium in der AFM-Phase bei 70 K

5.2. Messungen bei festem Winkel an Holmium

Die Messungen bei einem festem Winkel liefern eine wesentlich bessere Datenqualität, da länger pro Delayschritt integriert wird. Desweiteren sind im Gegensatz zu Messdaten mit voller RSM sind mehr Delaypunkte möglich. Auch in dem Bereich zwischen 1000 ps und 4000 ps sind nun Messungen möglich, da räumlicher Drift des Pumplaserspots mit der Position der Verschiebestrecke mittels einer Strahlstabilisierung korrigiert wird. Näheres befindet sich im Abschnitt 3.2.

Die Daten werden hinsichtlich ihrer Peakposition und Peakbreite ausgewertet. Während die Peakposition Information über den durchschnittlichen Abstand zwischen den (0001)-Ebenen enthält, also der Gitterkonstante der c -Achse, gibt die Peakbreite wieder, wie inhomogen die Gitterkonstante in der Schicht ist.

In den folgenden Abbildungen 5.4 bis 5.12 sind die selben Daten einmal nach der Temperatur und einmal nach der Fluenz sortiert dargestellt. Die Messdaten wurden dafür in ein neues größeres Delaygitter einsortiert um Schwankungen zu reduzieren.

5.2.1. Peakpositionsänderung für unterschiedliche Fluenzen bei einer Temperatur

In den Abbildungen 5.4 bis 5.12 ist eine erste und maximale Expansion nach 15 ps bei Datensätzen oberhalb des Phasenübergangs und eine erste Kontraktion nach 24 ps bei Datensätzen unterhalb des Phasenübergangs zu erkennen. Befinden wir uns am Phasenübergang, findet eine maximale Expansion nach 15 ps statt, aber eine deutlich spätere minimale Kontraktion zwischen 500 ps bis 1500 ps wird zusätzlich beobachtet. Bei den Datensätzen bei 110 K und 90 K ist es von der Fluenz abhängig, ob zuerst eine Expansion oder Kompression zu erkennen ist: Bei großen Fluenzen ist zuerst eine Expansion zu erkennen, bei kleinen eine Kompression. Über die ersten 200 ps lassen sich kohärente Phononen als Schichtdickenoszillation, ähnlich einer Atmungsmode, beobachten.

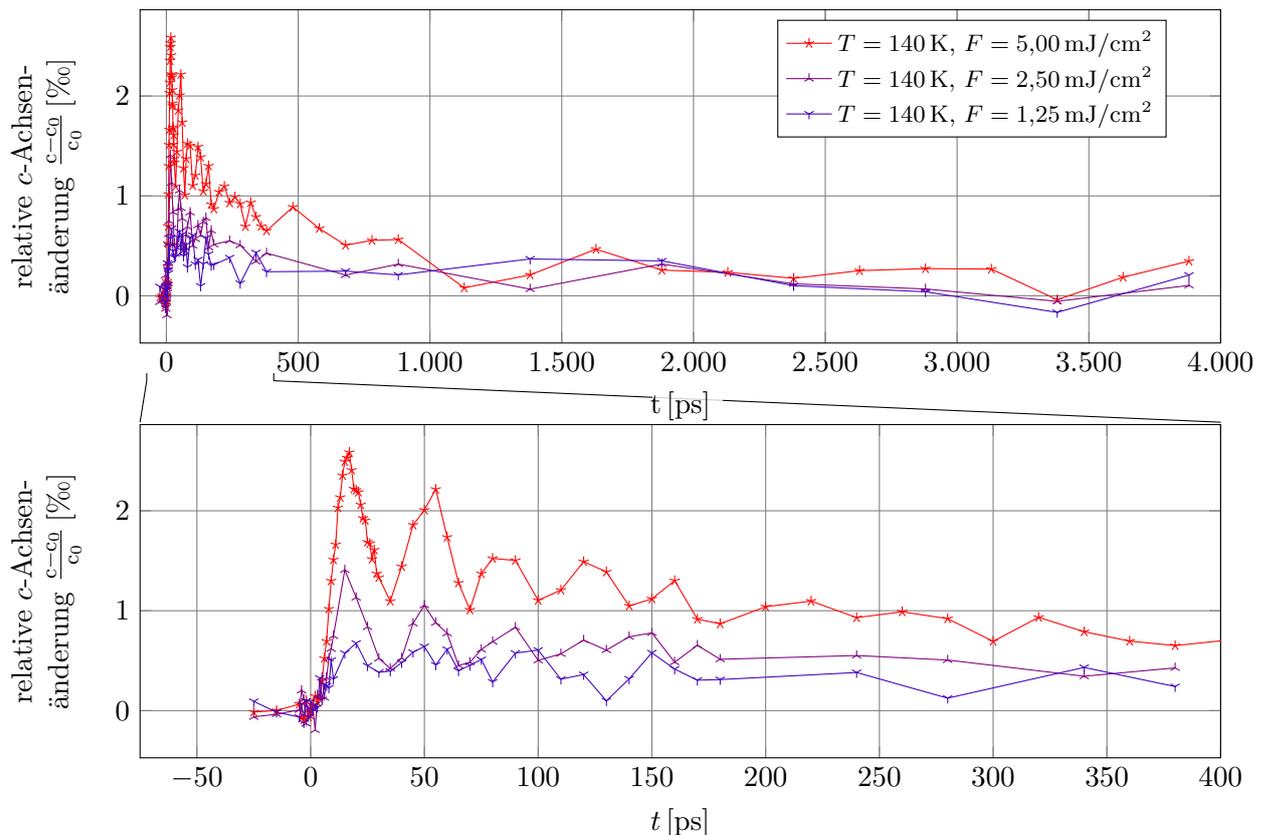


Abbildung 5.4: Dynamik der c -Achse (Peakposition) von Holmium über dem Phasenübergang bei 140 K

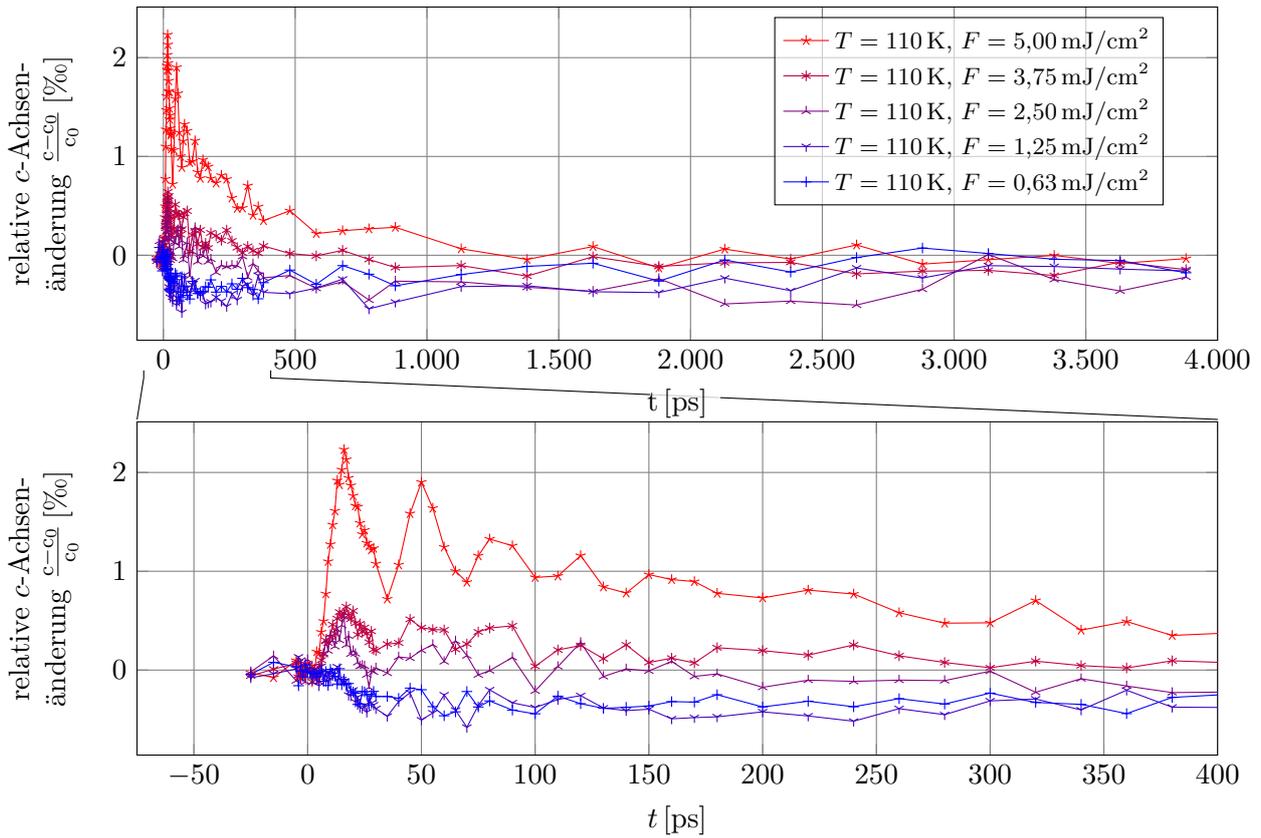


Abbildung 5.5: Dynamik der c -Achse von Holmium am Phasenübergang bei 110 K

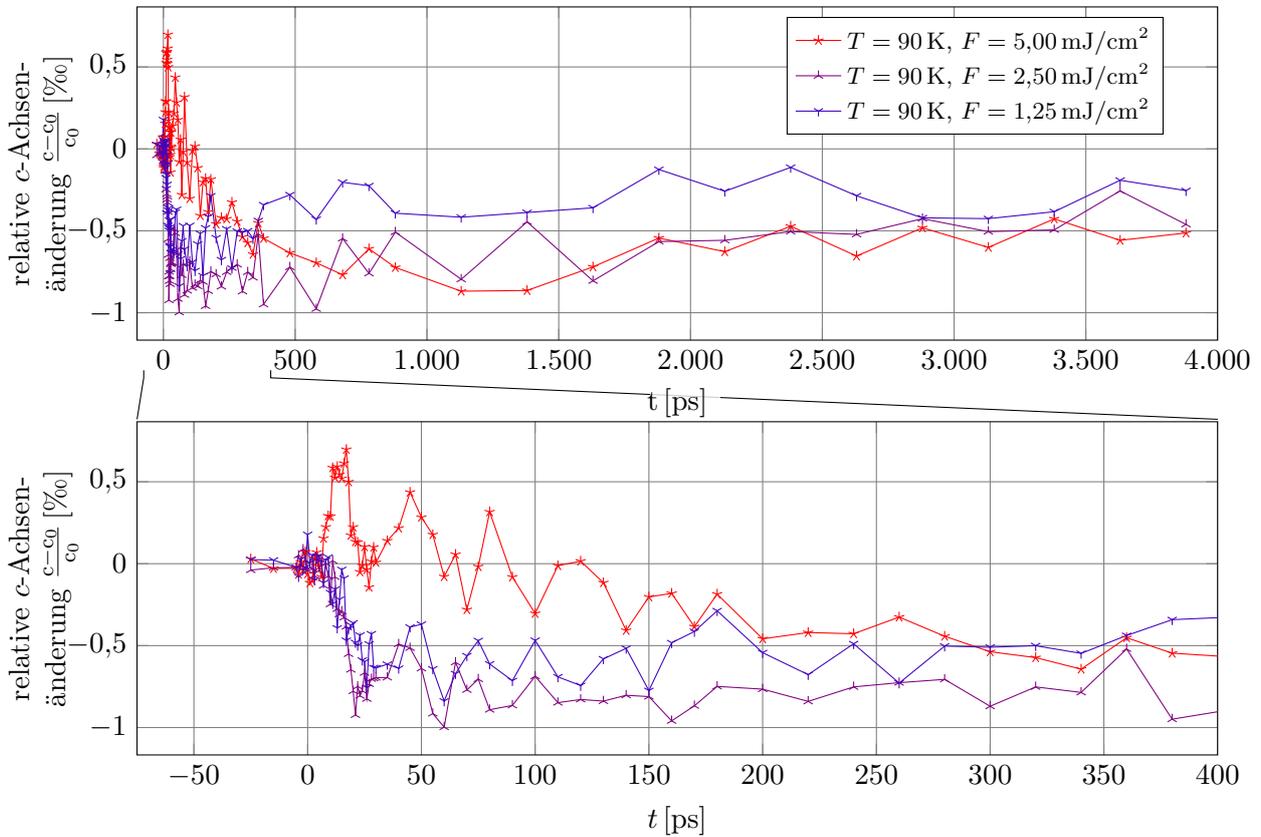
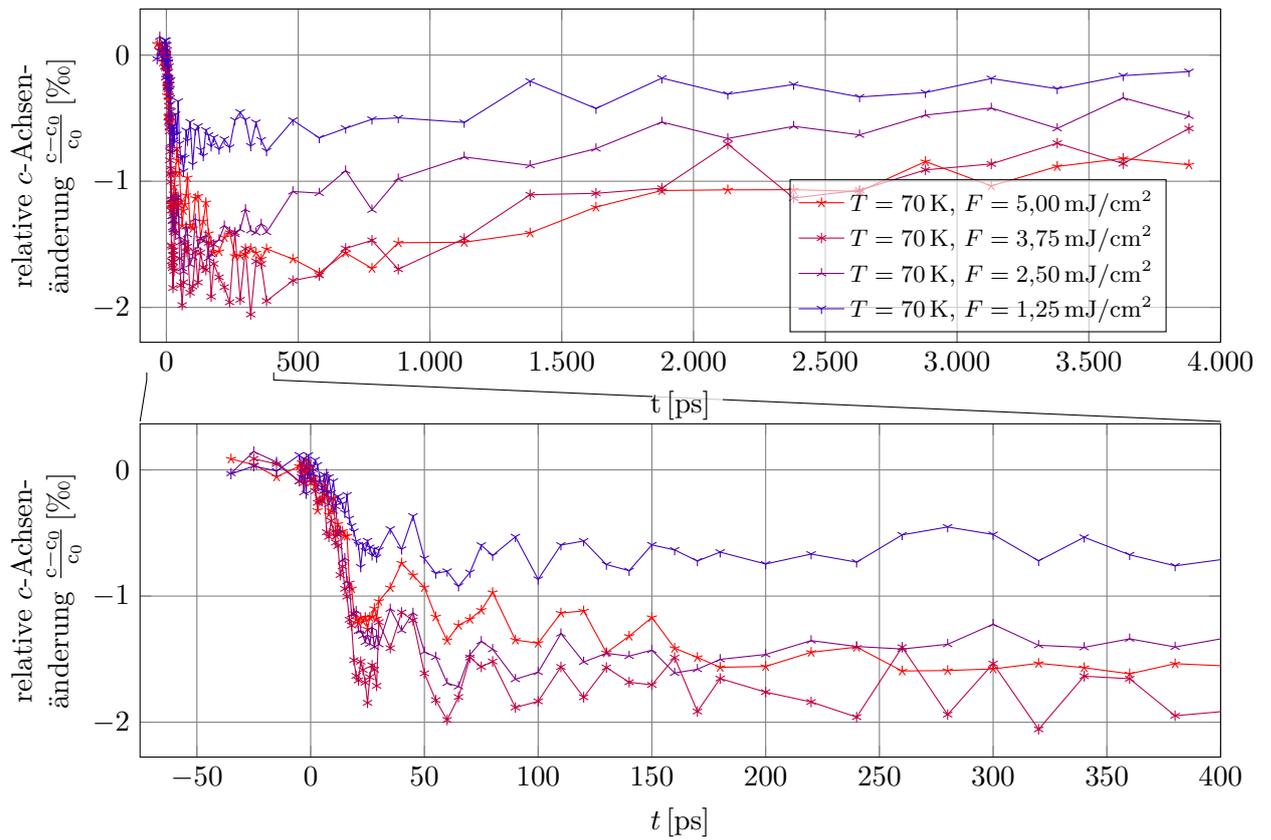
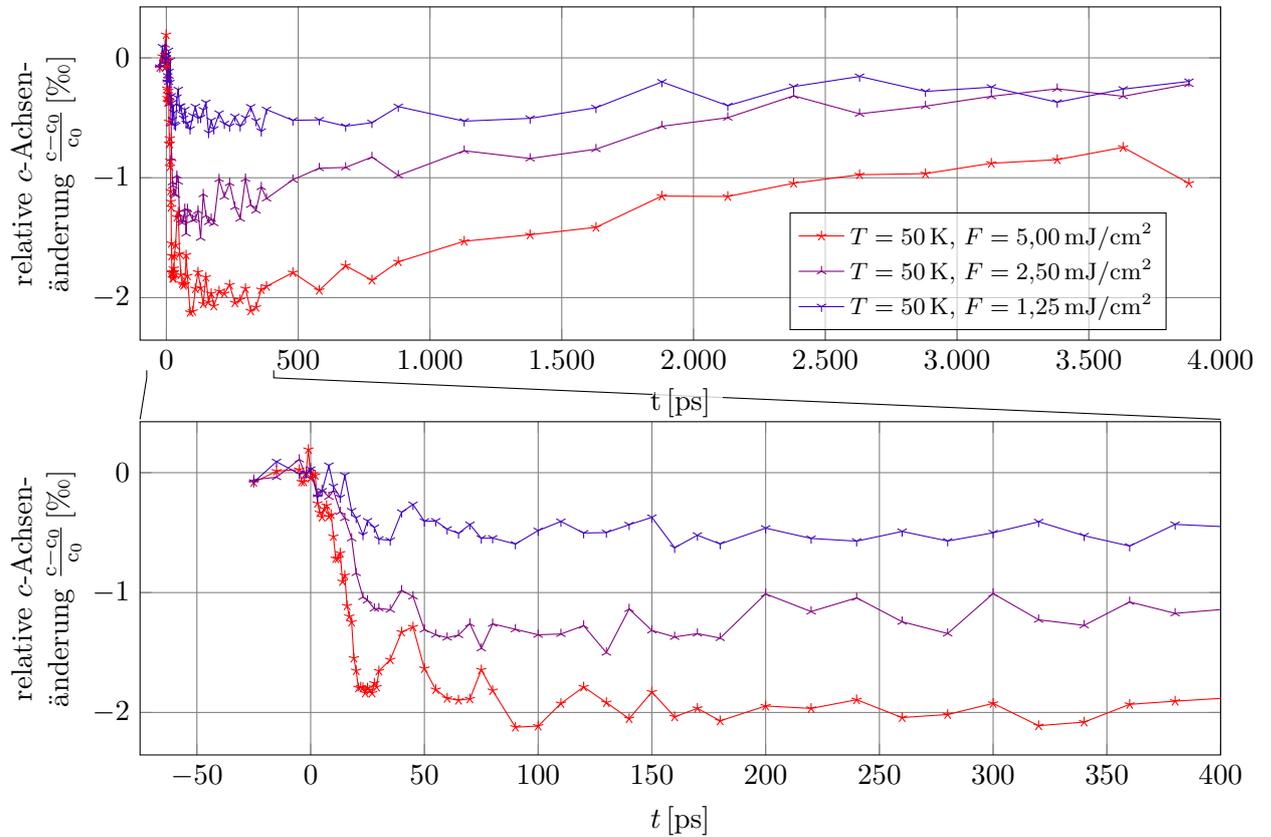


Abbildung 5.6: Dynamik der c -Achse von Holmium am Phasenübergang bei 90 K


 Abbildung 5.7: Dynamik der c -Achse von Holmium unter dem Phasenübergang bei 70 K

 Abbildung 5.8: Dynamik der c -Achse von Holmium unter dem Phasenübergang bei 50 K

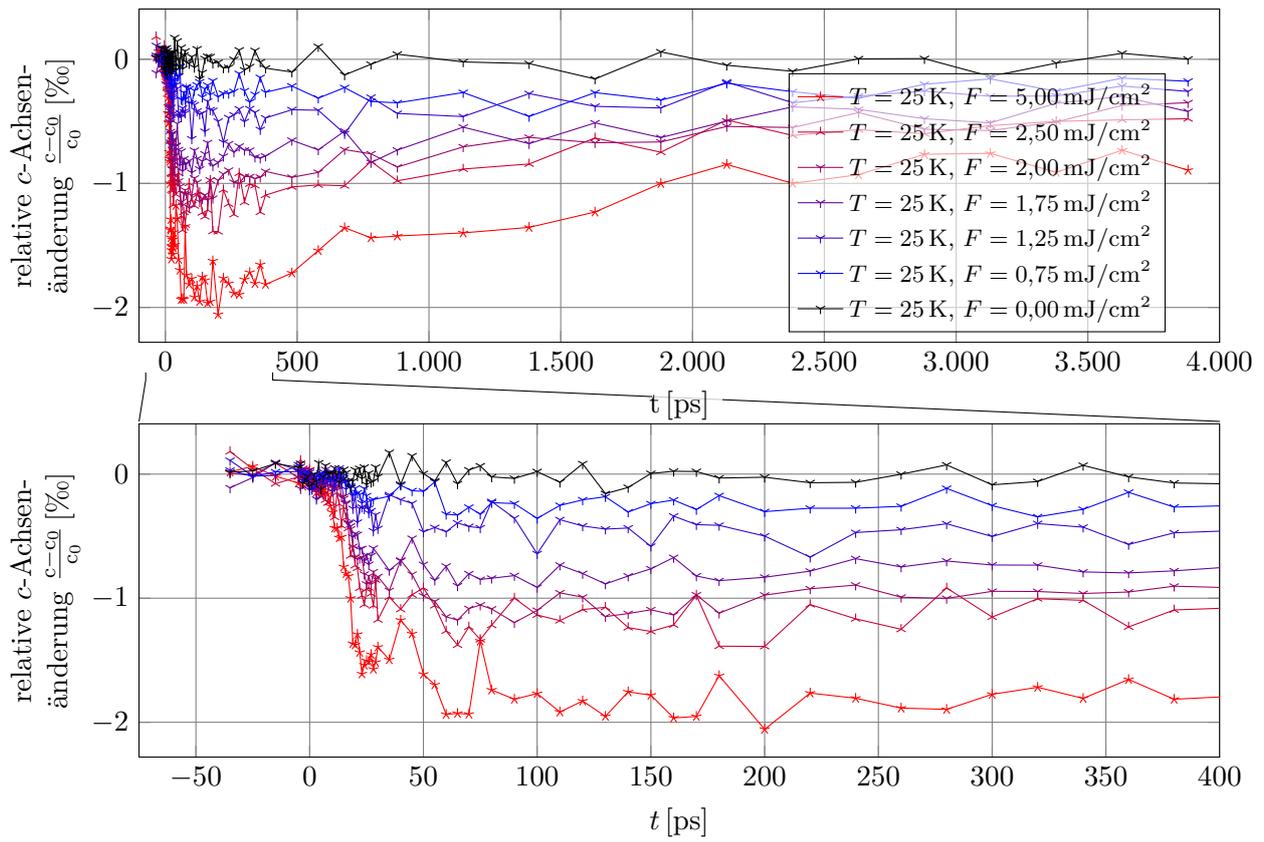


Abbildung 5.9: Dynamik der c -Achse von Holmium unter dem Phasenübergang bei 25 K

5.2.2. Peakpositionsänderung für unterschiedliche Temperaturen bei einer Fluenz

In den Abbildungen 5.10 bis 5.12 ist die Änderung des mittleren Netzebenenabstands in der Holmiumschicht als Funktion der Zeit zwischen Anregung und Abfrage von Holmium für unterschiedliche Temperaturen bei einer festen Anregefluenz von $F = 5 \text{ mJ/cm}^2$, $F = 2,5 \text{ mJ/cm}^2$ und $1,25 \text{ mJ/cm}^2$ abgebildet. In den Abbildungen lassen sich charakteristische Bereiche unterscheiden: Bei hohen Temperaturen über (140 K) und nahe am Phasenübergang von AFM-Phase nach PM-Phase ist eine Expansion der Gitterkonstante zu erkennen, bei tiefen Temperaturen weit unterhalb des Phasenübergangs (50 K und 70 K) eine Kompression. Im mittleren Bereich ist es von der Fluenz abhängig, ob eine Kompression der Gitterkonstante erkennbar ist: Bei hohen Fluenzen (5 mJ in Abbildung 5.10) ist eine Expansion bei 110 K und bei 90 K zu frühen Zeiten eine Expansion, gefolgt von einer Kompression zu erkennen. Bei mittleren Fluenzen verschiebt sich dieses Verhalten, nun ist bei 110 K zu frühen Zeiten eine Expansion, gefolgt von einer Kompression zu erkennen. Bei niedrigen Fluenzen ist nur noch bei der Messung oberhalb des Phasenübergangs ist eine reine Expansion zu erkennen. In allen Messungen fällt auf, dass die maximale Kompression etwa 10 ps später auftritt, als die maximale Expansion, dies wird in Abschnitt 6.5 durch die Erzeugung und Ausbreitung von Schallwellen erklärt.

Bei kleinen Fluenzen ($1,25 \text{ mJ/cm}^2$) ist die maximale Kompression im Betrag etwas größer als die maximale Expansion der Gitterkonstante ist. Betrachtet man die mittlere Fluenz $2,5 \text{ mJ/cm}^2$ sind die maximale Expansion und Kompression in etwa gleich groß. Wird mit 5 mJ/cm^2 angeregt ist die Expansion der Gitterkonstante in der PM-Phase deutlich größer als die Kompression in der AFM-Phase. Dies deutet auf eine Sättigung des magnetischen Systems hin, mehr dazu in Abschnitt 6.1.

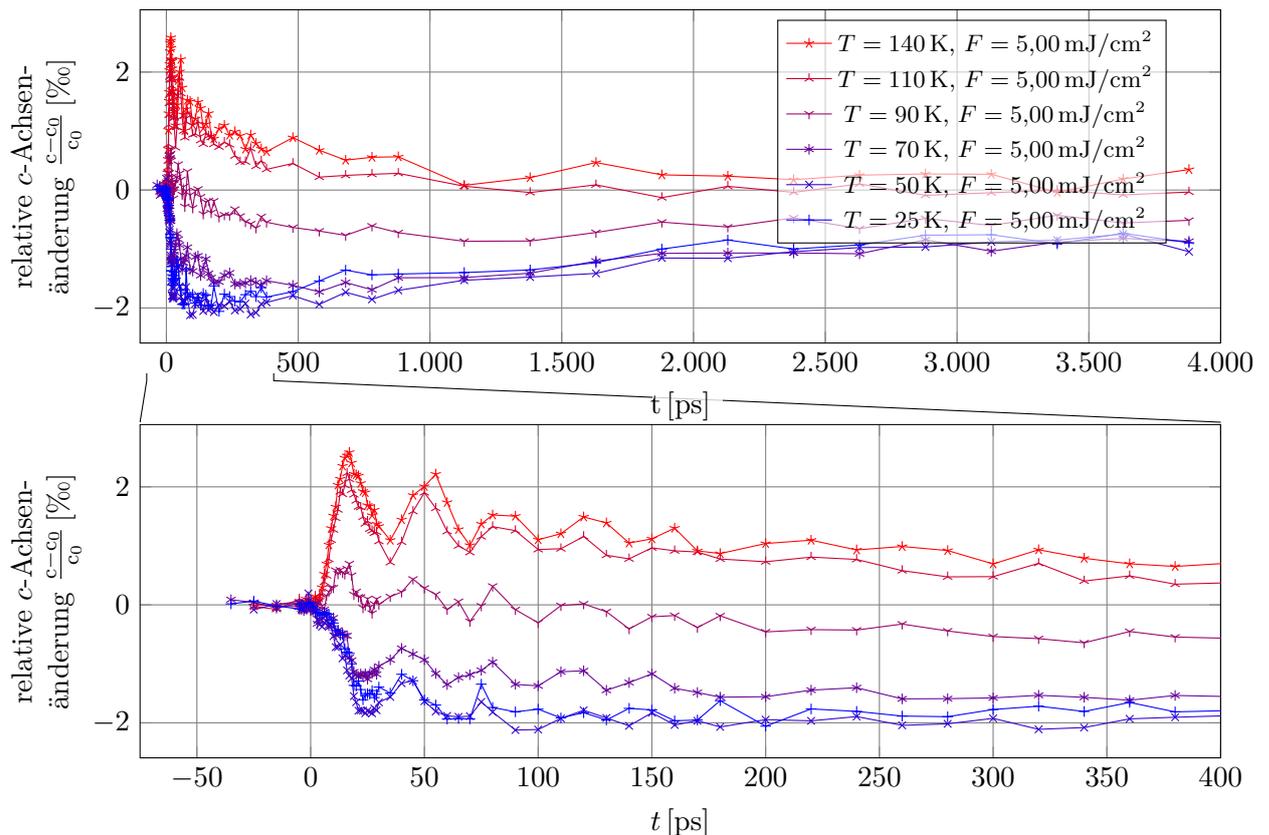


Abbildung 5.10: Dynamik der c -Achse (Peakposition) von Holmium bei 5 mJ/cm^2

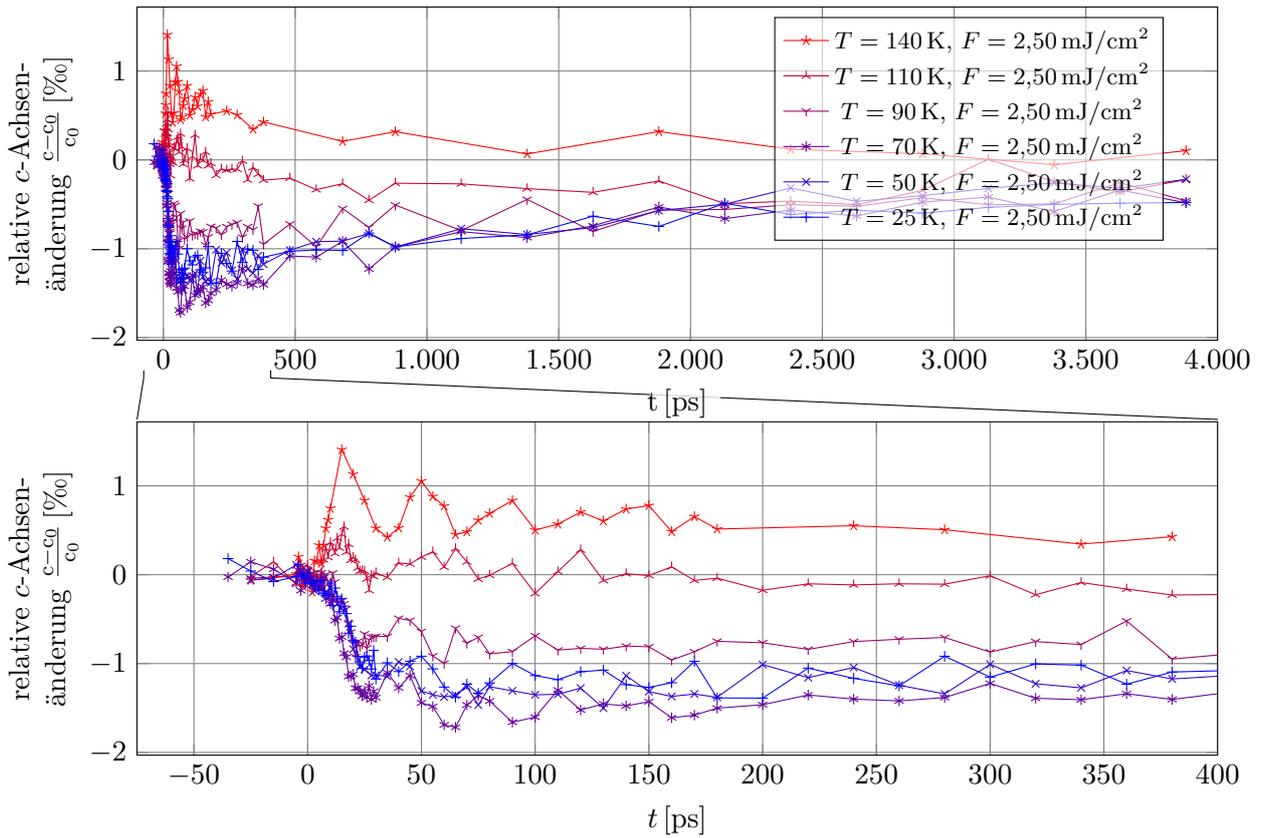


Abbildung 5.11: Dynamik der c -Achse (Peakposition) von Holmium bei $2,5 \text{ mJ/cm}^2$

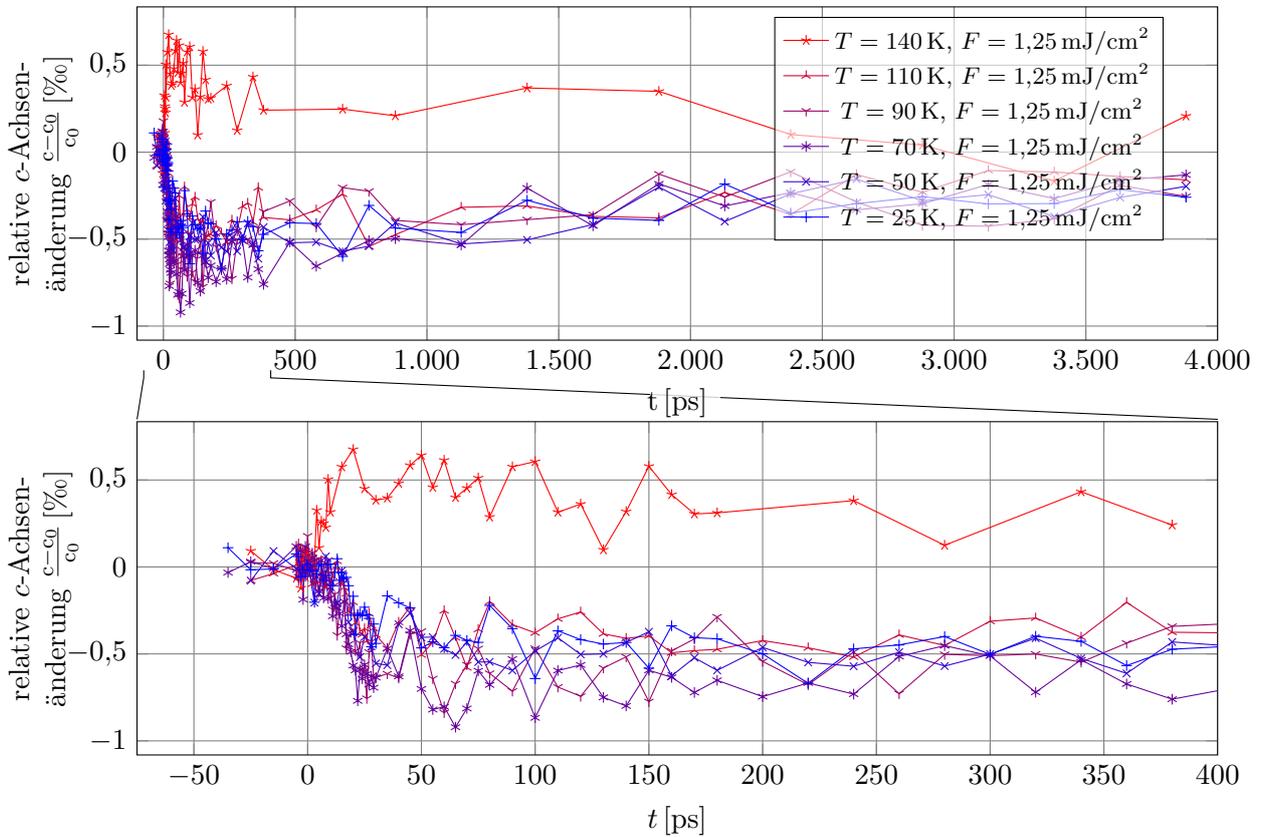


Abbildung 5.12: Dynamik der c -Achse (Peakposition) von Holmium bei 5 mJ/cm^2

5.2.3. Peakbreitenänderung

In Abbildung 5.13 ist die zeitliche Änderung der Peakbreite des Röntgenreflexes von Holmium bei unterschiedlichen Starttemperaturen dargestellt. Diese wurde aus den vorher in Abschnitt 5.2.2 besprochenen Datensatz (siehe auch Abbildung 5.10) gewonnen. Trotz der starken Anregung mit $F = 5 \text{ mJ/cm}^2$ ist das Signal-zu-Rausch Verhältnis schlechter verglichen mit den Ergebnissen der Peakposition. Trotzdem ist die Änderung der Peakbreite eindeutig abhängig von der Starttemperatur: Bei niedrigen Temperaturen vor allem bei 25 K ist eine signifikante Vergrößerung der Peakbreite nach dem Anregen der Probe zu beobachten. Bei hohen Temperaturen verringert sich die Peakbreite etwas.

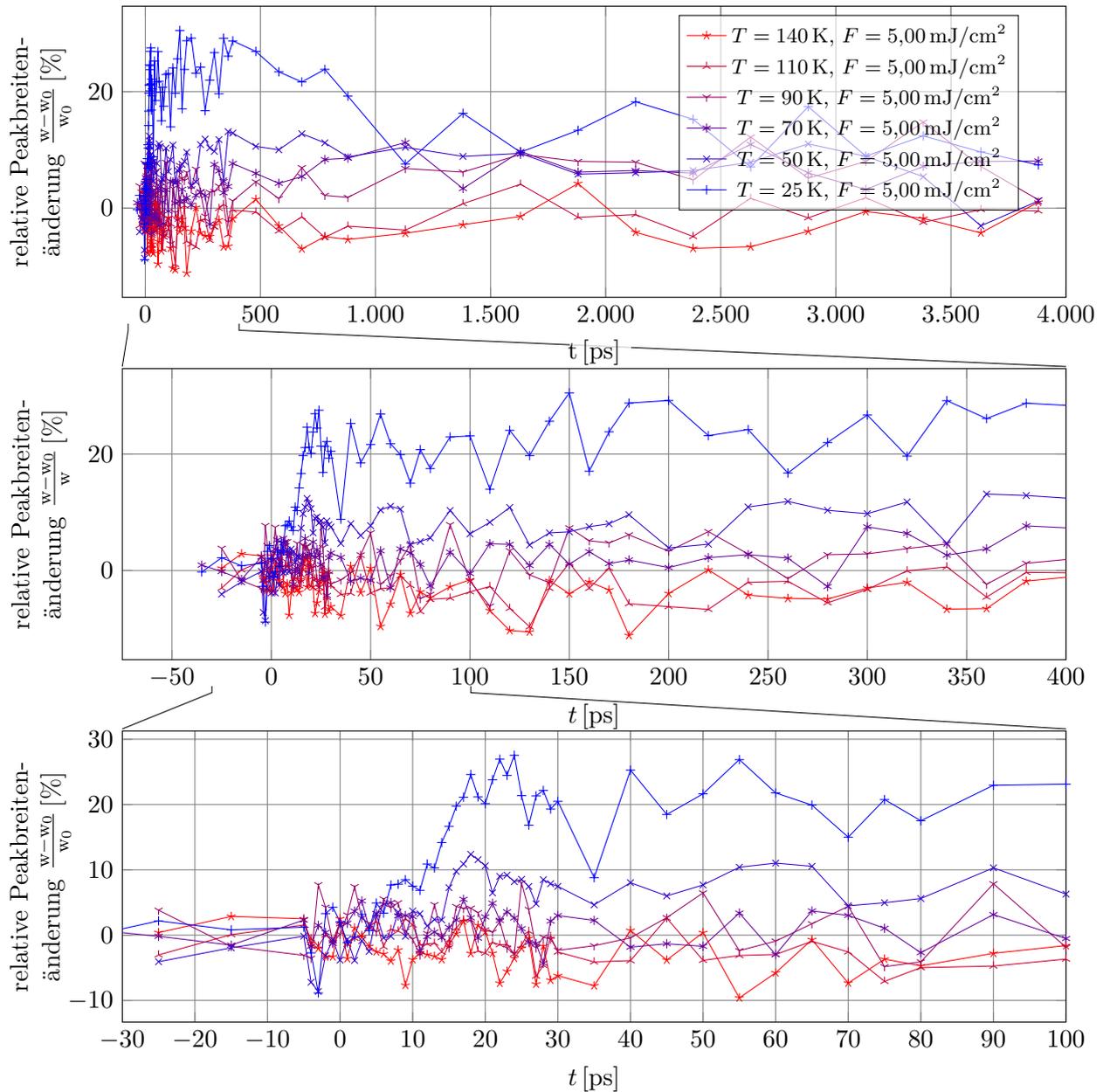


Abbildung 5.13: Dynamik der Peakbreite des Holmiumreflexes bei 5 mJ/cm^2

5.3. Messungen bei festem Winkel an Yttrium

Da die Divergenz der Quelle groß genug ist um neben dem Holmiumreflex auch den Yttriumreflex mit dem Flächendetektor aufzunehmen, können aus jeder Messung auch die Peakposition und Peakbreiten von Yttrium bestimmt werden. Die große Eindringtiefe der Röntgenstrahlung mittelt dabei über die beiden Yttriumschichten. Da die obere Yttriumschicht jedoch wesentlich dünner ist als die untere Schicht, ist das Signal von der Dynamik der dickeren Yttriumschicht dominiert und wir werden daran die beobachtete Dynamik diskutieren. Die Dynamik von Yttrium wird in diesem Abschnitt anhand der gemessenen Änderung der Gitterkonstante bei einer Anregung von 5 mJ/cm^2 diskutiert. Datensätze mit kleinerer Fluenz zeigen die gleiche Dynamik, jedoch nimmt das Rauschen im Vergleich zur Änderung deutlich zu.

Bei hohen Temperaturen ist ein Minimum der Gitterkonstante bei ungefähr 17 ps nach der Anregung zu erkennen, zu diesem Zeitpunkt ist die Holmiumschicht maximal ausgedehnt. Die Expansion der Holmiumschicht verursacht durch eine Schallwelle, führt zu einer Kompression in der Yttriumschicht [Schick et al., 2014b]. Bei den Daten deutlich unterhalb Phasenübergangs ist hingegen eine Expansion zu erkennen, da in diesem Temperatur- und Fluenzbereich Holmium seine maximale Kontraktion zeigt. Die Yttriumschicht wirkt somit zu frühen Zeiten als Drucksensor der Holmiumschicht.

Nach 30 ps bleibt eine positive Änderung um ca 1 ‰ übrig. Vergleicht man mit der statischen Änderung der Gitterkonstante von Yttrium, dargestellt in Abbildung 4.10, lässt sich durch die annähernd linear verlaufende Änderung, die in Temperaturänderung der Yttriumschicht zu 50 K bestimmen. Die Probe befindet sich jedoch zu diesem Zeitpunkt noch lange nicht im thermischen Gleichgewicht, somit wird die Temperatur in der vorderen, dünneren Schicht deutlich höher sein, als in der unteren dicken Schicht.

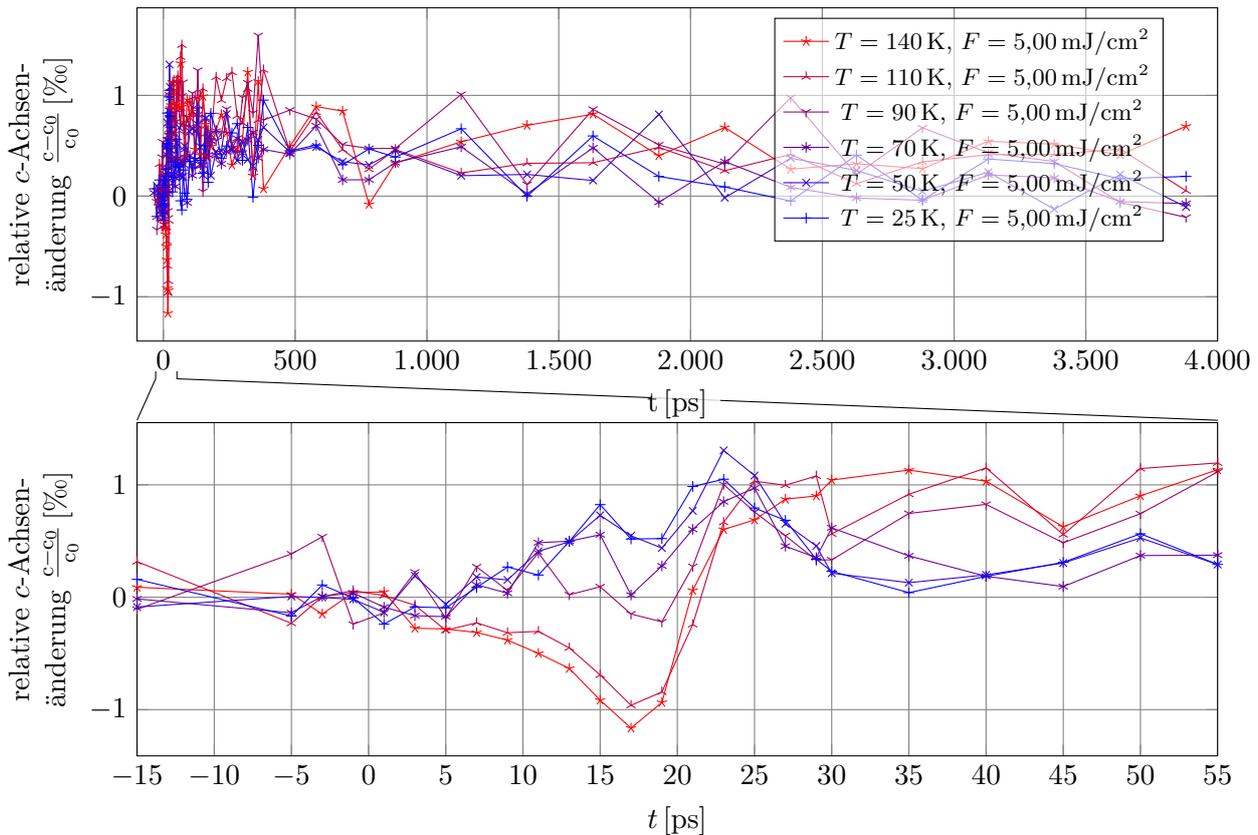


Abbildung 5.14: Dynamik der c -Achse (Peakposition) von Yttrium bei 5 mJ/cm^2

5.4. Qualität der Messdaten: Standardabweichung

Bei der Auswertung wurde für jeden Datensatz bei jeder Verzögerungszeit die Standardabweichung bestimmt. Dies ist möglich, da ungefähr 25 Delayschleifen gemessen wurden. Die Messungen werden dann in Pakete à 5 Schleifen und ein Paket mit restlichen Schleifen aufgeteilt. Jedes der Pakete wurde gemittelt und anschließend, wie in Abschnitt 3.3.2 beschrieben, ausgewertet. Anschließend kann der mit der Paketgröße gewichtete Mittelwert und die gewichtete Standardabweichung aus den unterschiedlichen Paketen einer oder mehrerer Messungen bei gleicher Starttemperatur und Anregungsfluenz ermittelt werden. Bislang wurden die Daten aufgrund der Übersichtlichkeit ohne Fehlerbalken dargestellt. In Abbildung 5.15 ist beispielhaft der Datensatz aus Abbildung 5.10 mit Fehlerbalken gezeigt. Um die Darstellungsqualität zu verbessern wurden die Daten, wie bereits erwähnt auf ein neues gröberes Delaygitter eingeordnet, hieraus ergeben sich die Fehlerbalken in der Zeitdomäne.

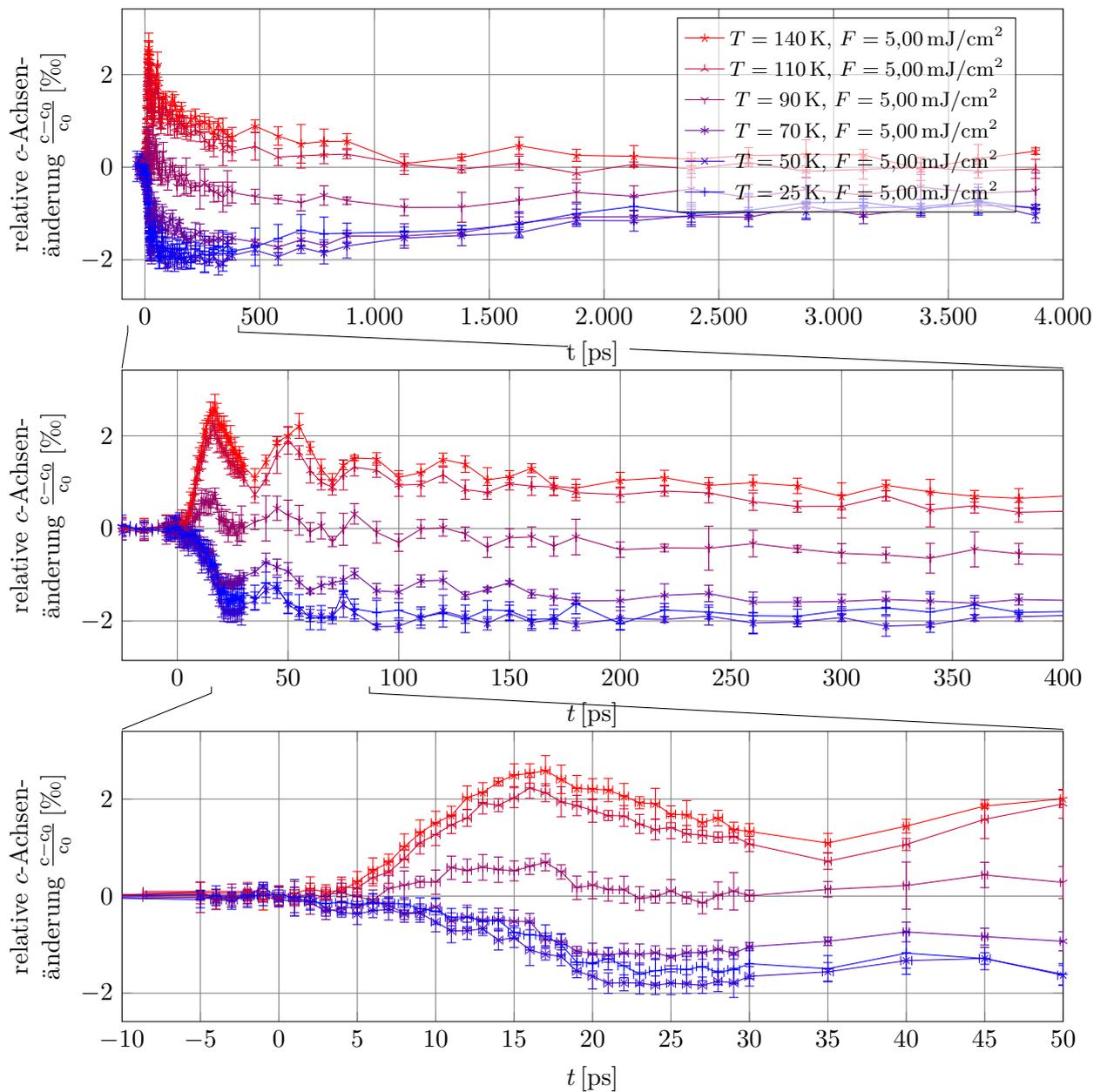


Abbildung 5.15: Dynamik der c -Achse (Peakposition) von Holmium bei 5 mJ/cm^2 mit Standardabweichung von 1σ unter Berücksichtigung des Studentfaktors

6. Auswertung und Simulation

Zur Beschreibung der Anregung in der Holmiumschicht lässt sich diese in unterschiedliche Subsysteme aufteilen: Elektronen, Phononen und Magnonen. Alle üben einen Druck auf das Gitter aus und wechselwirken mit- und untereinander.

Trifft der Pumpstrahl bei der Anregung auf die Probe, wird zuerst das elektronische System angeregt, welches seine Energie an die Phononen und Magnonen abgibt. Die impulsive Anregung der Phononen erzeugt ein expansives Stressprofil in der Probe. In der AFM-Phase sorgt die Magnetostriktion zusätzlich für eine kontraktive Komponente des Spannungsprofils. Dieses Spannungsprofil ist der Ursprung von Schallwellen (kohärente Phononen) an den Orten in der Probe, wo die Spannung Diskontinuitäten aufweist. Neben den kohärenten Phononen werden viele Phononen nicht kohärent angeregt. Sie transportieren die Energie in Form von Wärme auf langen Zeitskalen aus der Probe. Kohärent werden nur solche Phononen angeregt, für die eine Kraftkomponente mit geeigneter Symmetrie anliegt, deren Kraft sich schneller als die halbe Periode des Phonons ändert. Eine wichtige Frage ist, in welchen Anteilen sich die Energie auf die drei Systeme verteilt. Auf unseren ultrakurzen Zeitskalen ist aber vor allem die Aufteilung der Energie zwischen Phononen und Magnonen interessant. In den nächsten Abschnitten werden die Messdaten hinsichtlich ihrer Temperatur- und Fluenzabhängigkeit untersucht. Wir diskutieren zunächst sich Zusammenhänge zwischen Temperatur und Fluenz und führen ein Gleichgewichtsmodell zur Beschreibung der Gitterausdehnung ein, welches die maximale Expansion und Kontraktion vorhersagt. Anschließend gewinnen wir Aussagen über das Kühlen der phononischen und magnetischen Systeme sowie die in der Probe induzierten Spannungen und Dehnungen.

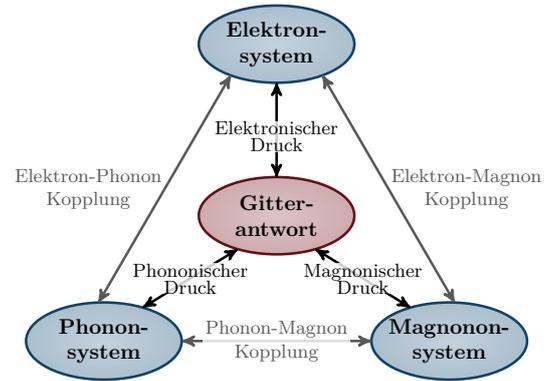


Abbildung 6.1: Subsysteme der Holmiumprobe: Elektronen, Phononen und Magnonen wechselwirken über ihre jeweiligen Wechselwirkungen miteinander. Jedes dieser Systeme übt einen Druck auf das Gitter aus, dessen Änderung zeitaufgelöst beobachtet wird.

6.1. Fluenzstudien

Die zeitabhängigen Messdaten lassen sich hinsichtlich ihrer Fluenzabhängigkeit untersuchen. Im Abschnitt 5.2.1 war bereits zu erahnen, dass oberhalb des Phasenüberganges die Antwort des phononischen Systems linear ausfällt. Dieser lineare Zusammenhang ist in Abbildung 6.2, in der die relative c -Achsenänderung normiert auf die Fluenz dargestellt wird, deutlich zu erkennen.

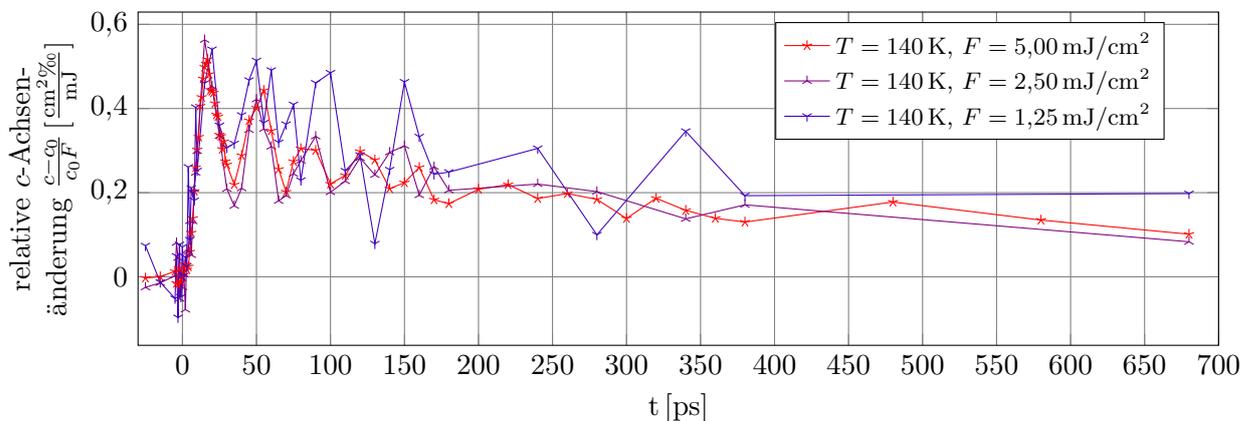


Abbildung 6.2: Fluenzstudie oberhalb der Néel-Temperatur T_N , gezeigt ist die auf die Fluenz normierte c -Achsenänderung: Für alle Fluenzen zeigt sich dabei dieselbe Dynamik. Die Expansion in der PM-Phase skaliert somit linear mit der Fluenz.

Im Rahmen des Modells einer linearen Kette (Abschnitt 2.2.2.1) oder des quantenmechanischen Modells des Phonons (Abschnitt 2.2.2.3) ist aufgrund des quadratischen Potentials (der Feder) nur eine lineare Abhängigkeit der Energie mit der Auslenkung möglich. Erst durch die Einführung anharmonischer Potentiale ist ein nichtlinearer Zusammenhang zu erreichen. Die Messdaten zeigen jedoch, dass die Fluenzen klein genug sind, dass zur Beschreibung der Phononen ein quadratisches Potential, welches zu einer linearen Kraft führt, ausreichend ist. Die Ausdehnung aufgrund der eingebrachten Wärme, wird im Modell direkt in eine Spannung übersetzt und muss somit nicht über ein anharmonisches Potential beschrieben werden [Thomsen et al., 1986]. In Abbildung

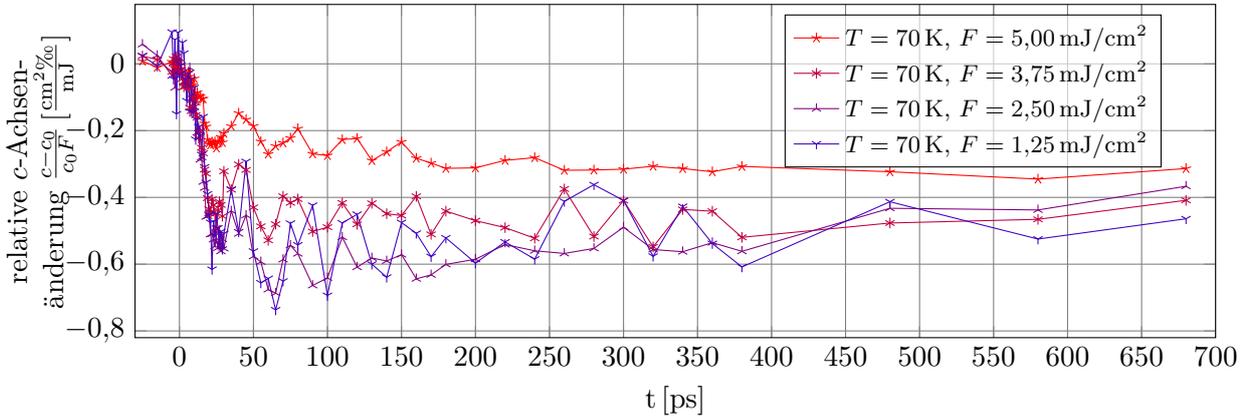


Abbildung 6.3: Fluenzstudie deutlich unterhalb des Phasenüberganges bei 70 K, gezeigt ist die mit der Fluenz normierte c -Achsenänderung: Die Kontraktion skaliert für Messungen mit niedriger Fluenz linear. Größere Fluenzen zeigen eine kleinere Kompression.

6.3 und 6.4 ist die mit der Fluenz skalierte Dynamik unterhalb des Phasenüberganges gezeigt. Unterhalb der Néel-Temperatur T_N bei 70 K sowie niedrigen Fluenzen von $1,25 \text{ mJ/cm}^2$ und $2,5 \text{ mJ/cm}^2$ ist die Kontraktion linear von der Fluenz abhängig (Abbildung 6.3). Bei höheren Fluenzen zeigt sich eine geringere Kontraktion der Gitterkonstante der c -Achse pro Fluenz. Hieraus lässt sich schließen, dass das magnetische System bei diesen Messungen vollständig entmagnetisiert wurde. Dies bedeutet, dass das magnetische System keine weitere Energie mehr aufnehmen kann und das phononische System einen größeren Anteil der Energie erhält.

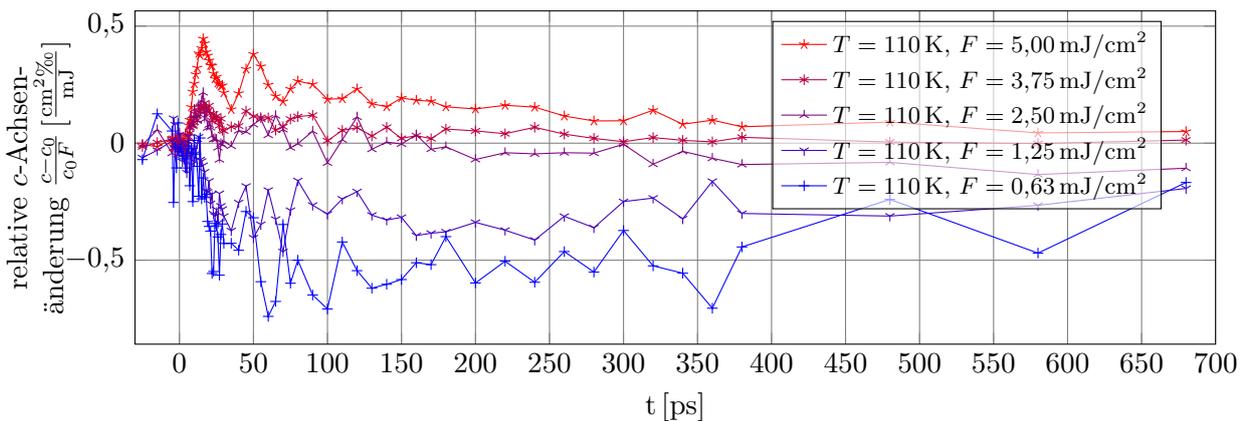


Abbildung 6.4: Fluenzstudie knapp unterhalb des Phasenüberganges bei 110 K, gezeigt ist die mit der Fluenz normierte c -Achsenänderung: Sie skaliert nicht mit der Fluenz. Die maximale Änderung zeigt die Messung mit der geringsten Fluenz.

In Abbildungen 6.3 und 6.4 ist ein ähnliches Verhalten zu beobachten. Jedoch liegt die Temperatur im zweiten Fall deutlich näher am Phasenübergang, womit weniger Energie aufgebracht werden

muss, um die magnetische Ordnung vollständig zu zerstören. Die maximale Kontraktion tritt bereits bei der kleinsten Fluenz von $0,63 \text{ mJ/cm}^2$ auf. Mit steigender Fluenz, wird der Anteil der Energie im phononischen System immer größer, so dass sich die Kontraktion immer weiter verringert, bis schlussendlich eine Expansion der Holmiumschicht resultiert. In den folgenden Abbildungen 6.5 und 6.6 sind die ermittelten maximalen Expansions und Kontraktionen für unterschiedliche Fluenzen zusammengefasst.

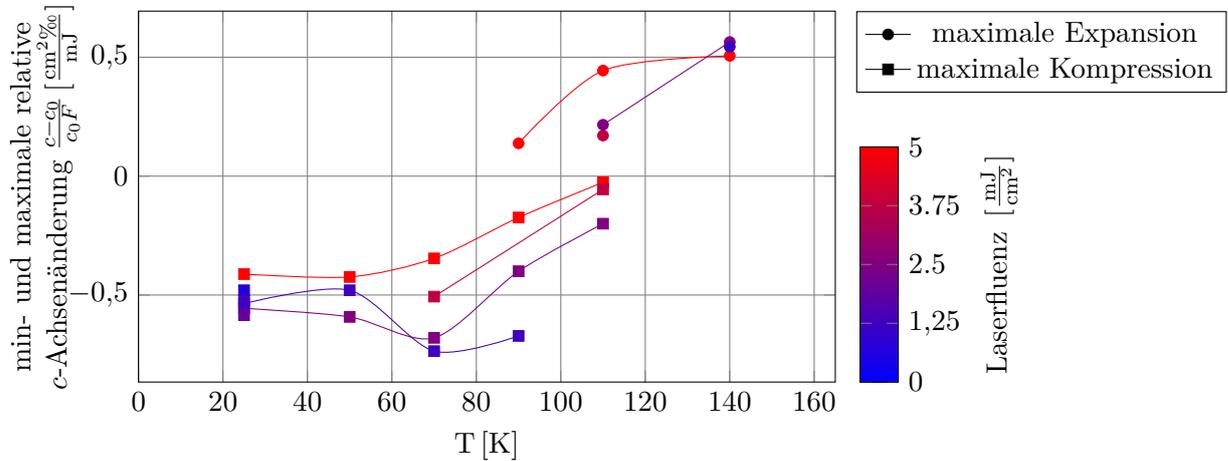


Abbildung 6.5: Auf die Fluenz normierte maximale Expansion und Kontraktion von Holmium. Sowohl über dem Phasenübergang als auch weit unterhalb des Phasenüberganges zeigen die Maxima eine lineare Skalierung mit der Fluenz. Erkennbar an der unveränderten, auf die Fluenz normierten Verspannung.

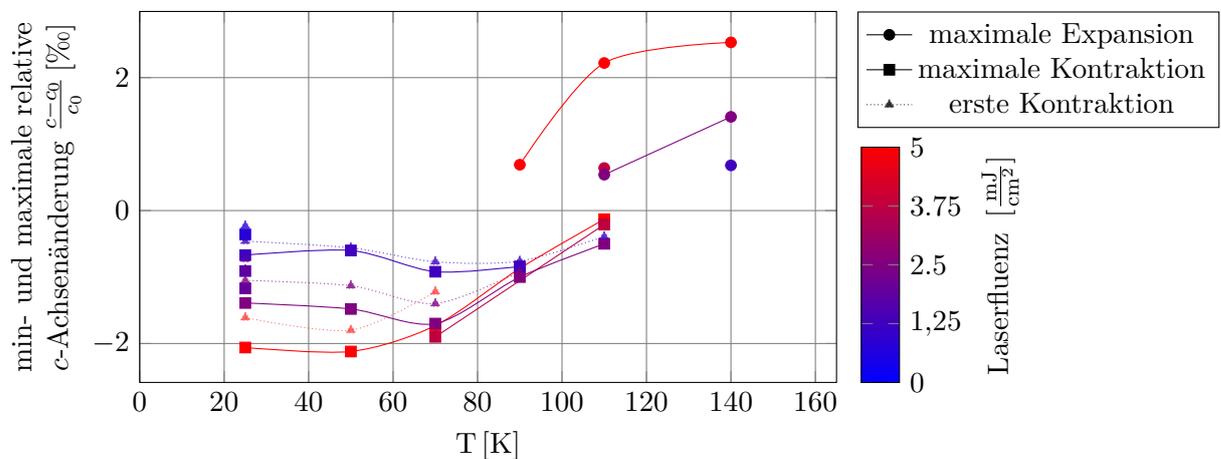


Abbildung 6.6: Maximale Expansion und Kontraktion von Holmium. Wird das System über den AFM-Phasenübergang gepumpt (bei 90 K und 110 K), zeigen die Daten nur eine geringe Kontraktion, sowie keine lineare Fluenzabhängigkeit.

In der Abbildung 6.5 ist das auf die Fluenz normierte Maximum aufgetragen, während in Abbildung 6.6 der absolute Wert eingezeichnet ist. Aus den beiden Grafiken lassen sich drei Bereiche identifizieren: weit unterhalb des AFM-Phasenüberganges, nahe dem Phasenübergang und oberhalb des Phasenüberganges. Der Bereich über dem Phasenübergang zeigt eine phononische Expansion, welche linear mit der Fluenz ist. Der Bereich weit unterhalb des Phasenüberganges zeigt eine Kontraktion, verursacht durch die Magnetostriktion, welche ebenfalls linear verläuft. Zwischen diesen beiden Bereichen befinden sich Datenpunkte, bei denen vermutlich in die Nähe des Phasenübergangs gepumpt wurde. Dies betrifft die beiden Temperaturen 90 K und 110 K. Sie zeigen fast keine Fluenzabhängigkeit der Kontraktion: Der phononische Stress ist nahezu gleichgroß

wie der magnonische, was zu einer sehr kleinen Kontraktion bei diesen Datensätzen führt. Bei diesen Daten liegt das Minimum auch bei sehr großen Verzögerungszeiten (mehr in Abschnitt 6.3, Abbildung 6.10). In der zweiten Abbildung 6.6 ist auch die erste Kompression eingezeichnet, dies ist das erste Minimum der zeitaufgelösten Kurve, welches durch die entstandene Schallwelle erzeugt wird. Dieses Minimum ist im Betrag etwas kleiner als das lokale Minimum, verläuft aber nahezu parallel mit diesem, außer im mittleren Bereich.

6.2. Gleichgewichtsmodell

Im folgenden besprechen wir das Gleichgewichtsmodell, das von von Reppert et al. [2015] eingeführt hat. Es berechnet aus der statisch gemessenen Gitterkonstante aus Abschnitt 4.6 und der temperaturabhängigen Wärmekapazität aus Gerstein et al. [1957] in Abhängigkeit der Starttemperatur und der eingebrachten Fluenz die maximale Kontraktion oder Expansion von Holmium, um diese mit den Messdaten zu vergleichen. Das Prinzip des Modells ist in Abbildung 6.7 dargestellt: An einer zeitaufgelösten Messung oberhalb des Phasenüberganges mit der Fluenz F wird die maximale c -Achsen-gitterkonstante c_{\max} (ohne kohärente Phononen) abgeschätzt. Mit der statisch gemessenen Gitterkonstante kann der maximalen Gitterkonstante eine Temperatur $T(c_{\max})$ zugeordnet werden. Anschließend wird die Wärmekapazität κ von der Starttemperatur der zeitaufgelösten Messung bis zur Endtemperatur $T(c_{\max})$ integriert, um die beim Proben eingebrachte Energie

$$Q(F = 5,0 \text{ mJ/cm}^2) = \int_{T_{\text{start}}=140 \text{ K}}^{T(c_{\max})} C_p(T) dT = 2,9 \text{ kJ/mol} \quad (6.1)$$

zu ermitteln. Dabei wird zur Kalibration die zeitaufgelöste Messung bei $T_{\text{start}} = 140 \text{ K}$ und $F = 5 \text{ mJ/cm}^2$ verwendet. Für andere Fluenzen wird die eingebrachte Energie mit der dem Verhältnis der Fluenzen skaliert. Mit dieser Kalibrierung ist es möglich, die maximale Gitterausdehnung und die eingebrachte Temperaturänderung bei anderen Starttemperaturen T_{start} und Fluenzen F zu berechnen. Dazu wird die die Temperatur gesucht bei der dieselbe Energie

$$Q(F) = \int_{T_{\text{start}}}^{T_{\max}} C_p(T) dT, \quad (6.2)$$

wie bei der Kalibration in das System eingebracht wird. Die schematische Darstellung des Gleichgewichtsmodells in Abbildung 6.7 zeigt, wie die in Holmium eingebrachte Energie kalibriert wird und anschließend bei anderen Starttemperaturen T_{start} die Änderung der Gitterkonstanten der c -Achse von Holmium berechnet wird.

Die Ergebnisse des Gleichgewichtsmodells sind in Abbildung 6.8 für drei Fluenzen $F = 5 \text{ mJ/cm}^2$, $2,5 \text{ mJ/cm}^2$ und $1,25 \text{ mJ/cm}^2$ im Vergleich mit den, aus den zeitaufgelösten Messdaten ermittelten, Minima und Maxima dargestellt.

Beim Vergleich zwischen Modell und den aus den gemessenen Daten ermittelten Minima und Maxima (ohne kohärente Phononen) sagt das Modell den korrekten Trend für die Daten voraus. Im Temperaturbereich der PM-Phase liefert das Modell korrekte Werte. Dies ist aufgrund der Kalibration in diesem Bereich und der linearen Fluenzabhängigkeit zu erwarten. In der AFM-Phase sagt das Modell eine zu große maximale Kompression besonders für hohe Fluenzen voraus. Dies zeigt deutlich, dass die Probe sich nicht im Gleichgewicht befindet und die Temperaturen von Phononen und Magnonen sich im Sinne des Mehrtemperaturmodells unterscheiden. Da eine geringere Kontraktion beobachtet wird, als es das Gleichgewichtsmodell vorhersagt, bedeutet dies, dass die Temperatur des phononischen Systems höher und bei großen Fluenzen deutlich größer ist, als die des magnetischen Systems (vgl. Abbildung 4.3 b und 4.4 a).

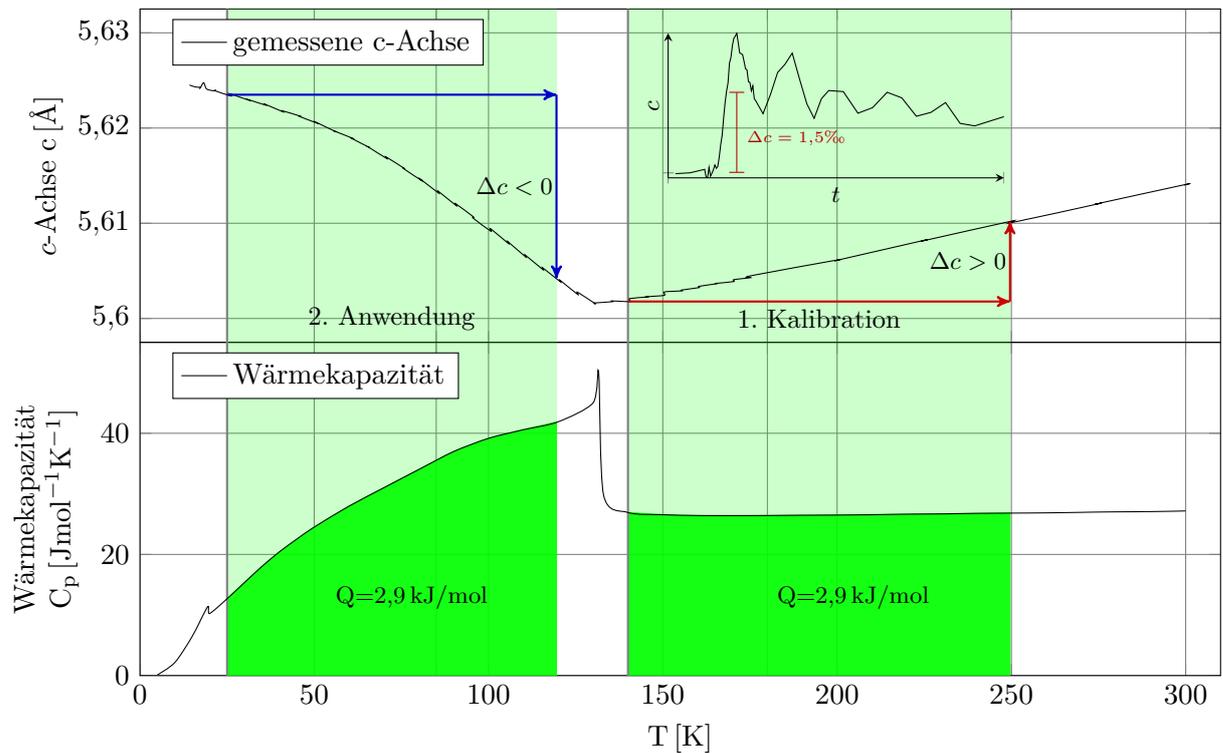


Abbildung 6.7: Im Gleichgewichtsmodell wird angenommen, dass die in Holmium deponierte Energie Q zu einer Gitterkonstantenänderung der c -Achse führt. Die deponierte Energie wird an einer Messung (oben rechts) anhand des maximalen phononischen Peaks (ohne kohärente Anteile) über dem Phasenübergang kalibriert (Kalibrierung). Einmal kalibriert lassen sich die Gitterkonstantenänderungen für unterschiedliche Starttemperaturen T_{start} berechnen (Anwendung).

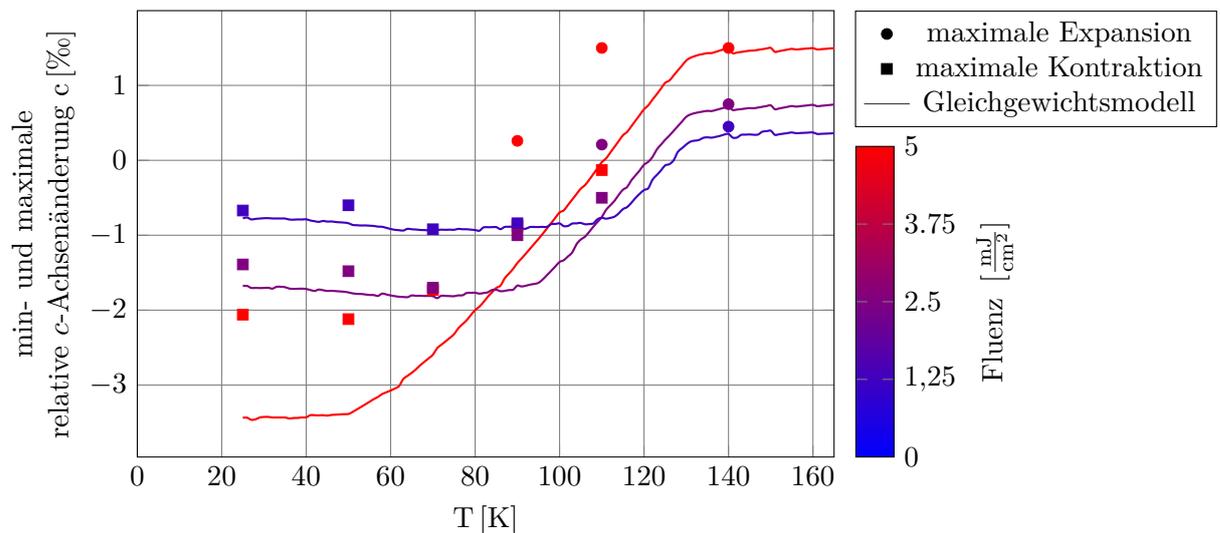


Abbildung 6.8: Vorhergesagte Gitterkonstantenänderung im Gleichgewichtsmodell im Vergleich mit den minimalen und maximalen Gitterkonstantenänderungen der c -Achse. Das Modell ermöglicht eine qualitative Vorhersage der maximalen Expansion oder Kontraktion.

6.3. Charakteristische Zeitpunkte

Die Messungen zeigen mehrere charakteristische Zeitpunkte (Abbildung 6.9). Dazu zählt in der PM-Phase das erste Maximum, bei dem die Holmiumschicht ihre maximale Ausdehnung zeigt. Dieses tritt unabhängig von der Temperatur bei 16 ps auf. Der entsprechende Zeitpunkt ist in der Abbildung 6.10 mit den Werten der maximalen Expansion (Punkte) als graue gestrichelte Linie eingezeichnet. Eine Änderung dieses Zeitpunktes ist nicht zu erwarten, da die maximale Expansion durch die Schallwelle erzeugt wird und deren Geschwindigkeit (Abbildung 4.4) im betrachteten Temperaturbereich von 70 K bis 300 K lediglich Änderungen von knapp 1% aufweist. Unter der Annahme, dass die Schallwelle zum Zeitpunkt des Maximums vollständig die Holmiumschicht durchquert hat, ergibt sich eine Dicke inklusive der Deckschichten von 48 nm. Diese Schichtdicken sind deutlich kleiner als die Angabe von den Probenherstellern, die 80 nm nominelle Ho Schichtdicke angeben. Die Auswertung bestätigt aber die Reflektrometriemessung in Abschnitt 4.7. Ein ähnliches Signal von einer dickeren Holmiumschicht könnte nur durch eine unrealistisch hohe Schallgeschwindigkeit erklärt werden.

In der AFM-Phase gibt es zwei charakteristische Zeitpunkte: den Zeitpunkt an dem das Kühlen der Magnonen und die Wiederherstellung der magnetischen Ordnung beginnt und die erste maximale Kontraktion, welche durch die Schallwelle erzeugt wird: Die erste maximale Kontraktion tritt bei 24 ps auf. Dies entspricht dem Zeitpunkt zu dem die an der Holmium-Yttrium-Grenzschicht reflektierte Schallwelle zur Hälfte zurück in die 48 nm dicke Holmiumschicht propagiert ist.

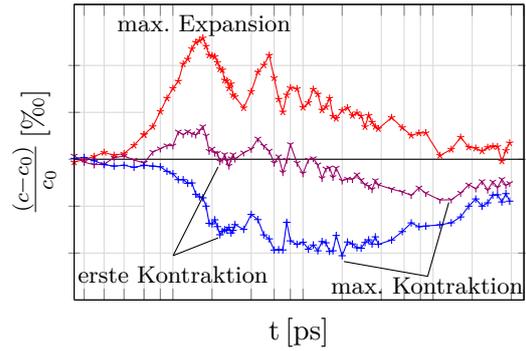


Abbildung 6.9: Charakteristische Zeitpunkte der relativen c -Achsenänderung

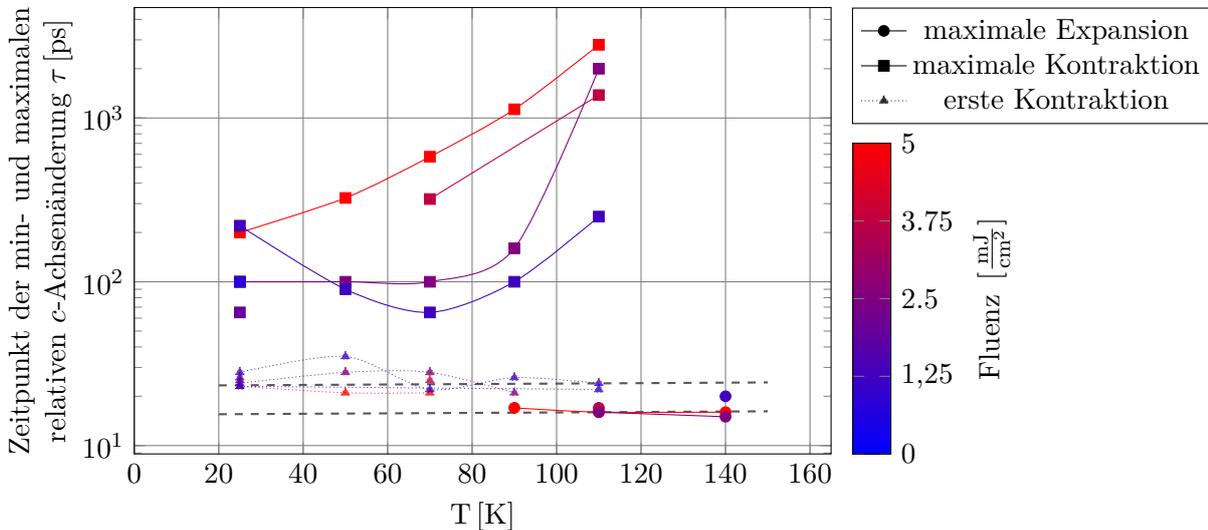


Abbildung 6.10: Zeitpunkt der maximalen Expansion und Kontraktion, sowie der ersten Kontraktion als Funktion der Temperatur für unterschiedliche Fluenzen. Während die erste Kontraktion und maximale Expansion für alle Temperaturen und Fluenzen nahezu zur gleichen Zeit auftreten, zeigt sich eine Verschiebung des Zeitpunktes der maximalen Kontraktion mit zunehmender Starttemperatur. Für hohe Fluenzen tritt dieser Effekt bereits bei kleinen Temperaturen auf, bei niedrigen Fluenzen erst bei Starttemperaturen nahe der Néel-Temperatur. Gestrichelt sind die Zeiten, die ein Puls mit der Schallgeschwindigkeit von Holmium durch eine 48 nm und 72 nm dicke Schicht braucht. Diese Laufwege entsprechen den Zeitpunkten der maximalen Expansion und Kontraktion.

Die Wiederherstellung magnetischen Ordnung entspricht einem Abkühlen des magnetischen Systems. Vor diesem Zeitpunkt ist das phonische System heißer als das magnetische. Die Wiederherstellung der magnetische Ordnung kann erst beginnen, wenn magnetische System seine Energie an das phononische System abgeben kann, welches wiederum ans Substrat kühlt. Durch die Wiederherstellung kann nun die Magnetostraktion, als Expansion des Gitters beobachtet werden. In der Abbildung 6.10 ist zu erkennen, dass dieser Zeitpunkt (Quadrate) bei hohen Temperaturen oder großen Fluenzen besonders spät auftritt. Dies ist dadurch begründet, dass, wie im vorherigen Abschnitt 6.1 gezeigt, bei solchen Fluenz und Temperaturkonstellationen der Anteil der Energie im phononischen System, aufgrund einer Sättigung des magnetischen Systems, besonders hoch ist und somit das phononische Kühlen länger dauert.

6.3.1. Kritische Fluktuationen

Dieses verspätete Minimum kann für Temperaturen nahe dem AFM-Phasenübergang auch im Rahmen der Theorie der kritischen Fluktuationen beschrieben werden. Hierfür ist in Abbildung 6.11 das globale Minimum τ als Funktion der normierten Temperatur $\varepsilon = 1 - T/T_N$ in doppelt logarithmischer Darstellung eingezeichnet. Bei hohen Temperaturen nahe dem Phasenübergang fällt ein massives Ansteigen der Zeit τ bis zum Minimum vor allem für hohe Fluenzen auf. Die 5 mJ/cm^2 Reihe lässt sich mit der der Funktion $\tau = a\varepsilon^b$ fitten und es ergibt sich der Exponent $b = -1,5$. Dieses Potenzgesetz ist bekannt aus der Theorie der kritischen Phänomäne [Hohenberg und Halperin [1977], Moran und B. [1969], Kise et al. [2000]] und lässt sich dadurch erklären, dass die langreichweitige Ordnung in magnetischen Systemen nach der optischen Anregung Zeit braucht, um sich zu erholen. Aus Modellen wie dem Ising-Modell ist bekannt, dass langreichweitige Ordnungen in der Nähe des Phasenüberganges deutlich länger brauchen um sich zu ordnen. Interessanterweise scheint die Starttemperatur gut als Temperatur geeignet zu sein, wie auch in Kise et al. [2000] und Liu et al. [2001] gezeigt, obwohl die Temperaturen nach der Anregung, sowohl im magnetischen als auch im phononischen System deutlich höher liegen.

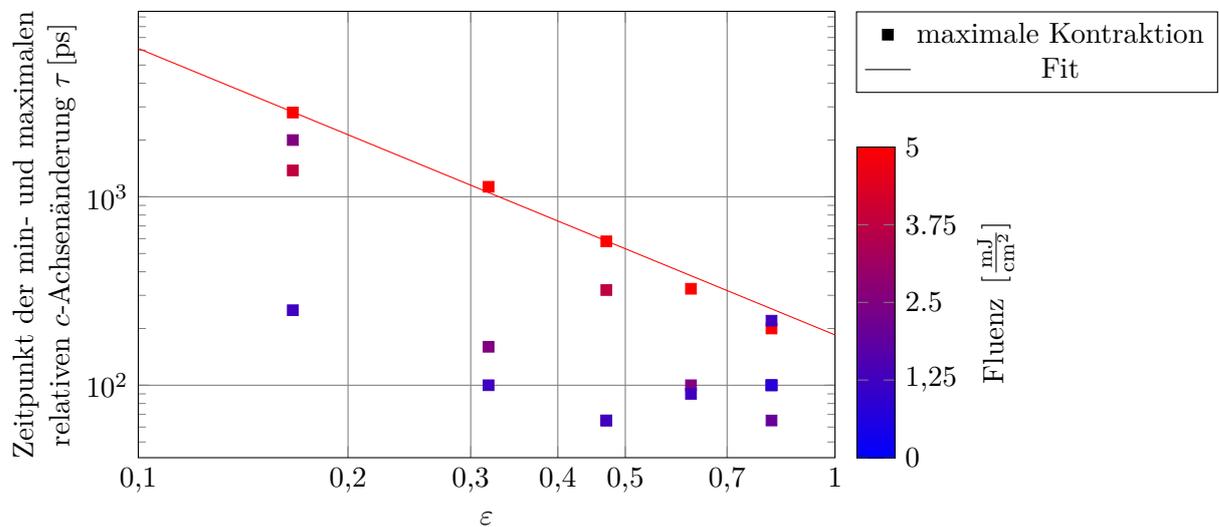


Abbildung 6.11: Zeitpunkt der globalen maximalen Kompression als Funktion der normierten Temperatur $\varepsilon = \frac{T_N - T}{T_N}$ in doppelt logarithmischer Darstellung für unterschiedliche Fluenzen. Die rote Linie zeigt den Fit, welcher mit einer Potenzfunktion $\tau = a\varepsilon^b$ mit $b = -1,5$ durchgeführt wurde.

6.4. Kühlen und wiederherstellen der magnetische Ordnung

In der PM-Phase kühlt die Holmiumschicht nach der Anregung durch die Yttrium- und Niobschicht an das Saphirsubstrat. Diese Kühlung kann durch die Wärmeleitungsgleichung beschrieben und numerisch berechnet werden. In Abbildung 6.12 sind die zeitaufgelösten Messdaten halblogarithmisch mit den Fits zur Bestimmung der Steigung für das Kühlen und analog für die Wiederherstellung der magnetischen Ordnung bei unterschiedliche Temperaturen und Fluenzen dargestellt. Ziel ist ein näherungsweise Überprüfen der Hypothese, dass die Dynamik durch Wärmetransport beschrieben werden kann. Dies ist möglich, da sich die Gitterausdehnung nach dem Verschwinden der kohärenten Phononen in der halblogarithmischen Darstellung in PM-Phase linear, sowie annähernd linear in der AFM-Phase mit der Temperatur ändert und somit als Temperatursensor genutzt werden kann.

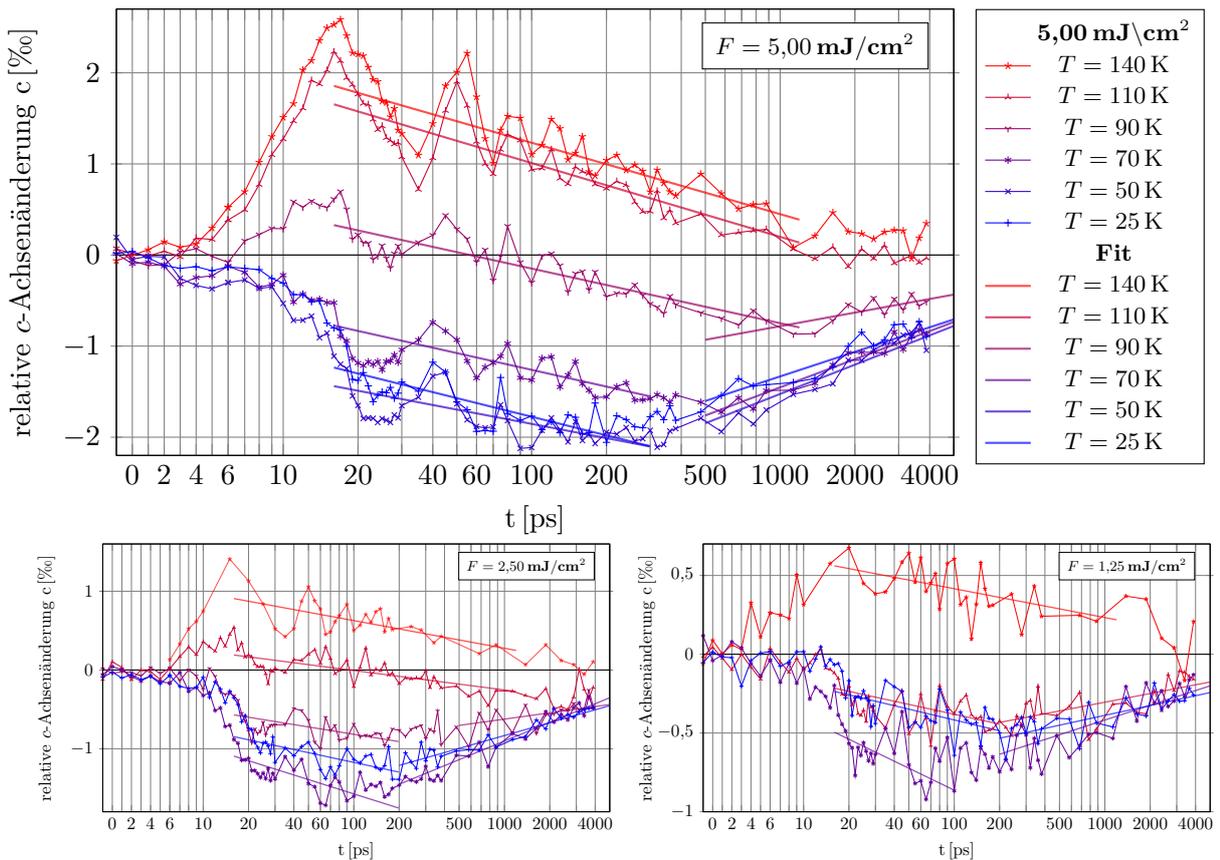


Abbildung 6.12: In der Zeitdomäne logarithmisch dargestellte Messdaten mit Fits für das Kühlen und die magnetische Wiederherstellung für drei Fluenzen.

Es ist gut zu erkennen, dass für eine konstante Fluenz die Fitgeraden annähernd parallel laufen. Des Weiteren lässt sich feststellen, dass mit steigender Fluenz der Betrag der Steigung sowohl beim Kühlen, als auch bei der Wiederherstellung der magnetischen Ordnung wächst. Dieser Zusammenhang der Steigung mit der Fluenz, lässt sich schon aus Gleichung (2.13) erkennen, welche einen linearen Zusammenhang des Wärmestroms (Steigung) mit dem Temperaturgradienten, der wiederum mit Fluenz skaliert, vorhersagt. In Abbildung 6.13 sind die bestimmten Steigungen für das Kühlen und die analogen Konstante für die Wiederherstellung der magnetischen Ordnung über der Fluenz für unterschiedliche Temperaturen dargestellt. Außerdem sind die numerisch ermittelten Werte aus einer Simulation für unterschiedliche Fluenzen eingezeichnet (Näheres zur Simulation im nachfolgenden Abschnitt 6.6).

Das beobachtete Verhalten für das Kühlen wie auch für die Erholung des Magnetismus ist sehr ähnlich. Dies deutet darauf hin, dass es sich ebenfalls um einen Wärmetransport handelt und

der Magnetismus sich aufgrund sinkender Temperaturen wiederherstellt. Die Steigung bei der Wiederherstellung der magnetischen Ordnung ist jedoch im Vergleich zur Steigung des Kühlens etwas größer, was an der größeren Änderung der Gitterkonstante pro Temperaturintervall in der AFM-Phase im Vergleich zu PM-Phase liegt (vergleiche hierzu mit Abbildung 4.10). Dem Effekt wirkt jedoch eine größere Wärmekapazität (Abbildung 4.4 a) in der AFM-Phase entgegen.

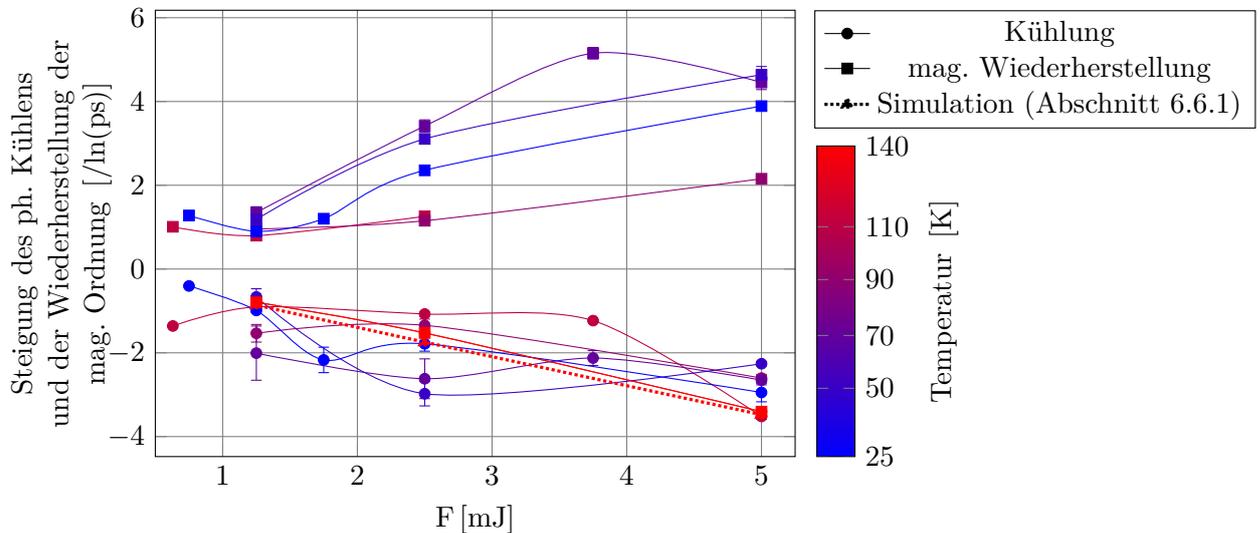


Abbildung 6.13: Abklingkonstante des Kühlens und der magnetischen Wiederherstellung der relativen c -Achsenänderung: Beide zeigen eine lineare Änderung mit der Fluenz, wobei die der Kühlung etwas größer ist, als die der magnetischen Wiederherstellung.

Somit lässt sich die Dynamik der c -Achse für späte Zeiten im Sinne eines Mehrtemperaturmodells erklären: Nach der Anregung sind das elektronische und phononische System wärmer als das magnetische, welche dann über die Niob- und Saphirschicht abkühlen. Dies kann jedoch nicht über einen Wärmetransport der Magnonen geschehen, da nur Holmium magnetische Eigenschaften aufweist. Erst nachdem das elektronische und das phononische System auf die Temperatur des magnetischen Systems gekühlt sind, können sie gemeinsam weiter kühlen. Ab diesem Punkt ist eine Expansion der Holmiumschicht zu beobachten, da der magnetische Ausdehnungskoeffizient im Betrag größer ist als der lineare Ausdehnungskoeffizient des phononischen Systems (siehe hierzu Abbildung 4.3 d).

6.5. Schallpropagationen

Die beobachtete Dynamik der Holmiumschicht in den ersten 100 ps wird durch kohärente Phononen beherrscht. Sie unterscheidet sich jedoch deutlich zwischen PM-Phase und AFM-Phase. Um die beobachtete Dynamik zu erklären, ist es nötig, die Propagation der Schallwellen ausgelöst durch das laserinduzierte Spannungsprofil und des kontraktiven Spannungsprofils der Holmiumschicht aufgrund des Nachlassens der Magnetostriktion zu verstehen. In Abbildung 6.14 ist ein Modell der Schallpropagation und die daraus resultierende c -Achsenänderung dargestellt. Das Modell ist qualitativ in Anlehnung an Schick et al. [2014b] erstellt worden. Hierbei wurden nur die Holmiumschicht (grün) und die dahinterliegende Yttriumschicht (grau) betrachtet. Auch werden Reflexionen an den Grenzschichten nur an der Oberfläche und an der Holmium-Yttrium-Grenzschicht in der PM-Phase in die Überlegung mit aufgenommen. Mit diesen Vereinfachungen lässt sich die Dynamik in den ersten 20 ps der Holmium- und Yttriumschicht qualitativ erklären. Unter Zuhilfenahme der Literaturwerte für die Schallgeschwindigkeit (Tabelle 4.1) ist es möglich, die Schichtdicken der Holmiumschicht zu ermitteln. Diese liegt aufgrund der Laufzeit von ungefähr 15 ps bei 40 nm, was zu den Daten der Reflektrometriemessung (Abschnitt 4.7) passt.

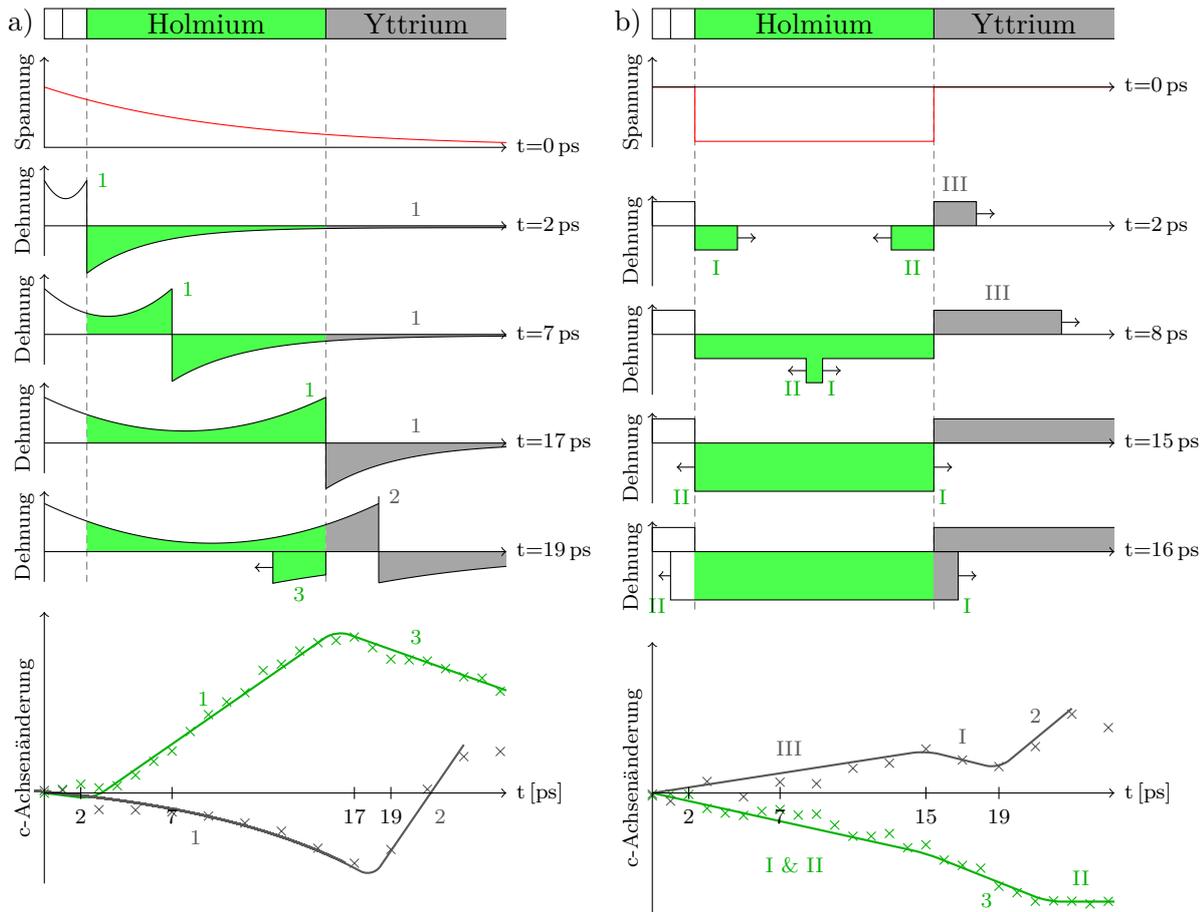


Abbildung 6.14: Schematische Analyse der Schallpropagation in der Probe innerhalb der ersten 25 ps verursacht durch das induzierte Spannungsprofil (Stressprofil) des Lasers (a) und infolge der kontraktiven Spannung der Holmiumschicht aufgrund des Nachlassens der Magnetostriktion (b):

In der PM-Phase a) wird eine Schallwellenfront (1) an der Oberfläche der Probe durch das induzierte Spannungsprofil ausgelöst, diese erreicht nach 2 ps die Holmiumschicht, wo sie zu einer linearen Ausdehnung führt. Gleichzeitig schiebt diese Schallwelle eine Kompression vor sich her, welche zu einer kontinuierlich wachsenden Kompression in der Yttriumschicht führt. Nach 17 ps läuft die expansive Schallwelle (2) aus der Holmiumschicht in die Yttriumschicht, in welcher sie als Expansion beobachtet wird. Da die Impedanz Z von Holmium größer ist, als die von Yttrium (siehe Tabelle 4.3) wird ein Teil der Schallwelle mit negativer Amplitude reflektiert (3), was als Kompression der Holmiumschicht sichtbar wird.

In der AFM-Phase gibt es zusätzlich zu denen aus der PM-Phase weitere Schallwellenfronten (I, II und III), welche an den Grenzschichten der Holmiumschicht durch die kontraktiven Spannung entstehen. Die Schallwelle III führt zu einer Expansion der der Yttriumschicht und die beiden Schallwellen I und II zu einer Kontraktion der Holmiumschicht. Nach 15 ps läuft die kontraktive Schallwelle I aus der Holmiumschicht in die Yttriumschicht, welche dadurch komprimiert wird, bis die an der Probenoberfläche entstandene Schallwelle 1 wieder zu einer Expansion der Yttriumschicht und Kompression der Holmiumschicht führt. Nach 17 ps wird die kontraktive Schallwelle II an der Oberfläche reflektiert und führt ab etwa 20 ps zu einem Anhalten der Holmiumkontraktion.

Für Messpunkte der c -Achsenänderung sind die Daten der 5 mJ/cm^2 bei 50 K und 140 K benutzt wurden.

6.6. Simulation

Um das thermoelastische Verhalten über einen längeren Zeitraum als 25 ps zu beschreiben, wurden mit dem UDKM1DSIM-Softwarepaket [Schick et al., 2014a] Simulationen erstellt. Dieses kann die Dynamik in einem eindimensionalen Kristall nach der Anregung berechnen und es berücksichtigt dabei den Wärmetransport in der Probe und seine Auswirkungen auf die Gitterausdehnung. Die strukturelle Dynamik wird mit dem Modell der linearen Kette (Abschnitt 2.2.2.1) berechnet. Das Softwarepaket erlaubt zudem die Simulation des Röntgensignals und dessen Änderung mit der Zeit. Dies wird jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht benötigt, da wir keine Intensitätsänderungen der Braggpeaks beobachten können. Somit entspricht die durchschnittliche Dehnung (strain) einer Schicht beziehungsweise eines Materials der beobachteten Verschiebung des Braggpeaks.

Die atomaren Eigenschaften für das Modell der linearen Kette werden der Datenbank des Softwarepaketes entnommen. Die Orientierungen der kristallinen Strukturen und Gitter wurde nach den Angaben des Probenherstellers und Literaturangaben für die Simulation aufbereitet. Für die Schallgeschwindigkeiten, die Wärmeleitfähigkeiten sowie den linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten wurden Literaturwerte und für die Eindringtiefe des Lasers wurden die mit dem Ellipsometer ermittelten Werte benutzt. Durch die Änderung von Schichtdicken und der absorbierten Fluenz kann die Simulation an die Daten angepasst werden. Als zeitliches Anregungsprofil wurde ein Deltaprofil gewählt, da es weniger Rechenzeit benötigt und Profile mit 30 fs bis 200 fs keinen sichtbaren Unterschied in den simulierten Daten zeigten. Es zeigt sich, dass eine absorbierte Fluenz von 2 mJ/cm^2 in der Simulation die Messungen mit einer Fluenz des einfallenden Lichtes von 5 mJ/cm^2 beschreibt. Die ist etwas geringer als die einfallende minus die reflektierte Fluenz (Abschnitt 4.4). Die Werte für die Schichtdicken der Probe sind in Tabelle 6.1 zusammengefasst.

Tabelle 6.1: Schichtdicken in der Simulation

	Niob	Yttrium	Holmium	Yttrium	Niob	Saphir
Dicke nach Probenhersteller	3 nm	2,5 nm	80 nm	70 nm	50 nm	500 μm
Dicke in der Simulation in Einheitszellen	7	7	70	52	50	5000
Dicke in der Simulation	3 nm	4 nm	39 nm	30 nm	23 nm	24 μm

Wie schon in Abschnitt 6.5 zeigt sich auch bei den Simulationen, dass die Holmiumschicht nur halb so dick ist, wie vom Probenhersteller an den Wachstumsparametern bestimmt. Ein ähnliches Ergebnis der Simulation erhält man nur, wenn eine doppelt so große Schallgeschwindigkeit in Holmium und Yttrium angenommen wird, wofür es jedoch keine hinreichenden physikalischen Gründe gibt. Über Niob und Saphir können keine Aussagen getroffen werden, da diese nicht zeitaufgelöst gemessen wurden. Für Niob wurde aus diesem Grund ebenfalls die halbe Schichtdicke angenommen. Die in der Simulation ermittelten Schichtdicken stehen in guter Übereinstimmung mit der Röntgenreflektrometriemessung (Abschnitt 4.7), dabei beträgt die Gesamtschichtdicke in der Simulation 99 nm im Vergleich 108 nm aus der Reflektrometrie. Die Saphirschicht muss so dick gewählt werden, dass an der Rückseite des Saphirsubstrates reflektierte Schallwellen innerhalb der simulierten Zeitdauer die obersten Schichten nicht erreicht.

6.6.1. Paramagnetische Phase

In der PM-Phase wird aus der Eindringtiefe für 800 nm Licht, dem zeitlichen Deltapulsprofil und der Fluenz von 2 mJ/cm^2 ein Temperaturprofil berechnet. Die Zeitabhängigkeit dieses Profils wird mit der Wärmeleitungsgleichung

$$c_p \rho \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa \frac{\partial T}{\partial z} \right) + S(z), \quad (6.3)$$

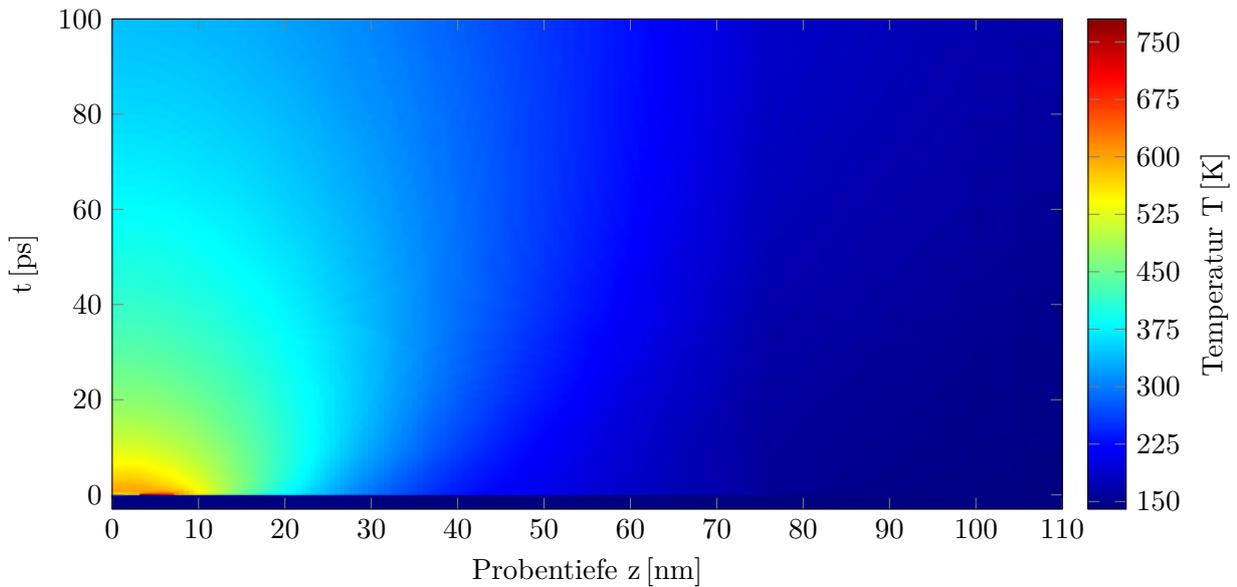


Abbildung 6.15: Temperaturprofil bei einer Simulation mit 2 mJ/cm^2 bei einer Starttemperatur von $T_{\text{Start}} = 140 \text{ K}$: Die Anregung des Lasers verursacht in der Probe ein Temperaturprofil, welches sich mit der Zeit ausbreitet.

ermittelt, wobei T die Temperatur, z die Probentiefe, t die Zeit, ρ die Dichte, c_p die Wärmekapazität, κ die Wärmeleitfähigkeit und $S(z)$ der Quellterm sind [Schick et al., 2014a]. Das so berechnete Profil ist in Abbildung 6.15 für die ersten 100 ps und 100 nm dargestellt. Das optisch induzierte Temperaturprofil führt zu einer thermischen Spannung im Material. Diese Spannung führt zu einer thermischen Ausdehnung, welche mit dem linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha = \frac{1}{L} \frac{dL}{dT}$ quantifiziert wird. In der Simulation wird dies dynamisch über das Modell der linearen Kette beschrieben. Dazu werden die Gleichungen (2.5) und (2.6) um einen Quellterm $F_{\text{Wärme}}$ ergänzt. Aus dieser Berechnung ergibt sich ein zeitabhängiges Dehnungsprofil (engl. strainmap)

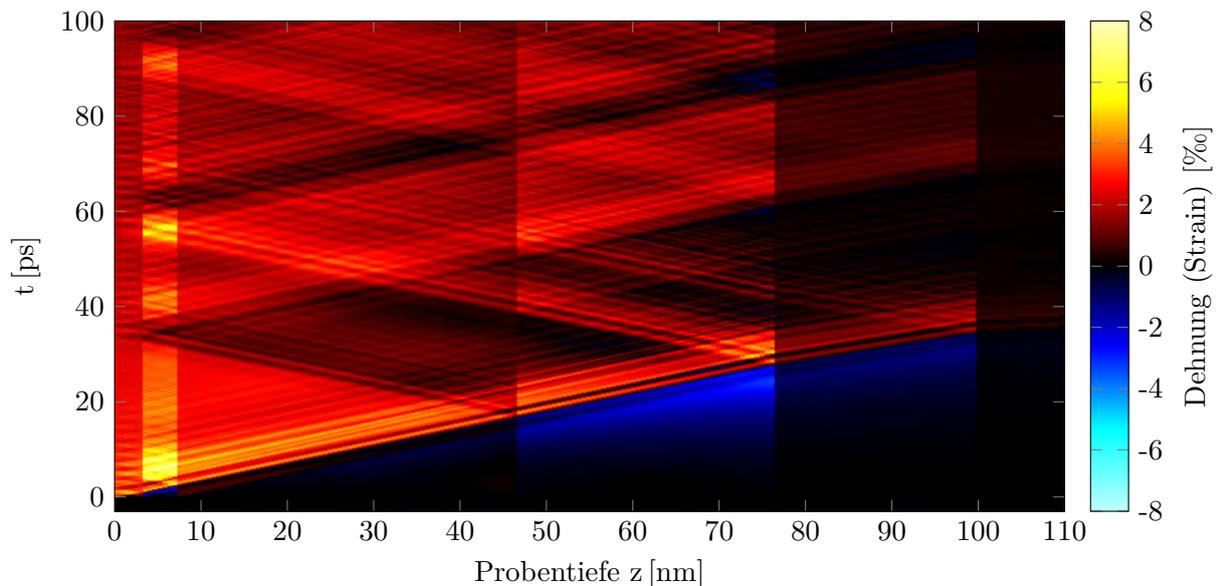


Abbildung 6.16: Dehnungsprofil bei einer Simulation mit 2 mJ/cm^2 bei einer Starttemperatur von $T_{\text{Start}} = 140 \text{ K}$: Die an der Oberfläche entstandene Schallwelle breitet sich durch die einzelnen Schichten aus, dabei wird ein Teil von ihr an den Grenzschichten reflektiert und der andere Teil transmittiert.

der Probe, welches in der Abbildung 6.16 für die 2 mJ/cm^2 Simulation gezeigt ist. Schnitte zu bestimmten Zeitpunkten lassen sich nun mit den Überlegungen aus Abbildung 6.14a vergleichen. Die entsprechenden Schnitte bei 2 ps, 7 ps, 16 ps und 19 ps sind in Abbildung 6.17 eingezeichnet.

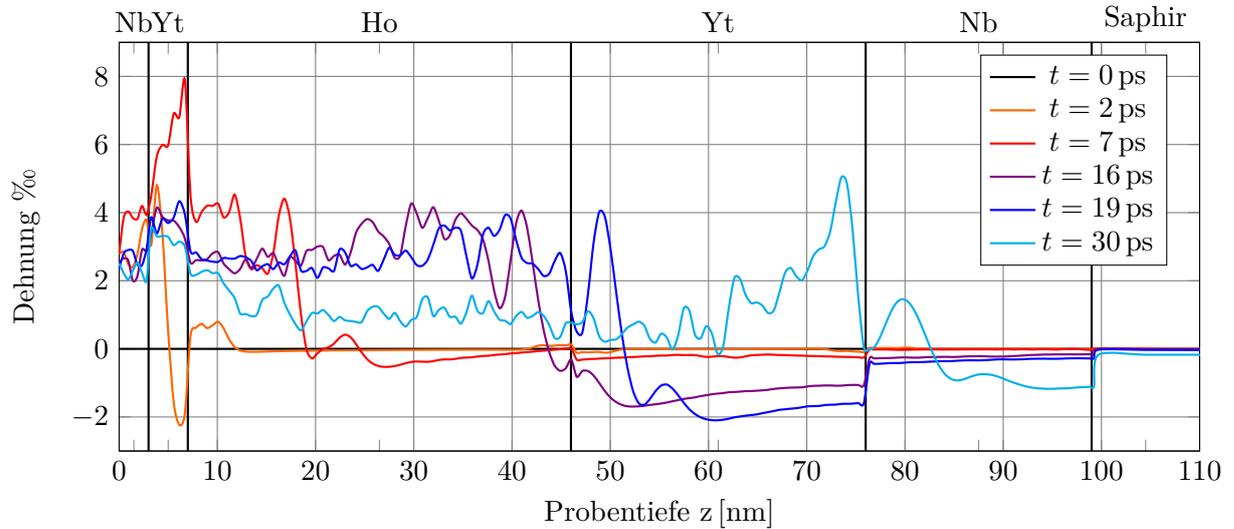


Abbildung 6.17: Schnitte zu unterschiedlichen Zeitpunkten der Strainmap zeigen die Schallpropagation in der Probe, vergleichbar mit der schematischen Abbildung 6.14: Die Kontraktion der Yttriumschicht setzt sofort nach der Anregung ein, während sie in Holmium verzögert einsetzt (2 ps). Nach circa 7 ps hat die Schallwelle die Hälfte der Holmiumschicht durchlaufen, bis sie nach 16 ps in die Yttriumschicht läuft (19 ps). Nach etwa 30 ps ist ein lokales Minimum der Holmiumexpansion zu beobachten. Die schnellen Oszillationen entstehen durch die Reflexion der Schallwellen an den dünnen Deckschichten.

Mittelt man nun über die Dehnung im jeweiligen Material, ergibt sich die durchschnittliche Gitterdehnung. Im Falle von Holmium ist dies auch gleichzeitig die durchschnittliche Schichtdickenänderung. Bei Yttrium gibt es jedoch zwei Schichten, da die Deckschicht jedoch nur 7 im Vergleich zu 70 Einheitszellen dick ist, lassen sich die beobachteten Änderungen der dicken Yttriumschicht zuordnen, da die 7 Einheitszellen dicke Schicht nur zu einer diffusen Verbreiterung des Untergrundes im Röntgensignal führt. Für die Simulation wird deshalb nur über die dicke Schicht gemittelt. In Abbildung 6.18 sind die Dehnung und die relative c -Achsenänderung aus der Messung für die Holmiumschicht und in Abbildung 6.19 für die Yttriumschicht dargestellt.

Die Simulation gibt sowohl das Verhalten über lange Zeiten (bis 4 ns), welches von Wärmetransport durch das Schichtsystem in das Saphirsubstrat dominiert wird, als auch die kohärente Dynamik in den ersten 200 ps korrekt wieder. Die für die Simulation richtigen Schichtdicken wurden anhand dieser Darstellung optimiert und befinden sich in Tabelle 4.3. Die beobachtete Verzögerung in der Holmiumschicht konnte dabei nur durch eine Vergrößerung der Deckschichten von 4 Einheitszellen eingestellt werden. Um die schnelle Vergrößerung der c -Achse innerhalb von 16 ps zu erklären, muss die Holmiumschichtdicke auf gut die Hälfte reduziert werden. Um anschließend die korrekte Periodizität der Oszillation der Holmiumschicht, welche durch Schallwellen beeinflusst wird, die an der hinteren Yttrium-Niob-Grenzschicht reflektiert wurden, und die richtige Amplitude der Yttriumdehnung zu beschreiben, muss die Yttriumschichtdicke ebenfalls fast um einen Faktor zwei dünner sein. Da die Schallwelle, welche an der Niob-Saphir-Grenzschicht reflektiert und dann in die Yttrium- und Holmiumschichten zurück reflektiert wird, eine zu kleine Amplitude hat, um die dort verursachten Änderungen zu beobachten, ist es nicht möglich, eine Aussage über deren Schichtdicke zu treffen. Sie wurde jedoch in den hier gezeigten Simulationen systematisch mit den anderen Schichten auf etwa die halbe Schichtdicke im Vergleich zur Angabe des Probenherstellers reduziert.

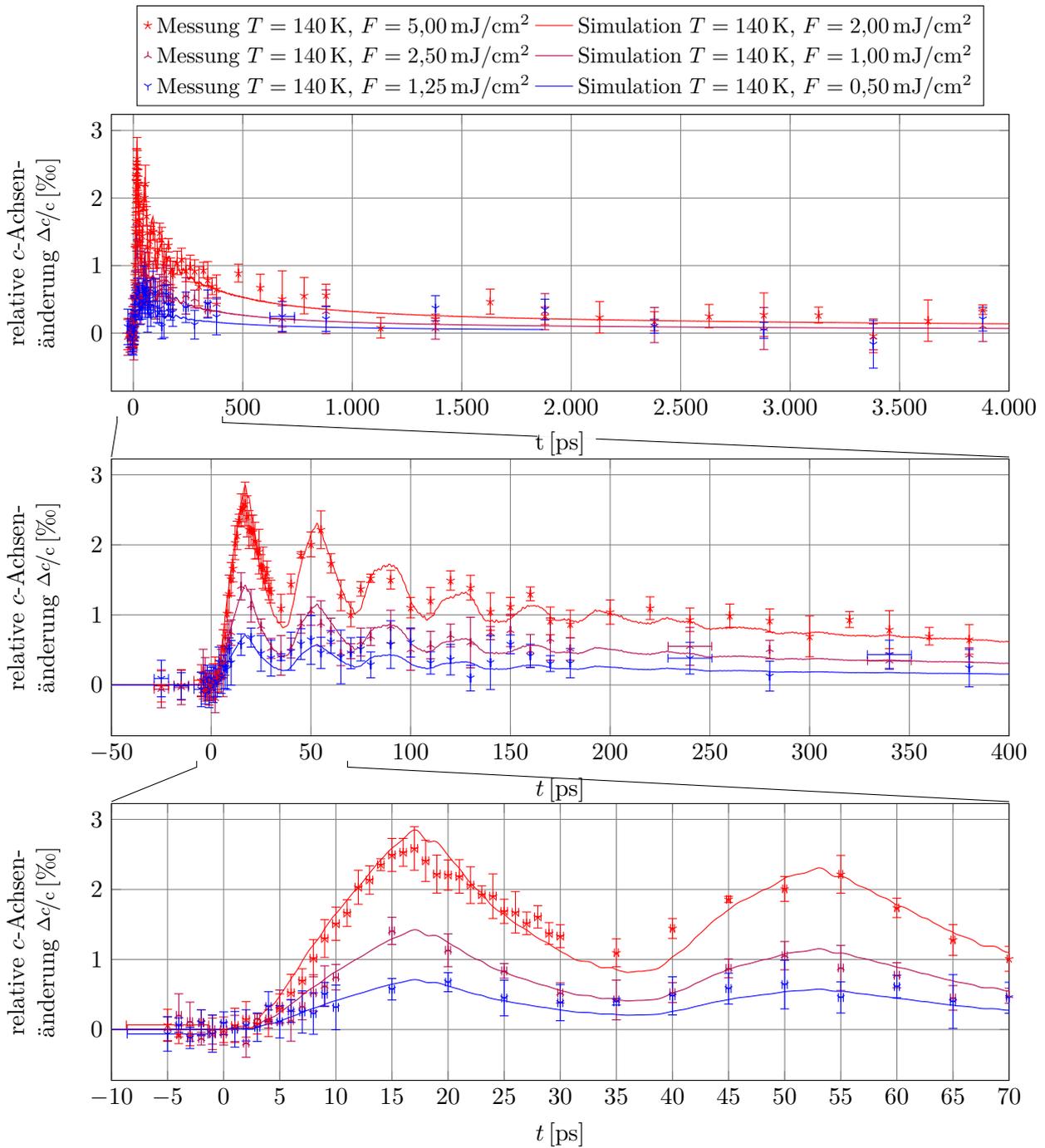


Abbildung 6.18: Holmium: Simulation im Vergleich zur Messung in der PM-Phase: Die Simulation gibt die Dynamik der c -Achse von Holmium bei 5 mJ/cm^2 , $2,5 \text{ mJ/cm}^2$ und $1,25 \text{ mJ/cm}^2$ (bei der Messung) beziehungsweise 2 mJ/cm^2 , 1 mJ/cm^2 und $0,5 \text{ mJ/cm}^2$ (bei der Simulation) sowohl zu späten Zeiten (bis 4 ns), als zu frühen Zeiten (bis 200 ps) korrekt wieder. Die Messdaten sind mit Fehlerbalken mit 1σ unter Berücksichtigung des Studentfaktors dargestellt.

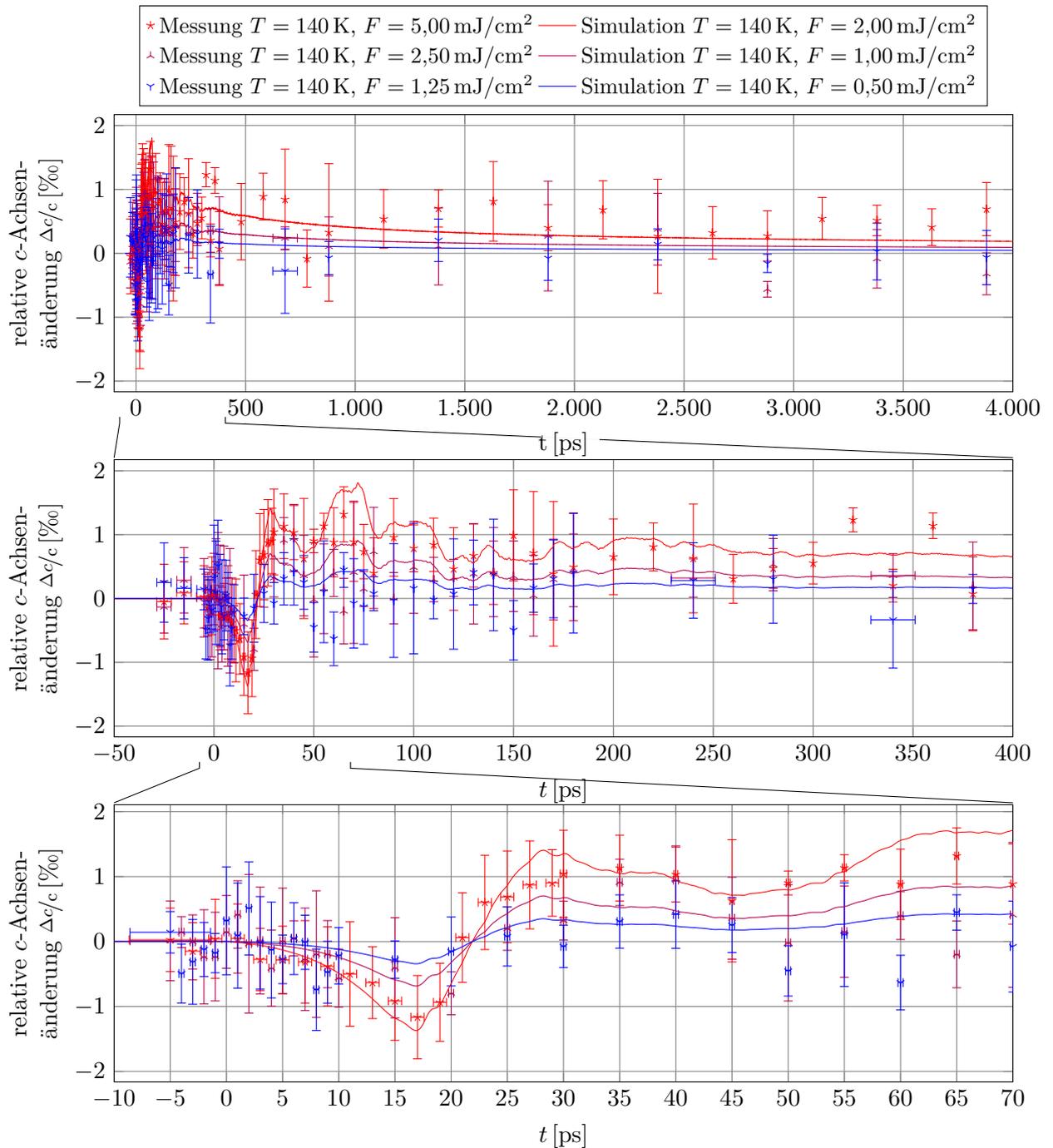


Abbildung 6.19: Yttrium: Simulation im Vergleich zur Messung in der PM-Phase: Die Simulation gibt die Dynamik der c -Achse von Yttrium bei 5 mJ/cm^2 , 2.5 mJ/cm^2 und 1.25 mJ/cm^2 (bei der Messung) beziehungsweise 2 mJ/cm^2 , 1 mJ/cm^2 und 0.5 mJ/cm^2 (bei der Simulation) sowohl zu späten Zeiten (bis 4 ns), als auch zu frühen Zeiten (bis 200 ps) korrekt wieder. Die Messdaten sind mit Fehlerbalken mit 1σ unter Berücksichtigung des Studentfaktors dargestellt.

Dieselben Simulation, wie in der Abbildung 6.18 gezeigt, zeigen auch für die Yttriumschicht eine qualitative Wiedergabe der kohärenten Dynamik. Sowohl die Kompression der Yttriumschicht, verursacht durch die Expansion der Holmiumschicht, als auch das Nachlassen der Kompression nach 17 ps und die darauffolgenden Oszillationen zeigen eine korrekte Wiedergabe der Messdaten.

6.6.2. Antiferromagnetische Phase

Im Rahmen dieser Masterarbeit soll ein erster Schritt in Richtung der Simulation der Gitterdynamik in der AFM-Phase erstellt werden. Hierzu wird Analog zur PM-Phase das Messsignal in der AFM-Phase simuliert. Dazu werden die Parameter aus der Simulation in der PM-Phase verwendet. Jedoch wird ein neues Spannungsprofil benutzt, welches in der Simulation künstlich durch ein Temperaturprofil gegeben wird. Um dieses zu generieren, wird die Wärmekapazität von Holmium auf $2/3$ des Wertes in der Simulation der PM-Phase eingestellt, dies entspricht dem Wert der Wärmekapazität bei 50 K ohne den magnetischen Anteil (siehe Abbildung 4.4). Zusätzlich muss ein Anteil zum Temperaturprofil addiert werden, der die Kontraktion aufgrund der Magnetostriktion beschreibt. Dazu wurden unterschiedliche Profile getestet, diese unterscheiden sich sowohl räumlich, als auch zeitlich. Als räumliches Profil wurde zuerst ein einfaches Rechteckprofil, wie in Abschnitt 6.5 verwendet. Weiterhin wurden gleichschenkelige Trapezprofile getestet. Neben dem räumlichen Profilen gibt es ein zeitlichen Profil. Im einfachsten Fall ist dies ein instantanes Angehen des räumlichen Profils. Neben diese wurden ein lineares und ein arkustangensförmiges Profil in Kombination mit zeitlichen Verzögerungen getestet. Das beste Ergebnis in der Simulation ergab jedoch ein Profil, welches dem Resultat eines Diffusionsprozess ähnelt.

Wie bereits erwähnt, basiert das Spannungsprofil in der Simulation auf einem Temperaturprofil. Dieses entspricht nahezu dem in der PM-Phase, jedoch ist die Temperatur in der Holmiumschicht geringer, da die phononische Wärmekapazität kleiner ist. Ausgehend von diesem Profil wird die Wärmesimulation erstellt. Um die Kontraktion der Holmiumschicht zu simulieren, wird ein orts- und zeitabhängiges Temperaturprofil

$$\sigma(z,t) = \begin{cases} 0 & \text{für } z \text{ nicht in Holmium und } t < 0,75 \text{ ps,} \\ -400 \text{ K} \cdot \exp\left(\frac{-z^2}{t \cdot 140 \text{ nm}^2/\text{ps}}\right) & \text{für } \frac{z}{\sqrt{t}} < 4,3 \text{ nm}/\sqrt{\text{ps}}, \\ -350 \text{ K} & \text{für } \frac{z}{\sqrt{t}} \geq 4,3 \text{ nm}/\sqrt{\text{ps}}, \end{cases} \quad (6.4)$$

welches dem Resultat eines Diffusionsprozess ähnelt, zu dem orts- und zeitabhängigen Profil aus der Wärmesimulation addiert. Dieses Profil existiert lediglich in der Holmiumschicht und entspricht einem negativen, sich mit der Zeit verbreiterndem Gaußprofil, welches bei -350 K sättigt. Die freien Parameter (zeitpunkt des Einsetzens = $0,75 \text{ ps}$, Amplitude = -400 K , Sättigung = -350 K und Varianz $140 \text{ nm}^2/\text{ps}$) wurden zum Anpassen der Simulation an die Messdaten verwendet. Die negativen Temperaturen in dem Temperaturprofil sind nur eine Hilfskonstruktion, die einem negativen linearen Ausdehnungskoeffizienten entspricht, da die Spannung σ proportional zum linearen Ausdehnungskoeffizienten α und zur Temperatur T ist (vgl. mit Gleichung 2.28). In Abbildung 6.20 sind Schnitte des Temperaturprofil $\sigma(z,t)$ dargestellt.

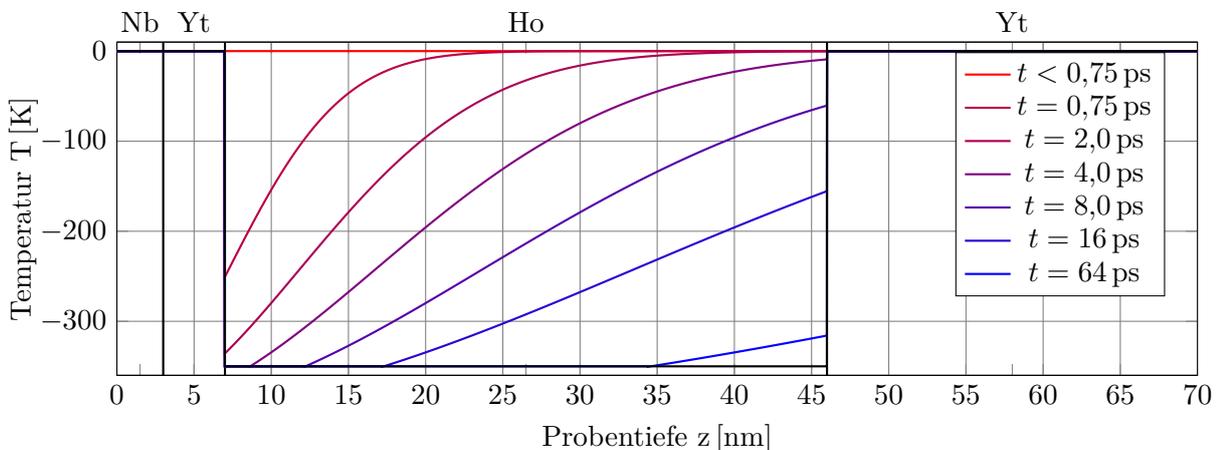


Abbildung 6.20: Schnitte zu unterschiedlichen Zeitpunkten zeigen die zeitliche Entwicklung des Temperaturprofils $\sigma(z,t)$.

Schnitte des gesamte zeit- und ortsabhängige Temperaturprofil inklusive des Beitrags der Wärmesimulation sind in Abbildung 6.21 gezeigt, als 2D-Farbplot ist das Profil ist in Abbildung 6.22 dargestellt.

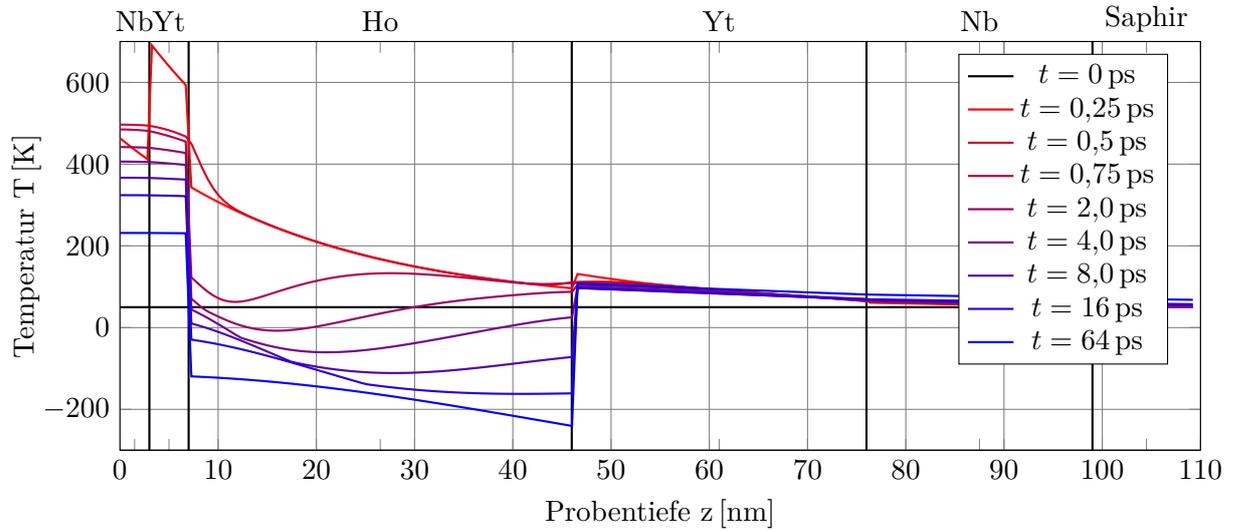


Abbildung 6.21: Schnitte zu unterschiedlichen Zeitpunkten des gesamten Temperaturprofils inklusive Wärmesimulation mit einer eingebrachten Fluenz von 2 mJ/cm^2 in der AFM-Phase bei einer Starttemperatur von $T_{\text{Start}} = 50 \text{ K}$. Es zeigen die Ausbreitung der Wärme sowie die Kontraktion der Holmiumschicht zu unterschiedlichen Zeitpunkten über die Probentiefe. Das Temperaturprofil beschreibt sowohl die thermische Dehnung, als auch die Kontraktion aufgrund der Magnetostriktion in der Holmiumschicht.

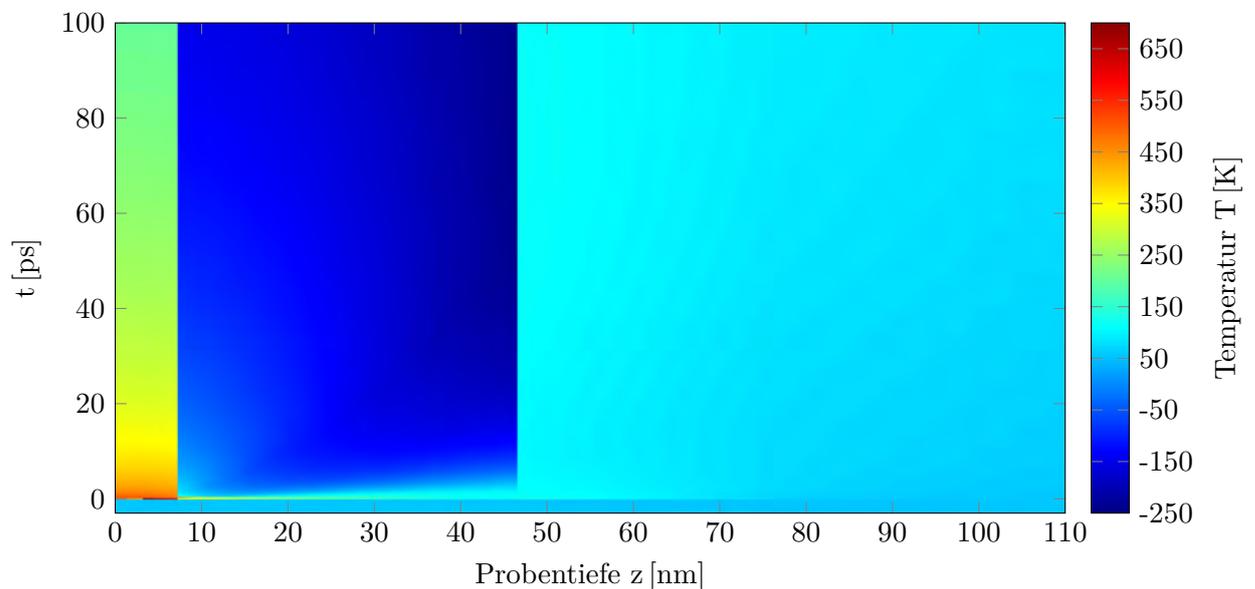


Abbildung 6.22: Das gesamte Temperaturprofil inklusive Wärmesimulation als 2D-Farbplot: Im Vergleich zu Abbildung 6.15 sind im Bereich Holmiumschicht negative Temperaturen vorhanden, welche die Kontraktion dieser Schicht beschreiben.

Das Temperaturprofil $\sigma(z,t)$ soll einen diffusiven Prozess beschrieben, welcher die magnetische Ordnung zerstört. Dieser Prozess hat zum Zeitpunkt 0 ein Gaußprofil, welches mit der Zeit breiter wird, ähnlich der Lösung der Diffusionsgleichung. Jedoch gibt es keine Reduzierung der Amplitude

mit \sqrt{t} , da sich der Magnetismus nicht erholen soll. Zudem gibt es einen Schwellwert, der, wenn er überschritten wird, beschreibt, dass das magnetische System vollständig angeregt ist. Dann erfolgt auch keine weitere Kontraktion mehr. Bei der Optimierung des Profils hat sich zudem ergeben, dass eine Verzögerung von 0,75 ps bevor dieses Profil einsetzt, die Dynamik von Yttrium besser wiedergibt. Eine noch größer Verzögerung von 1,5 ps würde das zeitliche Verhalten noch besser beschreiben, in diesem Fall sagt die Simulation jedoch eine Expansion der Holmiumschicht zu frühen Zeitpunkten voraus, welche wir experimentell nicht beobachten. Diese Verzögerung lässt sich als Wechselwirkungszeit mit dem magnetischen System ansehen. Die Optimierung des Potentials $\sigma(z,t)$ ist dabei vor allem auf den Mittelwert und die Steigung des Profil sensitiv, sowie auf die entstehenden Flanken.

Im zeitabhängigen Temperaturprofil aus Abbildung 6.22 ist die Ausbreitung aufgrund der Zeit- und Ortsabhängigkeit der Kontraktion zu erkennen, zusätzlich addiert sich noch der Wärmefluss von den Deckschichten Richtung Substrat.

In Abbildung 6.21 sind mehrere Schnitte dieses Profil zu unterschiedlichen Zeitpunkten abgebildet. Sie zeigen, wie sich das laserinduzierte Temperaturprofil nach der Anregung ändert: Zu Beginn zeigt es noch scharfe Kanten an den Materialübergängen (0,25 ps), diese verteilen sich durch die Wärmediffusion auf ihre Umgebung. Nach 0,5 ps setzt die Kompression ein, welche innerhalb von 50 ps ihr Minimum erreicht. An diesem Punkt wäre es möglich, auch eine Wiederherstellung der magnetischen Ordnung mit der dem bestimmten Steigungsparameter aus 6.4 zu implementieren, jedoch wäre hier keine Aussage über das Profil möglich, außer dass es keine Schallwellen produziert und somit keine sich schnell ändernden Teile besitzt.

Um den zeitlichen Verlauf der durchschnittlichen Kontraktion, welche durch das Temperaturprofil (6.4) im Modell beschrieben wird, darzustellen, wurde der Flächeninhalt des Profils integriert. Hierbei ergibt sich die Fläche

$$A(t) = \int \sigma(z,t) dz \quad (6.5)$$

unter Kurve als zeitabhängige Funktion. In Abbildung 6.23 ist Flächenabnahme $A(t)/|A_{min}|$ dargestellt. Nach einer Zeit τ von 5,4 ps in der die Fläche unter der Kurve auf die Hälfte maximalen Rückgangs abgefallen.

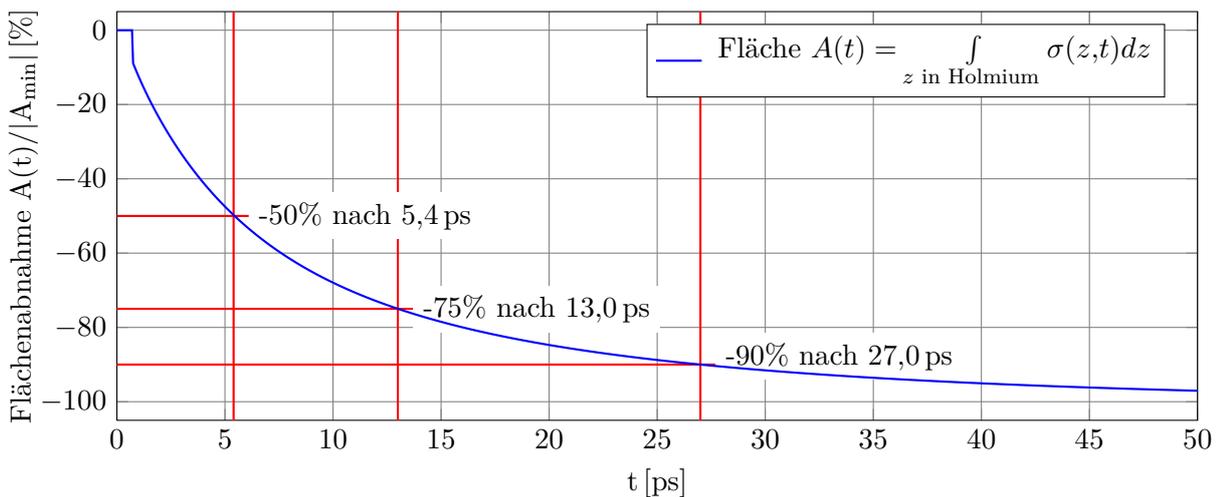


Abbildung 6.23: Reduzierung der Fläche des integrierten Temperaturprofils (6.4) über die Zeit. Bereits nach 5,4 ps ist die Fläche unter der Kurve auf die Hälfte maximalen Rückgangs abgefallen.

Analog zur Simulation in der PM-Phase lässt sich mit dem Kombinierten Temperaturprofil die kohärente Dynamik in der Probe berechnen. Als Ergebnis ergibt sich das zeitabhängige Dehnungsprofil in Abbildung 6.24. Im Vergleich zum Dehnungsprofil aus Abbildung 6.16 fallen vor

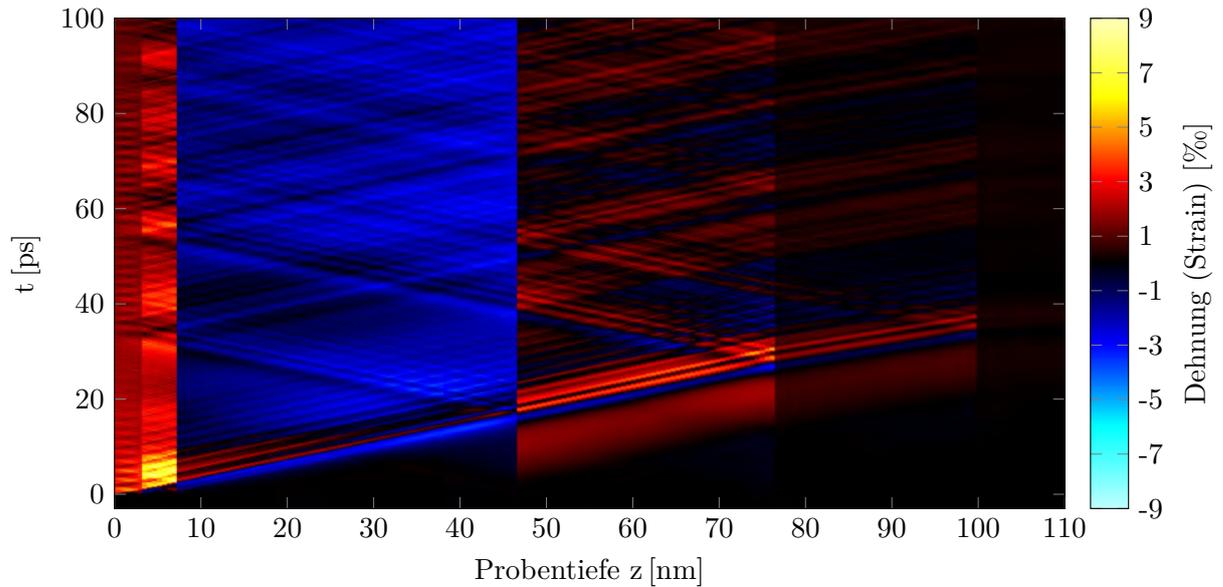


Abbildung 6.24: Dehnungsprofil bei einer Simulation mit 2 mJ/cm^2 in der AFM-Phase bei einer Starttemperatur von $T_{\text{Start}} = 50 \text{ K}$: Die an der Oberfläche und an den Holmiumgrenzschichten entstandenen Schallwellen breiten sich durch die einzelnen Schichten aus, dabei wird ein Teil von ihnen an den Grenzschichten reflektiert und ein anderer Teil transmittiert.

allein die Kontraktion der Holmiumschicht, sowie die anfängliche Expansion der Yttriumschicht auf. Für dieses Profil sind Schnitte zu unterschiedlichen Zeitpunkten in Abbildung 6.25 dargestellt.

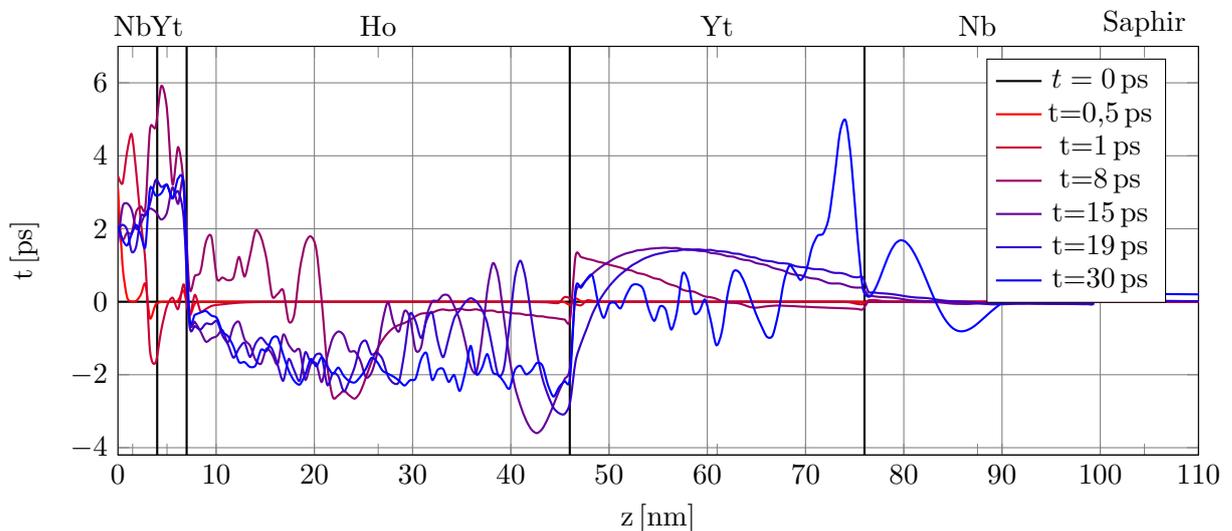


Abbildung 6.25: Schnitte zu unterschiedlichen Zeitpunkten der Strainmap zeigen die Schallpropagation in der Probe, vergleichbar mit der schematischen Abbildung 6.14 b: Die Kontraktion der Holmiumschicht sowie die Expansion der Yttriumschicht setzen mit einer Verzögerung von $0,5 \text{ ps}$ nach der Anregung ein. Nach circa 8 ps treffen sich beiden Schallwellen, welche von beiden Holmiumgrenzschichten ausgehen, in der Mitte der Holmiumschicht. Nach 30 ps entspricht die Kontraktion der Holmiumschicht nahezu dem Temperaturprofil aus Abbildung 6.21. In Abbildung 6.24 ist jedoch zu erkennen, dass zu diesem Zeitpunkt noch Schallwellen durch die Probe propagieren.

Im Vergleich zur PM-Phase (Abbildung 6.17) ist es deutlich schwieriger die Schallwellen zu identifizieren. Zudem kann das Profil der Schallwelle durch das komplexe Anregungsprofil nicht wie in der schematischen Skizze 6.14 durch Rechteckprofile beschrieben werden. Zum Zeitpunkt 8 ps ist jedoch die typische Form zweier Schallwellen, die von den Holmiumgrenzflächen ausgehen und sich in der Mitte treffen, zu erkennen. In Abbildung 6.26 sind die durchschnittliche Dehnungen der Holmium und Yttriumschicht im Vergleich mit den Messdaten, der c -Achsenänderung von Holmium und Yttrium dargestellt. Anhand dieser Messdaten wurden die freien Parameter des Temperaturprofils (6.4) optimiert.

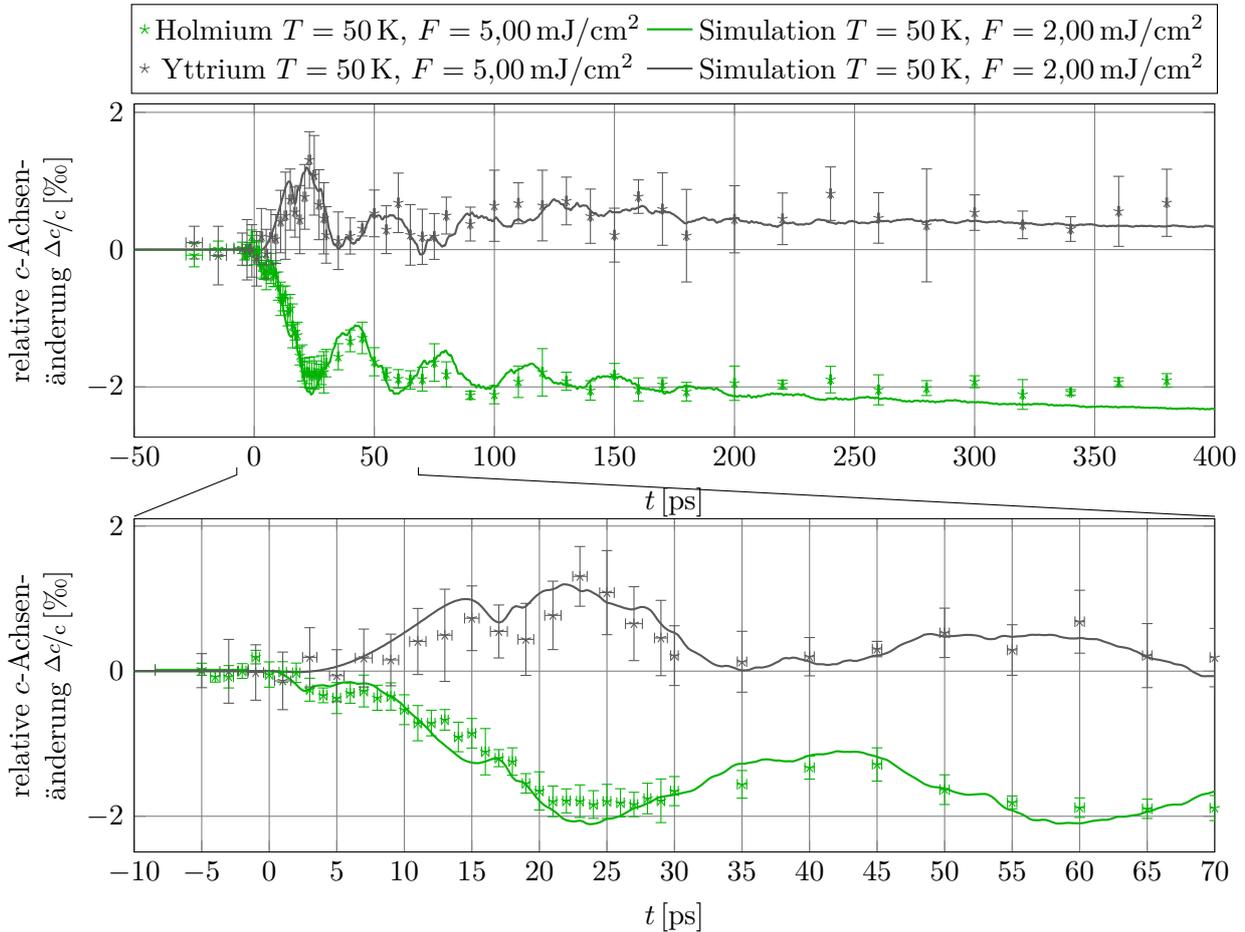


Abbildung 6.26: Simulation im Vergleich zur Messung in der AFM-Phase: Die Simulation gibt die Dynamik der c -Achse von Holmium (grün) und Yttrium (grau) bei 5 mJ/cm^2 (bei der Messung) beziehungsweise 2 mJ/cm^2 (in der Simulation) sowohl zu mittleren Zeiten (bis 400 ps), als zu frühen Zeiten (bis 70 ps) korrekt wieder. Die Messdaten sind mit Fehlerbalken mit 1σ unter Berücksichtigung des Studentfaktors dargestellt.

Auch die kleine Kompression in der Yttriumschicht bei 10 ps , die in Abbildung 6.14 diskutiert wurde, und das Ausbleiben der Kontraktion zu frühen Zeiten (4 ps bis 7 ps) in der Holmiumschicht werden korrekt simuliert. Die Oszillationen werden über die Simulationszeit quantitativ wiedergegeben. Ab circa 250 ps beginnt die Simulation eine zu große Kompression für die Holmiumschicht vorherzusagen, dies ist der Zeitpunkt an dem der Magnetismus beginnt sich wiederherzustellen (Abschnitt 6.4), was in der Simulation nicht modelliert ist.

Hierbei zeigt sich, dass das einem Diffusionsprozess angelehnte Profil im Gegensatz zu einem Rechteck- oder Trapezprofil die Messdaten wiedergeben kann. Dabei wird sowohl die Amplitude

der Schallwelle, als auch die Amplitude der Kontraktion korrekt wiedergegeben. Dies war mit den getesteten Rechteck- und Trapezprofilen nicht möglich. Durch die Verwendung einer Verzögerung von 0,75 ps konnte die Amplitude der ersten Kontraktion der Holmiumschicht nach 2 ps bis 3 ps sowie das verzögerte Einsetzen der Yttriumexpansion modelliert werden.

Beim Vergleich unterschiedlicher Profile stellte sich heraus, dass das Ergebnis der Simulation hinsichtlich des räumlichen Profils vor allem auf die Mittelwert und die Steigung des Profils sensitiv ist.

Zusammenfassung

Diese Arbeit bietet einen Einblick in die Dynamik der ultraschnellen Magnetostriktion von Holmium in der antiferromagnetischen Phase. Dabei wurde eine dünne Heterostruktur aus seltenen Erden auf einem Saphirsubstrat untersucht, wobei sich eine Holmiumschicht zwischen Niob- und Yttriumlagen befindet. Diese Probe wurde im Rahmen dieser Arbeit charakterisiert. Dafür wurde ihre Gesamtschichtdicke mittels Röntgenreflektometrie zu 108 nm bestimmt. Die c -Achsenänderung jeder Schicht wurde über den relevanten Temperaturbereich von 15 K bis 300 K mittels Röntgenbeugung ermittelt. Hierbei zeigt sich der Einfluss der Magnetostriktion in Form einer Expansion des Gitters entlang der c -Achse unterhalb von 131 K. Für die Simulation der Dynamik wurde außerdem die optische Eindringtiefe der Probe mit einem Ellipsometer ermittelt.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf den zeitaufgelösten ultraschnellen Röntgenmessungen. Dazu wurden Temperaturen und Fluenzmessreihen der zeitaufgelösten Gitterdynamik nach der Anregung mit einem 50 fs langen, 800 nm Laserpuls in einem Anrege-Abfrage-Aufbau gemessen. Der Abfrageröntgenpuls mit einer Pulsdauer kleiner 200 fs wird mit einer Plasmaröntgenquelle generiert. Mit der zeitaufgelösten Röntgenbeugung wurde die c -Achsenänderung nach der Anregung zeitaufgelöst beobachtet.

Aus der ermittelten statischen c -Achsenänderung und der Wärmekapazität, welche von Gerstein et al. [1957] und Jayasuriya et al. [1985] gemessen wurde, konnten mit einem Gleichgewichtsmodell die maximale Expansion und Kontraktion der c -Achse nach der optischen Anregung vorhergesagt werden. Das Modell ist jedoch nicht in der Lage, Aussagen über die Zeitskalen zu treffen, wann diese Ereignisse eintreten. Die beobachtete Dynamik in den ersten 500 ps konnte durch Schallwellen erklärt werden, welche an der Oberfläche, sowie in der AFM-Phase an den Holmium-Yttrium Grenzschichten entstehen und durch die Probe propagieren. Der Zeitpunkt der maximalen Kontraktion der Holmiumschicht wird der Zeit zugeordnet, zu der die Wiederherstellung der magnetischen Ordnung beginnt, also wenn das elektronische und phononische System genügend abgekühlt ist, dass auch ein Kühlen des magnetischen Systems beginnen kann. Für hohe Fluenzen nimmt die Zeit der maximalen Kontraktion mit steigender Starttemperatur zu. Dies kann im Rahmen der Theorie der kritischen Fluktuationen erklärt werden.

Mit dem `udkm1Dsim`-Softwarepaket konnten Simulationen erstellt werden, welche die Dynamik der Probe in der PM-Phase wiedergeben. Durch Einführung eines Profils, das das Nachlassen der Magnetostriktion innerhalb weniger Pikosekunden nach der Anregung beschreibt, konnte die Dynamik in der AFM-Phase beschrieben werden. Außerdem konnte gezeigt werden, dass die Kontraktion auf beiden Seiten der Holmiumschicht auftritt und damit zwei gegenläufige Schallwellen erzeugt. Außerdem ergab die Analyse, dass das Nachlassen der Magnetostriktion kein instantaner Prozess sein kann, sondern über einen zeitlichen Verlauf aufweist.

In physikalischer Hinsicht gibt es noch einige Experimente die untersucht werden könnten. Dazu zählen zum einen das Anlegen eines externen Magnetfeldes, welches die FM-Phase stabilisieren sollte, was im Gegenzug es ermöglicht Experimente in dieser Phase durchzuführen. Zum anderen wäre eine Anregung mit höher energetischem Licht von Interesse, dieses würde die $4f$ -Elektronen direkt anregen, oder THz-Strahlung, welches das magnetische System direkt anregt. Hier wäre es interessant, ob weiterhin die gleiche Pulsenergie benötigt wird, um eine ähnliche Gitterkontraktion hervorzurufen. Durch die Änderung der Anregung könnten sich neue Zeitskalen ergeben, die es ermöglichen Wechselwirkungszeiten unterschiedlicher Kopplungen zu identifizieren.

Hinsichtlich der Auswertung wäre ein Drei-Temperaturmodell in der Simulation denkbar, dieses könnte sowohl, die Anregung des elektronischen und phononischen als auch des magnetischen Systems nachbilden und es ließen sich charakteristische Zeiten für alle drei Systeme zu finden.

A. Anhang

A.1. Bestimmung des Eindringprofils

Mit der Ellipsometrie lassen sich die dielektrischen Eigenschaften einer Probe untersuchen. Es lassen sich direkt der Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion und daraus Real- und Imaginärteil des Brechungsindex bestimmen. Für dünne Schichten lassen sich auch die Schichtdicken ermitteln solange die optische Eindringtiefe größer ist als die Schichtdicke oder geeignete Referenzmessungen zur Verfügung stehen. Im Energiebereich des vorhandenen Ellipsometers und aufgrund der Metallizität der Proben ist diese Methode vor allem oberflächensensitiv. Da Metalle eine geringe Eindringtiefe besitzen, war es mit der Methode nicht möglich, die Schichtdicken zu ermitteln, jedoch lässt sich aus dem Imaginärteil die optische Eindringtiefe bestimmen, welche für die Analyse der Dynamik von Bedeutung ist.

Wir verwenden ein Ellipsometer mit einem Energiebereich von 0,48 eV (2600 nm) bis 5,4 eV (230 nm). Das Ellipsometer stellt einen bestimmten Polarisationszustand des Lichts ein, das auf die Probe trifft. Nach der Reflexion ist das Licht aufgrund der unterschiedlichen Fresnelreflexionskoeffizienten für parallel (r_p) und senkrecht (r_s) polarisiertes Licht elliptisch polarisiert. Die Fresnelgleichungen

$$r_p = \frac{n_2 \cos \varphi_1 - n_1 \cos \varphi_2}{n_2 \cos \varphi_1 + n_1 \cos \varphi_2}, \quad r_s = \frac{n_1 \cos \varphi_1 - n_2 \cos \varphi_2}{n_1 \cos \varphi_1 + n_2 \cos \varphi_2} \quad (\text{A.1})$$

beschreiben dabei den Zusammenhang zwischen Einfallswinkel und optischen Eigenschaften. Dabei sind n_i die komplexen Brechungsindizes und φ_i der Winkel des einfallenden und gebrochenen Lichtes nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz (Abbildung A.1). Werden mehr als 2 unterschiedliche Schichten betrachtet, lassen sich die Fresnelgleichungen für jeden Film aufschreiben und das Gleichungssystem numerisch oder mit dem Matrixformalismus nach Abelés lösen [Tompkins und McGahan [1999], Röseler und Korte [2006]].

Mit einem rotierenden Analysator und einem Spektrometer lässt sich das reflektierte Licht energieaufgelöst detektieren und aus der Intensitätsmodulation bei der Rotation des Analysators die dielektrische Funktion berechnen. In Abbildung A.2 ist der Aufbau schematisch dargestellt.

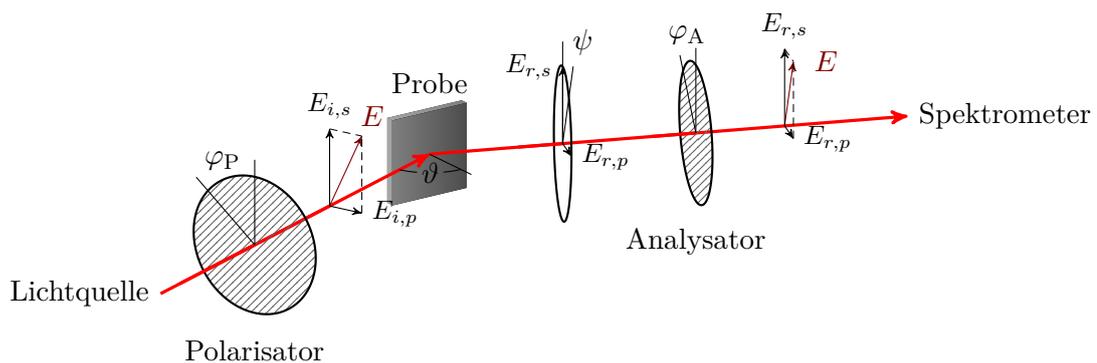


Abbildung A.2: Aufbau eines Ellipsometers: Polarisiertes Licht fällt auf Probe. Das reflektierte Licht wird mit einem Analysators polarisations sensitiv detektiert.

Das Ellipsometer misst dabei Verhältnis der parallel zur Einfallsebene (r_p) und senkrecht zur Einfallsebene (r_s) reflektierten Amplituden durch

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} := \tan(\psi) e^{i(\Delta_p - \Delta_s)} = \tan(\psi) e^{i\Delta}. \quad (\text{A.2})$$

Das Messverfahren ist sensitiv auf die Phasendifferenz zwischen den elektromagnetischen Wellen.

Dies kann mit den beiden Messparametern ψ und Δ beschrieben werden, wobei $\tan \psi$ dem Betrag von ρ entspricht und Δ die Änderung der Phasendifferenz zwischen s - und p -polarisiertem Licht ist. Der Vorteil dieser Methode ist, dass keine Referenzmessung nötig ist, da nur das Amplitudenverhältnis benutzt wird. Die Messdaten der Holmiumprobe sind in der Abbildung A.3 dargestellt.

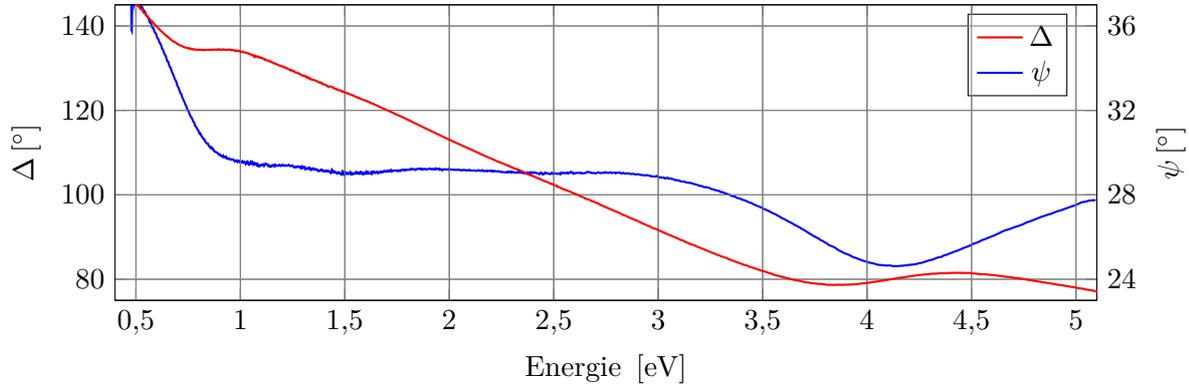


Abbildung A.3: Messergebnis Δ und ψ der Probe.

Für die korrekte Interpretation der Messdaten ist ein Modell für die dielektrische Funktion zu finden. Dieses lässt sich mit dem Programm SpectraRay/3 mittels mehrerer Lorentzoszillatoren erreichen. Das Lorentzoszillatormodell beschreibt einen getriebenen harmonischen Oszillator mit der Eigenfrequenz ω_0 , welcher über eine Dämpfung Γ verfügt und durch ein Lichtfeld $E = \frac{4\pi N E}{\varepsilon - 1} x$ getrieben wird. Dieser wird durch die Differentialgleichung

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} + m\Gamma \frac{dx}{dt} + m\omega_0 x = -e E e^{i\omega t} \quad (\text{A.3})$$

beschrieben. Unter der Annahme, dass das die Wechselwirkung des Lichtfeld mit N makroskopischen Oszillatoren unter zur Hilfenahme des atomaren Dipolmomentes α beschreibt, lässt sich das elektrische Feld als $E = \frac{e}{\alpha} x = \frac{4\pi N e}{\varepsilon - 1} x$ beschreiben und es ergibt sich als Lösung der Differentialgleichung A.3 die dielektrische Funktion [Tompkins und McGahan, 1999]

$$\varepsilon = 1 + \frac{4\pi N e^2}{m} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega) - i\Gamma\omega}. \quad (\text{A.4})$$

Um die Messdaten zu beschreiben wurden 4 Oszillatoren verwendet, woraus sich die dielektrische Funktion in Abbildung A.4 ergibt.

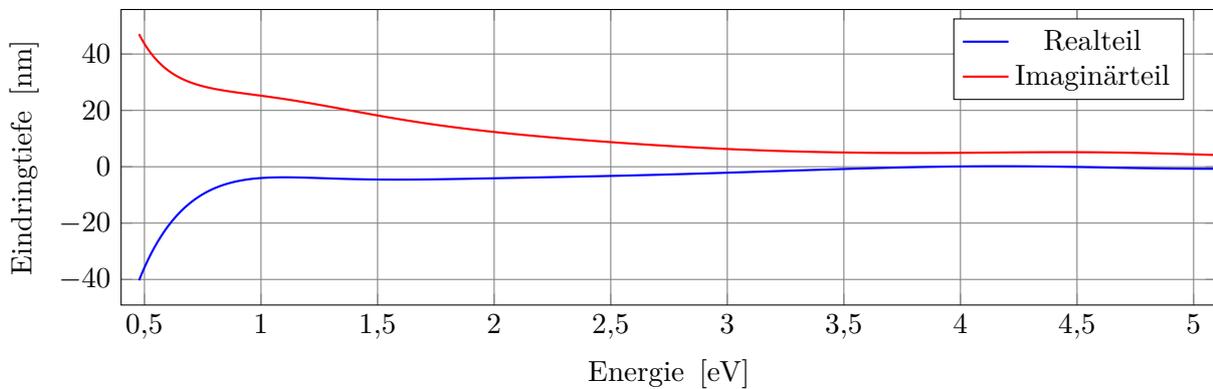


Abbildung A.4: Real- und imaginärteil der ermittelte dielektrische Funktion ε der Probe. Aus dem Imaginärteil lässt sich die Eindringtiefe ermitteln (siehe Abschnitt 4.5)

A.2. Messungen

Die folgenden Tabellen geben einen Überblick zu welchen Parametersets zeitaufgelöste Messungen mit voller RSM (Tabelle 1.1) und Einwinkelmessungen (Tabelle 1.2) durchgeführt worden sind.

Tabelle 1.1: Zeitaufgelöste Messungen mit voller RSM

Temperatur	Fluenz	Tag
70 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	09.04.2014
70 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	10.04.2014
70 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	11.04.2014
70 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	16.04.2014
90 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	23.04.2014
90 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	23.04.2014
90 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	24.04.2014
140 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	25.04.2014

Tabelle 1.2: Zeitaufgelöste Einwinkelmessungen

Temperatur	Fluenz	Tag	Temperatur	Fluenz	Tag
140 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	29.04.2014	110 K	3,75 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	14.05.2014
50 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	09.05.2014	110 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	14.05.2014
50 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	09.05.2014	110 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	14.05.2014
50 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	09.05.2014	110 K	3,75 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	15.05.2014
50 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	09.05.2014	110 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	15.05.2014
70 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	12.05.2014	110 K	0,63 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	15.05.2014
70 K	3,75 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	12.05.2014	140 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	16.05.2014
70 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	12.05.2014	140 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	16.05.2014
70 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	12.05.2014	25 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	05.05.2014
140 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	13.05.2014	25 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	05.06.2014
90 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	13.05.2014	25 K	2,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	06.06.2014
90 K	2,50 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	13.05.2014	25 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	06.06.2014
90 K	1,25 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	13.05.2014	25 K	1,75 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	16.06.2014
110 K	5,00 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	14.05.2014	25 K	0,75 $\frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$	16.06.2014

Literaturverzeichnis

- N. W. Ashcroft und D. N. Mermin. *Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag, München, 4. edition, 2013. ISBN 978-3-486-71301-5. (Zitiert auf Seite 9, 10, 11)
- M. Bargheer, N. Zhavoronkov, R. Bruch, H. Legall, H. Stiel, M. Woerner, und T. Elsaesser. Comparison of focusing optics for femtosecond x-ray diffraction. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 80(6):715–719, may 2005. doi: 10.1007/s00340-005-1792-7. (Zitiert auf Seite 21)
- M. Bargheer, N. Zhavoronkov, M. Woerner, und T. Elsaesser. Recent progress in ultrafast x-ray diffraction. *ChemPhysChem*, 7(4):783–792, 2006. ISSN 1439-7641. doi: 10.1002/cphc.200500591. URL <http://dx.doi.org/10.1002/cphc.200500591>. (Zitiert auf Seite 6)
- E. Beaurepaire, J. C. Merle, A. Daunois, und J. Y. Bigot. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Phys. Rev. Lett.*, 76(22):4250–4253, May 1996. doi: 10.1103/physrevlett.76.4250. (Zitiert auf Seite 14, 15)
- A. Bekkali. *Spezifische Wärme von Holmium und YNi₂B₂C: Kritisches Verhalten und supraleitende Eigenschaften*. PhD thesis, Forschungszentrum Dresden-Rossendorf e.V. Institut Hochfeld-Magnetlabor Dresden, 2010. (Zitiert auf Seite 11, 12)
- S. Blundell. *Magnetism in Condensed Matter (Oxford Master Series in Physics)*. Oxford University Press, 2001. ISBN 0198505914. (Zitiert auf Seite 1, 12)
- A. Bojahr, D. Schick, L. Maerten, M. Herzog, I. Vrejoiu, C. von Korff Schmising, C. J. Milne, S. L. Johnson, und M. Bargheer. Comparing the oscillation phase in optical pump-probe spectra to ultrafast x-ray diffraction in the metal-dielectric sr₂uo₃/sr₂tio₃ superlattice. *Phys. Rev. B*, 85(22):224302, Jun 2012. doi: 10.1103/physrevb.85.224302. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.85.224302>. (Zitiert auf Seite 7)
- F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.*, 59:52–55, Jul 1987. doi: 10.1103/PhysRevLett.59.52. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.59.52>. (Zitiert auf Seite 19)
- Coherent. *Operator’s Manual, Evolution-HE, High-power Q-Switched, Laser System*, 2009a. (Zitiert auf Seite 17)
- Coherent. *Operator’s Manual, Coherent legend Elite, Ultrafast Amplifier laser, Laser Systems*, 2009b. (Zitiert auf Seite 17)
- Coherent. *Operator’s Manual, Mantis, Modelocked Titanium:Sapphire, Laser System*, 2009c. (Zitiert auf Seite 17)
- F. J. Darnell. Temperature dependence of lattice parameters for gd, dy, and ho. *Phys. Rev.*, 130:1825–1828, Jun 1963. doi: 10.1103/physrev.130.1825. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.130.1825>. (Zitiert auf Seite 1, 32, 34, 41, 42)
- Dectris. *User Manual - Pilatus Detector System*, 2010. (Zitiert auf Seite 22)
- E. R. Dobrovinskaya, L. A. Lytvynov, und V. Pishchik. *Properties of Sapphire*. Micro- and Opto-Electronic Materials, Structures, and Systems. Springer US, 2009. ISBN 978-0-387-85694-0. doi: 10.1007/978-0-387-85695-7_2. (Zitiert auf Seite 36)
- M. Doerr, M. Rotter, und A. Lindbaum. Magnetostriction in rare-earth based antiferromagnets. *Advances in Physics*, 54:1–66, February 2005. doi: 10.1080/00018730500037264. (Zitiert auf Seite 13)

- K. Dumesnil, C. Dufour, Ph Mangin, G. Marchal, und M. Hennion. Magnetoelastic and exchange contributions to the helical-ferromagnetic transition in dysprosium epitaxial films. *EPL (Europhysics Letters)*, 31(1):43, 1995. URL <http://stacks.iop.org/0295-5075/31/i=1/a=008>. (Zitiert auf Seite 41)
- IfG Institute for Scientific Instruments GmbH. Plasma-x-ray-source for ultra-fast time resolved x-ray analysis, 2009. (Zitiert auf Seite 19)
- B. C. Gerstein, Maurice Griffel, L. D. Jennings, R. E. Miller, R. E. Skochdopole, und F. H. Spedding. Heat capacity of holmium from 15 to 300k. *The Journal of Chemical Physics*, 27(2):394–399, 1957. doi: 10.1063/1.1743734. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jcp/27/2/10.1063/1.1743734>. (Zitiert auf Seite 1, 33, 35, 36, 60, 79)
- D. Gibbs, G. Grübel, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills, und C. Vettier. Polarization and resonance studies of x-ray magnetic scattering in holmium. *Phys. Rev. B*, 43:5663–5681, Mar 1991. doi: 10.1103/PhysRevB.43.5663. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.43.5663>. (Zitiert auf Seite 32)
- R. Gross und A. Marx. *Festkörperphysik* -. Oldenbourg Verlag, München, 2012. ISBN 978-3-486-71294-0. (Zitiert auf Seite 4, 5, 7, 8, 11, 15)
- J. T. Harding. Density of niobium. *Journal of Applied Physics*, 37(2):928–928, 1966. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1708292>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/37/2/10.1063/1.1708292>. (Zitiert auf Seite 36)
- H. Hübel. Zur Quantenphysik der linearen Kette. 2006. URL <http://www.forphys.de/Website/qm/linkette.pdf>. (Zitiert auf Seite 8)
- C. Y. Ho, R. W. Powell, und P. E. Liley. Thermal conductivity of the elements. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 1(2):279–421, 1972. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.3253100>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jpcrd/1/2/10.1063/1.3253100>. (Zitiert auf Seite 36)
- P. C. Hohenberg und B. I. Halperin. Theory of dynamic critical phenomena. *Rev. Mod. Phys.*, 49:435–479, Jul 1977. doi: 10.1103/RevModPhys.49.435. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.49.435>. (Zitiert auf Seite 63)
- K. Holldack, J. Bahrtdt, A. Balzer, U. Bovensiepen, M. Brzhezinskaya, Al. Erko, A. Eschenlohr, R. Follath, Al. Firsov, W. Frentrup, et al. Femtospex: a versatile optical pump–soft x-ray probe facility with 100 fs x-ray pulses of variable polarization. *Synchrotron Radiation*, 21(5), 2014. (Zitiert auf Seite 19)
- X. Hu und F. Nori. Quantum phonon optics: Coherent and squeezed atomic displacements. *Phys. Rev. B*, 53:2419–2424, Feb 1996. doi: 10.1103/PhysRevB.53.2419. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.53.2419>. (Zitiert auf Seite 8)
- K. D. Jayasuriya, S. J. Campbell, und A. M. Stewart. Specific heat study of a holmium single crystal. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 15(1):225, 1985. URL <http://stacks.iop.org/0305-4608/15/i=1/a=023>. (Zitiert auf Seite 33, 35, 79)
- L. D. Jennings, R. E. Miller, und F. H. Spedding. Lattice heat capacity of the rare earths. heat capacities of yttrium and lutetium from 15-350k. *The Journal of Chemical Physics*, 33(6):1849–1852, 1960. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1731516>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jcp/33/6/10.1063/1.1731516>. (Zitiert auf Seite 36)
- J. Jensen und A. R. Mackintosh. *Rare Earth Magnetism - Structures and Excitations*. Clarendon Press, 1991. URL <http://www.fys.ku.dk/~jjensen/REM.htm>. (Zitiert auf Seite 1, 10, 11, 31, 36)

- P. A. Kienzle, J. Krycka, N. Patel, und I. Sahin. Reff1d (version 0.7.7)[computer software]. *College Park, MD*, 2014. URL <http://reflectometry.org/danse>. (Zitiert auf Seite 44)
- T. Kise, T. Ogasawara, M. Ashida, Y. Tomioka, Y. Tokura, und M. Kuwata-Gonokami. Ultrafast spin dynamics and critical behavior in half-metallic ferromagnet: sr₂femoo₆. *Phys. Rev. Lett.*, 85:1986–1989, Aug 2000. doi: 10.1103/PhysRevLett.85.1986. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.85.1986>. (Zitiert auf Seite 63)
- C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik* -. Oldenbourg, Deutschland, 12. edition, 1999. ISBN 978-3-486-23843-3. (Zitiert auf Seite 15, 16)
- W. C. Koehler. Magnetic properties of rare-earth metals and alloys. *Journal of Applied Physics*, 36(3):1078–1087, 1965. doi: 10.1063/1.1714108. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/36/3/10.1063/1.1714108>. (Zitiert auf Seite 1, 31, 32, 34)
- D. R. Lide. *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 82nd Edition*. CRC Press, 2001. ISBN 0849304822. (Zitiert auf Seite 33, 36)
- X. J. Liu, Y. Moritomo, A. Nakamura, H. Tanaka, und T. Kawai. Critical behavior of a photodisordered spin system in doped manganite. *Phys. Rev. B*, 64:100401, Aug 2001. doi: 10.1103/PhysRevB.64.100401. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.64.100401>. (Zitiert auf Seite 63)
- M. Lucht, M. Lerche, H. C. Wille, Yu. V. Shvyd'ko, H. D. Rüter, E. Gerdau, und P. Becker. Precise measurement of the lattice parameters of α -Al₂O₃ in the temperature range 4.5–250K using the Mössbauer wavelength standard. *Journal of Applied Crystallography*, 36(4):1075–1081, Aug 2003. doi: 10.1107/s0021889803011051. (Zitiert auf Seite 41, 42)
- O. Madelung. *Festkörpertheorie - 1*. Springer, Berlin, Heidelberg, 1972. ISBN 978-0-387-05731-6. (Zitiert auf Seite 6, 7, 11)
- O. Matsuda, M. C. Larciprete, R. L. Voti, und O. B. Wright. Fundamentals of picosecond laser ultrasonics. *Ultrasonics*, 56(0):3 – 20, 2015. ISSN 0041-624X. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ultras.2014.06.005>. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0041624X14001541>. (Zitiert auf Seite 9)
- A. Melnikov, T. O. Wehling, A. I. Lichtenstein, und M. I. Katsnelson. Grafik aus dpg-präsentation intra-atomic exchange in ultrafast magnetism von m. weinelt. 2015. (Zitiert auf Seite 13)
- T. J. Moran und Lüthi B. Critical changes in sound velocity near a magnetic phase transition. *Physics Letters A*, 29(11):665 – 666, 1969. ISSN 0375-9601. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601\(69\)90190-X](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601(69)90190-X). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037596016990190X>. (Zitiert auf Seite 63)
- Georg M Müller, Jakob Walowski, Marija Djordjevic, Gou-Xing Miao, Arunava Gupta, Ana V Ramos, Kai Gehrke, Vasily Moshnyaga, Konrad Samwer, Jan Schmalhorst, et al. Spin polarization in half-metals probed by femtosecond spin excitation. *Nature materials*, 8(1):56–61, 2008. (Zitiert auf Seite 14)
- W. Nellis und S. Legvold. Thermal conductivities and lorenz functions of gadolinium, terbium, and holmium single crystals. *Phys. Rev.*, 180:581–590, Apr 1969. doi: 10.1103/physrev.180.581. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.180.581>. (Zitiert auf Seite 1, 33, 35)
- R. M. Nicklow, N. Wakabayashi, und P. R. Vijayaraghavan. Lattice dynamics of holmium. *Phys. Rev. B*, 3:1229–1234, Feb 1971. doi: 10.1103/physrevb.3.1229. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.3.1229>. (Zitiert auf Seite 1, 36)

- W. Nolting. *Quantentheorie des Magnetismus - Teil 1 Grundlagen*. Vieweg+Teubner Verlag, Wiesbaden, 1986. ISBN 978-3-519-03084-3. (Zitiert auf Seite 11)
- S. B. Palmer. Debye temperatures of holmium and dysprosium from single crystal elastic constant measurements. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 31(1):143 – 147, 1970. ISSN 0022-3697. doi: 10.1016/0022-3697(70)90295-7. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022369770902957>. (Zitiert auf Seite 1, 36)
- L. G. Parratt. Surface studies of solids by total reflection of x-rays. *Phys. Rev.*, 95:359–369, Jul 1954. doi: 10.1103/PhysRev.95.359. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.95.359>. (Zitiert auf Seite 44)
- U. Pietsch, V. Holy, und T. Baumbach. *High-Resolution X-Ray Scattering: From Thin Films to Lateral Nanostructures (Advanced Texts in Physics)*. Springer, 2004. ISBN 0387400923. (Zitiert auf Seite 27)
- J. J. Rhyne, R. W. Erwin, M. B. Salamon, Shantanu Sinha, J. Borchers, J. E. Cunningham, und C. P. Flynn. Long-range incommensurate magnetic order in dy-y multilayers. *Journal of the Less Common Metals*, 126(0):53 – 62, 1986. ISSN 0022-5088. doi: 10.1016/0022-5088(86)90248-1. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022508886902481>. Proceedings of the Seventeenth Rare Earth Research Conference - Part 1. (Zitiert auf Seite 31)
- D. Royer und E. Dieulesaint. *Elastic Waves in Solids I: Free and Guided Propagation (Advanced Texts in Physics)*. Springer, 1999. ISBN 3540659323. (Zitiert auf Seite 9)
- Arnulf Röseler und Ernst-Heiner Korte. *Infrared Spectroscopic Ellipsometry*. John Wiley & Sons, Ltd, 2006. ISBN 9780470027325. doi: 10.1002/0470027320.s2208. URL <http://dx.doi.org/10.1002/0470027320.s2208>. (Zitiert auf Seite XI)
- M. A. Ruderman und C. Kittel. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Phys. Rev.*, 96:99–102, Oct 1954. doi: 10.1103/PhysRev.96.99. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.96.99>. (Zitiert auf Seite 1)
- P. Ruello und V. E. Gusev. Physical mechanisms of coherent acoustic phonons generation by ultrafast laser action. *Ultrasonics*, 56(0):21 – 35, 2015. ISSN 0041-624X. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ultras.2014.06.004>. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0041624X1400153X>. (Zitiert auf Seite 9, 10, 14)
- K. Salama, F. R. Brotzen, und P. L. Donoho. Elastic constants of holmium between 78 and 300 k. *Journal of Applied Physics*, 44(1):180–183, 1973. doi: 10.1063/1.1661857. URL <http://link.aip.org/link/?JAP/44/180/1>. (Zitiert auf Seite 1, 33, 35)
- D. Schick, A. Bojahr, M. Herzog, C. von Korff Schmising, R. Shayduk, W. Leitenberger, P. Gaal, und M. Bargheer. Normalization schemes for ultrafast x-ray diffraction using a table-top laser-driven plasma source. *Rev. Sci. Instrum.*, 83(2):025104, 2012. doi: 10.1063/1.3681254. URL <http://link.aip.org/link/?RSI/83/025104/1>. (Zitiert auf Seite 19, 23, 24, 25)
- D. Schick, R. Shayduk, A. Bojahr, M. Herzog, C. von Korff Schmising, P. Gaal, und M. Bargheer. Ultrafast reciprocal-space mapping with a convergent beam. *Journal of Applied Crystallography*, 46(5):1372–1377, Oct 2013. doi: 10.1107/s0021889813020013. URL <http://dx.doi.org/10.1107/S0021889813020013>. (Zitiert auf Seite 27)
- D. Schick, A. Bojahr, M. Herzog, C. von Korff Schmising, R. Shayduk, und M. Bargheer. udkml1dsim - a simulation toolkit for 1d ultrafast dynamics in condensed matter. *Comput. Phys. Commun.*, 185(2):651–660, 2014a. ISSN 0010-4655. doi: 10.1016/j.cpc.2013.10.009. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0010465513003378>. (Zitiert auf Seite 7, 67, 68)

- D. Schick, M. Herzog, A. Bojahr, W. Leitenberger, A. Hertwig, R. Shayduk, und M. Bargheer. Ultrafast lattice response of photoexcited thin films studied by x-ray diffraction. *Structural Dynamics*, 1(6), November 2014b. doi: 10.1063/1.4901228. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/sdy/1/6/10.1063/1.4901228>. (Zitiert auf Seite 9, 54, 65)
- R. Schneider, T. Chatterji, J.-U. Hoffmann, und D. Hohlwein. Paramagnetic short-range order in holmium. *Physica B Condensed Matter*, 276:610–611, March 2000. doi: 10.1016/S0921-4526(99)01374-5. (Zitiert auf Seite 12)
- R. Skomski. *Simple Models of Magnetism (Oxford Graduate Texts)*. Oxford University Press, 2012. ISBN 0199655391. (Zitiert auf Seite 12)
- C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, und J. Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Phys. Rev. B*, 34(6):4129–4138, Sep 1986. doi: 10.1103/physrevb.34.4129. (Zitiert auf Seite 58)
- Harland G. Tompkins und William A. McGahan. *Spectroscopic Ellipsometry and Reflectometry: A User's Guide*. Wiley-Interscience, 1999. ISBN 0471181722. (Zitiert auf Seite XI, XII)
- M. Tovar und R. Robertson, T. ans Michaelsen. Neutron-scattering instrumentation at the research reactor ber ii. Technical report, Hahn-Meitner-Institut Berlin, 2001. (Zitiert auf Seite 12)
- C. Trabant. *Ultrafast photoinduced phase transitions in complex materials probed by time-resolved resonant soft x-ray diffraction*. PhD thesis, Universität Potsdam, August 2014. URL http://opus.kobv.de/ubp/volltexte/2014/7137/pdf/trabant_diss.pdf. (Zitiert auf Seite 14, 32)
- C. von Korff Schmising, M. Bargheer, M. Kiel, N. Zhavoronkov, M. Woerner, T. Elsaesser, I. Vrejoiu, D. Hesse, und M. Alexe. Accurate time delay determination for femtosecond x-ray diffraction experiments. *Appl. Phys. B*, 88(1):1–4, 2007. doi: 10.1007/s00340-007-2678-7. URL <http://dx.doi.org/10.1007/s00340-007-2678-7>. (Zitiert auf Seite 25)
- A. von Reppert, Pudell J.-E., F. Zamponi, M. Rössle, D. Schick, K. Dumesnil, und M. Bargheer. Ultrafast magnetostriction in heavy rare earth metals studied by ultrafast x-ray diffraction. 2015. (Zitiert auf Seite 60)
- Konrad von Volkmann. *Ultraschnelle Relaxationsdynamik über Phononen-Wechselwirkungen in Festkörpersystemen*. Dissertation, Freien Universität Berlin, 2010. URL http://www.diss.fu-berlin.de/diss/receive/FUDISS_thesis_000000016451. (Zitiert auf Seite 14)
- G. Weber. X-ray attenuation & absorption calculator, 2014. URL http://web-docs.gsi.de/~stoe_exp/web_programs/x_ray_absorption/index.php. (Zitiert auf Seite 23)
- M. Weinelt. Intra-atomic exchange in ultrafast magnetism. DPG Frühjahrstagung Berlin 2015, 2015. URL <http://www.dpg-verhandlungen.de/year/2015/conference/berlin/part/main/session/31/contribution/2>. (Zitiert auf Seite 13)
- E. Weschke, H. Ott, E. Schierle, C. Schüßler-Langeheine, D. V. Vyalikh, G. Kaindl, V. Leiner, M. Ay, T. Schmitte, H. Zabel, und P. J. Jensen. Finite-size effect on magnetic ordering temperatures in long-period antiferromagnets: Holmium thin films. *Phys. Rev. Lett.*, 93:157204, Oct 2004. doi: 10.1103/PhysRevLett.93.157204. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.93.157204>. (Zitiert auf Seite 32)
- M. E. Wieser und M. Berglund. Atomic weights of the elements 2007 (iupac technical report). *Pure and Applied Chemistry*, 81(11):2131–2156, 2009. (Zitiert auf Seite 36)

- M. Wietstruk, A. Melnikov, C. Tian Stamm, T. Kachel, N. Pontius, M. Sultan, C. Gahl, M. Weinelt, H. A. Dürr, und U. Bovensiepen. Hot-electron-driven enhancement of spin-lattice coupling in gd and tb 4f ferromagnets observed by femtosecond x-ray magnetic circular dichroism. *Phys. Rev. Lett.*, 106:127401, Mar 2011. doi: 10.1103/PhysRevLett.106.127401. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.106.127401>. (Zitiert auf Seite 14)
- M. Winter. Holmium: the essentials, 2014a. URL <https://www.webelements.com/holmium>. (Zitiert auf Seite 31, 36)
- M. Winter. Holmium: the essentials, 2014b. URL http://www.webelements.com/periodicity/poissons_ratio/. (Zitiert auf Seite 41)
- M. Winter. Niobium: the essentials, 2015a. URL <https://www.webelements.com/niobium>. (Zitiert auf Seite 36)
- M. Winter. Yttrium: the essentials, 2015b. URL <https://www.webelements.com/yttrium>. (Zitiert auf Seite 36)
- M. Woerner, C. von Korff Schmising, M. Bargheer, N. Zhavoronkov, I. Vrejoiu, D. Hesse, M. Alexe, und T. Elsaesser. Ultrafast structural dynamics of perovskite superlattices. *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, 96(1):83–90, jul 2009. doi: 10.1007/s00339-009-5174-6. (Zitiert auf Seite 25)
- R.W.G. Wyckoff. *Crystal structures*. Number 1 in Crystal Structures. Krieger, R.E., 1982. ISBN 9780898743883. URL <http://books.google.de/books?id=n4IvAQAAIAAJ>. (Zitiert auf Seite 36)
- K. Yosida. Magnetic properties of cu-mn alloys. *Phys. Rev.*, 106:893–898, Jun 1957. doi: 10.1103/PhysRev.106.893. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.106.893>. (Zitiert auf Seite 12)
- F. Zamponi, Z. Ansari, C. von Korff Schmising, P. Rothhardt, N. Zhavoronkov, M. Woerner, T. Elsaesser, M. Bargheer, T. Trobitzsch-Ryll, und M. Haschke. Femtosecond hard x-ray plasma sources with a kilohertz repetition rate. *Appl. Phys. A*, 96(1):51–58, July 2009. doi: 10.1007/s00339-009-5171-9. (Zitiert auf Seite 19, 20)

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit mit dem Titel „Ultraschnelle Magnetostriktion von antiferromagnetischem Holmium“ im Rahmen der Betreuung ohne unzulässige Hilfe Dritter selbstständig verfasst und alle Quellen als solche gekennzeichnet habe.

Jan-Etienne Pudell, Potsdam, den 2. Juni 2015