

Kapitel 6

Experimentelle Details

In diesem Kapitel werden die Probenherstellung für die in dieser Arbeit verwendeten Filme und der experimentelle Aufbau von den Messmethoden vorgestellt, welche in dieser Arbeit verwendet wurden, namentlich der Aufbau zur Röntgen-Diffraktion und das SQUID-Magnetometer. Desweiteren werden Korrekturfaktoren bei der Intensitätsberechnung bezüglich der Streugeometrie und Auflösung diskutiert.

Für eine detailliertere Beschreibung der *Pulsed Laser Deposition (PLD)* referieren wir die Quellen [78–81]. Weiterführende Informationen zur Synchrotron-Strahlung findet man in den Büchern [82–84], sowie eine Einführung zur Messung der Magnetisierung kann man in [85] nachschlagen. Alle Experimente — bis auf die Messungen der in-plane Bragg-Reflexe des 25 nm Films — wurden mit einem 4-Kreis-Diffraktometer gemessen. Letztere wurden unter streifendem Einfall mit einem 6-Kreis-Diffraktometer im z-Achsen-Modus gemessen. Die Transformationen zwischen Winkel und reziproken Streuvektoren \vec{Q} für 4-Kreis- bzw. 6-Kreis-Diffraktometer findet man in [86,87] und die Korrekturfaktoren bei der Bestimmung der integrierten Intensität in [82].

6.1 Probenherstellung

Die Proben wurden von F. S. Razavi (Brock-University, St. Catherines, Ontario, Kanada) in der Technologie-Abteilung des Max-Planck-Instituts für Festkörperforschung (Stuttgart) mittels der gepulsten Laser-Deposition (PLD) hergestellt:

Als Substrat wurden kommerziell erhältliche SrTiO₃(001)-Einkristalle (Firma CRYSTEC) mit einer Größe von 10x10x1 mm³ verwendet, welche mit der Verneuille-Methode gewachsen wurden. Die Einkristalle haben eine Gitterfehlorientierung kleiner als 0.1° zur Oberfläche.¹ Die beobachteten Mosaikbreiten von einzelnen Kristalliten des Substrates sind kleiner als die erreichte Auflösung von 0.006°. Allerdings zeigte sich, je nach beobachtetem Gebiet des

¹Jedoch gab es auch Abweichungen zu größeren Gitterfehlorientierungen als die nominell angegeben 0.1°.

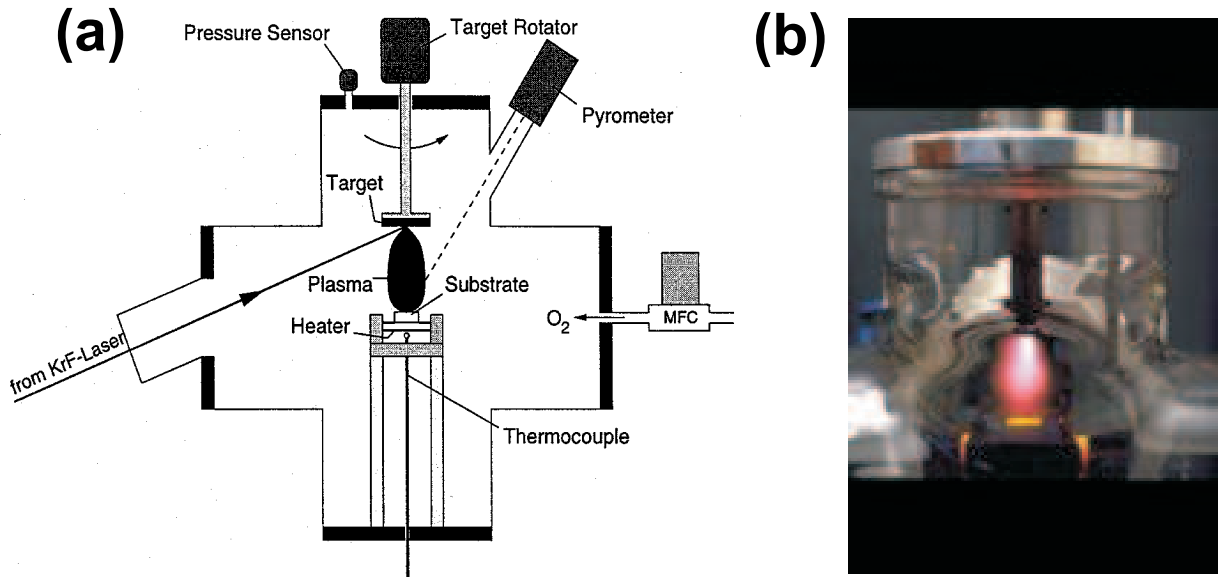


Abbildung 6.1: (a) Schematischer Aufbau und (b) Fotoaufnahme (während des Probenwachstum) der Wachstumskammer der Technologie-Abteilung des MPI für Festkörperforschung, Stuttgart, zur Herstellung der Manganit-Filme [88].

Substrates, eine inhomogen verteilte Streuung der Kristallitorientierung von typischerweise $0.02^\circ - 0.04^\circ$.

Zur Herstellung der Lanthan-Strontium-Manganit-Filme wurde zuerst ein Target der gewünschten, homogen verteilten Elementzusammensetzung (La, Mn, Sr) gesintert, wobei die Targetelemente aus hochreinen ($> 99.99\%$) Oxiden gewonnen werden (MnO_2 , La_2O_3 , SrO). Der Film wurde auf dem Substrat mittels gepulster Laser-Deposition gewachsen. Dabei wurde das Substrat auf 760°C erwärmt. Bei einem Sauerstoff-Druck von $p_{\text{O}_2} = 0.4\text{ mbar}$ wurde ein gepulster Strahl des KrF-Lasers mit der Wiederholungsfrequenz von 5 Hz auf das rotierende Target gelenkt. Das entstehende Plasma aus den Targetelementen deponiert sich auf dem Substrat. Nach der Deposition des Films wurde die Probe eine Stunde lang bei einem Sauerstoff-Partialdruck von $p_{\text{O}_2} = 1\text{ bar}$ und einer Substrattemperatur von 900°C getempert, so dass sich der Manganit-Film epitaktisch und kristallin auf dem Substrat anordnen konnte.

Die Proben wurden in 4 Teile mit jeweils einer $4.5\text{ mm} \times 4.5\text{ mm}$ Fläche gesägt. Davon standen dieser Untersuchung jeweils eins von jeder Filmdicke zur Verfügung. Die restlichen Teilstücke wurden zu anderen Untersuchungen wie Leitfähigkeitsmessung oder TEM-Bilder verwendet, die andere Gruppen bearbeiteten.

Die in dieser Arbeit untersuchten Filme wurden mit drei verschiedenen Lanthan- und Strontium- Konzentrationen hergestellt, welche in Tabelle 6.1 aufgeführt sind. Die unterstöchiometrische Lanthan-Konzentration der ersten fünf Proben führt wegen der La-

Probenname	Zusammensetzung	Filmdicke
LSM_ F3	$\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	240 nm
LSM_ F4	$\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	75 nm
LSM_ F5	$\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	50 nm
LSM_ F6	$\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	25 nm
LSM_ F7	$\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	10 nm
LSM_ F18	$\text{La}_{0.90}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	195 nm
LSM_ F19	$\text{La}_{0.90}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	26 nm
C4_ LSM1	$\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	360 nm
C4_ LSM2	$\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	150 nm
C4_ LSM3	$\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	100 nm
C4_ LSM4	$\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	100 nm
C4_ LSM5	$\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	50 nm
C4_ LSM6	$\text{La}_{0.875}\text{Sr}_{0.125}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$	10 nm

Tabelle 6.1: Liste der in dieser Arbeit verwendeten Proben. Die nominellen Filmdicken (mit Ausnahme der Proben LSM_F18 und LSM_F19) wurden anhand der Zahl der Laser-Pulse beim Filmwachstum bestimmt. Sie unterscheiden sich zum Teil aber deutlich von den Ergebnissen der Röntgendiffraktion. Die Filmdicken der Proben LSM_F18 und LSM_F19 wurden mit Hilfe von TEM-Bildern ermittelt.

dungsneutralität des Films zu einem Mangan mit einem Anteil von 16% im 4-wertigen Zustand. Vergleiche der elektronischen Film-Eigenschaften müssen daher mit einem $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ -Volumenkristall gezogen werden, bei welchem die Strontiumkonzentration bei 16% liegt.² Dagegen können die strukturelle Eigenschaften der unterdotierten Filme nur bedingt mit $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ -Volumenkristallen verglichen werden, da die 2% Leerstellen an der Position der A-Kationen zu anderen Strukturen führen können.

²Allerdings ändert sich die Mn^{4+} -Konzentration gleichfalls mit der Sauerstoff-Konzentration. Letztere kann jedoch nur mit großen Unsicherheiten durch Messmethoden wie z.B. HERDA bestimmt werden.

6.2 Röntgenstremessungen

Der Synchrotronstrahl wird durch seine *Brillianz* und seiner *Helligkeit* (Brightness) charakterisiert. Diese sind folgendermaßen definiert:

$$\begin{aligned} \textit{Brillianz} &= \frac{\textit{Zahl der Photonen pro Sekunde}}{\textit{mrad}^2 \cdot \textit{mm}^2 \cdot \textit{0.1\% spektrale Bandbreite}} \\ \textit{Brightness} &= \frac{\textit{Zahl der Photonen pro Sekunde}}{\textit{mrad}^2 \cdot \textit{mA}^2 \cdot \textit{0.1\% spektrale Bandbreite}} \end{aligned}$$

Die *mA* beziehen sich auf den Elektronen-/Positronenstrom im Speicherring. In den Messdiagrammen in Kapitel 7 wird für die Ordinate meistens die Bezeichnung *Intensität* verwendet, welche ursprünglich als die Anzahl der im Detektor auftreffenden Photonen pro Sekunde und pro Quadratmillimeter definiert ist. Eine korrektere Ordinaten-Bezeichnung bei den Messdiagrammen wäre jedoch die *Detektorzählrate*, welche die Zahl der auf dem Detektor auftreffende Photonen pro Sekunde angibt. Da innerhalb einer Messreihe die Öffnungen der Detektorblenden nicht verändert wurden, kann der Begriff *Intensität* äquivalent zur *Detektorzählrate* verwendet werden, weil Intensität und Zählrate direkt miteinander proportional sind.

Die meisten Röntgenstreuexperimente wurden an der National Synchrotron Light Source (NSLS) am Brookhaven National Laboratory, U.S.A., sowie am Hamburger Synchrotron Labor (HASYLAB), Deutschland, durchgeführt. Jedoch wurden die Proben zuvor an den hauseigenen Steh- bzw. Drehanoden-Röntgenanlagen grob charakterisiert.

Das NSLS ist ein Synchrotron zweiter Generation, welches mit einer Elektronenenergie von 2.8 GeV betrieben wird. Der maximale Ringstrom ist ca. 280 mA, und die mittlere Lebensdauer der Elektronen im Ring beträgt ca. 20 Stunden. Die Röntgenstreu-Experimente wurden an der Beamline X22A gemacht. Das HASYLAB hat ebenfalls ein Synchrotron zweiter Generation, dessen 4.45 GeV Positronenspeicherring DORIS einen Positronenstrom von bis zu 120 mA erreichen kann. Die Experimente wurden an der Wiggler-Beamline W1 durchgeführt.

6.2.1 Röntgenquellen am Max-Planck-Institut in Stuttgart

Die hauseigenen Röntgenanlagen wurden verwendet, um die Proben vor den eigentlichen Messungen grob zu charakterisieren. Es wurden hauptsächlich die Gitterfehlorientierung („Miscut“), die Reflektivität sowie stärkere Film-Bragg-Reflexe gemessen. Jedoch für eine detaillierte Strukturauflösung war der erreichbare Photonenfluss zu klein. Die verwendeten Anlagen waren:

1. „**Großer Vierkreiser**“: Die Röntgenanlage (Siemens) hat eine Cu-Stehnode, welche mit maximal 1.2 kW Leistung betrieben wurde. Sie hat — im Gegensatz zu den anderen

beschriebenen Aufbauten — keinen Monochromator, stattdessen wurde die stärkste Linie aus dem charakteristischen Spektrum, die Cu- K_α - Linie ($\lambda = 1.54 \text{ \AA}$), zum Messen verwendet und die Intensität der nächststärkeren Cu K_β -Linie mit Hilfe einer Ni-Folie um mehrere Größenordnungen abgeschwächt. Zur Verbesserung der Winkelauflösung wird der Primärstrahl vor der Probe mit einem 0.3 mm dünnen und 20 cm langen Rohr kollimiert. Gemessen wurde auf einem großen Huber-4-Kreis-Diffraktometer (mit vollem Euler-Kreis). Mit dieser Anlage wurden Testexperimente wie Messungen von in-plane Bragg-Reflexen unter streifendem Einfall oder temperaturabhängige Messungen von Bragg-Reflexen durchgeführt.³

2. „**Siemens-Anlage**“: Diese Anlage hat eine Cu-Drehanode (Siemens), deren Generatorleistung je nach Kathodeneneinstellung (Normal- oder Feinfokus) maximal entweder 18 kW oder 6 kW erreichen kann. Zum Messen wurde die Cu- $K_{\alpha 1}$ - Strahlung ($\lambda = 1.54055 \text{ \AA}$) verwendet. Im Laufe dieser Arbeit wurde der optische Aufbau dieser Anlage mehrmals verändert: so bestand die Optik anfangs nur aus einem Ge-Monochromator, danach wurde zur Erhöhung des verwendbaren Photonenflusses vor dem Monochromator ein Multilayer aus Ni und C Schichten verwendet (Göbel-Spiegel), der den divergenten Röntgenstrahl parallelisiert. Später wurde der Ge-Monochromator durch einen einfachen Si-Channelcut ersetzt. Das Diffraktometer war ein Huber-6-Kreiser. Es bestand anfangs (bei der ersten Messserie) statt eines vollen Euler-Kreises (χ -Kreis) aus χ - und Φ -Wiegen („Huber-Tisch“), deren Winkel nur $\pm 15^\circ$ um 90° bewegt werden konnten, sowie zusätzlich aus einem weiteren, auf dem Huber-Tisch montierten, vollen Φ -Kreis. Bei späteren Messungen wurde der Huber-Tisch durch einen offenen Euler-Kreis (χ -Kreis) ersetzt (auf dem der Phi-Kreis fest eingebaut war), welchen man um 120° drehen konnte.

Mit der „Siemens-Anlage“ wurden die meisten Proben vor den Synchrotron-Messungen charakterisiert. Es wurden die Intensitätsverteilungen der Film-Bragg-Reflexe, sowie die Reflektivität und Gitterfehlorientierung der meisten Filme gemessen.⁴ Insbesondere die Bragg-Reflexe entlang des spekulären, reziproken Gitterstabs wurden von mehreren Filmen bei verwendetem Göbelspiegel und Ge-Monochromator detailliert gemessen. Von den Messergebnissen wurden in dieser Arbeit von einigen Proben die Intensitätsverteilungen von Film-Bragg-Reflexen in spekulärer Richtung gezeigt.

3. Die **Röntgenanlage der MBE-Gruppe** des MPIs für Festkörperforschung, Stuttgart, wurde von BRUKER aufgebaut. Für die Röntgenstreuung wurde die Cu- $K_{\alpha 1}$ - Strahlung verwendet, welche durch eine Cu-Stehnode mit 1.6 kW Leistung erzeugt wurde.

³Aufgrund der geringen Strahlintensität und der schlechten Winkel- und Energie-Auflösung konnten keine Ergebnisse dieser Experimente verwendet werden und wurden daher alle noch einmal am Synchrotron wiederholt.

⁴Bei den beiden Letzteren wurde in der Strahloptik nur der Göbel-Spiegel, aber nicht der Monochromator verwendet.

Die Optik bestand aus einem Göbel-Spiegel, sowie aus einem doppelten Ge-Channelcut zur Monochromatisierung des Strahls. Gemessen wurde mit einem 4-Kreis-Diffraktometer (mit einem halben χ -Kreis) die Mosaizität und die Gitterfehlorientierung von den SrTiO_3 -Substraten, sowie von einigen LSMO-Filmen.

6.2.2 Synchrotron-Quellen

X22A Beamline am NSLS in Brookhaven

Die Beamline X22A am NSLS ist für kristallographische Untersuchungen von Einkristallen oder dünnen Filmen ausgelegt. Da die Optik der Beamline aus einem Spiegel und nur **einem** Monochromatorkristall besteht, sind Experimente nur bei Photonenenergien um 10 keV möglich. Einen hohen Photonenfluss am Probenort erhält man trotz des Ablenkmagneten aufgrund der vertikalen Fokussierung am Platin-beschichteten Spiegel und der sagitalen Fokussierung des Si(111) - Monochromators. Das Diffraktometer ist aufgebaut in der 4-Kreis-Geometrie und kann kleinere Probenumgebungen wie einen mobilen Kryostaten tragen. Es wurden an dieser Beamline die meisten Strukturuntersuchungen der Manganit-Filme vorgenommen, wie z.B. die temperaturabhängige Strukturuntersuchungen der 25 nm bzw. 75 nm $\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3$ -Filme und des 360 nm $\text{La}_{7/8}\text{Sr}_{1/8}\text{MnO}_3$ -Films.

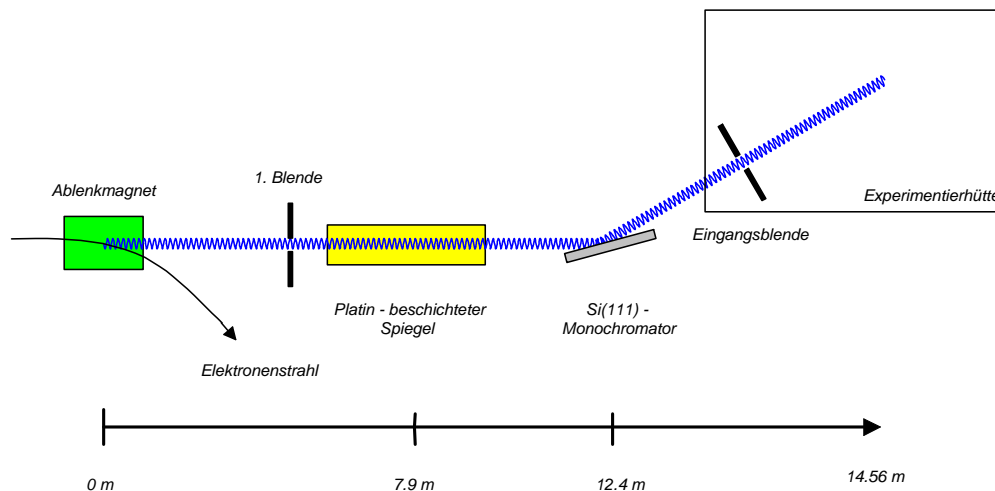


Abbildung 6.2: Schematischer Aufbau der X22A-Beamline am NSLS (Aufsicht)

W1 Beamline am HASYLAB in Hamburg

Die Beamline W1 am HASYLAB ist eine Multizweck-Beamline. Das Diffraktometer kann als 4-Kreiser und als 6-Kreiser verwendet werden und eignet sich für Reflektivitätsmessung und für Streuung unter streifendem Einfall sowohl in vertikaler als auch horizontaler Geometrie sowie zur Messung beliebiger Bragg-Reflexe. Man kann es aber auch zur polarisationsabhängigen Analyse von resonant gestreuten Signalen verwenden. Die Experimente wurden dort bei einer Photonenenergie von 8 keV bzw. 10 keV in vertikaler Streugeometrie

durchgeführt. Daher musste der Einfluss des Polarisationsfaktors bei der Datenanalyse nicht berücksichtigt werden. Für Streuexperimente von in-plane Reflexen ($E=8$ keV) wurde das Diffraktometer zu einem 6-Kreiser umgebaut (dabei war die Probennormale horizontal orientiert). Für die temperaturabhängige Messungen der Röntgenstreureflexe mit out-of-plane \vec{Q} -Komponenten ($E=10$ keV) wurde ein 4-Kreis-Diffraktometer verwendet. An dieser Beamline wurden Messungen unter streifendem Einfall und temperaturabhängige Messungen am 25 nm dünnen $\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3$ -Film, sowie Strukturuntersuchungen bei Raumtemperatur des 75 nm $\text{La}_{0.88}\text{Sr}_{0.10}\text{MnO}_3$ -Films durchgeführt.

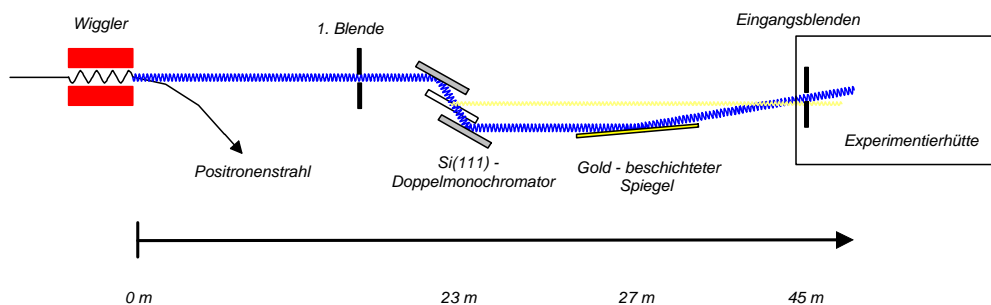


Abbildung 6.3: Schematischer Aufbau der W1-Beamline am HASYLAB (Seitenansicht)

Abbildung 6.3 zeigt den schematischen Aufbau der Beamline W1. Der weiße Synchrotronstrahl vom Wiggler wird mit Hilfe eines Doppelmonochromators aus Si(111)-Einkristallen monochromatisiert. Eine Energieauflösung von $\Delta E/E = 2.2 \cdot 10^{-4}$ wird erreicht. Der monochromatische Strahl wurde über einen Gold-beschichteten toroidalen Spiegel unter flachem Einfallswinkel nach oben reflektiert und dabei fokussiert. Durch den Spiegel werden die höher harmonischen Photonenenergien, welcher der Monochromator ausfiltert, unterdrückt. Dies (wie auch bei der X22A-Beamline) wurde zusätzlich elektronisch unterstützt, indem man mittels Einstellung des Energiefensters am Energiediskriminator die Detektorpulse von Röntgenstrahlung falscher Energie (d.h. Pulshöhen) unterdrückte.

6.2.3 Experimente am Synchrotron

Die Experimente an den Synchrotron-Beschleunigern wurden entweder bei Raumtemperatur oder bei tieferen Temperaturen durchgeführt.

Aufbau für Messungen bei Raumtemperatur

Für die Messungen bei Raumtemperatur genügte es, die Probe auf einem Goniometerkopf (mit Leitsilber) zu befestigen, welcher direkt an den innersten Drehkreis (Φ) montiert werden konnte. Im Gegensatz zu den Experimenten an den Dreh- und Stehanoden-Anlagen wurden an den Synchrotron-Beamlines die Proben mit einer chemisch-inerten Edelgas-Atmosphäre umgeben. Dies war notwendig, weil man während der ersten Experimente beobachtete, dass

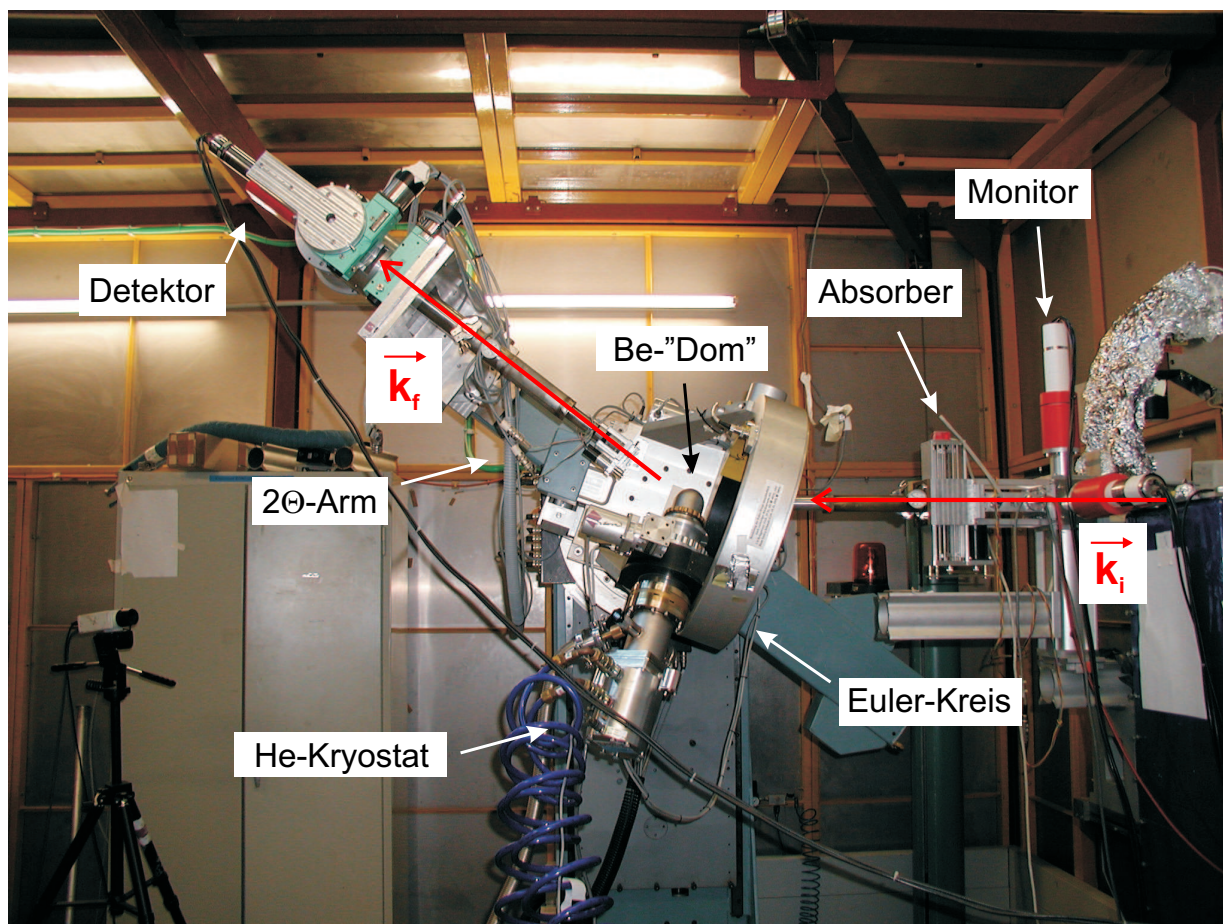


Abbildung 6.4: Fotoaufnahme des experimentellen Aufbaus an der W1-Beamline am HASYLAB

sich bei Messungen an Luft nach längerer Bestrahlung (einige Tage) die Manganit-Filme an den Stellen verfärbten, an denen der Synchrotronstrahl auf die Probe traf. Anzunehmen ist, dass die Synchrotronstrahlung aus der umgebenden Luft die darin enthaltenden Sauerstoff- und Kohlenwasserstoff-Moleküle kurzzeitig ionisiert hatte, so dass die Ionen mit der Proben-Oberfläche reagieren konnten. Verwendet wurden die Elemente Helium für das inerte Gas und Beryllium für dessen Behälter, weil sie aufgrund der geringen Kernladungszahl nur geringfügig streuen und absorbieren, und so das eigentliche Experiment nicht stören.

Aufbau für Messungen bei tiefen Temperaturen

Für Messungen bei tieferen Temperaturen wurde die Probenumgebung ebenfalls zum Schutz der Probenoberfläche vor chemischen Reaktionen entweder mit einer He-Atmosphäre umgeben (am HASYLAB) oder evakuiert (am NSLS). Zur Probenkühlung wurde ein mobiler He-Kryostat (Displex) verwendet, welcher am innersten Drehkreis befestigt werden konnte. Im Detail unterschieden sich zwar die beiden am HASYLAB bzw. NSLS verwendeten Kryostat-Modelle, jedoch ist das Funktionsprinzip bei beiden gleich.

Der mobile He-Kryostat

Beschrieben wird der Kryostat HC-2D-1 von der Firma APD Cryogenics:

Der He-Kryostat besteht aus zwei räumlich voneinander getrennten Komponenten, einem auf das Diffraktometer montierten He-Expander und einem neben dem Diffraktometer stehenden He-Kompressor. Die beiden Komponenten sind mit Helium-dichten Schläuchen miteinander verbunden. Die Kühlung funktioniert gemäß des Gifford-McMahon Kühlzyklus, wobei die He-Gasexpansion in zwei Stufen erfolgt. Theoretisch könnte man mit dieser Methode bis unterhalb der Verflüssigungstemperatur des Heliums von 4.2 K abkühlen, jedoch konnte wegen der Wärmeleitungs- und Abstrahlungsverluste und wegen des verwendeten Materials des Wärmetauschers nur eine minimale Temperatur von 10 K realisiert werden.

Gekühlt wird ein Ende eines langen, schlecht thermisch leitenden Edelstahl-Stabes, welcher sich im Expander befindet. Am Probenende des Stabes befindet sich ein ohmsches Heizelement und ein Thermoelement, mit welchem die Temperatur dieses Endes reguliert werden kann. Mit Hilfe eines gut thermisch leitenden, kleinen Goniometers oder Probenhalters kann die Probe an das erwärmte Stabende montiert werden. Zur Reduzierung der Kühlverluste wird die Umgebung von Stab und Probe evakuiert, wobei zur Vermeidung von Streu- und Absorptionsverlusten bei den Röntgenstreuemessungen in Probennähe ein Beryllium-Dom verwendet wird. Ein zweiter, kleinerer Beryllium-Dom bzw. Beryllium-Zylinder, dessen Inneres bei den Messungen am NSLS ebenfalls evakuiert war, diente der Reduktion von Wärmeabstrahlung. Bei den Messungen am HASYLAB war das Innere des kleineren Be-Zylinders mit Helium-Gas gefüllt, um eine homogene Temperatur auf der Probe zu erreichen.

Die Probentemperatur wurde im PID-Modus zwischen Temperaturen von $T=10$ K und $T=300$ K geregelt. Die damit verbundene thermische Längenausdehnung des Stabes und die daraus folgende Positionsverschiebung der Probenoberfläche aus dem Drehzentrum der Diffraktometer-Kreise konnte mit Hilfe einer manuellen Translation des Expanders bezüglich des Φ -Kreises korrigiert werden.

Bei allen Experimenten war die Oberflächennormale parallel zur Φ -Achse orientiert, wodurch die Einfallrichtung zur Probe für alle Punkte im reziproken Raum (nahezu) frei wählbar blieb. Dies ermöglichte die größtmögliche Erkundung des reziproken Raumes.

6-Kreis-Diffraktometer

Der geometrische Aufbau des 6-Kreis-Diffraktometers in der Nullstellung (d.h. alle Winkel sind gleich Null) ist in Abbildung 6.5 skizziert. Mit diesem Diffraktometer wurden die in-plane Bragg-Reflexe des 25 nm Manganit-Films unter streifendem Einfall gemessen. Da für den 6-Kreis-Modus keine geeignete Software vorhanden war, mussten die in-plane \vec{Q} -

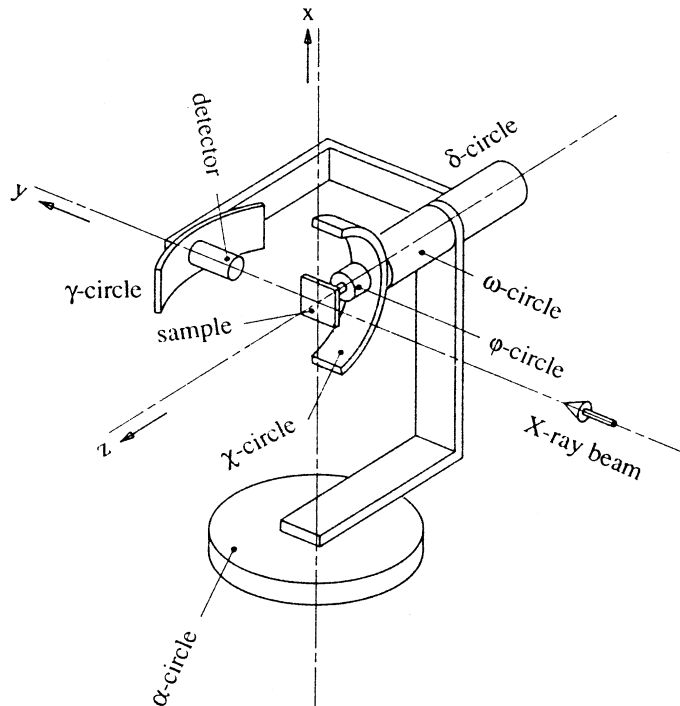


Abbildung 6.5: Schematische Darstellung des 6-Kreis-Diffraktometers [87]

Positionen im 4-Kreis-Modus bestimmt werden. Zusätzlich wurden die (kleinen) Ein- und Ausfallswinkel des Synchrotronstrahls zur Probe mit den Motoren α und γ gesteuert, wobei Letztere symmetrisch gewählt werden mussten, damit die in-plane \vec{Q} -Position sich nicht änderte.

Da bei den in-plane Messungen die Probennormale in horizontaler Richtung (z-Richtung, siehe Abbildung 6.5) lag, war aufgrund der breiten horizontalen Strahldivergenz der Wiggler-Beamline W1 die Auflösung in Richtung der reziproken Gitterstäbe schlecht, während wegen der geringen vertikalen Strahldivergenz in den in-plane Richtungen eine hohe \vec{Q} -Auflösung erreicht werden konnte.

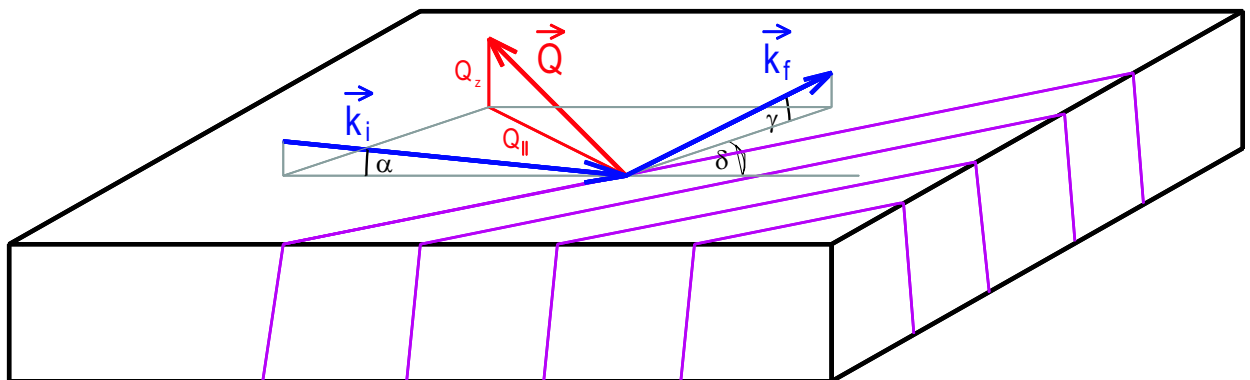


Abbildung 6.6: Darstellung der Streugeometrie unter streifendem Einfall. Gezeigt sind einfallender und gestreuter Röntgenstrahl \vec{k}_i und \vec{k}_f , sowie der Streuvektor \vec{Q} , welcher senkrecht zu den mit violetter Farbe skizzierten Netzebenen steht. Der Einfallswinkel α , der Ausfallswinkel γ und der Winkel δ entsprechen den Kreisen des 6-Kreis-Diffraktometers, falls im z-Achsen-Modus gemessen wird.

4-Kreis-Diffraktometer

Die Geometrie bei den Experimenten mit den 4-Kreis-Diffraktometern erschließt sich ebenfalls aus Abbildung 6.5. Allerdings muss man sich die Kreise γ und α fortdenken. Gemessen wurden verschiedene Bragg-Reflexe der Manganit-Filme, wobei der reziproke Raum im $\text{Phi} = \text{const}$ -Modus des SPEC-Programms von *Certified Scientific Software* erschlossen wurde [86, 89].

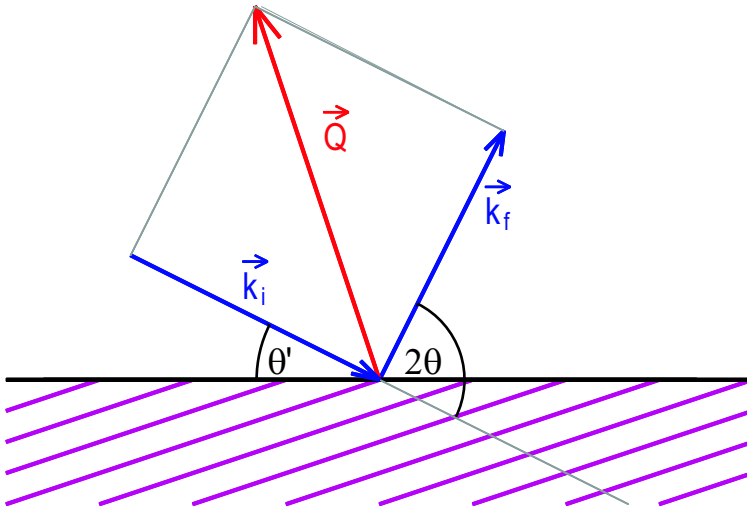


Abbildung 6.7: Darstellung der Streuebene bei einer 4-Kreis-Geometrie ($\chi = 90^\circ$). Gezeigt sind einfallender und gestreuter Röntgenstrahl \vec{k}_i und \vec{k}_f , sowie der Streuvektor \vec{Q} , welcher senkrecht zu den mit violetter Farbe skizzierten Netzebenen steht.

6.2.4 Korrekturfaktoren

Bei der Analyse von Röntgenstreuendaten müssten normalerweise mehrere Korrekturfaktoren mit einbezogen werden, um Intensitäten, welche am gleichen Punkt des reziproken Raums aber mit unterschiedlicher Streugeometrien gemessen werden, miteinander vergleichen zu können. Die üblichen Korrekturfaktoren berücksichtigen:

- (1) die Änderung des Polarisationsgrades der Photonen in Abhängigkeit vom Streuwinkel
- (2) die Änderung der Absorption bzw. Extinktion des Röntgenstrahls pro Eindringtiefe in die Probe in Abhängigkeit vom Einfallswinkel
- (3) die Änderung des Auflösungsvolumens in Abhängigkeit vom Streuwinkel aufgrund der Divergenz des einfallenden und gestreuten Strahls. Im Sonderfall breiter, flacher Intensitätsverteilungen ($\frac{dI}{d|\vec{Q}|}$ klein) wird bei der Berechnung der integrierten Intensität die Änderung des Auflösungsvolumens mit dem Lorentz-Faktor ($L(\theta) \sim \frac{\cos\theta}{\sin\theta}$) korrigiert.
- (4) den Anteil des einfallenden Röntgenstrahls, welcher auf die Probe auftrifft. Diese Korrektur muss nur bei kleinen Einfallswinkeln bzw. kleinen Probendimensionen berücksichtigt werden.

Diese Korrekturfaktoren können in dieser Arbeit vernachlässigt werden, weil das Ziel dieser Arbeit nicht die Bestimmung absoluter Intensitäten ist, sondern die Erklärung beo-

bachteter Intensitätsprofile. Entlang der gemessenen Linienscans und der gemessenen 2-dimensionalen Mappen können die benötigten Korrekturen näherungsweise als ein konstanter Faktor angenommen werden, weil der gemessene Scanbereich im reziproken Raum sehr klein ist ($|\Delta\vec{Q}| \ll |\vec{Q}|$). Die Intensitätsprofile innerhalb der Scans sind durch die Nichtberücksichtigung der Korrekturen nur vernachlässigbar verfälscht.

Beim Vergleich zwischen den verschiedenen Linien- und 2D-Scans sind nur die Intensitätsprofile, aber nicht die Absolutintensitäten von Interesse, weil in den Modellberechnungen die interne Struktur der pseudo-kubischen Filmeinheit zelle nicht berücksichtigt wurde, so dass die berechnete Absolutintensität nicht mit der korrigierten, gemessenen Intensität übereinstimmen kann. Beim Vergleich der Intensitätsprofile werden daher die gemessenen und die berechneten Intensitäten in „*beliebigen Einheiten*“ (*a.u.*) angegeben.

6.3 Messung der magnetischen Momente mit dem SQUID-Magnetometer

Zu den Messungen der Magnetisierung im Rahmen dieser Arbeit wurde das SQUID-Magnetometer QD-MPMS7 von der Firma *Quantum Design* [90] verwendet. Es erlaubt, eine Hochpräzisionsmessung von kleinsten magnetischen Momenten ($\leq 10^{-5} \text{ emu}$, in einer neueren Version für dünne Filme bis zu $\leq 10^{-8} \text{ emu}$) feld- (bis zu $H=7 \text{ T}$) und temperaturabhängig ($T=2 \text{ K} - 400 \text{ K}$) durchzuführen.

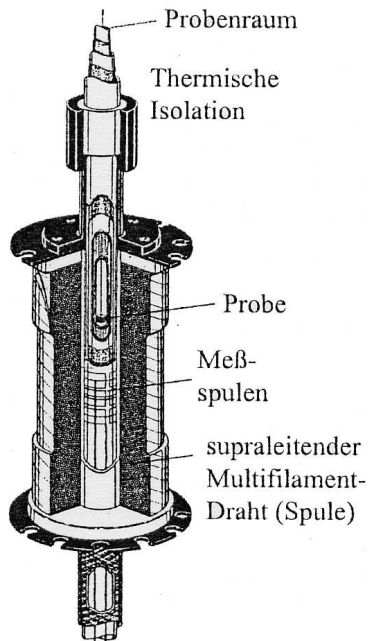


Abbildung 6.8: Schematischer Aufriß der Messanordnung des SQUID-Magnetometers QD-MPMS-7 nach [91]: die konzentrische Anordnung von Probenraum, thermischer Isolation, den Messspulen und der Hochfeldspule (Multifilamentdraht).

Der prinzipielle Aufbau des Magnetometers ist in Abbildung 6.8 dargestellt:

Der Probenraum befindet sich in einem Helium-Kryostaten und ist thermisch-isoliert zu den umgebenden, ebenfalls mit Helium gekühlten Spulen. Die Probe kann elektrisch bis zu einer Temperatur von 400 K geheizt werden. Während der Messung des magnetischen Moments wird die Probe durch die zwei Messspulen bewegt, welche außerhalb des Probenraums, aber in der Mitte der Hochfeld-Magnetspule liegen. Die Änderung des magnetischen Flusses durch das Streufeld der Probe induziert eine Änderung des Spulenstroms.

Das Prinzip der empfindlichen Messung von Magnetfeldern beruht auf dem AC-Josephson-Effekt: Die supraleitenden Messspulen sind durch supraleitende Drähte an das SQUID gekoppelt. Das SQUID ist aus einer Nb-Dünnschichttechnologie aufgebaut und bildet mit den Spulen einen supraleitenden Stromkreis, in dem eine Mikrobrücke den AC-Josephson-Tunnelkontakt darstellt. Die Änderung des Spulenstroms führt zu einer Änderung der Ausgangsspannung und wird in einer komplexen Auswertung in magnetische Momente umgerechnet, die bei korrekter Kalibrierung direkt proportional zum magnetischen Moment der Probe sind.

