

Erzeugung und Messung kohärenter, ultra-schneller Gitterschwingungen in Nanostrukturen mit Hilfe eines Anrege-Abfrage-Experiments

Paul Becker
(paul.becker@udo.edu)

Alina Nasr-Esfahani
(alina.esfahani@udo.edu)

Durchführung: 09.08.2018, 1. Abgabe: 15.08.2018

Inhaltsverzeichnis

1	Theorie	2
1.1	Akkustische Gitterschwingungen durch Anregung mit einem Laserpuls . .	2
1.2	Anrege-Abfrage-Experimente und asynchrones optisches Abtasten	3
2	Durchführung	3
3	Auswertung	4
3.1	Näherung des Films mit Hilfe des drei Temperatur Modell	4
3.2	Korrektur der Daten	6
3.3	Frequenzspektren	8
3.4	Einfluss der Polarisierung auf die Schwingung	13
3.5	Verbesserung der Signalqualität mit Hilfe eines Tiefpasses	16
4	Diskussion	18

1 Theorie

Mithilfe eines Anrege-Lasers werden in einem Festkörper akkustische Gitterschwingungen im GHz-Bereich durch ultrakurze Laserpulse angeregt. Diese werden daraufhin mit einem Abfrage-Laser spektroskopisch untersucht.

1.1 Akkustische Gitterschwingungen durch Anregung mit einem Laserpuls

In einem Gallenol-Film auf einem Galliumarsenid-Substrat werden akkustische Gitterschwingungen durch ultrakurze Laserpulse angeregt. Die Gitterschwingungen besitzen bei einem flachen Film ohne Oberflächenstruktur zunächst keine bevorzugte Frequenz. Die Intensität der Schwingung steigt also nach der Anregung schlagartig an und fällt aufgrund der Energiedissipation einem exponentiellen Abfall ähnlich ab. Das Abkühlen des Materials nach der Anregung durch den Laserpuls kann mithilfe des 3-Temperatur-Modells beschrieben werden.

Durch den Laserpuls wird den Elektronen im Gitter Energie hinzugefügt, das System ist nicht mehr im Gleichgewichtszustand. Durch Elektron-Elektron-Wechselwirkung wird die große Menge hinzugefügter Energie zunächst von wenigen Elektronen verteilt auf eine große Anzahl Elektronen; die Elektronen haben dann alle die gleiche Temperatur T_e und folgen einer Fermi-Dirac-Verteilung. Die Anzahl von Spin-up und Spin-down Elektronen kann sich unterscheiden. Die Energie wird dann durch Elektron-Phonon-Wechselwirkung auf das Gitter übertragen, das bis dahin noch unbeeinflusst von der Energieaufnahme war und die Temperatur von Elektronen und Gitter nähern sich einem Gleichgewicht an. Die Anregung mit dem Laserpuls resultiert in einer Reduzierung des magnetischen (Spin-)Moments durch Wechselwirkungen mit Phononen bzw. Elektronen. Die Temperaturänderung der drei Systeme kann durch gekoppelte Differentialgleichungen beschrieben werden [4, 2]:

$$c_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = -g_{el}(T_e - T_l) - g_{es}(T_e - T_s) + P(t) \quad (1.1.1)$$

$$c_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} = -g_{el}(T_l - T_e) - g_{sl}(T_l - T_s) \quad (1.1.2)$$

$$c_s(T_s) \frac{\partial T_s}{\partial t} = -g_{es}(T_s - T_e) - g_{sl}(T_s - T_l), \quad (1.1.3)$$

wobei $P(t)$ die zugeführte Leistung des Laserpulses beschreibt und $c_i(T_i)$ die temperaturabhängigen Wärmekapazitäten von System i und g_{ij} die Kopplungskonstanten zwischen System i und j sind. Die Temperaturänderung folgt also einem exponentiellen Abfall. Die Änderung der Reflektivität ist abhängig von der Abweichung der Temperatur der einzelnen Systeme vom Gleichgewichtszustand:

$$\frac{\Delta R}{R} = c_1 \cdot \Delta T_e + c_2 \cdot \Delta T_l + c_3 \cdot \Delta T_s. \quad (1.1.4)$$

Sobald die Oberflächenstruktur periodisch verändert wird, kommt es zu konstruktiver und destruktiver Interferenz. Da es sich bei den Schwingungen um Rayleigh-Wellen handelt, sind die Schwingungen an der Oberfläche lokalisiert. Rayleigh-Wellen haben eine Geschwindigkeitskomponente in Ausbreitungsrichtung und senkrecht dazu. Ihre Geschwindigkeit und Eindringtiefe sind abhängig von ihrer Frequenz. Zu dem Abfall der Schwingungsamplitude kommen periodische Gitterschwingungen hinzu, deren Amplitude und Frequenz von der Struktur der Oberfläche des Films abhängen. Die Frequenz

der Schwingungen lässt sich über die Dispersionsrelation $f = v_s/\lambda$ abschätzen, wobei $\lambda = 1047\text{ nm}$ die Laser-Wellenlänge und $v_s = 2500\text{ m s}^{-1}$ die Schallgeschwindigkeit in Galfenol [1] ist. Die Größenordnung der Schwingungsfrequenz liegt im Bereich von wenigen GHz.

1.2 Anrege-Abfrage-Experimente und asynchrones optisches Abtasten

Bei Anrege-Abfrage-Experimenten wird die Probe durch einen ersten Laserpuls (der pump-Puls) angeregt, dann wird ein zweiter Laserpuls (der probe-Puls) zur spektroskopischen Analyse der angeregten Probe verwendet. Um die zeitliche Entwicklung der Probe untersuchen zu können, muss der probe-Puls jeweils mit unterschiedlichem zeitlichen Abstand zu dem pump-Puls auf der Probe eintreffen. Das kann durch eine mechanische Verzögerung erreicht werden. Bei diesem Ansatz ist die Messgeschwindigkeit allerdings begrenzt und durch Fehler in Justage und Kalibration kann es zu Messungenauigkeiten kommen. Stattdessen werden zwei Laser mit leicht unterschiedlicher Repetitionsrate verwendet. Das Verfahren wird "asynchrones optisches Abtasten" genannt.

2 Durchführung

Zur Messung der Gitterschwingungen wird ein pump-probe-Aufbau verwendet. Die durch die Oszillation der Gitterschwingungen hervorgerufene, periodische Reflektivitätsänderung wird bestimmt, indem die Intensität des von der Probe reflektierten probe-Laserstrahls mit einer Photodiode gemessen wird. Dazu wird der in Abbildung 1 schematisch dargestellte Aufbau zunächst einjustiert. Sowohl der pump-Laser mit einer Wellenlänge von 1047 nm und einem Fokus von $20\text{ }\mu\text{m}$, als auch der probe-Laser mit einer Wellenlänge von 780 nm und einem Fokus von $2\text{ }\mu\text{m}$ müssen auf die gleiche Stelle auf der Probe gerichtet sein. Das reflektierte Licht muss weiterhin auf die beiden Photodioden treffen.

Als erstes wird der Film ohne Höhenprofil angeregt und die Reflektivität gemessen. Daraus wird die Energiedissipation im Galfenol-Film bestimmt. Diese Messung wird im Folgenden von allen weiteren Messungen als Untergrund subtrahiert. Es werden vier Gitter unterschiedlicher Tiefe vermessen und für das tiefste Gitter außerdem die Polarisation gedreht. Aus der Intensität wird die Oszillation der Reflektivitätsänderung der Probe bestimmt. Mit einer Fouriertransformation der Messwerte in der Zeitdomäne lassen sich Amplitude, Frequenz und Breite des Signals untersuchen.

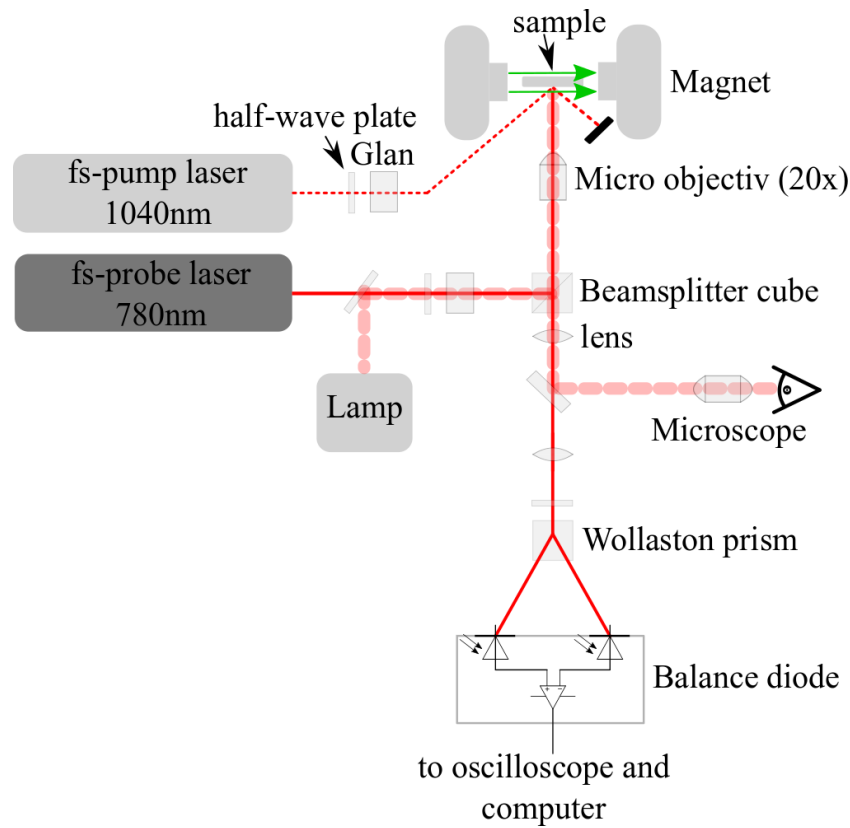


Abbildung 1: Schematischer Aufbau der Messapparatur [3]

3 Auswertung

3.1 Näherung des Films mit Hilfe des drei Temperatur Modell

Die Messwerte für den Film werden mit Hilfe des drei Temperatur Modells

$$f(x) = A \exp(Bx) + C \exp(Dx) + E \exp(Fx) \quad (3.1.1)$$

genähert um anschließend den Anteil des Films aus den weiteres Messungen abziehen zu können.

Die Ergebnisse der Ausgleichsrechnung sind in Abbildung 18 dargestellt. Die zugehörigen Koeffizienten finden sich in Tabelle 9.

Koeffizient	Wert
A	0.00216 ± 0.00004
B	-3.84 ± 0.05
C	0.00051 ± 0.00001
D	-0.29 ± 0.01
E	0.00096 ± 0.00002
F	0.003 ± 0.001

Tabelle 1: Ergebnisse der Ausgleichrechnung mit Hilfe des drei Temperatur Modells

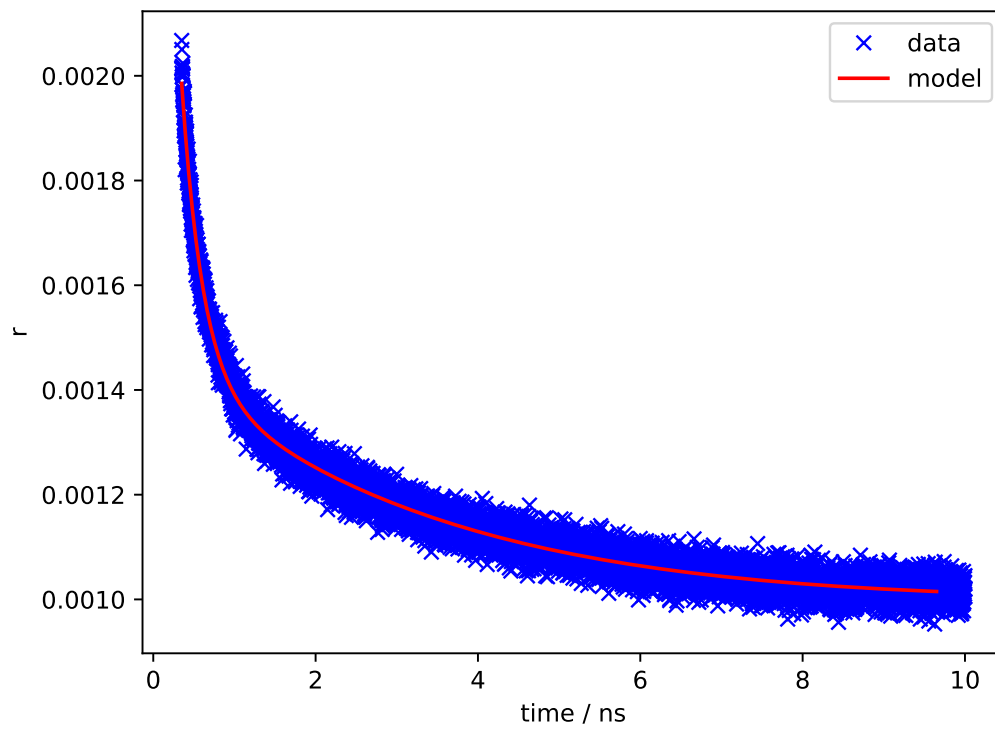


Abbildung 2: Messwerte für den gemessenen Film und die zugehörige Ausgleichsrechnung mit Hilfe des drei Temperatur Modells

3.2 Korrektur der Daten

Anschließend wird das Ergebniss der Ausgleichrechnung von den Messwerten der Messungen mit Gitter abgezogen. In den Folgenden Abbildungen wurde lediglich ein kleiner Teil der Daten gezeichnet um die in den Messdaten enthaltenen Oszillationen sichtbar zu machen.

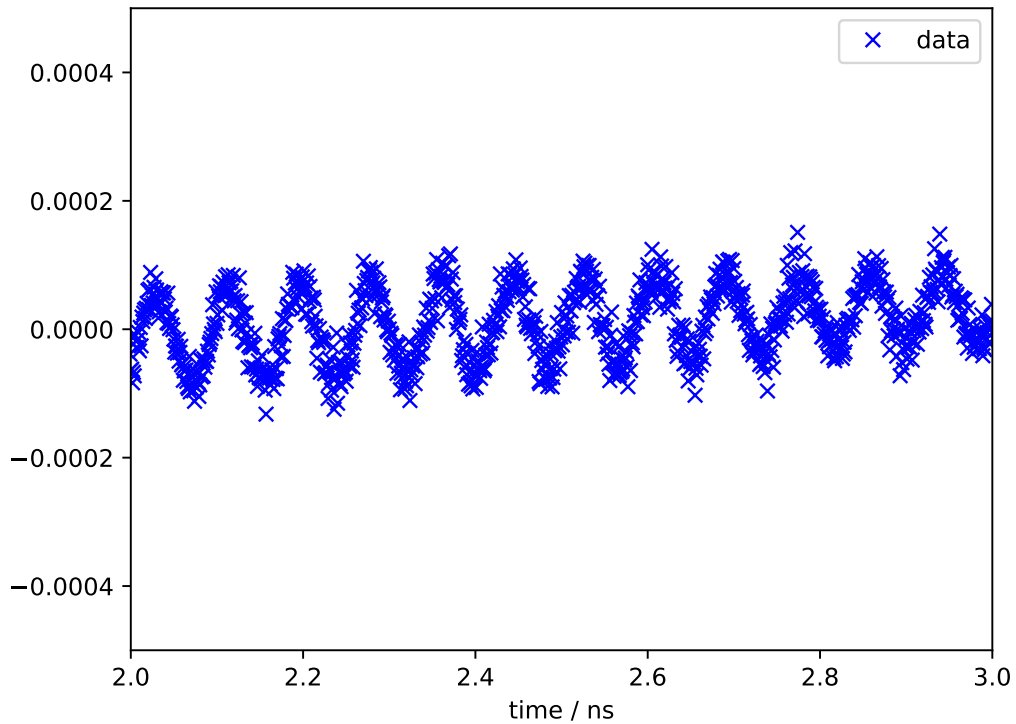


Abbildung 3: Oszillationen in dem 23 nm tiefen Gitter

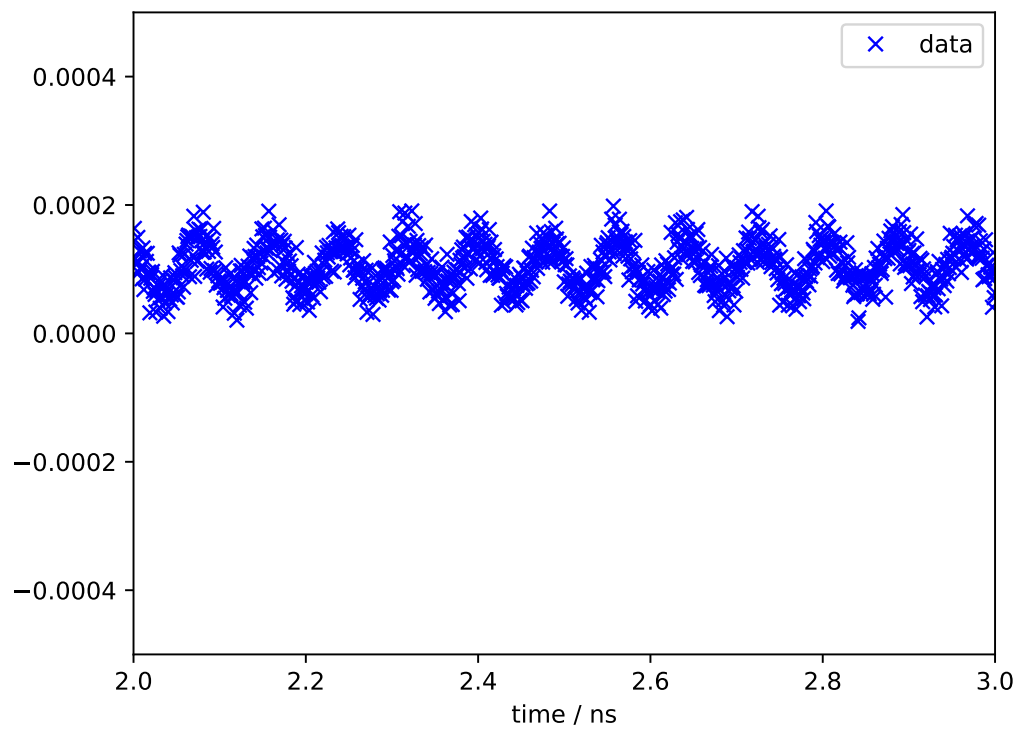


Abbildung 4: Oszillationen in dem 17 nm tiefen Gitter

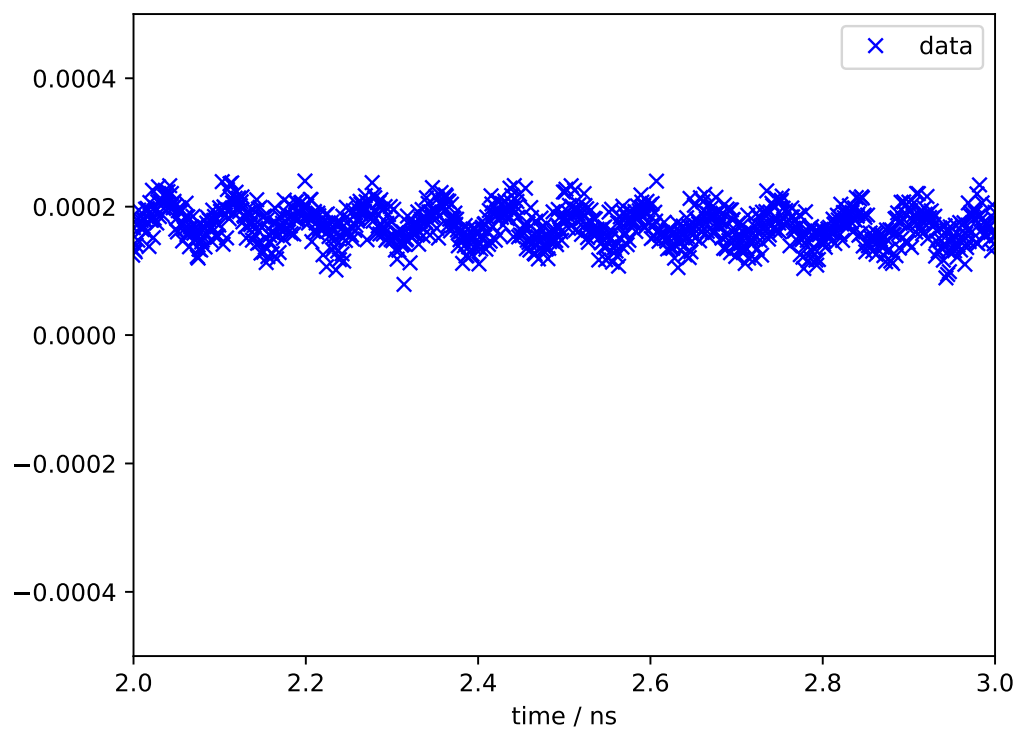


Abbildung 5: Oszillationen in dem 14 nm tiefen Gitter

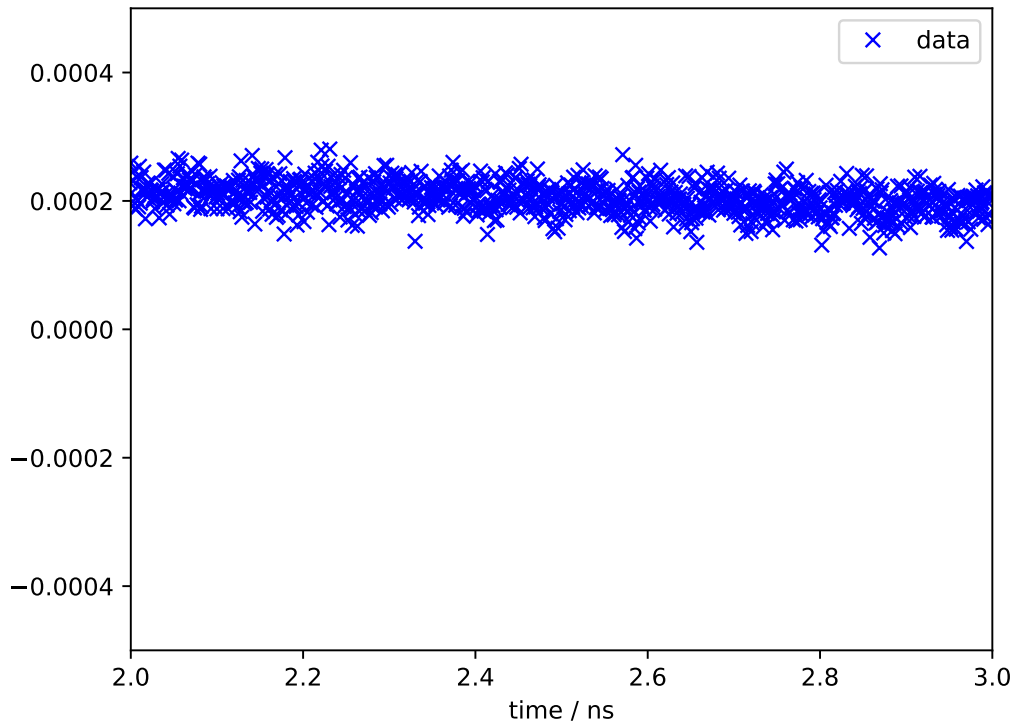


Abbildung 6: Oszillationen in dem 7 nm tiefen Gitter

3.3 Frequenzspektren

Die erhaltenen Oszillationen aus den Messdaten werden als periodisches Phänomen aufgefasst und mit Hilfe von Fouriermethoden analysiert. Es fällt auf, dass alle Frequenzspektren einen Peak bei ungefähr 12,2 GHz aufweisen. Diese Frequenz ist charakteristisch für die benutzten Gitterbreiten und soll im folgenden genauer untersucht werden. An die Peaks wird ein Lorenzprofil der Form

$$L(\omega, \omega_0, \gamma) = \frac{1}{((\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \gamma^2 \omega_0^2)} \quad (3.3.1)$$

gefittet und im Anschluss die Halbwertsbreite und die Amplitude der enthaltenen Frequenz errechnen zu können. Es ist an dieser Stelle anzumerken, dass die Halbwertsbreite des Lorenzprofiles sich in guter Näherung zu γ ergibt, da der Quotient aus $\gamma / \omega_0 \ll 1$ ist.

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,119 \pm 0,006$
γ	$0,212 \pm 0,004$

Tabelle 2: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 23 nm tiefe

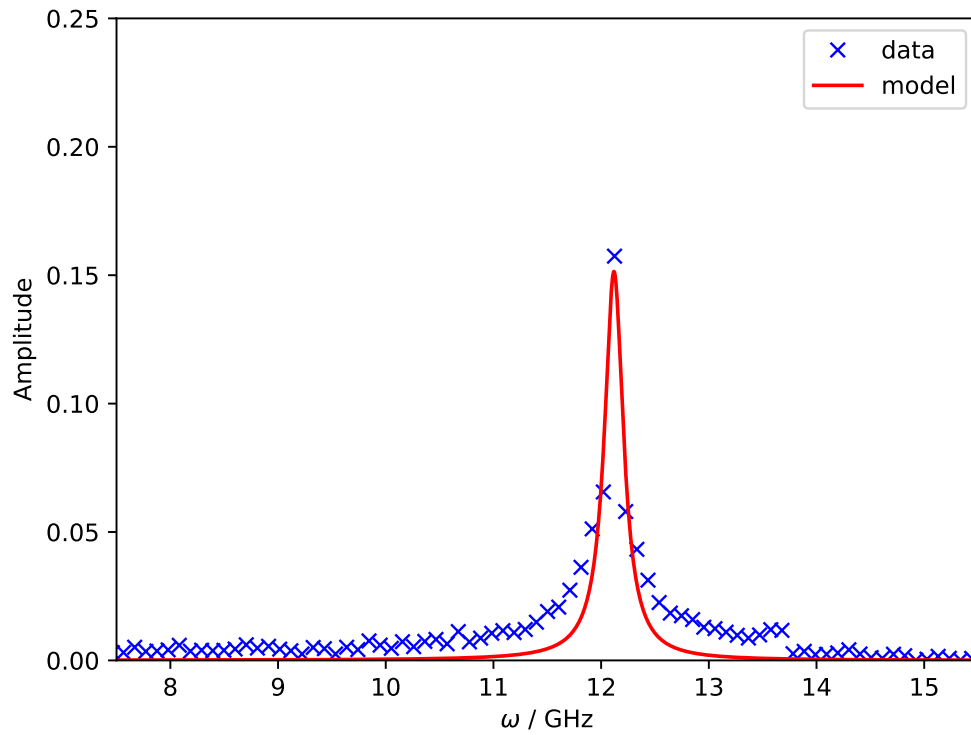


Abbildung 7: Frequenzspektrum für das 23 nm tiefen Gitter

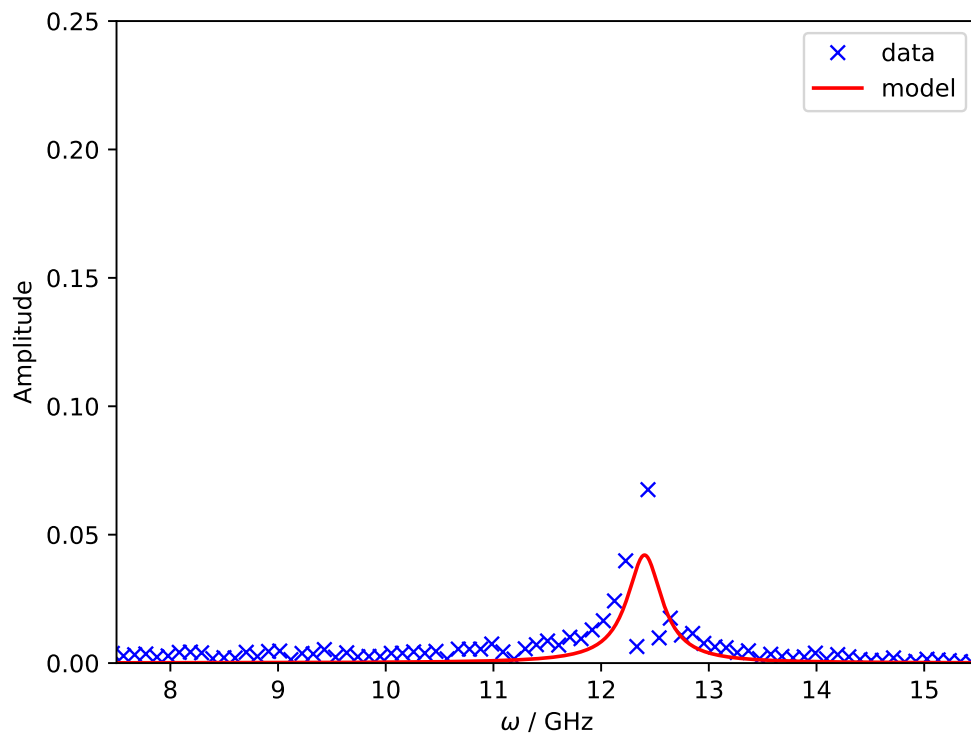


Abbildung 8: Frequenzspektrum für das 17 nm tiefen Gitter

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,40 \pm 0,03$
γ	$0,39 \pm 0,03$

Tabelle 3: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 17 nm tiefe

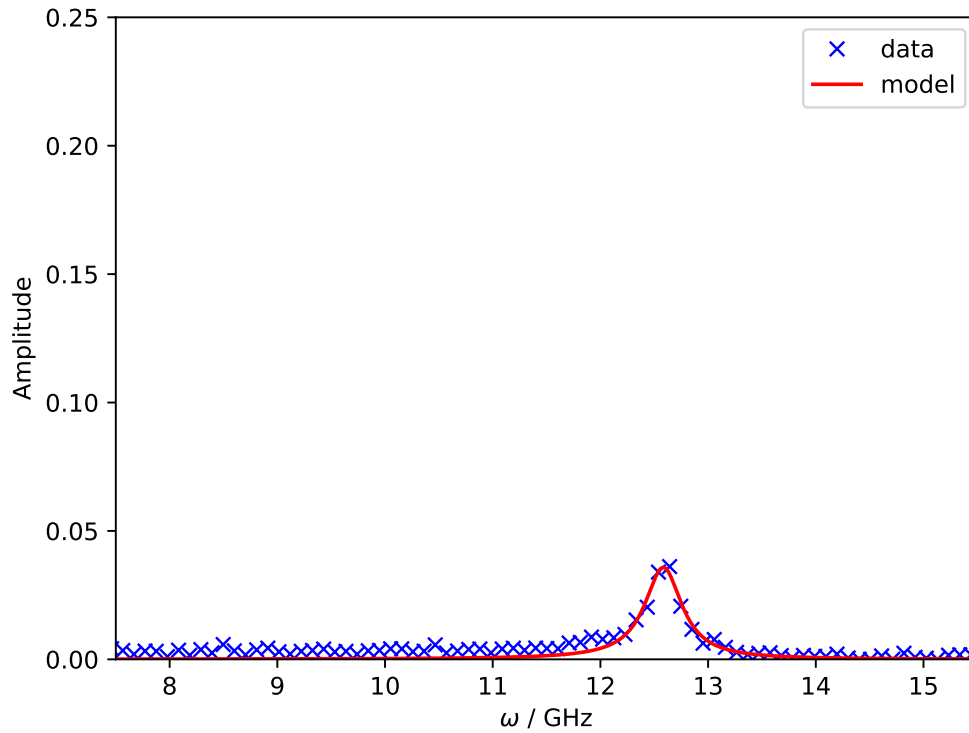


Abbildung 9: Frequenzspektrum für das 14 nm tiefen Gitter

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,58 \pm 0,05$
γ	$0,42 \pm 0,04$

Tabelle 4: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 14 nm tiefe

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,8 \pm 0,4$
γ	$0,9 \pm 0,4$

Tabelle 5: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 7 nm tiefe

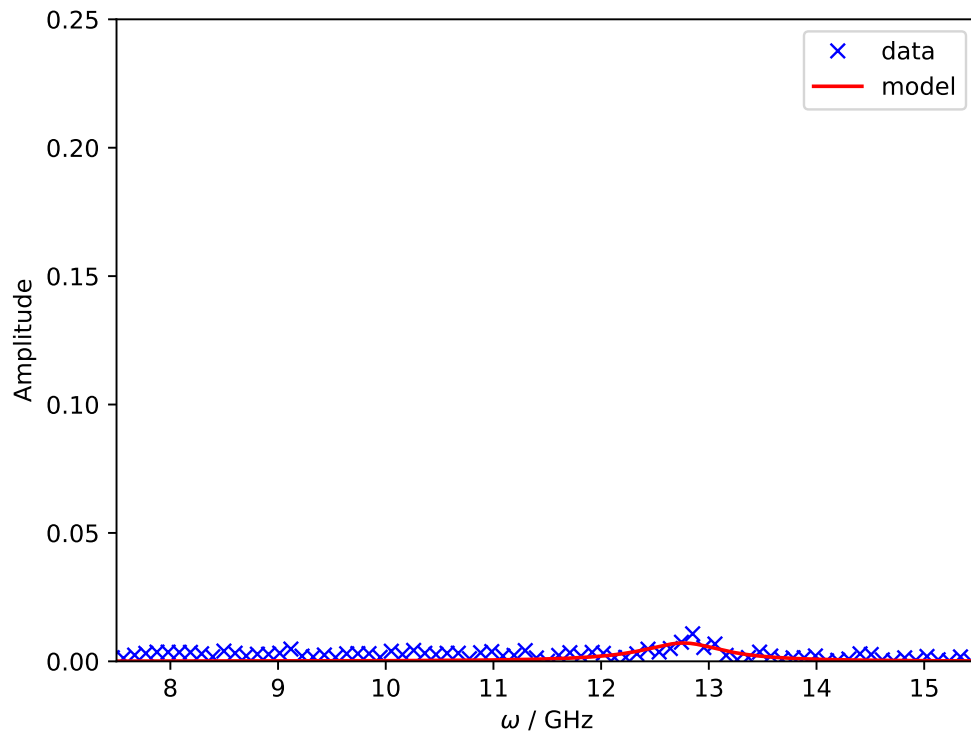


Abbildung 10: Frequenzspektrum für das 7 nm tiefen Gitter

Im Anschluss werden die Amplituden der Frequenzkomponenten gegen die Tiefe des Gitters aufgetragen und eine Ausgleichsrechnung mit einer linearen Funktion

$$f(x) = Ax + B \quad (3.3.2)$$

durchgeführt.

Die Maximas der entsprechenden Frequenzkomponente ergibt sich mit aus dem höchsten Punkt des Lorenzprofiles. Dieser Punkt wird mit Hilfe einer softwareseitigen peak detection bestimmt.

Koeffizient	Wert
A	$0.009 \pm 0,003$
B	$-0.07 \pm 0,05$

Tabelle 6: Fit Ergebnisse für die Amplituden der verschiedenen Gitter in Abhängigkeit zur Gittertiefe

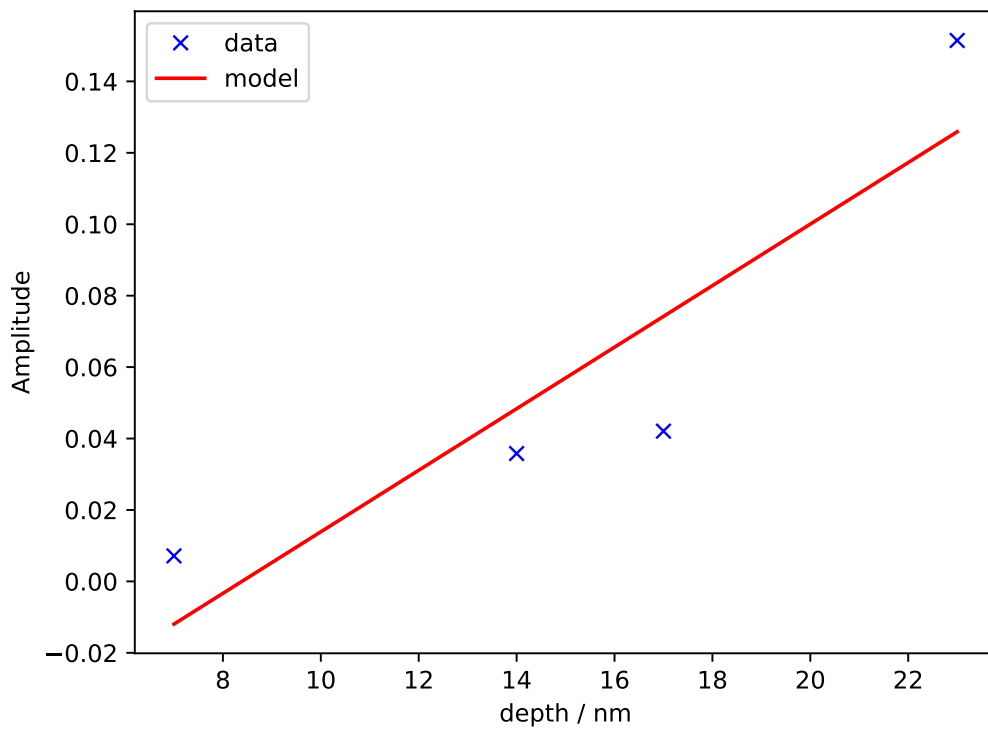


Abbildung 11: Amplituden der charakteristischen Frequenzkomponente aufgetragen gegen die Gittertiefe und linearer Ausgleichsrechnung

3.4 Einfluss der Polarisation auf die Schwingung

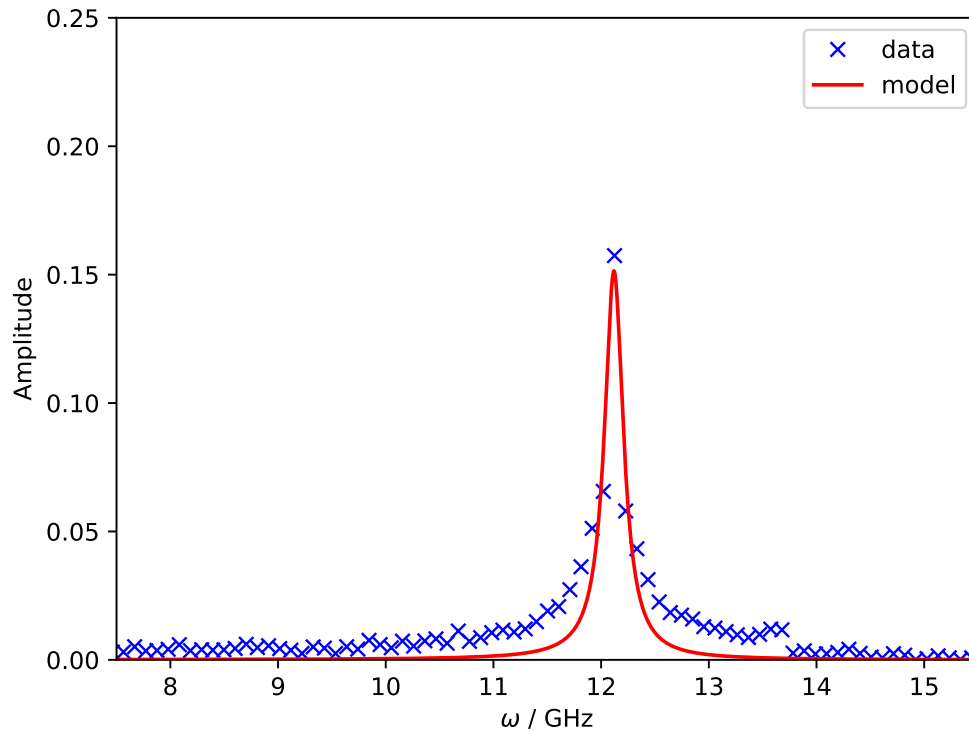


Abbildung 12: Frequenzspektrum für das 14 nm tiefen Gitter unter einem Polarisationswinkel von 0 Grad

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,12 \pm 0,01$
γ	$0,211 \pm 0,008$

Tabelle 7: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 23 nm tiefe unter einem Polarisationswinkel von 0 Grad

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,12 \pm 0,01$
γ	$0,36 \pm 0,02$

Tabelle 8: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 23 nm tiefe unter einem Polarisationswinkel von 45 Grad

Koeffizient	Wert
ω_0	$12,13 \pm 0,02$
γ	$0,34 \pm 0,02$

Tabelle 9: Fit Ergebnisse für das Gitter mit 23 nm tiefe unter einem Polarisationswinkel von 90 Grad

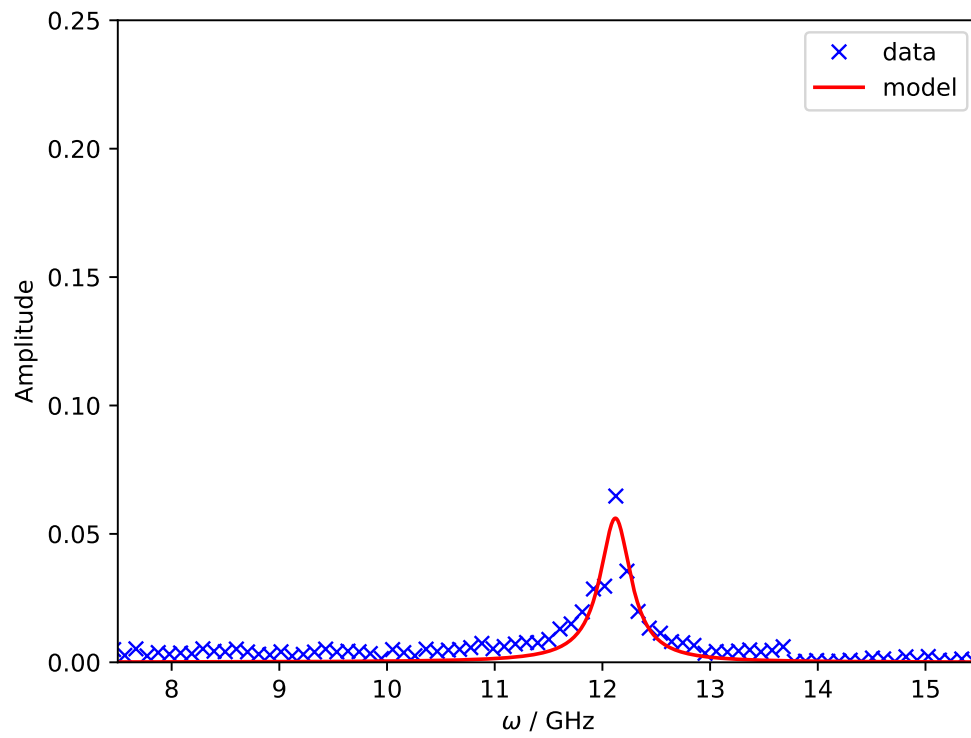


Abbildung 13: Frequenzspektrum für das 23 nm tiefen Gitter unter einem Polarisationswinkel von 45 Grad

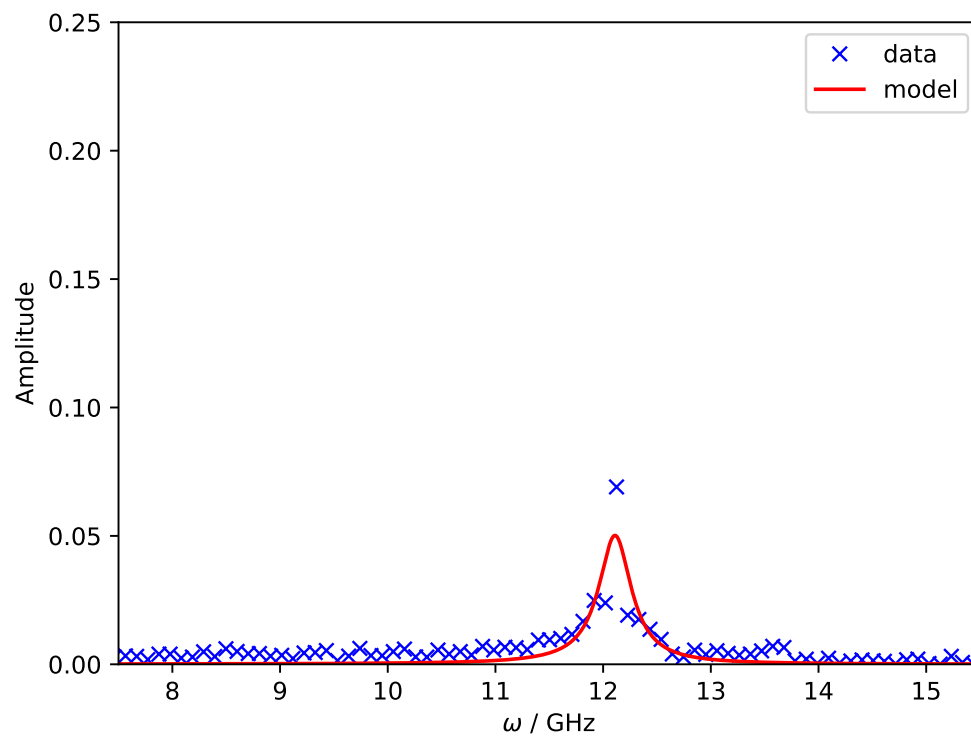


Abbildung 14: Frequenzspektrum für das 23 nm tiefen Gitter unter einem Polarisationswinkel von 90 Grad

3.5 Verbesserung der Signalqualität mit Hilfe eines Tiefpasses

Abschließend soll noch der Einfluss eines Tiefpass Filters auf die Signalqualität überprüft werden. Dazu wird das um das drei Temperatur Modell korrigierte Signal mittels FFT in den Frequenzraum transformiert und anschließend alle Frequenzanteile größer 16 GHz auf 0 gesetzt. Das resultierende Spektrum wird wieder zurücktransformiert und die Signale verglichen. Es ist anzumerken, das

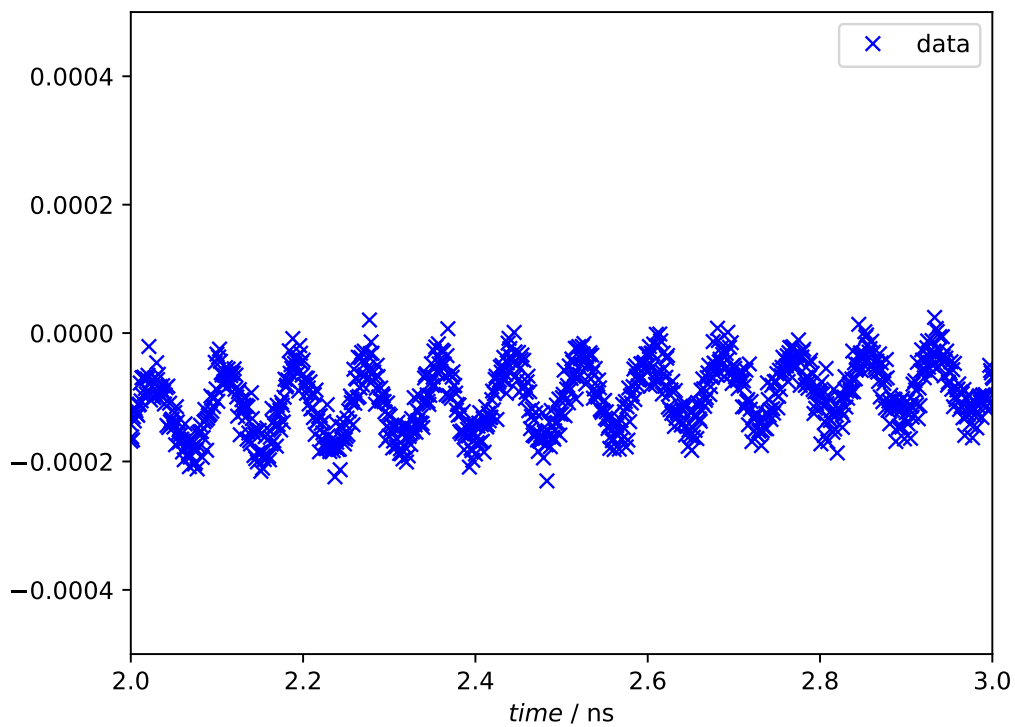


Abbildung 15: Korrigiertes Signal für 20.000 Messwerte pro Datenpunkt

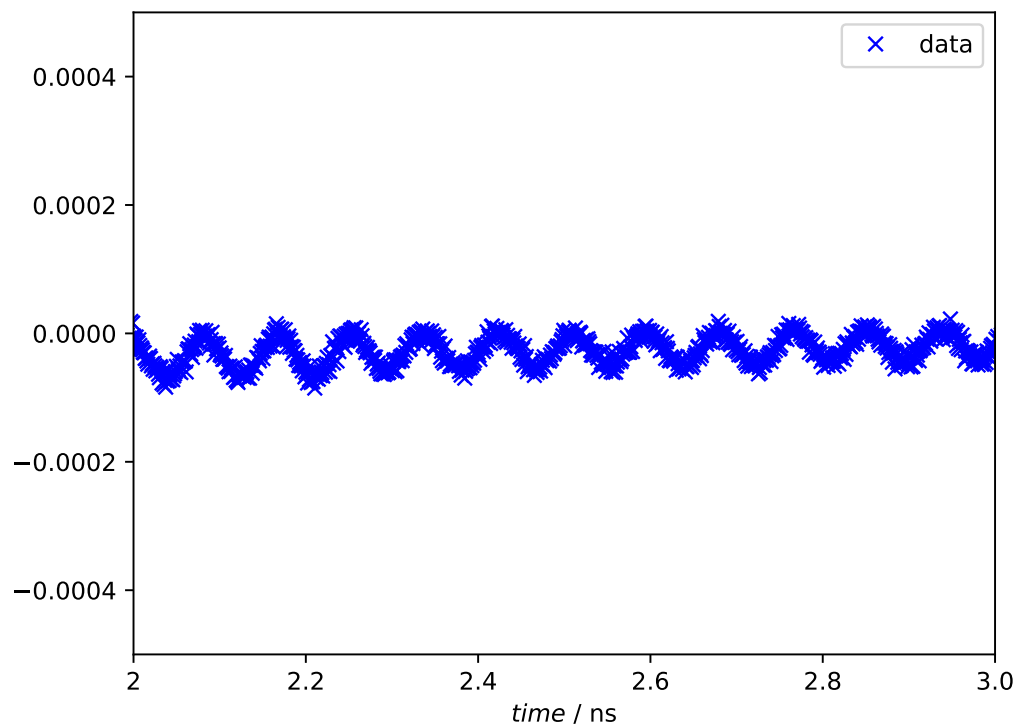


Abbildung 16: Korrigiertes Signal für 20.000 Messwerte pro Datenpunkt nach dem Tiefpass

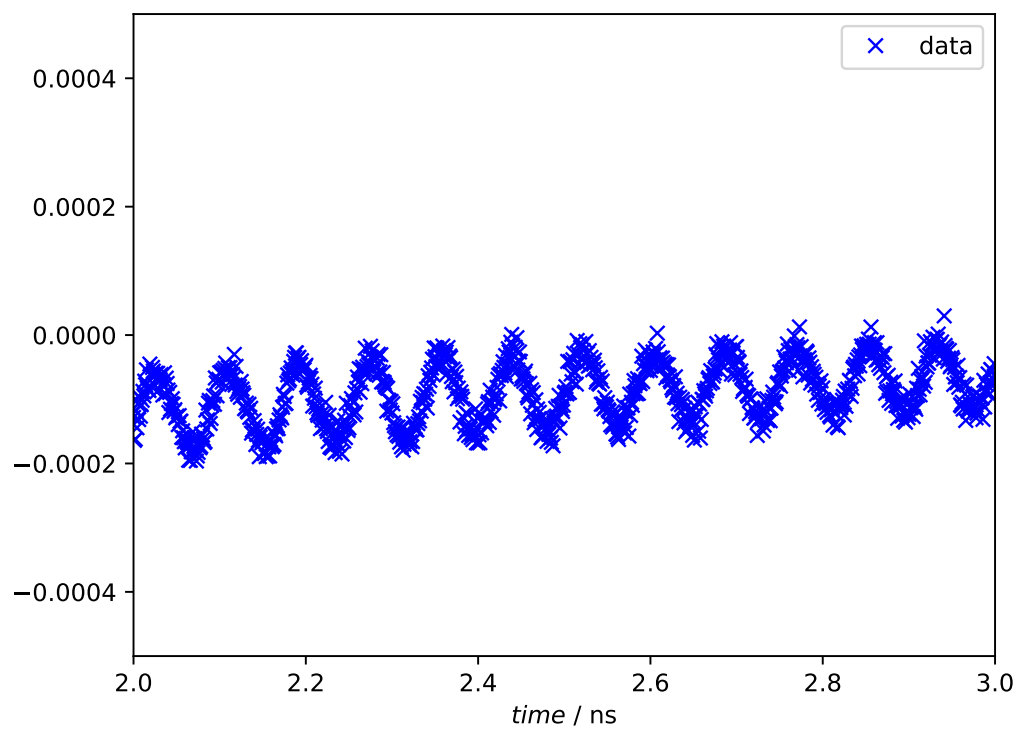


Abbildung 17: Korrigiertes Signal für 50.000 Messwerte pro Datenpunkt

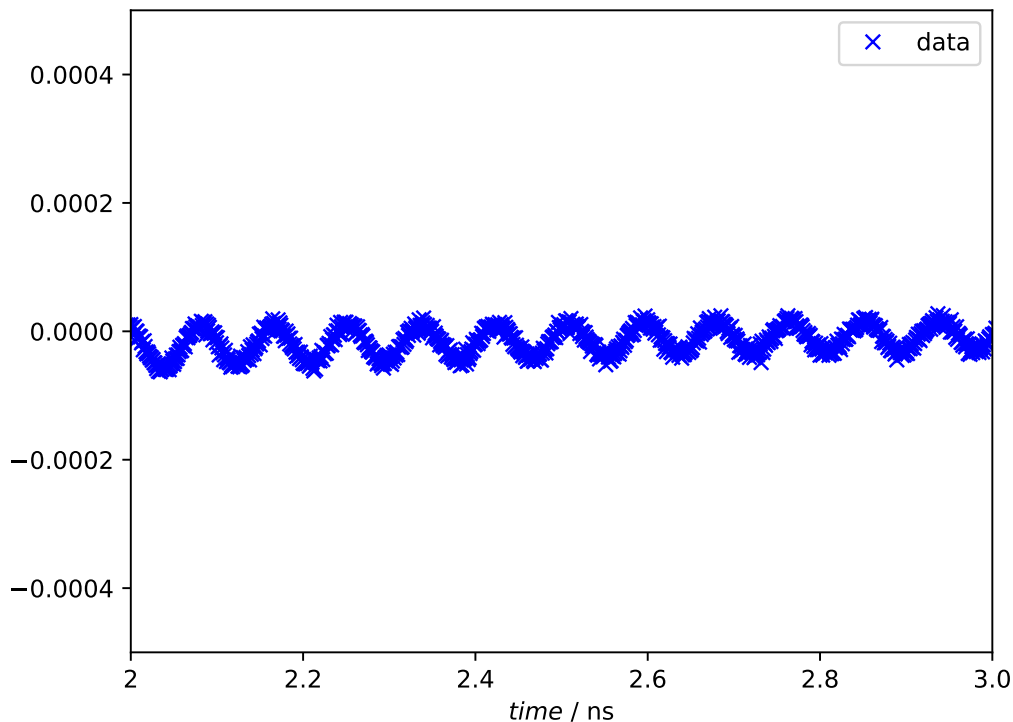


Abbildung 18: Korrigiertes Signal für 50.000 Messwerte pro Datenpunkt nach dem Tiefpass

4 Diskussion

Das drei Temperatur Modell stellt eine gute Näherung für das exponentielle Verhalten des Signals dar. Mit dem entsprechenden Fit lässt sich der exponentielle Verhalten aus den Messungen für die Verschiedenen Gitter gut rausrechnen. In den korrigierten Signalen sind, zumindest in sinnvollen Grenzen, nur noch die Oszillationen zu beobachten. Außerdem ist zu beobachten, dass die Amplitude der Schwingung von der Gittertiefe abhängt. Bei der Messung von flacheren Gittern z.B. 7nm ist eine signifikante Abnahme im Vergleich zum Gitter mit 23nm zu beobachten.

Eine Transformation in Frequenzdomäne zeigt einen Peak im Spektrum der Schwingung für ungefähr 12,5 GHz, was der charakteristischen Frequenz der ausbreitungsfähigen Schwingungen in dem untersuchten Gitter entspricht. Auch im Frequenzspektrum der einzelnen Proben lässt sich eine Korrelation von der Amplitude des Frequenzpeaks bei 12,5 GHz und der Tiefe des dazugehörigen Gitters feststellen. Trägt man die Amplituden gegen die Gittertiefe auf, ergibt sich ein näherungsweise linearer Zusammenhang. Die Messungen weiterer Proben mit unterschiedlichen Gittertiefen hätten dieses Ergebnis noch weiter konkretisieren können.

Abschließend ist noch anzumerken, dass die Anwendung eines Tiefpass Filters mit einem Cut-Off von 16 GHz zu einer sichtbaren Verbesserung der Signalqualität führt.

Literatur

- [1] Haim Abramovich. *Intelligent Materials and Structures*. De Gruyter, 2016.
- [2] Federico Cilento. „Non-equilibrium phase diagram of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Y}_{0.08}\text{Ca}_{0.92}\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ cuprate superconductors revealed by ultrafast optical spectroscopy“. In: (2011).
- [3] Felix Godejohann. *Erzeugung und Messung kohärenter, ultra-schneller Gitterschwingungen in Nanostrukturen mit Hilfe eines Anrege-Abfrage-Experiments. Versuchsanleitung Lehrstuhlversuch E2*. TU Dortmund. Dortmund, Deutschland, 2018.
- [4] Maarten van Kampen. „Ultrafast spin dynamics“. In: *Technische Universiteit Eindhoven* (2003).