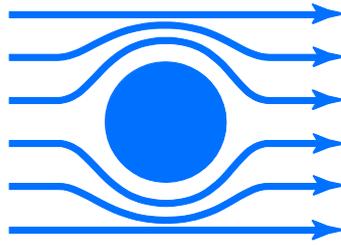


Physik-Department  
Lehrstuhl E23



Walther-Meißner-Institut  
für Tieftemperaturforschung

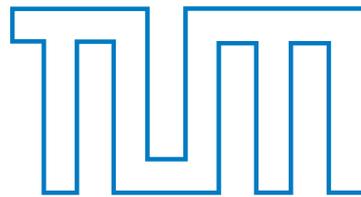


Bayerische Akademie  
der Wissenschaften

# Untersuchung des Spindichtewellen-Übergangs in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$

Diplomarbeit von  
Andreas Baum

Betreuer: Dr. Rudi Hackl  
Garching, Februar 2012



TECHNISCHE UNIVERSITÄT MÜNCHEN



# Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>1</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>3</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>4</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>2 Die Eisen-Pniktide</b>	<b>7</b>
2.1 Geschichtliches . . . . .	7
2.2 Kristallstruktur . . . . .	7
2.3 Phononen . . . . .	7
2.4 Phasendiagramm . . . . .	9
2.5 Spin-Dichte-Welle . . . . .	10
2.6 Elektronische Eigenschaften . . . . .	11
<b>3 Raman-Streuung</b>	<b>13</b>
3.1 Geschichte und Grundlagen . . . . .	13
3.2 Elektronische Raman-Streuung . . . . .	13
3.2.1 Der Raman-Vertex . . . . .	15
3.2.2 Symmetrie und Auswahlregeln . . . . .	16
<b>4 Experimenteller Aufbau</b>	<b>19</b>
4.1 Aufbau zur Raman-Spektroskopie . . . . .	19
4.1.1 Labor-Koordinatensystem . . . . .	19
4.1.2 Strahlengang . . . . .	19
4.1.3 Die neue Spektrometersteuerung . . . . .	21
4.2 Proben-Halteklammer für uniaxialen Druck . . . . .	24
4.2.1 Konstruktion . . . . .	24
4.2.2 Abschätzung des erreichbaren Druckes . . . . .	24
4.3 Bestimmung der Probenorientierung . . . . .	25
4.4 Einfluss der Spot-Position auf der Probe . . . . .	28
<b>5 Experimentelle Ergebnisse</b>	<b>31</b>
5.1 Verschiebung des Phasenübergangs . . . . .	31
5.1.1 Messprinzip . . . . .	31
5.1.2 Bestimmung der Aufheizung durch den Laser . . . . .	33
5.1.3 Verschiebung der Phasenübergänge . . . . .	33
5.2 Auswirkung des Drucks auf die Fluktuationen . . . . .	33
5.3 Elektronische Anisotropie bei $T = 50\text{K}$ . . . . .	35
5.4 Intensitätsanisotropie des $A_g$ -Phonons . . . . .	40
5.5 Aufspaltung des $E_g$ -Phonons . . . . .	41

<b>6</b>	<b>Diskussion</b>	<b>43</b>
6.1	Auswirkungen des uniaxialen Drucks auf den magneto-strukturellen Phasenübergang . . . . .	43
6.1.1	Aufspaltung und Verschiebung der Phasenübergänge . . . . .	43
6.1.2	Klassifikation der Phasenübergänge . . . . .	44
6.2	Auswirkung des uniaxialen Drucks auf die Fluktuationen . . . . .	46
6.3	Elektronische Anisotropie bei $T = 50\text{K}$ . . . . .	47
6.4	Anisotropie und Temperaturabhängigkeit des $A_g$ -Phonons . . . . .	49
6.5	Verschiebung des $E_g$ -Phonons . . . . .	51
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>55</b>
<b>A</b>	<b>Blockschaltbild der Spektrometersteuerung</b>	<b>57</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>59</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Kristallstruktur von $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	8
2.2	Raman-aktive Phononen in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	8
2.3	Phasendiagramm von $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ . . . . .	9
2.4	Magnetische Ordnung in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	10
2.5	Fermi-Fläche von $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	11
2.6	Fermi-Fläche von $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	12
3.1	Energieschema des Stokes und Anti-Stokes-Prozess . . . . .	14
3.2	Raman-Vertizes in den Eisen-Arseniden: Projektion verschiedener Teile der Brillouin-Zone . . . . .	16
3.3	Auswahlregeln in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	17
4.1	Strahlengang im Labor Raman I . . . . .	20
4.2	Front- und Rückansicht der neuen Spektrometersteuerung . . . . .	22
4.3	Innenansicht der neuen Spektrometersteuerung . . . . .	23
4.4	Klammer zum in-situ Entzwilligen von Ba-122 Proben . . . . .	25
4.5	Bestimmung der Orientierung der $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ -Probe . . . . .	27
4.6	Wahl der Spot-Position . . . . .	29
4.7	Direkte Aufnahme des Spots auf der CCD mit und ohne parasitären Spot . . . . .	29
5.1	$B_{1g}$ -Spektren ohne externen Druck . . . . .	32
5.2	Laserheizung . . . . .	32
5.3	Phasenübergänge . . . . .	34
5.4	Raman-Spektren an $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ bei $T = 140$ K ohne und mit uniaxialem Druck . . . . .	35
5.5	Raman-Spektren an $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ohne Druck bei $T = 50$ K . . . . .	36
5.6	Raman-Spektren an $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ unter uniaxialem Druck bei $T = 50$ K . . . . .	37
5.7	Spektren in $B_{1g}$ -Symmetrie der Probe mit und ohne externen uniaxialen Druck . . . . .	39
5.8	Raman-Spektren von $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ unter uniaxialem Druck $T = 140$ K . . . . .	39
5.9	$A_g$ -Phonon - Resonanzprüfung . . . . .	40
5.10	$A_g$ -Phonon - Temperaturabhängigkeit . . . . .	41
5.11	Aufspaltung des $E_g$ -Phonons . . . . .	42
6.1	Phasenübergänge in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ mit und ohne uniaxialen Druck . . . . .	44
6.2	Fit der ermittelten Phasenübergänge . . . . .	45
6.3	Fluktuationen mit und ohne Druck . . . . .	47
6.4	Raman-Spektren in xx und an $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ohne Druck bei $T = 59$ K . . . . .	49
6.5	$A_g$ -Phonon bei $T = 138$ K, yy-Polarisation unter uniaxialem Druck . . . . .	50
6.6	Temperaturabhängigkeit des $A_g$ -Phonons bei uniaxialem Druck . . . . .	51
6.7	Anisotropie des $A_g$ -Phonons bei $T = 63$ K mit blauem und grünem Laserlicht . . . . .	52
6.8	Verschiebung des $E_g$ -Phonons . . . . .	53

A.1	Blockschaltbild der Spektrometersteuerung . . . . .	57
-----	---	----

## Tabellenverzeichnis

2.1	Energie und Symmetrie Raman-aktiver Phononen in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	9
5.1	Beziehung zwischen Polarisationen und projizierten Symmetrien für tetragonales $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . . . . .	38
6.1	Anisotropie des $A_g$ -Phonons bei verschiedenen Laser-Wellenlängen . . . . .	50

# 1. Einleitung

Seit ihrer Entdeckung 1911 durch Heike Kammerlingh Onnes [1] hat sich die Supraleitung als beständige Quelle neuer, überraschender Entdeckungen erwiesen. Mit der Entwicklung einer mikroskopischen Theorie 1957 durch J. Bardeen, L.N. Cooper und J.R. Schrieffer [2], nach ihren Entwicklern BCS-Theorie genannt, konnte man vermuten, dass die Supraleitung verstanden sei. Die Entdeckung der Kupratsupraleiter 1986 durch J.G. Bednorz und K.A. Müller [3], mit den bislang immer noch höchsten erreichten Sprungtemperaturen von bis zu 150 K [4], zeigte hingegen, dass das Forschungsgebiet Supraleitung noch keineswegs erschöpft ist.

Die Entdeckung von Supraleitung in den Eisen-Pniktiden 2006 [5] hat, ähnlich wie 20 Jahre früher bei den Kupraten, zu intensiver Forschungstätigkeit geführt. Dennoch ist die zur Supraleitung führende Wechselwirkung sowohl in den Kupraten als auch den Eisen-Pniktiden noch unbekannt.

Allen diesen Supraleitern gemein ist ein reichhaltiges Phasendiagramm. Die Supraleitung stellt hierbei nur eines von mehreren konkurrierenden Ordnungsphänomenen dar, die sich in ein- und demselben Material in Abhängigkeit eines Kontrollparameters wie Druck, Dotierung oder Magnetfeld einstellen. Somit ist es für ein tieferes Verständnis der supraleitenden Eigenschaften in diesen Materialien unabdingbar, auch die mit der Supraleitung konkurrierenden Phasen genauer zu untersuchen.

Bei der Untersuchung derartiger Materialien hat sich die Raman-Spektroskopie als hervorragend geeignete Methode erwiesen, mit der man Gitterschwingungen, magnetische, orbitale und elektronische Anregungen und deren Wechselwirkungen beobachten kann. Die Möglichkeit, verschiedene Bereiche der Brillouin-Zone getrennt beobachten zu können, hat sich als Vorteil der elektronischen Raman-Streuung (ERS) gegenüber der optischen (IR) Spektroskopie herausgestellt [6].

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde mit Hilfe der Raman-Spektroskopie die zu den Eisen-Pniktiden zählende Verbindung  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  mit speziellem Blick auf den Übergang in die magnetisch geordnete und strukturell verzerrte Phase untersucht.

Diese Arbeit ist wie folgt aufgebaut: In Kapitel 2 werden die wichtigsten Eigenschaften der Eisen-Arsenide erläutert. Kapitel 3 stellt die Grundlagen der Raman-Spektroskopie vor. Der verwendete Messaufbau und die neugebaute Spektrometersteuerung werden in Kapitel 4 näher beschrieben. Die Ergebnisse der durchgeführten Messungen sind in Kapitel 5 gezeigt und werden in Kapitel 6 diskutiert.



## 2. Die Eisen-Pniktide

Die Eisen-Arsenide bilden zusammen mit den Eisen-Seleniden und Eisen-Oxypniktiden die Eisen-basierten Supraleiter als neueste Klasse von Supraleitern mit hohen Sprungtemperaturen. Dieses Kapitel soll einen Überblick über die wichtigsten Eigenschaften dieser Materialklasse mit speziellem Fokus auf das in dieser Arbeit untersuchte  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  (Ba-122) geben.

### 2.1. Geschichtliches

Supraleitung in eisenhaltigen Verbindungen wurde 1995 von Zimmer *et al.* in  $\text{LaFePO}$  entdeckt und erstmals 2006 von Kamihara *et al.* publiziert [5]. Starkes wissenschaftliches Interesse weckte die Materialgruppe mit der Entdeckung von Supraleitung mit hohen Sprungtemperaturen 2008 in  $\text{LaOFeAs}$  ( $T_c = 26$  K) [7] und  $\text{BaK}_{0.4}\text{Fe}_{0.6}\text{As}_2$  ( $T_c = 38$  K) [8]. Die bisher höchste in Eisen-Pniktiden erreichte Sprungtemperatur beträgt  $T_c = 56$  K in  $\text{Sr}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{FeAs}$  [9].

Die zur Supraleitung in Eisen-Pniktiden führende Wechselwirkung ist noch unklar. Berechnungen haben ergeben, dass die Elektron-Phonon-Wechselwirkung nicht ausreicht um die hohen Sprungtemperaturen zu erklären [10].

Insbesondere vom Vergleich der Eisen-Pniktide mit den Kupraten erhofft man sich weitergehende Aufschlüsse über die Natur der Supraleitung in diesen Systemen.

### 2.2. Kristallstruktur

Abbildung 2.1 zeigt die kristallographische Einheitszelle des in dieser Arbeit untersuchten  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . Deutlich erkennbar ist der Aufbau aus FeAs-Lagen, die durch Barium-Lagen getrennt sind. Dieser alternierende Aufbau aus FeAs-Schichten und Zwischenschichten ist allen Eisen-Pniktiden gemein (vgl. [11] und [12] für eine Übersicht).

Bei Raumtemperatur besteht  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  aus der geeigneten tetragonalen Einheitszelle mit  $a = b = 3,9625$  nm und  $c = 13,0168$  nm [13]. Unterhalb einer Übergangstemperatur  $T_{\text{TO}}$  erfährt das System eine schwache orthorhombische Verzerrung längs der durch die Eisen-Atome gebildeten Achsen. Dabei verzwillingt das System stark [14].

Die für die Raman-Spektroskopie relevante elektronische Einheitszelle entspricht der 1-Eisen-Einheitszelle und ist deshalb um  $45^\circ$  zur kristallographischen Einheitszelle gedreht.

### 2.3. Phononen

Für die Untersuchung der Eisen-Arsenide mittels Raman-Spektroskopie sind nur die vier Raman-aktiven Phononen von Interesse, die in Abbildung 2.2 gezeigt und in Tabelle 2.1 zusammengefasst sind. Die angegebene Symmetrie bezieht sich dabei auf die kristallographische Einheitszelle. Die bei der Raman-Spektroskopie betrachtete elektronische Einheitszelle ist dazu um  $45^\circ$  gedreht, wodurch die Symmetrien  $B_{1g}$  und  $B_{2g}$  vertauscht werden. Die Beobachtung der Phononen in  $E_g$ -Symmetrie erfordert eine Projektion des einfallenden Lichts auf die  $c$ -Achse ( $z$ -Richtung im Laborsystem), was bei der hier verwendeten Messgeometrie bei einfallendem Licht

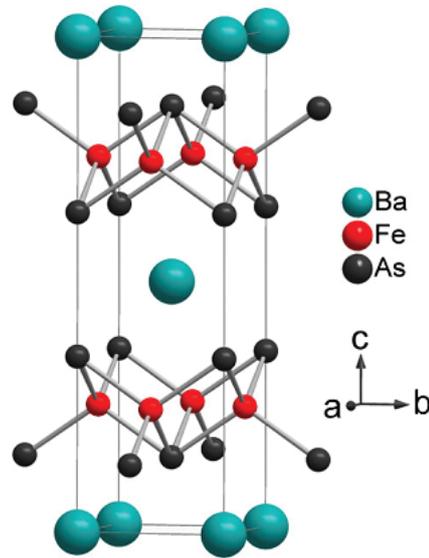


Abbildung 2.1. Kristallstruktur von BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>. Die Korrespondenz zwischen Farbe und Atomsorte sowie die Orientierung der Kristallachsen bei Raumtemperatur (keine magnetische Ordnung) sind neben der Einheitszelle gezeigt. Abb. aus [8] übernommen.

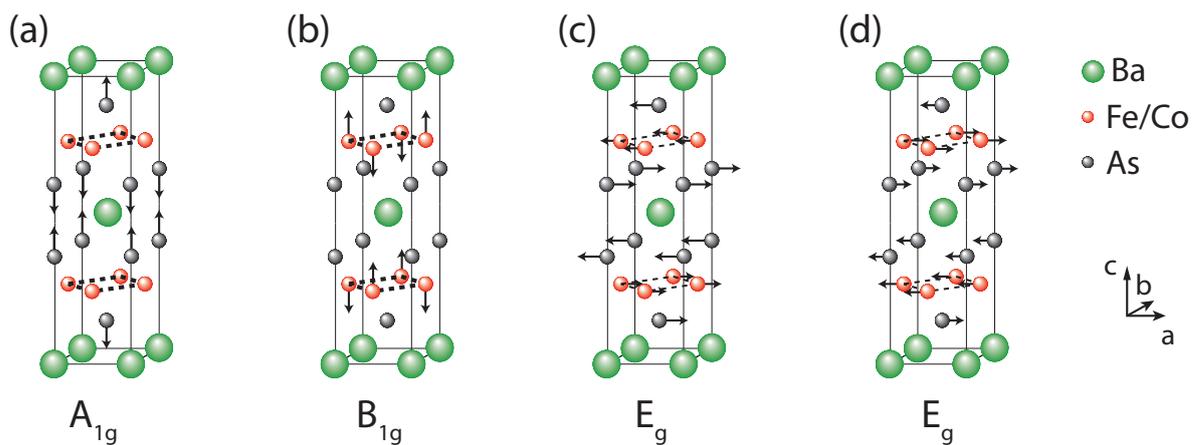


Abbildung 2.2. In Raman-Spektroskopie sichtbare Phononen [15]. Die Pfeile zeigen die jeweilige Schwingungsrichtung der beteiligten Atome.

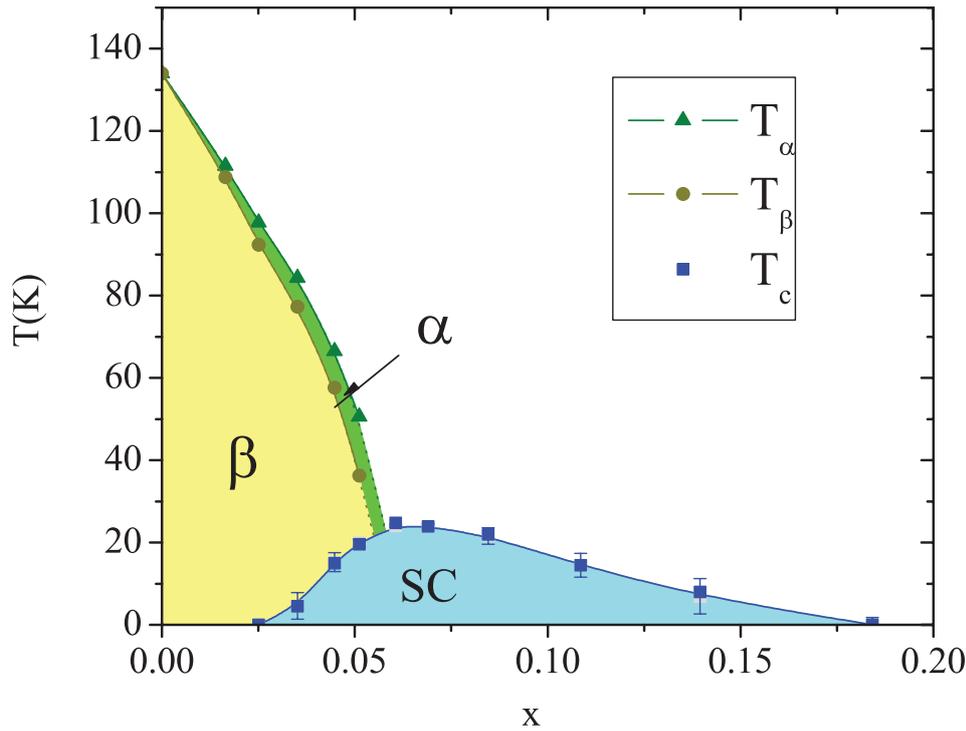


Abbildung 2.3. Phasendiagramm von  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ , aus [16]. Dabei bezeichnet  $T_\alpha = T_{\text{TO}}$  die Temperatur des tetragonal-orthorhombischen Übergangs,  $T_\beta = T_{\text{SDW}}$  die Temperatur des paramagnetisch-antiferromagnetischen Übergangs sowie  $T_c$  die Sprungtemperatur der Supraleitung.

mit Polarisationsanteilen in  $y$ -Richtung der Fall ist. Für die Polarisierungen  $y_x$  und  $y_y$  erwartet man hierbei gleiche Anteile des auf die  $z$ -Achse projizierten Lichts sowie gleiche Energien der  $E_g$ -Phononen, da das Phonon zwei am  $\Gamma$ -Punkt entartete Zweige besitzt.

Schwingende Atome	Symmetrie	Energie ( $\text{cm}^{-1}$ )
As	$A_{1g}$	180
Fe	$B_{1g}$	215
Fe, As	$E_g$	130
Fe, As	$E_g$	270

Tabelle 2.1. Energie und Symmetrie Raman-aktiver Phononen in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ .

## 2.4. Phasendiagramm

Wie die meisten Systeme mit starken Korrelationen zeigen auch die Eisen-Arsenid-Verbindungen ein reichhaltiges Phasendiagramm mit mehreren konkurrierenden Phasen. Als Kontrollparameter stehen dabei die Dotierung mit Elektronen (Co-Substitution, [17]) oder Löchern (K-Substitution, [8]) sowie hydrostatischer Druck [18] zur Verfügung. Exemplarisch ist in Abbildung 2.3 das Phasendiagramm für Elektron-dotiertes  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  gezeigt. Bei Raumtemperatur sind die FeAs-Verbindungen schlechte Metalle (poor metal). Undotierte und schwach dotierte Verbindungen ( $x < 0,061$ ) vollziehen bei Temperatur  $T_{\text{TO}}$  einen Übergang vom tetragonalen in das orthorhombische Kristallsystem, wobei die orthorhombische Verzerrung längs der Verbindungsachsen der Eisen-Atome erfolgt. Der Übergang in die magnetisch geordnete

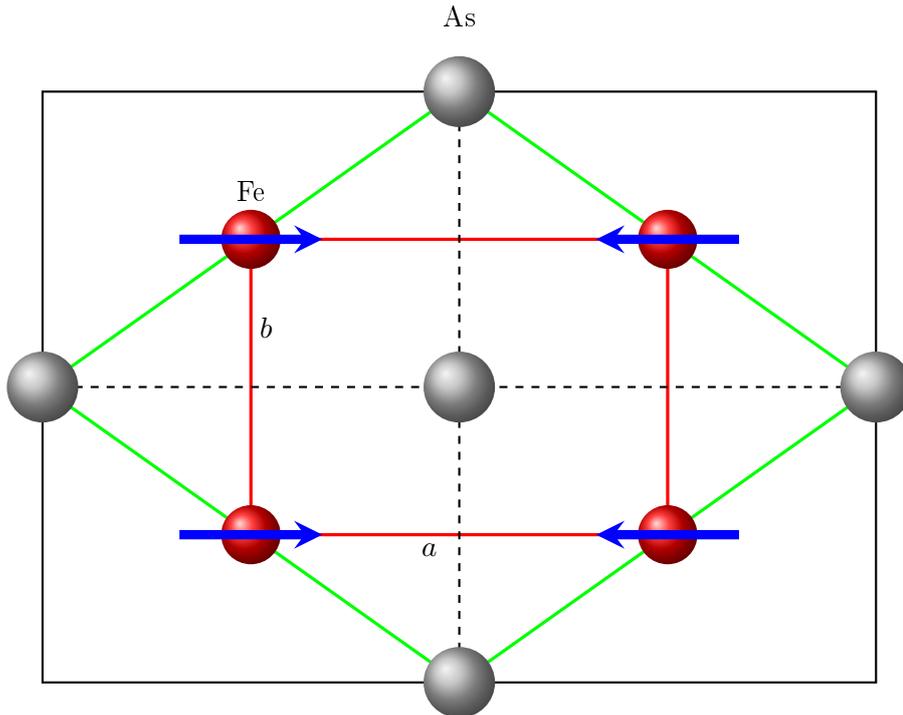


Abbildung 2.4. Magnetische Ordnung in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  in der orthorhombisch verzerren SDW-Phase bei Blick in Richtung der  $c$ -Achse. Das rote Quadrat zeigt die für die elektronische Struktur relevante Einheitszelle. Grün gezeichnet ist die (verzerre) tetragonale Einheitszelle. Die schwarze orthorhombische Zelle umfasst auch die Spinorientierung in der SDW-Phase. In dieser (schwarzen) Zelle sind die Spins (blau gezeichnet) entlang der kürzeren  $b$ -Achse ferromagnetisch, entlang der  $a$ -Achse antiferromagnetisch geordnet. Die äußeren und das innere As-Atom liegen in zwei verschiedenen Schichten (vgl. Abb. 2.1) Die orthorhombische Verzerrung ist zur Illustration überproportional stark dargestellt.

Spin-Dichte-Welle (SDW) erfolgt bei Temperatur  $T_{\text{SDW}}$ , die für dotierte Systeme unterhalb von  $T_{\text{TO}}$  liegt. Für undotiertes  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  wird von einem kombinierten Phasenübergang bei  $T_{\text{S}} = T_{\text{TO}} = T_{\text{SDW}}$  ausgegangen, wobei neuere Messungen auf eine geringfügige Trennung der Übergänge von 0,75 K mit  $T_{\text{TO}} > T_{\text{SDW}}$  hinweisen [19]. Mit steigender Dotierung werden beide Übergänge stärker getrennt und zu niedrigeren Temperaturen verschoben.

Bei einer Co-Dotierung  $x > 0,025$  tritt Supraleitung auf und erreicht bei der als optimal bezeichneten Dotierung  $x = 0,061$  die maximale Sprungtemperatur  $T_{\text{c}}^{\text{max}} = 24$  K. Mit weiter steigender Dotierung wird die Supraleitung wieder unterdrückt und verschwindet bei Dotierungen  $x > 0,18$ . Unterhalb der optimalen Dotierung koexistieren SDW und Supraleitung.

Der Typ der beiden Phasenübergänge ist noch nicht abschließend geklärt. Bisherige Messungen lassen auf zwei getrennte Übergänge zweiter Ordnung in dotiertem  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  und einen gemeinsamen Übergang erster Ordnung in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  schließen. Letzterem widerspricht allerdings die Beobachtung von Fluktationen [20], die bei  $T_{\text{S}}$  verschwinden und somit auf einen Phasenübergang zweiter Ordnung hinweisen.

## 2.5. Spin-Dichte-Welle

Als Spin-Dichte-Welle (SDW) bezeichnet man eine statische, räumliche Variation der Spindichte. In den unterdotierten Eisen-Arseniden bildet sich eine SDW unterhalb einer Übergangstemperatur  $T_{\text{SDW}}$  aus. Unterhalb von  $T_{\text{SDW}}$  liegt im Material eine magnetische Ordnung vor,

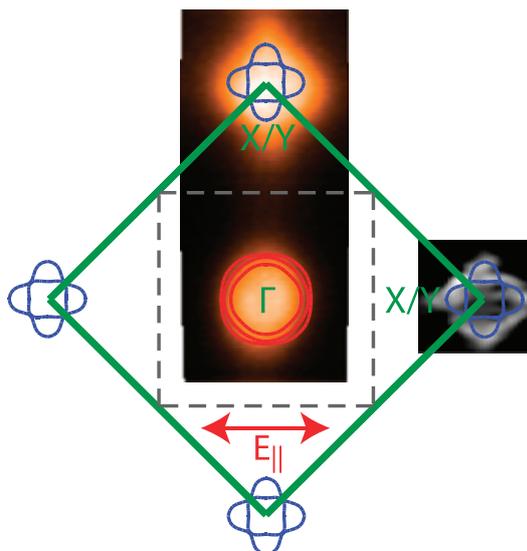


Abbildung 2.5. Fermi-Fläche von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  in der tetragonalen metallischen Phase, ermittelt durch ARPES-Messungen [23]. Grün eingezeichnet ist die 1-Eisen-Brillouin-Zone. Grau gestrichelt gezeigt ist die Brillouin-Zone der SDW-Phase. Die rot eingezeichneten Bänder um den  $\Gamma$ -Punkt sind Loch-Bänder, die blau gezeichneten Bänder bei  $X/Y$  Elektronbänder.

wobei, wie in Abbildung 2.4 gezeigt, entlang der kürzeren  $b$ -Achse eine ferromagnetische und entlang der  $a$ -Achse eine antiferromagnetische Ordnung der Spins vorliegt. Ob der kombinierte magneto-strukturelle Phasenübergang in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  durch die magnetische Ordnung induziert wird oder diese der strukturellen Verzerrung folgt, wie von  $T_{\text{SDW}} < T_{\text{TO}}$  suggeriert, ist ein offenes Problem. Falls die strukturelle Ordnung der magnetischen voraussetzt, muss die Frage nach der Ursache des strukturellen Phasenübergangs möglicherweise separat beantwortet werden. In der SDW-Phase konnte in durch uniaxialen Druck entzwilligten  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ -Kristallen eine klare  $a$ - $b$ -Anisotropie sowohl bei Transport-Messungen [21] als auch in der Reflektivität [22] nachgewiesen werden, deren genaue Ursache Gegenstand aktueller Forschung ist.

## 2.6. Elektronische Eigenschaften

Der Aufbau der Eisen-Pniktide aus annähernd zweidimensionalen Schichten (vgl. Kap. 2.2) legt einen Vergleich mit den zweidimensionalen Kupraten nahe. Es zeigt sich, dass die elektronischen Eigenschaften der Eisen-Pniktide von quasi-zweidimensional in den Fe-oxypniktiden [24] bis praktisch dreidimensional in den Ba122-Verbindungen reicht [25] und somit nicht ohne weiteres mit den Kuprat-Supraleitern vergleichbar ist. Insbesondere diese weite Variation der Dimensionalität macht die Eisen-Pniktide zu interessanten Systemen für die Suche nach der Wechselwirkung, die die Hochtemperatur-Supraleitung vermittelt.

In der orthorhombisch verzerrten, magnetisch geordneten Phase ( $\beta$  in Abb. 2.3) konnte durch Transportmessungen an undotiertem  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  und Co-dotiertem  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  eine deutliche Anisotropie entlang der Richtungen parallel und orthogonal zum uniaxialen Druck festgestellt werden, die sich zu höheren Temperaturen bis in die tetragonale paramagnetische Phase erstreckt [21, 26]. Die Anisotropie oberhalb des magneto-strukturellen Phasenübergangs hat sich allerdings als Effekt des ausgeübten uniaxialen Drucks herausgestellt [27].

Die Bandstruktur von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  nahe der Fermi-Energie  $E_{\text{F}}$  kann durch ARPES-Messungen (Angle Resolved Photo Emission Spectroscopy) bestimmt werden. Abbildung 2.5 zeigt die

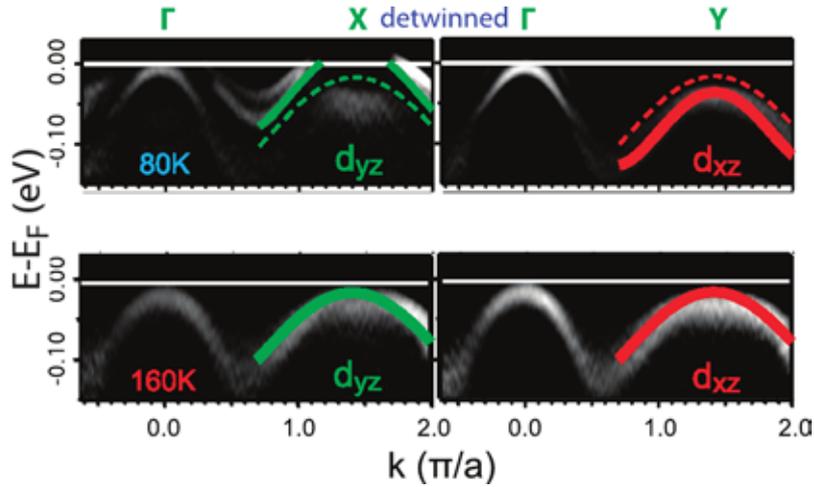


Abbildung 2.6. Bandverschiebung in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  unter externem uniaxialen Druck, ermittelt durch ARPES-Messungen [23]. Die grünen bzw. roten Linien zeigen die Lage der Bänder. Die gestrichelten Linien zeigen zum Vergleich die Lage der Bänder oberhalb von  $T_S$

durch ARPES-Messungen [23] ermittelten Fermi-Flächen von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  in der tetragonalen metallischen Phase oberhalb von  $T_S$ . Die Loch-Bänder liegen um den  $\Gamma$ -Punkt und sind rot eingezeichnet. Die Elektron-Bänder bei X/Y sind blau eingezeichnet. Durch ARPES-Messungen an entzwillingtem  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  konnte in der SDW-Phase eine relative Verschiebung der um X bzw. Y zentrierten Bänder festgestellt werden [23], wie in Abbildung 2.6 gezeigt ist. Der externe Druck wird dabei in Y-Richtung ausgeübt. Somit zeigt sich eine Verschiebung des  $d_{yz}$ -Bandes, das orthogonal zum Druck liegt ( $\Gamma$ -X-Richtung) bis über die Fermi-Energie. Das Band schneidet  $E_F$  beim Phasenübergang bei  $T_S$ . Das in Richtung des Drucks ( $\Gamma$  - Y-Richtung) liegende  $d_{xz}$ -Band wird hingegen zu niedrigerer Energie verschoben. Hier zeigt sich insgesamt ein deutlicher Einfluss des externen uniaxialen Drucks auf die elektronischen Eigenschaften.

## 3. Raman-Streuung

Die Raman-Spektroskopie hat sich als wertvolles Werkzeug zur Untersuchung von korrelierten Elektronensystemen erwiesen. Dieses Kapitel erläutert die Grundlagen der Raman-Streuung an Elektronen in Festkörpern.

### 3.1. Geschichte und Grundlagen

Die inelastische Streuung von sichtbarem Licht an Materie wurde 1923 von Adolf Smekal theoretisch vorhergesagt [28], 1928 durch C.V. Raman und K.S. Krishnan an Flüssigkeiten [29] sowie von G. Landsberg und L. Mandelstam an Kristallen [30] entdeckt und nach C.V. Raman benannt. Einen starken Aufschwung erlebte die optische Spektroskopie mit der Entwicklung des Lasers 1960 als leistungsfähige Lichtquelle.

Bei der Raman-Streuung wird das Material durch ein einfallendes Photon mit Energie  $E = \hbar\omega_i$  und Impuls  $p = \hbar\mathbf{k}_i$  vom Grundzustand I auf einen Zwischenzustand  $\nu$  angeregt und relaxiert in den Endzustand F unter Emission eines Photons mit  $E = \hbar\omega_s$  und  $p = \hbar\mathbf{k}_s$  (s. Abb. 3.1). Mit Energie- und Impulserhaltung ergibt sich für die auf das Material übertragene Energie  $\hbar\Omega$  bzw. den übertragenen Impuls  $\hbar\mathbf{q}$ :

$$\hbar\omega_i - \hbar\omega_s = \hbar\Omega \quad (3.1)$$

$$\hbar\mathbf{k}_i - \hbar\mathbf{k}_s = \hbar\mathbf{q} \quad (3.2)$$

Hierbei kann das emittierte Photon weniger Energie als das einfallende Photon haben (Stokes-Prozess), wobei im Material eine Anregung der Energie  $\hbar\Omega$  erzeugt wird. Hat das emittierte Photon mehr Energie als das eingestrahlte Licht, so spricht man vom Anti-Stokes-Prozess, bei dem im Material eine entsprechende Anregung vernichtet wird.

Da der Anti-Stokes-Prozess das Vorhandensein von Anregungen im Material voraussetzt, ist die Intensität  $I_{AS}$  des so gestreuten Lichts stark von der Temperatur  $T$  abhängig. Mit der Intensität  $I_{ST}$  des Stokes-Prozesses ergibt sich der Zusammenhang [6]

$$\frac{I_{AS}}{I_{ST}} = \left( \frac{\omega_i + \Omega}{\omega_i - \Omega} \right)^2 \exp\left( -\frac{\hbar\Omega}{k_B T} \right). \quad (3.3)$$

Somit lässt sich durch Messung des Stokes- und Anti-Stokes-Spektrums die Temperatur der Probe bestimmen.

### 3.2. Elektronische Raman-Streuung

Zur elektronischen Raman-Streuung an Festkörpern tragen zwei Prozesse bei:

Im Falle der Intraband-Streuung gibt das Photon einen Teil seiner Energie an ein Elektron ab, das dadurch im teilweise gefüllten Leitungsband in einen freien Zustand angehoben wird und ein Loch zurücklässt.

Interband-Streuung findet statt, wenn ein Elektron aus dem voll gefüllten Valenzband durch

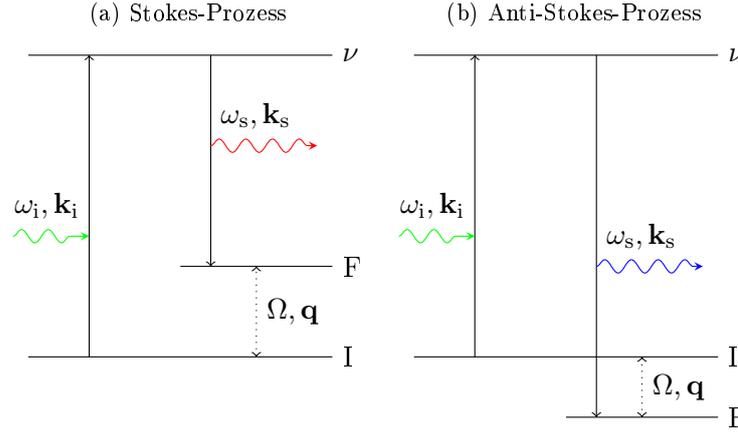


Abbildung 3.1. Prinzip der Raman-Streuung: Energieschemata des Stokes- und Anti-Stokes-Prozesses

Absorption des eingestrahnten Photons in einen freien Zustand eines Leitungsbandes angehoben wird. Dieser Zwischenzustand relaxiert durch Auffüllen des erzeugten Lochs durch ein Elektron des Leitungsbandes unter Emission eines Photons.

In beiden Fällen wird ein Photon mit veränderter Energie emittiert.

Grundlage einer theoretischen Beschreibung ist der Hamilton-Operator für  $N$  Elektronen, die an das elektromagnetische Feld koppeln [6]:

$$H = H' + \frac{e}{2m} \sum_i \underbrace{[\hat{\mathbf{p}}_i \cdot \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_i) + \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_i) \cdot \hat{\mathbf{p}}_i]}_{\text{Strom-Response}} + \frac{e^2}{2mc} \sum_i \underbrace{\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_i) \cdot \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_i)}_{\text{Dichte-Response}} \quad (3.4)$$

Hierbei ist  $\hat{\mathbf{p}}_i$  der Impulsoperator des  $i$ -ten Elektrons und  $\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_i)$  das elektromagnetische Vektorpotential am Ort  $\mathbf{r}_i$ .  $e$  bezeichnet die Elementarladung,  $m$  die Elektronenmasse und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. In  $H'$  sind die Anteile der kinetischen Energie und der Coulomb-Wechselwirkung sowie der freie Feldanteil zusammengefasst. Die ersten beiden Terme des Hamilton-Operator beschreiben die Kopplung des Stroms an ein einzelnes Photon, der dritte Term die Kopplung der Ladungsdichte an zwei Photonen. Da bei der Raman-Streuung zwei Dipol-Übergänge stattfinden, geht die Dichte-Response in erster und die Strom-Response in zweiter Ordnung Störungstheorie in das entsprechende Matrixelement  $M_{F,I}$  ein.

Bei der elektronischen Raman-Streuung wird der gesamte Streuquerschnitt aller vom eingestrahnten Licht beleuchteten Elektronen gemessen. Hierdurch erhält man ein breites elektronisches Kontinuum in den Spektren. Wie allgemein bei Streuexperimenten dient als grundlegende Beschreibung der differentielle Streuquerschnitt, der die Wahrscheinlichkeit der Streuung eines eingestrahnten Photons der Frequenz  $\omega_i$  in das Raumwinkelintervall  $[\tilde{\Omega}, \tilde{\Omega} + d\tilde{\Omega}]$  und den Frequenzbereich  $[\omega_s, \omega_s + d\omega_s]$  angibt. Für Lichtstreuung kann der differentielle Wirkungsquerschnitt durch eine Übergangsrate  $R_S$  für die Streuung eines einfallenden Photons ( $\mathbf{q}_i, \omega_i, \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{q}}^{(i)}$ ) in einen neuen Zustand ( $\mathbf{q}_s, \omega_s, \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{q}}^{(s)}$ ) ausgedrückt werden [6].

$$\dot{N} \propto \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \tilde{\Omega} \partial \omega_s} = \hbar r_0^2 \frac{\omega_s}{\omega_i} R_S \quad (3.5)$$

Hierbei ist  $\dot{N}$  die im Experiment messbare Zählrate und  $r_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 mc^2}$  der Thompson-Radius. Die Übergangsrate  $R_S$  lässt sich mit Fermis Goldener Regel aus dem Operator der Lichtstreuung  $M_{F,I}$  bestimmen.

Für die weitere Betrachtung sollen zwei Vereinfachungen gemacht werden:

Im Festkörper können nur Elektronen nahe der Fermifläche, mit einem Impuls der ungefähr dem Fermi-Impuls  $\mathbf{k}_F$  entspricht, an der Streuung teilnehmen. Für die relevanten Photonen-Energien von  $\sim 2\text{ eV}$  ist der übertragene Impuls  $\mathbf{q} \ll \mathbf{k}_F$ . Somit findet die elektronische Raman-Streuung in guter Näherung im Limes  $q \rightarrow 0$  statt [6].

Des Weiteren sei angenommen, dass sich die Vielteilchen-Zwischenzustände von den Anfangs- bzw. Endzuständen nur durch Einzelelektronen-Anregungen unterscheiden. Diese Annahme ist im Falle nichtwechselwirkender Elektronen exakt und für schwach wechselwirkende Systeme geeignet, vernachlässigt allerdings Vielteilchen-Korrelationen.

Damit lässt sich das Matrixelement  $M_{F,I}$  weiter vereinfachen und der differentielle Wirkungsquerschnitt schreiben als

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \tilde{\Omega} \partial \omega_s} = \hbar r_0^2 \frac{\omega_s}{\omega_i} S(\mathbf{q}, i\Omega \rightarrow \Omega + i0). \quad (3.6)$$

Die effektive Dichte-Dichte-Korrelationsfunktion  $S$  kann mit dem Fluktuations-Dissipations-Theorem als Funktion des Imaginärteils des Raman-Response  $\tilde{\chi}$  geschrieben werden

$$S(\mathbf{q}, \Omega) = -\frac{1}{\pi} \{1 + n(\Omega, T)\} \tilde{\chi}''(\mathbf{q}, \Omega). \quad (3.7)$$

Dabei ist  $n(\Omega, T) = [\exp(\frac{\hbar\Omega}{k_B T}) - 1]^{-1}$  die Bose-Einstein-Verteilungsfunktion. Aus den Gleichungen 3.6 und 3.7 erhält man somit den Zusammenhang zwischen der im Experiment gemessenen Zählrate  $\dot{N}$  und der Raman-Response-Funktion  $\tilde{\chi}$

$$\dot{N}(\Omega, T) = R \cdot \{1 + n(\Omega, T)\} \cdot \tilde{\chi}''(\mathbf{q}, \Omega). \quad (3.8)$$

Dabei wurden die multiplikativ auftretenden, nicht von Frequenz und Temperatur abhängigen Konstanten im Skalenfaktor  $R$  (nicht zu verwechseln mit der Übergangsrate  $R_S$ ) zusammengefasst. Somit erhält man den Imaginärteil  $R\tilde{\chi}''$  des Raman-Response mittels Division der Zählrate durch den „Bose-Faktor“  $1 + n(\Omega, T)$ .

Die Suszeptibilität  $\tilde{\chi}$  kann im normalleitenden Zustand geschrieben werden als [6]:

$$\chi''_{a,b}(\Omega) = \frac{2}{V} \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\pi} G''(\mathbf{k}, \omega) G''(\mathbf{k}, \omega + \Omega) \times [f(\omega) - f(\omega + \Omega)]. \quad (3.9)$$

Hierbei ist  $V$  das Volumen und  $a_{\mathbf{k}} = b_{\mathbf{k}} = \gamma_{\mathbf{k}}$  der Raman-Vertex. (vgl. Gleichung 3.10)  $G''(\mathbf{k}, \omega)$  ist die Einteilchen-Green's-Funktion und  $f(\omega)$  die Fermi-Dirac-Verteilung. Der Faktor 2 berücksichtigt die Spin-Entartung. Diese Darstellung der Suszeptibilität kann mit kleinen Änderungen auch für den supraleitenden Zustand verwendet werden.

### 3.2.1. Der Raman-Vertex

Die in Gleichung 3.6 eingeführte Dichte-Dichte-Korrelationsfunktion  $S$  enthält die Streuamplitude  $\gamma$ , auch als Raman-Vertex bezeichnet, die sich aus den Raman-Matrixelementen sowie den Polarisationsvektoren des einfallenden bzw. gestreuten Lichts berechnen lässt als

$$\gamma(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = \sum_{\alpha, \beta} \gamma_{\alpha, \beta}(\mathbf{k}, \mathbf{q}) e_i^\alpha e_s^\beta. \quad (3.10)$$

Mit der bereits oben eingeführten Näherung  $q \ll k_F$  und der Annahme, dass die Energien des einfallenden und gestreuten Photons  $\hbar\omega_{i,s}$  sehr viel kleiner sind als der Energieunterschied zwischen Zwischenzustand  $E_{\mathbf{k}\nu}$  und Endzustand  $E_{\mathbf{k}}$ ,  $\hbar\omega_{i,s} \ll |E_{\mathbf{k}\nu} - E_{\mathbf{k}}|$ , erhält man für den Raman-Vertex die bekannte effektive-Masse-Näherung:

$$\gamma_{\alpha,\beta}(\mathbf{k}, q \rightarrow 0) = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E_{\mathbf{k}}}{\partial k_{\alpha} \partial k_{\beta}} \quad (3.11)$$

Falls die Bandstruktur  $E_{\mathbf{k}}$  des Materials bekannt ist, kann somit der Raman-Vertex aus deren Krümmung berechnet werden.

### 3.2.2. Symmetrie und Auswahlregeln

Durch das einfallende Photon werden Ladungsdichte-Fluktuationen erzeugt. Der isotrope Anteil der Ladungsverschiebung wird durch die Coulomb-Wechselwirkung abgeschirmt, wodurch allein der anisotrope Anteil verbleibt. Die Richtung der Ladungsverschiebung ist abhängig von der Polarisation des Photons. Durch Fourier-Transformation kann zu einer Ladungsverschiebung im Ortsraum die entsprechende Veränderung in der Brillouin-Zone bestimmt werden. Zusätzlich legt die Symmetrie der Kristallstruktur die möglichen und Raman-aktiven Fluktuationen fest. Somit kann das Matrixelement  $M_{F,I}$  in Basisfunktionen der irreduziblen Punktgruppe  $\Phi_{\mu}$  des Kristalls zerlegt werden [6]:

$$M_{F,I}(\mathbf{q} \rightarrow 0) = \sum_{\mu} M_{\mu} \Phi_{\mu} \quad (3.12)$$

Hierbei repräsentiert  $\mu$  die irreduzible Darstellung einer Punktgruppe des Kristalls. Welche Symmetrien der Gruppe zur Streuung beitragen, entsprechend einer Auswahl bestimmter Matrixelemente des Vertex gemäß Gleichung 3.10, wird durch die Wahl der Polarisationen des auf die Probe einstrahlenden bzw. des gestreuten Lichts festgelegt.

In tetragonalen Systemen (Punktgruppe  $D_{4h}$ ), wie bei den Eisen-Arseniden oberhalb des strukturellen Übergangs vorliegend, erhält man vier Symmetrien ( $A_{1g}$ ,  $A_{2g}$ ,  $B_{1g}$ ,  $B_{2g}$ ). Dabei tritt die  $A_{2g}$ -Symmetrie bei elektronischer Raman-Streuung nicht auf, da die entsprechende chirale Anregung in den Elektron-Bändern nicht möglich ist [31].

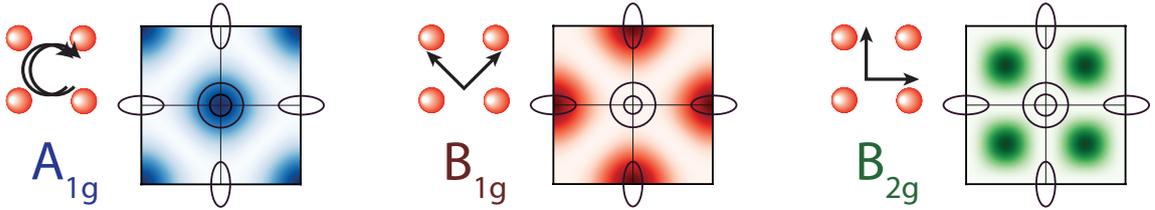


Abbildung 3.2. Raman-Vertizes in den Eisen-Arseniden: Projektion verschiedener Teile der Brillouin-Zone

Diese Auswahloption zeigt die Vorzüge der Raman-Streuung als Messverfahren, da hiermit ermöglicht wird durch Wahl der Polarisationen bestimmte Bereiche der Brillouin-Zone getrennt voneinander zu betrachten (Abb. 3.2). Die  $\mathbf{k}$ -abhängige Messung unterscheidet die Raman-Spektroskopie von diversen anderen Messverfahren, in denen nur Mittelwerte über die gesamte Brillouin-Zone bestimmt werden können.

Abbildung 3.3 zeigt die für die Messung relevanten Polarisationen und die herausprojizierten Symmetrien. Für jede der Polarisationen misst man die Summe zweier Symmetrien. Zur Bestimmung der Beiträge der einzelnen Symmetrien ist somit die Messung mehrerer Polarisationen nötig. Durch Messung aller Polarisationen ist zudem eine Konsistenzprüfung möglich, da die Summen  $xx + xy$ ,  $x'x' + x'y'$  und  $RR + RL$  jeweils alle Symmetrien enthalten und somit

identisch sein müssen.

Die für die Auswahlregeln angegebenen Polarisierungen beziehen sich auf die Fe-Fe-Bindungen in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . Da die Einstellung der Polarisierungen im Laborsystem (vgl. Abschnitt 4.1.1) erfolgt, ist ein wohldefinierter Einbau der Probe von entscheidender Bedeutung. Auf die Bestimmung der Probenausrichtung und den Einbau wird in Abschnitt 4.3 genauer eingegangen.

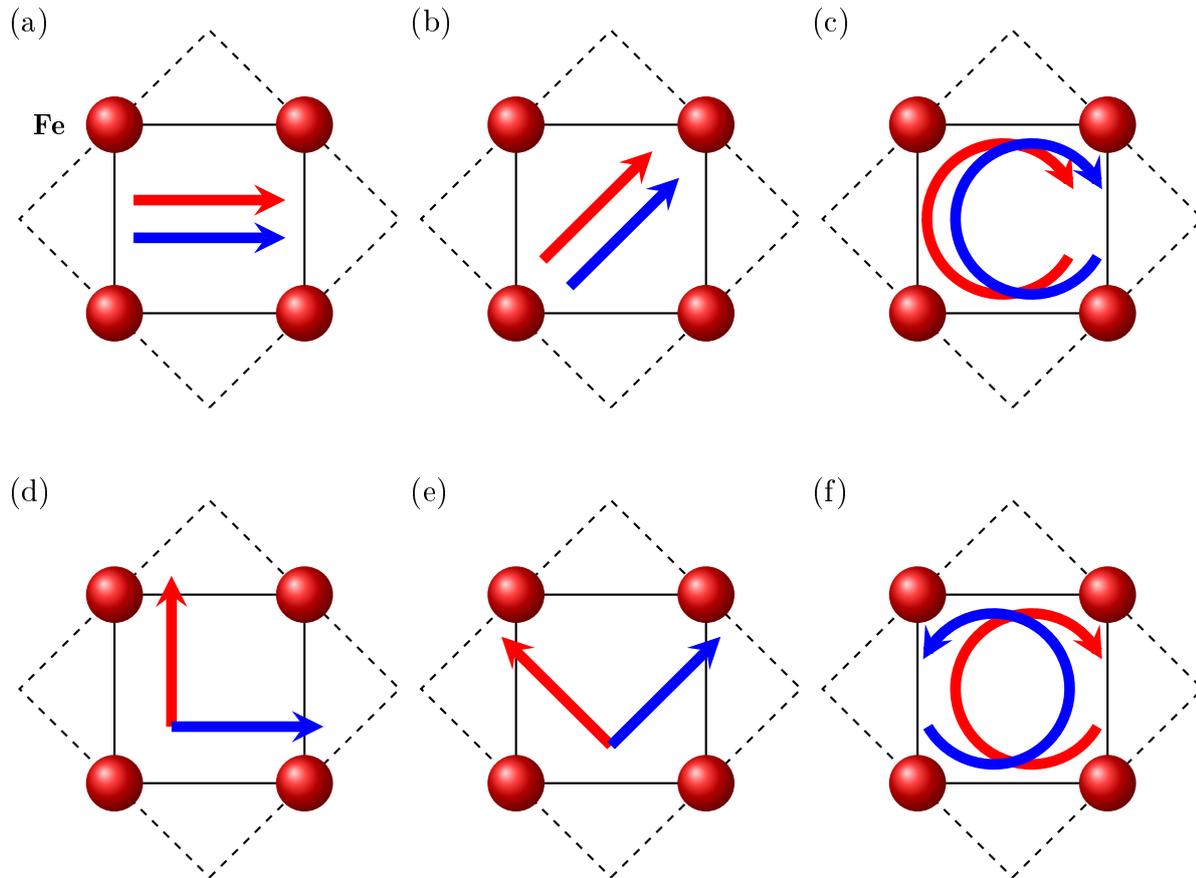


Abbildung 3.3. Auswahlregeln in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ : Gezeigt ist die Eisen-Zelle als durchgezogene Linie, gestrichelt angedeutet ist die Barium-Einheitszelle. Blaue Pfeile zeigen die Polarisation des einfallenden, rote Pfeile die des gestreuten Lichts.

Die durch die jeweilige Polarisation herausprojizierten Symmetrien sind dabei wie folgt:  
 (a):  $xx(yy)$ :  $A_{1g} + B_{1g}$ , (b):  $x'x'(y'y')$ :  $A_{1g} + B_{2g}$ , (c):  $RR$ :  $A_{1g} + A_{2g}$ ,  
 (d):  $xy(yx)$ :  $A_{2g} + B_{2g}$ , (e):  $x'y'(y'x')$ :  $A_{2g} + B_{1g}$ , (f):  $RL$ :  $B_{1g} + B_{2g}$



## 4. Experimenteller Aufbau

### 4.1. Aufbau zur Raman-Spektroskopie

Der grundlegende Aufbau zur Raman-Spektroskopie besteht aus einer geeigneten Lichtquelle mit einstellbarer Polarisation, einem Analysator zur Wahl der Polarisation des gestreuten Lichts sowie einem Spektrometer mit Detektor zur frequenz aufgelösten Analyse des gestreuten Lichts. Im Folgenden soll der Aufbau im Labor Raman I, der für die in dieser Arbeit gezeigten Messungen verwendet wurde, erläutert werden.

#### 4.1.1. Labor-Koordinatensystem

Alle angegebenen Polarisationen und Ausrichtungen beziehen sich auf das im Labor festgelegte Koordinatensystem. Hierbei ist die  $z$ -Richtung parallel zur optischen Achse und zeigt zum Spektrometer, die  $y$ -Richtung weist vertikal nach oben und die  $x$ -Richtung gemäß Rechter-Hand-Regel nach links bei Blick in  $z$ -Richtung.

#### 4.1.2. Strahlengang

Der Versuchsaufbau ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt.

Als Lichtquellen stehen ein  $\text{Ar}^+$ -Gaslaser (Coherent Innova 304C, mögliche Wellenlängen 458 nm - 514 nm) sowie ein NdYAG-DPSS-Festkörperlaser (Klaster Scherzo, Wellenlänge des emittierten Lichts 532 nm) zur Verfügung. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurde soweit nicht anders angegeben der Festkörperlaser verwendet.

Das vom Laser kommende Licht wird durch ein räumliches Filter (SP1, Linse-Pinhole-Linse) von divergenten Anteilen befreit. Hierzu wird der Strahl durch die erste Linse im Brennpunkt gebündelt und passiert das dort befindliche Pinhole. Nichtparallele Anteile werden nicht im Brennpunkt fokussiert und somit vom Pinhole blockiert. Die zweite Linse erzeugt aus dem gebündelten wieder einen parallelen Strahl.

Der Prismenmonochromator (PMC) entfernt Strahlanteile, die von der gewünschten Wellenlänge abweichen. Diese werden abgelenkt und im PMC oder am nachfolgenden räumlichen Filter (SP2, Linse-Spalt-Linse) blockiert.

Das  $\lambda/2$ -Plättchen dient der Einstellung der Laserleistung durch Drehung der Polarisation gegenüber dem nachfolgenden Polarisator. Hierbei wird ausgenutzt, dass das vom Laser erzeugte Licht bereits weitgehend polarisiert ist. Mit dem folgenden Polarisator (P1) sowie dem Soleil-Babinet-Kompensator (SB) wird die gewünschte Polarisation des auf die Probe treffenden Lichts erzeugt. Ein weiterer räumlicher Filter (SP3) sorgt für ein gaußförmiges Strahlprofil. Das Licht wird mit der Linse L1 fokussiert und durch den Spiegel M4 auf die Probe gelenkt.

Die Probe wird im Kryostaten am Kühlfinger montiert und befindet sich in Vakuum ( $p < 10^{-6}$  mbar). Die Temperatur ist im Bereich 1,8 K - 350 K einstellbar.

Das von der Probe gestreute Licht wird durch das Objektiv O1 gesammelt. Durch ein  $\lambda/4$ -Plättchen und den Analysator (P2) wird die gewünschte Polarisation selektiert. Das  $\lambda/2$ -Plättchen dreht das einfallende Licht in die Polarisationsrichtung der höchsten Effizienz der Gitter im Spektrometer ( $x$ -Richtung).

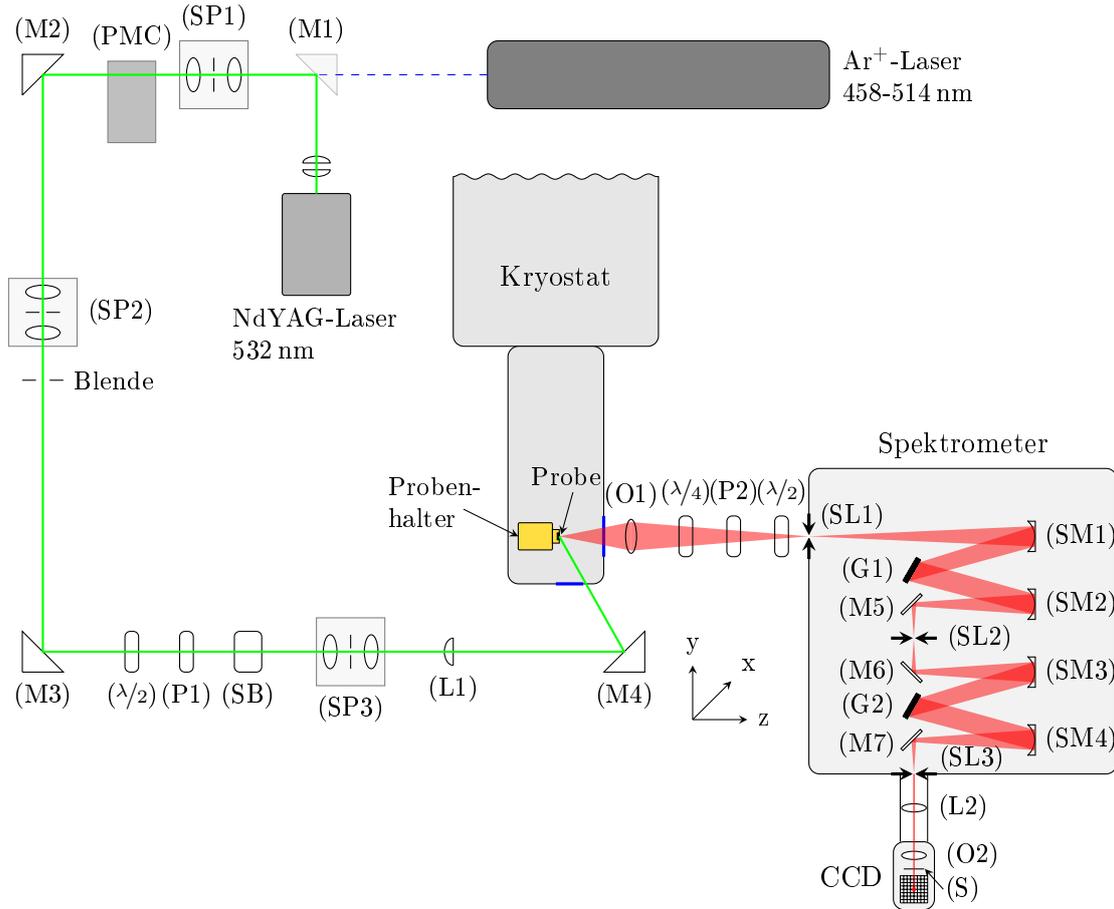


Abbildung 4.1. Strahlengang im Labor Raman I

(M1-7) Spiegel; (SP1-3) Räumliche Filter; (PMC) Prismenmonochromator; (P1,2) Polarisatoren; (O1,2) Objektive; (L1,2) Linsen; (SB) Soleil-Babinet-Kompensator; (SM1-4) Sphärische Spiegel; (G1,2) Gitter; (SL1-3) Eingangs-/Mittel-/Ausgangsspalt; (S) Verschluss der CCD-Kamera

Der als Spektrometer verwendete Jarrel-Ash 25-100 Doppelmonochromator [32] besitzt zwei Gitter, die motorbetrieben verstellt werden können und so die Auswahl verschiedener Frequenzbereiche ermöglichen. Die zur computergestützten Ansteuerung des Motors nötige Steuerung wurde im Rahmen dieser Diplomarbeit neu aufgebaut und wird in Abschnitt 4.1.3 genauer erläutert.

Durch das erste Gitter G1 wird das ins Spektrometer einfallende Streulicht spektral aufgespalten und durch einen sphärischen Spiegel (SM2) auf den Mittelspalt fokussiert. Durch Verstellung der Breite des Mittelspalts kann die transmittierte Bandbreite im Bereich  $0-50 \text{ cm}^{-1}$  gewählt werden. Durch das zweite Gitter (G2) wird das aufgespaltene Licht wieder zusammengesetzt und anschließend auf die CCD-Kamera reflektiert.

Als Detektor für das Streulicht dient eine CCD-Kamera vom Typ AT200 der Marke Photometrics mit einer Auflösung von  $512 \times 512$  Pixel, die zur Reduzierung des thermischen Rauschens mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird. Um Fehlmessungen durch hochenergetische kosmische Strahlung zu vermeiden wird nur ein möglichst kleiner Ausschnitt des CCD-Chips genutzt. Das Auslesen der von der CCD aufgenommenen Messpunkte sowie eine Untergrundkorrektur erfolgen automatisiert durch das Messprogramm MAPS.

### 4.1.3. Die neue Spektrometersteuerung

Die Einstellung der Gitter des Spektrometers erfolgt mit Hilfe eines Schrittmotors über einen sogenannten Sinusantrieb. Zur computergestützten Ansteuerung des Motors diente eine Steuerung vom Typ Polydrive, die mit dem Messcomputer über eine IEEE-488-Verbindung kommunizierte. Diese Steuerung zeigte im Mai 2011 einen umfassenden Defekt, dessen Ursache auch nach längerer Suche nicht gefunden wurde. Aus diesem Grund wurde im Rahmen dieser Diplomarbeit eine neue Steuerung als Ersatz aufgebaut. Dies erfolgte in Zusammenarbeit mit Thomas Böhm, der die Entwicklung der Software sowie die Anpassung des Messprogrammes MAPS übernahm.

Kern der neuen Spektrometersteuerung ist die Schrittmotorsteuerung SMCI36 der Firma Nanotec, die Motoren mit bis zu 48 V/6 A betreiben und in Java programmiert werden kann. Die Verbindung der SMCI36 mit dem Computer erfolgt über RS232 mittels eines RS232-RS485-Wandlers. Die nötige externe Beschaltung der Steuerplatine, bestehend aus Stromversorgung, Sicherheitsschaltung, Signalwandler, Stromversorgung der Digitaleingänge, Kühlung und Statusanzeigen ist mit dieser in einem Gehäuse integriert (Abb. 4.3).

Die SMCI36 kann sechs externe Schalter auslesen. Drei davon dienen als Endschalter bzw. Zählschalter, um die Position der Steuermechanik des Spektrometers zu ermitteln. Drei weitere Schalter wurden in der Steuerung als direkte Bedienelemente integriert (s. Abb. 4.2a). Die Verschaltung der Ein- und Ausgänge sowie die dafür notwendige Stromversorgung mit 5 V sind in der I/O-Box zusammengefasst. Die Beschaltung der SMCI36 erfolgte nach einem selbst erstellten Schaltplan. Ein Blockschaltbild der Spektrometersteuerung findet sich im Anhang (Abb. A.1) Für eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Komponenten sowie der Software der neuen Steuerung sei auf die ebenfalls erstellte Anleitung verwiesen.

Nach Inbetriebnahme der Steuerung wurde eine Kalibration anhand der Laserlinien des Argon- und NdYAG-Lasers sowie der Linien einer Neon-Lampe durchgeführt. Hierbei wurde die zum Betrieb notwendige Funktion zur Umrechnung von absoluten Wellenzahlen (entsprechend einer definierten Stellung der Gitter) in die vom Motor zu fahrenden Schritte bestimmt.



(a) Frontansicht



(b) Rückansicht

Abbildung 4.2. Front- und Rückansicht der neuen Spektrometersteuerung

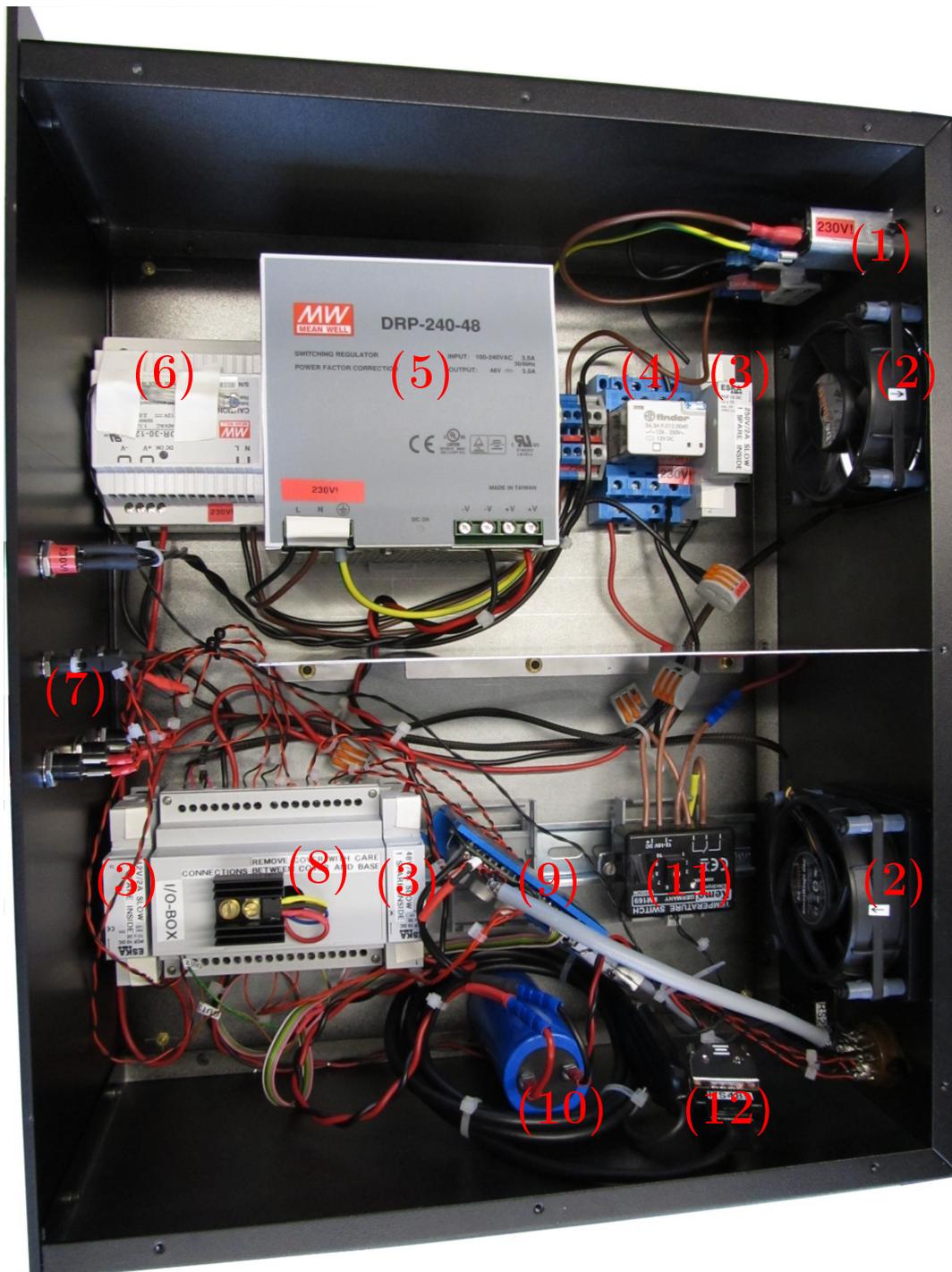


Abbildung 4.3. Innenansicht der neuen Spektrometersteuerung

- (1) Stromanschluss
- (2) Lüfter
- (3) Sicherungen
- (4) Sicherheitsschaltung
- (5) 48 V-Netzteil
- (6) 12 V-Netzteil
- (7) Frontplatte mit LEDs und Schaltern
- (8) I/O-Box (Verschaltung der Ein- und Ausgänge)
- (9) SMCI36
- (10) Pufferkondensator
- (11) Thermoschalter
- (12) RS485-RS232-Wandler

## 4.2. Proben-Halteklammer für uniaxialen Druck

Da die Ba-122-Verbindungen in der orthorhombisch verzerrten Phase Zwillinge<sup>1</sup> ausbilden ist die Untersuchung eventueller Anisotropien in diesen Materialien nicht möglich. Chu *et al.* konnten zeigen, dass bereits relativ geringe uniaxiale Drücke in der Größenordnung von 10 MPa ausreichen um Proben fast vollständig zu entzwilligen und stellten eine entsprechende Apparatur zum Einklemmen von Proben vor [21].

Basierend auf dieser Idee wurden seither verschiedene, an die jeweiligen experimentellen Methoden angepasste Apparate zur in-situ-Entzwilligung von Proben vorgestellt [33].

### 4.2.1. Konstruktion

Die bei den in dieser Arbeit präsentierten Messungen verwendete Klammer basiert direkt auf dem von Chu *et al.* [21] vorgestellten Apparat, der an den vorhandenen Messaufbau angepasst wurde.

Der gesamte Probenhalter mit Klammer ist in Abb. 4.4 gezeigt. Der vorhandene Probenhalter besteht aus einem Kupferzylinder mit Wippe, die beide vergoldet sind. Die Probe wurde bisher auf ein geeignetes Stück Kupfer aufgeklebt und dieses mit einem kleinen Kupferblech in der Wippe durch Festziehen des Jochs eingeklemmt.

Die neue Apparatur ersetzt diesen Aufbau. Abbildung 4.4a zeigt den Probenhalter mit der eingebaute Klammer und der eingeklemmten Probe ( $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ), wie er bei den Messungen verwendet wurde. In Abb. 4.4b ist der neue Aufbau skizziert. Die Klammer ist modular aus zwei Kupferteilen, dem Abstandshalter (2) und der Blattfeder (3), aufgebaut. Beide Teile sind an die Wippe (7) angepasst und werden mit der Schraube (1) befestigt. Die Probe (6) befindet sich an der Front des Abstandshalters und wird zwischen Feder und Wippe eingeklemmt. Zur besseren Befestigung und thermischen Ankopplung wird die Probe zusätzlich mit GE Varnish auf den Abstandshalter geklebt.

Zur Anpassung an verschiedene Proben stehen unterschiedlich dicke Abstandshalter zur Verfügung. Zudem können Federn verschiedener Dicke und somit Federkonstante verwendet werden. Für die untersuchte Probe war der Abstandshalter mit Dicke  $a = 0.8 \text{ mm}$  geeignet, da die Probe etwas über den Halter hinausstehen muss. Die verwendete Feder hat eine Dicke von  $150 \text{ }\mu\text{m}$ .

Durch das Festziehen des Jochs (5) mit den Schrauben (4) wird die Feder auf die Probe gedrückt. Durch unterschiedlich festes Anziehen der Schrauben kann der auf die Probe ausgeübte Druck variiert werden.

### 4.2.2. Abschätzung des erreichbaren Druckes

Um den erreichbaren Druck abzuschätzen wurden zwei Versuchsreihen mit der vorgestellten Klammerkonstruktion durchgeführt. Im ersten Fall wurde dabei anstatt einer Probe ein ähnlich großes Stück Kupfer als Dummy verwendet, im zweiten Fall ein Probenstück.

Zur Bestimmung des ausgeübten Drucks wurde der Probenhalter fixiert und eine Federwaage an der Blattfeder befestigt. Durch Ziehen an der Federwaage ist somit die Kraft, bei der die Feder von dem Probe abgehoben wird, bestimmbar. Diese entspricht der durch die Feder auf

<sup>1</sup>Als (Kristall)-Zwillinge bezeichnet man in orthorhombischen Systemen verschiedene Bereiche des Einkristalls, in denen die Richtungen der inäquivalenten  $a$ - und  $b$ -Achsen vertauscht sind. Eine Messung, die mehrere Zwillingdomänen erfasst, ergibt somit für entlang dieser Achsen anisotrope Messgrößen einen gemittelten Wert.

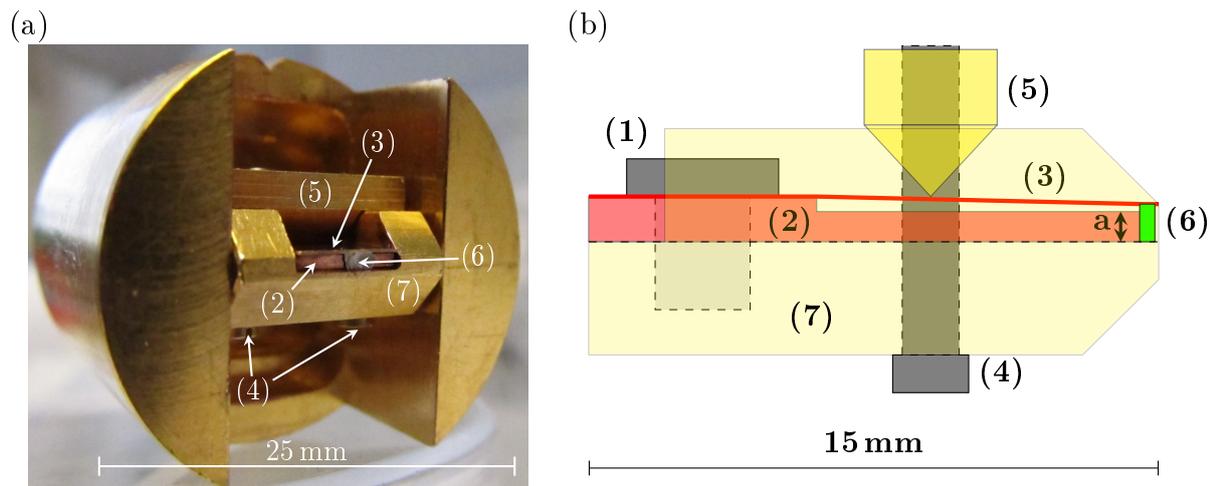


Abbildung 4.4. Klammer zum in-situ-Entzwilligen von Ba-122 Proben

(a) Fotografie des Probenhalters mit Klammer und Probe

(b) Schematische Zeichnung der Klammer mit Wippe, Querschnitt

(1) Schraube zur Befestigung der Klammer; (2) Abstandshalter (Dicke  $a = 0.8$  mm);

(3) Feder (Dicke  $d = 0.15$  mm); (4) Schrauben zum Festziehen des Jochs;

(5) Joch; (6) Probe; (7) Wippe

die Probe ausgeübten Kraft und kann mit der Probenquerschnittsfläche in den ausgeübten Druck umgerechnet werden.

Bei den Versuchen mit dem Kupferdummy wurden Dummy und Feder kontaktiert und eine Widerstandsmessung durchgeführt. Dadurch kann genau bestimmt werden, wann der Kontakt zwischen Feder und Dummy durch Abheben der Feder unterbrochen wird. Bei Verwendung des Probenstückes war dies nicht möglich, hier wurde das Abheben der Feder visuell kontrolliert. In beiden Fällen wurde eine  $150\ \mu\text{m}$  dicke Feder verwendet.

Bei den Versuchen mit dem Kupferdummy ergab sich ein Maximaldruck  $p_{\text{max}} \approx 50$  MPa. Bei den Versuchen mit dem Probenstück wurde laut Messung ein Druck von  $p_{\text{max}} \approx 180$  MPa erreicht. Dieser sehr hohe Wert ist dabei allerdings mit Skepsis zu betrachten. Als mögliche Fehlerquellen kommen Ungenauigkeiten bei der Bestimmung der Probenquerschnittsfläche und bei der Kontrolle des Abhebens der Feder in Betracht.

Eine weitere Möglichkeit, den auf die Probe wirkenden Druck zu bestimmen, ist die Messung der Verschiebung der Übergangstemperatur  $T_{\text{TO}}$  von der tetragonalen in die orthorhombisch verzerrte Phase. Von Liang *et al.* wurde eine Erhöhung der Übergangstemperatur um 5 K bei einer Druckänderung von 35 MPa beobachtet [26, 27]. Bei einer gemessenen Verschiebung  $\Delta T_{\text{TO}} = 5,1$  K (siehe Kapitel 6.1) ergibt sich der gleiche Druck von etwa 35 MPa. Legt man die Verschiebung des magnetischen Übergangs zu Grunde erhält man einen Druck von etwa 18 MPa

### 4.3. Bestimmung der Probenorientierung

Zur Anwendung der Auswahlregeln der Raman-Streuung (vgl. Kap. 3.2.2) ist die genaue Kenntnis der Ausrichtung der Probe unabdingbar. Für die Verwendung der oben beschriebenen Klammer-Apparatur ist insbesondere auch die Unterscheidung von Barium- und Eisen-Achsen von Bedeutung, da der uniaxiale Druck zum Entzwilligen entlang der Eisen-Achsen ausgeübt

und die Probe entsprechend zugeschnitten werden muss.

Die Lage der Kristallachsen kann sowohl mittels reflektiver Röntgendiffraktion (Laue) als auch mittels Raman-Streuung über die bekannten Phononen-Auswahlregeln bestimmt werden.

Abbildung 4.5a zeigt die erstellte Laue-Aufnahme. Die Ausrichtung der Achsen ist gut erkennbar, problematisch ist allerdings die Unterscheidung der Barium- und Eisen-Achsen. Hierzu wurde von Thomas Böhm ein Programm geschrieben, das eine entsprechende Laue-Aufnahme simuliert. Das erstellte Diagramm (Abb. 4.5b) zeigt die Barium-Einheitszelle bei Blick in Richtung der  $c$ -Achse. Die roten Punkte an den Ecken stellen die Barium-Atome dar, die dazwischenliegenden Punkte die Eisen-Atome. Die berechneten Laue-Reflexe sind in grün gezeigt. Der Simulation hinterlegt sind zwei mögliche Ausrichtungen des Detektors. Durch Vergleich mit der Laue-Aufnahme ergibt sich eine Orientierung der Barium-Achsen  $45^\circ$  zum Detektor, entsprechend einer Ausrichtung der Eisen-Achsen in  $xy$ -Richtung.

Zusätzlich wurde die Orientierung mittels Raman-Spektroskopie überprüft. Hierfür wurde die Probe entsprechend der durch die Laue-Aufnahme ermittelten Orientierung eingebaut (Abb. 4.5c). Das in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  auftretende Phonon, bei dem die Eisen-Atome schwingen, ist gemäß den Auswahlregeln in gekreuzten Polarisierungen mit Polarisationsrichtungen parallel zu den Eisen-Achsen sichtbar. Wie Abbildung 4.5d zeigt war das Phonon eindeutig in  $xy$ -Polarisation erkennbar und trat in der dazu  $45^\circ$  gedrehten  $x'y'$ -Polarisation nicht auf. Dies verifiziert die korrekte Ausrichtung der Probe mit den Eisen-Achsen in  $xy$ -Richtung.

Der Zuschnitt der Probe erfolgte entlang den so bestimmten Eisen-Achsen im Kristalllabor der TU München. Anschließend wurde die Probe in der Klammer montiert und vor dem Einbau in den Kryostaten gespalten.

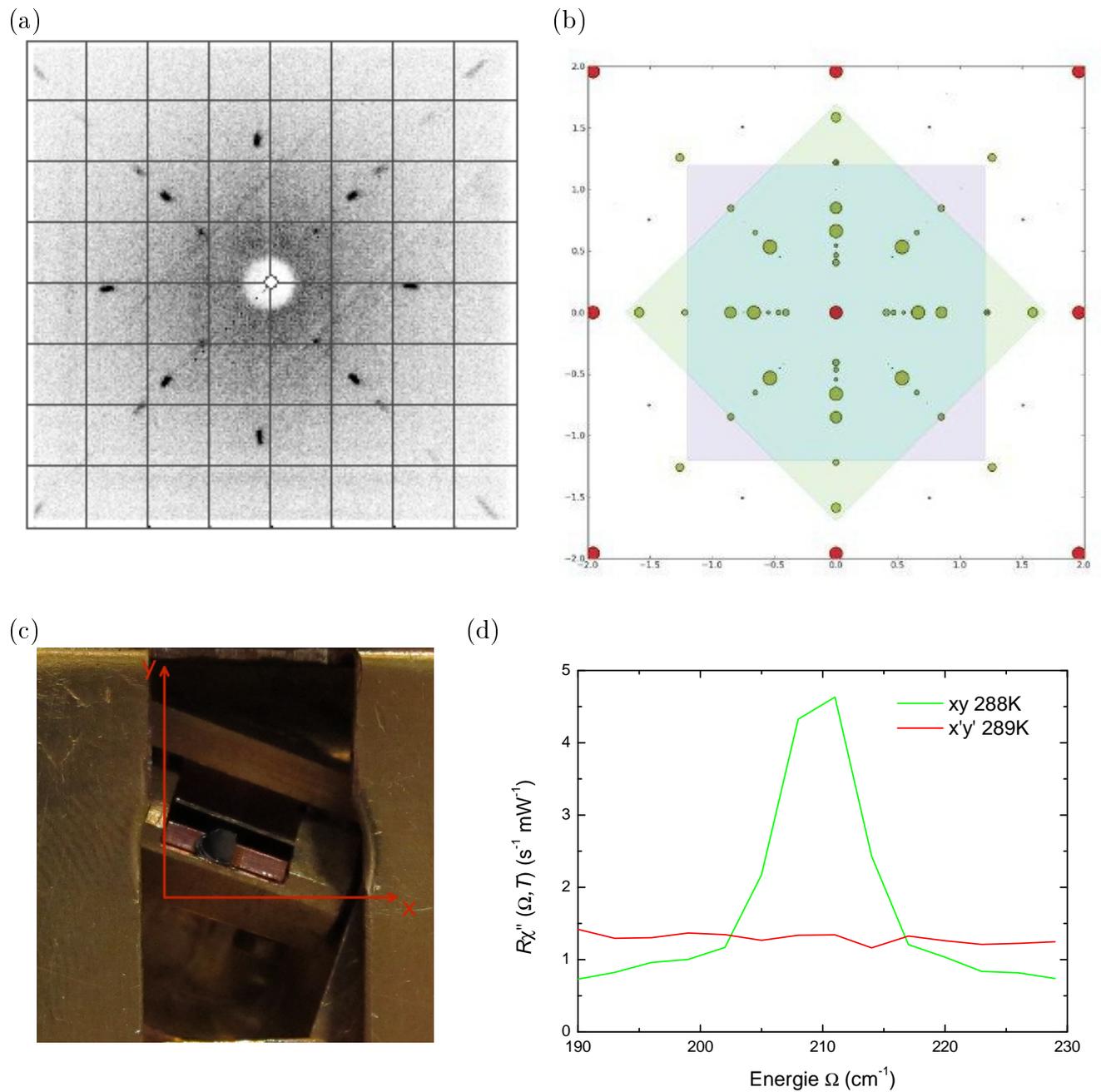


Abbildung 4.5. Bestimmung der Orientierung der  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ -Probe

- (a) Laue-Aufnahme
- (b) Simulation der Laue-Aufnahme
- (c) Eingebaute Probe (vor Zuschnitt) mit Labor-Koordinatensystem
- (d) Messung des Fe-Phonons

#### 4.4. Einfluss der Spot-Position auf der Probe

Die Wahl der richtigen Position des Laserspot auf der Probe gehört zu den kritischen Parametern, insbesondere bei Proben mit verunreinigter oder unebener Oberfläche. Eine gute Spot-Position zeichnet sich durch einen minimalen Anteil an elastisch gestreutem Licht und eine möglichst homogene Ausleuchtung aus.

Bei der hier untersuchten BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>-Probe erwiesen sich trotz Spalten der Probe nur drei Positionen als verwendbar, wobei die Position mit minimalem Anteil an elastischem Streulicht gewählt wurde. Bereits kleine Abweichungen von der optimalen Position haben sich dabei als sehr kritisch erwiesen. Abbildung 4.6 zeigt zwei Messungen in xx-Polarisation mit 4 mW Laserleistung, Schrittweite 50 cm<sup>-1</sup> und Auflösung 26 cm<sup>-1</sup>. Erwartet wird ein Spektrum vergleichbar dem grün gezeichneten. Der im rot gezeichneten Spektrum dominierende breite Peak konnte auf das Auftreten eines zweiten, parasitären Streulicht-Spots auf der CCD zurückgeführt werden.

Dieser Spot tritt in diversen Polarisierungen mit variierender Intensität auf. Der in Gegenwart dieses Spots resultierende spektrale Verlauf ist in allen Polarisierungen ähnlich. Im Bereich kleiner Energieüberträge ( $\Omega < 1000 \text{ cm}^{-1}$ ) sind die Veränderungen gering, gewinnen aber ab  $\Omega \approx 1500 \text{ cm}^{-1}$  stark an Intensität. Während der normale Streulicht-Spot sich wegen der nicht perfekten Justierung des Spektrometers bei hohen Frequenzverschiebungen auf der CCD leicht nach oben bewegt, bewegt sich der parasitäre Spot nach unten und verlässt ab  $\Omega \approx 3000 \text{ cm}^{-1}$  langsam den ausgelesenen Bereich der CCD, wodurch die gemessene spektrale Intensität wieder abnimmt. Die Kombination aus starkem Intensitätszuwachs und Abwanderung aus dem ausgelesenen Bereich ergibt den im rot gezeichneten Spektrum dominierenden, breiten Peak. Es zeigte sich keine eindeutige Temperaturabhängigkeit des Phänomens. Die Ursache für den parasitären Spot konnte nicht abschließend geklärt werden. Elastisch gestreutes Licht kann wegen des Auftretens bei hohen Frequenzverschiebungen ausgeschlossen werden. In Frage kommen insbesondere Fluoreszenzerscheinungen, wie sie z.B. durch den verwendeten GE Varnish auftreten können. Die wahrscheinlichste Quelle des Spot ist eine direkt neben dem verwendeten Laserspot liegende, sichtbare Fehlstelle auf der Probenoberfläche, die möglicherweise auf Einschlüsse zurückzuführen ist. Durch leichte Veränderungen der Position des Laserspot auf der Probe kann das Auftreten des parasitären Spot verhindert werden. Ein eindeutiger Zusammenhang zwischen gewählter Laserspot-Position und dem Auftreten des parasitären Spots konnte nicht festgestellt werden. Die Wahl der Spot-Position auf der untersuchten Probe ist somit sehr kritisch.

In Abbildung 4.7 sind zwei direkte Aufnahmen des CCD-Chips gezeigt. Abbildung 4.7a zeigt den normalen Spot des von der Probe inelastisch gestreuten Lichts (xx-Polarisation,  $\Omega \approx 200 \text{ cm}^{-1}$ ). Auch bei Auftreten des parasitären Spots ergab sich bei kleinen Frequenzverschiebungen dieses Bild. Erst ab  $\Omega \approx 1500 \text{ cm}^{-1}$  trat der zusätzliche Spot sichtbar in Erscheinung. Abbildung 4.7b zeigt den Effekt des Spots bei großen Energien ( $\Omega \approx 3000 \text{ cm}^{-1}$ ). Hier hat der parasitäre Spot eine deutlich höhere Intensität und dominiert somit die Aufnahme. Bei allen durchgeführten Messungen mit Frequenzverschiebungen  $\Omega > 1000 \text{ cm}^{-1}$  wurde durch ein bei  $3000 \text{ cm}^{-1}$  erstelltes Bild des gesamten CCD-Chips verifiziert, dass der parasitäre Spot nicht auftrat.

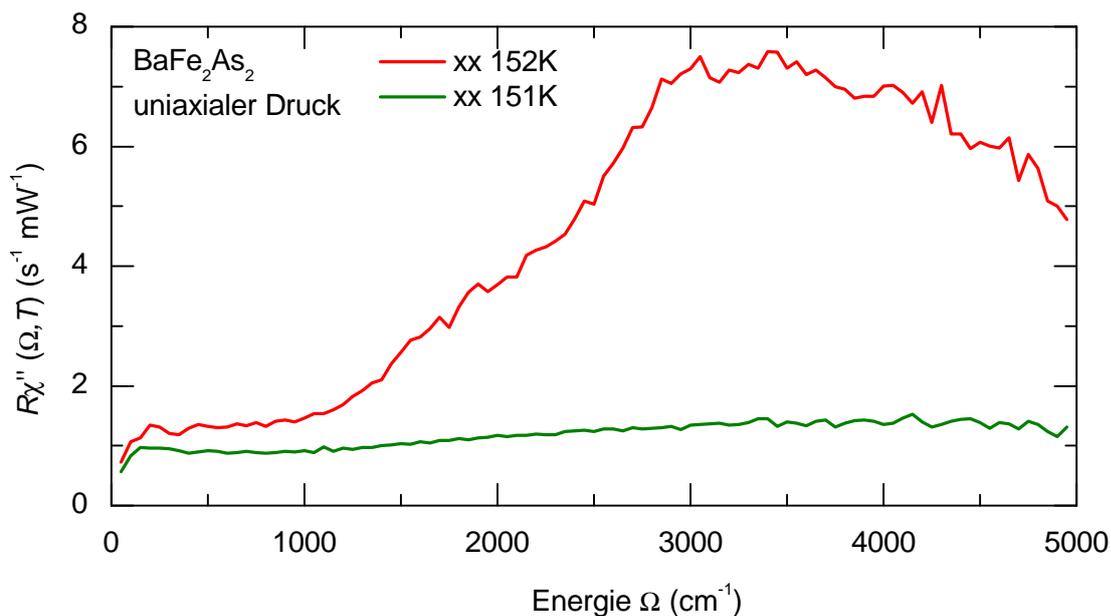


Abbildung 4.6. Einfluss der Wahl der Spot-Position auf das Raman Spektrum: Auftreten eines breiten Peaks durch einen parasitären Streulicht-Spot. Das breite Maximum des rot gezeichneten Spektrums tritt nur auf, wenn nahe dem Laser-Fokus helle Punkte (Spots) sowohl im elastischen wie im inelastischen Licht erkennbar sind.

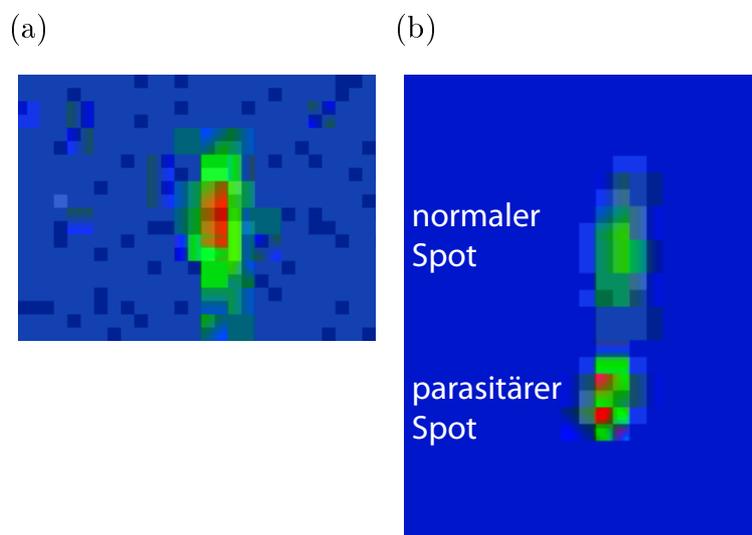


Abbildung 4.7. Direkte Aufnahme des Spots auf der CCD. Die Farbabstufung gibt die im jeweiligen Pixel gemessene Intensität wieder von blau (gering) bis rot (stark). Beide Bilder wurden auf den relevanten Bereich zugeschnitten. (a) Normaler Streulicht-Spot ohne parasitären Spot (b) Streulicht-Spot (oben) und parasitärer Spot (unten) bei großer Frequenzverschiebung. Deutlich erkennbar ist die gegenüber dem normalen Spot stark erhöhte Intensität des parasitären Spots.



## 5. Experimentelle Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die an undotiertem  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  durchgeführten Messungen dargestellt. Die Messungen wurden jeweils mit und ohne uniaxialen Druck durchgeführt und gliedern sich in zwei Abschnitte: Zum einen wurden Messungen am Phasenübergang ( $T_S = 134\text{ K}$ ) vom tetragonalen, metallischen Zustand in die orthorhombisch verzerrte, magnetisch geordnete Phase durchgeführt. Zum anderen wurden bei  $T = 50\text{ K}$  Messungen in der orthorhombischen antiferromagnetischen Phase durchgeführt, um Fragestellungen zur Spindichtewelle und zu interorbitalen Übergängen zu untersuchen.

### 5.1. Verschiebung des Phasenübergangs

In  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  führt der Phasenübergang bei  $T_S = 134\text{ K}$  zu einer Vielzahl von Veränderungen in den Raman-Spektren.

Abbildung 5.1 zeigt zur Veranschaulichung drei ohne Druck gemessene  $B_{1g}$  Spektren bei Raumtemperatur ( $T = 301\text{ K}$ ), knapp oberhalb ( $T = 140\text{ K}$ ) und deutlich unterhalb ( $T = 50\text{ K}$ ) des Phasenübergangs. Das Spektrum bei Raumtemperatur steigt monoton an. Die geringe Anfangssteigung deutet auf kurze Transportlebensdauern der Ladungsträger hin [34, 35]. Im Spektrum knapp oberhalb des Phasenübergangs zeigt sich im Bereich um  $100\text{ cm}^{-1}$  ein breiter Peak und bei höheren Frequenzverschiebungen ein praktisch horizontaler Verlauf. Unterhalb des Phasenübergangs öffnet sich die Energielücke der Spin-Dichte-Welle und führt zu einer starken Umverteilung des spektralen Gewichts vom Bereich  $0\text{-}400\text{ cm}^{-1}$  nach  $500\text{-}2500\text{ cm}^{-1}$ . Dies resultiert in einem deutlich verringerten Raman-Response bei niedrigen Frequenzverschiebungen und einem breiten Peak bei großer Frequenzverschiebung mit Schwerpunkt bei etwa  $850\text{ cm}^{-1}$ .

#### 5.1.1. Messprinzip

Die Bestimmung eines Phasenübergangs mittels Raman-Spektroskopie ist nur möglich, falls mit diesem Übergang die Änderung eines mit Raman-Streuung beobachtbaren Phänomens verbunden ist. Im Falle von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  treten oberhalb des Phasenübergangs bei  $T_S = 134\text{ K}$  Fluktuationen auf, die sich in den Raman-Spektren als stark temperaturabhängiger Peak bei ca.  $100\text{ cm}^{-1}$  in  $B_{1g}$ -Symmetrie zeigen [36, 37]. Diese Fluktuationen verschwinden abrupt bei Unterschreiten der Übergangstemperatur, was die Bestimmung des Phasenübergangs ermöglicht.

Zur Messungen der Fluktuationen wurden bei verschiedenen Temperaturen Messpunkte in  $x'y'$ -Polarisation (Symmetrien  $A_{2g}+B_{1g}$ ) aufgenommen, wobei pro Temperatur jeweils zwei Punkte bei den Frequenzverschiebungen  $\Omega = 70\text{ cm}^{-1}$  und  $\Omega = 100\text{ cm}^{-1}$  gemessen wurden. Die Auflösung betrug  $50\text{ cm}^{-1}$ , womit ein großer Teil Fluktuationspeaks erfasst wurde. Die so erfassten Bereiche sind in Abbildung 5.1 als schwarze Rechtecke eingezeichnet. Zur Untersuchung auf mögliches hysteretisches Verhalten wurden die Messungen jeweils bei steigender und fallender Temperatur durchgeführt.

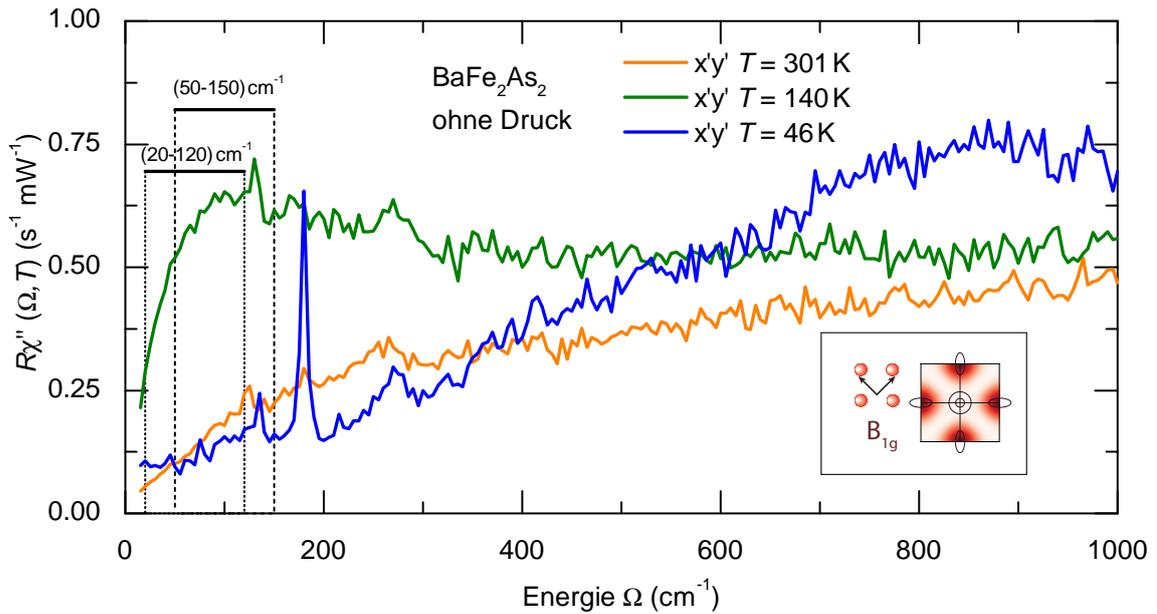


Abbildung 5.1. Raman-Spektren bei charakteristischen Temperaturen ohne äußeren Druck. Die Linie bei  $\Omega = 180 \text{ cm}^{-1}$  im  $T = 46 \text{ K}$ -Spektrum (blau) ist auf die in der geordneten Phase auftretende Anisotropie der  $A_g$ -Matrixelemente zurückzuführen. Der Anstieg der Intensität bei niedrigen Energien im selben Spektrum ist auf Oberflächenverunreinigungen zurückzuführen. Die mit der in Kap. 5.1.1 beschriebenen Methode erfassten Bereiche sind gestrichelt eingezeichnet.

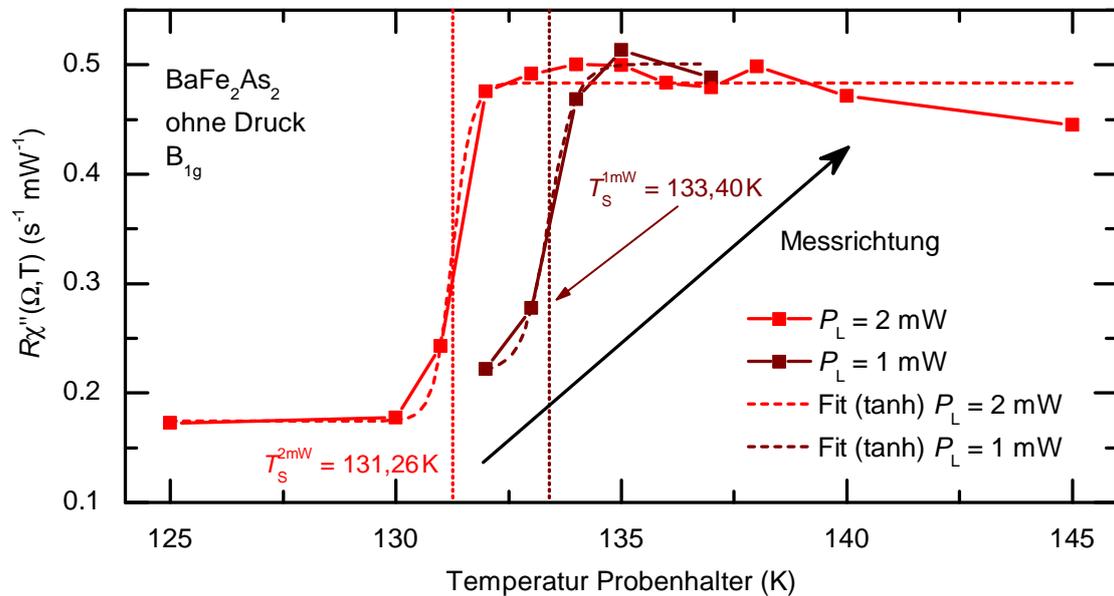


Abbildung 5.2. Abhängigkeit der Intensitätsanomalie am Phasenübergangspunkt von der Laserleistung wie angegeben. Beide Messungen sind bei steigender Temperatur durchgeführt. Die Messpunkte wurden durch eine tanh-Funktion gefittet.  $T_S^{1 \text{ mW}}$  und  $T_S^{2 \text{ mW}}$  bezeichnen die per Fit bestimmten Übergangstemperaturen bei einer Laserleistung von 1 mW bzw. 2 mW

### 5.1.2. Bestimmung der Aufheizung durch den Laser

Abbildung 5.3 zeigt die mit dieser Methode ermittelten Intensitätswerte als Funktion der Haltertemperatur. Gezeigt ist die im Bereich  $20\text{-}120\text{ cm}^{-1}$  (Messposition  $70\text{ cm}^{-1}$ ) bzw.  $50\text{-}150\text{ cm}^{-1}$  (Messposition  $100\text{ cm}^{-1}$ ) gemessene Raman-Response. Der identische Verlauf und die annähernd gleichen Messwerte beider Kurven bestätigen, dass durch den gewählten Messbereich der Fluktuationspeak im Wesentlichen erfasst wird.

Bei den Messungen ohne Druck zeigt die Probe einen scharfen Übergang bei Haltertemperatur  $T_S = 132\text{ K}$  sowohl bei sinkender als auch steigender Temperatur und somit keine Hysterese. Der scharfe, hysteresefreie Übergang ermöglicht die Abschätzung der durch den Laser verursachten Aufheizung der Probe an der beleuchteten Stelle. Diese Aufheizung kann durch den Vergleich von Energieverlust- und -gewinn-Spektren (Stokes- und Anti-Stokes-Prozess, vgl. Kap. 3.1) bestimmt werden. Eine Messung des Anti-Stokes-Spektrums mit geringer Leistung erfordert allerdings sehr lange Integrationszeiten und leidet unter einem schlechten Signal-Rausch-Verhältnis. Alternativ kann die Aufheizung auch durch Auswertung stark temperaturabhängiger Strukturen in den Spektren in der Umgebung eines Phasenübergangs bestimmt werden. Hierzu wurden die Messpunkte jeweils bei steigender Temperatur im Bereich des Übergangs (Haltertemperatur  $T = 130\text{-}135\text{ K}$ ) sowohl mit  $2\text{ mW}$  als auch  $1\text{ mW}$  Laserleistung gemessen. Die resultierenden Kurven sind in Abbildung 5.2 gezeigt, wobei für jeden Messpunkt der Mittelwert der bei  $70\text{ cm}^{-1}$  und  $100\text{ cm}^{-1}$  gemessenen Werte verwendet wurde. Die scheinbare Verschiebung des Übergangs resultiert dabei aus der unterschiedlichen Proben temperatur bei verschiedenen Laserleistungen und gleicher Temperatur des Probenhalters. Zur besseren Bestimmung des Übergangs wurden die Kurven mit der Funktion  $y = A \cdot \tanh\left(\frac{T-T_S}{c}\right) + t$  gefittet. Diese Fits sind in Abbildung 5.2 gestrichelt gezeichnet und beschreiben den Kurvenverlauf sehr gut. Die ermittelten Übergangstemperaturen sind als gepunktete Linien angedeutet. Aus den Fits ergibt sich eine Verschiebung des Übergangs um  $2,14\text{ K}$ , entsprechend einer Aufheizung der Probe um  $\approx 2\text{ K/mW}$ . Soweit nicht anders vermerkt bezeichnen die in diesem Kapitel angegebenen Temperaturwerte die Temperatur des Probenhalters ohne Aufheizung durch den Laser.

Gegenüber der Bestimmung der Temperatur durch Messung von Stokes- und Anti-Stokes-Spektrum (vgl. Kap. 3.1) hat diese Methode den Vorteil, dass mit geringen Laserleistungen und entsprechend verringerten Temperaturgradienten in der Probe gemessen werden kann.

### 5.1.3. Verschiebung der Phasenübergänge

Während die spannungsfrei montierte Probe keinerlei Hysterese zeigt (Abb. 5.3a und 5.3b), beobachtet man unter uniaxialem Druck bei sinkender Temperatur zwei getrennte Übergänge bei  $T = 137\text{ K}$  und  $T = 134\text{ K}$  (Abb. 5.3c). Bei steigender Temperatur ist der Übergang bei  $T = 134\text{ K}$  noch eindeutig zu identifizieren, wohingegen der Übergang bei  $T = 137\text{ K}$  nicht erkennbar ist (Abb. 5.3d). Die in der Messung mit steigender Temperatur oberhalb von  $141\text{ K}$  auftretenden Schwankungen konnten in der anschließenden Messreihe bei sinkender Temperatur nicht nachgewiesen werden. Insgesamt zeigt sich unter Druck eine deutliche Aufspaltung des Phasenübergangs in zwei um ca.  $3\text{ K}$  getrennte Übergänge.

## 5.2. Auswirkung des Drucks auf die Fluktuationen

Zur Untersuchung des Einflusses von uniaxialen Druck auf die Fluktuationen wurden bei  $T = 140\text{ K}$  Spektren in  $x'y'$ -Polarisation mit und ohne Druck aufgenommen (Abb. 5.4). Beide Spektren wurden mit Schrittweite  $5\text{ cm}^{-1}$  und Auflösung  $6,5\text{ cm}^{-1}$  bei  $4\text{ mW}$  absorbierter Laserleistung gemessen.

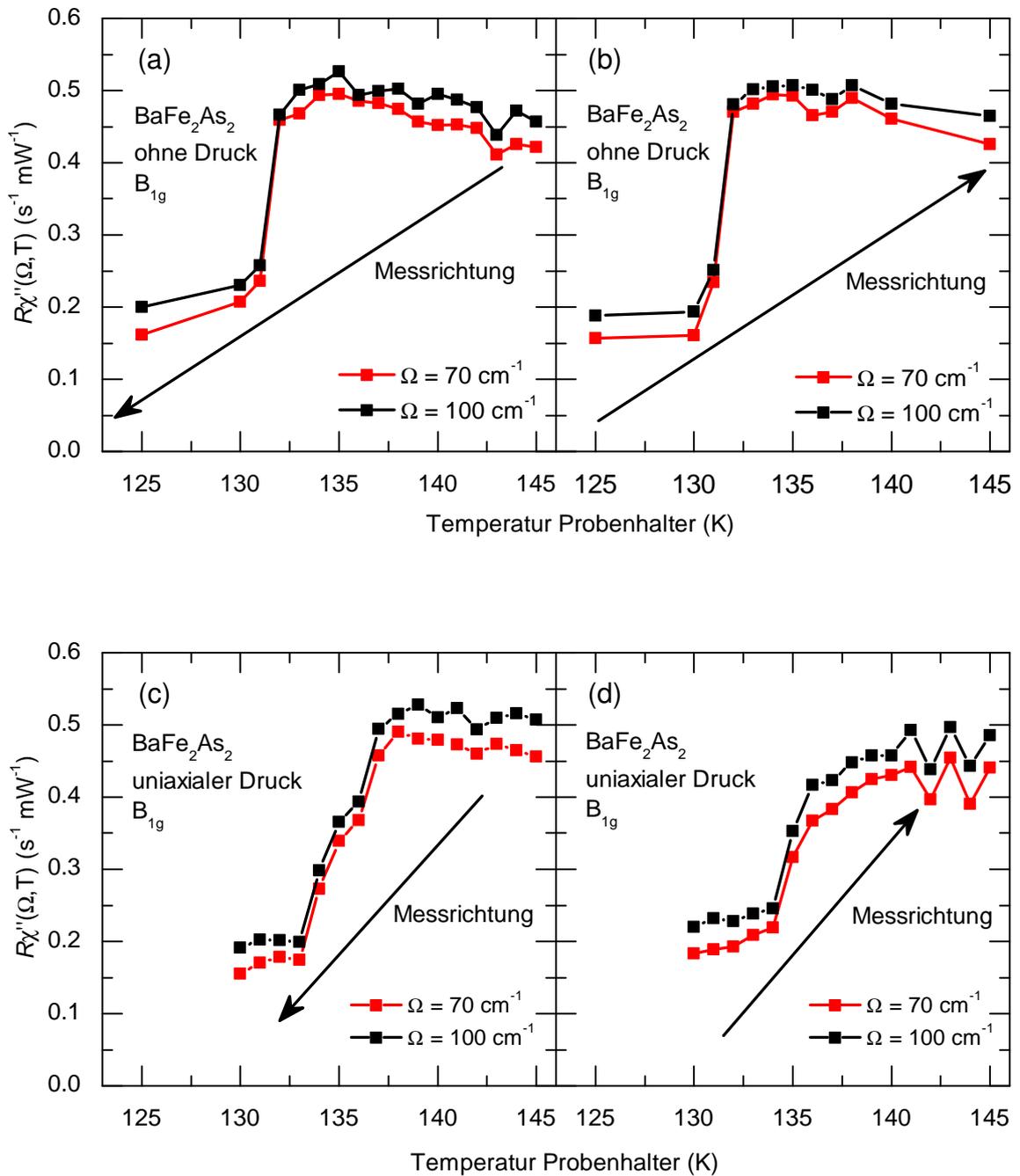


Abbildung 5.3. Raman-Response bei  $\Omega = 70 \text{ cm}^{-1}$  (rote Kurven) und  $\Omega = 100 \text{ cm}^{-1}$  (schwarze Kurven) mit Auflösung  $50 \text{ cm}^{-1}$  (a) ohne Druck bei sinkender Temperatur (b) ohne Druck bei steigender Temperatur (c) mit uniaxialem Druck bei sinkender Temperatur (d) mit uniaxialem Druck bei steigender Temperatur

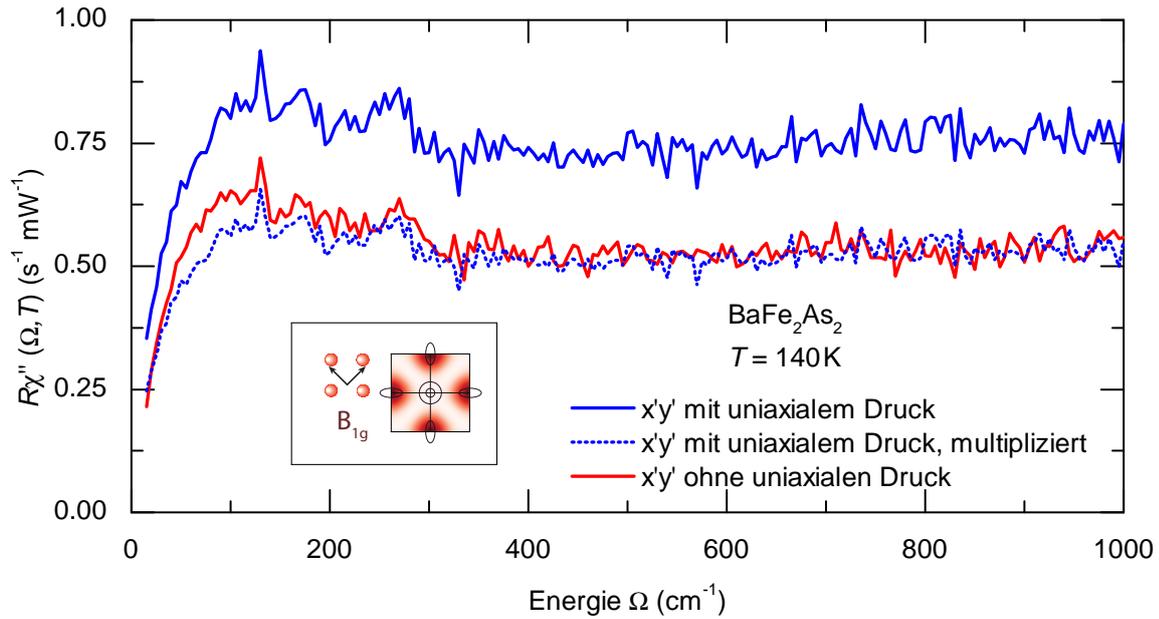


Abbildung 5.4. Raman-Spektren an BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> bei  $T = 140$  K ohne Druck und unter uniaxialem Druck in  $x$ -Richtung. Das blau gepunktet gezeichnete Spektrum ergibt sich aus dem Spektrum der Probe unter Druck durch multiplikative Anpassung an das Spektrum der entspannten Probe im Bereich  $700\text{-}1000\text{ cm}^{-1}$ .

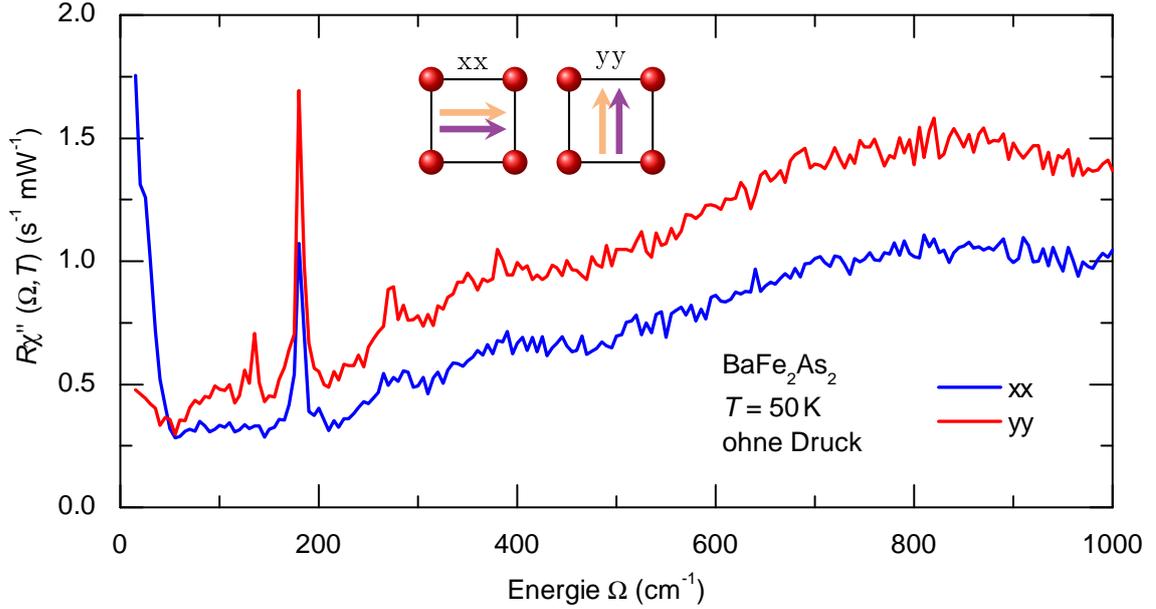
Durch die  $x'y'$ -Polarisation werden die Symmetrien  $B_{1g}$  und  $A_{2g}$  herausprojiziert. Beide Spektren zeigen einen deutlichen Unterschied in der Gesamtintensität. Als Ursache wird vermutet, dass die Leistungsmessung durch eine Veränderung des Strahldurchmessers zwischen den beiden Messungen nicht ausreichend reproduzierbar war.

Der spektrale Verlauf beider Spektren ist bei hohen Energien ( $\Omega = 700\text{-}1000\text{ cm}^{-1}$ ) gleich. Passt man das Spektrum der Probe unter Druck (blaue Kurve in Abb. 5.4) in diesem Bereich multiplikativ an das Spektrum der entspannten Probe (rote Kurve) an, so erhält man das blau gepunktet gezeichnete Spektrum. Hier zeigt sich im Vergleich der Messungen der Probe mit und ohne externen Druck eine Veränderung des spektralen Verlaufs im Bereich  $30\text{-}200\text{ cm}^{-1}$ . Dies liegt im Bereich des Fluktuationspeaks. Somit kann man auf eine Veränderung der Fluktuationen durch den externen uniaxialen Druck schließen.

### 5.3. Elektronische Anisotropie bei $T = 50$ K

An durch uniaxialen Druck entzwilligten BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>-Proben in der orthorhombischen magnetisch geordneten Phase ( $T < T_{\text{SDW}}$ ) wurde bei den Transporteigenschaften [21, 38, 26], der Reflektivität [22] und in ARPES-Messungen [23] eine deutliche Anisotropie der elektronischen Eigenschaften entlang der inäquivalenten Eisenachsen festgestellt.

Um die vorliegende Probe bezüglich einer derartigen Anisotropie zu untersuchen, wurden Messungen bei  $T = 50$  K in der orthorhombischen SDW-Phase durchgeführt. Die gewählten Polarisationen  $xx$  und  $yy$  lagen dabei entlang des ausgeübten Drucks ( $xx$ ) bzw. orthogonal dazu ( $yy$ ). An der entzwilligten Probe wurden zusätzlich die Polarisationen  $x'x'$  und  $y'y'$  gemessen. Zur Verifikation wurde anschließend die Probe einschließlich des Probenhalters bei unverändertem Druck um  $45^\circ$  gedreht und Spektren mit gleicher Polarisationsorientierung im Laborsystem aufgenommen. Abschließend wurden Spektren der entspannten, nicht rotierten Probe aufgenommen. Alle Messungen wurden mit einer absorbierten Laserleistung von  $4\text{ mW}$  durchgeführt.


 Abbildung 5.5. Raman-Spektren an  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  ohne Druck bei  $T = 50 \text{ K}$ 

Zur Beschleunigung des Messvorgangs wurden einige Spektren in zwei Teilen gemessen. Im niederenergetischen Bereich ( $\Omega < 1000 \text{ cm}^{-1}$ ) wurden dabei eine Schrittweite von  $5 \text{ cm}^{-1}$  und Auflösung von  $6,5 \text{ cm}^{-1}$  gewählt. Im höherenergetischen Bereich wurden die Schrittweite auf  $10 \text{ cm}^{-1}$  und die Auflösung auf  $25 \text{ cm}^{-1}$  erhöht.

Abbildung 5.5 zeigt Messungen in  $xx$ - und  $yy$ -Polarisation an der  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ -Probe ohne Druck. Das  $yy$ -Spektrum hat bei gleichem spektralen Verlauf fast durchgehend eine höhere Intensität als das  $xx$ -Spektrum. Beim starken Peak bei  $\Omega = 180 \text{ cm}^{-1}$  handelt es sich um das  $A_g$ -Phonon, in  $yy$  sind zusätzlich bei  $\Omega = 130 \text{ cm}^{-1}$  und  $270 \text{ cm}^{-1}$  die  $E_g$ -Phononen sichtbar. Der starke Anstieg in  $xx$  sowie der ebenfalls sichtbare Anstieg in  $yy$  unterhalb von  $50 \text{ cm}^{-1}$  sind auf elastisch gestreutes Licht zurückzuführen. Weder in der Intensität des  $A_g$ -Phonons ( $\Omega = 180 \text{ cm}^{-1}$ ) relativ zum elektronischen Kontinuum noch im spektralen Verlauf ist eine Anisotropie zwischen  $x$ - und  $y$ -Richtung erkennbar.

Die an der Probe unter uniaxialem Druck gemessenen Spektren sind in Abbildung 5.6 gezeigt. In allen Spektren als schmaler Peak erkennbar ist das  $A_s$ -Phonon bei  $\Omega = 180 \text{ cm}^{-1}$ . Beim dominierenden Peak in den  $B_{2g}$ -Spektren handelt es sich um das  $\text{Fe}$ -Phonon bei  $\Omega = 215 \text{ cm}^{-1}$ . Es sei darauf hingewiesen, dass die hier verwendeten Achsen aus den oben beschriebenen Gründen gegenüber den kristallographischen Achsen um  $45^\circ$  gedreht sind (vgl. 3.2.2 und Abb. 3.3) und die hier als  $B_{2g}$  bezeichnete Symmetrie im Kristallsystem  $B_{1g}$  ist. Im Kristallsystem hat die Schwingung also die übliche Symmetrie [39, 40].

Enthält das einfallende Licht Polarisationsanteile in  $y$ -Richtung (zutreffend bei  $yy$ ,  $x'x'$  und  $y'y'$ ), so erhält man eine Projektion auf die  $z$ -Achse. Somit werden in diesen Polarisationen zusätzlich die Phononen mit  $E_g$ -Symmetrie bei  $\Omega = 125 \text{ cm}^{-1}$  und  $\Omega = 270 \text{ cm}^{-1}$  angeregt.

Bei den Messungen in  $xx$ - und  $yy$ -Polarisation an der nicht rotierten Probe (Abb. 5.6a) zeigt sich eine eindeutige Anisotropie zwischen der Richtung des uniaxialen Drucks ( $x$ ) und der dazu orthogonalen Richtung ( $y$ ).

Bei Wellenzahlen unter  $\Omega \approx 560 \text{ cm}^{-1}$  ist in  $yy$ -Polarisation mehr Intensität feststellbar. Insbesondere unterscheiden sich die  $xx$ - und  $yy$ -Intensitäten des  $A_g$ -Phonons ( $A_{1g}$  im tetragonalen

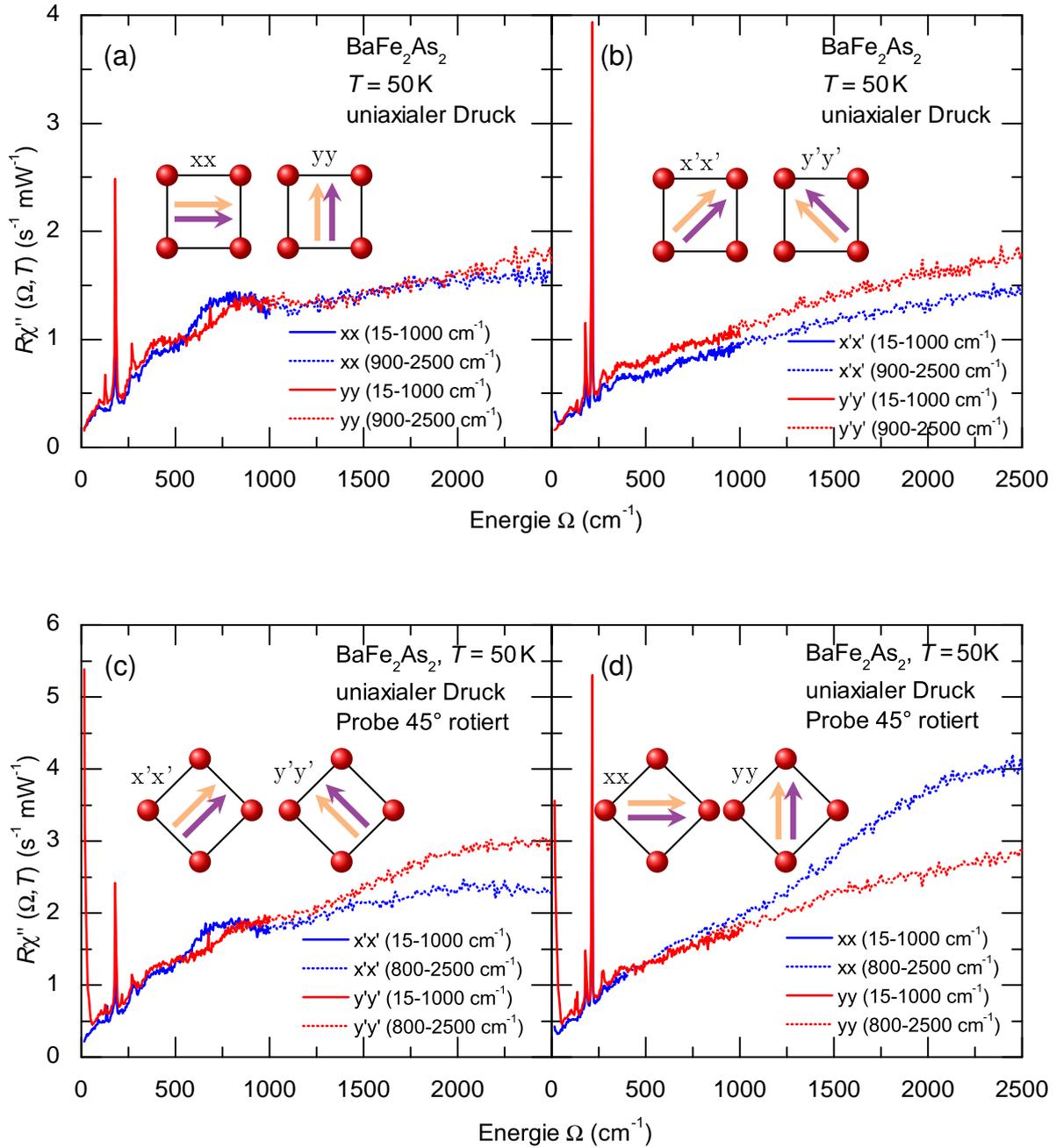


Abbildung 5.6. Raman-Spektren an  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  unter uniaxialem Druck entlang der Fe-Fe-Bindungen bei  $T = 50 \text{ K}$ .

(a),(b) Hier sind die Fe-Fe-Bindungen parallel zum Laborsystem ausgerichtet. (c),(d) In dieser Einbaulage sind die Fe-Fe-Bindungen um  $45^\circ$  gegenüber dem Laborsystem gedreht. Dadurch werden die Richtungen parallel und senkrecht zum Druck optisch äquivalent. In Abb. (b) und (c) wurden die hochenergetischen Spektren ( $900-2500 \text{ cm}^{-1}$ ) im Überlappbereich an die niederenergetischen angepasst.

System) um annähernd einen Faktor 2,5. Im Bereich  $\Omega \approx 560\text{-}850\text{ cm}^{-1}$  ist hingegen die Intensität in xx-Polarisation deutlich erhöht. Bei Energien oberhalb  $\Omega \approx 1000\text{ cm}^{-1}$  sind die Unterschiede gering. Ab  $\Omega \approx 2000\text{ cm}^{-1}$  zeigt sich wiederum ein Intensitätszuwachs in yy-Polarisation.

Im Gegensatz zu dieser klaren Anisotropie ist in den Spektren in x'x'- und y'y'-Polarisation 5.6b kein Unterschied im spektralen Verlauf erkennbar. Im Bereich bis  $\Omega \approx 1000\text{ cm}^{-1}$  liegt das y'y'-Spektrum oberhalb des x'x'-Spektrums. Beim Anstieg des x'x'-Spektrums unterhalb von  $\Omega \approx 50\text{ cm}^{-1}$  handelt es sich um von Unregelmäßigkeiten in der Probenoberfläche elastisch gestreutes Licht.

Das Problem des vermehrten elastischen Streulichts ist bei der um  $45^\circ$  gedrehten Probe noch verstärkt. Durch die Drehung trifft ein Teil des eingestrahlen Laserlichts auf die Halteklammer und wird dort elastisch gestreut. In den y'y'- und yy-Spektren resultiert dies in einem starken Anstieg der Intensität unterhalb von  $50\text{ cm}^{-1}$ .

Zu beachten ist, dass durch die Drehung der Probe auch eine Drehung der Polarisierungen notwendig ist. Es ergeben sich Entsprechungen gemäß Tabelle 5.1.

projizierte Symmetrien	nicht rotierte Probe	rotierte Probe
$A_{1g} + B_{1g}$	xx	x'x'
$A_{1g} + B_{1g}$	yy	y'y'
$A_{1g} + B_{2g}$	x'x'	yy
$A_{1g} + B_{2g}$	y'y'	xx

Tabelle 5.1. Beziehung zwischen Polarisierungen und projizierten Symmetrien für tetragonales  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . Die Polarisierungen sind im Laborsystem angegeben.

Die x'x'- und y'y'-Spektren der gedrehten Probe (Abb. 5.6c) zeigen dieselbe Anisotropie des spektralen Verlaufs wie die entsprechenden xx- und yy-Spektren der nicht rotierten Konfiguration. Insbesondere der starke Intensitätsunterschied im Bereich  $\Omega \approx 560\text{-}850\text{ cm}^{-1}$  sowie beim Phonon-Peak bei  $\Omega = 180\text{ cm}^{-1}$  ist deutlich erkennbar.

Die Spektren in xx- und yy-Polarisation (Abb. 5.6d) zeigen bis  $\Omega \approx 500\text{ cm}^{-1}$  den gleichen Verlauf wie die x'x'- bzw. y'y'-Spektren der nicht rotierten Probe. Oberhalb zeigt sich in xx-Polarisation ein erkennbarer starker Anstieg der Intensität ab ca.  $1200\text{ cm}^{-1}$ . Dieser starke Anstieg ist in der nicht rotierten Probe nicht zu beobachten. Möglicherweise handelt es hierbei um die Fluoreszenz des verwendeten GE Varnish Klebers oder von Verunreinigungen auf der Probe (z.B. Flussmittel, siehe hierzu auch Kap. 4.4).

Abbildung 5.7 zeigt Spektren in  $B_{1g}$ -Symmetrie, die bei externem uniaxialen Druck (blaues Spektrum) und an der entspannten Probe (rotes Spektrum) gemessen wurden. Zum einfacheren Vergleich wurde das Spektrum der Probe unter Druck an das Spektrum der relaxierten Probe angepasst. Das entsprechend multiplizierte Spektrum ist blau gepunktet eingezeichnet. Aus dem Vergleich der beiden Spektren ergibt sich kein Hinweis auf einen Einfluss des uniaxialen Drucks auf den spektralen Verlauf. Insbesondere zeigt der bei  $\Omega = 350\text{ cm}^{-1}$  sichtbare Anstieg, der mit der SDW assoziiert werden kann (vgl. Kap. 6.3), keine Verschiebung.

Bei den in Abbildung 5.8 gezeigten Messungen oberhalb des Phasenübergangs, somit in der tetragonalen Phase, bei  $T = 140\text{ K}$  zeigt sich oberhalb von  $\Omega = 400\text{ cm}^{-1}$  kein Unterschied zwischen den Spektren in xx- und yy-Polarisation. Bei niedrigeren Energien liegt wiederum das yy-Spektrum oberhalb des xx-Spektrums. Das spektrale Gewicht des  $A_{1g}$ -Phonons zeigt keine signifikante Anisotropie zwischen xx und yy.

Insgesamt zeigt sich unter uniaxialen Druck in der orthorhombisch verzerrten SDW-Phase eine

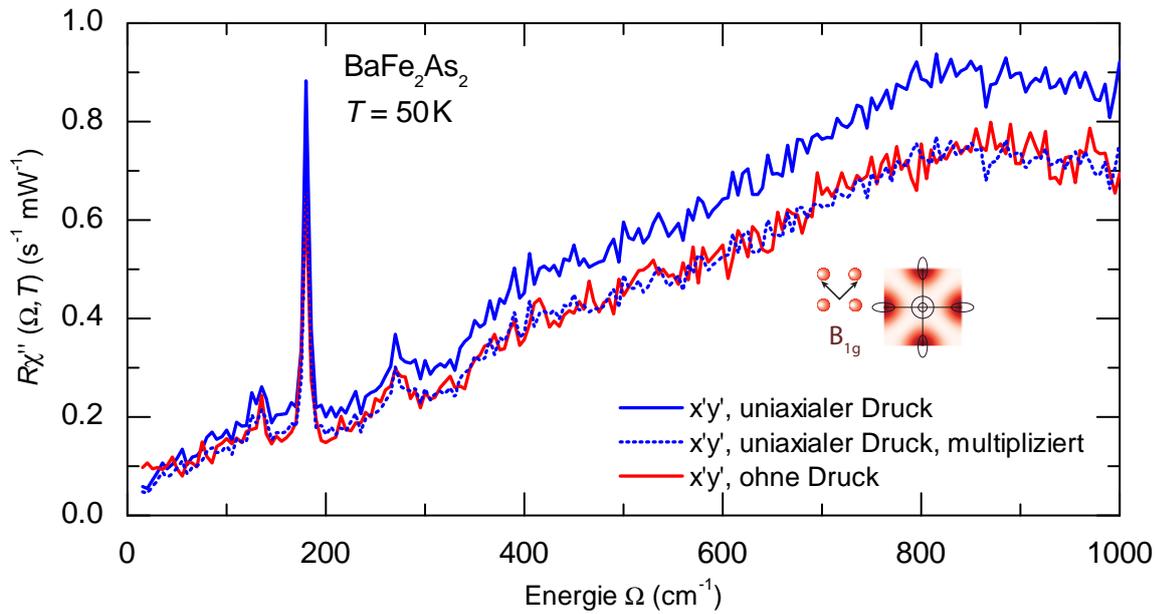


Abbildung 5.7. Vergleich der Spektren in B<sub>1g</sub>-Symmetrie (x'y'-Polarisation) der Probe mit und ohne externen uniaxialen Druck. Das blau gepunktete Spektrum ergibt sich aus dem blau gezeichneten Spektrum der Probe unter Druck durch multiplikative Anpassung an das rot gezeichnete Spektrum der entspannten Probe.

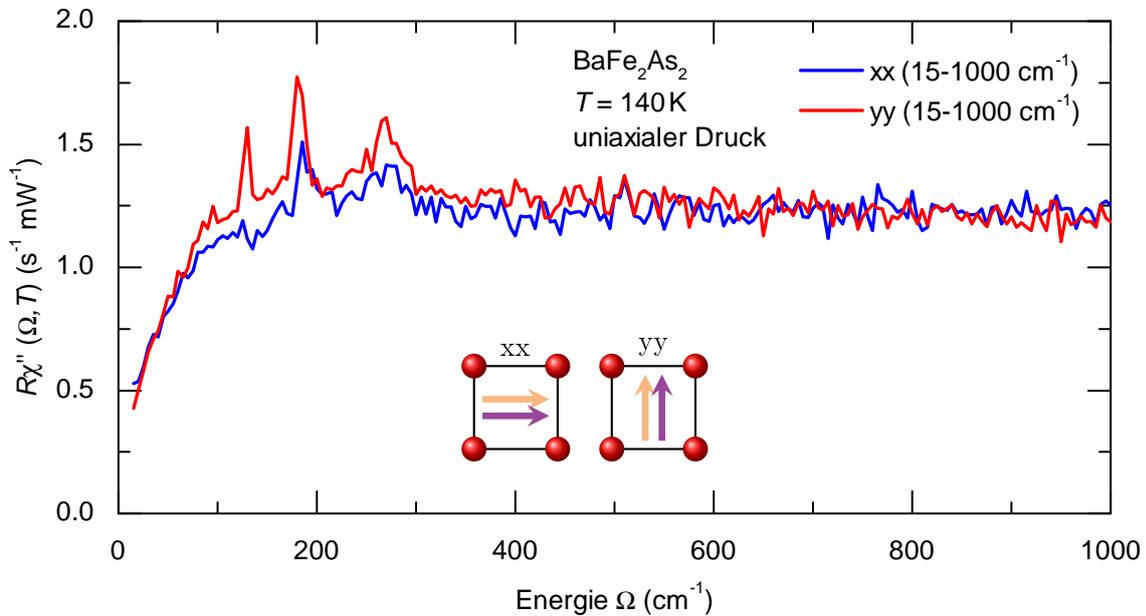


Abbildung 5.8. Raman-Spektren von BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> unter uniaxialen Druck in x-Richtung bei T = 140 K. Die im Laborsystem als x bezeichnete Richtung entspricht der kristallographischen b-Achse.

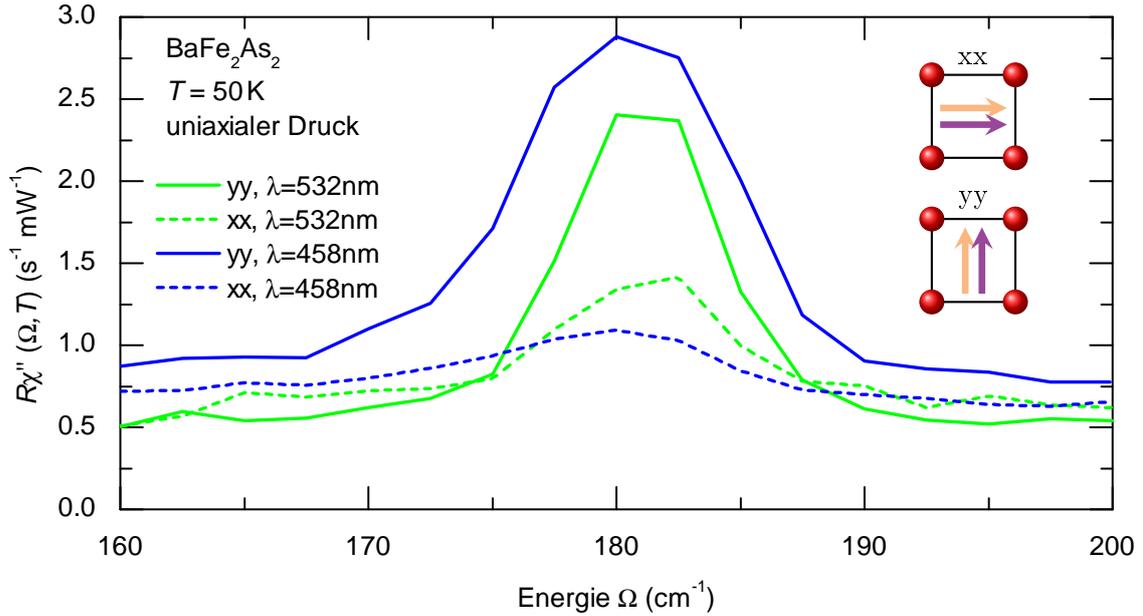


Abbildung 5.9.  $A_g$ -Phonon in der durch uniaxialen Druck entzwilligten  $BaFe_2As_2$  Probe bei  $T = 50$  K. Die Druckrichtung ( $x$  im Laborsystem) entspricht der kristallographischen  $b$ -Achse in der SDW-Phase. Die Farben der Spektren entsprechen denen der Laserlinie. Gestrichelt und durchgezogen symbolisiert  $xx$  bzw.  $yy$ .

klare Anisotropie im spektralen Verlauf und in der Intensität des  $A_g$ -Phonons für Polarisierungen parallel und senkrecht zur Druckrichtung, wohingegen bei den um  $45^\circ$  gedrehten Polarisierungen keine Anisotropie erkennbar ist. Diese Anisotropie kann auch an der um  $45^\circ$  gedrehten Probe in den entsprechenden Polarisierungen beobachtet werden, an der Probe ohne Druck allerdings nicht. Es kann somit ausgeschlossen werden, dass es sich um einen aus dem Messaufbau und optischen Artefakten wie Fehlpolarisationen resultierenden Effekt handelt.

#### 5.4. Intensitätsanisotropie des $A_g$ -Phonons

Die in der SDW-Phase erkennbare deutliche Anisotropie der Intensität des  $A_g$ -Phonons parallel und senkrecht zum uniaxialen Druck wurde genauer untersucht. Abb 5.9 zeigt Spektren, die mit verschiedenen Wellenlängen gemessen wurden, um die Ursache der Intensitätsanisotropie zu klären.

Um festzustellen, ob es sich bei den Intensitätsunterschieden des  $A_g$ -Phonons zwischen  $xx$  und  $yy$  um einen Resonanzeffekt handelt, wurden bei  $T = 50$  K je ein  $xx$ - und  $yy$ -Spektrum im Bereich  $\Omega = 160$ - $200$   $cm^{-1}$  mit Schrittweite  $2,5$   $cm^{-1}$  und  $6,5$   $cm^{-1}$  Auflösung mit Laserlicht der Wellenlängen  $\lambda = 458$  nm (Ar-Laser) und  $\lambda = 532$  nm (NdYAG-Laser) aufgenommen.

Für die beiden Wellenlängen ist ein deutlicher Unterschied der Phononintensitäten zwischen  $xx$ - und  $yy$ -Polarisation erkennbar. Unterschiede bei verschiedenen Wellenlängen zeigen sich in der Breite der Peaks, die bei Anregung mit blauem Licht deutlich breiter sind, sowie in den höheren Intensitäten des Phonon-Peaks sowie des elektronischen Kontinuums in  $yy$ -Polarisation und bei  $\lambda = 458$  nm.

Außerdem wurden Spektren in  $yy$ -Polarisation (orthogonal zum Druck) bei verschiedenen Temperaturen aufgenommen. Die Spektren sind in Abbildung 5.10 gezeigt. Zur Verdeutlichung ist der durch einen Fit zu  $\Omega = 181,1$   $cm^{-1}$  bestimmte Mittelpunkt des Phonon-Peaks bei  $T = 50$  K als blau gestrichelte vertikale Linie eingezeichnet. Es sind Haltertemperaturen ohne

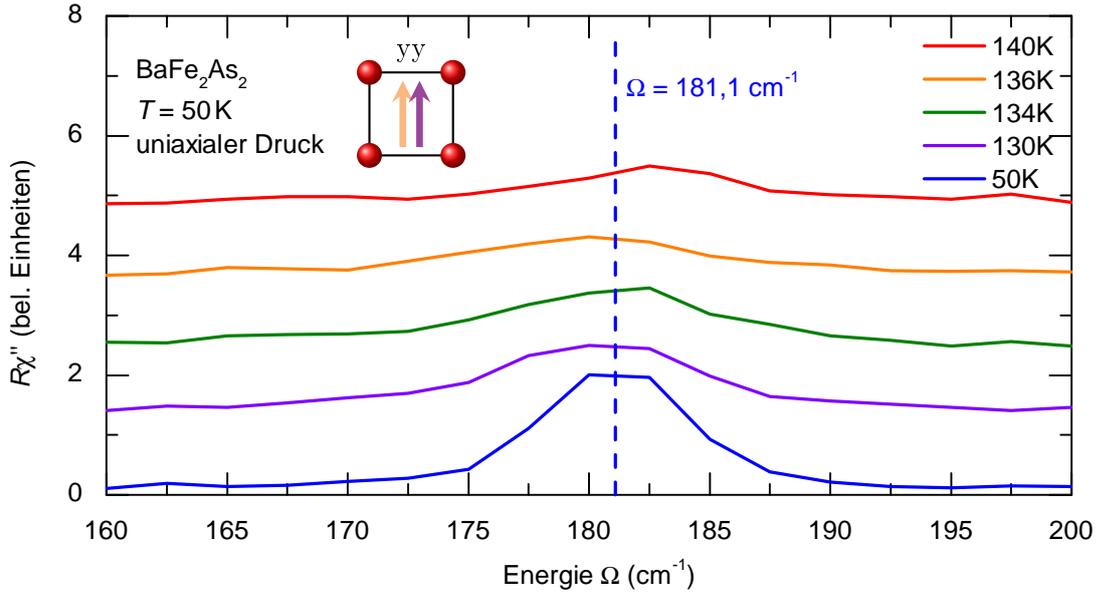


Abbildung 5.10.  $A_g$ -Phonon in  $yy$ -Polarisation unter uniaxialem Druck in  $x$ -Richtung bei verschiedenen Temperaturen. Die Spektren sind zur besseren Deutlichkeit um jeweils eine Einheit verschoben.

Laser-induzierte Aufheizung angegeben.

Deutlich erkennbar ist die abrupte Verschiebung des Peaks zu kleineren Energien bei Unterschreiten der Übergangstemperatur  $T_{TO}$  zur orthorhombischen Phase. Die Intensität des Phonons nimmt allerdings erst unterhalb von  $T = 134$  K stark zu und sättigt bis  $T = 50$  K. Die aufgrund des üblichen anharmonischen Zerfalls zu erwartende Temperaturabhängigkeit zeigt sich als Verschiebung zu höheren Energien mit sinkender Temperatur zwischen  $T = 134$  K und  $T = 50$  K.

### 5.5. Aufspaltung des $E_g$ -Phonons bei $130\text{ cm}^{-1}$

Für das  $E_g$ -Phonon bei  $\Omega = 130\text{ cm}^{-1}$  wurde eine Aufspaltung in zwei frequenzverschobene Phononen unterhalb des strukturellen Übergangs vorhergesagt [39] und konnte mit Raman-Spektroskopie bestätigt werden [41]. Die Messung an entzwilligten Proben ermöglicht die Bestimmung der Aufspaltung bezüglich der anisotropen Richtungen im orthorhombisch verzerrten Kristall.

Zur Messung der  $E_g$ -Symmetrie muss die Polarisation des einfallenden Lichts eine Projektion auf die  $z$ -Achse haben. Durch Wahl der Polarisation des analysierten Streulichts kann die Aufspaltung entlang der kürzeren ( $x$ -Richtung, Richtung des uniaxialen Drucks) oder längeren Eisen-Achse ( $y$ -Richtung) untersucht werden.

Abbildung 5.11 zeigt die Spektren in  $yx$ - und  $yy$ -Polarisation. Bei den dominierenden Peaks handelt es sich um das  $B_{1g}$ -Phonon bei  $\Omega = 215\text{ cm}^{-1}$  in  $yx$  sowie um das  $A_g$ -Phonon bei  $\Omega = 180\text{ cm}^{-1}$  in  $yy$ . Das hochfrequente  $E_g$ -Phonon ist in  $yx$  bei  $275\text{ cm}^{-1}$  und in  $yy$  bei  $\Omega = 270\text{ cm}^{-1}$  erkennbar und zeigt somit im Rahmen der Messgenauigkeit keine signifikante Aufspaltung. Das oberhalb von  $T_{TO}$  bei  $\Omega = 130\text{ cm}^{-1}$  sichtbare  $E_g$ -Phonon spaltet richtungsabhängig auf. In  $yx$  tritt es bei  $\Omega = 135\text{ cm}^{-1}$  auf, entsprechend einer Verschiebung zu höheren Energien entlang der kürzeren Fe-Achse ( $x$ -Richtung). In  $yy$ -Polarisation liegt das Phonon bei  $\Omega = 125\text{ cm}^{-1}$  und ist somit entlang der längeren Fe-Achse zu niedrigeren Energien verschoben.

Die gesamte Aufspaltung beträgt  $10 \text{ cm}^{-1} = 1,24 \text{ meV}$ .

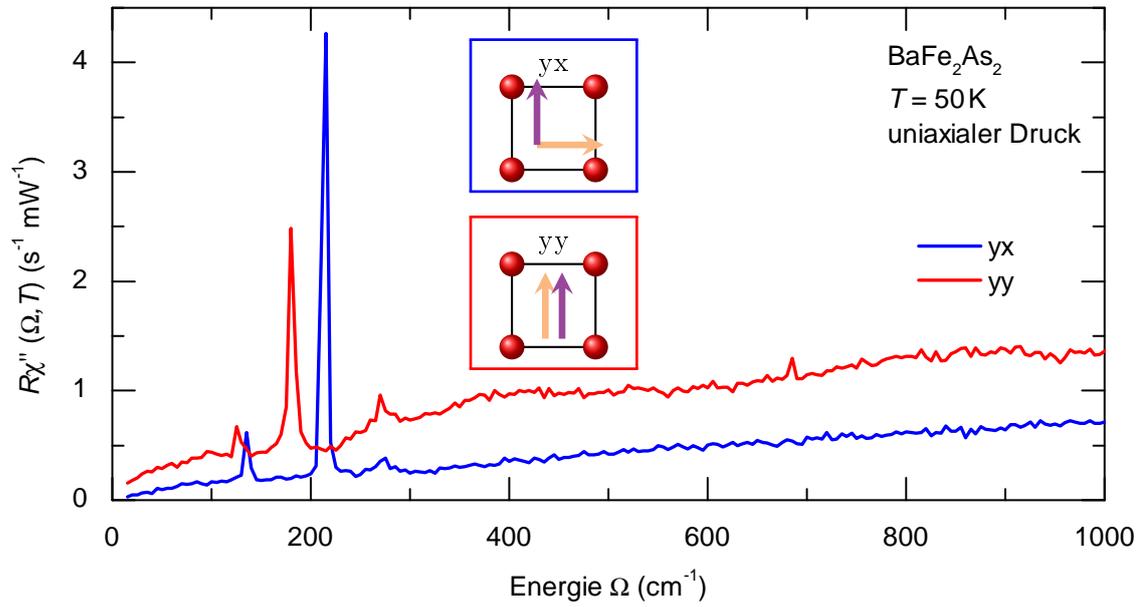


Abbildung 5.11. Aufspaltung des  $E_g$ -Phonons entlang der anisotropen Eisen-Achsen in der orthorhombischen Phase

## 6. Diskussion

### 6.1. Auswirkungen des uniaxialen Drucks auf den magneto-strukturellen Phasenübergang

#### 6.1.1. Aufspaltung und Verschiebung der Phasenübergänge

Die in Kapitel 5.1 gezeigten Messungen zur Bestimmung des Phasenübergangs zeigen klare Unterschiede zwischen den Messungen mit und ohne uniaxialen externen Druck. Die eingespannte Probe zeigt eine Hysterese zwischen den Messungen mit steigender und fallender Temperatur. Zwecks besserer Vergleichbarkeit sind die entsprechenden Ergebnisse in Abbildung 6.1 nebeneinander dargestellt. Dabei wurde für jeden Messpunkt der Mittelwert der bei  $\Omega = 70 \text{ cm}^{-1}$  und  $\Omega = 100 \text{ cm}^{-1}$  gemessenen Werte genommen. Zusätzlich wurde die in Kapitel 5.1.2 ermittelte Aufheizung durch den Laser berücksichtigt.

Bei den Messungen ohne uniaxialen Druck ist ein einziger, scharfer Übergang ohne Hysterese zu erkennen. Auch im Bereich der Fluktuationen oberhalb des Übergangs zeigt sich kein Unterschied im Temperaturverlauf. Bei der Probe unter uniaxialen Druck spaltet der Übergang bei sinkender Temperatur klar auf, wohingegen bei steigender Temperatur nur ein Übergang erkennbar ist. Oberhalb des Übergangs sind bei steigender Temperatur die Fluktuationen gegenüber der Richtung fallender Temperatur unterdrückt.

Zur besseren quantitativen Bestimmung der Übergänge wurden die Messpunkte mit der Funktion  $y = A \cdot \tanh\left(\frac{T-T_0}{\Delta T}\right) + t$  gefittet. Hierbei stellt  $T_0$  die Übergangstemperatur dar. Der Parameter  $\Delta T$  gibt die Übergangsbreite wieder. Diese Funktion beschreibt den Verlauf der Messkurven sehr gut. Es sei darauf hingewiesen, dass diese Fitfunktion nicht theoretisch oder phänomenologisch bestimmt wurde, sondern nur zur besseren quantitativen Behandlung der Messkurven dient. Die Messkurven mit den entsprechenden tanh-Fits sind in Abbildung 6.2 gezeigt. Die Aufheizung durch den Laser gemäß Kapitel 5.1.2 wurde berücksichtigt. Die vertikalen gepunktete Linien zeigen die Übergangstemperaturen der durch die Fits ermittelten Phasenübergänge.

Es ergeben sich für die Probe ohne Druck bei sinkender Temperatur der Übergang  $T_S = 135,33 \text{ K}$  mit Breite  $\Delta T = 0,43 \text{ K}$  und bei steigender Temperatur  $T_S = 135,26 \text{ K}$  mit Breite  $\Delta T = 0,41 \text{ K}$ . Im Rahmen der Genauigkeit und Temperaturstabilität des Messaufbaus sind diese beiden Übergänge als identisch anzusehen. Für Verschiebungen relativ zu diesem Übergang wird deshalb im Folgenden die gemittelte Temperatur  $\bar{T}_S = 135,30 \text{ K}$  als Berechnungsgrundlage verwendet.

Für die eingespannte Probe erhält man bei sinkender Temperatur eine Aufspaltung in zwei getrennte Phasenübergänge. Der Übergang bei höherer Temperatur  $T_{TO} = 140,39 \text{ K}$  mit Breite  $\Delta T = 0,580 \text{ K}$  wird dabei mit dem strukturellen Phasenübergang von der tetragonalen zur orthorhombischen Kristallstruktur identifiziert. Entsprechend ist dem Übergang bei  $T_{SDW} = 137,90 \text{ K}$  mit Breite  $\Delta T = 0,478 \text{ K}$  der Phasenübergang vom paramagnetischen Zustand zur SDW zuzuordnen.

Bei steigender Temperatur konnte der Phasenübergang bei höherer Temperatur nicht beobachtet werden. Der ermittelte Übergang liegt bei  $T_{SDW} = 138,77 \text{ K}$  und hat die Breite

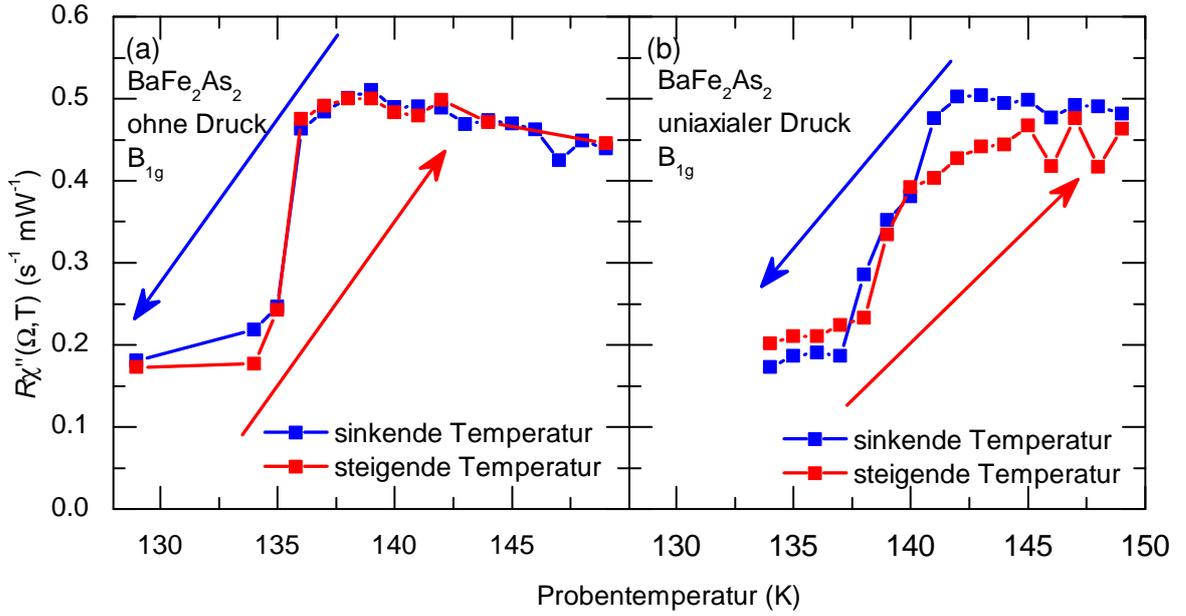


Abbildung 6.1. Phasenübergänge in BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> bei steigender und fallender Temperatur (a) ohne Druck (b) mit uniaxialem Druck

$\Delta T = 0,822 \text{ K}$ . Der Kurvenverlauf lässt dabei im Vergleich mit der Messkurve bei sinkender Temperatur darauf schließen, dass der sichtbare Übergang im Bereich  $T = 138\text{-}139 \text{ K}$  dem magnetischen Übergang entspricht, während der strukturelle Übergang bei höherer Temperatur stark verbreitert und somit nicht mehr klar zu identifizieren ist.

Die Identifikation des Phasenübergangs bei niedrigerer Temperatur als magnetischer Übergang ist konsistent mit den Messungen von Chu *et al.* [21], die in Widerstandsmessungen an BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> unter uniaxialem Druck keine Verschiebung des magnetischen Übergang, aber eine starke Verbreiterung des mit dem strukturellen Übergang verbundenen Peaks beobachten konnten. Im Gegensatz dazu ist allerdings in den hier gezeigten Messungen eine Verschiebung des magnetischen Übergangs gegenüber den Messungen ohne Druck um  $\Delta T_{\text{SDW}} = T_{\text{SDW}} - \bar{T}_{\text{S}} = 2,60 \text{ K}$  zu beobachten. Die Verschiebung des strukturellen Übergangs beträgt  $\Delta T_{\text{TO}} = T_{\text{TO}} - \bar{T}_{\text{S}} = 5,10 \text{ K}$ . Liang *et al.* konnten bei Transport-Messungen an BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> unter uniaxialem Druck eine Verschiebung der Übergangstemperatur  $T_{\text{S}}$  um 5 K bei Erhöhung des Drucks von 15 MPa auf 50 MPa beobachten [26], wobei keine Aufspaltung des Übergangs erkennbar war. Dhital *et al.* konnten mit Neutronenstreuung eine Verschiebung beider Übergänge schon bei geringen Drücken von  $p_{\text{uni}} = 0,7 \text{ MPa}$  beobachten [42].

### 6.1.2. Klassifikation der Phasenübergänge

Die Aufspaltung der Phasenübergänge unter uniaxialem Druck (Abb. 6.2c) erlaubt eine getrennte Betrachtung und Klassifikation. Oberhalb der Übergänge sind im Messbereich ( $\Omega = 20\text{-}150 \text{ cm}^{-1}$ ) Fluktuationen zu beobachten (vgl. Abb. 5.1). Der bei  $T = 140,4 \text{ K}$  beobachtbare Übergang zeigt sich somit als Verschwinden dieser Fluktuationen. Da das Auftreten von Fluktuationen auf einen Phasenübergang zweiter oder höherer Ordnung hindeutet kann dieser Übergang, der als struktureller Phasenübergang identifiziert wird, entsprechend als Phasenübergang zweiter Ordnung festgelegt werden.

Beim Phasenübergang bei  $T = 137,9 \text{ K}$ , der mit dem magnetischen Übergang identifiziert

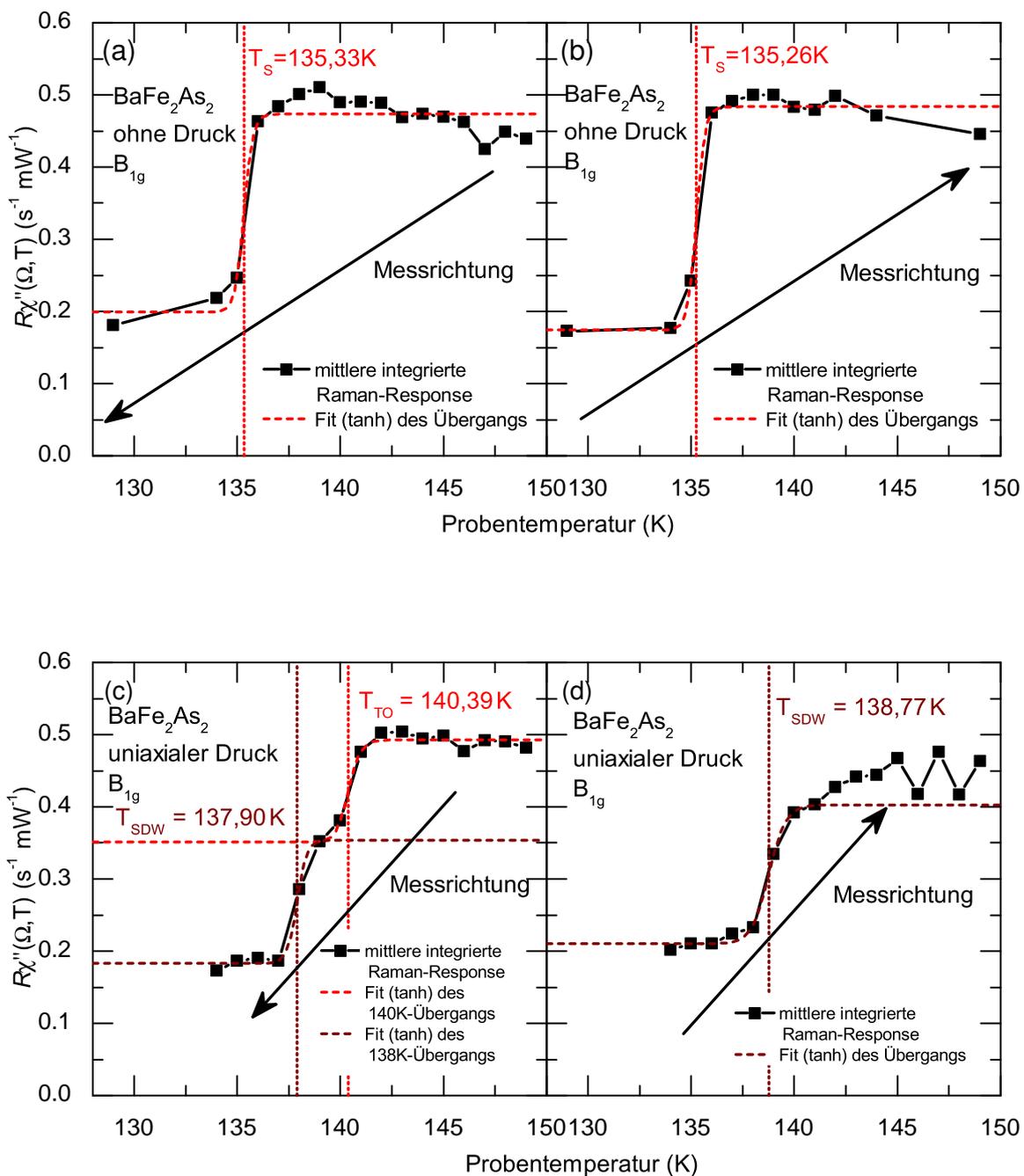


Abbildung 6.2. Fit der ermittelten Phasenübergänge mit tanh-Funktion (a) Probe ohne Druck, sinkende Temperatur (b) Probe ohne Druck, steigende Temperatur (c) Probe unter uniaxialem Druck, sinkende Temperatur (d) Probe unter uniaxialem Druck, steigende Temperatur

wird, ist hingegen der Abfall der Intensität auf das Öffnen der mit der SDW verbunden Energielücke (vgl. Abb. 5.1) zurückzuführen. Es kann allerdings nicht endgültig ausgeschlossen werden, dass auch bei diesem Übergang Fluktuationen verschwinden. Dies ist allerdings als eher unwahrscheinlich anzusehen. Das fehlende Auftreten von Fluktuationen lässt leider keine gesicherte Aussage über die Ordnung des Phasenübergangs zu, da Fluktuationen nicht zwangsläufig mittels Raman-Spektroskopie beobachtbar sein müssen. Im Vergleich der magnetischen Übergänge der Probe unter Druck bei steigender und fallender Temperatur (Abb. 6.1b) kann man eine leichte Verschiebung ( $< 1$  K) erkennen. Unter Berücksichtigung der Temperaturstabilität und -genauigkeit der verwendeten Messapparatur lässt sich nicht endgültig klären, ob diese Beobachtung statistisch signifikant ist. Aus thermodynamischer Sicht wäre ein magnetischer Übergang erster Ordnung dann zu erwarten, wenn die Gitterverzerrung und die magnetische Ordnung zusammenfallen. Falls es sich jedoch um einen SDW-Übergang in einem System itineranter Elektronen handelt, würde man ohne Druck einen Übergang zweiter Ordnung und mit Druck einen Übergang schwach erster Ordnung erwarten.

Zusammenfassend kann der strukturelle Übergang mit dem Verschwinden von Fluktuationen in Verbindung gebracht und somit prinzipiell als Phasenübergang zweiter Ordnung klassifiziert werden. Möglicherweise wird der strukturelle Phasenübergang durch orbitale Polarisierung induziert. Derartige Übergänge sind aus den A15-Verbindungen bekannt [43]. Hierbei sind die Orbitale  $xz$  und  $yz$  (beide mit  $E_g$ -Symmetrie) am  $\Gamma$ -Punkt entartet. Durch die Aufhebung der Entartung kann die Energie des Systems abgesenkt werden. Dies erfordert eine Gitterverzerrung, wodurch die  $x$ - und  $y$ -Richtung inäquivalent werden. Sobald die Energieabsenkung durch die Aufhebung der Entartung die zur Verzerrung des Gitters nötige Energie übersteigt, findet der Übergang statt. Sollte der strukturelle Phasenübergang in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  auf dem gleichen Mechanismus basieren, so handelt es sich bei den bei  $T > T_{\text{TO}}$  sichtbaren Fluktuationen um orbitale Fluktuationen. Der entsprechende Phasenübergang ist somit zweiter Ordnung. Die stattfindende Gitterverzerrung kann allerdings mit einer (mit diesem Messaufbau nicht bestimmbar) Volumenänderung des Gitters einhergehen. Dies würde einen Phasenübergang leicht erster Ordnung ergeben. Auf einen Übergang erster Ordnung weist zudem die in der Intensität der Fluktuationen beobachtbare Hysterese hin.

Die Ordnung des magnetischen Übergang kann aus den vorliegenden Messungen nicht abschließend bestimmt werden, die Hinweise auf leicht hysteretisches Verhalten lassen jedoch einen Phasenübergang erster Ordnung vermuten. Eindeutig festgestellt werden konnte, dass das Verschwinden der Fluktuationen nicht mit dem magnetischen Phasenübergang einhergeht. Somit kann ausgeschlossen werden, dass die Fluktuationen magnetischer Natur bzw. mit der entstehenden magnetischen Ordnung assoziiert sind.

Es sei darauf hingewiesen, dass durch den ausgeübten Druck eine Änderung in der Ordnung der Phasenübergänge möglich ist. Insbesondere kann leider keine Aussage darüber getroffen werden, wie homogen der Druck auf die Probe ausgeübt wurde.

Die hier vorgestellten Messergebnisse decken sich mit den Messungen von Kim *et al.* [19], die an  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  ohne Druck einen strukturellen Übergang zweiter Ordnung bei  $T_{\text{S}} = 134,5$  K sowie einen davon getrennten magnetischen Übergang erster Ordnung bei  $T_{\text{N}} = 133,75$  K beobachten konnten.

## 6.2. Auswirkung des uniaxialen Drucks auf die Fluktuationen

Im Vergleich der zur Bestimmung der Phasenübergänge der Probe unter uniaxialem Druck aufgenommenen Messkurven bei steigender und sinkender Temperatur (Abb. 6.1b) zeigt sich eine deutliche Unterdrückung der Fluktuationen oberhalb von  $T_{\text{S}}$  bei steigender Temperatur. Ein analoges Bild ergibt sich aus den Spektren mit  $B_{1g}$ -Symmetrie, die in Abbildung 6.3 ge-

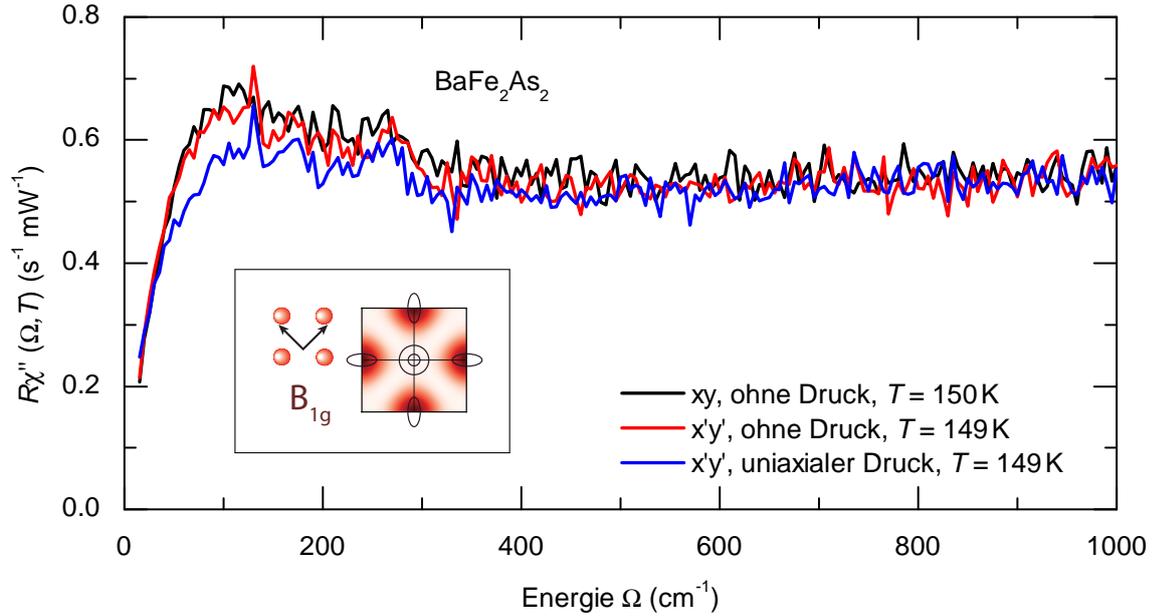


Abbildung 6.3. Spektren von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  mit und ohne uniaxialem Druck. Die Messung bei 150 K wurde an einem anderen Probenstück mit um  $45^\circ$  gedrehter Einbaulage durchgeführt.

zeigt sind. Die schwarz gezeichnete  $xy$ -Messkurve<sup>1</sup> wurde dabei von B. Muschler 2010 an einer weiteren Probe derselben Charge aufgenommen [15]. Alle drei Spektren zeigen im Bereich  $\Omega = 600\text{-}1000\text{ cm}^{-1}$  einen identischen spektralen Verlauf. Im Bereich des Fluktuationsspeaks ( $\Omega = 50\text{-}150\text{ cm}^{-1}$ ) zeigen sich zwischen den beiden Spektren ohne Druck keine signifikanten Unterschiede. Da das Kontroll- $x'y'$ -Spektrum (rot) ohne Druck nach den unter Druck durchgeführten Messungen aufgenommen wurde, kann somit gefolgert werden, dass durch den uniaxialen Druck keine irreversiblen Veränderungen der Probe aufgetreten sind.

Das Spektrum der eingespannten Probe (blau) zeigt eine sichtbare Unterdrückung der Fluktuationen um bis zu 15% der Intensität. Dieser Wert entspricht dem in den integralen Messungen beobachtbaren Unterschied (Abb. 6.1b). Da das Spektrum gemessen wurde, nachdem die Proben temperatur von unten kommend eingestellt worden war, ist der Unterdrückungseffekt eindeutig auf die Hysterese zurückzuführen.

Insgesamt ist somit bei steigender Temperatur eine eindeutige Unterdrückung der Fluktuationen in  $B_{1g}$ -Symmetrie oberhalb des strukturellen Phasenübergangs zu verzeichnen. Da der strukturelle Übergang mit dem Auftreten der Fluktuationen verknüpft und entsprechend als Phasenübergang zweiter Ordnung einzustufen ist, erwartet man keine Hysterese. Dies weist auf einen Phasenübergang leicht erster Ordnung hin.

### 6.3. Elektronische Anisotropie bei $T = 50\text{ K}$

In der orthorhombischen, magnetisch geordneten Phase zeigt sich in den Spektren mit Polarisationen entlang der Fe-Achsen ( $xx$ ,  $yy$ ) eine klare Anisotropie im spektralen Verlauf (Abb. 5.6a). Die wichtigsten Merkmale stellen dabei die Anisotropie der Intensität des  $A_g$ -Phonons bei  $\Omega = 180\text{ cm}^{-1}$  und die der Position des Maximums in der Umgebung von  $\Omega = 850\text{ cm}^{-1}$  dar. Im Gegensatz dazu finden sich keine Hinweise für eine Anisotropie des Anstiegs bei  $\Omega = 350\text{ cm}^{-1}$ .

<sup>1</sup>Diese Messung wurde an einem anderen Probenstück durchgeführt, das mit um  $45^\circ$  rotierten Achsen eingebaut war. Folglich entspricht diese Polarisation der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten  $x'y'$ -Polarisation. In beiden Fällen werden die gleichen Symmetrien  $A_{2g}+B_{1g}$  projiziert.

Vor der Diskussion der Anisotropie des  $A_g$ -Phonons soll hier die elektronische Anisotropie interpretiert werden.

Der deutlich sichtbare Anstieg beider Spektren bei  $\Omega = 350 \text{ cm}^{-1}$  kann, wie schon in früheren Arbeiten vorgeschlagen, mit der Spin-Dichte-Welle assoziiert werden [44, 45]. Hier zeigt sich auch unter Druck kein Unterschied im spektralen Verlauf zwischen  $xx$  und  $yy$ . Dies lässt darauf schließen, dass der uniaxiale Druck keine fundamentalen Änderungen, außer einer eindomänigen Ausrichtung der Spins, am magnetisch geordneten Zustand hervorruft.

Gestützt wird diese Annahme durch den in  $xx$  und  $yy$  gleichen spektralen Verlauf im Bereich der SDW-Energielücke ( $\Omega \sim 0\text{-}550 \text{ cm}^{-1}$ ) mit Ausnahme der nur in  $yy$  sichtbaren  $E_g$ -Phononen. Der bei  $\Omega = 350 \text{ cm}^{-1}$  beobachtete Anstieg der Spektren tritt ebenfalls in den Spektren (Abb. 6.4) auf, die ohne äußeren Druck gemessen wurden. Diese Unempfindlichkeit gegenüber dem uniaxialen Druck weist darauf hin, dass dieser Effekt mit dem der SDW zugrunde liegenden Kondensat verbunden ist. Für dieses erwartet man keinen erkennbaren Einfluss des uniaxialen Drucks.

Abbildung 6.4 zeigt die  $xx$ - und  $yy$ -Spektren der Probe ohne uniaxialen Druck. Die Spektren wurden multiplikativ aneinander angepasst und zeigen einen identischen spektralen Verlauf ohne Anzeichen einer Anisotropie. Beim Vergleich von  $B_{1g}$ -Spektren oberhalb und unterhalb des SDW-Phasenübergangs (Abb. 5.1) zeigt sich für  $T < T_{\text{SDW}}$  eine Verschiebung spektraler Intensität von unterhalb in den Bereich oberhalb von  $\Omega \approx 550 \text{ cm}^{-1}$ . Der hieraus resultierende Peak hat sein Maximum bei  $\Omega \sim 850\text{-}870 \text{ cm}^{-1}$ . Dieser Peak zeigt sich auch in den Spektren, die mit äußerem uniaxialen Druck gemessen wurden (Abb. 5.6a). In  $xx$  befindet sich das Maximum bei  $\Omega \sim 800\text{-}820 \text{ cm}^{-1}$ . In  $yy$  zeigt sich dem gegenüber eine deutliche Verschiebung des Maximums hin zu  $\Omega \sim 870\text{-}920 \text{ cm}^{-1}$ .

Die SDW kann in erster Näherung mittels Molekularfeld-Näherung (MF, vgl. BCS-Theorie [2]) beschrieben werden. Demnach ergibt sich ein konstantes Verhältnis von Übergangstemperatur  $T_{\text{SDW}}$  und SDW-Energielücke  $\Delta_{\text{SDW}}^{\text{MF}}(0)$  bei  $T = 0 \text{ K}$  [46]. Die relative Änderung der Übergangstemperatur beträgt gemäß dem vorherigem Abschnitt  $2,60 \text{ K}/134 \text{ K} = 0,019$ . Die entsprechende Änderung der Signatur der Energielücke bei  $\Omega = 350 \text{ cm}^{-1}$  wäre somit  $6,7 \text{ cm}^{-1}$ . Eine derartige Verschiebung der Spektren kann nicht beobachtet werden, weshalb davon ausgegangen wird, dass der externe uniaxiale Druck keine Auswirkungen auf die SDW hat.

Die Ausbildung der SDW führt zu einer Verdopplung der Größe der Einheitszelle und entsprechend zu einer Halbierung der Brillouin-Zone. Das führt wiederum zu einer Rückfaltung der Energiebänder und zum Auftreten der Energielücke der SDW [47]. Da in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  hierbei ein Vielzahl von Bändern betroffen ist resultiert die Faltung in einer starken Modifikation der Bandstruktur [23, 48]. Da außerdem die Gitterstruktur von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  tetragonal-innenzentriert ist (vgl. Abb. 2.1) erhält man gegenüber einem rein tetragonalen Kristallsystem eine weitere Vergrößerung der Einheitszelle und eine damit einhergehende Verkleinerung der Brillouinzone. Dies führt zu einer zusätzlichen Rückfaltung der Energiebänder. Diese Faltungen können zusätzliche Energielücken ergeben, wobei diese Aussage hier nicht näher quantifiziert werden kann.

ARPES-Messungen an  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  haben eine deutliche Verschiebung der Energiebänder durch uniaxialen Druck gezeigt [23]. Eine derart starke Veränderung des Bänderschemas durch Druck in Kombination mit der zusätzlichen Rückfaltung der Bänder könnte zur beobachteten elektronischen Anisotropie bei  $\Omega \approx 800\text{-}1000 \text{ cm}^{-1}$  führen. Insbesondere sind hier zusätzliche Interbandübergänge zu erwarten. Die in ARPES beobachtete Verschiebung der Bänder zeigt dabei bei Temperaturen deutlich unterhalb des Phasenübergangs keine starke Veränderung. Entsprechend könnte durch Messungen der Anisotropie bei verschiedenen Temperaturen eine Aussage über den Zusammenhang zwischen der beobachteten Anisotropie und der Bandverschiebung getroffen werden. Durch Messungen bei verschiedenen Drücken ließe sich außerdem klären, ob die Anisotropie durch den Druck verursacht oder allein durch die Entzwilligung unter Druck

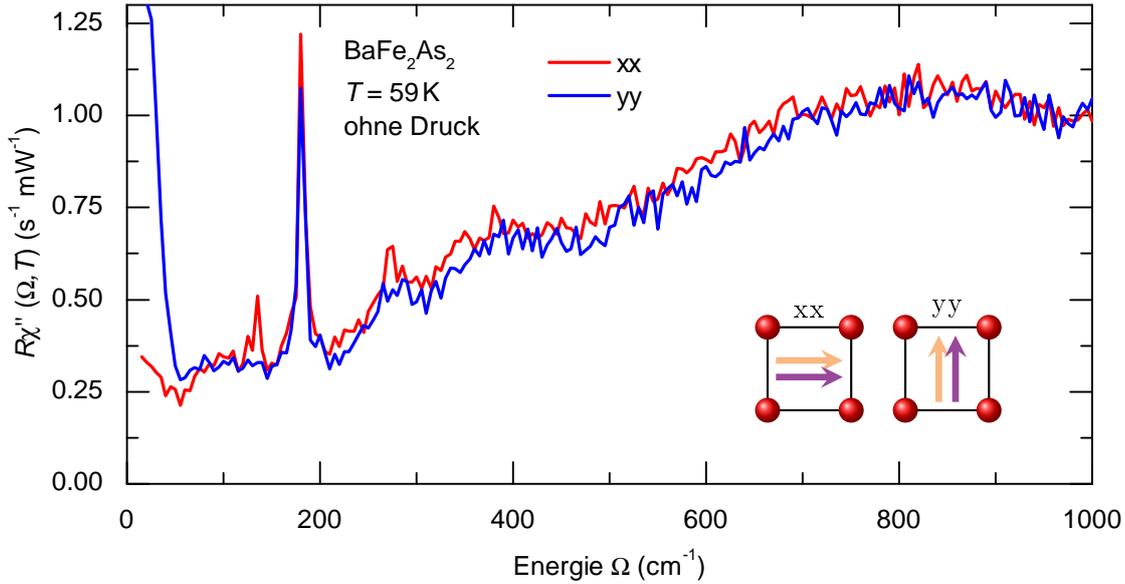


Abbildung 6.4. Raman-Spektren mit Polarisierungen parallel zu den Fe-Fe-Bindungen an  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  ohne Druck bei  $T = 59 \text{ K}$

sichtbar gemacht wird.

#### 6.4. Anisotropie und Temperaturabhängigkeit des $A_g$ -Phonons

Das bei  $\Omega = 180 \text{ cm}^{-1}$  auftretenden  $A_g$ -Phonon mit  $A_g$ -Symmetrie zeigt unterhalb des Phasenübergangs bei  $T_S = 134 \text{ K}$  einen deutlichen Anstieg der Intensität in  $yy$ -Polarisation sowie eine starke Anisotropie der gemessenen Intensität zwischen Spektren in Richtung des uniaxialen Drucks ( $xx$ ) und der dazu orthogonalen Polarisation ( $yy$ ).

Um die Temperaturabhängigkeit des Intensitätszuwachses genauer zu bestimmen, wurden Spektren in  $yy$ -Polarisation bei verschiedenen Temperaturen gemessen (Abb. 5.10). Zur quantitativen Beschreibung des Effekts wurden die ermittelten Phonon-Peaks nach Abzug einer Basislinie mit einer Gauß-Funktion gefittet. Exemplarisch sind in Abbildung 6.5 die Messung bei  $T = 136 \text{ K}$  und der entsprechende Fit gezeigt. Die sehr gute Beschreibung der Peaks durch die Gauß-Funktion lässt darauf schließen, dass die gemessene Breite (FWHM des gezeigten Fits:  $11,1 \text{ cm}^{-1}$ ) durch die spektrale Auflösung der Messapparatur gegeben ist.

Aus den Fits lassen sich die Höhe und die Fläche des Peaks, die Halbwertsbreite (FWHM - full width at half maximum), sowie die Position des Peak-Maximums bestimmen. Die ermittelten Werte sind in Abbildung 6.6 als Funktion der Temperatur aufgetragen. Dabei wurde die Messung bei  $T = 142 \text{ K}$  als Referenz gewählt und die ermittelten Fit-Daten auf den entsprechenden Wert bei dieser Temperatur normiert. Für die Peak-Position zeigt sich beim strukturellen Phasenübergang ( $T_{\text{TO}} = 140,4 \text{ K}$ ) eine sprunghafte Verschiebung zu niedrigeren Energien sowie eine erneute Erhöhung beim magnetischen Phasenübergang ( $T_{\text{SDW}} = 137,9 \text{ K}$ ). Die langsame Verschiebung zu höheren Energien mit sinkender Temperatur unterhalb der Phasenübergänge ist konsistent mit der zu erwartenden Energieerhöhung durch den Wegfall dämpfender anharmonischer Effekte bei niedrigen Temperaturen. Bei der Peak-Fläche und Peak-Höhe erhält man einen sprunghaften Anstieg bei Überschreiten des magnetischen Phasenübergangs, wohingegen die Veränderung am strukturellen Übergang vergleichsweise gering ausfällt. Zu tieferen Temperaturen nehmen beide Werte zu. Die Halbwertsbreite zeigt bei  $T_{\text{SDW}}$  ein Maximum und eine

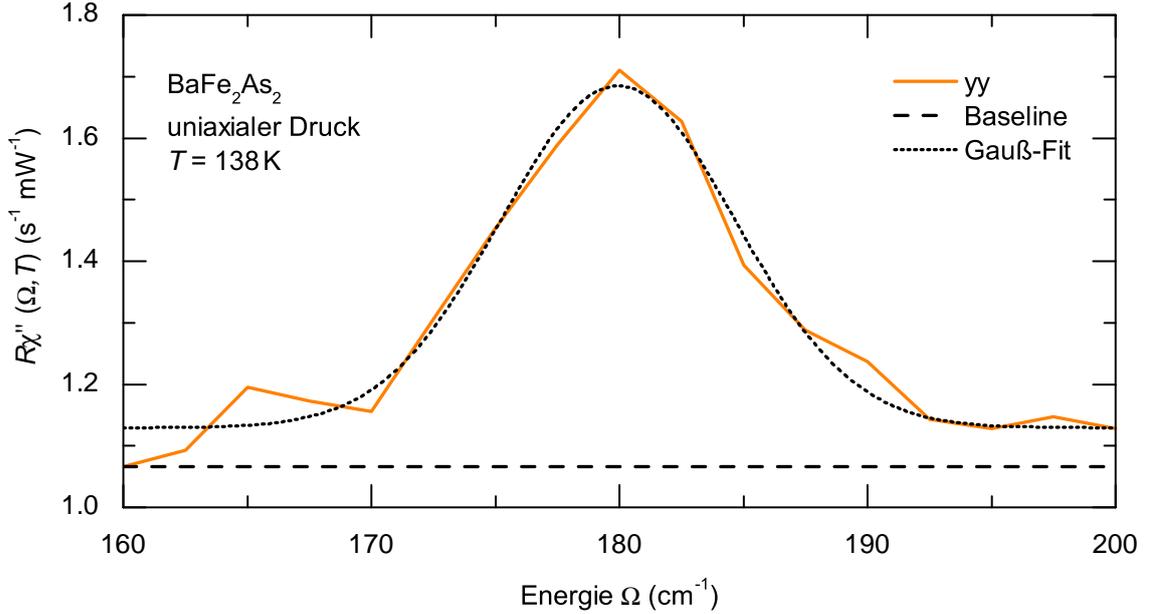


Abbildung 6.5. A<sub>g</sub>-Phonon bei  $T = 138$  K, yy-Polarisation unter uniaxialen Druck in  $x$ -Richtung. Gefittet wurde eine Gauß-Funktion nach Abzug der Basislinie.

Wellenlänge des Lasers	Verhältnis der Peak-Flächen	Verhältnis der Peak-Höhen	Verhältnis der Halbwertsbreiten
532 nm	2,216	2,588	0,856
458 nm	4,489	5,412	0,829

Tabelle 6.1. Anisotropie des A<sub>g</sub>-Phonons bei verschiedenen Laser-Wellenlängen

insgesamt nur sehr schwache Temperaturabhängigkeit.

Insgesamt zeigt sich eine sichtbare Verschiebung der Phonon-Energie bei beiden Phasenübergängen. Der beobachtete starke Intensitätszuwachs des Phonons tritt direkt unterhalb des magnetischen Phasenübergangs auf, was eine starke Kopplung des Phonons an die magnetische Ordnung vermuten lässt. Es konnte gezeigt werden, dass die magnetische Kopplung in BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> sehr empfindlich auf die Veränderung des Bindungswinkels zwischen den Fe- und As-Ebenen reagiert [49, 50]. Die Auslenkung der As-Atome durch das Phonon (vgl. Abb. 2.2) verursacht eine entsprechende Änderung dieses Bindungswinkels. Die hier gemessene Korrelation zwischen Phonon-Intensität und magnetischem Phasenübergang bestätigt dieses Bild.

Die Intensitätsanisotropie des A<sub>g</sub>-Phonons ist auf eine  $a$ - $b$ -Anisotropie der Matrixelemente und somit auf eine signifikante Abweichung von der tetragonalen Symmetrie zurückzuführen. Um herauszufinden wie diese Anisotropie zustande kommt, bzw. welche elektronischen Zwischenzustände beteiligt sein könnten, wurden Messungen bei zwei verschiedenen Wellenlängen durchgeführt (Abb. 5.9). Sowohl bei Anregung mit blauem als auch mit grünem Licht zeigt sich ein deutlicher Unterschied zwischen den Spektren mit xx- und mit yy-Polarisation. Für einen quantitativen Vergleich wurden die Peaks wiederum mit einer Gauß-Funktion gefittet. Die Peaks mit den entsprechenden Fits sind in Abbildung 6.7 gezeigt. Zur quantitativen Beschreibung der Anisotropie wurde für beide Wellenlängen jeweils das Verhältnis der durch die Fits ermittelten Flächen, Höhen und Halbwertsbreiten der Peaks in yy und xx berechnet. Die

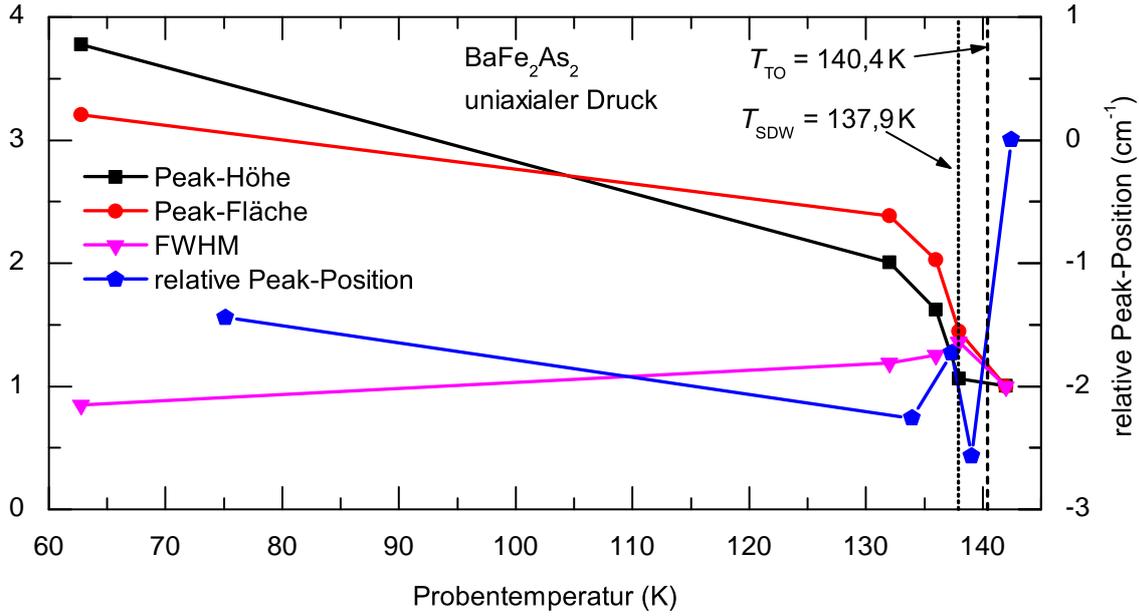


Abbildung 6.6. Temperaturabhängigkeit des  $A_g$ -Phonons. Peak-Höhe, -Fläche und -Halbwertsbreite sind auf den Wert bei  $T = 142$  K normiert (linke Ordinate). Die Verschiebung der Peak-Position relativ zur Position bei  $T = 142$  K ist in Wellenzahlen angegeben (rechte Ordinate). Die angegebene Temperatur ist die Temperatur der Probe unter Berücksichtigung der Aufheizung durch den Laser.

Ergebnisse zeigt Tabelle 6.1.

Während das Verhältnis der Halbwertsbreiten des Phonon-Peaks in  $xx$  und  $yy$  praktisch keine Unterschiede zwischen den Messungen mit verschiedenen Wellenlängen zeigt, nimmt die Anisotropie der Peak-Höhe und Peak-Fläche mit steigender Wellenlänge deutlich ab. Diese starke Abhängigkeit lässt darauf schließen, dass es sich bei der beobachteten Anisotropie der Intensität des  $A_g$ -Phonons um einen Resonanz-Effekt handelt, bei dem hochenergetische elektronische Zustände beteiligt sind. Zur weiteren Untersuchung dieser Vermutung wären Messungen mit weiteren Laser-Linien und ein Vergleich mit Absorptionsexperimenten notwendig. Falls sich der Trend von blau über grün nach rot fortsetzt, sollte die Anisotropie bei Anregung mit rotem Laserlicht weitgehend verschwinden. Ausschließen kann man eine direkte Kopplung des Phonons an die Leitungselektronen, da diese nicht von der Energie der Photonen abhängen sollte. Es dominiert also die Kopplung an Interbandübergänge, die aufgrund der Gitterverzerrung stark modifiziert werden.

## 6.5. Verschiebung des $E_g$ -Phonons

Das  $E_g$ -Phonon bei  $\Omega = 130$   $\text{cm}^{-1}$  zeigt in Raman-Spektren eine energetische Aufspaltung unterhalb des Phasenübergangs bei  $T_S = 134$  K [41]. Die hier durchgeführten Messungen an einer entzwilligten Probe ermöglichen detailliertere Aussagen über die Energieverschiebung des Phonons bezüglich der inäquivalenten Richtungen parallel und orthogonal zum Druck, welche den kürzeren bzw. längeren Kristallachsen respektive der Richtung ferromagnetischer bzw. antiferromagnetischer Ordnung entsprechen.

Abbildung 6.8 zeigt den relevanten Ausschnitt der Spektren, die mit  $yx$ - und  $yy$ -Polarisation gemessen wurden. Die Polarisation des einfallenden Lichts ist in beiden Fällen gleich, mit der Polarisation des gestreuten Lichts wird die Richtung parallel ( $x$ -Richtung) bzw. orthogonal

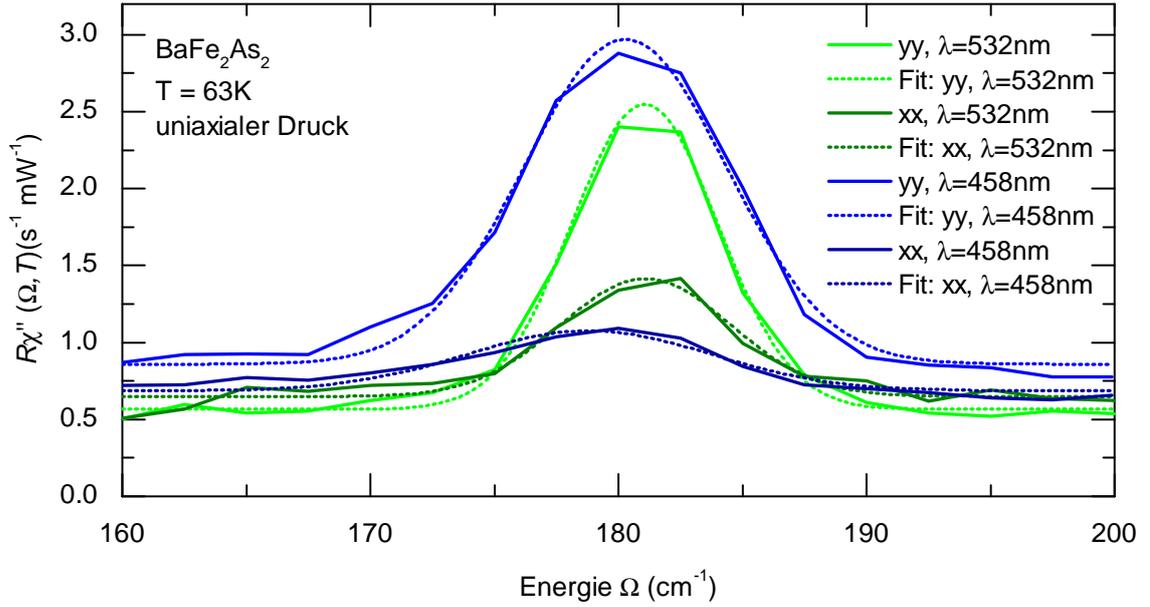


Abbildung 6.7. Anisotropie des  $A_g$ -Phonons bei  $T = 63$  K in Abhängigkeit von der Wellenlänge des zur Anregung verwendeten Lichts. Die einzelnen Peaks wurden mit einer Gaußfunktion, gezeigt als gepunktete Linien, nach Abzug einer Basislinie gefittet.

zum uniaxialen Druck ( $y$ -Richtung) selektiert. Parallel zum Druck zeigt sich eine Verschiebung zu höheren Energien im Vergleich zu Messungen ohne Druck. Orthogonal zum Druck ist das Phonon um den gleichen Betrag zu niedrigeren Energien verschoben. Einen möglichen Erklärungsansatz liefert die mit ARPES gemessene Verschiebung der Energiebänder unter Druck [23]. Besonders drucksensitiv erweisen sich die Bänder nahe der  $X$  und  $Y$ -Punkte in der Brillouin-Zone. Sie haben  $yz$  bzw.  $xz$ -Symmetrie und können deshalb an das  $E_g$ -Phonon koppeln.

Orthogonal zum Druck wird das entsprechende Band zur Fermi-Energie  $E_F$  verschoben und schneidet diese für  $T < T_{SDW}$ . Dies führt zu einer starken Erhöhung der Zustandsdichte bei  $E_F$  und somit zu einer verstärkten Kopplung der Elektronen an das Phonon. Dieses wechselwirkt hierdurch stärker mit den Elektronen und wird zu niedriger Energie verschoben. Das Energieband parallel zum Druck wird von der Fermi-Energie weg verschoben und führt entsprechend zu einer niedrigeren Zustandsdichte bei  $E_F$ . Dadurch wird die Kopplung der Elektronen an das Phonon verringert. Dieses wird somit zu höherer Energie verschoben. Dies entspricht einer Verschiebung der (im Experiment messbaren) Resonanzfrequenz näher an die Eigenfrequenz, wie bei einer Verringerung der Dämpfung zu erwarten ist. Da die durch den Druck unterschiedenen Richtungen im Kristall auch unterschiedliche magnetische Ordnung zeigen (ferromagnetisch parallel zum Druck, antiferromagnetisch orthogonal dazu), könnte die Ursache der Energieverschiebung des Phonons auch in der Kopplung an diese Ordnung liegen.

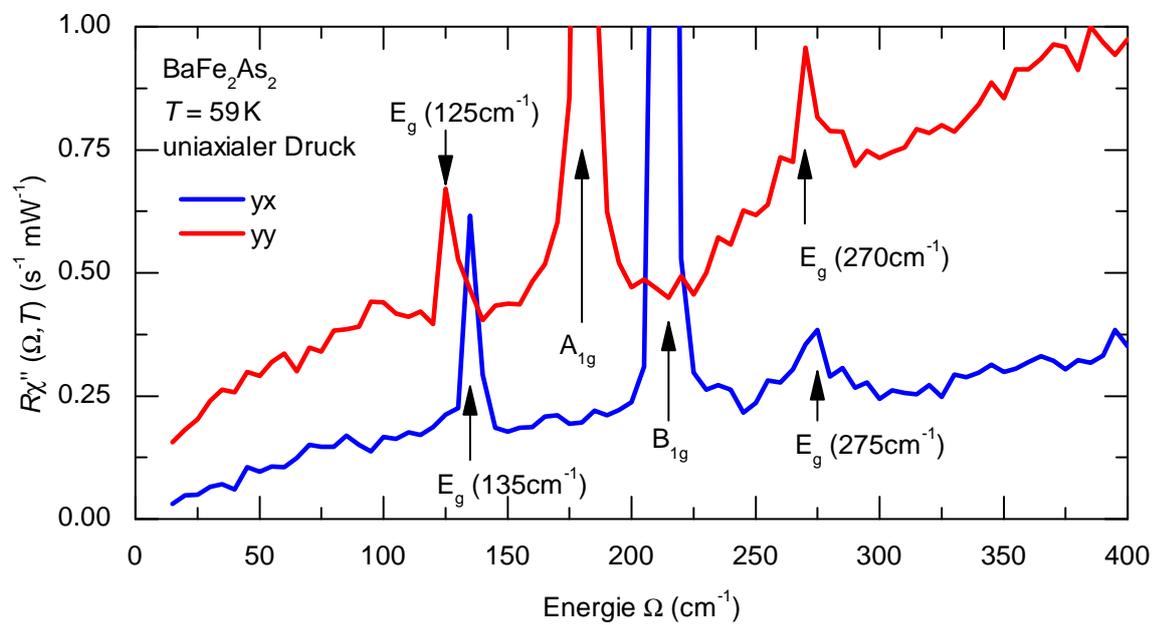


Abbildung 6.8. Verschiebung des  $E_g$ -Phonons in Polarisationen des gestreuten Lichts parallel und orthogonal zum uniaxialen Druck.



## 7. Zusammenfassung

An  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  wurde ohne und mit externem uniaxialen Druck die magnetisch geordnete, strukturell verzerrte Phase der Spin-Dichte-Welle untersucht. Hierbei konnte eine deutliche Beeinflussung der elektronischen Eigenschaften durch den ausgeübten Druck beobachtet werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit gebaute und erstmals verwendete Klammer für die Ausübung des uniaxialen Drucks hat sich als praktisches Werkzeug erwiesen und bietet eine ideale Basis für zukünftige Optimierungen. Zusätzlich zu den durchgeführten Messungen wurde eine neue Spektrometersteuerung aufgebaut und erfolgreich in Betrieb genommen.

Die in  $B_{1g}$ -Symmetrie gemessenen Raman-Spektren zeigen oberhalb des Phasenübergangs bei  $T_S$  Strukturen, die eindeutig Fluktuationen zugeordnet werden können. Nach bisheriger Annahme handelt es sich um magnetische Fluktuationen. Da der strukturelle und der magnetische Phasenübergang in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  nicht getrennt beobachtet werden können, konnte die Frage nach der Zuordnung der Fluktuationen zu einem der Phasenübergänge bisher nicht beantwortet werden.

Die Fluktuationen verschwinden bei  $T_S$  innerhalb eines Intervalls von 1 K. Unterhalb von  $T_S$  öffnet sich eine Energielücke, die zu einer weiteren charakteristischen Reduktion der Streuintensität bei niedrigen Energien führt. So können die Fluktuationen und die SDW-induzierte Lücke als Sonden für den Übergang verwendet werden.

Unter uniaxialem Druck zeigt sich nun, dass die Fluktuationen verschwinden, bevor sich die Lücke öffnet. Folglich beobachtet man unter Druck eine Aufspaltung in zwei getrennte Übergänge sowie eine Verschiebung beider Übergänge zu höheren Temperaturen. Die Fluktuationen verschwinden bei der höheren dieser Temperaturen und können somit der strukturellen Umwandlung zugeordnet werden. Auch wenn Fluktuationen typisch für Phasenübergänge zweiter Ordnung sind, deutet die Hysterese bei den Fluktuationen doch darauf hin, dass die Strukturumwandlung schwach erster Ordnung ist. Die Energielücke kann nur vom magnetischen SDW-Übergang kommen. Auch hier liegen Anzeichen für einen Phasenübergang erster Ordnung vor.

In der magnetisch geordneten Phase ist eine starke elektronische Anisotropie für Richtungen parallel und orthogonal zum angelegten Druck feststellbar, die sich in einer Verschiebung der SDW-induzierten Strukturen in der Nähe von 110 meV manifestiert. Sie stimmt mit der in ARPES-Messungen an entzwillingtem  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  beobachteten Modifikation der Bandstruktur qualitativ überein. Im Bereich von 50 meV beobachtet man eine druckunabhängige Struktur, die sich dem SDW-Übergang zuordnen lässt.

Das Arsen-Phonon in  $A_g$ -Symmetrie zeigt unterhalb des magnetischen Phasenübergangs eine starke Intensitätszunahme. Die ebenfalls auftretende Anisotropie des Phonons bezüglich der Richtungen parallel und orthogonal zum uniaxialen Druck konnte als resonantes Verhalten identifiziert werden. Die für das  $E_g$ -Phonon bei  $\Omega = 130 \text{ cm}^{-1}$  bereits bekannte Aufspaltung kann in der entzwillingten Probe verschiedenen Kristallrichtungen zugeordnet werden. Wird der Analysator längs der kürzeren  $b$ -Achse orientiert ist die Energie des Phononenzweiges höher als in der tetragonalen Phase. Senkrecht dazu beobachtet man eine niedrigere Energie.

Somit ermöglicht die Untersuchung von  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  mit und ohne uniaxialen Druck den Zugang zu ansonsten durch die Verzwilligung der Kristalle verdeckten Anisotropien. Unerwartet ist die Zuordnung der Fluktuationen zum strukturellen Übergang. Ihr Charakter ist deshalb nicht magnetischer, sondern, aufgrund der Symmetrie, nematisch-orbitaler Natur.

## A. Blockschaltbild der Spektrometersteuerung

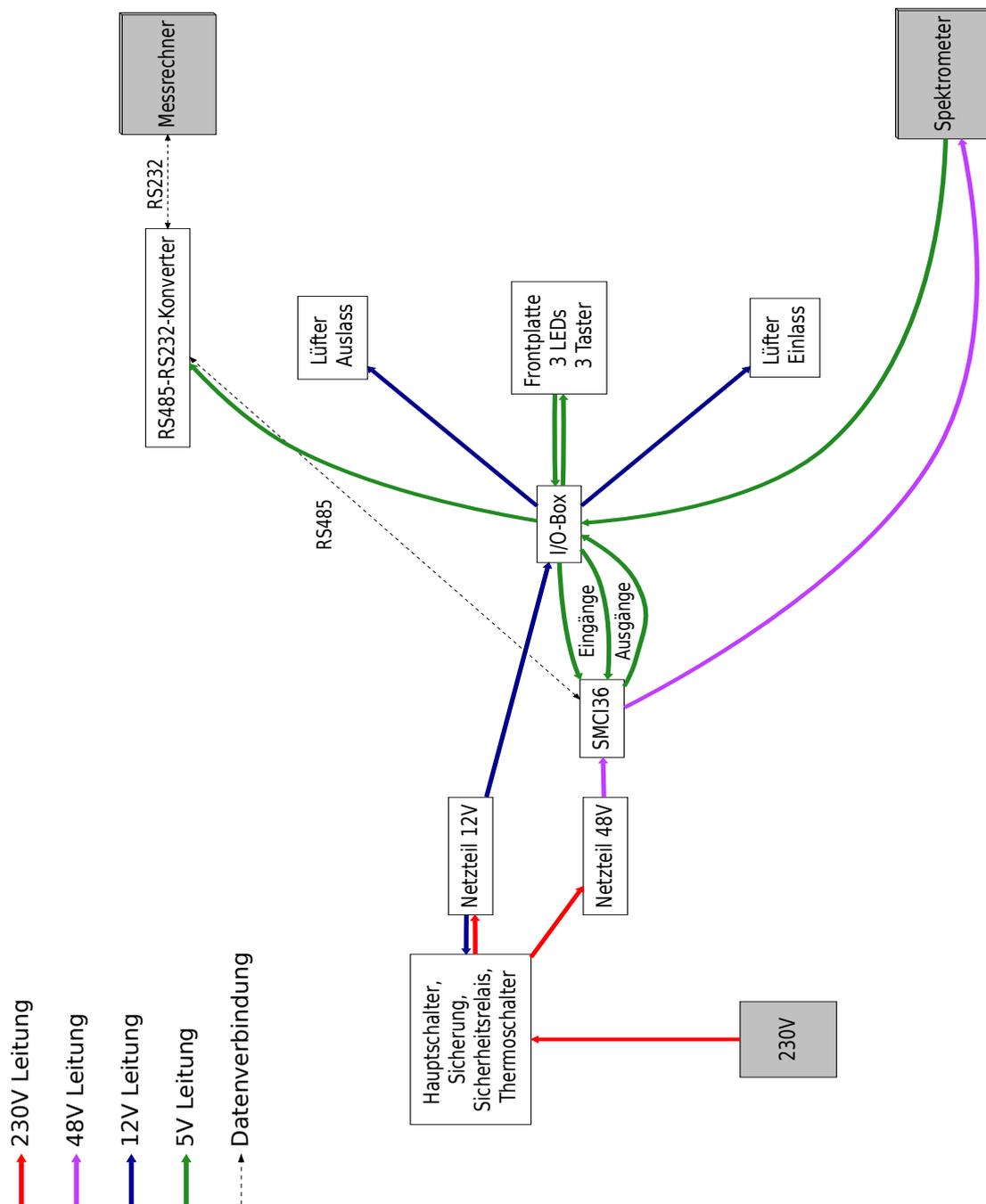


Abbildung A.1. Blockschaltbild der neuen Spektrometersteuerung

Grau hinterlegte Komponenten bilden die externe Beschaltung. Die verschiedenen Farben der Verbindungen bezeichnen Daten- und Stromleitungen mit verschiedenen Spannungen gemäß Legende



## Literaturverzeichnis

- [1] ONNES, Heike K.: Further experiments with liquid helium D - On the change of the electrical resistance of pure metals at very low temperatures, etc V The disappearance of the resistance of mercury. In: *Proc. K. Ned. Akad. Wet* 14 (1911), S. 113–115
- [2] BARDEEN, J. ; COOPER, L. N. ; SCHRIEFFER, J. R.: Theory of Superconductivity. In: *Phys. Rev.* 108 (1957), S. 1175. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.108.1175>. – DOI 10.1103/PhysRev.108.1175
- [3] BEDNORZ, J. G. ; MÜLLER, K. A.: Possible high  $T_c$  superconductivity in the Ba-La-Cu-O System. In: *Z. Phys. B* 64 (1986), S. 189
- [4] CHU, C. W. ; GAO, L. ; CHEN, F. ; HUANG, Z. J. ; MENG, R. L. ; XUE, Y. Y.: Superconductivity above 150 K in  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$  at high pressures. In: *Nature* 365 (1993), Sep, Nr. 6444, 323–325. <http://dx.doi.org/10.1038/365323a0>. – DOI 10.1038/365323a0
- [5] KAMIHARA, Yoichi ; HIRAMATSU, Hidenori ; HIRANO, Masahiro ; KAWAMURA, Ryuto ; YANAGI, Hiroshi ; KAMIYA, Toshio ; HOSONO, Hideo: Iron-Based Layered Superconductor:  $\text{LaOFeP}$ . In: *J. Am. Chem. Soc.* 128 (2006), 10012-10013. <http://dx.doi.org/10.1021/ja063355c>. – DOI 10.1021/ja063355c. – PMID: 16881620
- [6] DEVEREAUX, T.P. ; HACKL, R.: Inelastic light scattering from correlated electrons. In: *Rev. Mod. Phys.* 79 (2007), S. 175. <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.79.175>. – DOI 10.1103/RevModPhys.79.175
- [7] TAKAHASHI, Hiroki ; IGAWA, Kazumi ; ARII, Kazunobu ; KAMIHARA, Yoichi ; HIRANO, Masahiro ; HOSONO, Hideo: Superconductivity at 43 K in an iron-based layered compound  $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$ . In: *Nature* 453 (2008), S. 376. <http://dx.doi.org/doi:10.1038/nature06972Letter>. – DOI doi:10.1038/nature06972 Letter
- [8] ROTTER, Marianne ; TEGEL, Marcus ; JOHRENDT, Dirk: Superconductivity at 38 K in the Iron Arsenide  $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ . In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), Nr. 10, 107006. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.107006>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.101.107006
- [9] WU, G ; XIE, Y L. ; CHEN, H ; ZHONG, M ; LIU, R H. ; SHI, B C. ; LI, Q J. ; WANG, X F. ; WU, T ; YAN, Y J. ; YING, J J. ; CHEN, X H.: Superconductivity at 56 K in samarium-doped  $\text{SrFeAsF}$ . In: *Condens. Matter* 21 (2009), Nr. 14, 142203. <http://stacks.iop.org/0953-8984/21/142203>
- [10] BOERI, L. ; DOLGOV, O. V. ; GOLUBOV, A. A.: Is  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  an Electron-Phonon Superconductor? In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), July, Nr. 2, 026403. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.026403>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.101.026403
- [11] ISHIDA, Kenji ; NAKAI, Yusuke ; HOSONO, Hideo: To What Extent Iron-Pnictide New Superconductors Have Been Clarified: A Progress Report. In: *J. Phys. Soc. Jpn* 78 (2009), Nr. 6, 062001. <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.78.062001>. – DOI 10.1143/JPSJ.78.062001

- [12] JOHRENDT, Dirk: Structure-property relationships of iron arsenide superconductors. In: *J. Mater. Chem.* 21 (2011), 13726-13736. <http://dx.doi.org/10.1039/C1JM12318A>. – DOI 10.1039/C1JM12318A
- [13] ROTTER, Marianne ; TEGEL, Marcus ; JOHRENDT, Dirk ; SCHELLENBERG, Inga ; HERMES, Wilfried ; POTTGEN, Rainer: Spin-density-wave anomaly at 140 K in the ternary iron arsenide  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ . In: *Phys. Rev. B* 78 (2008), Nr. 2, 020503. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.78.020503>. – DOI 10.1103/PhysRevB.78.020503
- [14] TANATAR, M. A. ; KREYSSIG, A. ; NANDI, S. ; NI, N. ; BUD'KO, S. L. ; CANFIELD, P. C. ; GOLDMAN, A. I. ; PROZOROV, R.: Direct imaging of the structural domains in the iron pnictides  $A\text{Fe}_2\text{As}_2$  ( $A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ ). In: *Phys. Rev. B* 79 (2009), May, 180508. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.180508>. – DOI 10.1103/PhysRevB.79.180508
- [15] MUSCHLER, B.: *priv. comm.* February 2012
- [16] CHU, Jiun-Haw ; ANALYTIS, James G. ; KUCHARCZYK, Chris ; FISHER, Ian R.: Determination of the phase diagram of the electron-doped superconductor  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ . In: *Phys. Rev. B* 79 (2009), Nr. 1, 014506. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.014506>. – DOI 10.1103/PhysRevB.79.014506
- [17] SEFAT, Athena S. ; JIN, Rongying ; MCGUIRE, Michael A. ; SALES, Brian C. ; SINGH, David J. ; MANDRUS, David: Superconductivity at 22 K in Co-Doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  Crystals. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), Nr. 11, 117004. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.117004>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.101.117004
- [18] ALIREZA, Patricia L. ; KO, Y T C. ; GILLETT, Jack ; PETRONE, Chiara M. ; COLE, Jacqueline M. ; LONZARICH, Gilbert G. ; SEBASTIAN, Suchitra E.: Superconductivity up to 29 K in  $\text{SrFe}_2\text{As}_2$  and  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  at high pressures. In: *J. Phys. Condens. Matter* 21 (2009), Nr. 1, 012208. <http://stacks.iop.org/0953-8984/21/012208>
- [19] KIM, M. G. ; FERNANDES, R. M. ; KREYSSIG, A. ; KIM, J. W. ; THALER, A. ; BUD'KO, S. L. ; CANFIELD, P. C. ; MCQUEENEY, R. J. ; SCHMALIAN, J. ; GOLDMAN, A. I.: Character of the structural and magnetic phase transitions in the parent and electron-doped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  compounds. In: *Phys. Rev. B* 83 (2011), Apr, 134522. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.134522>. – DOI 10.1103/PhysRevB.83.134522. – splitting of magnetic and structural transition in undoped  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  by 0.75 K
- [20] CHOI, K-Y ; LEMMENS, P ; EREMIN, I ; ZWICKNAGL, G ; BERGER, H ; SUN, G L. ; SUN, D L. ; LIN, C T.: Self-energy effects and electron-phonon coupling in Fe-As superconductors. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 22 (2010), 115802. <http://stacks.iop.org/0953-8984/22/i=11/a=115802>
- [21] CHU, Jiun-Haw ; ANALYTIS, James G. ; GREVE, Kristiaan D. ; MCMAHON, Peter L. ; ISLAM, Zahirul ; YAMAMOTO, Yoshihisa ; FISHER, Ian R.: In-Plane Resistivity Anisotropy in an Underdoped Iron Arsenide Superconductor. In: *Science* 329 (2010), S. 824
- [22] DUSZA, A. ; LUCARELLI, A. ; PFUNER, F. ; CHU, J.-H. ; FISHER, I. R. ; DEGIORGI, L.: Anisotropic charge dynamics in detwinned  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ . In: *EPL* 93 (2011), Nr. 3, 37002. <http://dx.doi.org/10.1209/0295-5075/93/37002>. – DOI 10.1209/0295-5075/93/37002
- [23] YI, Ming ; LU, Donghui ; CHU, Jiun-Haw ; ANALYTIS, James G. ; SORINI, Adam P. ; KEMPER, Alexander F. ; MORITZ, Brian ; MO, Sung-Kwan ; MOORE, Rob G. ; HASHIMOTO, Makoto ; LEE, Wei-Sheng ; HUSSAIN, Zahid ; DEVEREAUX, Thomas P.

- ; FISHER, Ian R. ; SHEN, Zhi-Xun: Symmetry-breaking orbital anisotropy observed for detwinned  $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$  above the spin density wave transition. In: *Proc. Natl. Acad. Sci.* 108 (2011), April, Nr. 17, S. 6878–6883. <http://dx.doi.org/doi:10.1073/pnas.1015572108>. – DOI doi:10.1073/pnas.1015572108
- [24] SINGH, D. J. ; DU, M.-H.: Density Functional Study of  $LaFeAsO_{1-x}F_x$ : A Low Carrier Density Superconductor Near Itinerant Magnetism. In: *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), 237003. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.237003>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.100.237003
- [25] SINGH, D. J.: Electronic structure and doping in  $BaFe_2As_2$  and  $LiFeAs$ : Density functional calculations. In: *Phys. Rev. B* 78 (2008), S. 094511. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.78.094511>. – DOI 10.1103/PhysRevB.78.094511
- [26] LIANG, T. ; NAKAJIMA, M. ; KIHOU, K. ; TOMIOKA, Y. ; ITO, T. ; LEE, C.H. ; KITO, H. ; IYO, A. ; EISAKI, H. ; KAKESHITA, T. ; UCHIDA, S.: Effects of uniaxial pressure and annealing on the resistivity of  $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ . In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 72 (2011), Nr. 5, 418 - 419. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jpcs.2010.10.080>. – DOI 10.1016/j.jpcs.2010.10.080. – ISSN 0022–3697. – <ce:title>Spectroscopies in Novel Superconductors 2010</ce:title> <ce:subtitle>SNS 2010</ce:subtitle>
- [27] BLOMBERG, E. C. ; KREYSSIG, A. ; TANATAR, M. A. ; FERNANDES, R. ; KIM, M. G. ; THALER, A. ; SCHMALIAN, J. ; BUD'KO, S. L. ; CANFIELD, P. C. ; GOLDMAN, A. I. ; PROZOROV, R.: *Effect of tensile stress on the in-plane resistivity anisotropy in  $BaFe_2As_2$* . <http://arxiv.org/abs/1111.0997v1>. Version: 11 2011
- [28] SMEKAL, Adolf: Zur Quantentheorie der Dispersion. In: *Naturwissenschaften* 11 (1923), 873-875. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01576902>. – ISSN 0028–1042. – 10.1007/BF01576902
- [29] RAMAN, C. V.: A New Type of Secondary Radiation. In: *Nature* 121 (1928), S. 501
- [30] LANDSBERG, G. ; MANDELSTAM, L.: Eine neue Erscheinung bei der Lichtzerstreuung in Krystallen. In: *Naturwissenschaften* 16 (1928), 557-558. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01506807>. – ISSN 0028–1042. – 10.1007/BF01506807
- [31] EINZEL, D. ; HACKL, R.: Electronic Raman Scattering in Copper Oxide Superconductors. In: *J. Raman Spectrosc.* 27 (1996), S. 307
- [32] VENTURINI, F.: *Raman Scattering Study of Electronic Correlations in Cuprates: Observation of an Unconventional Metal-Insulator Transition*, Technische Universität München, Dissertation, 2003
- [33] FISHER, I R. ; DEGIORGI, L ; SHEN, Z X.: In-plane electronic anisotropy of underdoped '122' Fe-arsenide superconductors revealed by measurements of detwinned single crystals. In: *Rep. Prog. Phys.* 74 (2011), Nr. 12, 124506. <http://stacks.iop.org/0034-4885/74/i=12/a=124506>
- [34] OPEL, M. ; NEMETSCHKE, R. ; HOFFMANN, C. ; PHILIPP, R. ; MÜLLER, P. F. ; HACKL, R. ; TÜTTÖ, I. ; ERB, A. ; REVAZ, B. ; WALKER, E. ; BERGER, H. ; FORRÓ, L.: Carrier relaxation, pseudogap, and superconducting gap in high- $T_c$  cuprates: A Raman scattering study. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 9752
- [35] MUSCHLER, B. ; PRESTEL, W. ; HACKL, R. ; DEVEREAUX, T. P. ; ANALYTIS, J. G. ; CHU, Jiun-Haw ; FISHER, I. R.: Band- and momentum-dependent electron dynamics in superconducting  $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$  as seen via electronic Raman scattering. In: *Phys.*

- Rev. B* 80 (2009), 180510. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.80.180510>. – DOI 10.1103/PhysRevB.80.180510
- [36] SUGAI, S. ; MIZUNO, Y. ; WATANABE, R. ; KAWAGUCHI, T. ; TAKENAKA, K. ; IKUTA, H. ; KIHOU, K. ; NAKAJIMA, M. ; LEE, C. ; IYO, A. ; EISAKI, H. ; UCHIDA, S.: The Nodal SDW Gap and the Superconducting Gap in  $\text{BaFe}_{2-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ . In: *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 24 (2011), 1185-1189. <http://dx.doi.org/10.1007/s10948-010-1106-0>. – ISSN 1557-1939. – 10.1007/s10948-010-1106-0
- [37] CHAUVIÈRE, L. ; GALLAIS, Y. ; CAZAYOUS, M. ; MÉASSON, M. A. ; SACUTO, A. ; COLSON, D. ; FORGET, A.: Impact of the spin-density-wave order on the superconducting gap of  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ . In: *Phys. Rev. B* 82 (2010), S. 180521. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.82.180521>. – DOI 10.1103/PhysRevB.82.180521
- [38] TANATAR, M. A. ; BLOMBERG, E. C. ; KREYSSIG, A. ; KIM, M. G. ; NI, N. ; THALER, A. ; BUD'KO, S. L. ; CANFIELD, P. C. ; GOLDMAN, A. I. ; MAZIN, I. I. ; PROZOROV, R.: Uniaxial-strain mechanical detwinning of  $\text{CaFe}_2\text{As}_2$  and  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  crystals: Optical and transport study. In: *Phys. Rev. B* 81 (2010), May, 184508. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.81.184508>. – DOI 10.1103/PhysRevB.81.184508
- [39] LITVINCHUK, A. P. ; HADJIEV, V. G. ; ILIEV, M. N. ; LV, Bing ; GULOY, A. M. ; CHU, C. W.: Raman-scattering study of  $\text{K}_x\text{Sr}_{1-x}\text{Fe}_2\text{As}_2$  ( $x = 0.0, 0.4$ ). In: *Phys. Rev. B* 78 (2008), 060503. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.78.060503>. – DOI 10.1103/PhysRevB.78.060503
- [40] RAHLENBECK, M. ; SUN, G. L. ; SUN, D. L. ; LIN, C. T. ; KEIMER, B. ; ULRICH, C.: Phonon anomalies in pure and underdoped  $\text{R}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$  ( $\text{R} = \text{Ba}, \text{Sr}$ ) investigated by Raman light scattering. In: *Phys. Rev. B* 80 (2009), 064509. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.80.064509>. – DOI 10.1103/PhysRevB.80.064509
- [41] CHAUVIERE, L. ; GALLAIS, Y. ; CAZAYOUS, M. ; SACUTO, A. ; MEASSON, M. A. ; COLSON, D. ; FORGET, A.: Doping dependence of the lattice dynamics in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$  studied by Raman spectroscopy. In: *Phys. Rev. B* 80 (2009), Nr. 9, 094504. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.80.094504>. – DOI 10.1103/PhysRevB.80.094504
- [42] DHITAL, Chetan ; YAMANI, Z. ; TIAN, Wei ; ZERETSKY, J. ; SEFAT, A. S. ; WANG, Ziqiang ; BIRGENEAU, R. J. ; WILSON, Stephen D.: *Effect of uniaxial strain on the structural and magnetic phase transitions in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$* . <http://arxiv.org/abs/1111.2326v1>. Version: November 2011
- [43] OTT, H. R. ; CHANDRASEKHAR, B. S. ; SEEBER, B.: Thermal expansion and the cubic-to-tetragonal transformation in  $\text{V}_3\text{Si}$ . In: *Phys. Rev. B* 31 (1985), Mar, 2700–2703. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.31.2700>. – DOI 10.1103/PhysRevB.31.2700
- [44] CHAUVIÈRE, L. ; GALLAIS, Y. ; CAZAYOUS, M. ; MÉASSON, M. A. ; SACUTO, A. ; COLSON, D. ; FORGET, A.: Raman scattering study of spin-density-wave order and electron-phonon coupling in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ . In: *Phys. Rev. B* 84 (2011), Sep, 104508. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.84.104508>. – DOI 10.1103/PhysRevB.84.104508
- [45] NAKAJIMA, M. ; ISHIDA, S. ; KIHOU, K. ; TOMIOKA, Y. ; ITO, T. ; YOSHIDA, Y. ; LEE, C. H. ; KITO, H. ; IYO, A. ; EISAKI, H. ; KOJIMA, K. M. ; UCHIDA, S.: Evolution of the optical spectrum with doping in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ . In: *Phys. Rev. B* 81 (2010), S. 104528. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.81.104528>. – DOI 10.1103/PhysRevB.81.104528
- [46] GRÜNER, George ; PINES, David (Hrsg.): *Density waves in Solids*. Addison-Wesley, 1994

- [47] SEBASTIAN, Suchitra E. ; GILLET, J ; HARRISON, N ; LAU, P H C. ; SINGH, D J. ; MIELKE, C H. ; LONZARICH, G G.: Quantum oscillations in the parent magnetic phase of an iron arsenide high temperature superconductor. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 20 (2008), S. 422203
- [48] PARKER, D. ; VAVILOV, M. G. ; CHUBUKOV, A. V. ; MAZIN, I. I.: Coexistence of superconductivity and a spin-density wave in pnictide superconductors: Gap symmetry and nodal lines. In: *Phys. Rev. B* 80 (2009), Sep, 100508. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.80.100508>. – DOI 10.1103/PhysRevB.80.100508
- [49] SUGAI, S. ; MIZUNO, Y. ; WATANABE, R. ; KAWAGUCHI, T. ; TAKENAKA, K. ; IKUTA, H. ; TAKAYANAGI, Y. ; HAYAMIZU, N. ; SONE, Y.: *Spin-Density-Wave Gap with Dirac Nodes and Two-Magnon Raman Scattering in BaFe2As2*. <http://arxiv.org/abs/1201.5207v1>. Version: Jan 2012
- [50] YIN, Z. P. ; LEBÈGUE, S. ; HAN, M. J. ; NEAL, B. P. ; SAVRASOV, S. Y. ; PICKETT, W. E.: Electron-Hole Symmetry and Magnetic Coupling in Antiferromagnetic LaFeAsO. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), Jul, 047001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.047001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.101.047001



# Danksagung

Allein geht keiner durch die Welt und entsprechend sei diese Seite all denen gewidmet, die diese Arbeit erst möglich gemacht haben.

Insbesondere gilt mein Dank

**Dr. Rudi Hackl** für die Bereitstellung des Themas sowie die stetige Versorgung mit guten Ideen, hilfreichen Ratschlägen, aufheiternden Anekdoten, ausführlichen Erläuterungen und frischem Kaffee.

**Prof. Dr. Rudolf Gross** für die Möglichkeit, diese Arbeit am Walther-Meißner-Institut durchzuführen.

**Bernhard Muschler** für die stets geduldige Beseitigung so mancher Unklarheiten, unzählige Hilfestellungen zu Experiment und Auswertung, die Korrekturen zu dieser Arbeit sowie die von ihm durchgeführten Messungen.

**Thomas Böhm** für die Unterstützung in Theorie und Experiment sowie die Programmierung der Spektrometersteuerung.

**Florian Kretzschmar, Hans-Martin Eiter** und **Peter Jaschke** für zahlreiche gute Ratschläge und Anregungen für den Laboralltag und die Physik hinter den Dingen

der **Werkstatt** des WMI, insbesondere **Robert Müller** für die Anfertigung der Probenhalteklammern, die Einweisung in die Werkstatt und diverse technische Ratschläge.

**Ulrich Guggenberger** und **Siegfried Wanninger** für die hilfreichen Ratschläge beim Bau der Spektrometersteuerung

**Susanne Mayr** vom Kristalllabor der TUM für die Erstellung der Laue-Aufnahmen und das Zusägen der Probe.

**Karen Helm-Knapp** und **Astrid Habel** für die angenehme Atmosphäre im Büro.

**Michael Kunz** für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

**Christoph Schnarr** für die gemeinsam durchgestandene Schul- und Studienzeit.

Ein besonderer Dank gilt meinen Eltern **Elisabeth** und **Josef**, die mir das Studium und diese Arbeit überhaupt erst ermöglicht haben, sowie meiner Schwester **Christina**.

Vergelt's Gott!



# Erklärung

des Diplomanden

Name:

Vorname:

Mit der Abgabe der Diplomarbeit versichere ich, dass ich die Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt ha be.

.....

(Ort, Datum)

.....

(Unterschrift)