

Diss ETH Nr. 12161

Brillouin-spectroscopy on thin films and intermediate valent rare earth compounds

Abhandlung zur Erlangung des Titels
Doktor der Naturwissenschaften
der Eidgenössischen Technischen Hochschule Zürich

vorgelegt von

Urs Schärer

Dipl. Phys. ETH

geboren am 15. Februar 1967

Bürger der Stadt Zürich

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. P. Wachter, Zürich, Referent

Prof. Dr. G. Güntherodt, Aachen, Korreferent

1997

Abstract

Inelastically scattered light of a laser was used to determine the velocity of *surface acoustic waves* (SAW) in metallic thin film structures and doped, intermediate valent SmS compounds. Generally, the light scattering on acoustic phonons is called *Brillouin spectroscopy*.

Surface acoustic waves are a superposition of plane, acoustic waves, which propagate along a surface plane and are exponentially damped perpendicular to it. In single crystals the velocity depends on the orientation of the plane and the direction of propagation. The determination of the SAW velocities in different directions gives the so called *angular dispersion*. In thin film structures there is additionally also a dependence on the product of the wave vector parallel to the surface (q) and the thickness of the film (d). The measurement of the velocity depending on qd is called *qd-dispersion*. From both sorts of dispersion all elastic constants of a sample (for a cubic symmetry C_{11} , C_{12} and C_{44}) can be calculated using an appropriate model function.

For thin film structures it is possible to get information about the quality of the layers. All films described in this work were grown on a (111) oriented silicon substrate. The elastic constants of the following samples have been determined:

- 3.5 μm thick PbSe film. We found a drastic difference in the elastic constants of the thin PbSe-film and of a single crystal of PbSe.
- CoSi_2 films with two different crystallographic structures, one was a CaF_2 and the other a defect CsCl structure. While the well known CaF_2 phase was elastically anisotropic, the new defect CsCl phase behaved isotropically.
- CoSi_2/Fe superlattice. The elastic constants of these structures depend strongly on the exact parameters of the layer system.

The elastic constants of intermediate valent single crystals allow to conclude on the electronic structure of the samples. One evidence of intermediate valence is a negative value of Poisson's ratio, which means that the crystal is extraordinarily

Abstract

instable and that its volume collapses already, when an uniaxial pressure is applied. We measured doped SmS compounds, in which some of the Sm ions have been substituted by La or Tm ions. We found a clear connection between the doping concentration, the intermediate valence and the elastic behavior of the samples.

Kurzfassung

Inelastisch gestreutes Licht eines Lasers wurde benutzt, um die Geschwindigkeit von *Oberflächenschallwellen* in metallischen Dünnschicht-Strukturen und dotierten zwischenvalenten SmS-Verbindungen zu bestimmen. Die Lichtstreuung an akustischen Phononen wird *Brillouin-Streuung* genannt.

Oberflächenschallwellen sind eine Superposition von ebenen, akustischen Wellen, welche an einer Oberfläche entlanglaufen und senkrecht dazu exponentiell gedämpft sind. In Einkristallen ist die Geschwindigkeit der Oberflächenschallwellen abhängig von der Orientierung der Oberfläche und der Ausbreitungsrichtung. Werden die Schallgeschwindigkeiten in verschiedenen Richtungen bestimmt, nennt man das die *Winkeldispersion*. In Dünnschicht-Strukturen kommt noch eine Abhängigkeit vom Produkt des Wellenvektors parallel zur Oberfläche (q) und der Schichtdicke (d) dazu. Die Messungen der Geschwindigkeit in Abhängigkeit von diesem Produkt qd nennt man *qd-Dispersion*.

Aus beiden Dispersionsarten können mit einem geeigneten Modell alle elastischen Konstanten einer Probe (im kubischen Fall C_{11} , C_{12} und C_{44}) berechnet werden. In den Dünnschicht-Strukturen können damit Aussagen über die Qualität der Schichten gemacht werden. Alle in dieser Arbeit untersuchten Schichten wurden epitaktisch auf (111)-orientiertes Silizium gewachsen. An folgenden Schichten wurden die elastischen Konstanten bestimmt:

- 3.5 μm dicke PbSe-Schicht. Hier zeigte sich ein drastischer Unterschied in den elastischen Konstanten der Schichtstruktur und eines Einkristalls.
- CoSi_2 Schichten in zwei verschiedenen strukturellen Formen, CaF_2 and CsCl mit Defekten. Während die Schichten der bekannter CaF_2 -Form elastisch anisotrop waren, zeigten die Proben der neuen defekten CsCl -Phase ein isotropes Verhalten.
- CoSi_2/Fe Supergitter. Die elastischen Konstanten dieser Proben hängen sehr stark von den exakten Schichtparametern ab.

In zwischervalenten Einkristallen können von den elastischen Konstanten Schlüsse auf die elektronische Struktur der Proben gezogen werden. Ein Beweis für Zwischenvalenz ist ein negatives Poisson Verhältnis, das besagt, dass der Kristall ausserordentlich weich ist und dass dessen Volumen schon bei einem uniaxial angelegten Druck in allen Richtungen kollabiert. Wir haben SmS Verbindungen untersucht, bei denen ein Teil der Sm-Ionen durch La- oder Tm-Ionen ersetzt wurde. Wir konnten einen klaren Zusammenhang zwischen der Stärke der Dotierung, der Zwischenvalenz und dem elastischen Verhalten aufzeigen.