

Strukturelle Dynamik in Eisen-Rhodium
während eines laserinduzierten,
magnetischen Phasenübergangs

Diplomarbeit

vorgelegt der Fakultät für Physik
der Universität Duisburg-Essen

von

FLORIAN QUIRIN

Mai 2011

angemeldeter Arbeitstitel:

“Zeitaufgelöste Röntgenbeugung mit Femtosekunden-Röntgenimpulsen“

1. Gutachter: PROF. DR. UWE BOVENSIEPEN

2. Gutachter: PROF. DR. MICHAEL HORN-VON HOEGEN

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig ohne unzulässige Hilfe Dritter und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die vorliegende Arbeit wurde weder im Aus- noch im Inland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Duisburg, 06 Mai 2011

Florian Quirin

*Für meine Mutter,
für meinen Vater.*

Zusammenfassung

In dieser Diplomarbeit werden zeitaufgelöste Röntgenbeugungsexperimente an einem dünnen Eisen-Rhodium Film präsentiert. Ziel war es, die Reaktion des Kristallgitters auf den laserinduzierten, magnetischen Phasenübergang vom anti-ferromagnetischen (AFM) in den ferromagnetischen (FM) Zustand zu untersuchen.

Dabei stellte sich speziell die Frage, ob die Expansion des Gitters den AFM-FM Phasenübergang treibt oder sich die magnetische Ordnung bereits vorher einstellt.

Zur Beantwortung dieser Frage wurde in einem Anrege-Abfrage-Verfahren die FeRh-Probe mit ultrakurzen Laserpulsen in den ferromagnetischen Zustand angeregt und das Gitter der Probe während des Übergangs mit ultrakurzen Röntgenpulsen abgefragt.

Zur Identifizierung der Auswirkungen des magnetischen Phasenübergangs auf das Gitter, wurde die zeitabhängige Verschiebung des Bragg-Winkels in der AFM-Phase ($T=65^{\circ}\text{C}$) und der FM-Phase ($T=100^{\circ}\text{C}$) bei identischer Energiedichte der Laseranregung gemessen. Die Daten zeigen, dass für die gewählte Energiedichte der magnetische Phasenübergang nur einen langsamen Beitrag zu der Gitterexpansion liefert. Das Verhalten zu frühen Zeiten ist in der AFM- und FM-Phase nahezu identisch und kann befriedigend mit thermoakustischen Effekten nach impulsiver Aufheizung erklärt werden.

Energiedichte-abhängige Messungen der Gitterausdehnung in der AFM- und FM-Phase zu den Zeiten 18ps und 1ns liefern weitere Indizien dafür, dass zu frühen Zeiten keine Auswirkungen des magnetischen Phasenübergangs erkennbar sind (lineare Ausdehnung des Gitters), jedoch nach 1ns die Probe den Übergang aus der AFM-Phase vollständig vollzogen hat.

Die Zeitabhängigkeit für den Einfluss des laserinduzierten Phasenübergangs auf die Gitterausdehnung kann aus der Differenz der transienten Winkelverschiebungen der AFM- und FM-Phase gewonnen werden. Die so entstandene Kurve wurde mit einer exponentiellen Funktion gefittet und lieferte für die Zeitkonstante $\tau = 151 \pm 15\text{ps}$.

Summary

In this diplomathesis time-resolved X-ray diffraction experiments on a thin iron-rhodium film are presented. The goal of these experiments was to investigate the response of the crystal lattice to a laser-induced magnetic phase transition from antiferromagnetic (AFM) to the ferromagnetic (FM) state.

The question was, whether the expansion of the lattice drives the AFM-FM phase transition or the magnetic order is already established earlier.

To answer this question the so-called pump-probe method was used. Ultra-short laser pulses excite the FeRh sample to the ferromagnetic state and ultra-short X-ray pulses are used to probe the lattice during that transition.

To identify the effects of the magnetic phase transition on the lattice, the time-dependent shift of the Bragg-angle in the AFM phase ($T=65^{\circ}\text{C}$) and the FM phase ($T=100^{\circ}\text{C}$) was measured for an identical excitation fluency.

The data show that for the chosen excitation fluency the magnetic phase transition has only a slow contribution to the lattice expansion. The behavior at early times is almost identical in the AFM and FM phase and can be explained by thermo-acoustic effects to impulsive heating.

Fluency dependent measurements of the lattice expansion in the AFM and FM phase at the two times 18ps and 1ns provide further evidence that after 18ps no effects of the magnetic phase transition can be identified (linear expansion of the lattice). Whereas after 1ns the sample is in thermal equilibrium and has already performed the full transition.

The time dependence of the laser-induced phase transition can be obtained from the difference of the time-dependent lattice expansion in the AFM and FM phase. The difference curve can be fitted with an exponential function and provides for the time constant $\tau = 151 \pm 15\text{ps}$.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	vii
Summary	ix
Inhalt	x
1 Motivation	1
2 Physikalische Grundlagen	5
2.0.1 Licht und seine Eigenschaften	5
2.1 Röntgenbeugung	7
2.1.1 Bragg-Bedingung und Rocking-Kurve	8
2.1.2 Reziproker Raum und Laue-Bedingung	11
2.1.3 Strukturfaktor und atomarer Streufaktor	13
2.1.4 Debye-Waller-Faktor	15
2.2 Charakteristische Röntgenstrahlung	17
2.3 Phononen und Expansionswellen	18
2.4 Das 2-Temperatur-Modell	22
3 Experimente an einem dünnen Eisen-Rhodium Film	25
3.0.1 Das Femtosekunden Terawatt Laser-System	25
3.0.2 Die Laser-Plasma-Röntgenquellen	27
3.1 Eigenschaften von Eisen-Rhodium Legierungen	30
3.2 Experimenteller Aufbau	33

3.2.0.1	X-Ray Optik: Der torisch gebogene Kristall	36
3.2.1	Materialdaten des FeRh-Dünnschichtfilmes	38
3.3	Messung und Auswertung der Experimentellen Daten	41
3.3.1	Charakterisierung des Messsignals	41
3.3.2	Statische Messungen des Phasenübergangs	46
3.3.3	Transiente Messung des laserinduzierten Phasenübergangs	49
3.3.4	Fluenz-abhängige Messung der Winkeländerung	65
3.3.5	Simulation der Messdaten mit Hilfe der Linearen Kette	68
4	Resümee	73
	Danksagung	75
	Literaturverzeichnis	77

Kapitel 1

Motivation

Alle Objekte, die uns im Alltag begegnen nehmen wir normalerweise makroskopisch wahr, d.h. als etwas, dass man sehen, fühlen und anfassen kann. Wir unterscheiden sie durch Eigenschaften wie z.B. Farbe, Glanz, Form, Festigkeit, Geruch, Temperatur oder Gewicht.

Betrachtet man diese Objekte jedoch auf Größen-Skalen, die für das Auge nicht mehr wahrnehmbar sind, stellt man fest, dass sie alle aus den gleichen 3 Teilchen, nämlich den Protonen, Neutronen und Elektronen, zusammengesetzt sind. Sie bilden zusammen die Atome bzw. Elemente des Periodensystems, von denen zur Zeit (Stand: März 2011) 111 bekannt sind [1]. Von alltäglicher Bedeutung sind davon meist nur Wenige, so besteht der Mensch zu über 90% aus Sauerstoff (O), Kohlenstoff (C) und Wasserstoff (H) [2, S. 251].

Alle makroskopischen Eigenschaften eines Körpers werden also durch das Zusammenspiel der Atome bestimmt. Viele Atome besitzen die Möglichkeit, sich zu regelmäßigen, periodischen Strukturen, den Kristallen zusammen zu schließen, dabei ist ihre Anordnung zueinander im sog. Kristallgitter von entscheidender Bedeutung. Betrachtet man zum Beispiel das Element Kohlenstoff (C) und seine zahlreichen Erscheinungsformen wird dies schnell klar. Kristallisiert Kohlenstoff zum Beispiel im hexagonalen Kristallsystem, erhält man Graphit, was in Bleistiften Verwendung findet (Griechisch: graphein=schreiben). Kristallisiert es dagegen im kubischen Sy-

stem, erhält man Diamant, das härteste bekannte Mineral, zwei Werkstoffe, die unterschiedlicher nicht sein könnten (Abb. 1.1).

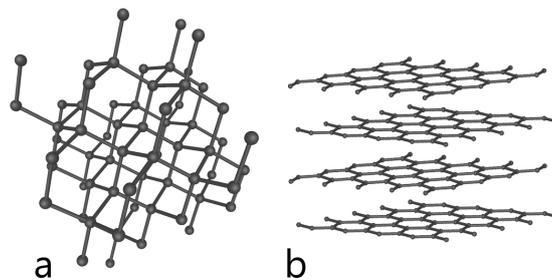


Abbildung 1.1: **a)**Diamant **b)**Graphit - [3]

Die genaue Kenntnis der atomaren Ordnung ist somit ein wichtiger Schritt zum Verständnis der Materie und ihrer Eigenschaften und bis heute von zentralem Interesse der Wissenschaft.

Die ersten Erfolge auf diesem Gebiet erzielten William Henry Bragg und William Lawrence Bragg Anfang des 20. Jahrhunderts, als es ihnen gelang die Struktur von Kristallen zu bestimmen. Sie nutzten dazu das, von Max von Laue 1912 postulierte Phänomen der **Röntgenbeugung** und etablierten damit das erste Standardverfahren zur direkten Untersuchung der atomaren Struktur von Festkörpern. 1915 erhielten sie für diese Arbeiten den Nobelpreis für Physik.

Das Phänomen der Röntgenbeugung beruht dabei auf der Tatsache, dass Röntgenstrahlung, eben so wie das sichtbare Licht, eine elektromagnetische Welle ist und als solche durch das Auftreffen auf Hindernisse beeinflusst, d.h. "gestreut" wird. Der Effekt ist besonders stark, wenn die Wellenlänge der Strahlung und die Ausdehnung des Hindernisses von ähnlicher Größenordnung sind. Da atomare Abstände im Å-Bereich liegen (10^{-10}m) und Röntgenstrahlung mit Wellenlängen von 10^{-12}m bis 10^{-8}m diesen Bereich abdeckt, erklärt sich der Erfolg des Verfahrens. Das Kapitel 2 wird noch einmal näher auf die Details und Prozesse eingehen.

Im Laufe der Zeit wurden verschiedene Verfahren der Röntgenstreuung und -beugung entwickelt und perfektioniert, aber auch Alternativen zur Untersuchung von Festkörpern, wie die Elektronen- oder Neutronenbeugung vorgestellt. Mit der Rastersondenmikroskopie, stehen außerdem ausgefeilte Methoden zur Beobachtung von Oberflächen mit atomarer Auflösung zur Verfügung.

All diese Verfahren liefern Heutzutage gute Ergebnisse bei der Untersuchung statischer Strukturen. Will man allerdings Materialien untersuchen, während sie Phasenumwandlungen oder chemische Reaktionen vollziehen oder die Vibrationen in Festkörpern und Molekülen beobachten, steht man vor ganz neuen Herausforderungen. Diese Prozessen geschehen auf Zeitskalen, die selbst von den schnellsten Mechaniken und elektronischen Schaltungen nicht mehr aufgelöst bzw. geschaltet werden können. Die zeitaufgelöste Rastertunnelmikroskopie gerät beispielsweise bei Zeitabständen einiger Mikrosekunden an ihre Grenzen [4] und liegt damit immer noch 6 Größenordnungen entfernt von typischen Vibrationsfrequenzen im Festkörper (einige THz) [5, S.83]. Hochgeschwindigkeits Photodioden sind Heutzutage in der Lage Zeitaufösungen von einigen Picosekunden zu erreichen [6], was schon sehr nahe an den interessanten Zeitskalen liegt, haben dafür aber zusätzlich das Problem, keine Informationen über die räumliche Verteilung des Messsignals zu liefern.

Der entscheidende Schritt zur Lösung dieses Problems ist erst durch die Entwicklung **ultrakurzer Laserpulse** im *Pikosekunden* (10^{-12} s) und *Femtosekunden* (10^{-15} s) Bereich gelungen. Mit Hilfe dieser Laserpulse gelingt es nicht nur, die oben angesprochenen Prozesse auf kürzester Zeitskala anzuregen, sondern man ist auch in der Lage, den transienten Zustand des Materials abzufragen und erhält so völlig neue Einblicke in die Grundlegenden Prozesse der Natur.

Dabei bedient man sich in der **Ultrakurzzeitspektroskopie** meist des sog. Anrege-Abfrage-Verfahrens (Pump-Probe-Verfahren: Ein kurzer Puls regt die, zu untersuchende Probe an und einer zweiter, zeit-verzögerter fragt ihrern Momentanzustand ab). Im Rahmen dieser Arbeit wird besagte Methode der Ultrakurzzeitspektroskopie

mit der Technik der Röntgenbeugung kombiniert. Wir sind daher in der Lage direkt Änderungen der Abstände von Atomen auf Zeitskalen im Piko- und Femtosekunden Bereich aufzuzeichnen. Das bietet uns z.B. die Möglichkeit den Verlauf von Phasenübergängen zu beobachten und entscheidende, neue Erkenntnisse zum Verständnis ihrer Entstehung beizutragen.

Diese Möglichkeit wird in der vorliegenden Arbeit genutzt um das Material **Eisen-Rhodium** zu untersuchen, eine Legierung, die die besondere Eigenschaft besitzt, oberhalb der Raumtemperatur einen magnetischen Phasenübergang vom anti-ferromagnetischen (AFM) in den ferromagnetischen (FM) Zustand zu vollziehen. Sie erhält deshalb große Aufmerksamkeit, sowohl von der theoretischen, als auch der experimentellen Physik, entzieht sich aber bisher weiterhin einer eindeutigen Klärung der Frage, ob die magnetische Ordnung bereits vor der Gitterexpansion entsteht oder ob es die Gitterexpansion ist, die den Phasenübergang treibt. Das zweite Kapitel der Arbeit liefert einen Überblick über die Grundlagen, die zum Verständnis des Experimentes notwendig sind Kapitel 3 beschäftigt sich dabei mit der Darstellung der Besonderheiten des Materials, der Präsentation der Ergebnisse, sowie ihrem Beitrag zum aktuellen wissenschaftlichen Kontext. Dabei wird zusätzlich auf die Besonderheiten des zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Verfahrens mit ultrakurzen Röntgenpulsen eingegangen und kurz die technischen Herausforderungen, wie die Produktion der Röntgenpulsen und ihre Fokussierung erläutert.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

Dieses Kapitel gibt eine Einführung in die wichtigsten Phänomene, die der Diplomarbeit zu Grunde liegen. Dabei wird zunächst eine allgemeine, geschichtliche Einleitung präsentiert, um den physikalischen Hintergrund darzustellen. Danach wird das Phänomen der Röntgenbeugung erklärt und die damit zusammenhängenden Formeln erläutert. Es folgen Abschnitte zu den Themen Röntgenproduktion und Gitterschwingungen in dünnen Filmen. Abschließend wird kurz das sog. 2-Temperatur-Modell behandelt, um eine Übersicht über die zeitabhängigen Prozesse bei Anregungen mit kurzen Laserpulsen zu zeigen.

2.0.1 Licht und seine Eigenschaften

Licht fasziniert den Menschen seit jeher und ist seit Jahrhunderten Gegenstand intensiver Forschung. Bereits in der Antike waren die geometrischen Aspekte des Lichtes, wie Brechung und Reflexion bekannt und durch Ptolemäus (2.Jh. n. Chr.) beschrieben worden [7]. Erste populäre und fundierte wissenschaftliche Arbeiten zur Natur des Lichtes erschienen gegen Ende des 17. Jahrhunderts. 1678 veröffentlichte Christiaan Huygens seine Gedanken zur Wellennatur des Lichtes [8]. Sein Prinzip der Elementarwellen ist auch Heute noch sehr populär, wenn auch seine Vorstellung von einem Äther als veraltet gilt. 1704 erschien Isaac Newtons umfassendes Werk Opticks [9], in dem er, unter Anderem, Licht als Teilchen beschrieb (Korpuskeltheorie)

und sich intensiv mit den Farben des Lichtes beschäftigte. Beide Physiker versuchten sich dabei an tiefer gehenden Erklärungen der, aus der Strahlenoptik bekannten Eigenschaften des Lichtes, was in bestimmten Grenzen auch gut funktionierte.

Newtons Theorie der Lichtteilchen setzte sich zunächst durch, jedoch wurden durch das sog. Doppelspaltexperiment 1802 von Thomas Young Eigenschaften des Lichtes demonstriert, die ausschließlich durch Überlagerung von (Licht-)Wellen erklärt werden konnten [7]. Das Bild der Wellennatur des Lichtes wurde weiterhin gefestigt durch James Clerk Maxwells umfangreiche Arbeiten zur Theorie des elektromagnetischen Feldes 1865. Er interpretierte das Licht erstmals als elektromagnetische Welle und traf Aussagen zu seiner Geschwindigkeit [10].

Die Entdeckung des photoelektrischen Effektes durch Edmond Becquerel (1839) und dessen Untersuchung, speziell durch Heinrich Hertz (1887)[11] und Philipp Lenard (1900) führten letztlich zu einer weiteren entscheidenden Erkenntnis über die Natur des Lichtes. Es stellte sich heraus, dass durch Bestrahlung einer Metalloberfläche Elektronen freigesetzt werden, deren Energie jedoch nicht von der Intensität des Lichtes abhängt, sondern nur von seiner Frequenz. Eng verbunden mit dieser Erkenntnis waren Max Plancks Ergebnisse zur Strahlung von Schwarzen Körpern [12] und 1905 war es schließlich Albert Einstein, der den großen Zusammenhang erkannte. Er postulierte, dass die Energie des Lichtes in kleine Pakete, die sog. Lichtquanten oder Photonen, aufgeteilt sei [13, 14]. Diese Erkenntnisse legten zugleich den Grundstein zur Entwicklung der Quantenphysik.

Für die, in dieser Arbeit vorgestellten Experimente, ist sowohl die Wellennatur des Lichtes, als auch seine Teilcheneigenschaft von Bedeutung.

In den meisten Fällen kann Licht als ebene, harmonische Welle beschrieben werden [15]. Dies spielt bei der Erklärung der Röntgenbeugung eine Rolle.

$$E_{el}(z, t) = A_0 e^{i(kz - \omega t)} + A_0^* e^{-i(kz - \omega t)} \quad (2.1)$$

Dabei ist E_{el} die elektrische Feldstärke, $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ die Wellenzahl, $\omega = 2\pi f$ die Kreisfrequenz und z die Ortskoordinate der Ausbreitungsrichtung.

Die Energie der Lichtquanten (Photonen) ist gegeben als:

$$E = h \cdot f = h \cdot \frac{c_m}{\lambda} \quad (2.2)$$

h ist hier das Plancksche Wirkungsquantum, eine fundamentale Naturkonstante, c_m die Lichtgeschwindigkeit im entsprechenden Medium, f ist die Frequenz und λ die Wellenlänge des Lichtes. Sie spielt, unter anderem, für das Verständnis der Röntgenproduktion eine Rolle.

2.1 Röntgenbeugung

Formel 2.1 beschreibt Licht als elektromagnetische Welle. Ob es sich dabei nun um z.B. sichtbares, ultraviolettes oder infrarotes Licht handelt, wird einzig durch die Frequenz, respektive die Wellenlänge der Strahlung bestimmt. Wie in Kapitel 1 bereits erwähnt, trifft dies auch auf die Röntgenstrahlung zu, sie kann also als Licht im Wellenlängenbereich von 10^{-12}m bis 10^{-8}m bezeichnet werden. Ist die Wellenlänge bekannt, kann mittels Formel 2.2 die Energie der Lichtquanten, auch Photonen genannt, bestimmt werden.

In dieser Arbeit werden hauptsächlich 3 verschiedene Röntgenquellen verwendet, Tabelle 2.1 zeigt ihre Photonen-Energie und die dazugehörige Wellenlänge.

Tabelle 2.1: Röntgenquellen und ihre Wellenlängen

Quelle	Photonen Energie [keV]	Wellenlänge [Å]
Titan Laser-Plasma Quelle	4,51	2,75
Kupfer Laser-Plasma Quelle	8,05	1,54

Trifft Röntgenstrahlung nun auf eine periodische Struktur, wie z.B. einen kristallinen Festkörper, treten Interferenzmuster auf. Eine genauere Beschreibung des Vorgangs liefert Abschnitt 2.1.1. Diese Muster enthalten zahlreiche Informationen über den Aufbau des Festkörpers, wie z.B. seine Kristallstruktur, den Abstand der Atome innerhalb des Kristallgitters oder die Streueigenschaften der Atome selber.

2.1.1 Bragg-Bedingung und Rocking-Kurve

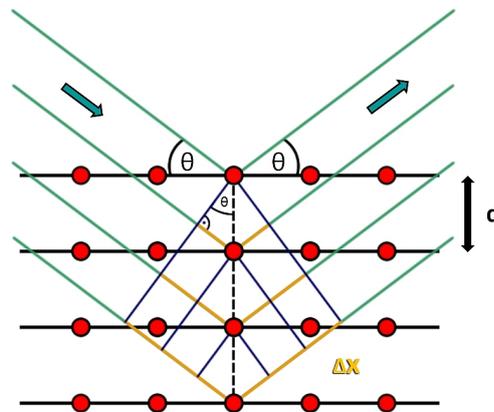


Abbildung 2.1: Geometrische Darstellung der Bragg-Reflexion

Es wird der Fall betrachtet, dass Strahlung unter einem Einfallswinkel Θ_e auf eine periodische Anordnung von Atomen trifft. Dabei wird zunächst keine Annahme über die Wellenlänge der Strahlung und den Abstand der Atome gemacht. Es sei lediglich vorausgesetzt, dass die Strahlung monochromatisch ist, also nur eine diskrete Wellenlänge besitzt, ihre Photonenenergie (Formel 2.2) ausreichend weit entfernt ist

von Absorptionskanten der Atome und die eingestrahlte Welle eine ebene Wellenfront besitzt.

Was in einem solchen Fall passiert kann einfach und anschaulich durch Huygens Prinzip der Elementarwellen [8] beschrieben werden. Dabei dient jedes bestrahlte Atom als Ausgangspunkt von neuen Kreiswellen, die sich überlagern und somit verstärken oder auslöschen können. Diese Kreiswellen unterscheiden sich in ihrer Phase, bedingt durch die längere Wegstrecke Δx des Lichtes, welche sich für den Ausfallswinkel Θ_a aus einem einfachen, geometrischen Zusammenhang ergibt (Abb. 2.1):

$$\Delta x = d \cdot (\sin\Theta_e + \sin\Theta_a) \quad (2.3)$$

Mit d : Abstand der Gitterebenen

Denkt man sich einen Schirm, der weit genug entfernt ist von dem Atomgitter, kann mit Hilfe von Formel 2.3 berechnet werden, wie die Intensitätsverteilung unter dem Ausfallswinkel Θ_a aussieht. Dazu berechnet man für jedes Atom Δx und addiert alle Wellen auf. Für eine große Anzahl N an Atomen gibt es im allgemeinen Fall zu jeder Kreiswelle eine um π phasenverschobene Weitere, so dass es zur destruktiven Überlagerung kommt. Nur für den Spezialfall, dass der Gangunterschied aller Wellen ein ganzzahliges Vielfaches ($n = 0, 1, 2, \dots$) der Wellenlänge $\lambda = n \cdot \Delta x$ beträgt, kommt es zur konstruktiven Überlagerung. Die Konsequenz dieser Aussage ist, dass für $N \rightarrow \infty$ lediglich diskrete Winkel Θ_B (**Bragg-Winkel**) existieren, bei denen die Intensität auf dem Schirm von 0 verschieden ist. Für Atome, die auf den Gitterebenen nebeneinander angeordnet sind, ist die Bedingung nur erfüllt, wenn Einfallswinkel gleich Ausfallswinkel ist $\Theta_e = \Theta_a = \Theta$. Für Atome auf untereinander liegenden Gitterebenen ergibt sich aus Formel 2.3 das sog. **Bragg-Gesetz**:

$$n \cdot \lambda = 2 \cdot d \cdot \sin\Theta_B \quad (2.4)$$

Das Bragg-Gesetz ist also eine Konsequenz der Periodizität des Gitters und streng genommen ein Grenzfall für eine große Anzahl N von Streuzentren. Für kleine N wird die Intensitätsverteilung breiter und nähert sich dem Beugungsbild an, das z.B. auch bei einem Doppelspaltexperiment auftritt. Ursache dafür ist, dass die vollständige, destruktive Interferenz bei Winkeln $\Theta \neq \Theta_B$ nur gegeben ist, wenn eine ausreichend hohe Zahl von phasenverschobenen Wellen existiert, so dass keine Restintensität übrig bleibt.

Die **Intensitätsverteilung in Abhängigkeit des Winkels** wird auch **Rocking-Kurve** (Abb. 2.2) genannt. Eine detailliertere Beschreibung ihrer Form und Eigenschaften liefert die *Dynamical Theory of X-ray Diffraction* [16].

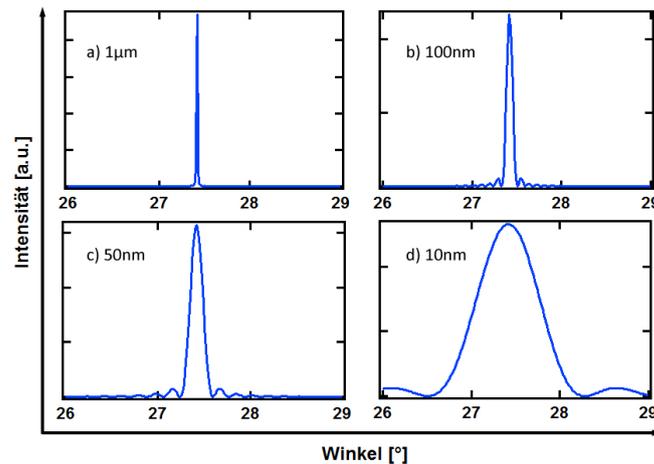


Abbildung 2.2: Rocking-Kurven für verschiedene Probendicken von FeRh, berechnet mit der Software XOP 2.3 - a) $1\mu\text{m}$ b) 100nm c) 50nm d) 10nm

Abbildung 2.2 zeigt die Entwicklung der Rocking-Kurven für 4 verschiedene Probendicken eines FeRh-Filmes. Mit Abnahme der Dicke, reduziert sich die Anzahl der Gitterebenen an denen Beugung stattfindet. Das führt, aus den angegebenen Gründen, zu einer Verbreiterung der Intensitätsverteilung.

Eine genauere Betrachtung des Verhältnisses von Wellenlänge λ zu Gitterebenenabstand d , zeigt, dass Formel 2.4 für $\lambda > 2 \cdot d$ nicht erfüllt werden kann, das heißt

es gibt keinen Winkel Θ mehr, bei dem es zur konstruktiven Interferenz aller Gitterebenen kommt. Ist $\lambda \gg d$ kann die Reflexion der Strahlung mit den Gesetzen der geometrischen Optik erklärt werden. Für den Fall, dass $\lambda \ll d$ gibt es mehrere Beugungsordnungen n , für die Formel 2.4 erfüllt ist und somit können, durch Rotation der Probe, mehrere **Bragg-Reflexe** detektiert werden. Dadurch erklärt sich auch, warum es notwendig ist, Röntgenstrahlung mit Wellenlängen im Å-Bereich für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente zu nutzen (Tabelle 2.1).

Ein Umstand, der in Abschnitt 2.1.3 nochmals aufgegriffen wird, sei an dieser Stelle noch kurz erwähnt. Das Huygensche Prinzip liefert zwar einen anschaulichen Zugang zur Beugung am Kristallgitter, aber viele Phänomene der Reflexion und Beugung, wie zum Beispiel der Brechungsindex oder die Polarisierung, können damit nicht erklärt werden. Die eigentliche Ursache der Kreiswellen, liegt in der charakteristischen Strahlung elektrischer Dipole begründet, die durch erzwungene Schwingungen der Elektronen im Kristall entstehen.

2.1.2 Reziproker Raum und Laue-Bedingung

Zur Beschreibung der Beugungsphänomene im Festkörper bietet es sich oft an, von dem realen Raum in den sog. reziproken Raum zu wechseln. Der Vorteil liegt in einer einfacheren Darstellung der Beugungsbedingungen und einer übersichtlichen Darstellung der Bragg-Reflexe.

Im realen Raum beschreibt man die Gitterebenen eines Kristalls mit den Millerschen Indizes (h,k,l) , dazu bestimmt man zunächst die Schnittpunkte der Ebene mit den Kristallachsen \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} . Dann bildet man deren Kehrwerte und multipliziert diese mit einem gemeinsamen Faktor, der aus den Brüchen ganze Zahlen macht. Aus $(\frac{1}{4}, \frac{1}{2}, \frac{1}{3})$ wird so beispielsweise $(3,6,4)$, der gemeinsame Faktor wäre 12. Das scheint zunächst umständlich, entfaltet aber in Zusammenhang mit dem reziproken Gitter seine Nützlichkeit. Dieses ist nämlich so konstruiert, dass die Koordinaten (h,k,l) immer einen reziproken Gitterpunkt beschreiben. Seien \vec{u}_1 , \vec{u}_2 , \vec{u}_3 die Basisvektoren des reziproken Gitters, ist somit $\vec{G} = h\vec{u}_1 + k\vec{u}_2 + l\vec{u}_3$ der reziproke Gittervektor,

der auf diesen Punkt zeigt. Man kann zeigen [5, S.32], dass \vec{G} senkrecht auf den Gitterebenen (hkl) des realen Raums steht und zusätzlich die Information über den Abstand d_{hkl} dieser Ebenen trägt (Formel 2.5).

$$d_{hkl} = \frac{2\pi}{|\vec{g}|} \quad \text{mit} \quad \vec{g} = \frac{\vec{G}}{n} \quad (\text{n: gr\u00f6\u00dfter gemeinsamer ganzzahliger Teiler}) \quad (2.5)$$

Um das reziproke Gitter zu konstruieren nimmt man die Basis der Elementarzelle im real Raum \vec{a}_i (im Allg. nicht identisch mit der Basis der Einheitszelle $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$) (Abb. 2.3) und sucht die Vektoren \vec{u}_i , die die Bedingung $\vec{a}_i \cdot \vec{u}_j = 2\pi\delta_{ij}$ erf\u00fcllen (mit δ_{ij} : Kronecker-Symbol). Vektor \vec{u}_1 steht dann beispielsweise senkrecht auf der Ebene, die durch \vec{a}_2 und \vec{a}_3 aufgespannt wird.

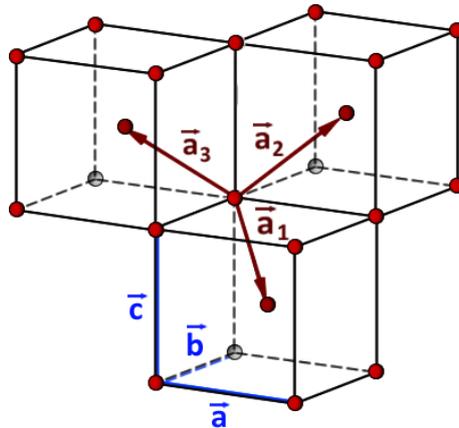


Abbildung 2.3: Einheitszelle mit Kristallachsen $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ und Basis der Elementarzelle $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$

Wie vereinfacht diese Konstruktion nun die Beugungsbedingung? Um die Frage zu beantworten werfen wir nochmals einen Blick auf die Ausgangssituation (Abb. 2.1). Die einfallende Strahlung kann mit dem Wellenvektor $\vec{k}_e = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \vec{s}_e$ beschrieben werden, dabei ist \vec{s}_e der Einheitsvektor in Ausbreitungsrichtung der Welle. Analog definiert man $\vec{k}_a = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \vec{s}_a$ als Vektor der ausfallenden Strahlung. Der Vektor \vec{R} soll die beiden Atome der Gitterebenen verbinden und wird auch primitive Translation genannt, er

setzt sich aus den Basisvektoren der Elementarzelle zusammen. Der Gangunterschied $\Delta x = \Delta x_e + \Delta x_a$ aus Formel 2.3 lässt sich nun formulieren als das Skalarprodukt $\vec{s}_e \cdot \vec{R} = \Delta x_e$, respektive $-\vec{s}_a \cdot \vec{R} = \Delta x_a$. Die Bragg-Bedingung (2.4) wird damit zu $(\vec{s}_e - \vec{s}_a) \cdot \vec{R} = n\lambda$. Multipliziert man beide Seiten der Gleichung mit \vec{g} (aus Formel 2.5) und nutzt die Definition des reziproken Gitters $\vec{a}_i \cdot \vec{u}_j = 2\pi\delta_{ij}$ erhält man die sog. **Laue-Bedingung** [5] (Formel 2.6).

$$(\vec{s}_e - \vec{s}_a) \cdot 2\pi = n\lambda\vec{g} \quad \Leftrightarrow \quad \vec{k}_e - \vec{k}_a = \vec{G} \quad (2.6)$$

Formel 2.6 liefert eine sehr einfache Darstellung der Beugungsbedingung: Falls im reziproken Raum Wellenvektoren \vec{k}_e und \vec{k}_a existieren, die zwei Gitterpunkte verbinden, kann aus dem Verbindungsvektor \vec{G} abgelesen werden, an welcher Ebene (hkl) im Realraum konstruktive Interferenz stattfindet. Der Bragg-Winkel ergibt sich dabei direkt aus dem Winkel zwischen \vec{k}_e und \vec{k}_a .

2.1.3 Strukturfaktor und atomarer Streufaktor

Die Bedingungen, die zur Beugung am Kristallgitter führen wurden in Abschnitt 2.1.1 und 2.1.2 ausführlich diskutiert, über die relative Intensität der Bragg-Reflexe sind allerdings noch keine Aussagen getroffen worden. In Abschnitt 2.1.1 wurde erwähnt, dass die Quellen der Kreis- oder Streuwellen eigentlich die Elektronen sind. Die Amplitude des resultierenden, elektrischen Feldes ergibt sich also aus der Summe der Streuwellen aller Elektronen. Zur Beschreibung dieser Summe definiert man die Elektronenzahldichte $n(\vec{r})$, die die Verteilung der Elektronen in der Elementarzelle mit dem Volumen $V_z = \int_{V_z} dV$ angibt. Aus dem Gangunterschied Δx der Wellen, ergibt sich die Phasendifferenz zu $\varphi(\vec{r}) = \frac{2\pi}{\lambda}(\vec{s}_e - \vec{s}_a) \cdot \vec{r} = (\vec{k}_e - \vec{k}_a) \cdot \vec{r}$ (vergleiche Abschnitt 2.1.2). Insgesamt erhält man somit den Faktor F_{hkl} , der proportional zur Amplitude des elektrischen Feldes ist (Formel 2.7) [17].

$$F_{hkl} = \int_{V_z} n(\vec{r}) e^{i(\vec{k}_e - \vec{k}_a) \cdot \vec{r}} dV \quad (2.7)$$

Für konstruktive Interferenz muss wieder die Laue-Bedingung (Formel 2.6) erfüllt sein. Setzt man dies in Formel 2.7 ein, erhält man den sog. **Strukturfaktor** (Formel 2.8).

$$F_{hkl} = \int_{V_z} n(\vec{r}) e^{i\vec{G} \cdot \vec{r}} dV \quad (2.8)$$

Formel 2.8 kann weiter vereinfacht werden, indem der Ortsvektor \vec{r} aufgeteilt wird in eine Komponente \vec{R}_i , die auf das Zentrum des i -ten Basisatoms zeigt und eine Komponente \vec{r}_e , die vom Basisatom aus auf das Volumenelement dV_e zeigt, das bedeutet $\vec{r} = \vec{R}_i + \vec{r}_e$. Dabei ergibt $\int_{V_{e_i}} n_i(\vec{r}_e) dV_e = Z_i$ die Gesamtzahl der Elektronen des i -ten Basisatoms und V_{e_i} , sozusagen, das Volumen der Elektronenhülle.

Eingesetzt in Formel 2.8 und umgeformt, ergibt sich Formel 2.9. f_i nennt man auch **atomarer Streufaktor**.

$$F_{hkl} = \sum_i e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}_i} \int_{V_{e_i}} n_i(\vec{r}_e) e^{i\vec{G} \cdot \vec{r}_e} dV_e = \sum_i f_i e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}_i} \quad (2.9)$$

Der atomare Streufaktor ist ein Maß dafür, wie stark das i -te Basisatom die einstrahlte elektromagnetische Welle streut und eng verbunden mit der Ordnungszahl Z der Atome. Für Bragg-Reflexe mit niedrigen Indizes (hkl) kann die Abweichung zwischen f_i und Z sehr klein werden [5, S.37]. Wären alle Elektronen im Atomkern konzentriert, wären f_i und Z identisch.

Es wurde gezeigt, dass F_{hkl} proportional zur Streuamplitude des elektrischen Feldes ist, somit gilt für die Intensität der Bragg-Reflexe $I_{hkl} \propto |F_{hkl}|^2$. Dies kann z.B. bei zweiatomigen Basen bis zur völligen Auslöschung des Bragg-Reflexes führen.

Ein Großteil dieser Diplomarbeit beschäftigt sich mit dem Material **Eisen-Rhodium (FeRh)**. Der zugehörige Strukturfaktor lässt sich folgendermaßen bestimmen. FeRh besitzt die sog. Cäsium-Chlorid Struktur, d.h. es liegt ein einfach-kubisches Gitter aus Eisen (Rhodium) Atomen vor, in dessen Zentrum ein Rhodium (Eisen) Atom sitzt (siehe auch Abb. ??). Die Basis ist zweiatomig mit den Atom Positionen $\vec{r}_1 = (0, 0, 0)$ für Eisen und $\vec{r}_2 = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ für Rhodium. Eingesetzt in Formel 2.9 ergibt sich für den Strukturfaktor Formel 2.10.

$$F_{hkl} = f_1 + f_2 e^{i\pi n(h+k+l)} \quad (2.10)$$

Die Intensität des Bragg-Reflexes mit den Indizes (100) ist folglich proportional zu $F_{(100)} = f_{Fe} - f_{Rh}$, falls die Probe zu gleichen Teilen aus Eisen und Rhodium besteht. Das sich in unserem Experiment der $FeRh_{(100)}$ -Reflex überhaupt detektieren lässt, liegt an den unterschiedlich großen, atomaren Streufaktoren. Die Ordnungszahl von Rhodium ($Z_{Rh} = 45$) ist dabei fast doppelt so groß wie die von Eisen ($Z_{Fe} = 26$).

2.1.4 Debye-Waller-Faktor

Ein weiterer Faktor, der Einfluss auf die Intensität unserer Bragg-Reflexe nimmt, ist die Temperatur. Wird sie erhöht, fangen die Atome an, stärker um ihre Ruhelage zu oszillieren. Dieser Umstand wird in folgendem Abschnitt genauer betrachtet.

Die Bewegung der Oszillation $\vec{u}(\vec{t})$ geschieht für jedes Atom unabhängig und in zufällige Richtung. Der zeitliche Mittelwert dieser Bewegung ist $\langle \vec{u}(\vec{t}) \rangle = 0$. Eingesetzt in die Gleichung des Strukturfaktors und dann über die Zeit gemittelt, ergibt sich Formel 2.11.

$$\langle F_{hkl} \rangle = \sum_i f_i \langle e^{i\vec{G} \cdot \vec{r}_i + \vec{u}} \rangle = \langle e^{i\vec{G} \cdot \vec{u}} \rangle (\sum_i f_i e^{i\vec{G} \cdot \vec{r}_i}) \quad (2.11)$$

Der Mittelwert lässt sich weiter umformen, indem die e-Funktion in eine Reihe ent-

wickelt wird. Das erste Glied $\langle \vec{G} \cdot \vec{u} \rangle$ wird dann zu 0, da $\langle \vec{u} \rangle = 0$ und es ergibt sich:

$$\begin{aligned} \langle e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}} \rangle &= 1 + i \langle \vec{G} \cdot \vec{u} \rangle - \frac{1}{2} \langle i(\vec{G} \cdot \vec{u})^2 \rangle + \mathcal{O}(\vec{G} \cdot \vec{u})^3 \\ &= 1 - \frac{1}{2} \langle |\vec{G}|^2 |\vec{u}|^2 \cos^2 \Theta \rangle + \mathcal{O}(\vec{G} \cdot \vec{u})^3 \\ &= 1 - \frac{1}{6} |\vec{G}|^2 \langle |\vec{u}|^2 \rangle + \mathcal{O}(\vec{G} \cdot \vec{u})^3 \end{aligned}$$

Da $u(\vec{t})$ im allgemeinen klein ist im Verhältnis zum Atomabstand können die Terme höherer Ordnung vernachlässigt werden. Vergleicht man die erste und dritte Zeile der Entwicklung, ergibt sich die Näherung:

$$\langle e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}} \rangle = e^{-\frac{1}{6} |\vec{G}|^2 \langle \vec{u}^2 \rangle}$$

Wie bereits erwähnt, ist die Intensität des Bragg-Reflexes proportional zu $|F_{hkl}|^2$, daraus folgt insgesamt [17]:

$$\begin{aligned} I_{hkl} &= \text{const} \cdot |\langle F_{hkl} \rangle|^2 = \text{const} \cdot |(\sum_i f_i e^{i\vec{G}\cdot\vec{r}_i}) (e^{-\frac{1}{6} |\vec{G}|^2 \langle \vec{u}^2 \rangle})|^2 \\ &= I_0 \cdot e^{-\frac{1}{3} |\vec{G}|^2 \langle \vec{u}^2 \rangle} := I_0 \langle D_{hkl} \rangle \end{aligned} \quad (2.12)$$

D_{hkl} wird **Debye-Waller-Faktor** genannt. Er ist über $u(\vec{t})$ temperaturabhängig und sorgt bei thermischer Anregung des Materials für eine Reduzierung der Intensität der Bragg-Reflexe. Ferner ist er abhängig von dem reziproken Gittervektor \vec{G} , was dazu führt, dass der Effekt bei Reflexen hoher Ordnung und hohen Indizes (hkl) stärker ausgeprägt ist.

2.2 Charakteristische Röntgenstrahlung

Als Quelle der benötigten Strahlung dient, unter anderem, die sog. charakteristische Röntgenstrahlung von Atomen. Ihre Ursache liegt in der Quantisierung der Energie der Elektronenhülle begründet.

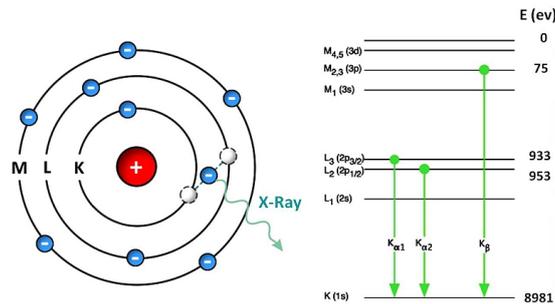


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der char. Röntgenstrahlung (Links) und Bindungsenergien in Kupfer (Rechts) [18]

Hat ein freies Elektron eine genügend große Energie, kann es ein gebundenes Elektron der inneren Schale auf ein höheres Energieniveau anregen oder sogar das Atom ionisieren. Der unbesetzte Zustand wird dann von Elektronen einer höheren Schale aufgefüllt. Da diese Elektronen aber eine größere Energie besitzen, wird die Differenz der Energieniveaus als Strahlung $E_{\text{photon}} = \hbar\omega$ emittiert. Üblicherweise ist die Energie so groß (einige keV [18]), dass bei dem Prozess Röntgenphotonen entstehen. Da jedes Material eine individuelle Aufspaltung der Energieniveaus aufweist, nennt man sie charakteristische Strahlung.

Die charakteristischen Linien des Röntgenspektrums werden nach ihrem Entstehungsprozess benannt (Abb. 2.4). Dabei bezeichnet der erste Buchstabe (K,L,M,...) die Schale, in der das Elektronen-Loch entstanden ist. Der zweite Buchstabe (α , β , γ ,...) beschreibt die Herkunft des Elektrons, das die Lücke auffüllt, α ist z.B. β die übernächste, etc. Der Index (1,2,3,...) berücksich-

tigt die Aufspaltung der Energieniveaus der jeweiligen Schale. Für Kupfer K_{α_1} Strahlung bedeutet das konkret, dass ein Elektron der K-Schale entfernt wurde und ein Elektron aus dem ersten Energieniveau (von Oben gezählt) der, direkt darüber liegenden Schale seinen Platz eingenommen hat. Dabei wurde die Energie $E_{Ph} = 8980.5eV - 932.7eV = 8047.8eV$ [18] in Form von Röntgenstrahlung emittiert.

2.3 Phononen und Expansionswellen

Werden Atome eines Kristallgitters zu elastischen Schwingungen angeregt, bilden sich, durch die Wechselwirkung mit benachbarten Atomen, Wellen aus, die sich im Kristall fortpflanzen. Für Kristalle mit einatomiger Basis ergibt sich die einfachste mathematische Beschreibung dieser Wellen, wenn sie sich entlang der Kristallachsen, Flächendiagonalen oder Raumdiagonalen der Einheitszelle ausbreiten [17, S.99]. In diesem Fall bewegen sich die Atome der Gitterebenen in Phase, senkrecht oder parallel zur Ausbreitungsrichtung der Welle.

Es lässt sich zeigen, dass die Energie der Gitterschwingungen quantisiert ist [17, S.638].

$$\epsilon = \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega(k) \quad (2.13)$$

Dabei ist ω die Kreisfrequenz der Schwingungsmode und $n = 0, 1, 2, \dots$ die Modennummer. Die Abhängigkeit der Frequenz von der Wellenzahl wird, genau wie in der Optik, **Dispersionsrelation** genannt. Analog zum quantisierten, elektromagnetischen Feld, nennt man das Energiepaket $\hbar\omega$ **Phonon**. Damit wird n zur Anzahl der Phononen einer Gitterschwingung. Das Phonon ist ein sog, Quasiteilchen.

Ist die Basis des Kristalls zweiatomig gibt es zwei, voneinander getrennte Frequenzzweige in der Dispersionsrelation. Man unterscheidet dann zwischen **akustischen und optischen Phononen**. Der niederfrequente, akustische Zweig kommt zu Stan-

de, wenn die Basisatome in Phase schwingen, der hochfrequente, optische, wenn sie gegenphasig schwingen.

In dieser Arbeit werden Experimente beschrieben, bei denen dünne Filme mittels kurzer Laserpulse angeregt werden. Um den resultierenden Vorgang zu beschreiben, existiert ein einfaches Modell, das eine instantane, homogene Aufheizung des Kristallgitters betrachtet. Man stellt sich dazu eine Probe vor, die relativ dünn (einige nm), aber sehr lang und breit ist (einige mm) und deren Oberflächen frei liegen. Durch die thermische Anregung, wird ein Druck in der Probe erzeugt, der zur Ausdehnung derselben führt. Die Ausdehnung kann aber nicht im ganzen Kristall gleichzeitig geschehen, sondern beginnt an den Oberflächen, da nur hier ein Druckgradient existiert. Die Verformung der Probe pflanzt sich als **Expansionswelle** fort und ist, gemäß der vorherigen Ausführungen, gleichbedeutend mit longitudinalen, akustischen Phononen. Ihre Ausbreitungsgeschwindigkeit ist die Schallgeschwindigkeit v_{Schall} , die sich formal aus der Dispersionsrelation ergibt. Im einfachen, aber leistungsstarken Modell der linearen Kette von Atomen erhält man [5, S.82]:

$$v_{Schall} = \frac{d\omega}{dk} = d_{hkl} \sqrt{\frac{f}{M}} \cos\left(k \frac{d_{hkl}}{2}\right) \approx d_{hkl} \sqrt{\frac{f}{M}} \quad (2.14)$$

Dabei ist M die Masse eines Atoms, f die Federkonstante und d_{hkl} der Atomabstand. Die Näherung $\cos\left(k \frac{d_{hkl}}{2}\right) \approx 1$ gilt, da allgemein $ka \ll 1$, d.h. die Wellenlänge der akustischen Welle wesentlich größer als der Gitterabstand ist.

Die akustischen Wellen breiten sich somit entlang der Flächennormalen aller Oberflächen aus und überlagern sich. Der Einfachheit halber kann man die Betrachtung auf ein kleines Volumenelement dV in der Mitte des Kristalls begrenzen. Auf kurzen Zeitskalen ($t \ll \frac{[mm]}{v_{Schall}}$) können somit die Expansionswellen der Randflächen vernachlässigt werden. Die Expansion in Richtung der Flächennormalen der dünnen Schicht wird dann als ebene Welle betrachtet (Abb. 2.5).

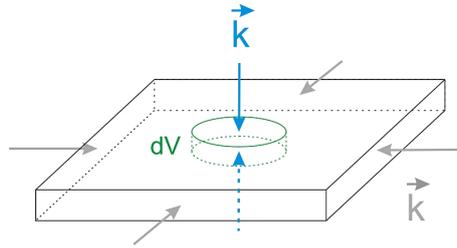


Abbildung 2.5: Schema der Probe, mit Volumenelement dV und Wellenvektoren \vec{k} der Akustischen Wellen.

Erreicht eine ebene, akustische Welle die gegenüberliegende Oberfläche, wird sie reflektiert und überlagert sich mit der ursprünglichen Welle. Die Art und Weise der Reflexion hängt dabei von dem Kontakt zur Umwelt ab und wird im Folgenden näher erläutert.

Eine ideale Methode solch einen Vorgang zu beobachten, ist die Röntgenbeugung. In Abschnitt 2.1.1 wurde die Position des Bragg-Reflexes in Abhängigkeit vom Abstand d_{hkl} der Gitterebenen erläutert. Wählt man den Bragg-Reflex so, dass der reziproke Gittervektor \vec{G} parallel zur Ausbreitungsrichtung der Schallwelle ist, so lassen sich aus Änderungen der Rocking-Kurven sehr direkt quantitative Informationen über die Schallwelle gewinnen [19, S.71-100].

Zeitaufgelöste Messungen [19, 20, 21, 22] der Schwerpunktsposition oder Intensität des Bragg-Reflexes zeigen Oszillationen, deren Periode $T = \frac{2L}{v_{Schall}}$ (Fall 1), respektive $T = \frac{4L}{v_{Schall}}$ (Fall 2) (L : Dicke der Probe) beträgt. Die Zeitabhängigkeit lässt sich an einem einfachen Beispiel, anschaulich erklären. Dazu betrachtet man sukzessive die Überlagerung der akustischen Wellen und die daraus resultierende Deformierung $\frac{\Delta d_{hkl}}{d_{hkl}}$ der Probe (Abb. 2.6). Der thermische Druck wird im Beispiel, wie zuvor, instantan induziert, ist homogen über die ganze Probe verteilt und zeitlich konstant. Die Unterseite der Probe sei jetzt an ein (nicht angeregtes) Substrat gekoppelt, die Oberseite bleibt frei.

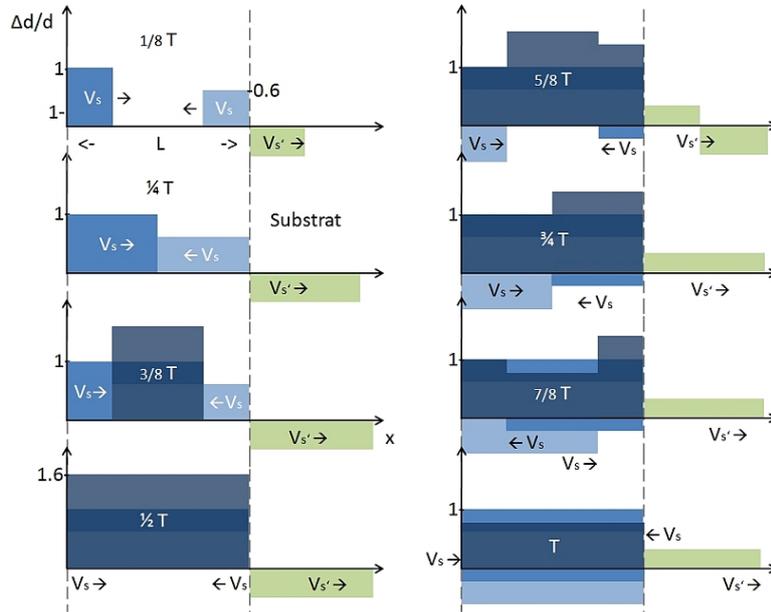


Abbildung 2.6: Zeitliche Evolution der Probendeformation (Fall 1). In Dunkelblau: die Resultierende der Wellenüberlagerungen.

Die Reflexion R_{Gf} der Welle an den Grenzflächen hängt von der Schallkennimpedanz der Probe Z_P , des Substrates Z_S und der Luft Z_{air} ab. Sie berechnet sich aus der Dichte ρ_{Medium} und der Schallgeschwindigkeit v_{Schall} der Medien.

$$Z_{Medium} = \rho_{Medium} \cdot v_{Medium} \quad (2.15)$$

$$R_{Gf} = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1} \quad (2.16)$$

Abbild 2.6 zeigt den Fall $Z_P > Z_S \gg Z_{air}$. Das hat zur Folge, dass die Wellenamplitude an der Grenzfläche zur Luft ihr Vorzeichen ändert, ansonsten aber zu annähernd 100% erhalten bleibt. An der zweiten Grenzfläche geht Energie ins Substrat über, die Reflexion ist kleiner als 1 und die Amplitude ändert ebenfalls ihr Vorzeichen.

Die Periode der Oszillationen lässt sich nun wie folgt erklären. Zur Zeit $\frac{T}{2}$ (*Fall 1*) ist die Probe maximal ausgedehnt und damit die Verschiebung des Bragg-Reflexes ebenfalls maximal. Darauf folgt ein Minimum der Ausdehnung zur Zeit T und somit auch ein Minimum der Reflex-Verschiebung. $\frac{T}{2}$ ist dabei die Zeit, die die akustische Welle benötigt um einmal die Probe zu durchlaufen und stimmt mit den Beobachtungen der Oszillationen [19, 20] überein. Ist $Z_P < Z_S$ (*Fall 2*) ergibt sich an der Grenzfläche zum Substrat ein positiver Reflexionsfaktor und die maximale Ausdehnung wird erst bei dem zweiten Durchlauf der Welle, also zur Zeit T erreicht.

Im allgemeinen gestaltet sich der Vorgang komplexer, da der Druckanstieg in der Probe beispielsweise durch Laseranregung nicht instantan und/oder homogen erfolgt. Wie U. Shymanovich und M. Nicoul [19, 20] jedoch am Beispiel von dünnen Germanium-Filmen auf Silizium gezeigt haben, lässt sich das Modell sehr gut in Einklang bringen mit experimentellen Ergebnissen.

2.4 Das 2-Temperatur-Modell

In Abschnitt 2.3 wurde die instantane Anregung einer Probe angesprochen. Dies ist in der Praxis nicht möglich, da alle Prozesse Zeit benötigen, die sich im Falle der hier diskutierten Experimente, nicht ohne weiteres vernachlässigen lässt. Um eine praxistaugliche Beschreibung der Anregung zu erhalten, wird oft das sog. 2-Temperatur-Modell genutzt. Es berücksichtigt den Energieübertrag auf das elektronische System und dessen Kopplung mit dem phononischen System.

Trifft ein Laserpuls auf eine Probe, wechselwirkt er in erster Linie mit den Elektronen des Systems. Erklären lässt sich dies dadurch, dass die elektronische Wärmekapazität C_{el} wesentlich kleiner (Faktor 100 [23]) als die Wärmekapazität C_l des Gitters ist, was zur Folge hat, dass die Erhöhung der Elektronenenergie wesentlich größer ist, als die Temperaturerhöhung des Gitters.

Das elektronische System befindet sich dann im Ungleichgewicht. Die Thermalisierung, also Umverteilung der Energie bis zur annähernden Fermie-Dirac-Verteilung, geschieht durch **Elektron-Elektron Stöße** auf Zeitskalen einiger **10 bis 100 Femtosekunden** [24]. Die Elektronen können dabei durchaus Strecken von einigen 10-100nm ohne Stöße zurücklegen [25] und somit für eine wesentlich größere Anregungstiefe sorgen im Vergleich zur ursprünglichen Eindringtiefe des Laserpulses.

Die Kopplung des elektronischen Systems mit dem Gittersystem geschieht durch **Elektron-Phonon Stöße**. Durch die größere Masse der Gitteratome, ist der Energieübertrag jedoch deutlich geringer als zwischen den Elektronen und dauert länger. Die Zeitskala des Austausches liegt im Bereich einiger **100 Femtosekunden bis zu einigen 10 Pikosekunden** [23].

Mathematisch lässt sich der Vorgang zum Beispiel für Metalle durch zwei gekoppelte Differentialgleichungen beschreiben, in denen die Energie der Elektronen und des Gitters mittels der **zeit- und ortsabhängigen Temperaturen** T_{el} und T_l ausgedrückt wird.

$$C_{el}(T_{el}) \frac{\delta T_{el}}{\delta t} = \nabla(\kappa_{el}(T_{el}, T_l) \nabla T_{el}) - g(T_{el} - T_l) + S(\vec{r}, t) \quad (2.17)$$

$$C_l(T_l) \frac{\delta T_l}{\delta t} = \nabla(\kappa_l(T_l) \nabla T_l) + g(T_{el} - T_l) \quad (2.18)$$

Dabei beschreiben $C_{el,l}$ die spezifischen Wärmekapazitäten der Systeme, $\kappa_{el,l}$ die Temperaturleitfähigkeiten, g die Elektron-Phonon Kopplung und $S(\vec{r}, t)$ die Anregung durch z.B. den Laserpulse [24].

In dieser Form gelten die Gleichungen nicht allgemein für alle Materialien. Für Halbleiter und Isolatoren, muss beispielsweise zusätzlich die zeitlich-räumliche Entwicklung der Elektron-Loch-Paar-Dichte berücksichtigt werden.

Kapitel 3

Experimente an einem dünnen Eisen-Rhodium Film

Im diesem Kapitel wird die Untersuchung des Phasenüberganges eines dünnen Eisen-Rhodium Filmes, von dem anti-ferromagnetischen in den ferromagnetischen Zustand, vorgestellt. Mittels eines Femtosekunden, Terawatt Laser-Systems in Kombination mit einer Laser-Plasma-Röntgenquelle, wurden dazu zeitaufgelöste Experimente im sog. Anrege-Abfrage-Verfahren durchgeführt.

Der erste Abschnitt des Kapitels beschreibt das 10Hz Laser-System und die Röntgenquellen der AG Bovensiepen, die momentan für zeitaufgelöste Röntgenbeugungsexperimente zur Verfügung stehen. Danach werden Informationen zu der Eisen-Rhodium Legierung präsentiert, die besonderen Eigenschaften des magnetischen Phasenübergangs beschrieben und seine Untersuchung motiviert. Es folgt eine Erläuterung des verwendeten Versuchsaufbaus und einige recherchierte Materialdaten zu der Probe, die für die Interpretation der experimentellen Daten wichtig sind. Abschließend werden die Messergebnisse präsentiert und diskutiert.

3.0.1 Das Femtosekunden Terawatt Laser-System

Der "treibende Motor" der durchgeführten Experimente, ist das **10 Hz Titan-Saphir Femtosekunden Terawatt Laser-System** der AG Bovensiepen, Univer-

Mittlere Wellenlänge	800 nm
Spektrale Breite	21 nm
Übliche Pulsdauer	120 fs
Maximale Pulsenergie	145 mJ
Kontrastverhältnis bei 2ps	10^{-7}
Repetitionsrate	10 Hz

Tabelle 3.1: Parameter des LASER-Systems [19, 20, 26] (aktualisiert)

sität Duisburg-Essen. Es basiert auf dem Prinzip der *chirped pulse amplification* (CPA [27]), um sehr kurze Pulse mit hoher Intensität zu erzeugen. Dazu werden zunächst mit einem modengekoppelten Titan-Saphir Oszillator kurze (45fs), niederenergetische ($\sim 1\text{nJ}$, 80MHz) Pulse erzeugt. Diese Pulse haben eine (mittlere) Wellenlänge von 800nm und eine spektrale Breite von 21nm (FWHM) [19, 20]. Auf den Oszillator folgt ein sog. "stretcher", der die Pulsdauer auf $\sim 200\text{ps}$ verlängert. Dies gelingt durch eine Frequenzmodulation ("chirpen") mittels winkeldispersiver Elemente (Gitter). Die Folge ist eine abgesenkte Spitzenintensität, die den Zweck hat, die Pulse besser verstärken zu können. Eine Pockels-Zelle sorgt dann für eine Selektion des zu verstärkenden Pulses und reduziert die Repetitionsrate auf 10Hz (einstellbar). Die Verstärkung geschieht in zwei Stufen, bestehend aus je einem TiSa-Kristall, der mit einem Nd:YAG Laser gepumpt werden. Die Pulsenergie beträgt danach etwa 240mJ. Zuletzt werden die "gechirpten" und verstärkten Pulse in einen Gitterkompressor geleitet, der sie auf etwa 120fs verkürzt (Optimum für die Produktion kurzer Röntgenpulse). Er kompensiert dabei die durch den stretcher aufgeprägte Phasenmodulation. Da die Gesamttransmission des Kompressors etwa 60% beträgt, stehen am Ausgang noch etwa 140mJ zur Verfügung. Von dort aus können die Pulse zum Experiment umgeleitet werden.

Üblicherweise werden die Pulse bis zur Probe durch weitere dispersive Komponenten des optischen Aufbaus zusätzlich bis auf ca. 90fs verkürzt, dies gelingt durch eine

Vorkompensierung im Kompressor.

3.0.2 Die Laser-Plasma-Röntgenquellen

In den letzten Jahren sind an der Universität Duisburg-Essen einige Arbeiten zum Thema Laser-Plasma-Röntgenquellen erschienen, die sich ausführlich mit der Entwicklung, Charakterisierung und Nutzung eben dieser beschäftigen [28, 29, 30, 26, 19, 31, 20, 32]. Zur Zeit sind in der AG Bovensiepen zwei verschiedene Laser-Plasma-Röntgenquellen zur Erzeugung ultrakurzer Röntgenpulse im Einsatz. Das Funktionsprinzip ist dabei identisch, lediglich die technische Ausführung weicht etwas ab.

Die Grundidee ist wie folgt: Der Femtosekunden, Terawatt Laser des Experimentes wird so stark auf ein Festkörpermaterial ("target") fokussiert, dass die Ionisationsschwelle überschritten wird und im Fokus ein Plasma entsteht. Typische Intensitäten für die Schwelle zur Plasmabildung liegen bei $10^{12} - 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ [28]. Der Vorgang ist, auf Grund der limitierten Eindringtiefe des Lasers von ca. 10nm, auf einen relativ kleinen Bereich an der Oberfläche des targets beschränkt.

Die freien Elektronen des generierten Plasmas wechselwirken mit dem (immer noch) vorhandenen elektromagnetischen Feld des Lasers und werden so stark beschleunigt, dass sie in den nicht angeregten Teil des Materials eindringen. Reicht ihre Energie aus, um durch Stöße gebundene Elektronen der inneren Schalen auszulösen (einige 10 keV), dann kommt es zu der, in Abschnitt 2.2 beschriebenen charakteristischen *K*-Röntgenstrahlung. Sie wird in den vollen Raumwinkel abgestrahlt. Ihre Pulsdauer ist in etwa identisch, mit der Pulsdauer des Lasers, da die erforderlichen, hochenergetischen Elektronen nur während der Einwirkung des Laserimpulses vorhanden sind. Da der Wirkungsquerschnitt für die K-Ionisation darüber hinaus stark von der Elektronenenergie abhängt [28], darf die kinetische Energie der Elektronen aber auch nicht zu groß werden. Reich *et al.* [33] haben aus Simulationsrechnungen eine einfache Formel zur Bestimmung der optimalen Laserintensität entwickelt. Sie

ist abhängig von der Ordnungszahl Z des Targets:

$$I_{opt} = 7 \cdot 10^9 \cdot Z^{4.4} \quad (3.1)$$

Begleitet wird die charakteristische Strahlung von einem breitbandigen Bremsstrahlungsuntergrund. Der hier skizzierte Prozess der Erzeugung von Röntgenstrahlung mittels eines lasergenerierten Plasmas weist damit Ähnlichkeit zur Funktionsweise einer konventionellen Röntgenröhre auf.

Das Eisen-Rhodium Experiment, das in diesem Kapitel vorgestellt wird, nutzt ein Titan-Draht-Target als Röntgenquelle. Das System wurde an der Universität Duisburg-Essen entwickelt und gebaut [28, 29]. Der $250\mu\text{m}$ starke Draht wird dabei über mehrere Walzen geführt, um möglichst genau und stabil im Fokus des Lasers zu bleiben. Ein Motor wickelt den Draht während des Experimentes langsam von einer 500m Rolle ab, so dass durch jeden ankommenden Puls ein "frisches" Stück des Drahtes bestrahlt wird. Dies ist notwendig, da der Laser den Titan Draht bei mehrfacher Bestrahlung der gleichen Stelle innerhalb kürzester Zeit durchtrennt.

Die theoretische Messzeit mit diesem System liegt bei über 100 Stunden, was die Konstruktion optimal für Langzeitmessungen macht.

Aus Formel 3.1 können wir die optimale Intensität zur Erzeugung von Titan K_α -Strahlung abschätzen, sie liegt bei $\sim 6 \cdot 10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Der Brennpunkt des Lasers auf dem Draht ist etwa $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ [26, 19], damit erhalten wir für die maximale Intensität des Lasersystems etwa $\frac{145\text{mJ}}{120\text{fs} \cdot (10\mu\text{m})^2} = 1.2 \cdot 10^{18} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Durch Verschieben der Linse (Draht außerhalb des Fokus), kann die Intensität angepasst und die Röntgenausbeute optimiert werden [29, 32].

Die **Röntgenausbeute** der Ti K_α -Quelle beträgt in unserem experimentellen Aufbau etwa $\sim 4.5 \cdot 10^9 \frac{\text{Photonen}}{\text{Pulse}}$ in 4π Raumwinkel [19], die **Energie der Photonen ist 4.51 keV**.

In einem weiteren Aufbau steht ein Kupfer-Band-Target zur Erzeugung kurzer Rönt-

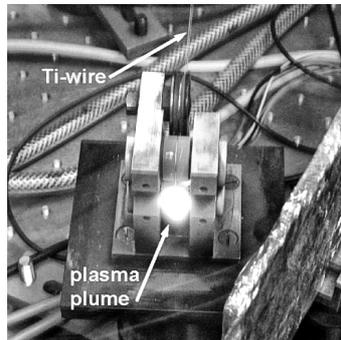


Abbildung 3.1: Foto des Titan-Draht-Targets [19]

genpulse zur Verfügung. Das Gerät stammt aus dem "Institut für Optik und Quantenelektronik, Gruppe Röntgenoptik" der Friedrich-Schiller-Universität Jena. Es nutzt ein dünnes Kupfer-Band, von zur Zeit $10\mu\text{m}$ Dicke und etwa 2.5cm Breite, dass an zwei Walzen befestigt wird. Die beiden Walzen rollen abwechselnd das Band auf und werden nach jedem Umlauf etwa 1mm seitlich verschoben. Die Länge des Bandes ist ca. 15m , durch die seitliche Verschiebung kann es maximal 25 Umläufe vollziehen und reicht für mehr als 12 Stunden [32].

Der Vorteil des Kupfer-Band-Targets ist, dass es in Transmission betrieben werden kann. Das $10\mu\text{m}$ Kupfer-Band absorbiert dabei ca. 50% der erzeugten K_α -Strahlung, auf Grund der Geometrie des optischen Aufbaus ist ein Betrieb in Reflexion allerdings nicht immer möglich. Durch die intensive Laserbestrahlung entsteht hinter dem Band ein, nicht unerheblicher, Ausstoß von Kupferpartikeln (Debris-Jet). Um die optischen Komponenten (und das Target selber) zu schützen wird deshalb eine zusätzliche $8\mu\text{m}$ Kaptonfolie zusammen mit dem Band aufgewickelt.

Aus Formel 3.1 ergibt sich diesmal eine optimale Laserintensität von $\sim 2 \cdot 10^{16} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$, Experimente haben jedoch gezeigt, dass die Leistung der Quelle auch darüber hinaus weiter ansteigt. Die **Röntgenausbeute** beträgt $\sim 5 \cdot 10^9 \frac{\text{Photonen}}{\text{Pulse}}$ in 4π Raumwinkel [26, 32], mit einer **Photonenenergie von 8.05keV**.

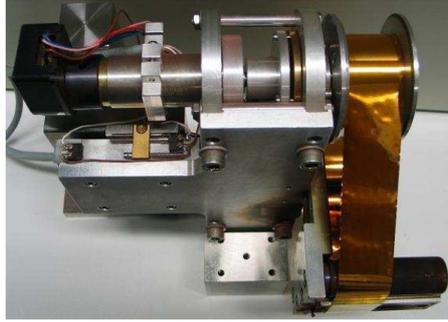


Abbildung 3.2: Foto des Kupfer-Band-Targets [20]

3.1 Eigenschaften von Eisen-Rhodium Legierungen

Eisen-Rhodium (FeRh) Legierungen mit nahezu stöchiometrischer Zusammensetzung sind **anti-ferromagnetisch (AFM)** bei Raumtemperatur und weisen eine Besonderheit auf, wenn sie erhitzt werden. 1938 entdeckten Fallot et al. [34] erstmals, dass sie durch statisches Heizen einen **Phasenübergang erster Ordnung** vollziehen und **ferromagnetisch (FM)** werden. Die Temperatur des AFM-FM Phasenübergangs wurde dabei bestimmt als $\mathbf{T}_{\text{crit}} \approx 65^\circ\text{C}$. AFM-FM Übergänge sind zwar nicht unbekannt (FeRu), bei vielen untersuchten Materialien liegt jedoch die FM-Phase energetisch unterhalb der AFM-Phase (FeV, FeAl [35]). Eine weitere Besonderheit ist, dass der Phasenübergang oberhalb der Raumtemperatur stattfindet [36].

Es sind einige interessante Merkmale des Phasenübergangs bekannt. Bei Raumtemperatur ist FeRh in CsCl-Struktur angeordnet (vgl. Abschnitt 2.1.3). Die, an den Gitterpunkten lokalisierten, magnetischen Momente sind dabei antiparallel ausgerichtet und haben die Werte $m_{\text{Fe}} = \pm 3.3\mu_B$ für Eisen und $m_{\text{Rh}} \approx 0\mu_B$ für Rhodium [37]. Die CsCl-Struktur bleibt auch in der FM-Phase erhalten, **das Volumen erhöht sich** jedoch sprunghaft um $\sim 1\%$ [38]. Die magnetischen Momente der Fe-Atome werden leicht abgeschwächt auf $m_{\text{Fe}} = 3.2\mu_B$, die Rh-Momente haben in der FM-Phase $m_{\text{Rh}} \approx 1\mu_B$ (Abb. 3.3). Sie sind jetzt parallel ausgerichtet.

Zusätzlich zu den Momentänderungen erfolgt eine **Reduzierung des elektrischen Widerstandes um $\sim 30\%$** [39]. Dieser Effekt wird auch bei künstlich angefertigten, magnetischen Vielschichtsystemen beobachtet und hat unter dem Namen "Giant magnetoresistance" (**GMR**) große Aufmerksamkeit erlangt. Bei FeRh können die abwechselnden Schichten magnetischen Eisens und nicht magnetischen Rhodiums (AFM-Phase) als natürliches Vielschichtsystem betrachtet werden.

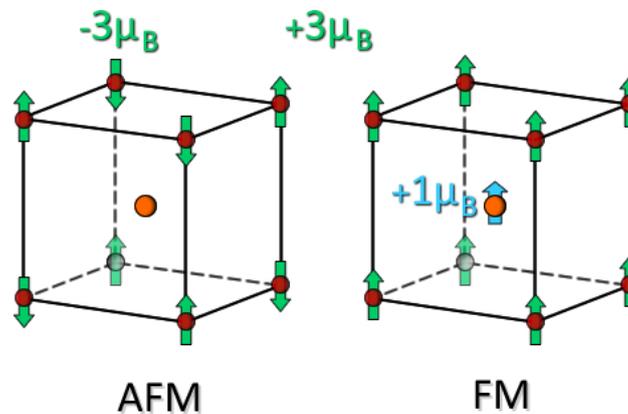


Abbildung 3.3: FeRh Einheitszelle in AFM und FM Phase mit mag. Momenten - Rot: Fe, Orange: Rh [40]

Der AFM-FM Phasenübergang kann nicht nur durch Heizen sondern auch durch Anlegen eines Magnetfeldes initiiert werden, bei Raumtemperatur sind etwa 40kOe nötig [39]. GMR-Eigenschaften, magnetisches "Schalten" und eine Übergangstemperatur größer als die Raumtemperatur, machen FeRh-Legierungen interessant für Anwendungen im Bereich der Datenspeicherung, der Spintronik oder Sensortechnik. Das erklärt sicherlich auch die auffallend große Anzahl von wissenschaftlichen Arbeiten, die durch die Industrie finanziert werden [41, 39, 42, 43, Hitachi, IBM, Seagate, Toyota].

Abseits der praktischen Anwendung, ist die Erforschung von Eisen-Rhodium aber vor allem für die Grundlagenforschung interessant, da sich durch die Curie-Temperatur

von $T_c = 680K$ [44] insgesamt 3 magnetische Phasen (AFM,FM,PM) in unmittelbarer Erreichbarkeit befinden, ohne dass sich die CsCl-Struktur dabei verändert. Dies gibt Wissenschaftlern die Möglichkeit die Wechselwirkung zwischen Spin-System, elektronischem System und Gitter zu untersuchen.

Es stellt sich dabei die typische "Henne oder Ei"-Frage: Treibt die Gitterexpansion den magnetischen Übergang oder stellt sich zunächst die neue magnetische Ordnung ein und das Gitter reagiert darauf.

Interessante Ansatzpunkte dazu ergeben zeitaufgelöste Experimente an FeRh nach Laseranregung. Sowohl Ju *et al* [45, 2004] als auch Thiele *et al* [46, 2004], haben den magnetooptischen Kerr-Effekt (MOKE) während und nach der Anregung mit kurzen Laserpulsen gemessen und dabei einen Anstieg der Magnetisierung im sub-Pikosekunden Bereich beobachtet. Sie schließen daraus, dass ferromagnetische Ordnung sich bereits auf dieser Zeitskala bildet und damit vorhanden ist bevor das Gitter expandieren kann (vgl. Abschnitt 2.3).

Radu *et al.* [47, 2010] haben ebenfalls die magnetische Eigenschaft untersucht. Sie nutzten dafür zeitaufgelöste *X-ray magnetic circular dichroism* (XMCD) Messungen und fanden eine langsame Entwicklung im Bereich einiger hundert Pikosekunden ($\tau \approx 120ps$). Allerdings war das Experiment in seiner Zeitauflösung durch Dauer der verwendeten Röntgenpulse auf etwa 10ps beschränkt.

Es bleibt weiterhin die Frage offen, wie genau die Reaktion des Gitters auf die Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen aussieht.

Das hier vorgestellte Experiment ist mit einer Zeitauflösung im Subpikosekunden Bereich dazu in der Lage, eine Antwort auf diese Frage zu liefern.

3.2 Experimenteller Aufbau

Für dieses Experiment wurde ein Versuchsaufbau genutzt, den Dr. U. Shymanovich im Zuge seiner Doktorarbeit bereits für zeitaufgelöste Untersuchungen akustischer Phononen in einem dünnen Germanium Film optimiert hatte [19]. Um den Aufbau für das geplante Experiment zu nutzen, mussten lediglich kleine Änderungen vorgenommen werden. Diese Änderungen werden gleich erläutert, zunächst folgen Informationen zum grundlegenden Prinzip.

Es handelt sich um einen Aufbau, der nach dem sog. **Anrege-Abfrage Verfahren** funktioniert. Dazu wird der Laser (Abschnitt 3.0.1) mittels eines Strahlteilers (Spiegel mit Loch in der Mitte) aufgeteilt.

Der erste Strahl wird genutzt, um die Probe optisch **anzuregen**. Der Laserpuls läuft dabei zunächst über eine Verzögerungsstrecke, die aus einem Retroreflektor, montiert auf einem Verschiebertisch, besteht. Danach wird er durch eine $\frac{\lambda}{2}$ -Platte gefolgt von einem Polarisator und einer Blende geleitet, um seine Intensität/Energiedichte zu regulieren. Schließlich wird er von einer Linse fokussiert und auf die Probe umgelenkt. Die räumliche Intensitätsverteilung im Fokus der Linse wird mit einer CCD-Kamera gemessen, dazu muss der Strahl jedoch kurzzeitig umgeleitet werden.

Der zweite Strahl (ca. 120mJ) wird genutzt, um den **Röntgen-Abfrageimpuls** zu erzeugen. Dies geschieht, indem der Puls mit einer Linse (Brennweite $f=30\text{cm}$) auf das Titan-Draht-Target (Abschnitt 3.0.2) fokussiert wird. Die produzierte Röntgenstrahlung wird in alle Raumrichtungen abgestrahlt und partiell von einem torisch gebogenen Kristall (Abschnitt 3.2.0.1) aufgefangen. Der torische Spiegel fokussiert die Röntgenstrahlung auf die Probe; der Einfallswinkel ist dabei der Bragg-Winkel eines ausgewählten Bragg-Reflexes. Dieser wird mit einer entsprechend angeordneten Röntgen-CCD Kamera detektiert. Für die Untersuchung der FeRh-Probe wurde das Experiment so eingestellt, dass der (001)-Reflex ($\Theta_B \approx 27.4^\circ$) etwa im Zentrum des Detektors lag. Zusätzlich zum torischen Spiegel, reflektiert ein kleiner GaAs Kristall, kurz hinter dem Target, einen Teil der Strahlung auf eine zweite CCD Ka-

mera. Dies dient als Referenz für die Röntgenproduktion und zur Normierung der Beugungssignale der Probe.

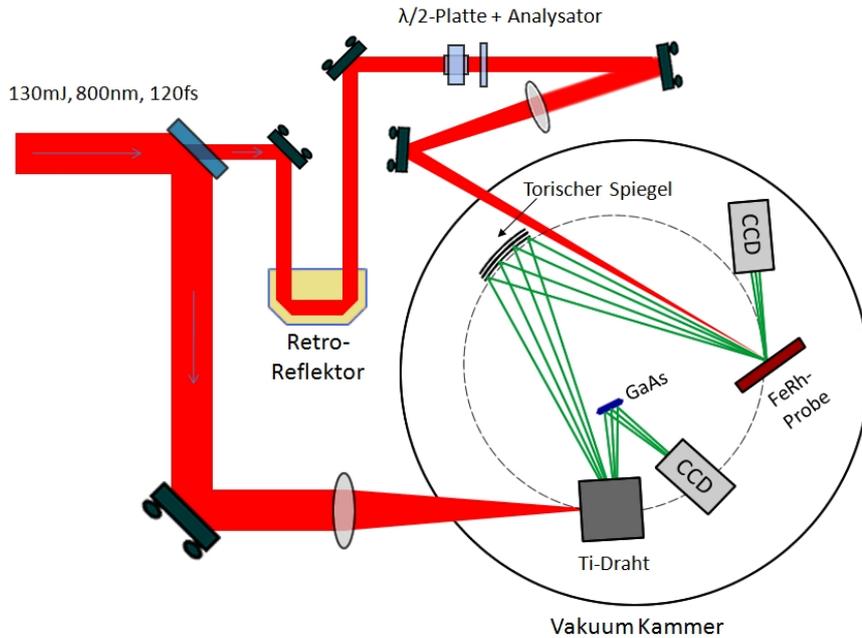


Abbildung 3.4: Schema des experimentellen Aufbaus

Der Erfolg des Anrege-Abfrage Verfahrens hängt maßgeblich davon ab, wie gut der räumliche Überlapp zwischen den Pulsen eingestellt werden kann, außerdem sollte der abfragende Puls wenigstens um den Faktor 3-4 kleiner sein als der anregende Puls, um sicher zu stellen, dass das Messsignal aus einem annähernd homogen angeregten Bereich der Probe stammt.

Die zeitliche Auflösung eines derartigen Experimentes wird durch die Verzögerungszeit von Anrege- und Abfragepuls bestimmt. Man kann sich den Prozess so vorstellen, als würde man viele Einzelerperimente (10Hz = 10 pro Sekunde) durchführen, die jeweils eine Momentaufnahme zu bestimmten Zeiten darstellen. Der gesamte Zeitverlauf wird dann aus den Momentaufnahmen rekonstruiert, ähnlich wie ein Daumenkino. Die Detektorgeschwindigkeit spielt dabei keine Rolle, so lange sie nur

schneller als die Repetitionsrate der Pulse ist.

Die limitierenden Faktoren für das zeitliche Auflösungsvermögen sind also zum einen die Präzision der Verzögerungsstrecke und zum anderen die Pulsdauer der Anregungs- und Abfragepulse. Ersteres ist üblicherweise kein Problem, da eine μm -Genauigkeit des Verschiebertisches ausreicht, Letzteres ist Thema aktuellster Forschungen.

Ein zusätzlicher Faktor ergibt sich, wenn der Winkel zwischen den beiden einfallenden Pulsen zu groß wird. Dann erreichen sie die Probe an der gleichen Stelle zu unterschiedlichen Zeiten und es kommt zu einer "Zeitverschmierung". Sie ergibt sich aus der Geometrie [29, S.39] und beträgt hier etwa 45fs ($100 \cdot 100\mu\text{m}^2$ Fokus, $\Theta_{X\text{-ray}} = 27.3^\circ$, $\Theta_{800\text{nm}} = 34^\circ$)

Da die Absorption der Titan K_α -Röntgenstrahlung in Luft leider nicht zu vernachlässigen ist (50% auf 10cm [28]), wurde das Titan-Target zusammen mit dem torischem Spiegel, der Probe und den Detektoren in einer Vakuumkammer aufgebaut. Eine Drehschieberpumpe sorgt dabei für Drücke von $\sim 1 - 10^{-1}\text{mbar}$. Ein zusätzlicher Vorteil des Vakuums ist, dass die CCD-Kameras stark abgekühlt werden können, was außerhalb der Kammer einen gewissen Mehraufwand bedeuten würde. Das führt zu einer erheblichen Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses.

Die anfangs angesprochenen Änderungen am ursprünglichen Aufbau betreffen zunächst die Probe. Damit der Phasenübergang eines Eisen-Rhodium Filmes temperaturabhängig beobachten werden konnte, wurde von U. Shymanovich eine einfache, aber effektive Probenheizung gebaut. Dazu wurde die Probe auf einen Metallstreifen geklebt, der durch Anlegen einer Spannung erhitzt werden kann. Die Temperatur wird unterhalb der Probe mit einem Thermoelement gemessen. Später wurde die Heizung durch M. Vattilana und den Autor um eine Temperaturregelung ergänzt. Weitere Arbeiten am Aufbau betreffen die Datenauswertung. Aufbauend auf einigen rudimentären Matlab-Funktionen der vorherigen Experimentatoren, wurde ein umfangreiches, automatisches Auswertungsprogramm geschrieben. Damit ist es

möglich, komplette Datensätze in wenigen Minuten, statt in Stunden auszuwerten. Außerdem wird der Experimentator in die Lage versetzt, bereits während des Experimentes detaillierte Einblicke in die gesammelten Daten zu erhalten.

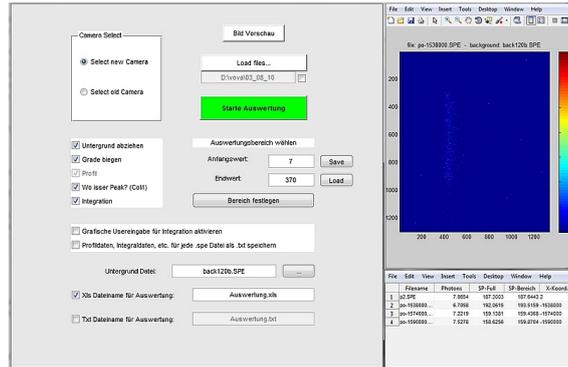


Abbildung 3.5: Neuentwickeltes Programm zur schnellen Datenauswertung in Matlab

3.2.0.1 X-Ray Optik: Der torisch gebogene Kristall

Was sich in 3.2 einfach anhört, nämlich die Fokussierung der Röntgenstrahlung, ist eine Wissenschaft für sich. In diesem Abschnitt wird deshalb noch einmal detaillierter auf die Besonderheiten des torisch gebogenen Kristalls eingegangen.

Alle, in dieser Arbeit vorgestellten Experimente, basieren auf dem Prinzip der Röntgenbeugung, leider bedeutet das auch, dass keine herkömmlichen Spiegel verwendet werden können, um die Strahlung zu Reflektieren ($n \approx 1 \rightarrow R \ll 1$). Der torische Spiegel nutzt deshalb die Röntgenbeugung selbst um den einfallenden Strahl zu fokussieren. Konsequenterweise muss er in Bragg-Geometrie betrieben werden um eine maximale Beugungseffizienz zu erreichen. Damit die Bragg-Bedingung für einen möglichst großen Raumwinkel erfüllt ist, ist der Kristall, ähnlich einem Torus, gekrümmt. Horizontaler und vertikaler Krümmungsradius weichen dabei leicht voneinander ab.

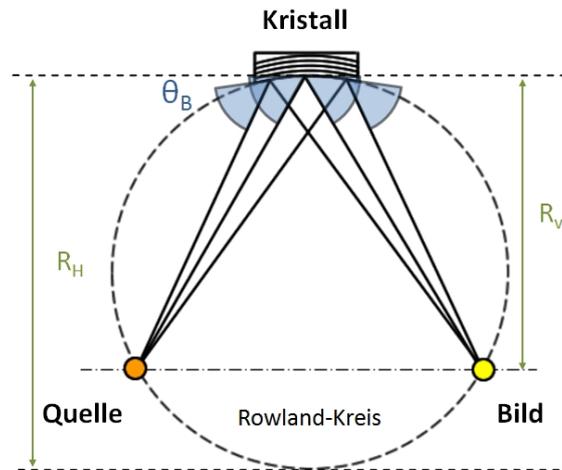


Abbildung 3.6: Torisch gebogener Kristall mit Rowland-Kreis

Werden Kristall und Probe so angeordnet, dass sie auf einem sog. **Rowland-Kreis** liegen (Abb. ??), ist die Bragg-Bedingung sowohl horizontal als auch vertikal auf größtmögliche Weise erfüllt. Um Aberration vollständig zu vermeiden, müsste der Kristall jedoch ellipsenförmig gekrümmt sein, was technisch eine große Herausforderung darstellt.

In Rowland-Geometrie erhält man annähernd eine **1:1 Abbildung** der Röntgenquelle auf der Probe. Der Brennpunkt ist etwa $60 \times 70 \mu\text{m}^2$ groß [48].

Ein weiterer Vorteil des torischen Spiegels ist sein **monochromatisierender Effekt**. Da er in einem ausgewählten Bragg-Winkel betrieben wird, ist die Reflektivität für die breitbandigen Nebenprodukte der Quelle, wie z.B. die Bremsstrahlung, nahezu 0. Dies ist notwendig, um einen wohl definierten Bragg-Reflex und somit eine hohe Winkelauflösung zu erhalten. Einfluss auf die Intensitätsverteilung des Bragg-Reflexes hat auch der **Konvergenzwinkel** des Spiegels. Er ist mit 1.4° relativ groß, im Vergleich zu der Halbwertsbreite der Rocking-Kurven. Die Vor- und Nachteile, die sich daraus ergeben, werden in Abschnitt 3.3 kurz diskutiert.

Tabelle 3.2 zeigt noch einmal eine Übersicht aller wichtigen Daten, die durch eine Reihe von Arbeiten an der Universität Duisburg-Essen ermittelt wurden [48, 19, 20,

31].

Maße	$12.5 \times 40 \text{ mm}^2$
Material	Germanium auf Glassubstrat
Dicke der Ge-Schicht	$90 \mu\text{m}$
Ausrichtung	(100)
Bragg-Reflex	(400)
Bragg-Winkel	76.4°
R_h	498.6 mm
R_v	473.7 mm
Größe des Brennpunktes (FWHM)	$60 \times 70 \mu\text{m}^2$
Konvergenzwinkel	$\sim 1.4^\circ$
Raumwinkel	0.00195 sr
Reflektivität	0.179
Bandbreite des Reflexes	$\sim 0.26 \text{ eV}$
Beugungseffizienz	$1.1 \cdot 10^{-5}$

Tabelle 3.2: Parameter des torisch gebogenen Germanium Kristalls

3.2.1 Materialdaten des FeRh-Dünnschichtfilmes

Folgende Informationen über die optischen und geometrischen Eigenschaften von Eisen-Rhodium wurden aus der vorhandenen Literatur zusammengetragen. Die Suche wurde dabei erschwert durch die, teilweise großen Auswirkungen kleiner Änderungen der Legierungszusammensetzung und der Herstellungsart. So unterscheiden sich die Übergangstemperaturen von $Fe_{51}Rh_{49}$ und $Fe_{47}Rh_{53}$ bereits um mehr als 30°C [43], womit alle Informationen zu ähnlichen Zusammensetzungen, wenigstens mit Vorsicht zu behandeln sind.

Laut Ju *et al.* [45], die der Universität Duisburg-Essen freundlicherweise ihre FeRh-Probe zu Verfügung gestellt haben, handelt es sich um **100nm** $Fe_{45}Rh_{55}$ auf einem Magnesium-Oxid (100) Substrat. Die Übergangstemperatur wurde von Ju *et al.* gemessen und lag bei **360K (350K)** beim Heizen (Kühlen) der Probe.

Maat *et al* [36], haben die Gitterkonstanten von $Fe_{49}Rh_{51}$ auf einem MgO Substrat untersucht. Dabei stellte sich heraus, dass im Vergleich zum bulk Material eine tetragonale Verzerrung der Einheitszelle auf Grund der Fehlanpassung zum Substrat vorhanden ist. Die Gitterkonstanten ergaben sich zu **$\mathbf{a}=\mathbf{b}=2.9750\text{\AA}$** und **$\mathbf{c}=2.9980\text{\AA}$** . Die Dicke der Probe war dabei identisch mit der, hier verwendeten. Daraus folgt eine Dichte von $\rho = 10.229 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ bei Raumtemperatur.

Die Schallgeschwindigkeit wurde von Palmer *et al.* [49] für polykristallines $Fe_{50.5}Rh_{49.5}$ gemessen. In (100)-Richtung ergab sich ein Wert von $v_{s100} = 5305 \frac{\text{m}}{\text{s}}$. Aus dem Vergleich der "üblichen" Anisotropie anderer kubischer Materialien [50] nehmen wir eine 5% niedrigere Geschwindigkeit an: **$\mathbf{v}_{s100} = 5040 \frac{\text{m}}{\text{s}}$** .

Chen *et al.* [51] haben die dielektrische Funktion für verschiedene Legierungen von FeRh abhängig von der Wellenlänge gemessen. Da die verwendete Legierung nicht vorliegt, müssen die Werte für $Fe_{45}Rh_{55}$ bei 1.55eV (800nm) aus den Messungen für $Fe_{48}Rh_{52}$, $Fe_{50}Rh_{50}$, $Fe_{52}Rh_{48}$ und $Fe_{54}Rh_{46}$ extrapoliert werden. Man erhält $\epsilon_1 = -13.9$ und $\epsilon_2 = -17.4$, daraus folgt für den komplexen Brechungsindex **$\mathbf{n}=2.0$** und **$\mathbf{k}=4.3$** . Mit Hilfe des Snelliusschen Brechungsgesetzes und den Fresnel-Formeln [15, S.238] kann nun die Reflektivität R für den Pump-Strahl berechnet werden. Der Einfallswinkel liegt bei etwa 34 Grad, der Strahl ist p-polarisiert, damit erhält man

$R_p = 0.54$.

Für den ferro-magnetischen Zustand ergeben sich nach Chen et al. ?? nur geringfügig unterschiedliche optische Eigenschaften. Deshalb wird von identischen Reflektivitäten für den 800nm Anregungsimpuls ausgegangen.

Die spezifische Wärmekapazität C_p ist bei Richardson zu finden *et al.* [52] für $Fe_{49}Rh_{51}$. Sie liegt bei $C_p \approx 0.38 \cdot 10^3 \frac{J}{K \cdot Kg}$ in der FM-Phase kurz nach dem Phasenübergang und kurz vor dem Phasenübergang bei $C_p \approx 0.32 \cdot 10^3 \frac{J}{K \cdot Kg}$. Die unterschiedliche Legierung kann hier jedoch unter Umständen für Abweichungen von einigen % sorgen.

Der lineare Ausdehnungskoeffizient α findet sich bei Ibarra *et al.* [44] $\alpha_{FM} = 6 \cdot 10^{-6} K^{-1}$,
 $\alpha_{AFM} = 9.7 \cdot 10^{-6} K^{-1}$.

Das Bulkmodul ist für beiden Phasen bei Szajek *et al* [53] aufgeführt

$B_{AFM} = 2.268 \text{Mbar}$ und $B_{FM} = 2.440 \text{Mbar}$

3.3 Messung und Auswertung der Experimentellen Daten

3.3.1 Charakterisierung des Messsignals

Zur Untersuchung des Phasenüberganges wurde der (001)-Reflex der FeRh-Probe als Messsignal gewählt. Mit den Daten aus 3.2.1, der Wellenlänge der Titan K_α Röntgenstrahlung $\lambda_{Ti} = 0.2749$ nm und Formel 2.4 ergibt sich für diesen Reflex ein Bragg-Winkel von $\Theta_{100} = 27.29^\circ$.

Zunächst wurde die Rocking-Kurve des Bragg-Reflexes im Grundzustand gemessen, das bedeutet bei Raumtemperatur und ohne Anregung durch den Laser. Dazu wurde der Laser justiert und auf den Titan-Draht fokussiert. Ein grober Anhaltspunkt für die Röntgenausbeute ist das Plasmaleuchten des Drahtes [31]. Liegt eine hohe $K\alpha$ -Ausbeute vor, leuchtet es bläulich, mit einem starken Anteil der 2. Harmonischen der Laserstrahlung (400nm). Bei sinkender Ausbeute färbt es sich rötlich. Sind alle Komponenten justiert kann die Vakuumkammer evakuiert und die Kameras gekühlt werden. Danach wurde mit beiden CCD-Kameras (Referenz und Messung) Bilder ohne Röntgenbestrahlung (Hintergrund) und mit Röntgenbestrahlung aufgenommen. Dazu wurden die Kameras jeweils 2 Minuten belichtet. Die lange Belichtungszeit ist notwendig, da die, von der Probe reflektierten, ultrakurzen Röntgenpulse nur aus sehr wenigen Photonen bestehen (**3-8** $\frac{Phot.}{Puls}$ im Messsignal, etwa das hundertfache auf der Referenzkamera). Aus der Differenz der beiden Bilder, ergibt sich das eigentliche Messsignal (Abb. 3.7).

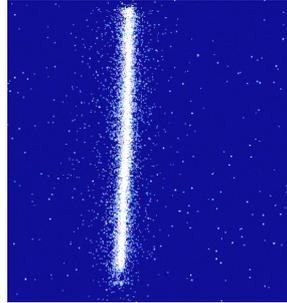


Abbildung 3.7: Messsignal der CCD-Kamera - 2 Minuten Belichtung mit etwa 3-8 Photonen pro Röntgenpuls

Um die Bilder auszuwerten, wird ein horizontales Profil des Signals erstellt. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.8 zu sehen (im Folgenden nur noch Rocking-Kurve genannt).

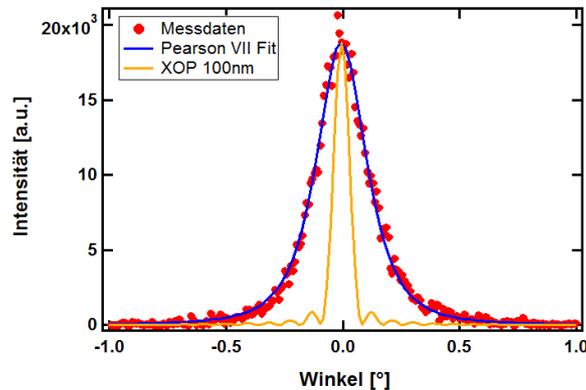


Abbildung 3.8: Rocking-Kurve bei Raumtemperatur inklusive Fit und XOP Simulation

Die Messdaten wurden mit der Pearson VII Funktion gefittet. Sie ist eine "Interpolation" zwischen einer Lorentz- und Gauss-Funktion und wird oft in der Röntgen-Kristallographie genutzt [20, S.82]. Der Fit beschreibt die Rocking-Kurven des Experimentes im statischen Fall mit geringer Abweichung und wurde im weiteren Verlauf genutzt, um die Position des Maximums und die Halbwertsbreite (FWHM) der

Rocking-Kurve zu bestimmen.

Für die FWHM der Messdaten ergibt sich ein Wert von 0.25° . Die Rocking-Kurve ist damit etwa 2.8mal breiter als die Simulation, die mit dem Programm XOP für eine 100nm Eisen-Rhodium Probe berechnet wurde. Dies liegt hauptsächlich darin begründet, dass die Probe kein 100% perfekter Einkristall ist, sondern eine Mosaikstruktur aufweist. Durch den Konvergenzwinkel des, vom torischen Kristall reflektierten Strahlbündels von 1.4° (Abschnitt 3.2.0.1) wird die Bragg-Bedingung für alle, leicht unterschiedlich orientierten Kristallite erfüllt und die Rockingkurve verbreitert.

Ziel des Experimentes war es, die Änderung der Gitterkonstante während thermischer bzw. optischer Anregung zu verfolgen. Das bedeutet, dass sich der Bragg-Winkel durch die Änderung der Gitterkonstanten verschiebt (Formel 2.4) und die Geometrie des Aufbaus ständig angepasst werden müsste. Hier erweist sich die Konvergenz des einfallenden Röntgenstrahls allerdings als Vorteil: Innerhalb des Winkelbereichs von 1.4° kann die Bragg-Bedingung für unterschiedliche Gitterkonstanten gleichzeitig erfüllt werden, ohne dass die Probe rotiert werden muss. Die Intensität des Beugungssignales bleibt bei Verschiebung der Rocking-Kurve innerhalb dieses Winkelbereichs erhalten. Abbildung 3.9 zeigt das die Anzahl der Photonen des Messsignals geteilt durch die des Referenzsignals (normiert auf 1) in Abhängigkeit des Einfallswinkels der Röntgenstrahlung.

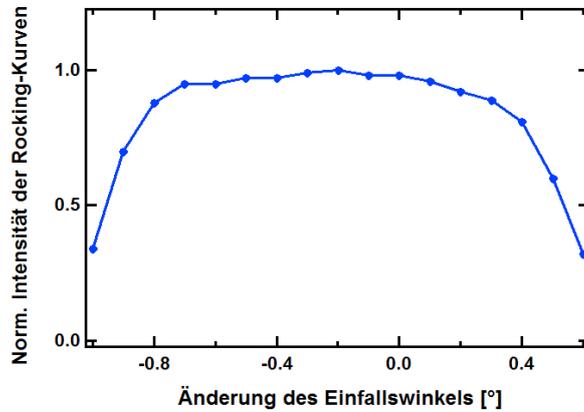


Abbildung 3.9: Intensitätsabhängigkeit der Rocking-Kurve von dem Ausfallswinkel

Wie erwartet, bricht das Signal am Rand stark ein, da die Bragg-Bedingung nicht mehr erfüllt werden kann und bestätigt die Größe des Konvergenzwinkels. Zwischen -0.6° und 0.2° bleibt sie allerdings fast unbeeinflusst. Für eine temperatur- oder zeitabhängige Messung ist es wichtig, dass sich die Form der Rocking-Kurve durch die Verschiebung nicht verändert. Zu diesem Zweck wurden ebenfalls der Schwerpunkt, die Position des Maximums, die FWHM und die RMS-Breite (*Root-Mean-Square*) ausgewertet.

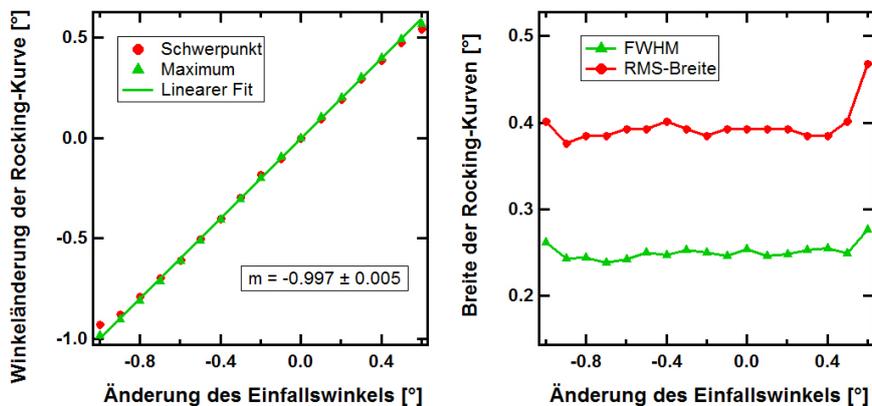


Abbildung 3.10: Links: Position des Schwerpunktes und Maximums der Rocking-Kurve, Rechts: Halbwertsbreite und RMS-Breite

Abbildung 3.10 zeigt, dass sowohl Schwerpunkt, als auch Maximum fast vollständig unbeeinflusst bleiben durch den Randeinfluss. Die Breiten der Rocking-Kurven verhalten sich ähnlich wie der Intensitätsverlauf. Solange die Verschiebung der Rocking-Kurven also nicht über den "Sicherheitsbereich" von -0.6° bis 0.2° hinausgeht, kann davon ausgegangen werden, dass die Beugungssignale nicht durch die endliche Konvergenz des einfallenden Strahlenbündels verfälscht werden.

Der Nullpunkt wurde so gewählt, dass in negativer Richtung der Winkelverschiebung ein etwas größerer Spielraum besteht, da zu erwarten ist, dass sich im Experiment hauptsächlich eine Gitterexpansion zeigt.

3.3.2 Statische Messungen des Phasenübergangs

Um das Verhalten der Probe beim Phasenübergang statisch, also nicht zeitaufgelöst, zu charakterisieren, wurde die Probe langsam bis etwa 103°C aufgeheizt und danach wieder abgekühlt auf Raumtemperatur. Eine weitere Erhöhung der Temperatur war leider nicht möglich, da sich sonst der Kleber, mit dem die Probe am Halter befestigt war, gelöst hätte.

Abbildung 3.11 zeigt die Position des Bragg-Reflexes als Funktion der Temperatur, ermittelt durch das Maximum des Pearson VII Fits (im Weiteren nur noch Maximum genannt). Der Nullpunkt der Winkelverschiebung $\Delta\Theta$ wurde auf den berechneten Bragg-Winkel von $\Theta_B = 27.29^\circ$ gesetzt.

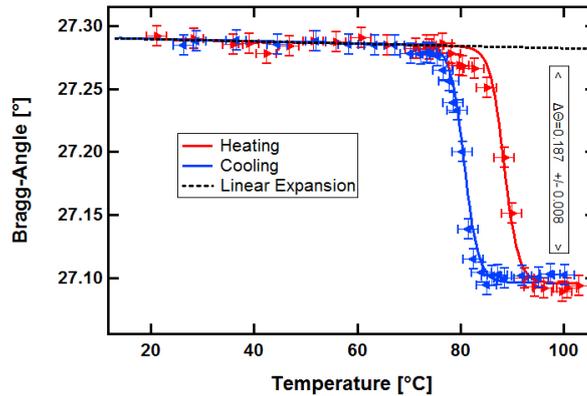


Abbildung 3.11: Temperaturabhängige Messung des Bragg-Winkels

Der Übergang von anti-ferromagnetischer zu ferromagnetischer Phase ist anhand der Winkelverschiebung ($\Delta\Theta = 0.187 \pm 0.008^\circ$) deutlich zu erkennen. Der Bragg-Winkel zeigt beim Erhitzen ab etwa 80°C einen starken Abfall, der bei ca. 97° abgeschlossen ist. Beim Abkühlen der Probe verschieben sich die Punkte um $\sim 7^\circ\text{C}$ auf 73°C und 90°C , es ist also eine Unterkühlung bzw. Überhitzung nötig (Übergang 1. Ordnung). Diese Art der Temperaturhysterese wird typischerweise bei FeRh-Filmen beobachtet und es wurde gezeigt, dass ihre Breite abhängig ist von der Ausheiztemperatur

bei der Herstellung der Legierung [43]. Höhere Temperaturen führen dabei zu geringeren Breiten, was höchstwahrscheinlich mit der Reduzierung von Kristalldefekten zusammenhängt. Eine mögliche Erklärung ist, dass die Überhitzung (Unterkühlung) notwendig ist für die Nukleation der magnetischen Domänen.

Die gemessenen Temperaturen stimmen in etwa mit den Werten von aus der Literatur überein ($\pm 7^\circ\text{C}$)(Abschnitt 3.2.1).

Um die Änderung der Gitterkonstante c (Bragg-Ebenen Abstand d_{001}) zu untersuchen, wurde die Winkeländerung $\Delta\Theta$ mittels Bragg-Bedingung umgerechnet. Das Resultat ist in Abbildung 3.12 zu sehen.

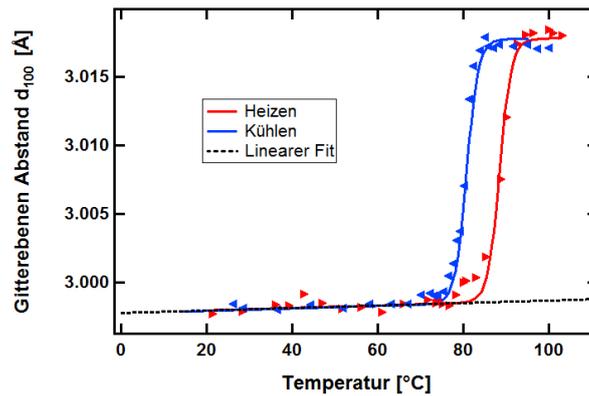


Abbildung 3.12: Aus der Temperaturabhängigkeit resultierende Änderung des Gitterebenen Abstandes

Durch die geringen Winkeländerungen ($<0.2^\circ$) sieht das Ergebnis im Wesentlichen wie eine Spiegelung des vorherigen Graphen aus.

Der Unterschied der Gitterkonstanten zwischen FM und AFM Phase wurde ermittelt aus der Differenz zwischen dem Messwert und der linearen Extrapolation bei 97°C . Es ergibt sich $c_{FM} - c_{AFM} = 3.0178\text{\AA} - 2.9987\text{\AA} = 0.0191\text{\AA}$. Das entspricht einer relativen Änderung von $\sim 0.64\%$, in guter Übereinstimmung mit der Literatur [54]. Im Bulkmaterial beobachtet man einen Volumenanstieg von $\sim 1\%$ 3.2.1, auf die Gitterkonstanten bezogen ist das lediglich 0.33% . Die Diskrepanz erklärt sich, wenn

man berücksichtigt, dass sich der dünne FeRh-Film auf einem Substrat befindet, dass keinen Phasenübergang vollzieht und somit die FeRh Ausdehnung in der Ebene einschränkt.

Aus der anfänglichen Steigung der Kurve lässt sich der lineare Expansionskoeffizient α_{AFM} der AFM-Phase bestimmen. Man erhält $\alpha_{AFM} = (3.3 \pm 2) \cdot 10^{-6} K^{-1}$. Dieser Wert ist damit etwa um einen Faktor 2-3 kleiner als erwartet (siehe Abschnitt 3.2.1). Dies kann möglicherweise auf die schlechte Temperaturstabilisierung während des Experimentes zurückgeführt werden (die erwähnte Regelung wurde erst später installiert). Dieser Effekt spiegelt sich auch im vergleichsweise großen Fehler wider

Der Sprung in der Winkelverschiebung ist nicht der einzige Indikator der AFM-FM Umwandlung. Sie lässt sich auch in den Breiten der Rocking-Kurven wiederfinden (Abbildung 3.13). In der Mitte des Phasenübergangs ist die Halbwertsbreite etwa um den Faktor 1.3 größer als vor und nach der Umwandlung. Dies lässt sich beispielsweise durch eine Koexistenz der AFM und FM Phase und die daraus resultierende Überlagerung der Beugungssignale erklären.

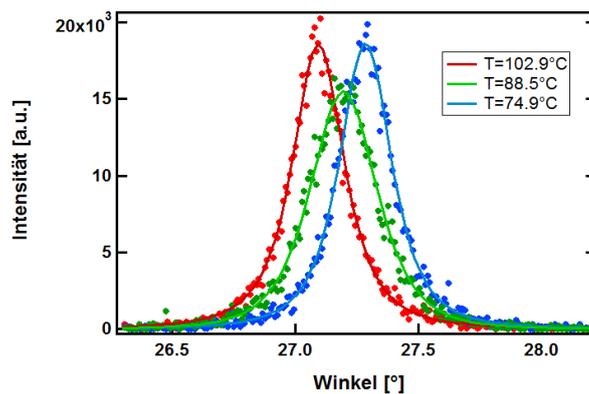


Abbildung 3.13: Rocking-Kurven vor (blau), während (grün) und nach (rot) dem Phasenübergang (Heizen)

3.3.3 Transiente Messung des laserinduzierten Phasenübergangs

Um die Auswirkungen des Phasenübergangs auf die Gitterdynamik bestimmen zu können, wurden eine Reihe verschiedener, zeitaufgelöster Messungen für unterschiedliche Proben- und Anregungsbedingungen durchgeführt. Zwei von ihnen sollen hier zunächst diskutiert werden. Bei der ersten Messung betrug die Ausgangstemperatur 100°C . Das Material befand sich also bereits im ferromagnetischen Zustand. Bei der zweiten Messung betrug die Ausgangstemperatur 65°C , knapp unterhalb der Phasenübergangstemperatur. Ziel dieser Messungen war es, die "normalen", akustischen Phänomene der Anregung durch ultrakurze Laserpulse (2.3), von den Effekten des Phasenübergangs unterscheiden zu können.

Aus der Hysteresekurve wurden die Startwerte der beiden Temperaturen bestimmt (Tabelle 3.3).

Temperatur [$^{\circ}\text{C}$]	Bragg-Winkel [$^{\circ}$]	Gitterkonstante c [\AA]
65	27.286	2.9984
100	27.096	3.0178

Tabelle 3.3: Temperatur der Probe mit den Messergebnissen aus der statischen Messung

Um die zeitaufgelöste Messung durchzuführen, wurde zunächst der Überlapp von Anrege- und Abfragepuls eingestellt. Dies geschah durch sukzessives Verschieben des Laserstrahls und Beobachtung der Winkelverschiebung. Ist die Verschiebung maximal, kann man davon ausgehen, dass der Überlapp gefunden wurde. Ein nicht optimaler Überlapp spiegelt sich auch im Messsignal wieder, die BeugungsLinie aus Abbildung 3.7 ist dann stark gekrümmt durch die inhomogene Anregung.

Um den Nullpunkt der Zeitverzögerung zwischen Laser- und Röntgenpuls zu finden, wurde durch ändern der Verzögerungsstrecke ein, aus vorherigen Messungen unge-

fähr bekannter, Punkt negativer Zeitverzögerung angefahren. Von dort aus wurde die Verzögerung nach und nach reduziert, bis eine Änderung im Messsignal auftrat. Diese Methode hat einige Nachteile. Zum einen ist ihre Genauigkeit abhängig davon, wie präzise eine Änderung des Messsignals bestimmt werden kann und zum anderen werden Effekte, die vor der Reaktion des Gitters geschehen, nicht berücksichtigt. Der Nullpunkt wurde auf diese Weise etwa mit einer Genauigkeit von $\pm 1ps$ bestimmt. Um Schwankungen in der Position des Messsignals zu berücksichtigen, wurde zwischen den Messungen mit angeregter Probe, immer wieder auch Daten ohne Laseranregung aufgenommen. Sie dienen als Referenz für die Verschiebung des Bragg-Winkels. Die Stabilität dieser Punkte bestimmt zu einem späteren Verlauf, unter anderem, auch die Fehlerbalken der Messkurven.

Es werden nun zunächst die Ergebnisse der **Messung bei $T=100^\circ$** präsentiert, um die charakteristischen Merkmale der Gitterdynamik nach Anregung des FeRh-Filmes mit ultrakurzen Laserpulsen und ohne Einfluss des Phasenüberganges zu diskutieren.

Die Messung wurde bei Verzögerungszeiten von 0-1000ps und einer Anregungsdichte von etwa $27 \frac{mJ}{cm^2}$ durchgeführt. Abbildung 3.14 zeigt das Ergebnis der Messung. Die Rocking-Kurven wurden als Funktion der Zeit angeordnet, ihre Intensitätsverteilung ist in Falschfarben dargestellt, die durchgezogene Linie folgt dem Schwerpunkt der Rocking-Kurven und die gestrichelte Linie dem Maximum.

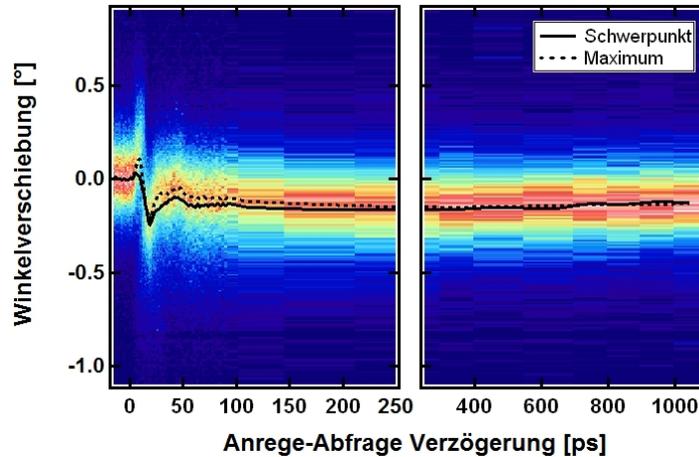


Abbildung 3.14: Zeitaufgelöste Messung der Gitterdynamik eines 100nm FeRh-Filmes bei $T=100^\circ$.

Es fällt auf, dass zu frühen Zeiten **starke Oszillationen** stattfinden, die **bis etwa 90ps** andauern. Danach folgt eine Verschiebung des Schwerpunktes der Rocking-Kurve zu kleineren Beugungswinkeln bis etwa 300 ps gefolgt von einer langsamen Relaxation. Ab dort wird der Betrag der Winkelverschiebung wieder kleiner.

Schwerpunktposition und Maximum weichen am Anfang deutlich voneinander ab und nähern sich erst für späte Verzögerungszeiten wieder an. Dieser Effekt geht einher mit der starken Verbreiterung der Rocking-Kurven, im Bild erkennbar durch die Intensitätsverteilung und lässt sich durch den Auswertungsprozess erklären. Da die Maximumsposition aus dem P7-Fit gewonnen wird, orientiert sie sich hauptsächlich an der maximalen Intensität der Rocking-Kurven. Randeffekte werden dabei weniger stark berücksichtigt als bei der Berechnung des Schwerpunktes. Im weiteren Verlauf wird dies anhand der Betrachtung der Rocking-Kurven noch einmal genauer erklärt. Eine starke Abweichung von Schwerpunkt und Maximum deutet also im Umkehrschluss darauf hin, dass die Rocking-Kurven breite Bereiche mit niedriger Intensität besitzen.

Abbildung 3.15 zeigt einen vergrößert Bereich bis 120ps.

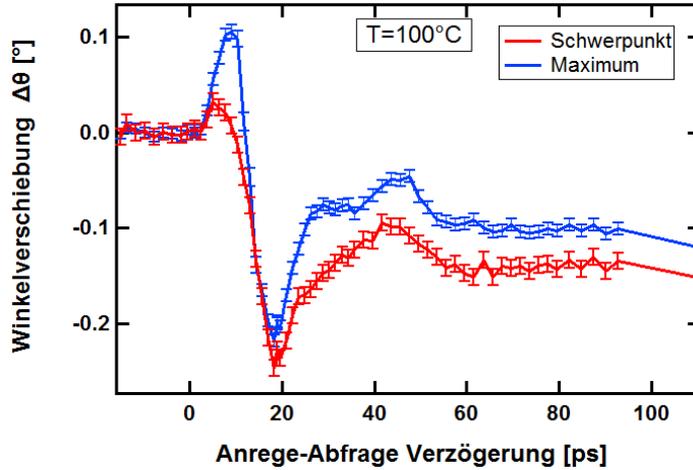


Abbildung 3.15: Vergrößerter Ausschnitt der Gitterdynamik bei $T=100^\circ$.

Es lassen sich etwa 6 Extrema in der Winkelverschiebung des Maximums ausmachen. **3 Maxima bei 9ps, 29ps und 44ps** und **3 Minima bei 18ps, 36ps und 56ps**. Dies passt in etwa zu einer Schwingung mit der Periode $T=18\text{ps}$ (präzise: 18.3ps nach linearem Fit). Der Schwerpunkt stimmt lediglich bei 18ps eindeutig mit dem Maximum überein.

In Abschnitt 2.3 der Grundlagen wurde ausführlich die Ausbreitung von akustischen Wellen nach homogener Anregung erläutert. Dabei wurde gezeigt, dass die Schwingungsperiode mit der Schallgeschwindigkeit und Dicke des Materials zusammenhängt. Mit der Schallgeschwindigkeit aus Abschnitt 3.2.1 ergibt sich:

$$T \cdot v_{\text{Schall}} = 18.3\text{ps} \cdot 5040 \frac{\text{m}}{\text{s}} = 92.2\text{nm} = 2L \quad (3.2)$$

Die Probe ist laut Ju *et al.* [45] $L=100\text{nm}$ dick. Das entspricht, bis auf 7.8nm , dem doppelten Wert der Rechnung und legt nahe, dass die Oszillationsperiode T tatsächlich mit der Ausbreitung akustischer Wellen zusammenhängt.

Zusätzlich zu der Periode, ist auch die Dämpfung ein charakteristisches Merkmal für eine akustische Welle. Im folgenden wird deshalb versucht, das Modell der Grundlagen auf den Eisen-Rhodium Film anzuwenden.

Berechnet man die Reflexion R der Wellen (Formel 2.16), über die Impedanzen Z von Eisen-Rhodium und Magnesiumoxid (Formel 2.15), kann man den Fall der homogenen Anregung mit konstantem Druck simulieren (vergleiche Abbild 2.6). Die Dichte ρ_{Fe} bei $T=100^\circ$ ergibt sich aus dem neuen Gitterabstand (Tabelle 3.3), die Schallgeschwindigkeit wurde bereits verwendet. Werte für MgO finden sich bei Karki et al. [55]. Für R an der Grenzfläche zu dem Substrat ergibt sich damit etwa $R_{Gf} = -0.22$. An der Grenzfläche zu Luft ist $R_L = -1$. Da in diesem Fall nur die Dämpfung der Oszillation interessiert kann für die Simulation der anfängliche Wert der Ausdehnung η an der Grenzfläche zu Luft auf $\eta_L = 1$ gesetzt und später an die Messkurve angepasst werden. Für die anfängliche Ausdehnung an der Grenzfläche zum Substrat gilt $\eta_S = \frac{Z_{Fe}}{Z_{Fe}+Z_{MgO}} \approx 0.61$. Damit sind alle Informationen vorhanden um die Extrema der Ausdehnung zu berechnen. Es ergibt sich $\eta_{\frac{T}{2}} = \eta_L + \eta_S = 1.61$, $\eta_T = \eta_L + \eta_S + R_L \cdot \eta_S + R_S \cdot \eta_L = 0.78$, $\eta_{\frac{3}{2}T} = \dots = 1.13$ usw. . Die Zwischenzustände sind einfach die Verbindungslinien der Extrema und die resultierende Kurve kann als mittlere Ausdehnung der Probe verstanden werden. Das Ergebnis dieser Überlegungen für $T = 2 \cdot 18.3ps$ zeigt Abbildung 3.16. Auf Grund der kleinen Winkeländerungen ($27.096^\circ + \Delta\Theta$) ist die Kurve sofort übertragbar auf die Messkurve. Sie wurde nachträglich auf das erste Minimum hochskaliert.

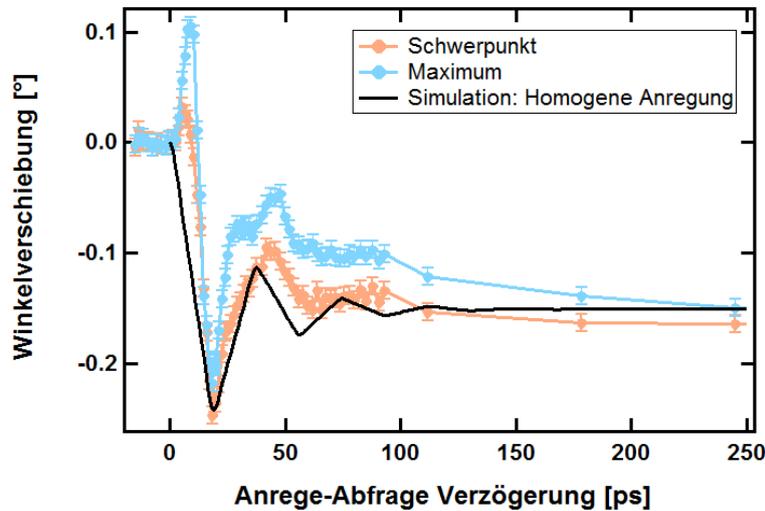


Abbildung 3.16: Simulation der Gitterdynamik im einfachen Modell der homogenen Anregung.

Dass die Kurve der homogenen Anregung nicht zu dem Verlauf des Maximums passt, ist schon durch die Annahme der doppelten Periode T verständlich. Hinzu kommt, dass das einfache Modell keine Kompression, also positive Winkelverschiebungen erklären kann. Das Abklingverhalten der Amplitude stimmt jedoch tendenziell überein mit dem Verlauf des Schwerpunktes, eben so wie die Auslenkung bei großen Zeiten.

Die Periode der Oszillation und ihr Zusammenhang mit der Probendicke, das Abklingverhalten der Amplitude und die Auslenkung zu späten Zeiten sind Faktoren, die dafür sprechen, dass es sich tatsächlich um akustische Effekte handelt, die hier zu sehen sind. Die kompressiven Anteile scheinen jedoch zunächst deutlich dagegen zu sprechen. Um sie verstehen zu können, muss das einfache Modell um die **inhomogene Anregung** der Probe erweitert werden.

Durch inhomogene Anregung wird ein Druckgradienten innerhalb der Probe erzeugt und es kommt zu der Ausbildung von sog. bi-polaren Deformationspulsen, die sich durch die Probe bewegen. Diese akustischen Phononen sind im wesentlichen iden-

tisch mit den Wellen, die im Modell der homogenen Anregung von der Grenzfläche zum Substrat ausgehen, jedoch sind die "Grenzflächen" jetzt Gradienten innerhalb der Probe. Thomsen et al. [56, 57] haben dazu ein Modell entwickelt, das im wesentlichen auf der Eindringtiefe des anregenden Lasers und der daraus resultierenden Temperaturerhöhung der Probe basiert, schematisch dargestellt in Abbildung 3.17.

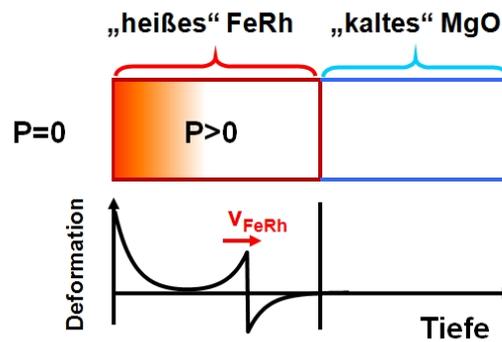


Abbildung 3.17: Schema der inhomogenen Anregung und daraus resultierender bi-polarer Deformationspuls

Es gilt also zunächst zu prüfen, wie das Anregungsprofil der Eisen-Rhodium Probe aussieht. Die passende Formel dazu lautet 3.3:

$$W(z) = (1 - R) \frac{Q}{A \cdot \zeta} e^{-\frac{z}{\zeta}} \quad (3.3)$$

$$\zeta = \alpha^{-1} = \frac{\lambda}{4\pi k} \quad (3.4)$$

3.3 beschreibt die, in der Filmtiefe z deponierte Energie $W(z)$ mittels $\frac{Q}{A} = Fl = 27 \frac{mJ}{cm^2}$ der eingestrahlten Fluenz des Lasers, dem Reflexionskoeffizienten $R = R_P = 0.54$ (Abschnitt 3.2.1) und der Eindringtiefe ζ , die sich über den Absorptionskoeffizienten α aus der Wellenlänge des Lasers $\lambda = 800nm$ und dem imaginären Anteil

$k = 4.25$ des Brechungsindexes errechnet. Für die Eindringtiefe erhält man somit $\zeta = 15\text{nm}$ und bereits ein definitives Indiz für inhomogene Anregung.

Die Energie $W(z)$ führt zu einer Temperaturerhöhung von $\Delta\Theta(z) = W(z)/C_P$ in der Probe. $C_P \approx 0.38 \cdot 10^3 \frac{\text{J}}{\text{K}\cdot\text{Kg}}$ für die FM Phase ist bekannt (Abschnitt 3.2.1) und entspricht etwa $C_P \approx 3.8 \cdot 10^3 \frac{\text{J}}{\text{K}\cdot\text{cm}^3}$ bei 100°C , abhängig von der Dichteänderung. Abbildung 3.18 zeigt die errechnete Temperaturerhöhung in Abhängigkeit der Probendicke.

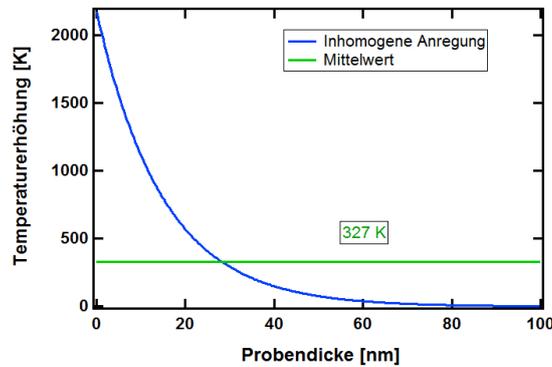


Abbildung 3.18: Temperaturerhöhung der Probe durch inhomogene Anregung.

Das Modell zeigt extreme Temperaturen an der Oberfläche, die die Probe zerstören würden, was im Experiment nicht beobachtet wurde. Allerdings werden auch keine Elektron-Phonon-Wechselwirkungen, wie sie im 2-Temperatur-Modell (Abschnitt 2.4) beschrieben sind, berücksichtigt, denn das Modell geht davon aus, dass die Energie $W(z)$ direkt in eine Gittertemperatur umgewandelt wird. Das "echte" Anregungsprofil weist demnach vermutlich einen flacheren Temperaturgradienten auf. Nimmt man an, dass sich die Temperatur mit der Zeit homogen verteilt, kann aus dem Mittelwert $\Delta T = 327\text{K}$ die resultierende Änderung des Gitters für späte Zeiten berechnet werden. Dazu muss zusätzlich berücksichtigt werden, dass die Probe innerhalb unserer Messzeit von maximal 1ns nur in eine Richtung maßgeblich expandieren kann ($1\text{ns} \cdot 5040 \frac{\text{m}}{\text{s}} \approx 5\mu\text{m} < \text{Laserfokus} \ll \text{Breite der Probe}$). Dies geschieht

durch Verwendung von Formel 3.5.

$$\eta_{T\infty} = \alpha_{FM} \frac{3B}{Z_{FM} \cdot v_s} \cdot \Delta T \quad (3.5)$$

Dabei ist B, das Bulkmodul der FM-Phase, α_{FM} der lineare Ausdehnungskoeffizient und Z die Impedanz 3.2.1. Die Expansion ist damit etwa 2.8 mal größer als im thermischen Gleichgewicht. Soweit sind alle Daten bekannt und für die Deformation ergibt sich $\eta_{\infty} = 0.0056$. Dies wird direkt über die Bragg-Bedingung umgerechnet:

$$\begin{aligned} \eta_{T\infty} &= \frac{a_{T\infty} - a_{T100}}{a_{T100}} \\ \Delta\Theta_{T\infty} &= \Theta_{T100} - \arcsin\left(\frac{\lambda_{X-Ray}}{2 \cdot a_{T\infty}}\right) \end{aligned} \quad (3.6)$$

Die so abgeschätzte Winkelverschiebung beträgt $\Delta\Theta_{T\infty} = 26.933^\circ - 27.096^\circ = -0.163^\circ$. Dieser Wert weicht um etwa 0.036° von $\Delta\Theta_{1ns}$ der Schwerpunktskurve ab, lässt sich in der Messung aber bei etwa $t=180ps$ wiederfinden und liegt nahe am Maximum der späten Ausdehnung. Betrachtet man die folgende Verringerung der Winkeländerung bereits als Abkühlung der Probe, macht es Sinn den eigentlichen Wert etwas früher zu finden.

Die theoretischen Überlegungen haben also ergeben, dass die Probe inhomogen ange-regt wird und die Voraussetzung für die Ausbreitung von bi-polaren Pulsen gegeben ist. Dies wäre hinreichend als Erklärung für die Position des Maximums der Rocking-Kurve in dem kompressiven Bereich. Bedingt durch die Entstehung der Pulse kann der kompressive Anteil jedoch niemals größer als der expansive sein und somit dürfte der Schwerpunkt der Rocking-Kurve (als mittlere Ausdehnung) nicht zu positiven Winkeln verschoben werden. Ein zusätzlicher Effekt ist notwendig. Denkbar wäre eine stärkere Gewichtung des kompressiven Anteils durch Rücktransformation in die

anti-ferromagnetische Phase. Dazu müsste das Gitter **unmittelbar den Phasenübergang induzieren**, um den negativen magnetischen Druck zu spüren. Wie die weiteren Messergebnisse zeigen werden, spricht allerdings vieles dagegen. Abschnitt 3.3.5 wird den Aspekt der Kurve deshalb nochmals aufgreifen und eine alternative Erklärung, begründet in der Messmethodik, präsentieren. Durch ein Modell lässt sich dabei zeigen, dass die Verschiebung des Schwerpunktes zu größeren Winkeln bei frühen Zeiten durch **das Abschneiden von Beugungsanteilen** bei kleineren Winkeln verursacht werden kann.

Im Folgenden wird die korrespondierende Messung bei $T=65^\circ$ präsentiert. Die Parameter beider Messungen wurden identisch gewählt, lediglich die Temperatur lag 35° niedriger und somit in der AFM-Phase, etwa 15° vor dem Phasensprung. Abbildung 3.19 zeigt die zeitaufgelöste Messung der Winkeländerung zusammen mit den Rocking-Kurve.

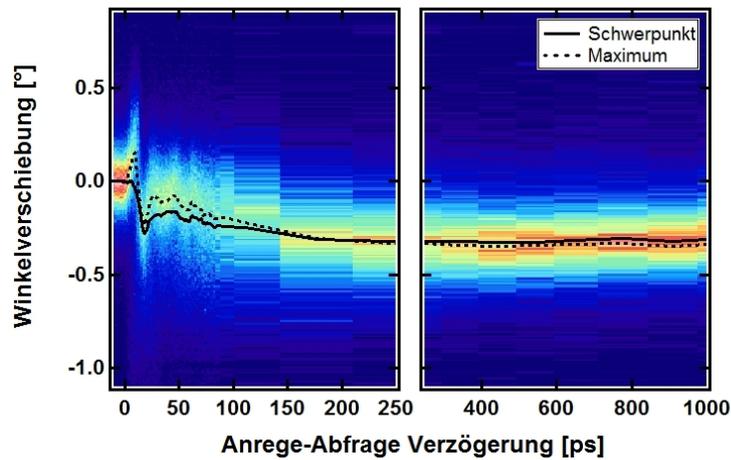


Abbildung 3.19: Zeitaufgelöste Messung der Gitterdynamik eines 100nm FeRh-Filmes bei $T=65^\circ$.

Zu frühen Zeiten von 0ps bis etwa 30ps fällt eine starke Ähnlichkeit zu der Messkurve bei $T=100^\circ$ auf. Zu späten Zeiten ist die Winkelverschiebung wesentlich größer als bei der Messung in der FM-Phase. Dies wird deutlicher, wenn man beide Kurven zusammen betrachtet (Abb. 3.20)

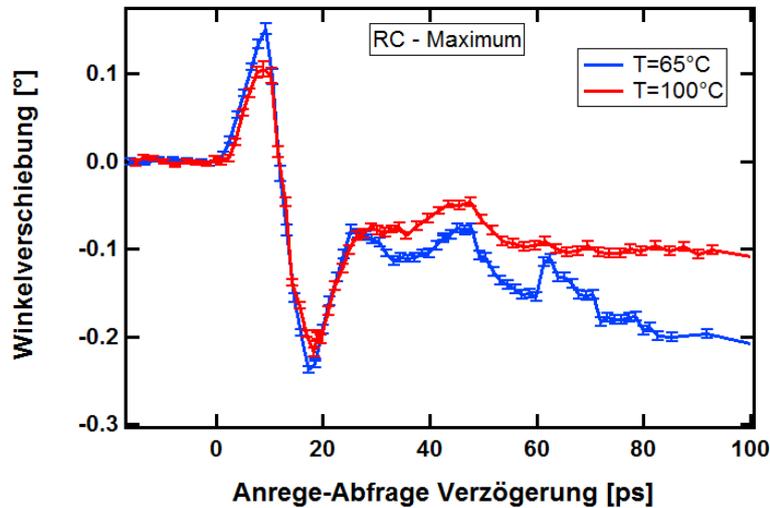


Abbildung 3.20: Position des Maximums der Rocking-Kurve bei $T=65^{\circ}$ (blau) und $T=100^{\circ}$ (rot) im Bereich bis 100ps.

In der Winkelverschiebung des Maximums lassen sich für $T=65^{\circ}\text{C}$ 8 Extrema deutlich erkennen. Sie liegen etwa bei 9ps, 17ps, 28ps, 36ps, 45ps, 58ps, 63ps und 71ps, in guter Übereinstimmung mit den Extrema bei $T=100^{\circ}\text{C}$ und passen ebenfalls zu einer Oszillation mit der Schwingungsperiode $T=18.3\text{ps}$. Die beiden zusätzlichen Extrema sind bei 100°C nicht erkennbar, da die Amplitude der Schwingung schon zu stark abgeklungen ist. Die 65°C Kurve verzeichnet hier bereits eine deutlich größere Winkelverschiebung. Ein zusätzlicher, langsam (einige ps) ansteigender Druck in der Probe, der der Dämpfung entgegenwirkt scheint dafür eine plausible Erklärung zu sein.

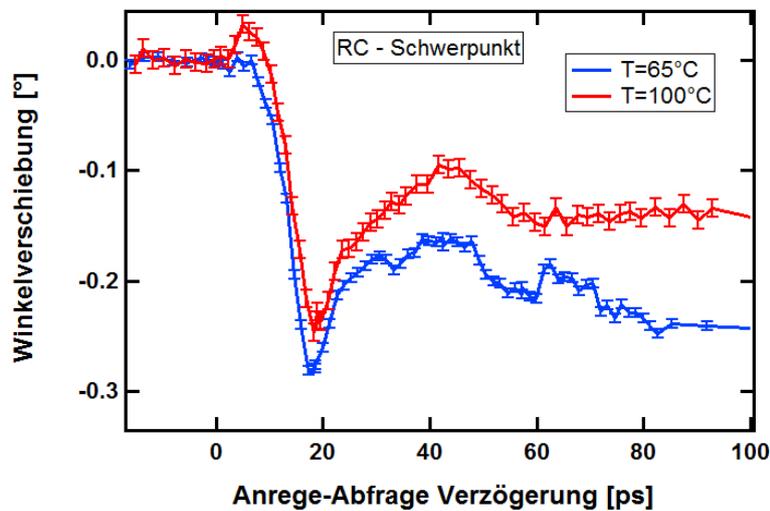


Abbildung 3.21: Position des Schwerpunktes der Rocking-Kurve bei $T=65^\circ$ (blau) und $T=100^\circ$ (rot) im Bereich bis 100ps.

Abbildung 3.21 zeigt den gleichen Ausschnitt für die Position des Schwerpunktes. Überraschenderweise ist das erste Minimum kaum mehr erkennbar, höchstens noch zu erahnen. Das würde bedeuten, dass Schwerpunkt und Maximum unterschiedlich reagieren auf eine Änderung der Anregungsenergie. Der Autor stellt an dieser Stelle jedoch die Hypothese auf, dass sämtliche Effekte über die Akustik inhomogener Anregung, gekoppelt mit den Eigenschaften des torischen Spiegels erklärt werden können 3.3.5.

In der Kurve der Schwerpunkte können ebenfalls 2 zusätzliche Extrema gefunden werden, dies wurde bereits erläutert.

Es lohnt sich einen näheren Blick auf die Rocking-Kurven im Bereich der ersten beiden Extrema zu werfen. Da die Kurven starkem Rauschen unterliegen, wurden sie mit dem Multippeak-Fit-Paket des Programmes Igor-Pro gefittet um eine bessere Übersicht in der Darstellung zu erhalten. Es folgt eine kurze Erläuterung der Fit-Prozedur.

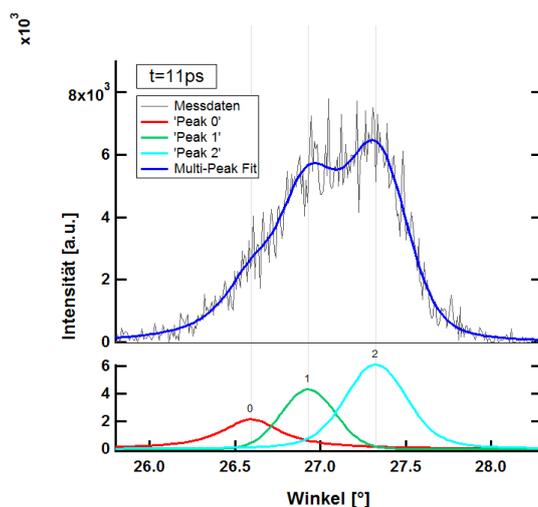


Abbildung 3.22: Multi-Peak-Fit bei 11ps, erstellt mit dem Programm Igor-Pro.

Abbildung 3.22 zeigt den Fit einer Rocking-Kurve bei 11ps. Igor-Pro nutzt dazu eine automatische Erkennung der Peak Anzahl und versucht diese dann in Breite und Intensität anzupassen. Man mag über die physikalische Erkenntnis eines solchen Fits diskutieren, jedoch findet ja üblicherweise keine inkohärente Überlagerung der Intensitätsverteilungen statt. Allerdings bietet er einen recht anschaulichen Zugang zu dem tatsächlichen Prozess. Hier dient der Fit lediglich dazu, einen möglichst genauen Kurvenverlauf wieder zu geben.

Aus dem Fit erhält man sodann Abbildung 3.23.

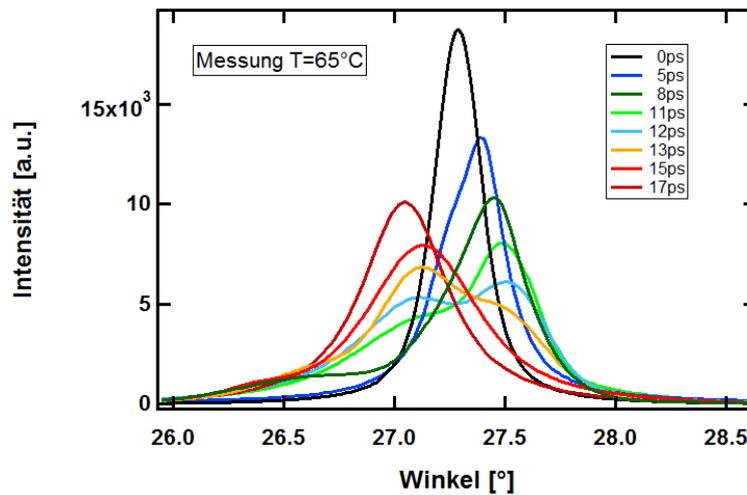


Abbildung 3.23: Multi-Peak-Fits der Rocking-Kurven von 0-17ps, $T=65^\circ$.

Es lässt sich sehr gut erkennen, dass das Maximum der Rocking-Kurve zunächst Richtung größerer Winkel wandert, die Probe also teilweise komprimiert wird und sich gleichzeitig flache, aber sehr breite Nebenmaxima im expansiven Bereich bilden. Diese Nebenmaxima sorgen dafür, dass Schwerpunkt und Maximum stark voneinander abweichen können. Bei etwa 12-13ps herrscht ein "optisches" (mit dem Auge definiertes) Gleichgewicht, hier kann eigentlich nicht mehr von einem Maximum gesprochen werden. Der Pearson-VII-Fit liegt dann zwischen den beiden Extrema. Diese Entwicklung wird auch von den Halbwertsbreiten (FWHM) der Fits wieder-
 spiegelt (Abb. 3.24). Bei etwa 11.5ps sind sie maximal. Sie zeigen außerdem, dass die Entwicklung der Breite in den ersten 18ps, also bis zum Erreichen des ersten Minimums sehr ähnlich verläuft. Ein interessanter Unterschied ist jedoch zu erkennen. Obwohl die 65° -Kurve bei einer 0.05° niedrigeren Breite startet, ist sie im Maximum bereits ca. 0.05° breiter. Der Betrag bleibt auch bei 18ps sozusagen als Offset erhalten.

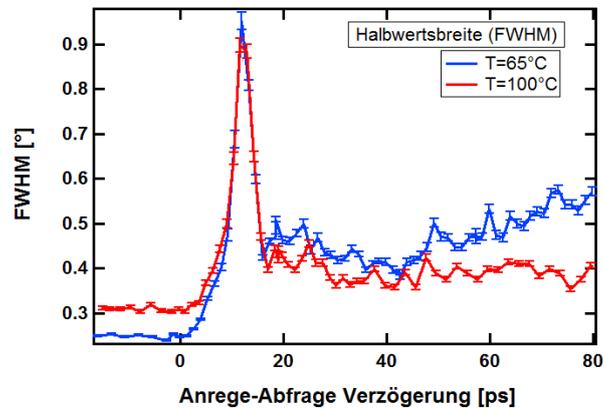


Abbildung 3.24: Halbwertsbreiten der Pearson-VII-Fits zu frühen Zeiten.

Bis hierhin hat der Vergleich der beiden Kurven also ergeben, dass die Oszillationsperiode identisch ist, sich jedoch zusätzliche Extrema erkennen lassen. Diese liegen in einem Bereich von etwa 60-80ps, der sich bereits durch eine stärkere, relative Ausdehnung als in der 100°C Kurve auszeichnet. Bei 65°C tritt ein deutlicher Anstieg der Winkeländerung ab etwa 18ps auf, davor sind die genauen Verhältnisse auf Grund der komplexen Auswirkungen der inhomogenen Anregung unklar.

Es werden nun die Unterschiede zu späten Zeiten genauer betrachtet (Abb. 3.25)

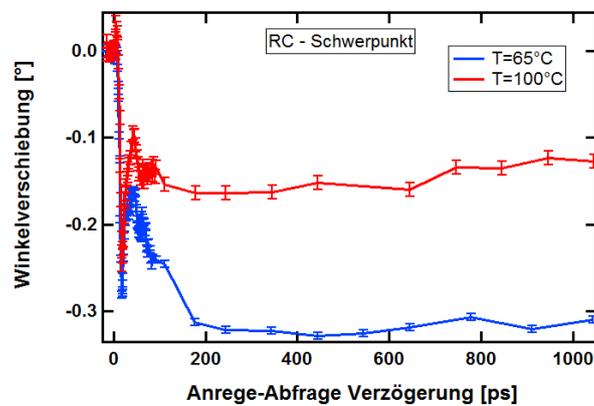


Abbildung 3.25: Vergleich der Maximumsposition nach Laseranregung bei 65° und 100°

Auf der Zeitskala von 0-1000ps lässt sich der Laserinduzierte AFM-FM Phasenübergang deutlich als stark erhöhte Winkelverschiebung erkennen. Im Vergleich zu der 100°Messung ist der Schwerpunkt (das Maximum) um $\Delta\Theta_{65-100_{SP}} = -0.183^\circ$ ($\Delta\Theta_{65-100_M} = -0.204^\circ$) verschoben. Das stimmt gut ($<7\%$) überein mit der Differenz der Bragg-Winkel $\Theta_{65} - \Theta_{100} = -0.190^\circ$ aus der Hysterese Messung, vorausgesetzt die thermische Anregung ist identisch in beiden Phasen. Die laserinduzierte, thermische Ausdehnung wurde mit Formel 3.5 als Ausdehnung in einer Dimension behandelt, für den magnetischen Effekt jedoch ist diese Betrachtung nicht zutreffend, da er bereits eingeschränkt ist durch das Substrat (vergleiche 3.3.2).

Geht man davon aus, dass beide Kurven sich lediglich durch den Effekt des Phasenübergangs unterscheiden, kann man die Differenz als Zeitabhängigkeit des "magnetischen Drucks" ansehen, dargestellt in Abbildung 3.26. Als Zeitkonstante eines exponentiellen Fits ergibt sich $\tau = 151ps$ (± 15). Das stimmt innerhalb des Fehlers gut überein mit dem Ergebnis von Radu *et al.* [47] (120ps).

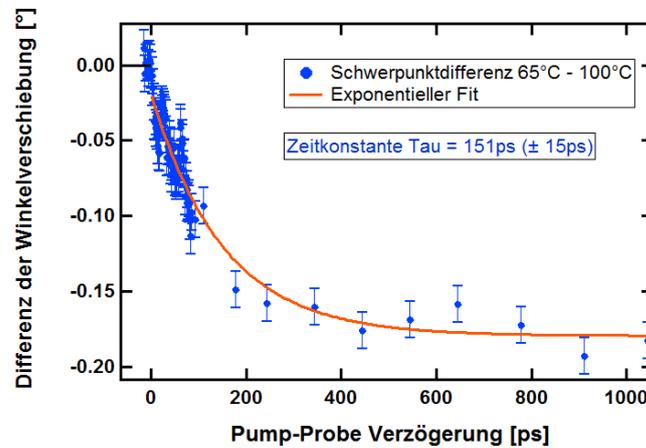


Abbildung 3.26: Zeitlicher Beitrag der magnetischen Phasenumwandlung

3.3.4 Fluenz-abhängige Messung der Winkeländerung

Um die Ergebnisse der zeitaufgelösten Messungen zu untermauern, ist es wichtig herauszufinden, wie die markanten Punkte (18ps, 1ns) von der Anregungsenergie

abhängen. Zu diesem Zweck wurden zu beiden Zeiten und Temperaturen Fluenz abhängige Messung der Winkeländerung durchgeführt.

Eine Fluenz abhängige Messungen läuft im Prinzip genau so ab, wie eine zeitaufgelöste Messung, mit dem einzigen Unterschied, dass die Verzögerungstrecke konstant bleibt und dafür mittels einer $\frac{\lambda}{2}$ -Platte und eines Analysators die Laserenergie reguliert wird. Um die Fluenz zu messen, wird der Strahl auf eine CCD-Kamera umgeleitet und an einem (alten Apple ,) PC das Strahlprofil ausgewertet.

Abbildung 3.27 zeigt den Fluenz abhängigen Bragg-Winkel für 100° und 65° bei jeweils 1 Nanosekunde. Außerdem wurde für beide Temperaturen die theoretische Kurve berechnet (vergleiche Abschnitt 3.3.3).

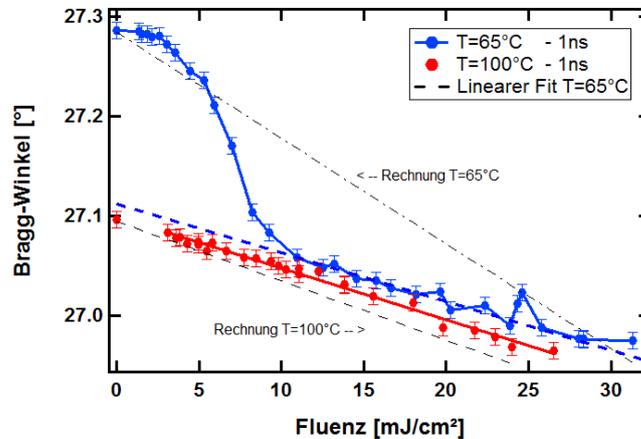


Abbildung 3.27: Fluenz abhängige Messung bei 1 ns - $T=100^\circ$ (rot), $T=65^\circ$ (blau)

Der Verlauf der $T=100^\circ\text{C}$ Kurve ist, wie erwartet, linear, da der AFM-FM Phasenübergang bereits vollzogen wurde und bisher in keiner Messung Anzeichen für eine Anregung bis in die paramagnetische Phase ($T_c = 680\text{K}$) gefunden wurden. Das entspricht laut Rechnung zwar "nur" einer Fluenz von 25mJ/cm^2 allerdings, war auch in der zeitaufgelösten Messung schon zu sehen, dass der Wert für 1 ns zu groß

ist, die Temperaturerhöhung also zu hoch berechnet wird. Das spiegelt sich auch in der Steigung der theoretischen Kurve wieder, diese ist etwa 14% größer als in der Messung.

Die $T=65^\circ\text{C}$ Messung ist offensichtlich keine Gerade, sondern hat eine ähnliche Form wie die Hysterese Kurve der statischen Messung. Das macht Sinn, da bereits im vorherigen Abschnitt gezeigt wurde, dass sich der Phasenübergang mittels Laseranregung induzieren lässt. Der Sprung ist mit $\Delta\Theta_{1ns} = 0.197^\circ$ fast identisch zu der Hysterese (Abweichung $< 4\%$). Ein Vergleich der Halbwertsbreiten (FWHM) von Hysteresekurve (Heizen) und Fluenz abhängiger Messung zeigt eine gute Übereinstimmung (Abb. 3.28). Offensichtlich ist die Probe nach 1ns homogen transformiert und der Laserinduzierte Übergang unterscheidet sich nicht mehr von dem thermisch erzeugten.

Über $10\text{mJ}/\text{cm}^2$ hinaus stimmt die Steigung der 65°C Kurve fast überein mit der 100°C Kurve, die Abweichung beträgt lediglich 6%. Der Offset der beiden Geraden erklärt sich aus dem Schwellwert und beträgt etwa $4\text{mJ}/\text{cm}^2$.

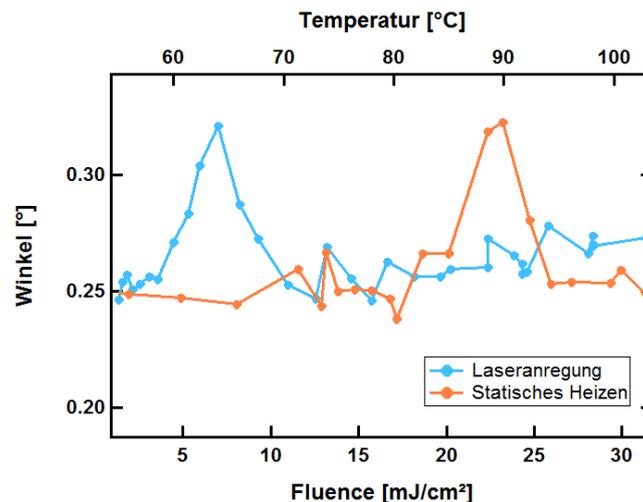


Abbildung 3.28: Halbwertsbreiten (FWHM) der Rocking-Kurven: thermisches Heizen (orange) und laserinduzierter Phasenübergang (blau)

Bei 18 Pikosekunden sind die Fluenz Abhängigkeiten, sowohl für 100°C als auch für 65°C , im Rahmen der Messgenauigkeit linear. In der 65°C Kurve lässt sich kein Schwellwert ausmachen oder ein anderes Anzeichen für einen, bereits erfolgten Phasenübergang erkennen. Etwas verwunderlich ist, dass die Steigungen bis auf 3% genau übereinstimmen, da durch verschiedene optische Konstanten, Wärmekapazitäten, Dichten etc. eine größere Abweichung zu erwarten gewesen wäre.

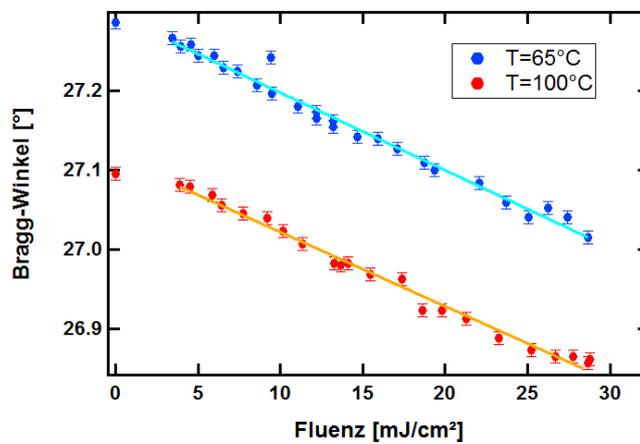


Abbildung 3.29: Fluenz abhängige Messung bei 18ps - $T=100^\circ$ (rot), $T=65^\circ$ (blau)

3.3.5 Simulation der Messdaten mit Hilfe der Linearen Kette

Das größte Problem bei der Untersuchung des Phasenübergangs ist die inhomogene Anregung. Die daraus resultierenden Effekte erschweren es zwischen magnetischen Effekten und akustischen Schwingungen zu unterscheiden. Um die Oszillationen verstehen zu können wurde ein Programm in Matlab geschrieben, dass anhand der linearen Kette, Ebenenbewegungen simuliert. Die Kräfte, die in so einem System herrschen können berechnet und ihre Größenordnung durch die Materialdaten angenähert werden. Rocking-Kurven werden erzeugt, durch die Berechnung des Gangunterschiedes eines einfallenden Strahls zu jeder Atomposition und der Überlagerung der daraus resultierenden Wellen. Die, auf diese Weise berechneten, Rocking-Kurven haben durch die 1-Dimensionalität der linearen Kette keine korrekte Intensitätsab-

nahme bei der Verschiebung des Winkels. Hier kommt der Simulation der große Konvergenzwinkel des Experimentes zu gute. Er sorgt dafür, dass die Intensität der Rocking-Kurven auch im Experiment erhalten bleibt (Abschnitt 3.3.1) und die Simulation nährt sich dem Experiment an.

Um damit die Charakteristika von 100nm Eisen-Rhodium zu simulieren werden 333 Atome aneinander gereiht. Sie haben den Abstand c ($\approx 3\text{\AA}$) der Einheitszelle und repräsentieren die Beugungsebenen. Durch Veränderung der Federkonstanten wird ein Druck initialisiert und die daraus resultierenden Kräfte zwischen den Atomen werden berechnet. Diese werden dann in Geschwindigkeiten umgerechnet, der Rest geschieht automatisch. Ein Knackpunkt ist hier der virtuelle Zeitschritt, er muss in der Regel mindestens 3-4 Größenordnungen kleiner sein, als die virtuelle Messzeit, um "echte" Physik zu simulieren, was schnell zu sehr langen Rechenzeiten führen kann. Das Substrat wird durch eine Dämpfung des letzten Atomes berücksichtigt. Abbildung 3.30 zeigt die Oberfläche des Programmes. Der User kann quasi live die Bewegung der Atome und Veränderung der Rocking-Kurven beobachten.

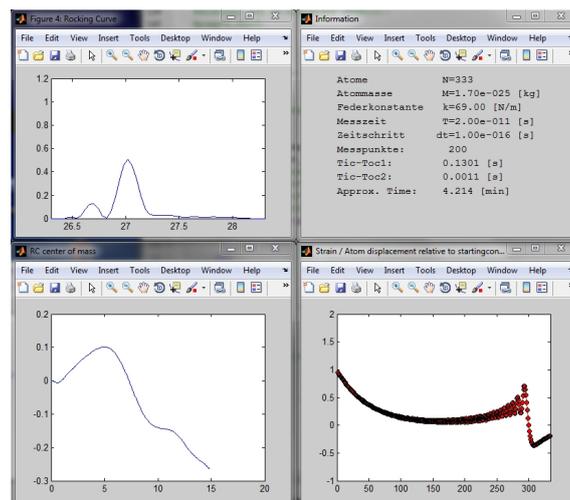


Abbildung 3.30: Oberfläche des LinK Programmes zur Simulation einer inhomogenen Anregung

Die Ergebnisse des, relativ einfachen Ansatzes sind vielversprechend, wie Abbildung 3.31 zeigt.

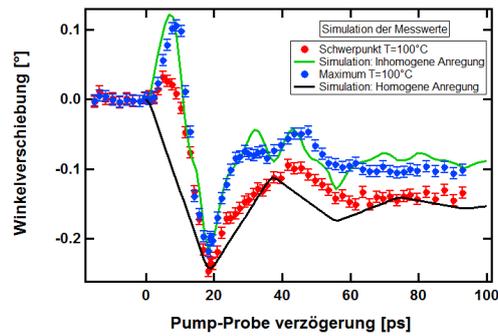


Abbildung 3.31: Simulierte Kurve (grün) über die Messergebnisse gelegt.

Die simulierte Kurve wurde lediglich so skaliert, dass sie mit dem ersten Minimum übereinstimmt. Sie liefert deutliche Indizien dafür, dass das erste Maximum und die doppelte Periode tatsächlich auf rein akustische Effekte zurückgeführt werden können.

Auch die Rocking-Kurven werden bereits gut simuliert (Abb. 3.33).

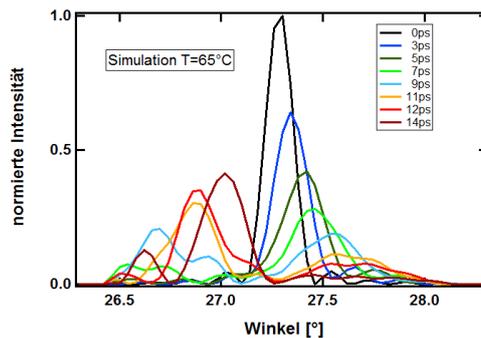


Abbildung 3.32: Simulierte Rocking-Kurven zu frühen Zeiten.

Das Modell liefert außerdem deutliche Hinweise darauf, dass der anfängliche Verlauf des Schwerpunktes bei $T=100^\circ\text{C}$ zu größeren Winkeln im Abschneiden der Rocking-Kurven bei kleinen Winkeln begründet ist. Das erklärt auch, warum der Effekt bei

$T=65^{\circ}\text{C}$ weniger stark auftritt. Hier ist der Anfangswinkel größer und somit wird weniger von der Rocking-Kurve abgeschnitten (Abb. ??). Bevor das Programm jedoch ein zuverlässiges Werkzeug zur Berechnung der Messdaten wird, muss es zunächst noch gründlich auf die Unterschiede zu dem echten, 3-dimensionalen Problem untersucht werden.

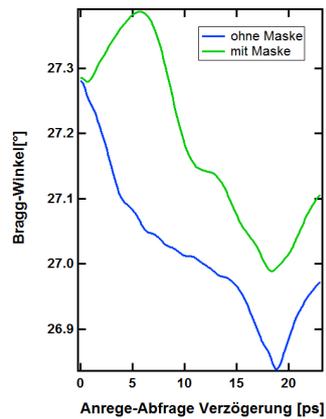


Abbildung 3.33: Simulierter Verlauf des Schwerpunktes mit und ohne Abschneiden der Rocking-Kurven

Kapitel 4

Resümee

Der magnetische Phasenübergang von Eisen-Rhodium wurde in dieser Arbeit auf verschiedene Weisen untersucht.

Zunächst wurde gezeigt, dass beim thermischen Heizen des Filmes eine Hysterese zu erkennen ist und ein Sprung in der Gitterkonstanten von etwa 0.64% auftritt. Der größere Wert im Vergleich zum Bulk-Material wurde begründet mit der quasi-eindimensionalen Ausbreitung, durch Kopplung an das Substrat. Außerdem wurde an Hand der Verbreiterung der Rocking-Kurven gezeigt, dass offensichtlich die beiden Phasen im Übergang koexistieren.

Die zeitabhängige Messung der Winkeländerung bei $T=100^{\circ}\text{C}$ hat gezeigt, dass deutliche Parallelitäten zu der Oszillation akustischer Wellen bestehen. Was anfänglich wie eine doppelte Periode aussah, lässt sich dank der Ergebnisse der Simulation höchstwahrscheinlich auf das Abschneiden der Rocking-Kurven zurückführen. Die Periode von 18.3ps spiegelt dann in guter Übereinstimmung die Zeit wieder, die eine akustische Welle benötigt, um einmal durch den Film zu laufen.

Theorien über einen schnellen Anteil des magnetischen Phasenübergangs, werden ebenfalls entkräftet, da das erste Maximum höchstwahrscheinlich ein Artefakt des Messaufbaus ist.

Es wurde außerdem gezeigt, dass die Gitterexpansion zu späten Zeiten auf thermische Ausdehnung zurückgeführt werden kann.

Vergleiche der $T=100^{\circ}\text{C}$ und $T=65^{\circ}\text{C}$ Messungen haben ergeben, dass zu frühen Zeiten ($<18\text{ps}$) die Messkurven nahezu identisch sind. Zu späten Zeiten (1ns) unterscheiden sie sich durch den Sprung der Gitterkonstanten, erzeugt durch den magnetischen Phasenübergang.

Die Differenz der beiden Kurven $T=65^{\circ}\text{C}-T=100^{\circ}\text{C}$ zeigt die Entwicklung des magnetischen Drucks als einen langsamen Effekt.

Die Energiedichte-abhängigen Kurven untermauern die Hypothese, dass keine schnellen Effekte des AFM-FM Phasenübergangs zu frühen Zeiten erkennbar sind, da ihre Steigung linear ist und die Kurve keinen Schwellwert aufweist. Zu späten Zeiten zeigt die $T=65^{\circ}\text{C}$ Kurve übertragbares Verhalten wie die Hysteresekurve. Das wird zusätzlich durch die Halbwertsbreiten untermauert.

Insgesamt lässt sich also das Verhalten von Eisen-Rhodium nach einem laserinduzierten magnetischen Phasenübergangs sehr gut erklären, wenn man die Ergebnisse der Simulation mit einbezieht. Eine Weiterentwicklung des Programms ist geplant und wird hoffentlich noch genauere Erkenntnisse zu Tage fördern.

Danke!

Mein Dank gilt in erster Linie der gesamten AG Bovensiepen für die anregenden Diskussionen, die Hilfsbereitschaft bei jeglichen Problemen und die angenehme Arbeitsatmosphäre.

Besonders möchte ich meinem Leidensgenossen Michael Vattilana danken, mit dem die langen Nächte im Labor garnicht so lang erschienen und ohne den das Eisen-Rhodium Experiment nicht durchführbar gewesen wäre!

Des weiteren möchte ich speziell Dr. Alexander Tarasevitch danken, der das Laser-System kennt wie kein anderer und die Maschine am Laufen hielt. Außerdem danke ich Wei Lu, der bei zahlreichen Gelegenheiten zur Seite stand und mit dem das Arbeiten viel Spaß gemacht hat.

Zu guter letzt danke ich meinem Betreuer Dr. Klaus Sokolowski-Tinten, der immer mit Rat und Tat zur Seite stand, auf fast jede Frage eine Antwort kannte und bis zu Letzt die Geduld bewahrt hat.

Literaturverzeichnis

- [1] IUPAC. Periodic table of the elements. Website, Feb 2010. Available online at http://old.iupac.org/reports/periodic_table/IUPAC_Periodic_Table-19Feb09.pdf.
- [2] Bibliographisches Institut. *Schlag nach! Wissenswerte Tatsachen aus allen Gebieten*. Bibliographisches Institut, 1963.
- [3] Michael Ströck. Eight allotropes of carbon. Website, März 2011. Available online at Wikimedia Commons http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/f/f8/Eight_Allotropes_of_Carbon.png; GFDL.
- [4] Arie van Houselt and Harold J. W. Zandvliet. Colloquium: Time-resolved scanning tunneling microscopy. *Rev. Mod. Phys.*, 82(2):1593–1605, May 2010.
- [5] Konrad Kopitzki and Peter Herzog. *Einführung in die Festkörperphysik, 6. Auflage*. Vieweg+Teubner, 2007.
- [6] Newport. *Fiber-Coupled, Ultrahigh-Speed Photodetector Modules, Models 141X, 143X, 144X and 145X*. New Focus, Inc. Technical Handbook.
- [7] Thomas Walther and Herbert Walther. *Was ist Licht?: Von der klassischen Optik zur Quantenoptik*. C.H.Beck, 2010.
- [8] Christiaan Huygens. *Abhandlung über das Licht*. Verlag von W. Engelmann, 1890. Verfasst 1678.

- [9] Isaac Newton. *Opticks*. Printed for William Innys at the West-End of St. Paul's, 1704.
- [10] J. Clerk Maxwell. A dynamical theory of the electromagnetic field. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 155:459–512, January 1865.
- [11] H. Hertz. Ueber einen Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die electriche Entladung. *Annalen der Physik und Chemie*, 267:983–1000, 1887.
- [12] Max Planck. Über eine Verbesserung der Wienschen Spektralgleichung. Verhandlungen der Deutschen physikalischen Gesellschaft 2, Oktober 1900.
- [13] A. Einstein. Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Annalen der Physik*, 322:132–148, 1905.
- [14] A. Einstein. Zur Theorie der Lichterzeugung und Lichtabsorption. *Annalen der Physik*, 325:199–206, 1906.
- [15] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik, 4 Bde., Bd.2, Elektrizität und Optik*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, April 1999.
- [16] Andre Authier. *Dynamical Theory Of X-ray Diffraction*. Oxford University Press, USA, 1992.
- [17] Charles Kittel. *Introduction to Solid State Physics*, volume 7th. Wiley, 1996.
- [18] The National Institute of Standards and Technology. Nist standard reference database 128. Website, Dezember 2010. Available online at <http://www.nist.gov/pml/data/xraytrans/index.cfm>.
- [19] Uladzimir Shymanovich. *Direct observation of ultrafast atomic motion using time-resolved X-ray diffraction*. PhD thesis, University of Duisburg-Essen, 2007.
- [20] Matthieu Nicoul. *Time-resolved X-ray diffraction with accelerator- and laser-plasma-based X-ray sources*. PhD thesis, University of Duisburg-Essen, 2010.

-
- [21] H. Park, X. Wang, S. Nie, R. Clinite, and J. Cao. Mechanism of coherent acoustic phonon generation under nonequilibrium conditions. *Phys. Rev. B*, 72(10):100301, Sep 2005.
- [22] A. M. Lindenberg, I. Kang, S. L. Johnson, T. Missalla, P. A. Heimann, Z. Chang, J. Larsson, P. H. Bucksbaum, H. C. Kapteyn, H. A. Padmore, R. W. Lee, J. S. Wark, and R. W. Falcone. Time-resolved x-ray diffraction from coherent phonons during a laser-induced phase transition. *Phys. Rev. Lett.*, 84(1):111–114, Jan 2000.
- [23] M. Ligges. *Zeitaufgelöste TED*. PhD thesis, Universität Duisburg-Essen, 2009.
- [24] Yigal Meir and Ned S. Wingreen. Landauer formula for the current through an interacting electron region. *Phys. Rev. Lett.*, 68(16):2512–2515, Apr 1992.
- [25] J. Hohlfeld, Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, and E. Matthias. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. *Chem. Phys.*, 251:237–258, 2000.
- [26] A. Ruhl. Erzeugung intensiver Röntgenimpulse mit einem Bandtarget. Master's thesis, Universität Duisburg-Essen, 2006.
- [27] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou. Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification. *Opt. Commun.*, 56(219), 1985.
- [28] C. Blome. Röntgenstrahlung aus lasererzeugten Femtosekunden-Plasmen. Master's thesis, Universität-GHS-Essen, 1999.
- [29] C. Blome. *Untersuchung schneller Strukturänderungen mit Hilfe ultrakurzer Röntgenimpulse*. PhD thesis, Universität Duisburg-Essen, 2003.
- [30] Blome, C., Sokolowski-Tinten, K., Dietrich, C., Tarasevitch, A., and von der Linde, D. Set-up for ultrafast time-resolved x-ray diffraction using a femto-

- second laser-plasma keV x-ray source. *J. Phys. IV France*, 11(PR2):Pr2-491-Pr2-494, 2001.
- [31] S. Kähle. *Kurzzeit-Röntgenbeugung mit Hilfe einer Effizienz-optimierten, hochrepetierenden Laser-Plasma-Röntgenquelle*. PhD thesis, Universität Duisburg-Essen, 2009.
- [32] Wei Lu. *-Titel yet to be announced-*. PhD thesis, University of Duisburg-Essen, 2011. unpublished.
- [33] Ch. Reich, P. Gibbon, I. Uschmann, and E. Förster. Yield optimization and time structure of femtosecond laser plasma $k\alpha$ sources. *Phys. Rev. Lett.*, 84(21):4846-4849, May 2000.
- [34] M. Fallot, 1938.
- [35] S. K. Kim, Y. Tian, F. Jona, and P. M. Marcus. Atomic structure of a 110 surface of the FeRh alloy. *Phys. Rev. B*, 56(15):9858-9863, Oct 1997.
- [36] S. Maat, J.-U. Thiele, and Eric E. Fullerton. Temperature and field hysteresis of the antiferromagnetic-to-ferromagnetic phase transition in epitaxial FeRh films. *Phys. Rev. B*, 72(21):214432, Dec 2005.
- [37] G. Shirane, R. Nathans, and C. W. Chen. Magnetic moments and unpaired spin densities in the Fe-Rh alloys. *Phys. Rev.*, 134(6A):A1547-A1553, Jun 1964.
- [38] L. Zsoldos. Lattice parameter change of FeRh alloys due to antiferromagnetic-ferromagnetic transformation. *physica status solidi (b)*, 20(1):K25-K28, 1967.
- [39] V. L. Moruzzi and P. M. Marcus. Giant magnetoresistance in FeRh: A natural magnetic multilayer. *Phys. Rev. B*, 46(21):14198-14200, Dec 1992.
- [40] M. E. Gruner, E. Hoffmann, and P. Entel. Instability of the rhodium magnetic moment as the origin of the metamagnetic phase transition in α -FeRh. *Phys. Rev. B*, 67(6):064415, Feb 2003.

-
- [41] Jan-Ulrich Thiele, Stefan Maat, and Eric E. Fullerton. Ferh/fept exchange spring films for thermally assisted magnetic recording media. *Applied Physics Letters*, 82(17):2859–2861, 2003.
- [42] Bastiaan Bergman, Ganping Ju, Julius Hohlfeld, René J. M. van de Veerdonk, Jai-Young Kim, Xiaowei Wu, Dieter Weller, and Bert Koopmans. Identifying growth mechanisms for laser-induced magnetization in ferh. *Phys. Rev. B*, 73(6):060407, Feb 2006.
- [43] Sho Inoue, Hnin Yu Yu Ko, and Takao Suzuki. Magnetic properties of single-crystalline ferh alloy thin films. *IEEE Transactions on Magnetics*, 44:2875–2878, 2008.
- [44] M. R. Ibarra and P. A. Algarabel. Giant volume magnetostriction in the ferh alloy. *Phys. Rev. B*, 50(6):4196–4199, Aug 1994.
- [45] Ganping Ju, Julius Hohlfeld, Bastiaan Bergman, René J. M. van de Veerdonk, Oleg N. Mryasov, Jai-Young Kim, Xiaowei Wu, Dieter Weller, and Bert Koopmans. Ultrafast generation of ferromagnetic order via a laser-induced phase transformation in ferh thin films. *Phys. Rev. Lett.*, 93(19):197403, Nov 2004.
- [46] Jan-Ulrich Thiele, Matthias Buess, and Christian H. Back. Spin dynamics of the antiferromagnetic-to-ferromagnetic phase transition in ferh on a sub-picosecond time scale. *Applied Physics Letters*, 85(14):2857–2859, 2004.
- [47] I. Radu, C. Stamm, N. Pontius, T. Kachel, P. Ramm, J.-U. Thiele, H. A. Dürr, and C. H. Back. Laser-induced generation and quenching of magnetization on ferh studied with time-resolved x-ray magnetic circular dichroism. *Phys. Rev. B*, 81(10):104415, Mar 2010.
- [48] M Nicoul, U Shymanovich, S Kähle, T Caughey, D Sampat, K Sokolowski-Tinten, and D von der Linde. Bent crystal x-ray mirrors for time-resolved

- experiments with femtosecond laser-produced x-ray pulses. *Journal of Physics: Conference Series*, 21(1):207, 2005.
- [49] S. B. Palmer, P. Dentschuk, and D. Melville. Elastic properties of an iron-rhodium alloy. *physica status solidi (a)*, 32(2):503–508, 1975.
- [50] Diskussion mit Dr. K. Sokolowski-Tinten.
- [51] Liang-Yao Chen and David W. Lynch. Ellipsometric studies of magnetic phase transitions of fe-rh alloys. *Phys. Rev. B*, 37(18):10503–10509, Jun 1988.
- [52] M.J. Richardson, D. Melville, and J.A. Ricodeau. Specific heat measurements on an fe rh alloy. *Physics Letters A*, 46(2):153 – 154, 1973.
- [53] A. Szajek and J.A. Morkowski. Phase diagram of the metamagnetic ferh. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 115(2-3):171 – 173, 1992.
- [54] Wei Lu, Biao Yan, and Takao Suzuki. Magnetic phase transition and magneto-optical properties in epitaxial ferh_{0.95}pt_{0.05} single-crystal thin film. *Scripta Materialia*, 61(9):851 – 854, 2009.
- [55] BB Karki, L Stixrude, SJ Clark, MC Warren, GJ Ackland, and Crain. Structure and elasticity of mgo at high pressure. *AM Mineral*, 82(1-2):51 – 60, 1997.
- [56] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Phys. Rev. B*, 34(6):4129–4138, Sep 1986.
- [57] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, J. Tauc, and J. J. Hauser. Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 53(10):989–992, Sep 1984.