

Andreas Goris

Spinabhängige Lebensdauer heißer Elektronen in 3d-Ferromagneten

am Fachbereich Physik
der Freien Universität Berlin
eingereichte Dissertation
Juni 2010

Freie Universität  Berlin

1. Gutachter: Prof. Dr. M. Weinelt

2. Gutachter: Prof. Dr. Dr. h.c. G. Kaindl

Datum der Disputation: 8. November 2010

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig angefertigt und keine außer den angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Abstract

The spin-dependent lifetimes of electrons excited to energies of a few hundred meV above the Fermi energy, the so-called hot electrons, in the metallic $3d$ ferromagnets iron, cobalt and nickel have been controversially discussed for more than a decade. Since the first—and up to now only—direct measurements from the year 1997 and 1998, various theoretical models have been applied to predict lifetimes with moderate success. The discrepancies between the measured and calculated lifetimes increase as the energy of the hot electrons decreases with respect to the Fermi energy. Especially the calculated lifetimes of the majority hot electrons are far too long and therefore the predicted lifetime ratio $\tau_{\uparrow}/\tau_{\downarrow}$ is almost one order higher than the one found experimentally. Despite of its impact on technological applications through the associated *giant magnetoresistance (GMR)* effect as well as spintronics and despite of its fundamental importance—key aspects of the underlying physical processes are yet not fully understood—the experimental data basis is too small to develop improved theoretical models that predict the lifetimes of hot electrons correctly over a broad energy range.

In this work, the spin-dependent lifetimes of hot electrons in the $3d$ ferromagnets have been measured directly, via bichromatic two-photon photoemission, in order to extend the experimental data range to energies closer to the Fermi level and to compare it with existing experimental data as well as theoretical predictions. Here, in contrast to previous experiments, no cesium was required to lower the work function of the investigated metals. Therefore, the influence of spin-flip scattering processes on the lifetimes of hot electrons via a cobalt surface state with minority character could be investigated for the first time. Via those scattering processes, a relaxing minority electron excites a majority electron and *vice versa*. The main reason for the large lifetime ratio predicted by theory has its origin in the large difference in the density of states for minority and majority electrons near the Fermi level and the therefore highly different scattering probabilities. A strong influence of spin-flip scattering processes most likely explains the smaller values of the lifetime ratios found in the experiments compared to *ab initio* theory.

Kurzfassung

Die spinabhängigen Lebensdauern angeregter Elektronen für Energien von wenigen hundert meV oberhalb der Fermi-Energie, sogenannte heiße Elektronen, in den 3d-Ferromagneten Eisen, Kobalt und Nickel werden seit mehr als einem Jahrzehnt kontrovers diskutiert. Seit den ersten — und bis heute einzigen — Messungen aus den Jahren 1997 und 1998, wurden verschiedene theoretische Modelle angewandt um die experimentell bestimmten Lebensdauern zu bestätigen. Die Diskrepanz zwischen den gemessenen und vorhergesagten Werten zur Lebensdauer wird dabei umso größer, je näher sich die heißen Elektronen an der Fermi-Energie befinden. Insbesondere sind die berechneten Lebensdauern der Elektronen mit Majoritätsspin deutlich zu groß, wodurch auch das Lebensdauer Verhältnis $\tau_{\uparrow}/\tau_{\downarrow}$ größer ist als das experimentell bestimmte. Trotz der hohen technologischen Bedeutung durch den *giant magnetoresistance (GMR)* Effekt und für die Spintronik und trotz fundamentaler Bedeutung für das physikalische Verständnis — wichtige Aspekte der zugrundeliegenden Prozesse sind noch nicht vollständig verstanden — ist die experimentelle Datenbasis bisher nicht ausreichend, um erweiterte theoretische Modelle zu entwickeln, die die Lebensdauer heißer Elektronen über einen weiten Energiebereich korrekt vorhersagen.

In dieser Arbeit wurden die spinabhängigen Lebensdauern heißer Elektronen in den 3d-Ferromagneten direkt mittels bichromatischer Zwei-Photonen-Photoemission gemessen, um die experimentelle Datenbasis für Energien näher am Fermi-Niveau zu vervollständigen. Die Ergebnisse werden sowohl mit theoretischen Vorhersagen als auch bisherigen experimentellen Daten verglichen. In dieser Arbeit wurde, im Gegensatz zu früheren Experimenten, kein Cäsium zur Verringerung der Austrittsarbeit der untersuchten Metalle verwendet. Daher konnte der Einfluß von Spin-Umklapp-Prozessen auf die Lebensdauer heißer Elektronen mittels eines Oberflächenzustands auf Kobalt zum ersten mal nachgewiesen werden. Bei solchen Prozessen regt ein relaxierendes Minoritätselektron ein Majoritätselektron an und umgekehrt. Die Hauptursache für den großen Unterschied in den theoretisch vorhergesagten Lebensdauern für Minoritäts- und Majoritätselektronen liegt im großen Unterschied in den Zustandsdichten nahe der Fermi-Energie und den dadurch bedingten unterschiedlichen Streuwahrscheinlichkeiten. Der starke Einfluß von Spin-Umklapp-Prozessen ist eine sinnvolle Erklärung für die im Experiment gefundenen, verglichen mit theoretischen Vorhersagen, kleineren Werten für das Lebensdauer Verhältnis.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	5
2.1. Kristallstruktur und Magnetismus der <i>3d</i> -Metalle	5
2.2. Lebensdauer heißer Elektronen	10
2.2.1. Zerfallskanäle	11
2.2.2. Theoretische Modelle zur Lebensdauer heißer Elektronen . .	12
2.2.3. Einfluss der Bandstruktur und Spinaufgespaltene Bänder . .	13
2.2.4. Spin-Umklapp-Prozesse und virtueller Spin-Austausch	14
2.2.5. GW+T-Formalismus	16
2.2.6. Oberflächen- und Bildpotentialzustände	17
2.3. Zeitauflösende Photoelektronenspektroskopie	18
2.4. Theoretische Beschreibung der Messergebnisse	20
3. Experimentelle Vorgehensweise	25
3.1. Lasersystem	25
3.2. UHV System	27
3.3. Spinauflösende Photoemission	30
3.4. Probenpräparation	31
4. Austauschspaltung der Bildpotentialzustände auf Kobalt	35
4.1. Energiespektrum von 6 ML Co/Cu(100)	35
4.2. Einfluss von Sauerstoffadsorption auf die Eigenschaften der Bildpo- tentialzustände	37
5. Lebensdauer heißer Elektronen in <i>3d</i>-Ferromagneten	45
5.1. Eisen	47
5.2. Kobalt	51
5.3. Nickel	54
5.4. Diskussion der Ergebnisse der Lebensdauermessungen	58
5.5. Mittlere freie Weglänge in Eisen, Kobalt und Nickel	67
6. Austauschstreuung in Kobalt	75
7. Zusammenfassung	83
A. Aufbau eines Sagnac-Interferometers zur Detektion ultraschneller Ma- gnetisierungsprozesse	87

Literaturverzeichnis	93
Danksagung	103

1. Einleitung

Die Dynamik der Ladungsträger in Metallen ist von fundamentaler Bedeutung für viele ihrer Eigenschaften. Bereits im Jahre 1900, drei Jahre nach der Entdeckung des Elektrons durch Joseph John Thomson, veröffentlichte Paul Drude seine Elektronentheorie der Metalle, mit der erstmals das Ohmsche Gesetz erklärt werden konnte [Dru00]. Dabei nahm er an, dass sich die Elektronen frei im Metall bewegen können (freies Elektronengas) und nur mit den positiv geladenen Kernen wechselwirken. Obwohl seine klassische Theorie einige Dinge unerklärt ließ — die elektronische Wärmekapazität wird nur für hohe Temperaturen korrekt vorhergesagt — war sie ein Meilenstein zum Verständnis der Metalle auf einer mikroskopischen Skala und der Anstoß für viele weitere Arbeiten zur Dynamik von Elektronen in Metallen. Erste experimentelle Untersuchungen zur Überprüfung der Drudeschen Theorie beruhten auf Widerstandsmessungen. Deutlich genauere Untersuchungen zur elektronischen Struktur der Metalle gelangen ab den 1960er Jahren durch die Photoelektronenspektroskopie, mittels derer Elektronen aus Metalloberflächen durch Beschuss von Photonen herausgelöst werden können. Der Austrittswinkel und die kinetische Energie der Photoelektronen lässt dann Rückschlüsse auf die elektronischen Eigenschaften der Metalle zu. Die Untersuchung der Dynamik der Elektronen in Metallen erfuhr mit der Entwicklung der Titan-Saphir-Lasersysteme Anfang der 1990er Jahre einen rasanten Aufschwung. Mittels solcher Laser war es im Labor möglich, über einen längeren Zeitraum eine stabile Zeitauflösung im Femtosekundenbereich zu erreichen und so die Dynamik der Elektronen in Echtzeit zu verfolgen.

In ferromagnetischen Metallen spielt der Spin als zusätzlicher Freiheitsgrad eine bedeutende Rolle für die Ultrakurzzeitdynamik der Elektronen. Im Jahre 1996 konnten Beaupaire *et al.* mittels Laserpulsen aus Titan-Saphir-Lasern zeigen, dass sich die Magnetisierungsdynamik in Nickel nicht, wie bis dahin angenommen, im Nanosekunden- sondern im Femtosekundenbereich abspielt [BMDB96]; die Erhaltung des Drehimpulses auf solch kurzen Zeitskalen blieb dabei zunächst unbeantwortet. Erst vor kurzem wurde eine mögliche Erklärung für dieses Verhalten veröffentlicht [KMDL⁺10]. Üblicherweise wird die zeitliche Änderung der Magnetisierung der Probe in Beaupaires und nachfolgenden Messungen mittels des magnetooptischen Kerr-Effekts (MOKE) verfolgt, wobei zwei nahezu gekreuzte Polarisatoren Verwendung finden, um die Kerr-Drehung nachzuweisen, die proportional zur Magnetisierung der Probe ist. Diese Messmethode liefert eine hohe zeitliche Auflösung im Femtosekundenbereich, lediglich begrenzt durch die Laserpulsdauer. Die laterale Auflösung hingegen wird begrenzt durch die Wellenlänge des verwendeten Laserlichts. Eine alternative Messapparatur zum Nachweis der Kerr-Drehung, die auf der Verwendung eines Sagnac-Interferometers beruht, wurde erstmals im ersten Teil dieser Arbeit aufgebaut und wird in Anhang A vorgestellt, wo auch näher

auf den magnetooptischen Kerr-Effekt eingegangen wird. Der Vorteil dieser Methode besteht darin, dass sie für eine zeitliche Auflösung im sub-Pikosekundenbereich, als auch für eine räumliche Auflösung im sub-Mikrometerbereich zur Untersuchung magnetischer Strukturen im sichtbaren Spektralbereich verwendet werden kann. Beim Sagnac-Interferometer werden zwei sich in entgegengesetzte Richtung ausbreitende Laserpulse zur Interferenz gebracht, wodurch keine Polarisatoren benötigt werden. Damit konnten die Daten von Beaurepaire *et al.* erfolgreich nachgemessen werden.

Während MOKE-Messungen die kollektive Anregung der Elektronen nachweisen, können Photoemissionsmessungen gezielt die Auswirkungen der unterschiedlichen Bandstrukturen untersuchen. Ferromagnetische Metalle weisen im Gegensatz zu paramagnetischen Metallen eine unterschiedliche Bandstruktur für Elektronen mit Majoritätsspin und solche mit Minoritätsspin auf. Daher wurde lange vermutet, dass in Ferromagneten die Lebensdauer heißer Elektronen mit Majoritätsspin sich von denen mit Minoritätsspin unterscheiden sollte. Diese Tatsache ist sowohl von technologischem — beispielsweise beruhen die Spintronik und der *GMR*-Effekt¹ auf diesem Phänomen — als auch von fundamentalem Interesse, da die zugrundeliegenden mikroskopischen physikalischen Prozesse noch nicht vollständig verstanden sind. Im Jahre 1997 konnten Aeschlimann *et al.* mit Hilfe der Zwei-Photonen-Photoemission (2PPE), bei der ein Laserpuls Elektronen in einen Zwischenzustand anregt und ein zweiter Puls diese Elektronen über das Vakuumniveau anhebt, erstmals direkt die spinabhängige Lebensdauer angeregter Elektronen in der Nähe der Fermi-Energie — sogenannte *heiße* Elektronen — in Kobalt messen [ABP⁺97]. In der Folge wurden verschiedene theoretische Ansätze angewendet, deren Vorhersagen zur Lebensdauer jedoch umso mehr von den experimentellen Daten abweichen, je näher sich die Energie der heißen Elektronen an der Fermi-Energie befindet. Hier setzt diese Arbeit an, indem die spinabhängigen Lebensdauern der heißen Elektronen in den *3d*-Ferromagneten (auch itinerante Ferromagnete) Eisen, Kobalt und Nickel mit einer leicht veränderten Messmethode näher an der Fermi-Energie gemessen wurden. Im Gegensatz zu den Messungen von Aeschlimann wurden hier verschiedene Pulsenergien verwendet, was den Vorteil mit sich bringt, dass auf eine Absenkung der Austrittsarbeit der untersuchten Metalle mittels Cäsium verzichtet und somit saubere Metalloberflächen untersucht werden konnten. Dabei zeigte sich, dass Oberflächenzuständen eine wichtige Rolle bei der spinabhängigen Ultrakurzzeitdynamik in Kobalt zukommt.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt: In Kapitel 2 werden die physikalischen Grundlagen erläutert, die zum Verständnis der späteren Kapitel notwendig sind. Kapitel 3 beschreibt den experimentellen Aufbau der zeitauflösenden Photoemissionsexperimente. Kapitel 4 zeigt das Verhalten einer besonderen Form von Oberflächenzuständen, den sogenannten Bildpotentialzuständen auf Kobalt bei Zugabe von Sauerstoff. Es werden Messergebnisse im Hinblick auf die Austauschspaltung, die Linienbreite und die energetische Verschiebung der Bildpotentialzustände in Abhängigkeit der Sauerstoffdosierung gezeigt.

¹giant magnetoresistance (GMR)

Kapitel 5 ist das zentrale Kapitel meiner Arbeit. Hier werden die mittels 2PPE gemessenen spinabhängigen Lebensdauern heißer Elektronen der $3d$ -Ferromagnete Eisen, Kobalt und Nickel vorgestellt und mit früheren Messungen sowie den Ergebnissen von Rechnungen aus verschiedenen theoretischen Modellen verglichen. Die in diesem Zusammenhang gemessene mittlere freie Weglänge zeigt, dass der hier verwendete experimentelle Ansatz der direkten Lebensdauerermessung genauere Ergebnisse liefert als die indirekte Bestimmung der Lebensdauer über schicht-dickenabhängige Transportmessungen in Spin-Ventil-Systemen.

Kapitel 6 zeigt auf, wie Oberflächenzustände helfen können, wichtige zugrundeliegende Mechanismen der Elektronendynamik auf der Femtosekundenzeitskala besser zu verstehen. Durch Austauschstreuung, bei der im Fall von Kobalt relaxierende Minoritätselektronen Majoritätselektronen anregen, wurde eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz der gemessenen Werte im Vergleich zu theoretischen Vorhersagen gefunden.

2. Grundlagen

In diesem Kapitel werden die Grundlagen erläutert, die zum Verständnis der Messergebnisse notwendig sind. Kapitel 2.1 erläutert den Ursprung des Magnetismus in den in dieser Arbeit untersuchten Metallen Eisen, Kobalt und Nickel sowie deren Eigenschaften als Volumenkristalle und dünne Filme auf Cu(100). In Kapitel 2.2 wird auf die Mechanismen, die die Lebensdauer heißer Elektronen beeinflussen eingegangen und theoretische Modelle zur Vorhersage der Lebensdauer werden vorgestellt. Die für die Messungen verwendete Zwei-Photonen-Photoemission und die damit erreichte Zeitauflösung ist Inhalt des Kapitels 2.3, während 2.4 die theoretische Beschreibung der Ergebnisse mit Hilfe der optischen Blochgleichungen zum Inhalt hat.

2.1. Kristallstruktur und Magnetismus der 3d-Metalle

Die Metalle Eisen, Kobalt und Nickel gehören zur Gruppe der *Übergangsmetalle*, bei denen die 3d-Orbitale sukzessive aufgefüllt werden. Aus diesem Grund werden Eisen, Kobalt und Nickel auch *3d-Ferromagnete* genannt. Sie liegen im Periodensystem nebeneinander, mit sechs, sieben bzw. acht Elektronen in der 3d-Schale des entsprechenden Atoms.

Der Magnetismus dieser Metalle wird von den gleichen Elektronen hervorgerufen, die auch für den elektrischen Transport verantwortlich sind. Die 3d-Ferromagnete werden daher auch als *Bandferromagnete* oder *itinerante* Ferromagnete bezeichnet, da die beteiligten Elektronen delokalisiert sind und sich frei im Kristallgitter bewegen können.

Stoner schlug ein einfaches Modell zur Beschreibung des Magnetismus der 3d-Ferromagnete vor [Sto36], das Einblicke in den physikalischen Hintergrund bietet und auf einer Molekularfeldnäherung beruht. Im Stoner-Modell, welches ich im Folgenden diskutieren werde, geht man von einer austauschgespaltenen Bandstruktur aus, d.h. dass die Zustandsdichte für Minoritäts- (\downarrow) und Majoritätselektronen (\uparrow) gegeneinander durch die Austauschwechselwirkung verschoben ist. Diese Aufspaltung der Bänder wird *Austauschspaltung* ΔE_{ex} genannt. Die Änderung der kinetischen Energie des Gesamtsystems gegenüber dem paramagnetischen, nicht aufgespaltenen Fall beträgt dabei

$$\Delta E_{kin} = \frac{1}{2}g(E_F)(\delta E)^2, \quad (2.1)$$

mit der von der Energie abhängigen paramagnetischen Zustandsdichte g und der

Energiedifferenz zwischen den beiden Sub-Bändern δE . Dabei ist ΔE_{kin} positiv, d.h. eine Austauschspaltung der Bänder kostet zunächst Energie. Die Wechselwirkung der so entstandenen magnetischen Momente mit dem Molekularfeld kann den Energieverlust jedoch überkompensieren. Die Anzahl der Majoritätsspins ist $n_{\uparrow} = \frac{1}{2}(n + g(E_F)\delta E)$, die der Minoritätsspins $n_{\downarrow} = \frac{1}{2}(n - g(E_F)\delta E)$, wobei n die Anzahl der Elektronen pro Volumeneinheit ist. Die Magnetisierung beträgt daher $M = \mu_B(n_{\uparrow} - n_{\downarrow})$, unter der Annahme, dass jedes Elektron ein magnetisches Moment von einem Bohrschen Magneton μ_B besitzt. Die Molekularfeldenergie ist damit

$$\Delta E_{Mol} = - \int_0^M \mu_0(\lambda M') dM' = -\frac{1}{2}\mu_0\mu_B^2\lambda(n_{\uparrow} - n_{\downarrow})^2 = -\frac{1}{2}U(n_{\uparrow} - n_{\downarrow})^2, \quad (2.2)$$

wobei μ_0 die Vakuumpermeabilität bezeichnet, λ den Molekularfeldfaktor und $U = \mu_0\mu_B^2\lambda$ die Austauschenergie. Damit erhält man:

$$\Delta E_{Mol} = -\frac{1}{2}U \cdot g(E_F)\delta E. \quad (2.3)$$

Die Gesamtänderung der Energie ist damit

$$\Delta E = \Delta E_{kin} + \Delta E_{Mol} = \frac{1}{2}g(E_F)(\delta E)^2(1 - U \cdot g(E_F)). \quad (2.4)$$

Spontaner Ferromagnetismus kann demnach also auftreten, wenn die Änderung der Gesamtenergie ΔE kleiner als Null ist. Dies wird für die Metalle erreicht für die

$$U \cdot g(E_F) \geq 1, \quad (2.5)$$

ist, wobei der Zusammenhang (2.5) auch als Stoner-Kriterium bekannt ist. Eine spontane (also eine kollektive magnetische Ordnung ohne äußeres Feld) ferromagnetische Ordnung benötigt also starke Coulomb-Effekte (Austausch) und eine hohe Zustandsdichte in der Nähe der Fermi-Energie. Für die 3d-Ferromagnete Eisen, Kobalt und Nickel ist diese Bedingung erfüllt, hier gibt es eine Austauschspaltung zwischen Minoritäts- und Majoritätsbändern, die sich in einer energetischen Verschiebung der spinabhängigen Zustandsdichte um ΔE_{ex} relativ zueinander ausdrückt (siehe Abbildung 2.1). Ist das Stoner-Kriterium nicht erfüllt, tritt keine spontane ferromagnetische Ordnung auf.

Vergleicht man die Bandstrukturen von Kupfer und Nickel, die im Periodensystem nebeneinander liegen, so wird deutlich, wie die Bänder beschaffen sein müssen, damit spontaner Ferromagnetismus auftritt. Der allgemeine Verlauf der Zustandsdichte ist ähnlich (Abbildung 2.2), die 4s- und 3d-Bänder überlappen. Beim Kupfer ist das 3d-Band jedoch vollständig besetzt mit zehn Elektronen pro Atom, das 4s-Band durch das verbleibende Elektron nur zur Hälfte gefüllt. Die Fermi-Energie liegt daher im s-Band und dieser Zustand wird durch die Austauschwechselwirkung kaum geändert. Bei Nickel liegt die Fermi-Energie im paramagnetischen Fall

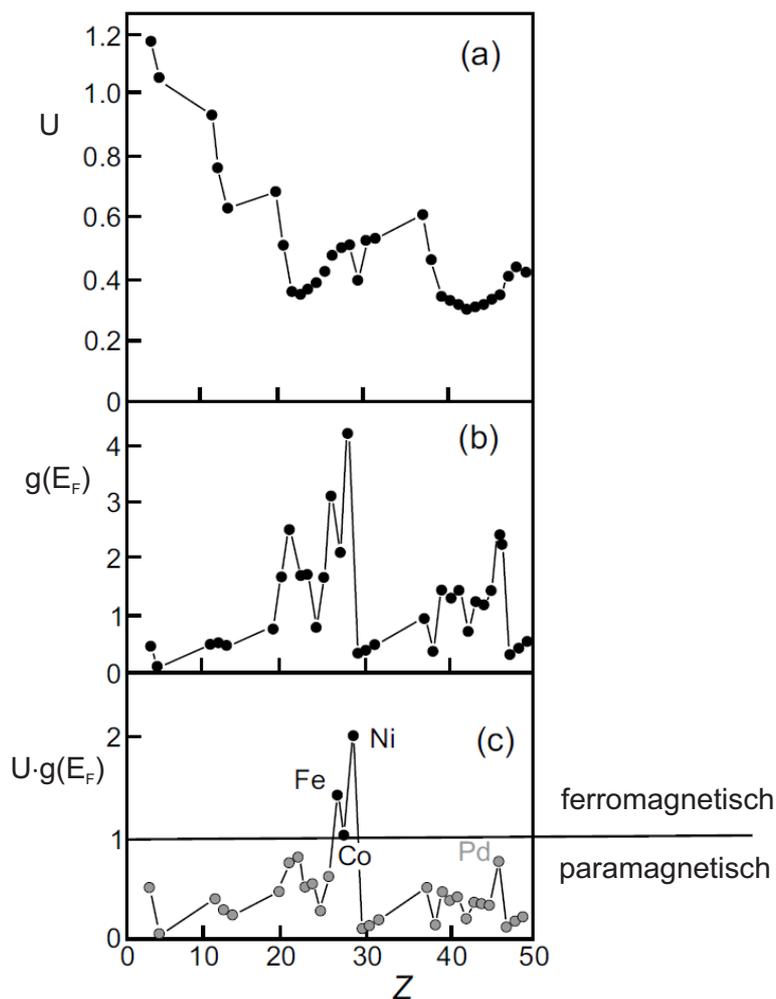


Abbildung 2.1.: Coulomb-Energie U , Zustandsdichte in der Nähe der Fermi-Energie $g(E_F)$ und Stoner-Kriterium $U \cdot g(E_F)$ für Elemente bis zu einer Kernladungszahl von $Z=50$. Für die Metalle Eisen, Kobalt und Nickel ist das Stoner-Kriterium erfüllt. Sie sind bei Raumtemperatur ferromagnetisch geordnet (aus Ref. [Get07]).

an der Oberkante des $3d$ -Bands. Bei Unterschreiten der Curie-Temperatur verschiebt sich das Majoritäts- d -Band durch die Austauschwechselwirkung unter die Fermi-Energie. Es findet also eine starke Umbesetzung der Zustände statt, die zu einer entsprechend starken Magnetisierung führt. Da der Unterschied in der Zustandsdichte der Minoritäts- und Majoritätsspinelektroden bei Nickel und Kobalt in der Nähe des Fermi-Niveaus besonders hoch ist, bezeichnet man diese auch als *starke* Ferromagnete. Bei Eisen ist der Unterschied in der Besetzung geringer, hier spricht man von einem *schwachen* Ferromagneten.

Der Magnetismus eines Volumenkristalls unterscheidet sich in mehreren Aspekten vom Magnetismus dünner Schichten¹. Die Atome der Oberfläche eines weni-

¹Eine Übersicht der Eigenschaften dünner Filme der $3d$ -Ferromagnete auf Cu(100) und anderen Substraten findet sich in Referenz [VBL08].

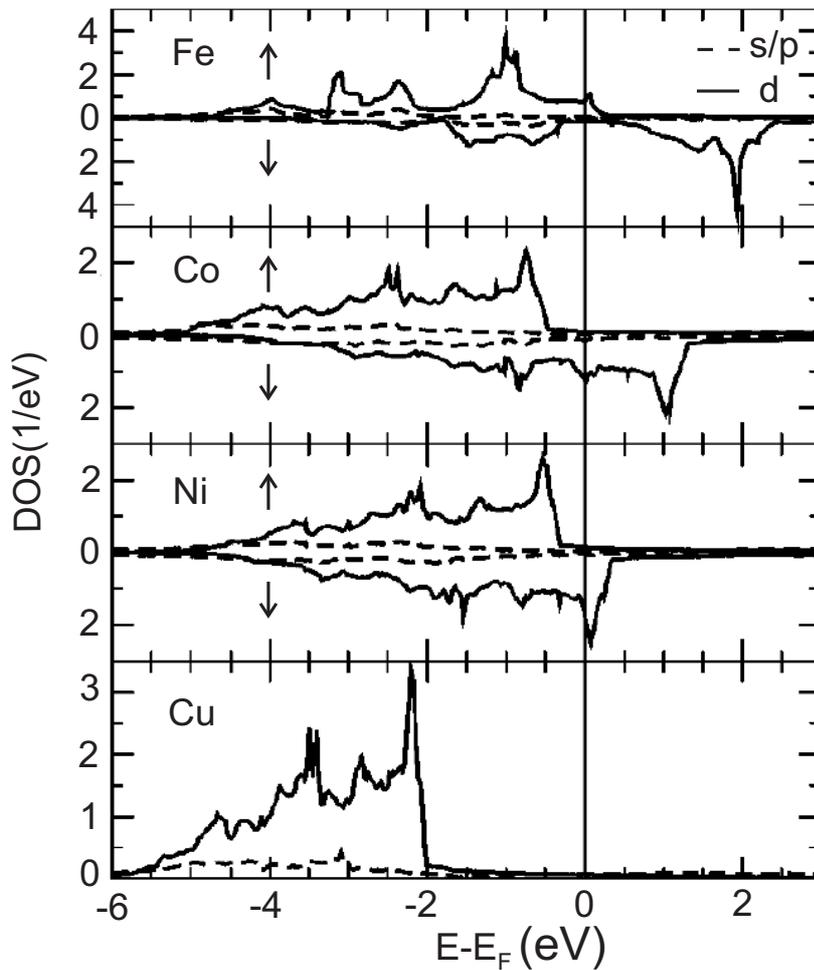


Abbildung 2.2.: Zustandsdichten (DOS, density of states) in Abhängigkeit von der Energie von Eisen, Kobalt, Nickel und Kupfer (aus [KBBA00]). Bei Kupfer sind die Zustandsdichten für beide Spinkanäle identisch. Die Oberkante der d -Bänder bei Kupfer liegt 2 eV unterhalb der Fermi-Energie. Die Zahl der möglichen Streuzustände in der Nähe von E_F wird von den s -Bändern vorgegeben. Bei Nickel liegt in der paramagnetischen Phase die Oberkante der d -Bänder etwas oberhalb von E_F , wodurch eine starke Umbesetzung der Zustände durch die Austauschwechselwirkung stattfindet. Der Unterschied in der Zustandsdichte zwischen \uparrow - und \downarrow - Elektronen ist bei Nickel und Kobalt größer als bei Eisen, erstere werden daher als starke, letzteres als schwacher Ferromagnet bezeichnet.

ge Atomlagen dicken Films haben eine geringere Anzahl nächster Nachbarn. Dadurch wird die elektronische Bandbreite W reduziert und die Zustandsdichte n_0 in der Nähe der Fermi-Energie erhöht, wobei $n_0(E) \propto 1/W$ ist. Die Wahrscheinlichkeit, dass das Stoner-Kriterium erfüllt ist, ist somit bei dünnen Schichten aus $3d$ -Metallen höher als im Volumenkristall. Die magnetischen Momente in der Nähe der Oberfläche werden erhöht und es können sogar Metalle und Legierungen entstehen, die als Volumenkristall unmagnetisch sind, in Filmen dagegen magnetische

Ordnung zeigen. Einen umfassenden Überblick über viele Aspekte des Magnetismus liefert z. B. Referenz [SS06].

Nachfolgend werden die Kristallgitter- sowie die magnetischen Eigenschaften von Volumenkristallen und dünnen Filmen der Metalle Eisen, Kobalt und Nickel auf Cu(100) beschrieben. Die Oberfläche des Kupfer-Substratkristalls, auf dem die ferromagnetischen Schichten aufgedampft werden, ist in der (100) Richtung orientiert. Die Gitterkonstante beträgt $a=3.61 \text{ \AA}$.

Eisen liegt als Volumenkristall bei Raumtemperatur als α -Fe, d.h. in bcc-Struktur (*body-centered cubic*) vor. Bei Temperaturen zwischen 1185 und 1667 K findet ein Phasenübergang zu γ -Fe statt, wobei Eisen die fcc-Struktur (*face-centered cubic*) annimmt. Die Gitterkonstante von fcc-Fe beträgt 3.59 \AA [Me05]. Die Eigenschaften dünner Eisenfilme auf Cu(100) weisen sowohl hinsichtlich ihrer Struktur als auch ihres Magnetismus ein komplexes Verhalten auf. In Abhängigkeit von der Bedeckung unterscheidet man drei Regionen des Wachstums [TMF⁺92]: Bei einer Dicke zwischen 2 und 4 Monolagen (ML) ist der Eisenfilm ferromagnetisch geordnet, mit der leichten Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Filmebene. Die Kristallstruktur ist hierbei nicht abschließend geklärt, LEED (*low energy electron diffraction*) Untersuchungen zeigen sowohl fcc- [MBK⁺95, MBR⁺95], als auch bcc-Strukturen [HMH04], letztere wurden auch in STM (*scanning tunneling microscopy*) Untersuchungen beobachtet [BTSV01]. Streuversuche mit Wasserstoff und Helium deuten hingegen auf eine fcc-Struktur [BBGW05] hin. Zwischen 5 und 10 ML sind die beiden obersten Lagen ferromagnetisch orientiert, während die unteren Schichten antiferromagnetisch gekoppelt sind [LFP⁺94, GDP96], auch hier liegt die leichte Richtung der Magnetisierung senkrecht zur Filmebene. In diesem Bereich wächst Eisen pseudomorph² in fcc-Struktur auf Cu(100). Die in dieser Arbeit verwendete Filmdicke von Eisen liegt mit 7 ML in diesem Bereich. Bei Filmdicken oberhalb von 10 ML findet ein Spinreorientierungsübergang bei gleichzeitigem Übergang in die bcc-Struktur statt, die leichte Achse der Magnetisierung liegt oberhalb dieser Dicke in der Filmebene, in (110) Richtung [WFT⁺93]. Die Austauschspaltung beträgt 1.2 eV [MWH93]. Da die fcc-Struktur zwischen 5 und 10 ML nur oberhalb von 200 K erhalten bleibt [LFP⁺94], wurden die hier untersuchten Eisenfilme bei Raumtemperatur aufgedampft. Interdiffusion mit dem Kupfersubstrat tritt dabei nicht auf [SGSK95]. Die magnetischen und strukturellen Eigenschaften dünner Eisenfilme auf Cu(100) in den drei verschiedenen Wachstumsregionen sind Gegenstand aktueller Forschung, wesentliche Aspekte sind noch nicht abschließend geklärt [DPSW09].

Kobalt liegt bei Raumtemperatur in der hcp-Struktur (*hexagonally close packed*) vor mit einer Gitterkonstanten von $a = 2.51 \text{ \AA}$ und $c = 4.07 \text{ \AA}$ (α -Co). Oberhalb einer Temperatur von 720 K nimmt es eine fcc-Struktur mit einer Gitterkonstanten von $a = 3.55 \text{ \AA}$ an. Im Gegensatz zu Eisen zeigt Co/Cu(100) ein gutmütiges Verhalten: Kobalt wächst pseudomorph auf Cu(100) in einer tetragonal verzerrten fct-Struktur (*face-centered tetragonal*) auf [CdAPLC⁺93], mit der leichten Rich-

²Pseudomorphes Wachstum liegt vor, wenn eine Schicht verspannt, also mit der lateralen Gitterkonstante des Substrats aufwächst.

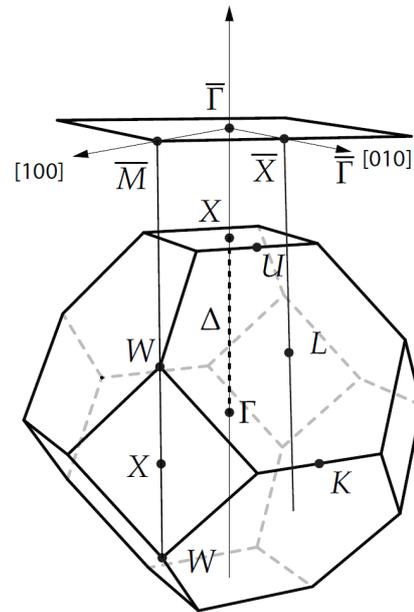


Abbildung 2.3: Brillouinzone der fcc-Struktur und Projektion auf die fcc(100)-Oberfläche. Die Buchstaben kennzeichnen die Hochsymmetriepunkte (aus [Pan09]).

tung der Magnetisierung in der Filmebene entlang der [110]-Richtung [WBA⁺96]. Die in dieser Arbeit untersuchten Kobaltfilme wurden bei einer Temperatur von 110 K aufgedampft, da bei dieser Temperatur keine Interdiffusion mit dem Kupfersubstrat auftritt [BPGW05]. Die Austauschspaltung beträgt 1.2 eV [MWH93].

Nickel liegt bei Raumtemperatur in der fcc-Struktur vor, mit einer Gitterkonstanten von $a = 3.52 \text{ \AA}$. Beim Aufdampfen auf einen Cu(100)-Kristall wächst Nickel lagenweise auf, bei der in dieser Arbeit verwendeten Aufdampftemperatur von 110 K tritt keine Interdiffusion mit dem Kupfersubstrat auf [HKMW94, SB94, SI89]. Nickel nimmt wie Kobalt eine fcc-Struktur an, mit der Gitterkonstante des Kupfers [Blu03, IP93]. Die magnetische Struktur von Ni/Cu(100) zeigt in Abhängigkeit von der Anzahl der Lagen zwei Spinreorientierungsübergänge: Bis zu einer Dicke von etwa 7 ML liegt die Richtung der leichten Magnetisierung in der Filmebene, ab 8 ML senkrecht dazu. Ab 35 ML verschiebt sich die Richtung der leichten Magnetisierung zunehmend zurück in die Filmebene entlang der [110]-Richtung [SB94, NGP⁺03]. Die Austauschspaltung beträgt 0.3 eV [MWH93].

Da alle drei Metalle bei den in dieser Arbeit verwendeten Schichtdicken in fcc-Struktur auf dem Cu(100)-Substrat aufwachsen, ist die Brillouinzone der fcc-Struktur und deren Projektion auf die (100)-Oberfläche mit den Hochsymmetriepunkten schematisch in Abbildung 2.3 dargestellt.

2.2. Lebensdauer heißer Elektronen

Wird ein Elektron in einem Metall durch Zuführen von Energie, z. B. durch Absorption eines Photons angeregt, so relaxiert es nach einigen Femtosekunden wieder in den Gleichgewichtszustand. Diese Relaxationszeit ist die mittlere Zeit zwischen zwei Streuprozessen des Elektrons. In den nachfolgenden Unterkapiteln wird ein einfaches theoretisches Modell zur Beschreibung der Relaxationszeit gegeben, und

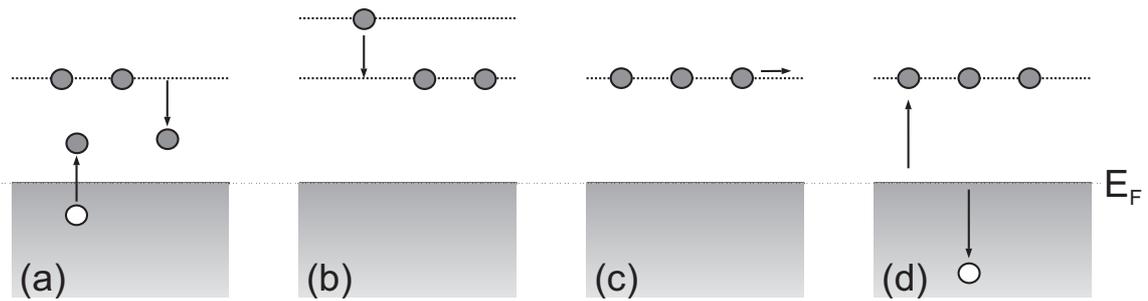


Abbildung 2.4.: (a) inelastischer Streuprozess des primären Elektrons durch Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares; (b) Kaskaden-Prozess, bei dem angeregte Elektronen aus energetisch höher liegenden Zuständen in tiefer liegende streuen; (c) Transport-Prozesse, bei denen sich angeregte Elektronen ballistisch aus dem Bereich der Laserpulse entfernen; (d) Erzeugung von Auger-Elektronen durch Anregung von Löchern aus d -Bändern (nach [ZC09]).

der Einfluss der Bandstruktur auf die Relaxationszeit dargestellt. Bei den hier untersuchten Ferromagneten spielt für die Lebensdauer der heißen Elektronen auch die Austauschstreuung eine bedeutende Rolle, auf die in Kapitel 5 eingegangen wird.

2.2.1. Zerfallskanäle

Die verschiedenen Prozesse, die die Lebensdauer heißer Elektronen beeinflussen, werden nachfolgend kurz beschrieben und sind in Abbildung 2.4 schematisch dargestellt (nach [ZC09]):

- **Inelastische Streuung** der heißen Elektronen ist der vorrangige Prozess, in dem das angeregte Elektron durch Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares relaxiert.
- **Kaskaden-Prozesse** entstehen durch Elektronen, die von höheren angeregten Zuständen in solche mit niedrigerer Energie zerfallen. Das führt zu einem Anstieg der Population des tieferliegenden Zustands, was zu einem Anstieg der experimentell beobachteten Lebensdauer dieses Zustands führen kann. Die Intensitäten der in dieser Arbeit verwendeten Laserpulse ist allerdings zu gering um einen signifikanten Beitrag von Kaskaden-Prozessen in den untersuchten Zuständen zu beobachten.
- Durch **Transport-Prozesse** entfernen sich die Elektronen aus dem Bereich der durch die Laserpulse angeregt wird. Bei einkristallinen Filmen beträgt die Geschwindigkeit der Elektronen etwa 10^8 cms^{-1} und ist damit nahezu ballistisch. Bei Edelmetallen beeinflussen Transporteffekte die Lebensdauer 20-30 fs nach dem Maximum des anregenden Pulses. Bei den hier untersuchten Übergangsmetallen spielen Transportprozesse jedoch nur eine geringe Rolle, da die hier dominanten d -Elektronen stärker lokalisiert sind und eine deutlich geringe Geschwindigkeit besitzen.

- **Auger-Elektronen** und der Einfluss der *d*-**Bänder**. Bei den Edelmetallen liegen die *d*-Bänder einige Elektronenvolt unterhalb der Fermi-Energie (bei Kupfer etwa 2 eV). Bei einer Photonenenergie kleiner als die nötige Anregungsenergie von Elektronen aus den *d*-Bändern werden Elektronen und Löcher in den *s*- und *p*-Bändern erzeugt, deren Lebensdauer qualitativ durch die Theorie der Fermiflüssigkeiten beschrieben werden kann. Ist die Energie der anregenden Photonen größer als die Energiedifferenz zwischen der Fermi-Energie E_F und der Oberkante der *d*-Bänder, so werden die erzeugten Elektronen die *s*- und *p*-Bänder bevölkern. Die Photo-Löcher werden nun jedoch teilweise in den *d*-Bändern erzeugt. Diese *d*-Band Photo-Löcher haben jedoch, im Vergleich zu *sp*-Band Löchern eine längere Lebensdauer. Energetisch höher liegende Elektronen können in die *d*-Löcher relaxieren und dabei Elektronen in Zustände oberhalb E_F anregen. Dadurch vergrößert sich die Population dieser Zustände, was einer Verlängerung der gemessenen Lebensdauer entspricht [ESK00].

2.2.2. Theoretische Modelle zur Lebensdauer heißer Elektronen

Ein einfaches Modell zur Beschreibung der Viel-Teilchen-Dynamik im Festkörper ist die Theorie der Fermi-Flüssigkeit. Ursprünglich geht sie auf Landau zurück, der damit das Verhalten von flüssigem ^3He bei tiefen Temperaturen beschrieb [Lan57]. Trotz seiner Einfachheit gibt es die Dynamik nahezu freier Elektronen recht gut wieder. Die Eigenschaften des Elektronengases als Grundlage dieser Theorie hängt von der Elektronendichte n_0 ab, die üblicherweise durch den Elektronendichteparameter r_s ausgedrückt wird: $1/n_0 = (4/3)\pi(r_s a_0)^3$, mit dem Bohrschen Radius a_0 . Dabei beschreibt r_s den Radius der Kugel (in Einheiten von a_0), die ein Elektron beinhaltet.

Um die Dynamik von Elektronen in Viel-Teilchen-Systemen im Rahmen von theoretischen Modellen zu beschreiben, müssen die Wechselwirkungen mit allen anderen Teilchen berücksichtigt werden. Dazu führt man die *Selbstenergie* eines Systems ein, die alle Wechselwirkungen eines Elektrons mit anderen Elektronen beinhaltet und die darüber hinaus auch andere Streuprozesse enthält, z.B. Elektron-Phonon-Streuung. Da es sich hierbei jedoch um eine große Anzahl an Prozessen handelt, deren vollständige Berechnung numerisch nicht durchführbar ist, sind Näherungen notwendig und man beschränkt sich auf die für das betrachtete System wichtigsten Prozesse. Für die Bestimmung der Lebensdauer angeregter Elektronen sind dies Coulomb-Wechselwirkung, Austauschwechselwirkung und Polarisierung. Eine solche Näherung nennt man GWA (*GW-Approximation*) der Selbstenergie. Die Bestimmungsgleichung enthält die Greens-Funktion des propagierenden Elektrons (G) und das abgeschirmte effektive Elektron-Elektron-Potential W_{eff} , daher der Name GW-Näherung. Die Abschirmung des Potentials entsteht durch die Polarisierung der Umgebung des Elektrons und damit dem Aufbau einer Polarisationswolke. Man spricht daher auch von einem *Quasiteilchen*.

Wendet man das Konzept der Selbstenergie auf ein Freies-Elektronen-Gas an, so kann man die Lebensdauer τ eines angeregten Zustandes der Energie E_i in

Abhängigkeit von der Fermi-Energie E_F angeben, wie Quinn und Ferrell gezeigt haben [QF58]:

$$\tau(E_i) = 263 r_s^{5/2} (E_i - E_F)^{-2}. \quad (2.6)$$

Nach Gl. 2.1 nimmt die Lebensdauer τ der angeregten Elektronen quadratisch mit der Energie oberhalb der Fermi-Energie ab und divergiert gegen E_F . Die Lebensdauer steigt gegen E_F so stark an, weil die Lebensdauer eines Zustands reziprok zur Anzahl der End-Zustände ist, in die bei der vorliegenden Energie gestreut werden kann. Aufgrund des Pauli-Prinzips wird deren Anzahl in der Nähe der Fermi-Energie immer geringer, da alle möglichen Endzustände hier besetzt sind (bei $T=0$ K). Für größere Energien nimmt auch die Zahl der möglichen Zustände zu, in die gestreut werden kann und somit die Lebensdauer ab. Für Silber stimmt das Modell eines Freie-Elektronen-Gases recht gut mit den Experimenten überein [KHH⁺96]. Bei Kupfer und Gold ist die auf diese Weise theoretisch vorhergesagte Lebensdauer jedoch bis zu sechsmal kleiner als die experimentell gefundenen Werte [ABP96, KHW98].

Dies zeigt, dass es notwendig ist, theoretische Modelle zu entwickeln, denen realistische Bandstrukturen zugrunde liegen um die notwendigen Wechselwirkungen der angeregten Elektronen zu berücksichtigen. An solchen Modellen wurde innerhalb der letzten zwanzig Jahre gearbeitet, experimentelle Daten zu deren Verifizierung liegen aber für die ferromagnetischen Metalle Eisen, Kobalt und Nickel nur in einem kleinen Energiebereich vor.

2.2.3. Einfluss der Bandstruktur und Spinaufgespaltene Bänder

Die Theorie der Fermiflüssigkeiten geht von einem freien Elektronengas aus, sie berücksichtigt also nicht die Bandstruktur bzw. die daraus ableitbare Zustandsdichte ρ der jeweiligen Metalle. Die Zustandsdichte, d.h. die Zahl der vorhandenen Zustände bei der Energie E in Abhängigkeit von $E - E_F$, gibt jedoch den Phasenraum für mögliche Streuprozesse vor: je größer ρ , desto höher die Streuwahrscheinlichkeit der Elektronen und damit deren Relaxationsrate, was einer kleineren Lebensdauer entspricht.

Bei den Edelmetallen ist die Zustandsdichte in der Nähe der Fermi-Energie klein und wird von den sp -Orbitalen bestimmt. Die Lebensdauern angeregter Elektronen in Kupfer, Silber und Gold sind dementsprechend groß, etwa 100 fs bei einer Energie von 0.5 eV oberhalb der Fermi-Energie [WA98, ABP⁺00]. Die Übergangsmetalle zeigen aufgrund ihrer d -Bänder in der Nähe der Fermi-Energie eine hohe und stark strukturierte Zustandsdichte und dementsprechend eine kürzere Lebensdauer angeregter Zustände (zwischen etwa 10 fs für Tantal und Rhenium bis etwa 50 fs für Molybdän) [KHH⁺96, MLB⁺06]. Moderne GW-Rechnungen benutzen eine realistische Bandstruktur, um die Lebensdauer heißer Elektronen in den jeweiligen Materialien vorherzusagen.

Bei den in dieser Arbeit untersuchten magnetischen Übergangsmetallen Eisen, Kobalt und Nickel kommt der Effekt der unterschiedlichen Zustandsdichten zum

Tragen: In der Nähe der Fermi-Energie ist der Phasenraum für Majoritäts- (\uparrow) und Minoritätselektronen (\downarrow) verschieden. Daher ist davon auszugehen, dass auch die Lebensdauern der Elektronen für die jeweiligen Spinkanäle verschieden sind. Die ersten direkten Lebensdauermessungen eines dünnen Kobaltfilms auf Cu(100) bestätigten diese Annahme [ABP⁺97]. Da die \uparrow - d -Bänder in Kobalt knapp unterhalb E_F liegen und die Zustandsdichte daher geringer ist, leben die Majoritätselektronen länger als die Minoritätselektronen, bei denen die Oberkante der d -Bänder oberhalb der Fermi-Energie liegt.

Dieser Effekt hat weitreichende Konsequenzen: Beim Durchgang eines angeregten Elektronenpakets durch einen ferromagnetischen Film werden die Minoritätselektronen aufgrund ihrer kürzeren Lebensdauer stärker herausgefiltert. Dieser *Spin-Filter*-Effekt bildet die Grundlage der sogenannten *Spintronik* und des GMR- (*giant magnetoresistance*) Effekts [BBF⁺88].

2.2.4. Spin-Umklapp-Prozesse und virtueller Spin-Austausch

Bei der Relaxation angeregter Elektronen und dem damit verbundenen Energietransfer können nicht nur sekundäre Elektronen mit gleicher, sondern auch solche mit entgegengesetzter Spinrichtung angeregt werden.

Man unterscheidet kollektive- und Einteilchen-Spin-Anregungen. Eine kollektive Spin-Anregung entsteht, wenn ein relaxierendes Minoritätselektron eine Anzahl von Spins zu quantisierten Oszillationen anregt. Diese Anregung wird Spin-Welle oder im Quasiteilchenbild *Magnon* genannt. Die Anregung eines Magnons wird ermöglicht durch den Übergang eines Minoritätselektrons im Spinzustand $S_z = \hbar/2$ in ein Majoritätselektron mit dem Spinzustand $S_z = -\hbar/2$ einhergehend mit einer Änderung der z -Komponente des Drehimpulses von $\Delta S_z = -\hbar$. Zur Erhaltung des Drehimpulses muss ein Magnon also einen Drehimpuls mit einem ganzzahligen Vielfachen von \hbar aufweisen und zeigt somit bosonisches Verhalten. Umgekehrt kann ein Majoritätselektron ein Magnon absorbieren und dabei in einen Minoritätszustand übergehen. Bei einer Temperatur von $T = 0$ K erreicht ein idealer Ferromagnet den Zustand niedrigster Energie, bei der alle Spins in der gleichen Richtung orientiert sind, das magnetische Moment also maximal ist. In diesem Zustand sind keine Magnonen angeregt. Mit zunehmender Temperatur weichen mehr und mehr Spins von der Majoritäts-Orientierung ab und reduzieren damit die Magnetisierung. Dabei werden Magnonen angeregt, indem Minoritätselektronen ihren Spin ändern. Erst bei genügend hoher Temperatur, bei der eine signifikante Anzahl von Magnonen angeregt ist, werden Spin-Umklapp-Prozesse relevant, in denen ein Majoritätselektron ein Magnon absorbiert und dabei in einen Minoritätszustand übergeht. Werden Messungen bei tiefen Temperaturen durchgeführt, in dieser Arbeit bei 110 K, so ist die Wahrscheinlichkeit einer Magnon-Anregung durch den Übergang eines Minoritätselektrons in ein Majoritätselektron größer als die Absorption eines Magnons mit einem Spin-Umklapp in umgekehrter Richtung.

Relaxiert ein angeregtes Minoritätselektron und regt dabei ein Majoritätselektron an, so entsteht ein Elektron-Loch-Paar mit entgegengesetzter Spinorientierung. Diese Einteilchenanregung wird *Stoner*-Anregung und das Elektron-Loch Paar Stoner-

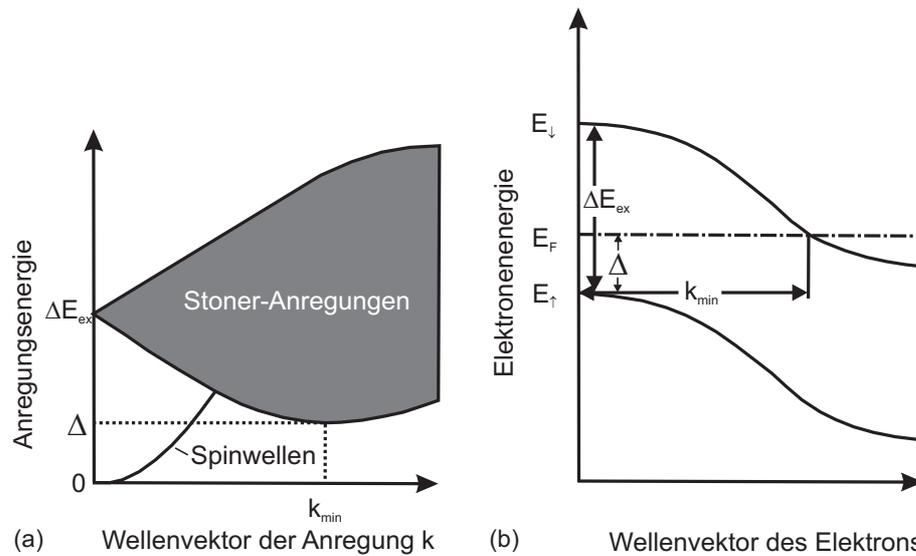
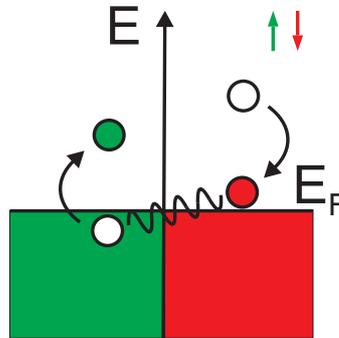


Abbildung 2.5.: (a) Schematische Darstellung der Dispersionsbeziehung von Spin-Wellen und Spektrum der Elektron-Loch (Stoner)-Anregung. Bei einem Wellenvektor von $\mathbf{k} = 0$ muss eine Anregungsenergie in Höhe der Austauschspaltung ΔE_{ex} aufgebracht werden, um ein Stoner-Paar zu erzeugen. (b) Modellhafte Einelektronen-Bandstruktur mit der Austauschspaltung ΔE_{ex} und der Stoner-Lücke Δ , der kleinsten Energie, die bei einem bestimmten Wellenvektor aufgebracht werden muss, um eine Stoner-Anregung zu erzeugen (aus [IL08]).

Paar genannt [SS06]. Abbildung 2.5(a) zeigt die Dispersion von Magnonen und das Spektrum von Stoner-Anregungen. Die Dispersion von Magnonen zeigt für kleine Wellenvektoren eine parabolische Form. Die Energie zur Erzeugung von Magnonen liegt bei kleinen Wellenvektoren deutlich niedriger als die Energie, die zur Erzeugung eines Stoner-Paares benötigt wird. Bei den in dieser Arbeit untersuchten Anregungsenergien heißer Elektronen von 200 bis 700 meV spielen Stoner-Paare eine vernachlässigbare Rolle, im Gegensatz zur Anregung von Magnonen. Eine modellhafte Einelektronen-Bandstruktur zeigt Abbildung 2.5(b) mit der Austauschspaltung ΔE_{ex} und der Stoner-Lücke Δ .

Die Relaxation der im Rahmen dieser Arbeit mittels fs-Laserpulsen angeregten Elektronen erfolgt im wesentlichen durch Elektron-Elektron Streuung, welche der Coulomb-Wechselwirkung unterliegt. Aufgrund der Drehimpulserhaltung können direkte Spin-Umklapp-Prozesse jedoch nicht über die Coulomb-Wechselwirkung vermittelt werden. Allerdings kann die Ununterscheidbarkeit der Elektronen zu einem *virtuellen* Spin-Austausch führen (siehe Abbildung 2.6): Wenn ein relaxierendes Elektron sich in einem Majoritätszustand befindet, und ein im Grundzustand befindliches Minoritätselektron anregt, so scheint dies für den Betrachter als Spin-Umklapp-Prozess, wobei das Elektron selbst seinen Spin nicht ändert. Relaxiert ein angeregtes Elektron, so ist die Wahrscheinlichkeit einer Anregung eines Elektrons mit entgegengesetztem Spin, und damit ein virtueller Spin-Austausch, im allgemeinen wahrscheinlicher als die Anregung eines Elektrons mit demselben Spin. Dies kann man sich anschaulich durch die Pauli-Abstoßung erklären: Da zwei Elektronen

Abbildung 2.6: Bei der Austauschstreuung relaxiert ein Elektron einer Spinrichtung (beispielsweise ein Minoritätselektron in rot) und regt dabei ein Elektron mit entgegengesetzter Spinrichtung (hier ein Majoritätselektron in grün) an. Die gewellte Linie deutet die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Loch im Endzustand an.



mit gleichem Spin nicht den gleichen Zustand besetzen dürfen, müssen sie verschiedene Ortswellenfunktionen aufweisen. Daher ist der Abstand im Realraum zwischen Elektronen mit parallelem Spin im Mittel größer als für solche mit antiparallelem Spin. Daraus folgt eine niedrigere Wahrscheinlichkeit der Coulomb-Wechselwirkung und damit eine kleinere Streuwahrscheinlichkeit zwischen zwei Elektronen mit parallelem Spin als bei solchen mit antiparallelem Spin.

2.2.5. GW+T-Formalismus

Zur Beschreibung von Relaxationsprozessen, die einen Spin-Austausch beinhalten, reicht das in Kapitel 2.2.1 beschriebene GW-Modell nicht aus, da hierbei nur Zerfallskanäle betrachtet werden, in denen ein Elektron im Endzustand die gleiche Spinorientierung wie im angeregten Zustand besitzt. Ebenso wird die Wechselwirkung zwischen relaxierten Elektronen und den erzeugten Elektron-Loch-Paaren im GW-Modell nicht berücksichtigt. Zur Berücksichtigung solcher Prozesse wurde das GW-Modell um den *T-Matrix*-Formalismus erweitert (GW+T). Die in der T-Matrix Erweiterung zur GW-Theorie enthaltenen Prozesse sind in Abbildung 2.7 dargestellt. Dieses Modell wurde unter Verwendung von DFT-(*Dichtefunktionaltheorie*) Bandstrukturen zur Berechnung der Selbstenergie in ferromagnetischen Metallen [Kan63, Lie80] und zur Berechnung der Magnon-Dispersionen in Eisen und Nickel verwendet [KA00]. Da die berechnete Selbstenergie im GW+T Modell neben Spin-Austausch-Prozessen nicht nur Elektron-Elektron und Loch-Loch, sondern auch Elektron-Loch Wechselwirkungen beinhaltet, kann dieses Modell allgemein zur Beschreibung von Systemen mit starken Korrelationen und einer hohen Zustandsdichte in der Nähe des Fermi-Niveaus verwendet werden. So erzielten Zhukov *et al.* unter Verwendung des T-Matrix Ansatzes eine deutlich bessere Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie bei Tantal und Aluminium im Vergleich zu Rechnungen die in der GW-Näherung durchgeführt wurden [ZCE05].

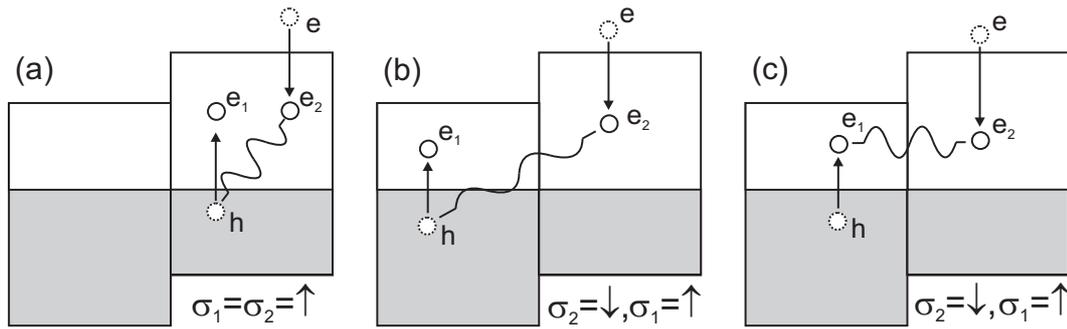


Abbildung 2.7.: Schematische Darstellung der im $GW+T$ Modell zusätzlich zur GW -Näherung enthaltenen Prozesse: (a)+(b): Elektron-Elektron bzw. Elektron-Loch Streuprozess mit gleicher bzw. entgegengesetzter Spinorientierung der Streupartner. (c): Elektron-Elektron Streuprozess mit entgegengesetzter Spinorientierung der Elektronen, σ kennzeichnet die Spinorientierung der jeweiligen Elektronen (nach [ZCE05]).

2.2.6. Oberflächen- und Bildpotentialzustände

An der Oberfläche eines Festkörpers verändert sich durch die fehlenden Nachbarteilchen das Kristallpotential. Die Wellenfunktionen, die die elektronischen Zustände beschreiben, erfahren eine Energieverschiebung. Befinden sich diese Zustände in einer Bandlücke, so spricht man von Oberflächenzuständen. Diese sind räumlich an der Oberfläche lokalisiert und ihre Aufenthaltswahrscheinlichkeit fällt sowohl in Richtung Vakuum, als auch in Richtung des Kristalls ab; ihre Symmetrie folgt der des Bandes, von dem sie abgespalten sind. Oberflächenzustände, die von nahezu freien s - und p -Bändern abgespalten, werden Shockley-Zustände genannt und reichen oft einige Atomlagen in den Kristall hinein [Hüf03]. Wenn die Energie eines Oberflächenzustands mit dem eines Volumenbandes zusammenfällt, entsteht eine Oberflächenresonanz.

Oberflächenzustände, die als unbesetzte Elektronenzustände nahe der Vakuumenergie existieren, werden *Bildpotentialzustände* genannt [EP78]. In einem einfachen Bild kann man sich deren Entstehung wie folgt verdeutlichen: Befindet sich ein Elektron im Abstand z vor einer leitenden Oberfläche, dann wird es mit einer Kraft angezogen, die einer gleich großen aber entgegengesetzten Ladung hinter der Oberfläche entspricht. Diese sogenannten Bildladungen erzeugen dann das *Bildpotential*, das in erster Näherung dem Coulomb-Potential $V(z) = -e^2/4\pi\epsilon_0 \cdot 1/4z$ entspricht. Ist die Energie des Elektrons kleiner als die Vakuumenergie und existieren in diesem Energiebereich keine Volumenzustände, so wird das Elektron von der Oberfläche reflektiert, ist also zwischen dem anziehenden Bildpotential und der abstoßenden Kristalloberfläche gefangen. Daher existiert eine Serie von Bildpotentialzuständen, deren Energien, ähnlich den Rydbergenergien des Wasserstoffatoms, zum Vakuum hin konvergieren:

$$E_n = 0.85 \frac{1}{(n+a)^2}, \quad (2.7)$$

mit $n = 1, 2, \dots$ und dem Quantendefekt a , der die endliche Eindringtiefe der Wel-

lenfunktion in das Metall beschreibt. Für ferromagnetische Metalle, die in den Volumenzuständen Austauschspaltung zeigen, sind auch die Bildpotentialzustände austauschgespalten. Durch den geringen Überlapp der Bildpotentialzustände mit den Volumenzuständen ist die Aufspaltung aber deutlich geringer. Während beispielsweise bei fcc Fe/Cu(100) die Aufspaltung der d -artigen Volumenzustände 1.2 eV beträgt [Him91], liegt der Wert für den ersten Bildpotentialzustand bei etwa 50 meV [TSWF99]. Die höheren Bildpotentialzustände zeigen noch kleinere Werte für die Austauschspaltung, da der Überlapp mit den Volumenzuständen mit zunehmender Quantenzahl a immer geringer wird.

Auf Kobalt-Oberflächen spielen sowohl virtuelle Spin-Umklapp-Prozesse, als auch die austauschgespaltene Bandstruktur eine Rolle für die in dieser Arbeit untersuchte Lebensdauer heißer Elektronen. Hier gibt es einen Oberflächenzustand mit Minoritätscharakter etwa 0.45 eV unterhalb von E_F [SPA⁺08]. Der entsprechende Majoritätszustand liegt bei knapp 2 eV unterhalb von E_F , aus dem bei der Photonenenergie des anregenden infraroten Laserpulses von kleiner als 2 eV keine Elektronen herausgelöst werden können. Minoritätselektronen rekombinieren in Photolöcher im Minoritätszustand und können dabei durch virtuelle Spin-Umklapp-Prozesse Majoritätselektronen anregen. Die gemessene Lebensdauer der heißen Majoritätselektronen erhält dann als zusätzliche Komponente die Lebensdauer der erzeugten Photolöcher im Oberflächenzustand (siehe hierzu Kapitel 5 und 6).

2.3. Zeitauflösende Photoelektronenspektroskopie

Bestrahlt man die Oberfläche eines Metalls mit Photonen der Energie $E = \hbar \cdot \omega$ (mit dem Planckschen Wirkungsquantum $\hbar = h/2\pi$ und der Frequenz ω des Lichts), die größer als die Austrittsarbeit $\Phi = E_{Vak} - E_F$ des Metalls ist, kommt es zur Photoemission. Die Vakuumenergie E_{Vak} trennt dabei gebundene von ungebundenen Zuständen, die Fermi-Energie E_F ist diejenige Energie bis zu der alle Zustände im Metall bei einer Temperatur von 0 K besetzt sind.

Absorbiert ein Elektron ein Photon mit $E > \Phi$, so wird es aus einem besetzten Anfangszustand $|i\rangle$ unterhalb der Fermi-Energie in einen unbesetzten Endzustand $|f\rangle$ der Energie E_f oberhalb E_{Vak} angeregt. Nachdem das Elektron aus dem Metall herausgelöst wurde, besitzt es die kinetische Energie

$$E_{kin} = h \cdot \omega - E_i - \Phi.$$

Dieser Prozess wird direkte Photoemission oder Einphotonenphotoemission (1PPE) genannt [Him83]. Ist die Energie des anregenden Photons $h\omega_1$ kleiner als die Austrittsarbeit, so wird das Elektron in einen (virtuellen) Zwischenzustand $|n\rangle$, der Energie E_n unterhalb der Vakuumenergie angeregt und kann das Metall nicht verlassen. Durch Streuung oder Fluoreszenz kann das Elektron seine Energie wieder abgeben und relaxiert. Absorbiert das Elektron im Zwischenzustand ein zweites Photon, dessen Energie $h\omega_2$ größer ist als die Differenz zwischen E_{Vak} und E_n , so kann es die Oberfläche mit der Energie

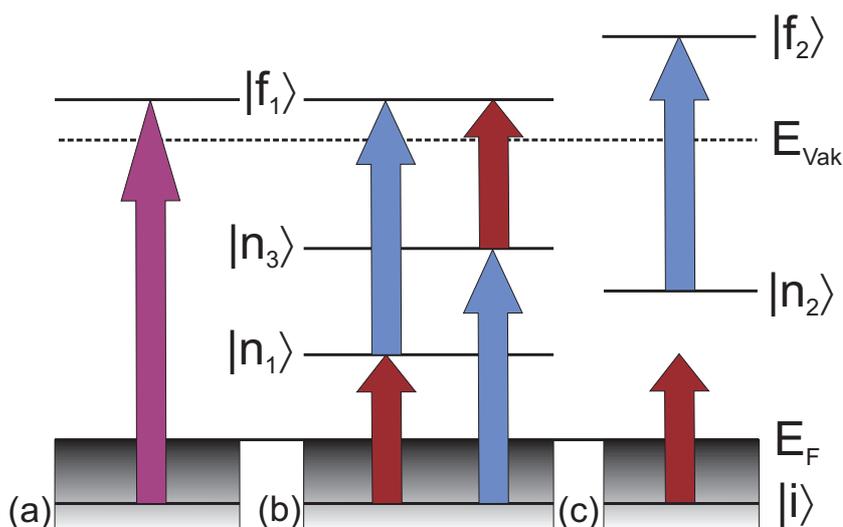


Abbildung 2.8.: (a): Anregung eines Elektrons aus einem besetzten Zustand $|i\rangle$ unterhalb der Fermi-Energie E_F durch ein Photon der Energie $E = \hbar\omega$ in einen Zustand $|f_1\rangle$ oberhalb der Vakuumenergie E_{Vak} (1PPE). (b): Anregung eines Elektrons aus einem besetzten Zustand $|i\rangle$ in einen Zwischenzustand $|n_j\rangle$ je nach Energie des anregenden Photons. Regt ein zweites Photon das Elektron aus dem Zwischenzustand in einen Endzustand oberhalb der Vakuumenergie an, so kann das Elektron die Potentialbarriere überwinden und das Metall verlassen (2PPE). (c): nicht-resonante Anregung des Zwischenzustands $|n_2\rangle$ und anschließende Anregung des Elektrons in den Endzustand $|f_2\rangle$. Zur Energieerhaltung im nicht-resonant angeregten Fall siehe Text.

$$E_{kin} = \hbar \cdot (\omega_1 + \omega_2) - E_i - \Phi$$

verlassen. Hierbei handelt es sich um den Prozess der Zwei-Photonen-Photoemission (2PPE). Im Gegensatz zur 1PPE können mit der 2PPE auch unbesetzte Zustände zwischen E_{Vak} und E_F untersucht werden [Ste89] (siehe Abbildung 2.8).

Durch die Entwicklung des Titan-Saphir Lasers Anfang der neunziger Jahre [BSCK92, SKS91], mit dem Laserpulse im Femtosekundenbereich mit hoher Leistung und gleichzeitig ausreichender zeitlicher Stabilität auch im Labor erzeugt werden konnten, erfuhr die zeitaufgelöste Spektroskopie einen raschen Aufschwung. Mit einem solchen Lasersystem wurden die Messungen in dieser Arbeit durchgeführt. Für die 2PPE wurden Pulse mit einer Dauer von 30 bis 50 fs und Energien im Infraroten und Ultravioletten Spektralbereich verwendet. Da die Laserpulse zeitlich gegeneinander verschoben werden können, kann sowohl energie- als auch zeitaufgelöst gemessen werden (Abbildung 2.9). Der erste Laserpuls, der Elektronen in den transienten Zwischenzustand anregt, wird auch als Anrege- oder *pump*-Puls bezeichnet, der darauf folgende Abfrage- oder *probe*-Puls.

Es können zwei verschiedene Messmodi verwendet werden: Bei der energieauflösenden Messung (ER2PPE, *energy-resolved two-photon photoemission*) ist die Verzögerung zwischen beiden Pulsen konstant und es wird das Spektrum als Funktion der kinetischen Energie der Elektronen aufgezeichnet. Bei der zeitauflösenden

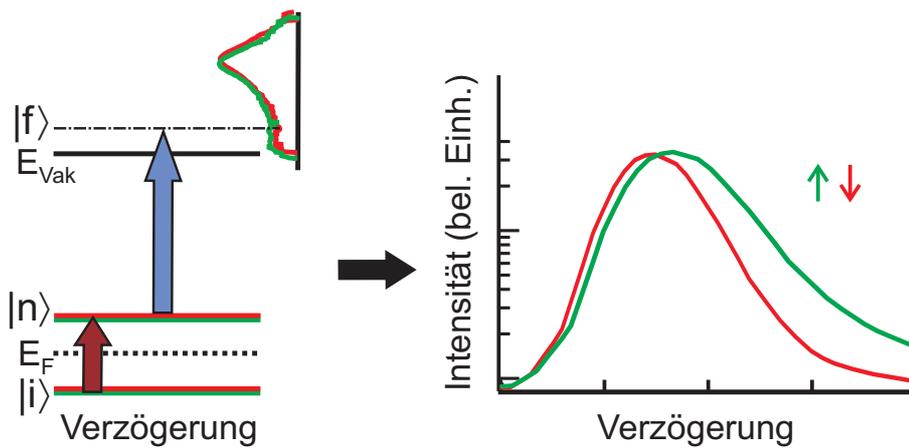


Abbildung 2.9.: Links: Anregung eines Elektrons aus einem besetzten Zustand $|i\rangle$ unterhalb der Fermi-Energie E_F durch ein infrarotes Photon in einen Zwischenzustand $|n\rangle$. Ein zweites, ultraviolettes Photon hebt das Elektron über die Vakuumenergie E_{Vak} . Die Energien der Elektronen werden für jede Spinorientierung (grün: Majoritätselektronen, rot: Minoritätselektronen) gemessen. Rechts: Variiert man bei konstanter Energie die Verzögerung zwischen beiden Pulsen, so kann man die Population des Zwischenzustands zeitauflösend messen. Man sieht, dass die Majoritätselektronen eine längere Lebensdauer als die Minoritätselektronen haben, da die Population langsamer abnimmt.

Messung (TR2PPE, *time-resolved two-photon photoemission*) wird bei einer konstanten kinetischen Energie die Verzögerung zwischen dem anregenden und dem abfragenden Puls variiert. Damit erhält man direkten Zugang zur transienten Population der angeregten Zwischenzustände und damit zu deren Lebensdauer.

Bei einigen Messungen ist zu beachten, dass nicht nur resonant angeregte Zustände in der zeitauflösenden Messung zu berücksichtigen sind, sondern auch nicht-resonant angeregte Zustände (Abbildung 2.8). Nahe der Vakuumenergie der untersuchten Filme befinden sich die Bildpotentialzustände, die durch den anregenden IR-Puls einen nicht-resonanten Beitrag in der Lebensdauermessung der heißen Elektronen liefern (siehe Kapitel 5). Die Erhaltung der Energie im Fall der nicht-resonanten Anregung kann wie folgt verdeutlicht werden: Ist die Energie durch den anregenden Laserpuls kleiner als die benötigte Energie, um ein Elektron aus dem Anfangszustand $|i\rangle$ in den Zwischenzustand $|n_2\rangle$ anzuregen, so bildet sich eine Überlagerung beider Zustände $|i\rangle + |n_2\rangle$ aus. Bei der Messung befindet sich das Elektron dann entweder im Zustand $|i\rangle$ oder im Zustand $|n_2\rangle$, deren Besetzung von der Energie des anregenden Pulses abhängt.

2.4. Theoretische Beschreibung der Messergebnisse

Die Lebensdauern der in dieser Arbeit untersuchten angeregten Zustände sind teilweise deutlich kürzer als die Laserpulsdauern von 30 bis 50 fs. Die Anregung der Zustände und deren Zerfall geschieht daher auf einer Zeitskala, in der der anregende Puls weiterhin Zustände populierte, während gleichzeitig der abfragende Puls Elek-

tronen aus dem Zwischenzustand über das Vakuumniveau anhebt. Diese Prozesse können daher nicht getrennt voneinander betrachtet werden. Die optischen Bloch-Gleichungen sind geeignet, ein durch kurze Laserpulse angeregtes Mehrniveausystem zu beschreiben und Energierelaxation und Dephasierung zu berücksichtigen. Zur Simulation dieser Prozesse wird ein von Klaus Boger entwickeltes Programm verwendet [Bog04].

Zur Durchführung der Simulation zur Analyse meiner Messergebnisse müssen die folgenden Zustände berücksichtigt werden (siehe Abbildung 2.8):

1. Ein Anfangszustand $|i\rangle$, der entweder diskret sein kann (wie z.B. der Shockleyzustand auf Cu(111)) oder ein Kontinuum an Volumenzuständen, das numerisch als Quasikontinuum behandelt wird;
2. Zwischenzustände $|n_j\rangle$ mit einer Energie zwischen der Fermi-Energie E_F und der Vakuumenergie E_{Vak} . Diese Zustände sind im thermischen Gleichgewicht nicht besetzt, sie werden erst durch den Anregungspuls aus dem Anfangszustand populiert.
3. Die Endzustände $|f\rangle$ werden als Freie-Elektronen-Zustände mit einer unendlichen Lebensdauer angenommen, deren Population als die Elektronenzählrate im Experiment interpretiert wird.

Mit Hilfe der optischen Blochgleichungen lässt sich sowohl die zeitabhängige Entwicklung der Population eines angeregten Zustands als auch dessen Energiespektrum beschreiben. Bei der Simulation einer zeitabhängigen Population bleibt die Energie von $|f\rangle$ konstant, während die Zeitverzögerung Δt zwischen Anregung und Abfragepuls variiert wird. Bei der Simulation eines Energiespektrums wird $|f\rangle$ bei konstanter Zeitverzögerung variiert.

Im ungestörten System ist die Zeitentwicklung t der drei beteiligten Zustände $|j\rangle$ gegeben durch

$$c_j(t) |j\rangle = |c_j(0)| e^{i\phi_j(t)} \cdot e^{i\omega_j t} |j\rangle. \quad (2.8)$$

Dabei beschreibt $c_j(t)$ die Amplitude, ω_j die Resonanzfrequenz und $\phi_j(t)$ zusätzliche Veränderungen der Phase des Zustands, die von dephasierenden Prozessen aufgrund von (quasi-)elastischer Streuung der Elektronen hervorgerufen werden. Durch einen Laserpuls werden die drei Zustände miteinander gekoppelt. Die Zeitentwicklung kann dann durch die Liouville-von Neumann Gleichung beschrieben werden [Blo96]:

$$\dot{\rho}_{mn} = -\frac{i}{\hbar} [H_0 + V, \rho]_{mn} - \Gamma_{mn} \rho_{mn}. \quad (2.9)$$

Hier wird der Dichteoperator $\rho_{mn}(t) = |\psi\rangle \langle\psi|$ zur Vereinfachung der Beschreibung im Dichtematrixformalismus verwendet; $m, n \in \{1, 2, \dots, N\}$ kennzeichnet dabei die N Zwischenzustände. Der Hamiltonoperator ist durch die Summe des ungestörten Hamiltonoperators H_0 mit der Störung durch den Laserpuls $V = -\mu \cdot (\vec{E}^{Anrege} +$

$\vec{E}^{Abfrage}$) gegeben. Dabei ist μ der Dipoloperator und \vec{E} das elektrische Feld der jeweiligen Laserpulse.

Phänomenologisch wird die Dämpfungs- bzw. Relaxationsmatrix $\hat{\Gamma}$, hier für einen Zwischenzustand $|n\rangle$, eingeführt, um den Zerfall, bzw. die Dephasierung der Zustände zu beschreiben:

$$\hat{\Gamma} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Gamma_n}{2} + \Gamma_n^* + \Gamma_i^* & \Gamma_i^* \\ \frac{\Gamma_n}{2} + \Gamma_n^* + \Gamma_i^* & \Gamma_n & \frac{\Gamma_n}{2} + \Gamma_n^* \\ \Gamma_i^* & \frac{\Gamma_n}{2} + \Gamma_n^* & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.10)$$

Die Diagonalelemente beschreiben den Zerfall der Population. Da die Lebensdauer der Anfangs- und Endzustände als unendlich angenommen wird, ist deren Eintrag in den Diagonalelementen gleich null. Die Zerfallsrate Γ kann durch die Lebensdauer T_Z ausgedrückt werden, mit $T_Z = \hbar/\Gamma$. Die Nebenelemente der Dämpfungsmatrix beschreiben den Zerfall der Kohärenz zwischen den Zuständen. Hierbei kann sowohl der Zerfall der Population Γ , als auch die *reine* Dephasierung Γ^* einen Zerfall der Kohärenz bewirken. Analog zur Lebensdauer kann eine Dephasierungszeit $T_D = \hbar/\Gamma_D$ definiert werden. In der Dämpfungsmatrix werden nur die Dephasierungsraten der Anfangs- und Zwischenzustände angegeben ($\Gamma_f^* = 0$) und die Population des Anfangszustands aufgrund der geringen Anregungsleistung der Laserpulse als konstant angenommen ($\Gamma_i = 0$).

Bei Wechselwirkung eines Zwei-Niveau-Systems mit monochromatischem Licht wird die Drehwellennäherung (*RWA, rotating wave approximation*) eingeführt. Dies entspricht einem Wechsel in ein Koordinatensystem, das mit der Lichtfrequenz ω dreht. Dabei werden schnell oszillierende Terme unterdrückt unter der Annahme, dass die Verstimmung zwischen ω und der Resonanzfrequenz des anregenden Zustands $\omega_{in} = \omega_n - \omega_i$ gering ist. Aufgrund der übersichtlicheren Darstellung soll hier nur die zeitliche Entwicklung des Dichteoperators für ein Zwei-Niveau-System angegeben werden:

$$\dot{\rho}_{nn} = \frac{\hat{\mu}_{in}(E(t))}{2i\hbar}(\tilde{\rho}_{in} - \tilde{\rho}_{ni}) - \frac{\rho_{nn}\Gamma_1}{\hbar} \quad (2.11)$$

$$\dot{\tilde{\rho}}_{in} = \frac{\hat{\mu}_{in}(E(t))}{2i\hbar}(\rho_{nn} - \rho_{ii}) + (i(\omega_{in} - \omega_{Anrege}) - \frac{\Gamma_2}{\hbar})\tilde{\rho}_{in} \quad (2.12)$$

mit $\tilde{\rho}_{in} = \rho_{in} \cdot e^{-i(\omega_{in}-\omega)t}$. Dabei kennzeichnet $\tilde{\rho}$ den Dichteoperator in der Drehwellennäherung. Eine ausführliche Darstellung, auch von Mehrniveausystemen findet sich in [BRWF02, Bog04].

Für die in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen, der durch die Anregung der Laserpulse erzeugten Besetzung der Zustände, werden verschiedene Parameter benötigt, die aus den Messdaten bestimmt werden. Dies sind im einzelnen:

- Pulsdauer und Energie der verwendeten Laserpulse; die Dauern der IR und UV Pulse werden dabei mittels Auto- bzw. Kreuzkorrelation bestimmt, die Photonenenergie des IR-Pulses aus dessen Spektrum (siehe Kapitel 3.1).

- Austrittsarbeit von Eisen-, Kobalt- und Nickelfilmen; bei Kenntnis der Austrittsarbeit des Analysators und der angelegten Vorspannung an die Probe kann die Austrittsarbeit der Probe über $\Phi_P = \Phi_A + E_{LK} - E_{Bias}$ aus dem Energiespektrum bestimmt werden. Dabei bezeichnet Φ_P die Austrittsarbeit der Probe, Φ_A die Austrittsarbeit des Analysators, E_{LK} die kinetische Energie der linken Kante im Spektrum, die der kleinsten Energie entspricht, bei der Elektronen aus dem Metall ausgelöst werden können und $E_{Bias} = -e \cdot V_{bias}$ die angelegte Vorspannung.
- Energieposition der jeweils untersuchten Zustände relativ zur Vakuumenergie E_{Vak} .
- Form der Laserpulse, die in dieser Arbeit mit hinreichender Genauigkeit als gauß-förmig angenommen wurden (siehe auch [Sch07]).

Die Lebensdauer der jeweiligen Zustände sowie deren Dephasierung gehen als variable Parameter in die Simulation ein. Diese beiden Parameter werden angepasst, bis eine möglichst gute Übereinstimmung zwischen der simulierten Intensität und den Messergebnissen erreicht wird (siehe hierzu auch Kapitel 5.1 bis 5.3).

3. Experimentelle Vorgehensweise

Für den Nachweis der spinabhängigen Lebensdauer als Funktion der Energie über dem Fermi-Niveau benötigt man drei experimentelle Apparaturen: ein Lasersystem, das die zeitliche Auflösung im Femtosekundenbereich und die Anregungsenergie für die Elektronen liefert, eine Ultrahochvakuumkammer zur Präparation sauberer, dünner Filme und ein Detektionssystem, das sensitiv auf die Spinpolarisation der Elektronen ist. Die zeitliche Auflösung und die Anregung der Elektronen in den untersuchten Filmen wird durch bichromatische (Ultraviolett (UV) und Infrarot (IR)) Laserpulse in Pump-Abfrage Anordnung realisiert und die Spinauflösung wird durch einen SPLEED (*spin-polarized low-energy electron diffraction*)-Detektor erreicht, bei dem die spinabhängige Elektronenbeugung an einem Wolframkristall ausgenutzt wird. Da der experimentelle Aufbau schon an anderer Stelle ausführlich erläutert wurde (Lasersystem in [Sch07, Wan05], UHV-Kammer und SPLEED in [Pic07]), sollen hier nur die wichtigsten Merkmale beschrieben werden.

3.1. Lasersystem

In einem Laserresonator schwingen stets mehrere stehende Wellen (Moden). Deren Amplituden und Phasen sind jedoch statistisch im Resonator verteilt. Die Anzahl der möglichen Moden N im Resonator wird bestimmt durch die Bandbreite $\Delta\nu$ des aktiven Lasermediums:

$$N = \frac{\Delta\nu}{\delta\nu},$$

wobei N die Anzahl der Moden und $\delta\nu = c/2d$ der Frequenzabstand der Moden mit d als Resonatorlänge sind. Werden die Moden phasenstarr überlagert, so steigt die Maximalleistung mit der Zahl der Moden an und die Pulshalbwertsbreite nimmt ab.

Um möglichst kurze Pulse erzeugen zu können, ist also ein Lasermedium mit großer Bandbreite nötig. Aus diesem Grund wird in den meisten Fällen als aktives Medium ein Saphirkristall (Al_2O_3) verwendet, in dem ca. 0.1 Gewichtsprozent der Al^{3+} Ionen durch Ti^{3+} Ionen ersetzt werden. Man spricht daher von einem Titan-Saphir (Ti:Sa) Laser. Der Abstimmbereich des Kristalls liegt in einem Wellenlängenbereich λ zwischen 670 nm und 1070 nm. Neben der großen Bandbreite ist ein weiterer Vorteil des Saphir seine große Wärmeleitfähigkeit.

Abbildung 3.1 zeigt schematisch das in dieser Arbeit verwendete Lasersystem. Als Pumpquelle dient ein Nd:YVO₄- Laser vom Typ Verdi V6 (Firma Coherent), mit einer maximalen Ausgangsleistung von 6 W und einer einzelnen Mode der Wellenlänge von 532 nm. Der Pumplaser wird durchgängig mit einer Leistung von

3. Experimentelle Vorgehensweise

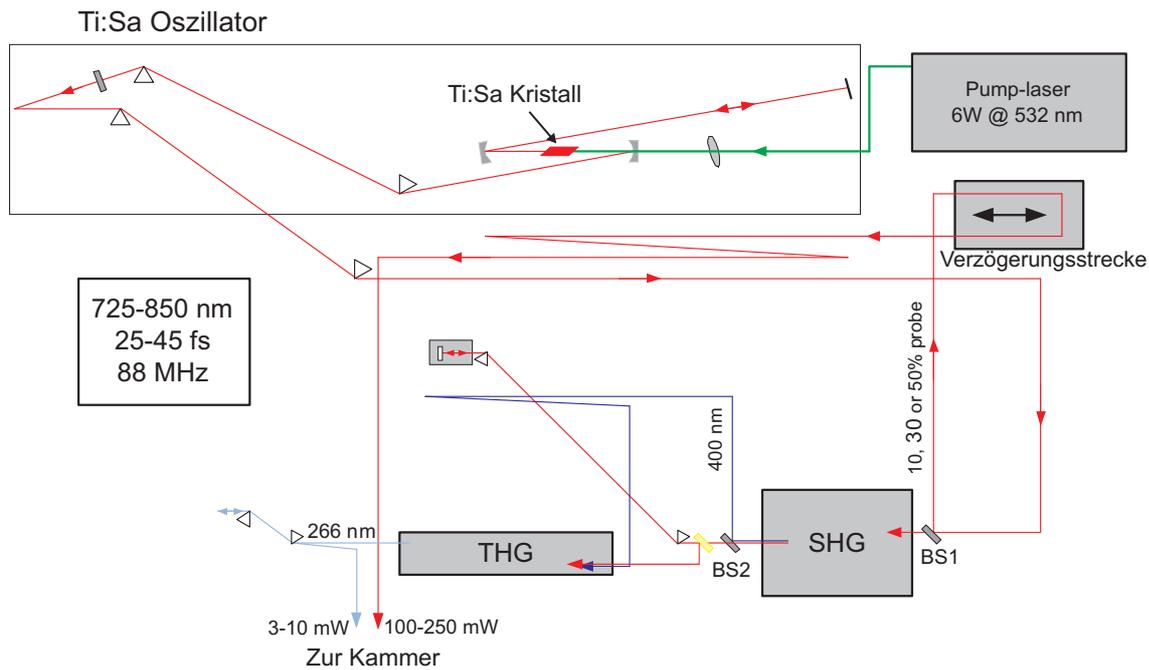


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung der wichtigsten Komponenten des Laseraufbaus: ein Nd:YLF₄ Laser regt den Ti:Sa Kristall an, Modelocking wird über KLM in Kombination mit zwei Konkavspiegeln direkt vor und hinter dem Kristall erreicht. Die Prismenanordnungen dienen der Pulscompression. Der Strahlteiler vor der SHG Erzeugung (BS1) reflektiert bei fast allen Messungen 30% des IR Pulses auf die Verzögerungsstrecke, die restlichen 70% werden zur Frequenzverdopplung verwendet. Anschließend wird aus dem fundamentalen und dem frequenzverdoppelten Puls der UV Puls durch Summenfrequenzerzeugung generiert. Beide Pulse passieren je ein $\lambda/2$ Plättchen zur Erzeugung von S- bzw. P-polarisiertem Licht. (Über eine Verzögerungsstrecke können beide Pulse zeitlich gegeneinander verschoben werden.)

5.2 W betrieben, um eine hohe Lebensdauer des Diodenarrays zu gewährleisten. Der Ti:Sa Resonator ist ein Eigenbau und liefert Pulse im Wellenlängenbereich zwischen 725 und 860 nm mit einer Ausgangsleistung von 400 bis 900 mW bei Pulslängen zwischen 25 und 45 fs.

Die Modenkopplung im Resonator wird durch den Kristall selbst erzeugt, indem durch Selbstfokussierung (KLM, *kerr-lens modelocking*) eine Linsenwirkung erzielt wird, die mit zunehmender Pulsintensität größer wird. Zusammen mit zwei Konkavspiegeln im Resonator wird so eine stabile Modenkopplung erreicht. Der fundamentale Puls wird in einem LBO (Lithiumtriborat)-Kristall frequenzverdoppelt (SHG, *second harmonic generation*) und anschließend per Summenfrequenzerzeugung (SFG, *sum frequency generation*) durch Mischen mit der Fundamentalen in einem BBO (Beta-Bariumborat)-Kristall frequenzverdreifacht (THG, *third harmonic generation*). Dies ist nötig, um Photonenenergien nahe der Austrittsarbeit (zwischen 4.76 eV für Co und 5.1 eV für Ni) der untersuchten Filme zu erzeugen, da die angeregten Elektronen von 0.2 bis 0.7 eV oberhalb der Fermi-Energie gemessen werden. Bei den hier durchgeführten Messungen werden Fundamentalwellenlängen

zwischen 760 und 840 nm verwendet. Die entsprechenden Laserparameter für die Durchführung der Messungen werden in den jeweiligen Kapiteln angegeben.

Die IR und UV Pulse können über eine computergesteuerte Verzögerungsstrecke (Firma PI) zeitlich gegeneinander verschoben werden (Anrege-Abfrage-Konfiguration). Vor der Verzögerungsstrecke wird der fundamentale Puls durch einen Strahlteiler (BS1 in Abb. 3.1) aufgeteilt: der transmittierte Teil wird zur Erzeugung der SHG verwendet, der reflektierte Anteil wird über die Verzögerungsstrecke und einen Laufzeitausgleich in die UHV-Kammer gelenkt. Der Strahlteiler lässt wahlweise 90, 70 oder 50% der Intensität zur SHG Erzeugung passieren, der entsprechende Rest dient als Abfragepuls. Für die meisten der in meiner Arbeit gezeigten Messungen wurden 70% Transmission gewählt, da für diese Kombination aus Anrege- und Abfragepuls das Signal/Rauschverhältnis am besten ist.

Vor dem Eintritt in die UHV-Kammer passieren beide Pulse eine $\lambda/2$ Platte in *zero-order* Ausführung. Damit kann die Polarisation senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene des Lichtes auf den Probenkristall ausgerichtet werden (S bzw. P-polarisiert), um die Anregung an die Symmetrie der Wellenfunktion des zu untersuchenden Zustands anzupassen. In den meisten Fällen wurde P-polarisiertes Licht verwendet (siehe auch Kap. 2).

Am Kammergestell ist eine Lochrasterplatte (nicht gezeigt in Abb. 3.1) angebracht, auf dem die Justage der Laserpulse durchgeführt wird. Dazu ist auf der Lochrasterplatte ein nichtlinearer Kristall angebracht, durch den die räumliche und zeitliche Überlagerung der Pulse außerhalb der UHV-Kammer überprüft und gegebenenfalls korrigiert werden kann. Anschließend werden beide so justierten Pulse per metallbedampftem Konkavspiegel auf die Probe fokussiert. Je nach Messung (heiße Elektronen oder Bildpotentialzustände) kann sowohl die Fundamentale als auch die dritte Harmonische als Anrege- bzw. Abfragepuls verwendet werden.

Die Pulsdauer des IR Pulses wird in einem Autokorrelator (Typ: Micro Autocorrelator der Firma APE) bestimmt, die Wellenlänge und Halbwertsbreite durch ein Gitterspektrometer (Typ: WaveScan der Firma APE). Die UV-Pulsdauer wird in der Regel mittels IR-UV-Kreuzkorrelation über den Shockley-Zustand der Cu(111) Oberfläche vermessen¹.

3.2. UHV System

Das UHV-System besteht aus den Komponenten Präparationskammer, Messkammer und Photoelektronenanalysator mit SPLEED-Detektor, die nachfolgend vorgestellt werden.

Die Messungen der heißen Elektronen dauern aufgrund niedriger Zählraten oft vierzig Stunden. Da die heißen Elektronen aus Volumenzuständen angeregt werden, ist eine lange Messdauer im Hinblick auf Verunreinigungen im Vergleich zur Mes-

¹Bei der Kreuzkorrelation, die man bei einer zeitaufgelösten 2PPE-Messung am Shockley-Zustand, der sich bei Cu(111) 445 meV unterhalb der Fermi-Energie befindet, erhält, sind die Summe der Quadrate der IR und UV Pulsbreiten bei gaußförmigen Pulsen gleich dem Quadrat der gemessenen zeitlichen Breite des Shockley-Zustands.

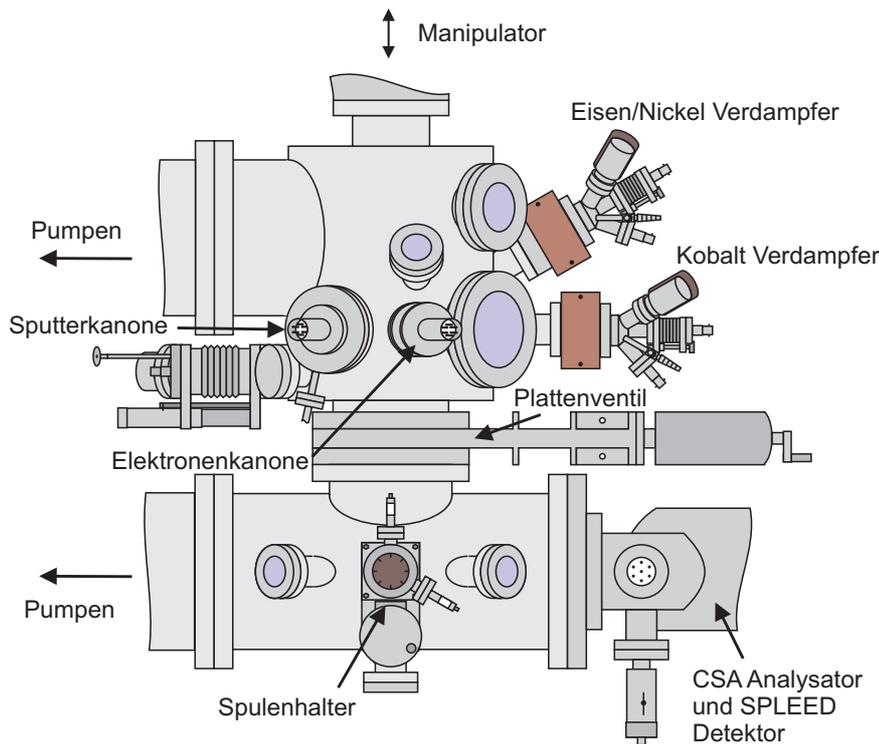


Abbildung 3.2.: Die in den Experimenten verwendete UHV-Kammer ist zweigeteilt: der obere Bereich dient der Probenpräparation, im unteren Bereich sind die Spule zur Magnetisierung, der zylindrische Sektoranalysator (CSA) und der SPLEED Detektor untergebracht. Beide Bereiche können über ein Plattenventil voneinander getrennt werden, um eine Kontamination von Analysator und Detektor während der Präparation zu vermeiden. Der Manipulator mit Probenhalter wird senkrecht von oben zwischen Präparationsbereich und Analysatorbereich bewegt (nach [Pic07]).

sung von Oberflächenzuständen eher unkritisch. Dennoch sind für verlässliche Resultate sehr gute Vakuumbedingungen (Druck $< 10^{-10}$ mbar) während des Präparations- und Messprozesses notwendig. Abbildung 3.2 zeigt den Aufbau der UHV-Apparatur. Ein Plattenventil trennt die Präparationskammer von der Messkammer, um eine Kontamination des Wolfram-Kristalls während der Probenpräparation zu vermeiden. Die Messkammer selbst wird noch einmal in Analysator- und Detektor-kammer unterteilt. Die Erzeugung des Ultrahochvakuums wird durch drei Pumpensysteme erreicht: der Präparationsbereich wird durch eine Turbomolekularpumpe evakuiert. Zudem gibt es in allen drei Kammern je eine Ionengetterpumpe sowie je eine Titansublimationspumpe. Die Druckmessung erfolgt in allen drei Kammersystemen über Bayard-Alpert Röhren.²

Nachfolgend werden die wichtigsten Komponenten der Kammer vorgestellt:

²Eine Bayard-Alpert Röhre ist ein Ionisationsvakuummeter, bei dem durch Austritt von Elektronen aus einer Glühkathode Restgaspartikel ionisiert werden. Der gemessene Strom dieser ionisierten Partikel ist, abhängig von der Gasart, proportional zum Druck in der Kammer.

- Quadrupol Massenspektrometer (Modell Prism der Firma Pfeiffer) zur Restgaskontrolle und Überprüfung der Reinheit des Argongases zur Säuberung der Kristalle mittels Ionenzerstäubung.
- Ionenzerstäüberkanone zur Säuberung des Kristalls.
- Eisen, Nickel und Kobaltverdampfer (EFM 3, Focus GmbH, bzw. Eigenbau). Der Kobaltverdampfer steht senkrecht zur Probenoberfläche, Eisen und Nickel werden unter einem Winkel von 30° zur Probenoberfläche aufgedampft.
- Elektronenkanone zur Schichtdickenüberwachung per MEED (*medium-energy electron diffraction*). Der Elektronenstrahl trifft unter einem Winkel von 80° streifend auf die Probenoberfläche.
- LEED (*low-energy electron diffraction*) Optik zur Kontrolle der Probenoberfläche, die ebenfalls für MEED eingesetzt wird.
- Plattenventil zur Trennung zwischen Präparations und Analysatorkammer, um eine Kontamination der Analysatorkammer während des Präparationsvorgangs zu vermeiden.
- Zwei Eintrittsfenster aus Quarzglas für IR und UV Pulse, um eine hohe Transmissivität auch bei kleinen UV Wellenlängen zu gewährleisten. Die Fenster erlauben einen Einfallswinkel von 45° bzw. 80° zur Probenoberfläche (in Abb. 3.2 nicht sichtbar, da auf der Rückseite).
- Luftspule mit zehn Windungen zur Magnetisierung der Filme. Die Position der Spule kann in $(x-, y-, z-)$ Richtung verstellt werden. Um sowohl in der Ebene (*in-plane*) als auch senkrecht dazu (*out-of-plane*) magnetisieren zu können, lässt sich die Spule um die Probe drehen. Durch einen variablen Strompuls kann eine remanente Magnetisierung der aufgedampften Filme erreicht werden.
- Abschirmung aus μ -Metall zur Reduzierung von Magnetfeldern am Probenort. Dies ist aufgrund der niedrigen kinetischen Energie der emittierten Elektronen und dem Einfluss des Magnetfeldes auf den Spin der Elektronen notwendig. Das Restmagnetfeld am Ort der Probe wurde zu < 2 mG bestimmt.
- Zylindrischer Sektoranalysator (CSA300, Focus GmbH), siehe Abb. 3.3. Der CSA zeichnet sich durch eine hohe Transmission aus und lenkt die Elektronen um 90° ab. Dadurch kann die Spinpolarisation sowohl für Proben mit einer Magnetisierung in der Filmebene, als auch senkrecht dazu untersucht werden (s. Abb. 3.3).

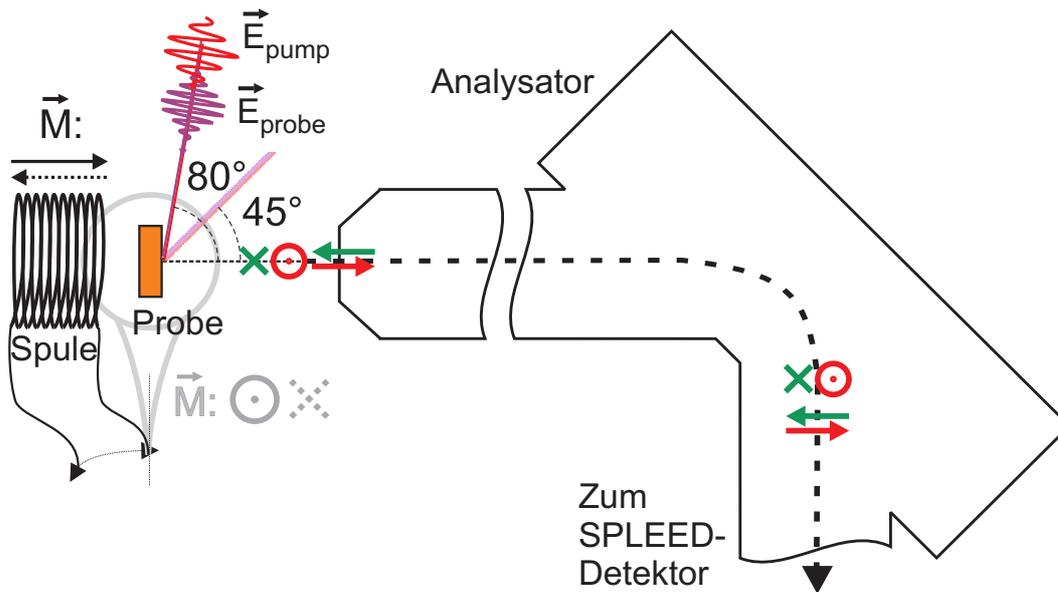


Abbildung 3.3.: Der CSA (Cylindrical Sector Analyzer) sorgt für eine korrekte Abbildung des aus der Probe emittierten Elektronenstrahls auf dem Wolframkristall des SPLEED Detektors. Die Geometrie des Analysators erlaubt dabei die Analyse der Spinpolarisation der Elektronen sowohl waagrecht, als auch senkrecht zur Bildebene. Je nach Orientierung kann die Magnetisierungsspule hinter oder unter der Probe positioniert werden. Die Winkelauflösung des CSA beträgt $\pm 5^\circ$, die Energieauflösung 50 meV, die Passenergie 1-2 eV und die Schlitzgrößen betragen 4 mm (nach [Pic07]).

3.3. Spinauflösende Photoemission

Die Photoemission beruht auf dem photoelektrischen Effekt [Ein05], nach dem Elektronen aus einem Metall herausgelöst werden können, wenn dieses mit Photonen bestrahlt wird, deren Energie größer ist als die Summe aus der Bindungsenergie und der Austrittsarbeit des Metalls. Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten wurde zur Spindetektion der aus den ferromagnetischen Filmen herausgelösten Elektronen ein SPLEED Detektor verwendet. Das Prinzip des SPLEED beruht auf der spinabhängigen Beugung von Elektronen an einem W(100)-Kristall, welcher sich durch seine hohe Kernladungszahl und damit einhergehender starker Spin-Bahn-Kopplung auszeichnet. Die am W(100)-Kristall rückgestreuten Elektronen werden dabei unter einem bestimmten Winkel reflektiert. Je nach Richtung der Spinprojektion der Elektronen senkrecht zum Kristall ergibt sich dabei eine links-rechts Asymmetrie der gemessenen Intensitäten, die proportional zur Spinpolarisation ist (schematische Darstellung in Abb. 3.4). Der Hauptanteil der rückgestreuten Elektronen wird dabei aufgrund der Kristallsymmetrie in dezidierte Maxima (sog. LEED Reflexe) abgebildet. Vier Channeltrons sind paarweise unter den Winkeln der (2,0) und $(\bar{2},0)$ bzw. (0,2) und $(0,\bar{2})$ Reflexe des rückgestreuten Elektronenstrahls positioniert, da in diesen Reflexen der Spinkontrast bei der kinetischen Energie der hier verwendeten Elektronen (104.5 eV) am größten ist. Nimmt man für beide Channeltrons eine identische Detektionsempfindlichkeit an, so wird die

Spinpolarisation bestimmt durch:

$$P = \frac{1}{S} \frac{N_1 - N_2}{N_1 + N_2},$$

mit der Sherman-Funktion S , die die gemessene Asymmetrie eines vollständig spinpolarisierten Strahls beschreibt. Für die hier durchgeführten Experimente wurde die Sherman-Funktion des verwendeten SPLEED-Detektors zu 0.23 bestimmt [Pic07]. Während eines Messtages wird keine signifikante Änderung von S beobachtet. Bei den bis zu mehreren Tagen andauernden Messungen zu den heißen Elektronen wurde der Wolfram-Kristall etwa alle 12 Stunden mit einem 2300 K Flash (dabei wird der Kristall für 10 Sekunden auf 2300 K erhitzt) gesäubert. Grundlegendes zum SPLEED Detektor findet sich in [KF79].

Um ungleiche Detektionsempfindlichkeiten der Channeltrons bei der Bestimmung von P zu eliminieren, wird jede Messung zweimal, jeweils mit entgegengesetzter Magnetisierung durchgeführt (Messung A und B). Durch Bilden des geometrischen Mittels aus A und B kann dann die Spinpolarisation bestimmt werden:

$$P = \frac{1}{S} \frac{\sqrt{N_{1A}N_{2B}} - \sqrt{N_{2A}N_{1B}}}{\sqrt{N_{1A}N_{2B}} + \sqrt{N_{2A}N_{1B}}}.$$

Die Majoritäts(\uparrow)- und Minoritäts(\downarrow)-Zählraten sind dann gegeben durch³:

$$I_{\uparrow} = \frac{1 + P}{2} \left(\sqrt{N_{1A}N_{2B}} + \sqrt{N_{2A}N_{1B}} \right),$$

$$I_{\downarrow} = \frac{1 - P}{2} \left(\sqrt{N_{1A}N_{2B}} + \sqrt{N_{2A}N_{1B}} \right).$$

Diese Methode der Bestimmung der Spinpolarisation ist effizienter als die Streuung hochenergetischer Elektronen an einem Gold-Einkristall (MOTT-Detektor). Dennoch verliert man durch die Beugung am W(100)-Kristall 3-4 Größenordnungen der Zählrate im Vergleich zum reinen Photoemissionssignal ohne Spindetektion [Kir85b].

3.4. Probenpräparation

In den in dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden metallische Filme von Eisen, Kobalt und Nickel mit Dicken zwischen 3 und 200 ML untersucht. Die Filme wurden durch epitaktisches Wachstum auf einen Cu(100)-Einkristall aufgebracht. Abbildung 3.5 zeigt den Probenhalter mit dem Cu(100)- und einem Cu(111)-Einkristall. Der Cu(111)-Kristall wird zur Bestimmung des Zeitnullpunkts durch

³Liegt die Magnetisierungsrichtung in der Probenebene, so können dichroische Effekte dazu führen, dass die entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen spektroskopisch ungleich sind. In diesem Fall dürfen die Zählraten nicht wie oben beschrieben behandelt werden [Pic07]. Dichroische Effekte sind jedoch für die in dieser Arbeit gezeigten Messungen nicht relevant.

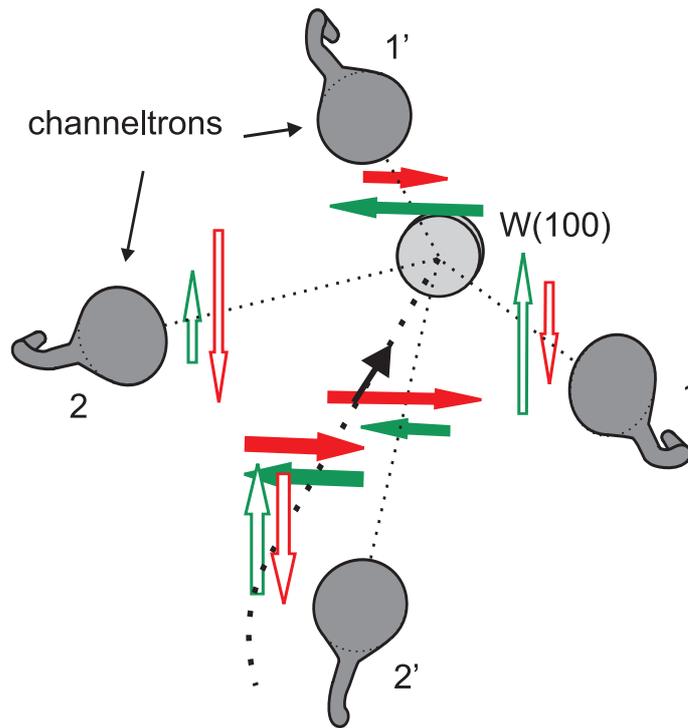


Abbildung 3.4.: Aufbau und Funktion des SPLEED Detektors. Die einfallenden Elektronen werden an einem Wolframkristall gebeugt, wobei die Intensitäten der Maxima eine Spinasymmetrie aufweisen. Vier Channeltrons registrieren paarweise die gebeugten Elektronen. Je nach Magnetisierungsrichtung des zu untersuchenden Films wird das senkrechte (1' und 2') bzw. das horizontale (1 und 2) Paar zur Detektion der Elektronen verwendet. Die Längen der roten- bzw. grünen Pfeile symbolisieren die unterschiedlichen Intensitäten der Minoritäts- (↓) bzw. Majoritätselektronen (↑) (aus [Pic07]).

Anregung des Shockley-Oberflächenzustands verwendet. Die Temperatur wird bei beiden Kristallen über Thermoelemente vom Typ E (NiCr/CuNi) gemessen, welche auch bei tiefen Temperaturen (110 K) eine hohe Thermospannung liefern und damit eine genaue Temperaturmessung ermöglichen. Darüber hinaus sind Typ E Thermoelemente nicht magnetisch, d.h. die Photoelektronen werden durch die Thermoelemente nicht beeinflusst.

Eine saubere und ebene Oberfläche des Substratkristalls ist wichtig für reproduzierbare Messungen. Die beiden Kupferkristalle werden dazu durch Argonionenbeschuss gereinigt. Die Dauer des Reinigungszyklus wird dazu mit einer Minute pro Monolage (ML) aufgedampften Films angesetzt, typischerweise 20 Minuten für einen 20 ML dicken Film. Unbedampftes Kupfer wird fünf Minuten lang gereinigt. Die Reinheit des Argongases wird dabei mit einem Massenspektrometer überprüft. Das Verhältnis der Partialdrücke von Ar_{36} zu CO_{28} ist dabei mindestens 10:1. Nach dem Reinigungsprozess werden die Proben je nach Länge des Reinigungszyklus zwischen 5 und 30 Minuten bei einer Temperatur von 810 K ausgeheilt, um eine glatte Oberfläche zu erzeugen.

Die Eisenfilme wurden bei Raumtemperatur aufgedampft und nicht getempert.

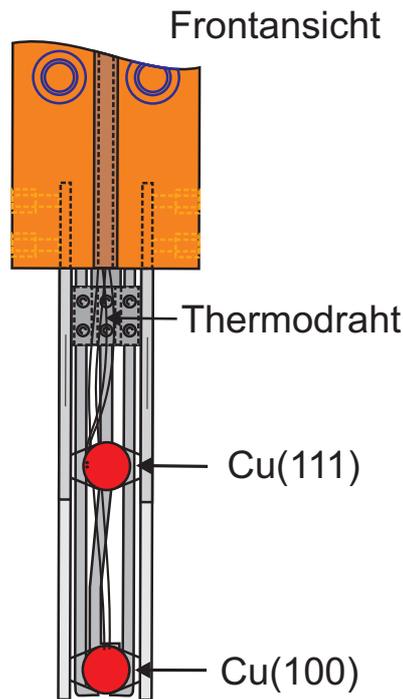


Abbildung 3.5: Schematische Zeichnung des Probenhalters mit den beiden Einkristallen Cu(111) und Cu(100) (nach [Pic07]). Über die an den Kristallen angebrachten Thermodrähte wird die Temperatur gemessen. Cu(111) kann über Direktstrom, Cu(100) über ein Filament geheizt werden. Auf den Cu(100) Kristall werden die ferromagnetischen Filme epitaktisch aufgedampft. Der Shockley Oberflächenzustand auf dem Cu(111) Kristall wird zur Bestimmung des Zeitnullpunkts verwendet (nach [Pic07]).

Eisen wächst auf Cu(100) bis zu einer Bedeckung von 10 ML in fcc-Struktur⁴, mit der leichten Richtung der Magnetisierung senkrecht zur Filmebene. Ab etwa 10 ML bildet sich die bcc-Struktur aus, mit der leichten Richtung der Magnetisierung in der Filmebene [TMF⁺92]. Die Gitterkonstante von fcc-Eisen liegt mit $a=3.65 \text{ \AA}$ sehr nahe an der von Cu mit $a=3.61 \text{ \AA}$.

Bei Raumtemperatur liegt Kobalt in der hcp-Struktur mit einer Gitterkonstanten von $a=2.51 \text{ \AA}$ vor. Erst bei einer Temperatur von 690 K geht Kobalt in die fcc-Struktur mit einer Gitterkonstanten von $a=3.55 \text{ \AA}$ über. Da diese sich jedoch kaum von der von Kupfer unterscheidet, wächst es beim Aufdampfen auf den Cu(100)-Kristall in einer tetragonal verzerrten fcc-Struktur. Die leichte Magnetisierung liegt dabei unabhängig von der Filmdicke in der Filmebene entlang der [110]-Richtung [SBS⁺90]. Die Kobaltfilme werden bei einer Temperatur von 110 K aufgedampft, um ein Aufschwimmen von Kupferatomen zu vermeiden [BPGW05, FAD97]. Nach dem Aufdampfen bei 110 K werden die Filme bei einer Temperatur von 390 K ausgeheilt.

Nickel wächst pseudomorph auf Cu(100). Bei Filmdicken bis 7 ML liegt die Magnetisierungsrichtung dabei in der Filmebene. Zwischen 7 und 30 ML liegt die Magnetisierung senkrecht zur Filmebene. Ab einer Dicke von 30 ML verschiebt sich die Magnetisierung mit zunehmender Filmdicke kontinuierlich zurück in die Filmebene [SB94]. Nickel wird bei 110 K aufgedampft, anschließend bei 390 K zwischen 5 und 30 Minuten ausgeheilt.

Für alle drei Materialien erfolgt das Wachstum bis zur zweiten Lage in Form von Inseln, danach Lage für Lage und wird mit Hilfe von MEED (Medium-energy elec-

⁴Struktur und Magnetismus dünner Eisenfilme sind nicht abschließend geklärt und Gegenstand aktueller Forschung, weitere Informationen dazu finden sich in Kapitel 2.1.

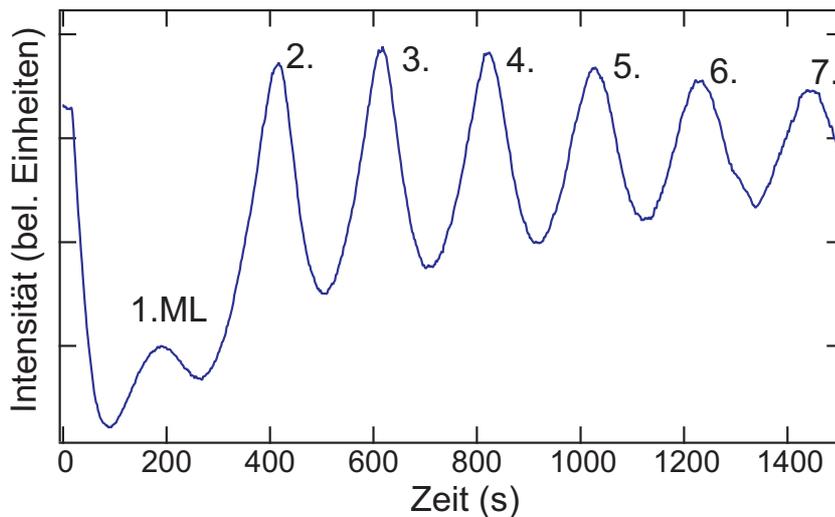


Abbildung 3.6.: MEED Kurve der ersten 7 ML Co/Cu(100), aufgedampft bei Raumtemperatur. Die zwei ersten Lagen wachsen in Form von Inseln auf, der Kontrast des 1.ML Maximums ist daher reduziert. Der Knick in der Kurve bei 20 s markiert das Öffnen des Verdampfers.

tron diffraction)-Messungen kontrolliert. Da der MEED Kontrast bei Temperaturen von 110 K nach einigen Monolagen recht gering ist (dreidimensionales Wachstum), wird der Verdampfer zunächst bei Raumtemperatur kalibriert, da der Lagenkontrast in MEED hier deutlich besser ist. Die MEED Intensität des Wachstums der ersten sieben Monolagen Co/Cu(100) bei Raumtemperatur ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Die erste Monolage bei etwa 200 Sekunden hat einen geringeren MEED Kontrast als die nachfolgenden Lagen, da diese inselförmig aufwächst. Für die bei tiefen Temperaturen aufgedampften Filme mit Dicken von mehr als 10 ML wurde der Verdampferfluss konstant gehalten und die Aufdampfzeit für höhere Bedeckungen extrapoliert.

4. Austauschaufspaltung der Bildpotentialzustände auf Kobalt

Wie schon in Kapitel 2.2.4 angesprochen, können auf Metalloberflächen sogenannte Oberflächenzustände existieren, wenn im entsprechenden Energiebereich der Volumenzustände eine Bandlücke vorhanden ist. Dabei stellen die Bildpotentialzustände (*image-potential states*, IPS) eine besondere Form der Oberflächenzustände dar, die sich energetisch nahe der Vakuumenergie befinden und eine Rydberg-ähnliche Serie bilden, deren Bindungsenergie gegen die Vakuumenergie konvergiert (siehe Kap. 2.2.4). Die Zwei-Photonen-Photoemission ist durch die hohe Energie-, Zeit-, und — in Kombination mit dem SPLEED-Detektor — Spinauflösung eine hervorragende Methode zum Studium der Bildpotentialzustände auf ferromagnetischen Oberflächen. Da hier nicht nur die Volumenzustände, sondern auch die Oberflächen- und damit die Bildpotentialzustände austauschtaufgespalten sind, eignen sie sich sehr gut für Untersuchungen der magnetischen Eigenschaften der Metalloberfläche [NCI93, Pic07, Sch07, SPW⁺05].

4.1. Energiespektrum von 6 ML Co/Cu(100)

Ein typisches ER2PPE-Spektrum eines 6 ML dünnen Co Films auf Cu(100) zeigt Abbildung 4.1. Die Photonenenergie des Anrege-Pulses für die Bildpotentialzustände beträgt dabei 4.68 eV (UV), die des Abfrage-Pulses 1.56 eV (IR), bei einem Zeitversatz von $\Delta t = 0$ fs. Wie in Abbildung 2.6 dargestellt, dient der IR Puls als Anregepuls für die heißen Elektronen, während der UV Puls als Abfragepuls fungiert. Für die bei einer höheren Energie als die heißen Elektronen liegenden IPS ist der UV-Puls der Anregepuls und der IR-Puls dient als Abfragepuls. Das dargestellte Spektrum stellt also eine Kombination von IR und UV als Anrege- bzw. Abfragepulse dar. Die linke Kante des Spektrums wird definiert durch die Elektronen mit der geringsten kinetischen Energie, die vom UV-Puls noch aus der Metalloberfläche herausgelöst werden können. Die Austrittsarbeit der Probe wurde zu 4.72 ± 0.02 eV bestimmt und liegt damit etwas höher als die Energie des UV-Pulses, wodurch die direkte Photoemission unterdrückt wird. An die linke Kante anschließend, zwischen einer kinetischen Energie von 0 und etwa 0.5 eV befinden sich die heißen Elektronen, die nahe der Fermi-Energie vom IR-Puls angeregt werden. Die deutlich ausgeprägten ersten beiden Bildpotentialzustände ($n=1$ und $n=2$) liegen bei einer kinetischen Energie von etwa 0.9 eV bzw. 1.3 eV¹. Hierbei

¹Die Austauschaufspaltung der Bildpotentialzustände hängt neben der Temperatur auch von der jeweiligen Güte der Oberfläche ab (Kristallinität, Reinheit der Oberfläche, etc.) und kann

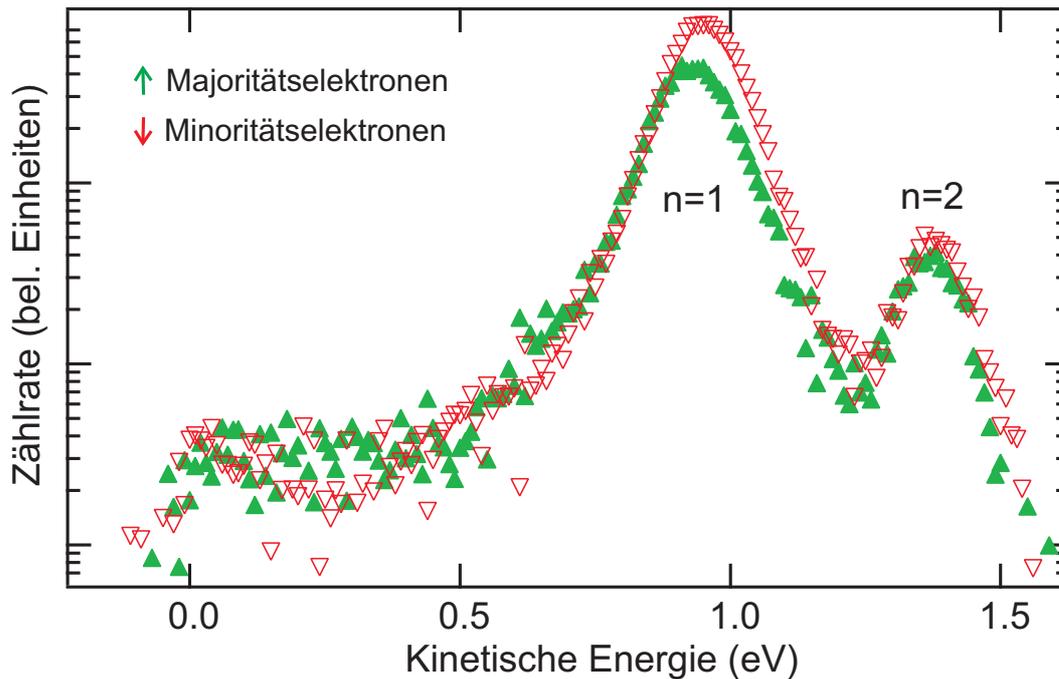


Abbildung 4.1.: Spinauflösendes Energiespektrum von 6 ML Co/Cu(100) bei einer Anregungsenergie von 4.68 eV. Zwischen 0 und 0.5 eV beobachtet man die sogenannten heißen Elektronen, die Bildpotentialzustände befinden sich bei einer kinetischen Energie von etwa 0.9 eV ($n=1$) und 1.3 eV ($n=2$). Die Austauschaufspaltung beträgt 22 bzw. 9 meV. Das Spektrum der Majoritätsladungsträger ist in grün, das der Minoritätsladungsträger in rot dargestellt. Die roten bzw. grünen vertikalen Striche deuten die Positionen der Maxima des $n=1$ bzw. $n=2$ Zustandes an.

liegt das Intensitätsmaximum des Majoritäts-IPS bei niedrigeren Energien als das des Minoritäts-IPS (die sogenannte Austauschaufspaltung), hervorgerufen durch den unterschiedlichen Überlapp der jeweiligen Wellenfunktionen der IPS mit den Volumenbändern.

Die Intensität des 2PPE-Signals der beiden Spinkomponenten hängt dabei von der jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeit (Dipol-Matrixelemente) der Anregung aus den Anfangszuständen ab [TSWF99]. Je nach Polarisierung (s- bzw. p-polarisiert) des UV-Pulses können Zustände aus unterschiedlichen Volumenbändern angeregt werden. Aufgrund verschiedener Kopplung zwischen Anfangs- und Endzustand mit den Laserpulsen kommt es so zu verschieden starker Besetzung der Bildpotentialzustände für Majoritäts- und Minoritätszustände. Ändert man die Photonenenergie der Laserpulse, so kann sich daher nicht nur die relative, sondern auch die absolute Intensität der Spinkanäle ändern, da die Oberflächenzustände eine feste Energie bezüglich der Vakuumenergie besitzen und auf diese Weise aus unterschiedlichen Anfangszuständen angeregt werden [EP78].

für den $n=1$ Zustand in vergleichbaren Experimenten um etwa ± 5 meV variieren.

4.2. Einfluss von Sauerstoffadsorption auf die Eigenschaften der Bildpotentialzustände

Lässt man Sauerstoff in die UHV-Kammer, so adsorbiert dieser auf der Oberfläche des Kobaltfilmes und verschiebt die Oberflächenzustände energetisch relativ zu E_F , hervorgerufen durch die Veränderung der Austrittsarbeit. Der Überlapp der Wellenfunktionen der Bildpotentialzustände mit denen der Volumenzustände wird schwächer und dementsprechend wird die Austauschspaltung kleiner. Der Sauerstoff (Reinheit 99,998%) wird über ein Leckventil in die Präparationskammer eingelassen. Die Dauer der Sauerstoffzugabe entspricht dabei 100 s bei einem Druck von 10^{-8} mbar, d.h. eine Dosis von 1 L (Langmuir). Für kleinere Dosen wird entsprechend kürzer Sauerstoff eingelassen.

In dieser Arbeit wurden 6 ML Co/Cu(100) bei einer Sauerstoffdosis zwischen null (saubere Kobaltoberfläche) und 1 L untersucht. Abbildung 4.2 zeigt die spin-auflösenden Energiespektren in Abhängigkeit von der Sauerstoffbedeckung und der Anregungsenergie. Die beiden oberen Spektren zeigen die saubere Kobaltoberfläche direkt nach dem Reinigungs- und Ausheilprozeß. Bei Anregungsenergien von 4.68 und 4.77 eV ist der erste Bildpotentialzustand bei einer kinetischen Energie von 0.9 und 1.0 eV deutlich sichtbar. Mit zunehmender Sauerstoffdosis sinkt die Zählrate, die energetische Verbreiterung der Oberflächenzustände nimmt zu und die Austrittsarbeit erhöht sich. Während bei einer Anregungsenergie von 4.68 eV für die saubere Oberfläche keine direkte Photoemission auftritt, ist bei einer Energie von 4.77 eV ein deutliches Signal der direkten Photoemission bei einer kinetischen Energie knapp über 0 eV erkennbar. Die Photonenenergie ist hier größer als die Austrittsarbeit der sauberen Oberfläche. Mit zunehmender Sauerstoffdosis und damit höherer Austrittsarbeit verschwindet dieser Beitrag. Auch der zweite Bildpotentialzustand ist, mit niedrigerer Intensität, für eine Anregungsenergie von 4.77 eV bei der kinetischen Energie von 1.4 eV bis zu einer Sauerstoffdosis von 0.5 L sichtbar. Die Austauschspaltung des $n=2$ IPS ist wegen der geringeren Kopplung an die Volumenzustände geringer. Die energetische Position der Bildpotentialzustände relativ zur Vakuumenergie bleibt unabhängig von der Änderung der Austrittsarbeit gleich, da die Vakuumenergie die Referenzenergie für Bildpotentialzustände darstellt (siehe Abbildung 4.3(a)). Für das Verhalten der Energieposition der Bildpotentialzustände relativ zur Vakuumenergie in Abhängigkeit von der Sauerstoffdosis auf Kobalt existieren in der Literatur noch keine experimentellen Daten. Für die Bildpotentialzustände auf Ni(111) und Pt(111) wurde jedoch schon früher eine konstante Bindungsenergie gefunden [FSFS90, LDB⁺01]. Demgegenüber verschiebt sich die Energie der Bildpotentialzustände relativ zur Fermi-Energie, da sich mit zunehmender Sauerstoffdosis die Austrittsarbeit erhöht (siehe Abbildung 4.3(b)).

4. Austauschaufspaltung der Bildpotentialzustände auf Kobalt

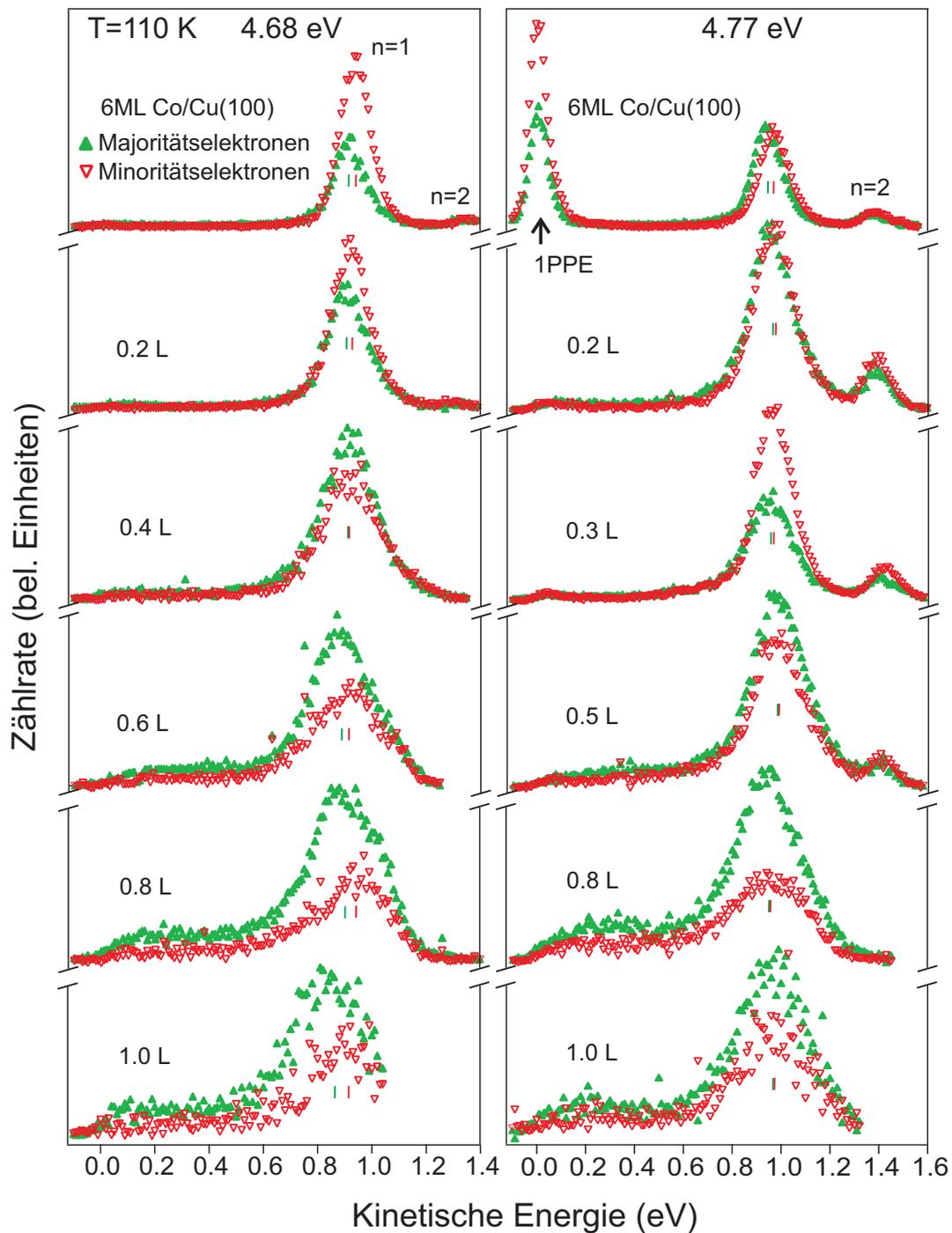


Abbildung 4.2.: Energiespektren der Majoritätselektronen (grün) und Minoritätselektronen (rot) bei einer UV-Anregungsenergie von 4.68 eV (links) und 4.77 eV (rechts). Die Sauerstoffbedeckung steigt von oben nach unten an. Bei beiden Anregungsenergien steigt die Austrittsarbeit mit zunehmender Sauerstoffbedeckung an, die kinetische Energie der $n=1$ Emissionslinie bleibt jedoch annähernd gleich, da die energetische Lage der Bildpotentialzustände an die Vakuumenergie gebunden ist. Bei 4.77 eV Anregungsenergie wird bis zu einer Sauerstoffdosis von 0.5 L zusätzlich zum ersten auch der zweite Bildpotentialzustand angeregt. Die Austauschaufspaltung sinkt mit zunehmender Sauerstoffbedeckung und steigt ab 4.68 eV und einer Bedeckung von 0.6 L wieder an. Die roten bzw. grünen vertikalen Striche deuten die Positionen der Maxima an.

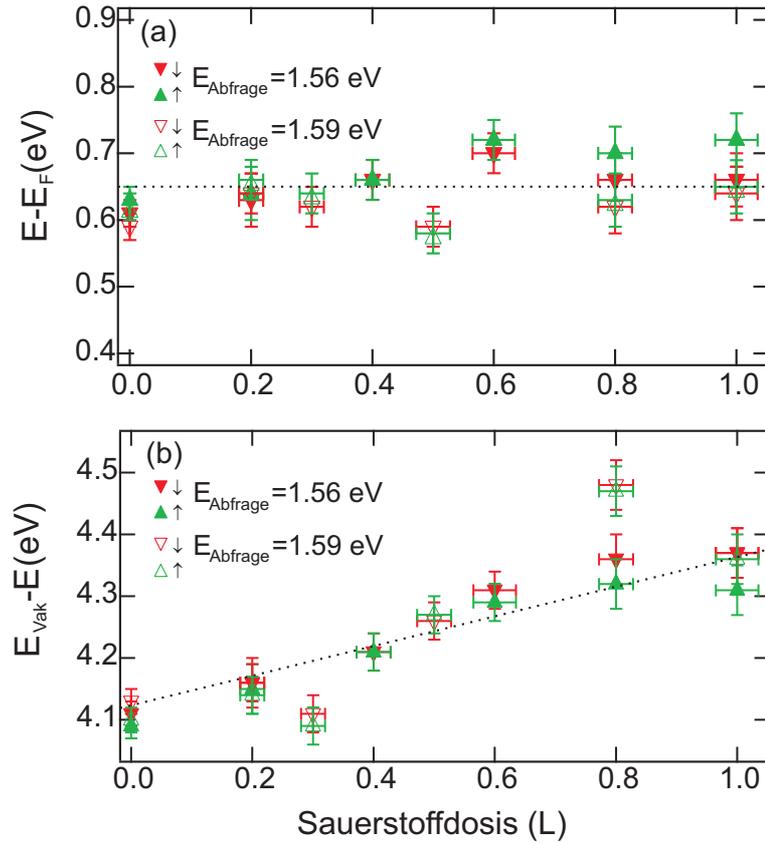


Abbildung 4.3.: (a): Energie des ersten Bildpotentialzustands relativ zur Vakuumenergie E_{Vak} bei einer Energie des Abfragepulses von 1.56 eV (gefüllte Dreiecke) und 1.59 eV (offene Dreiecke) in Abhängigkeit von der Sauerstoffdosis. Im Rahmen des experimentellen Fehlers bleibt die Energieposition gleich. (b): Energie des ersten Bildpotentialzustands relativ zur Fermi-Energie, Legende wie in (a). Mit zunehmender Sauerstoffdosis nimmt der Abstand zur Fermi-Energie zu.

Neben der Verringerung der Austauschspaltung ändert sich auch die Spinpolarisation, also das Intensitätsverhältnis der Majoritäts- zur Minoritätskomponente in Abhängigkeit von der Sauerstoffdosis (grün bzw. rot in Abbildung 4.2). Da sich die Austrittsarbeit mit zunehmender Sauerstoffdosis erhöht, die Photonenenergie des anregenden Laserpulses jedoch gleich bleibt, werden die IPS aus energetisch höher liegenden Anfangszuständen populiert. Bei einer Änderung der Spinpolarisation der Anfangszustände ändert sich analog die Spinpolarisation der Bildpotentialzustände. Die Änderung der Austrittsarbeit durch Variation der Sauerstoffdosis äußert sich hierbei äquivalent zu einer Änderung der Photonenenergie um denselben Energiebetrag [Pic07].

Die Verbreiterung der Bildpotentialzustände in Abhängigkeit der Sauerstoffdosis für eine Anregungsenergie von 4.68 eV bzw. 4.77 eV zeigt Abbildung 4.4a bzw. 4.4b. Zwei Streumechanismen können eine Verbreiterung der Zustände durch Sauerstoffzugabe hervorrufen: Streuung aus dem Bildpotentialzustand heraus in Volumenzustände und elastische Streuung innerhalb der Zustände [SFFS92]. Bild-

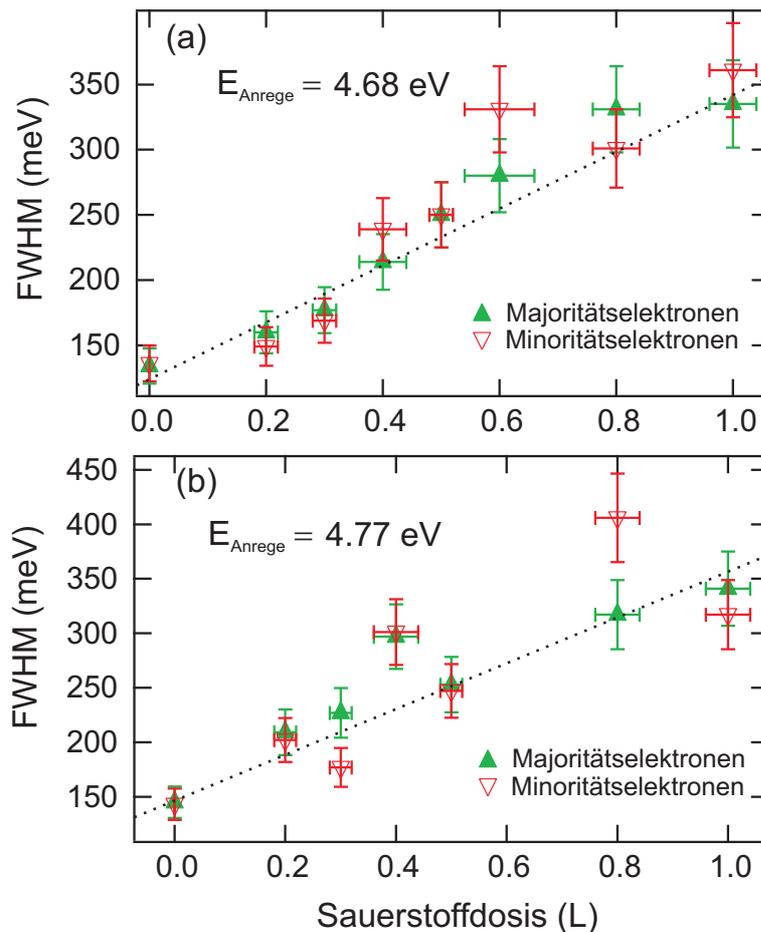


Abbildung 4.4.: Halbwertsbreite des ersten Bildpotentialzustands in Abhängigkeit von der Sauerstoffdosis für eine Energie des anregenden Laserpulses von (a): 4.68 eV und (b): 4.77 eV. Im Rahmen des experimentellen Fehlers nimmt die Halbwertsbreite mit zunehmender Sauerstoffbedeckung linear zu. Die gepunkteten Linien dienen als Hilfslinien.

potentialzustände zeigen eine Translationsinvarianz parallel zur Metalloberfläche. Bei der Adsorption von Sauerstoff wird die Translationsinvarianz eingeschränkt. Auf die Oberfläche aufgebrachte Adatome verursachen eine Unbestimmtheit in k_{\parallel} , die zu einer Verbreiterung des Bildpotentialzustands führt. Bei beiden Laserenergien nimmt die Linienbreite linear mit der Sauerstoffdosis von knapp 150 meV bei sauberer Oberfläche auf etwa 350 meV bei 1 L zu (siehe Abbildung 4.4). Die gepunkteten Linien in Abbildung 4.4 dienen dabei als Hilfslinien. Eine lineare Zunahme der Linienbreite des ersten Bildpotentialzustands in Abhängigkeit von der Sauerstoffdosis wurde auch auf Ni(100) beobachtet [SFFS92].

Abbildung 4.5 fasst die Austauschaufspaltungen und die Intensitätsverhältnisse in Abhängigkeit von der Anregungsenergie der Laserpulse aus Abbildung 4.2 zusammen. Die gestrichelten roten Linien dienen dabei als Hilfslinien. Da die Dosierung des Sauerstoffs aufgrund des Ansprechverhaltens des Leckventils Schwankungen unterliegt, wurde der Fehler bei der Sauerstoffbedeckung zu $\pm 0.02 \text{ L}$ pro Einlassprozess angenommen.

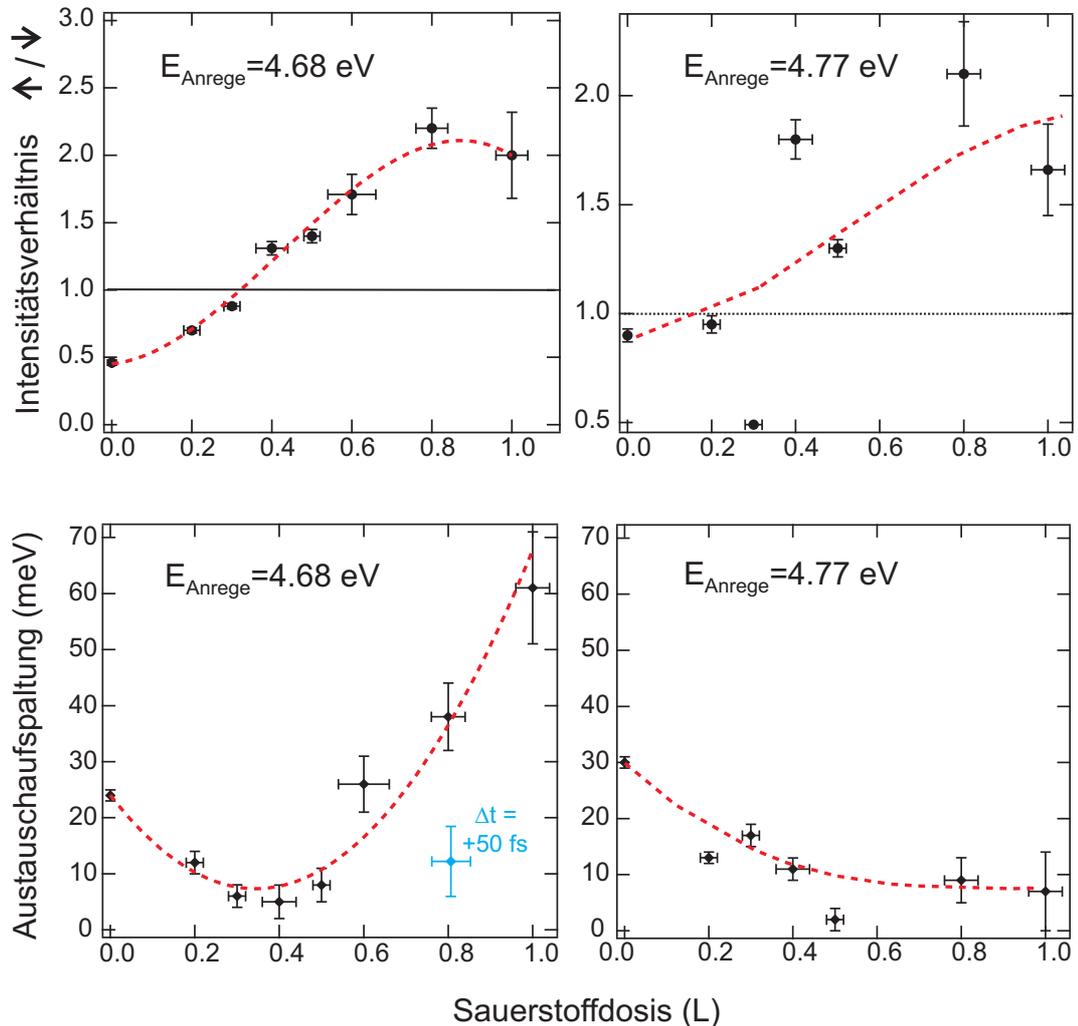


Abbildung 4.5.: Oben: Intensitätsverhältnis von Majoritäts- zu Minoritätszählrate bei 4.68 eV und 4.77 eV UV Anregungsenergie. Die gestrichelten roten Hilfslinien folgen dem Verlauf des Intensitätsverhältnisses bzw. der Austauschspaltung. Mit steigender Sauerstoffbedeckung nimmt das Intensitätsverhältnis zu, die Majoritätsintensität liegt ab etwa 0.4 L über der Minoritätsintensität. Da sich die Austrittsarbeit der Oberfläche durch Zugabe von Sauerstoff ändert, ändern sich die Anfangszustände aus denen angeregt wird, da die Energie der Bildpotentialzustände relativ zur Vakuumenergie unverändert bleibt und sich damit die Lage der IPS relativ zu E_F verschiebt. Unten: durch Anlagerung des Sauerstoffs an den Kobaltatomen verringert sich der Überlapp zwischen Bildpotential- und Volumenzuständen und die Austauschspaltung der Bildpotentialzustände nimmt ab. Die Zunahme der Aufspaltung bei 4.68 eV Anregungsenergie ab 0.5 L Sauerstoffzugabe ist offenbar ebenfalls ein Anfangszustandseffekt, da die Aufspaltung bei einer Verzögerung des Abfragepulses um 50 fs auf $14 \pm 7 \text{ meV}$ verringert wird (s. Text).

Der höhere experimentelle Fehlerbalken bei der Bestimmung von ΔE_{ex} bei zunehmender Sauerstoffdosis liegt an der geringeren Zählrate und dem damit einhergehenden größeren statistischen Fehler. Die Zunahme der Majoritätsintensität relativ zur Minoritätsintensität ist mit zunehmender Sauerstoffdosis für beide Anregungsenergien deutlich sichtbar.

Die Austauschspaltung des $n=1$ IPS nimmt für beide Energien zunächst ab, wie auch zu erwarten ist, da die Anlagerung des Sauerstoffs die Kopplung zwischen Bildpotential- und Volumenzuständen verringert. Bei einer Anregungsenergie von 4.68 eV und ab einer Sauerstoffbedeckung von 0.5 L nimmt die Austauschspaltung der IPS allerdings wieder zu. Dabei ist es im wesentlichen das Maximum im Minoritätskanal, das zu höheren Energien schiebt. Dies kann erklärt werden durch resonante Anregung aus dem Oberflächenzustand mit Minoritätscharakter auf Kobalt [SPA⁺08], der 0.45 eV unterhalb der Fermi-Energie liegt. Wenn Anrege- und Abfragepuls zeitlich übereinander liegen ($\Delta t = 0$) und die Übergangswahrscheinlichkeiten entsprechend hoch sind, sind energetisch schmale Anfangszustände im Intensitätsspektrum in Abhängigkeit der kinetischen Energie als Intensitätsmaxima sichtbar, falls die Energiedifferenz zwischen Anfangs- und Zwischenzustand mit der Anregungsenergie des Laserpulses in etwa übereinstimmen [Sch07]. Das Intensitätsmaximum des Zwischenzustands (hier IPS) kann dann nicht mehr von dem des Anfangszustands spektral getrennt werden. Man spricht hierbei von einem Anfangszustandseffekt (*initial-state effect*). Mit höherer zeitlicher Verzögerung zwischen Anrege- und Abfragepuls nimmt das dem Anfangszustand zuzuordnende Intensitätsmaximum ab und seine Energie im Anregungsspektrum verschiebt sich. Diese Verschiebung drückt sich im Spektrum als Variation der Austauschspaltung der Zwischenzustände aus. Bei einer zeitlichen Verschiebung des Abfragepulses um 50 fs sinkt die gemessene Intensität um etwa $1/e$. Die Kombination von Sauerstoffzugabe und zeitlicher Verschiebung der Laserpulse führt allerdings zu einer sehr niedrigen Zählrate, sodass die Kombination beider Parameter zu einer sehr schlechten Zählstatistik führt. Messungen mit einer Verzögerung von 50 fs wurden für eine Sauerstoffdosis von 0.8 L durchgeführt. Dabei verkleinert sich die Austauschspaltung von 38 ± 6 meV auf 14 ± 7 meV (siehe blauer Datenpunkt in Abbildung 4.5). Dieser Wert von 14 meV stimmt im Rahmen der experimentellen Fehlerbalken mit dem mit 4.77 eV gemessenen Wert überein und zeigt, dass es sich bei der Vergrößerung der Austauschspaltung tatsächlich um einen Anfangszustandseffekt handelt. Wünschenswert wäre es, den Effekt bei einer Bedeckung von 1 L und einer größeren zeitlichen Verschiebung der Laserpulse nachzuweisen, was jedoch aus Gründen zu geringer Zählrate mit dem vorhandenen Messaufbau praktisch nicht durchgeführt werden konnte. Diese Ergebnisse zeigen, dass die gemessenen Werte für ΔE_{ex} nur unter bestimmten Bedingungen mit den tatsächlichen Werten für ΔE_{ex} übereinstimmen müssen und dass große experimentelle Sorgfalt vonnöten ist, um Beiträge von Anfangszustandseffekten auszuschließen. In manchen Fällen kann das komplexe Zusammenspiel dieser drei Komponenten damit zu unerwarteten Ergebnissen führen, so wurde z.B. auf Fe(100) sogar eine negative Austauschspaltung der Bildpotentialzustände beobachtet [DRCC96].

Die Daten für die Austauschspaltung (ΔE_{ex}), die Spinpolarisation ($I \uparrow / I \downarrow$)

4.2. Einfluss von Sauerstoffadsorption auf die Eigenschaften der Bildpotentialzustände

O ₂	$h\nu = 4.68 \text{ eV}$			$h\nu = 4.77 \text{ eV}$		
	ΔE_{ex}	$I \uparrow / I \downarrow$	Φ	ΔE_{ex}	$I \uparrow / I \downarrow$	Φ
0 L	24 ± 1	0.46 ± 0.02	4.72 ± 0.02	30 ± 1	0.97 ± 0.03	4.72 ± 0.02
0.2 L	12 ± 2	0.70 ± 0.02	4.79 ± 0.04	13 ± 1	0.95 ± 0.04	4.80 ± 0.03
0.3 L	6 ± 2	0.88 ± 0.02	4.79 ± 0.03	17 ± 2	0.49 ± 0	4.73 ± 0.03
0.4 L	5 ± 3	1.31 ± 0.05	4.87 ± 0.03	11 ± 2	1.80 ± 0.09	4.95 ± 0.03
0.5 L	8 ± 3	1.40 ± 0.05	4.91 ± 0.03	2 ± 2	1.30 ± 0.04	4.85 ± 0.04
0.6 L	26 ± 5	1.71 ± 0.15	5.01 ± 0.03			
0.8 L	38 ± 6	2.20 ± 0.15	5.02 ± 0.04	9 ± 4	2.10 ± 0.24	5.10 ± 0.04
1.0 L	61 ± 10	2.00 ± 0.32	5.03 ± 0.04	7 ± 7	1.66 ± 0.21	5.01 ± 0.04

Tabelle 4.1.: Austauschaufspaltung (ΔE_{ex} in meV), Spinpolarisation ($I \uparrow / I \downarrow$) des ersten Bildpotentialzustands und Austrittsarbeit Φ in eV, des 6 ML Co/Cu(100) Films für Anregungsenergien von 4.68 eV und 4.77 eV in Abhängigkeit von der Sauerstoffdosis zwischen 0 und 1 L

und die Austrittsarbeit Φ in Abhängigkeit von der Sauerstoffbedeckung sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

5. Lebensdauer heißer Elektronen in $3d$ -Ferromagneten

Der Hauptteil dieser Arbeit beschäftigt sich mit den Lebensdauern heißer Elektronen in den $3d$ -Ferromagneten Eisen, Kobalt und Nickel. Der Begriff „heiße“ Elektronen bezeichnet dabei in dieser Arbeit Elektronen, die bis zu einem Elektronenvolt über der Fermi-Energie angeregt werden, während „angeregte“ Elektronen alle Elektronen oberhalb der Fermi-Energie kennzeichnet, wozu auch solche gehören, die in spezifische Zustände, z.B. den ersten Bildpotentialzustand angeregt wurden. Experimentell kann die Lebensdauer direkt gemessen oder indirekt bestimmt werden. Eine indirekte Methode besteht darin, die Lebensdauern aus dickenabhängigen Kollektorströmen in magnetischen Schichtsystemen, z.B. *Spin-Ventil-Transistoren (SVT)* [Jan03], zu bestimmen. Die Transmissionskoeffizienten sind dabei für Elektronen mit entgegengesetztem Spin unterschiedlich. Die inelastische mittlere freie Weglänge λ eines angeregten Elektrons in einem Zustand mit der Energie $e_{\mathbf{q}n\sigma}$ und der Gruppengeschwindigkeit $\mathbf{v}_{\mathbf{q}n\sigma}$ wird dabei üblicherweise als die Distanz definiert, die ein Elektron mit dem Wellenvektor \mathbf{q} , des Bandes n und dem Spin σ zurücklegt, die der Lebensdauer des angeregten Zustands $\tau_{\mathbf{q}n\sigma}$ entspricht, d.h. $\lambda_{\mathbf{q}n\sigma} = \mathbf{v}_{\mathbf{q}n\sigma}\tau_{\mathbf{q}n\sigma}$. Die Gruppengeschwindigkeit ist definiert als $\mathbf{v}_{\mathbf{q}n\sigma} = \hbar^{-1}\partial e_{\mathbf{q}n\sigma}/\partial\mathbf{q}$ [Zim92]. Hierbei wird angenommen, dass sich die Geschwindigkeit des Elektrons während seines Verbleibens im angeregten Zustand nicht ändert, die Bewegung also ballistisch erfolgt. Allerdings gibt es eine Vielzahl von Parametern, z.B. Versetzungen und Fehlstellen, insbesondere an der Grenzfläche zwischen den einzelnen magnetischen Schichten, oder die unterschiedlichen Bandstrukturen, die die mittlere freie Weglänge beeinflussen und die experimentelle Bestimmung der Lebensdauer erschweren.

Direkte Lebensdauerermessungen mit Hilfe der zeitauflösenden Zwei-Photonen-Photoemission (TR2PPE), die auch in dieser Arbeit verwendet wird, existieren in großer Zahl zu den Münzmetallen Kupfer, Silber und Gold, insbesondere zu Kupfer [KHW98, ONP97, SAEA⁺94, PNO99]. Experimentelle Daten der spinabhängigen Lebensdauer heißer Elektronen von magnetischen Übergangsmetallen sind in der Literatur jedoch nur vereinzelt zu finden, TR2PPE-Messungen zu Kobaltfilmen auf Kupfer(100) sind zuerst 1997 von Aeschlimann und Mitarbeitern veröffentlicht worden [ABP⁺97], entsprechende Ergebnisse für Eisen und Nickel folgten kurz darauf [ABP⁺98, KBBA00]. Alle diese Daten sind in der Dissertation von Burgermeister zusammengefasst und werden dort auch ausführlich erläutert [Bur98]. Dies sind bisher die einzigen direkten Lebensdauerermessungen in den $3d$ -Ferromagneten, deren Energiebereiche sich von $E - E_F = 0.33$ eV bis 0.63 eV für Eisen, 0.54 eV bis 1.04 eV für Nickel und 0.6 eV bis 1.1 eV für Kobalt erstrecken. Der Vergleich von theoretischen Arbeiten und experimentellen Daten zeigt jedoch — insbesondere im Ener-

giebereich von unter einem Elektronenvolt über der Fermi-Energie — erhebliche Abweichungen[ZCE04, ZCE06, GDMK⁺07], die umso größer werden, je niedriger die Energie der heißen Elektronen über dem Fermi-Niveau liegt. Das Verhältnis der Lebensdauern von Majoritäts- zu Minoritätselektronen¹ wird von den theoretischen Arbeiten durchweg als zu hoch bestimmt. Dabei ist es hauptsächlich die Lebensdauer der Majoritätselektronen, die deutlich über den experimentell bestimmten Werten liegt. Aus diesem Grund liefert diese Arbeit zum ersten mal direkt gemessene Daten zu den Lebensdauern im für die Überprüfung der theoretisch ermittelten Werte wichtigen Energiebereich zwischen 0.2 und 0.5 eV über der Fermi-Energie, und kann damit als zusätzliche experimentelle Referenz für zukünftige Rechnungen dienen.

In dieser Arbeit wird der von Burgermeister untersuchte Energiebereich zu kleineren Energien hin erweitert, indem eine leicht veränderte Messmethode angewandt wird. Im Gegensatz zu Ref. [Bur98], in der für den Anrege- und den Abfrageprozess dieselben Photonenenergien von bis zu 3.3 eV verwendet wurden, werden in den vorliegenden Experimenten Energien von 1.5 bis 1.63 eV (IR) bzw. 4.5 bis 4.89 eV (UV) genutzt (bichromatische 2PPE). Unsere Methode hat zwei Vorteile: Erstens muss kein Cäsium zur Verringerung der Austrittsarbeiten auf die Oberfläche aufgedampft verwendet werden, da die in dieser Arbeit verwendete UV-Photonenenergie knapp unterhalb der Austrittsarbeit der untersuchten Metalle liegt. So bleibt die elektronische Struktur der Oberflächen von Eisen, Kobalt und Nickel und somit vorhandene Oberflächenzustände bzw. Resonanzen und Bildpotentialzustände unverändert und deren möglicher Einfluss auf die Lebensdauern kann untersucht werden. In dieser Arbeit konnte daher insbesondere der Einfluß eines Oberflächenzustands mit Minoritätscharakter auf Kobalt und dessen Auswirkung auf die Lebensdauer heißer Elektronen nachgewiesen werden. Dabei stellte sich heraus, dass Austauschstreuung einen signifikanten Einfluss auf die spinabhängige Lebensdauer heißer Elektronen hat (siehe Kapitel 6). Ein zweiter Vorteil der vorliegenden bichromatischen Messung ist, dass die zeitliche Reihenfolge beider Pulse unterscheidbar ist, was die Interpretation der Daten teilweise erleichtert und zusätzliche Informationen über Zwischenzustände zugänglich macht.

Andererseits gestaltet sich dadurch an einigen Stellen die Auswertung der Messdaten aufwändiger, da auch die Bildpotentialzustände bei der Bestimmung der Lebensdauer der angeregten Elektronen berücksichtigt werden müssen. Die niederenergetische Flanke des ersten Bildpotentialzustands liefert einen Beitrag zum Signal der heißen Elektronen im untersuchten Energiebereich $0.3 \leq E - E_F \leq 0.6$ eV oberhalb der Fermi-Energie E_F . Dieser Anteil kann aber durch Simulation des $n = 1$ Bildpotentialzustands mit Hilfe der optischen Blochgleichungen bestimmt werden, wie ich in diesem Kapitel zeigen werde.

Die folgenden drei Unterkapitel behandeln die experimentelle Bestimmung der Lebensdauern von heißen Elektronen in Eisen, Kobalt und Nickel. Kapitel 5.4 gibt einen Vergleich der Messergebnisse zu den theoretischen Beschreibungen der Le-

¹Majoritätselektronen bezeichnet in dieser Arbeit Elektronen mit Majoritätsspin(\uparrow), Minoritätselektronen solche mit Minoritätsspin(\downarrow).

bensdauern. Das letzte Unterkapitel, 5.5, geht auf die mittlere freie Weglänge der Elektronen in Eisen, Kobalt und Nickel ein.

5.1. Eisen

Die Vorgehensweise zur Bestimmung der Lebensdauer der heißen Elektronen erfolgt bei allen Filmen auf analoge Weise, die ich im Folgenden zunächst am Beispiel von Eisen erläutern möchte. Zunächst wurde ein spinauflösendes Energiespektrum gemessen und die Austauschspaltung des ersten Bildpotentialzustands bestimmt. Da die Bildpotentialzustände an der Oberfläche lokalisiert sind, kann deren Breite und die Austauschspaltung als Indikator für die Qualität der Oberfläche und deren ferromagnetische Eigenschaften verwendet werden. Daraufhin wurde per Simulation der Beitrag des ersten Bildpotentialzustands zur Intensität der heißen Elektronen bei Energien knapp oberhalb E_F bestimmt. Dazu wurden die separat gemessenen Photonenenergien und die Pulslängen des anregenden und des abfragenden Pulses in die Simulation eingegeben und die Intensität über die kinetische Energie simuliert (siehe Abbildung 5.1). Die Differenz zwischen den simulierten Kurven (durchgezogene bzw. gestrichelte schwarze Linie für Majoritäts- bzw. Minoritätselektronen) und den gemessenen Intensitäten bei der jeweiligen Energie bestimmt den Anteil der heißen Elektronen bei $\Delta t = 0$ fs. Das auf diese Weise bestimmte Verhältnis der heißen Elektronen zum nicht-resonant angeregten Bildpotentialzustand dient zur Festlegung des relativen Anteils der beiden Beiträge in den zeitauflösenden Spektren, d.h. der Amplituden der blauen und grünen Kurven in Abbildung 5.2.

Da die Zählrate in den zeitauflösenden Messungen, abhängig von der zeitlichen Verzögerung des Anrege- und Abfragepulses, mit maximal 15 Ereignissen pro Sekunde sehr gering ist und sich die zeitliche Position der Laserpulse durch Drifts der Labortemperatur ändert, wurden zur Bestimmung eines Datenpunktes der Lebensdauer bis zu zwölf zeitauflösende Messungen, die jeweils etwa eine Stunde dauern, mit anschließender Kontrolle der zeitlichen Verschiebung der Laserpulse aufgenommen. Die Kontrolle der relativen Zeitverschiebung erfolgte über die zeitauflösende Messung des ersten Bildpotentialzustands, da hier eine hohe Intensität und damit eine entsprechend kurze Messdauer von etwa 2 Minuten erreicht wird, wodurch die zeitliche Verschiebung der Pulse gegeneinander während der Kontrollmessungen vernachlässigbar ist. Die Einzelmessungen zur Lebensdauer heißer Elektronen wurden bezüglich der relativen zeitlichen Verschiebung aus den Kontrollmessungen korrigiert und aufsummiert, eine absolute Korrektur der Zeitverschiebung des Zeitnullpunkts wurde durch Anpassung der experimentellen Daten an die Simulation vorgenommen. Eine Serie der Lebensdauermessungen wurde immer an demselben Film aufgenommen, um den Einfluß der durch das Aufwachsen der Filme bedingten leichten Abweichungen in der Austauschspaltung bzw. der Austrittsarbeit zu minimieren.

Die Lebensdauersimulationen der heißen Elektronen bestehen dabei aus mehreren Beiträgen. Der Anteil des ersten Bildpotentialzustands wird zum Anteil der

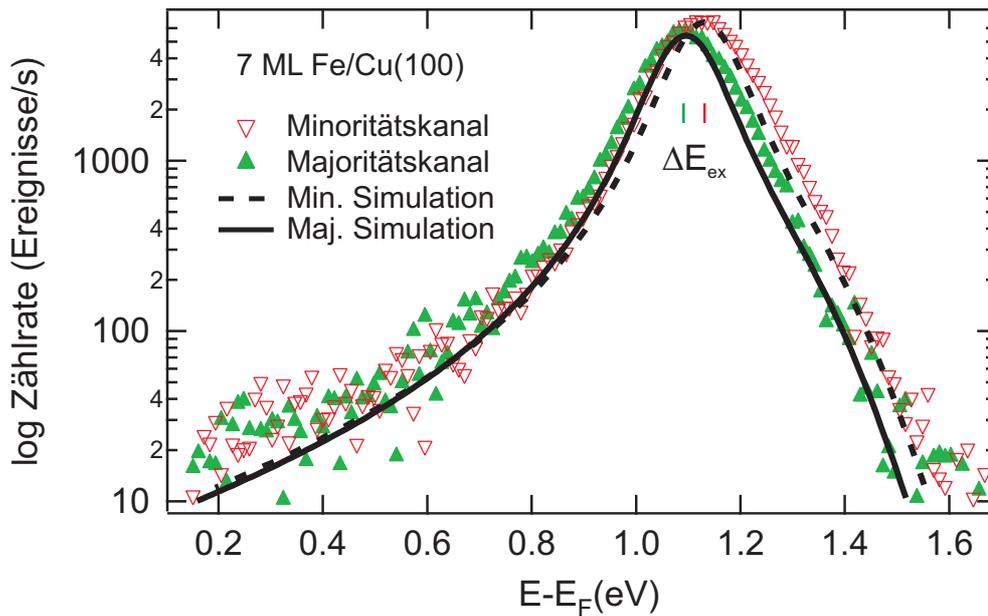


Abbildung 5.1.: Spinauflösendes Energiespektrum von 7 ML Fe/Cu(100). Der erste Bildpotentialzustand liegt bei 1.1 eV, die Austauschspaltung ΔE_{ex} beträgt 32 meV (Position der Maxima mit vertikalen Linien markiert). Zur Bestimmung des Anteils des Bildpotentialzustands bei Energien nahe der Fermi-Energie wurde dieser mittels einer Simulation angefitet.

heißen Elektronen addiert. Dabei nimmt der Einfluss des Bildpotentialzustands zu niedrigeren Energien hin ab. Bei Kobalt kommt als drittes noch der Anteil des Oberflächenzustands hinzu, dessen Lebensdauer unabhängig von $E - E_F$ konstant ist und dessen Anteil zu höheren Energien hin abnimmt. Mehr zum Einfluß des Oberflächenzustands findet sich in Kapitel 6.

Im Fall von Eisen wurde die Lebensdauer heißer Elektronen für einen 7 ML dicken fcc-Film auf Cu(100) gemessen, der bei Raumtemperatur aufgedampft wurde. Bei einer Bedeckung von weniger als 7 ML ist der Einfluss des Kupfersubstrats auf die Lebensdauer sichtbar (siehe Abbildung 5.19), ab 10 ML geht Eisen in die bcc-Struktur über. Das spinauflösende Energiespektrum zeigt Abbildung 5.1. Der Messbereich der heißen Elektronen liegt bei Energien zwischen 0.2 und 0.5 eV über der Fermi-Energie. Der erste Bildpotentialzustand liegt bei einer Energie von 1.1 eV und die Austauschspaltung beträgt 32 meV. Die Austrittsarbeit wurde zu 4.75 ± 0.02 eV bestimmt. Durch Simulation mit Hilfe der optischen Blochgleichungen wurde der Anteil des ersten Bildpotentialzustands im Energiebereich der angeregten Elektronen bestimmt (schwarze Linien in Abb. 5.1).

Die zeitauflösenden Messungen sowie die zugehörigen Simulationen zu 7 ML Eisen zeigt Abbildung 5.2. Die schwarze Kurve über dem Messsignal entspricht der Summe aus Untergrund (grau), nicht-resonanter Anregung des Bildpotentialzustands (grün) und dem Signal der heißen Elektronen (blau). Der nicht-resonant angeregte Bildpotentialzustand beschreibt dabei die steigende Flanke der Messwerte am besten bei einer simulierten Lebensdauer von 5 ± 2 fs. Auf der linken Seite

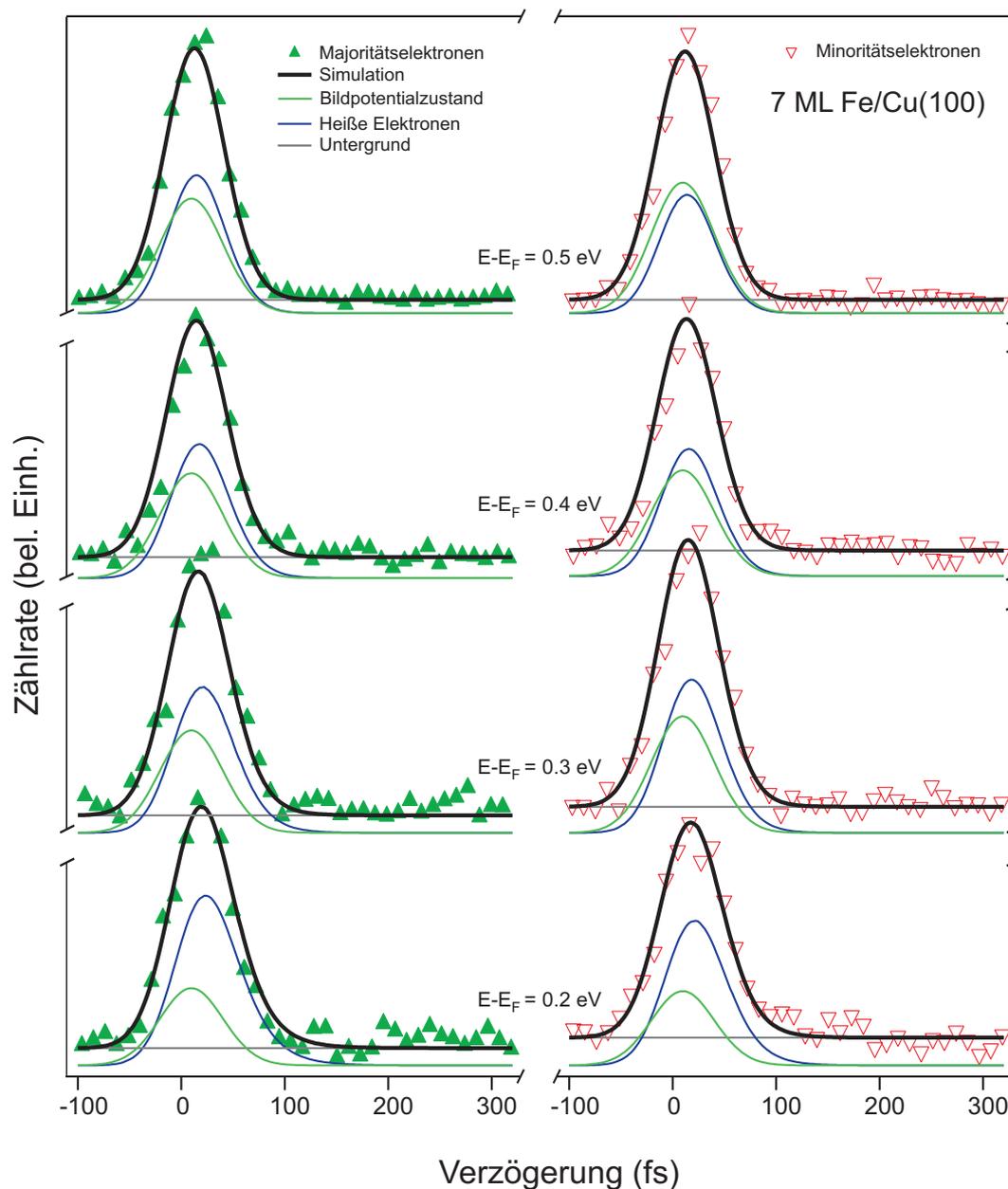


Abbildung 5.2.: Zeitauflösende Messungen der Spektren heißer Elektronen mit Majoritäts- (grüne Dreiecke) und Minoritätscharakter (rote Dreiecke) von 7 ML Fe/Cu(100). Die simulierten Anteile bestehen aus den heißen Elektronen (blau) und einem konstanten Untergrund (grau). Der Anteil des ersten Bildpotentialzustands (grün) nimmt mit abnehmender Energie über dem Fermi-Niveau ab.

befinden sich die Messkurven und die Simulationen der Majoritätsladungsträger, rechts die der Minoritätsladungsträger. Die Energien oberhalb der Fermi-Energie $E - E_F$ der Messungen sind für die einzelnen Graphen angegeben. Der Fehlerbalken der Messung wurde dementsprechend zu ± 2 fs angenommen. Wie in der Abbildung zu sehen ist, nimmt das Signal der heißen Elektronen (in blau) mit abnehmender

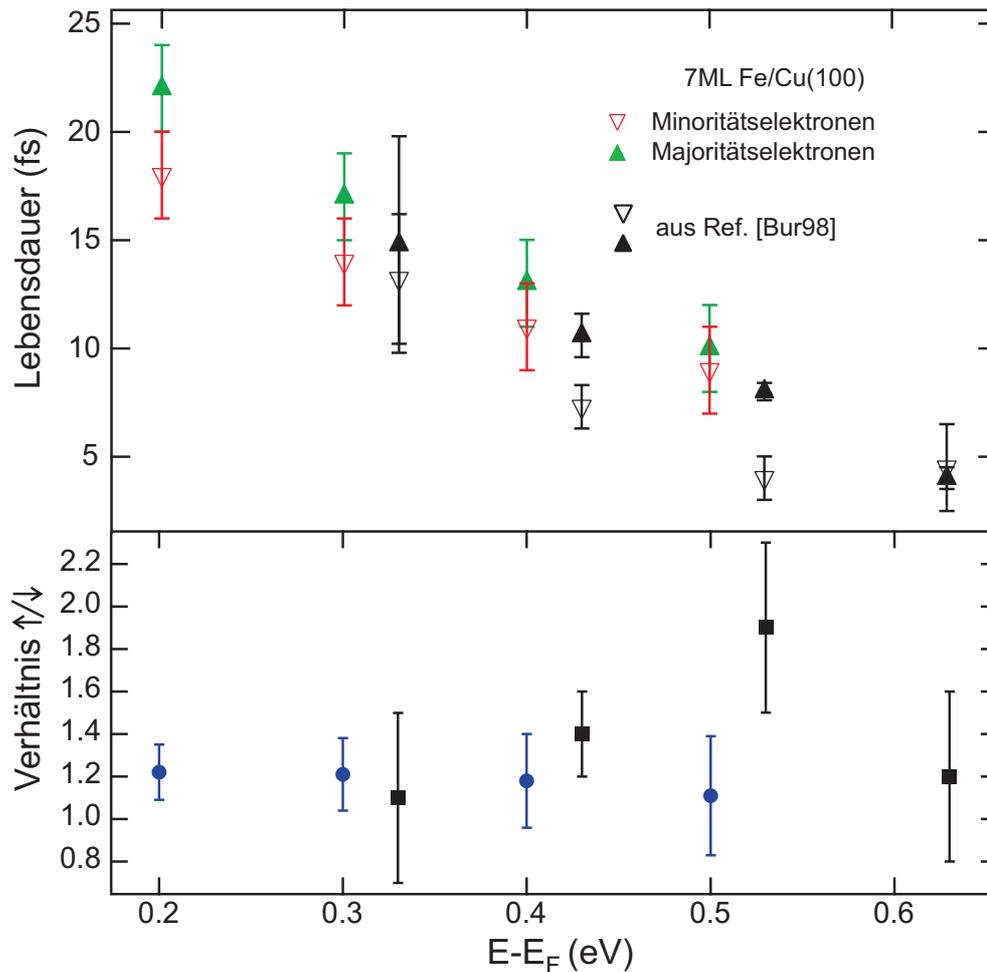


Abbildung 5.3.: Aus Abb. 5.2 bestimmte Lebensdauern heißer Elektronen für 7 ML Fe/Cu(100). Die Majoritätselektronen leben bei allen Energie länger als die Minoritätselektronen. Ebenso ist eine Zunahme der Lebensdauern hin zu niedrigeren Energien deutlich erkennbar. Die heißen Elektronen haben in Eisen die kürzeste Lebensdauer aller 3d-Ferromagnete.

Energie zu (in Abbildung 5.2 von oben nach unten), der Anteil des ersten Bildpotentialzustands (in grün) sinkt dementsprechend.

Die mit Hilfe der Simulation extrahierte Lebensdauer der heißen Elektronen von Eisen zeigt Abbildung 5.3. Dort lässt sich sehr gut die Zunahme der Lebensdauer zu kleineren Energien für beide Spinkanäle beobachten. Legt man lediglich die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte für das Verhältnis der Lebensdauer von Majoritäts- zu Minoritätsladungsträgern zugrunde, so steigt dies zu kleineren Energien hin leicht an. Die Hinzunahme der Daten aus Referenz [Bur98] zeigt ein eher konstantes Verhältnis von $\tau_{\uparrow/\downarrow}$.

Im Energiebereich zwischen 0.4 eV und 0.5 eV zeigen die in dieser Arbeit gewonnenen Daten im Rahmen des Fehlerbalkens eine gute Übereinstimmung mit denen von Burgermeister [Bur98]. Die Werte für die Lebensdauer der Majoritätselektronen liegen allerdings deutlich unter denen von Zhukov *et al.* berechneten [ZCE06]. So

wurde dort für eine Energie von 0.3 eV eine Lebensdauer von etwa 80 fs angegeben, was um etwa einen Faktor vier über dem in dieser Arbeit bestimmten experimentellen Wert liegt.

Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse für Eisen erfolgt in Kapitel 5.4 im Vergleich zu den Werten von Kobalt und Nickel und im Hinblick auf die Ergebnisse aus verschiedenen theoretischen Beschreibungen.

5.2. Kobalt

Die Lebensdauer heißer Elektronen in Kobalt wurden für einen 20 ML dicken Film auf Cu(100) gemessen. Der Film wurde bei einer Temperatur von 110 K aufgedampft, um das Aufschwimmen von Kupferatomen zu vermeiden und anschließend bei 390 K ausgeheilt, um eine glatte Filmoberfläche zu erhalten. Die Vorgehensweise sowohl bei der Messung, als auch bei der Bestimmung der Lebensdauern ist analog zu der bei Eisen, allerdings kommt bei der Datenauswertung noch eine Lebensdauerkomponente hinzu: Auger-Elektronen, angeregt durch Rekombination von Photo-Löchern aus dem Minoritäts-Oberflächenzustand von Co(100). Auf den Oberflächenzustand von Co(100) und dessen Einfluss auf die gemessene 2PPE Intensität sowie die zugrunde liegenden physikalischen Anregungsmechanismen wird ausführlich in Kapitel 6 eingegangen. Das spinauflösende Energiespektrum zeigt

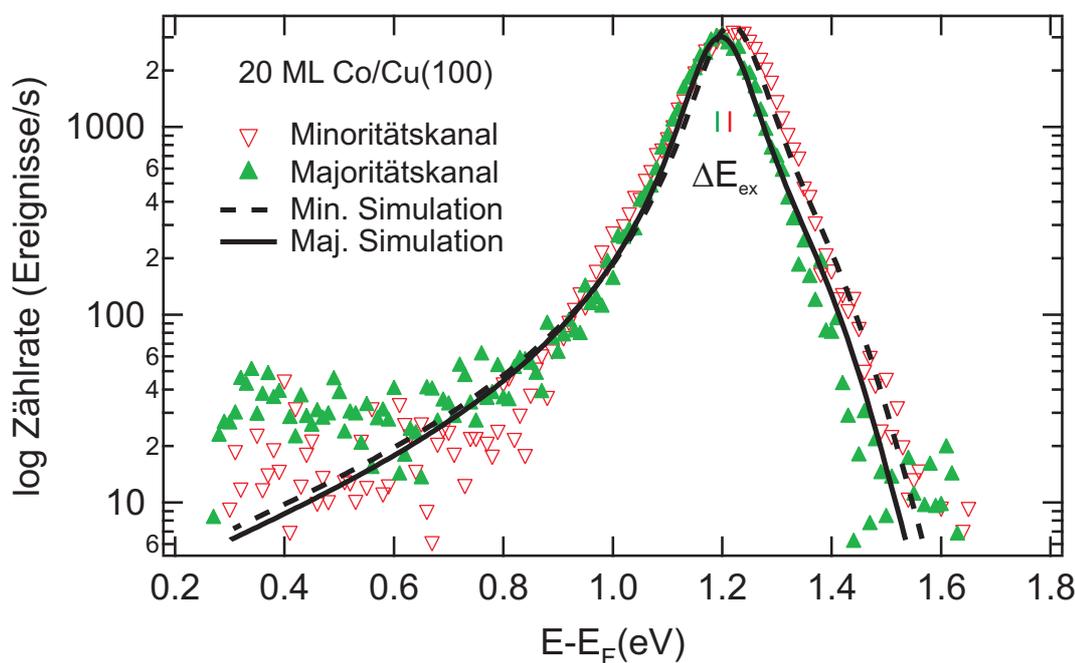


Abbildung 5.4.: Spinauflösendes Energiespektrum von 20 ML Co/Cu(100). Der erste Bildpotentialzustand liegt bei 1.2 eV, die Austauschspaltung ΔE_{ex} beträgt 20 meV (vertikale Linien kennzeichnen die Maxima). Zur Bestimmung des Anteils des Bildpotentialzustands bei Energien nahe der Fermi-Energie wurde eine Simulation des Zustandes an das Spektrum angepasst.

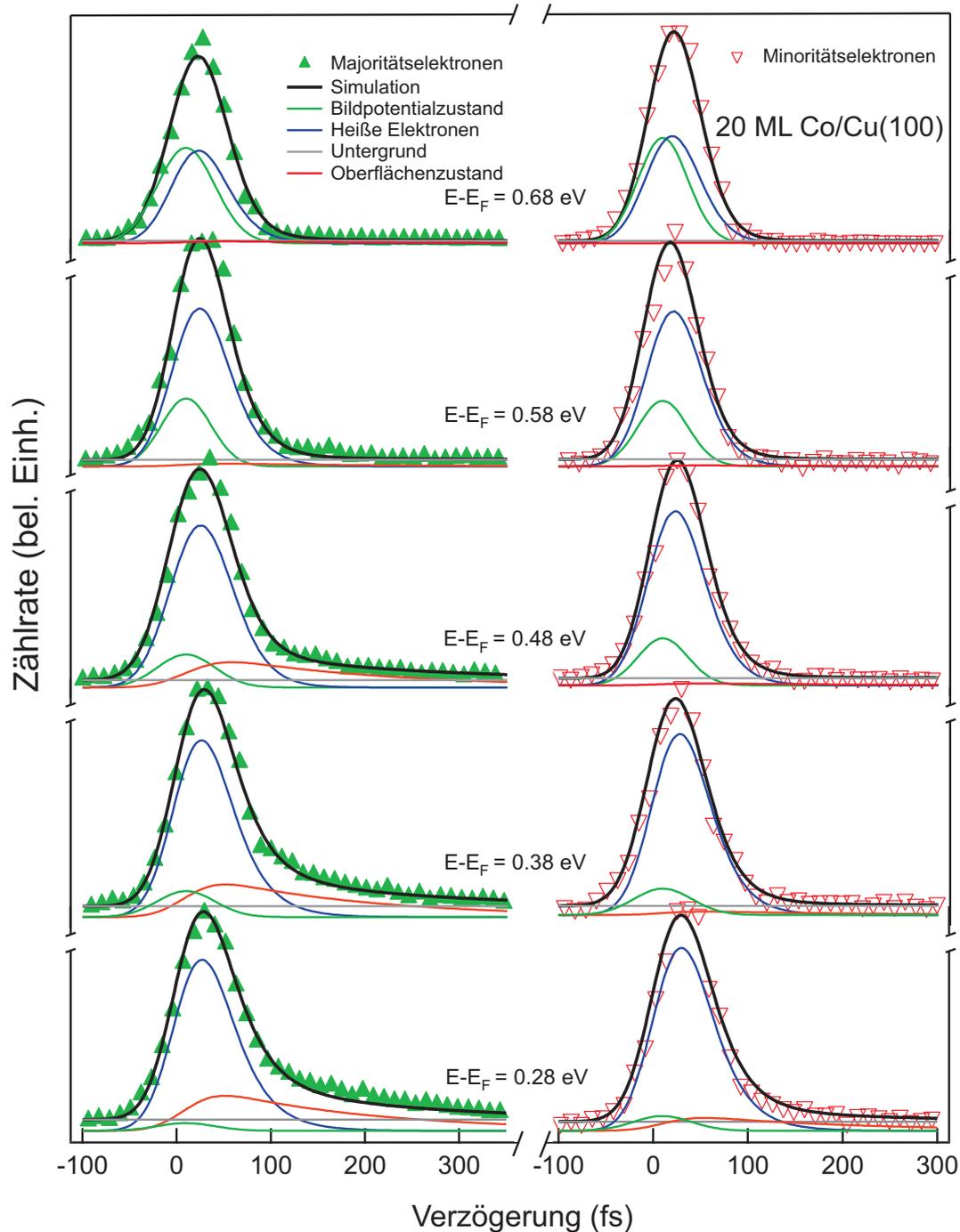


Abbildung 5.5.: Zeitauflösende Spektren heißer Elektronen von Majoritäts- (grüne Dreiecke) und Minoritätselektronen (rote Dreiecke) von 20 ML Co/Cu(100). Die simulierten Anteile bestehen aus den heißen Elektronen (blau), dem ersten Bildpotentialzustand (grün), dessen Anteil mit abnehmender Energie über dem Fermi-Niveau abnimmt, den aus dem Oberflächenzustand angeregten Elektronen (rot), deren Anteil mit abnehmender Energie zunimmt und einem konstanten Untergrund (grau).

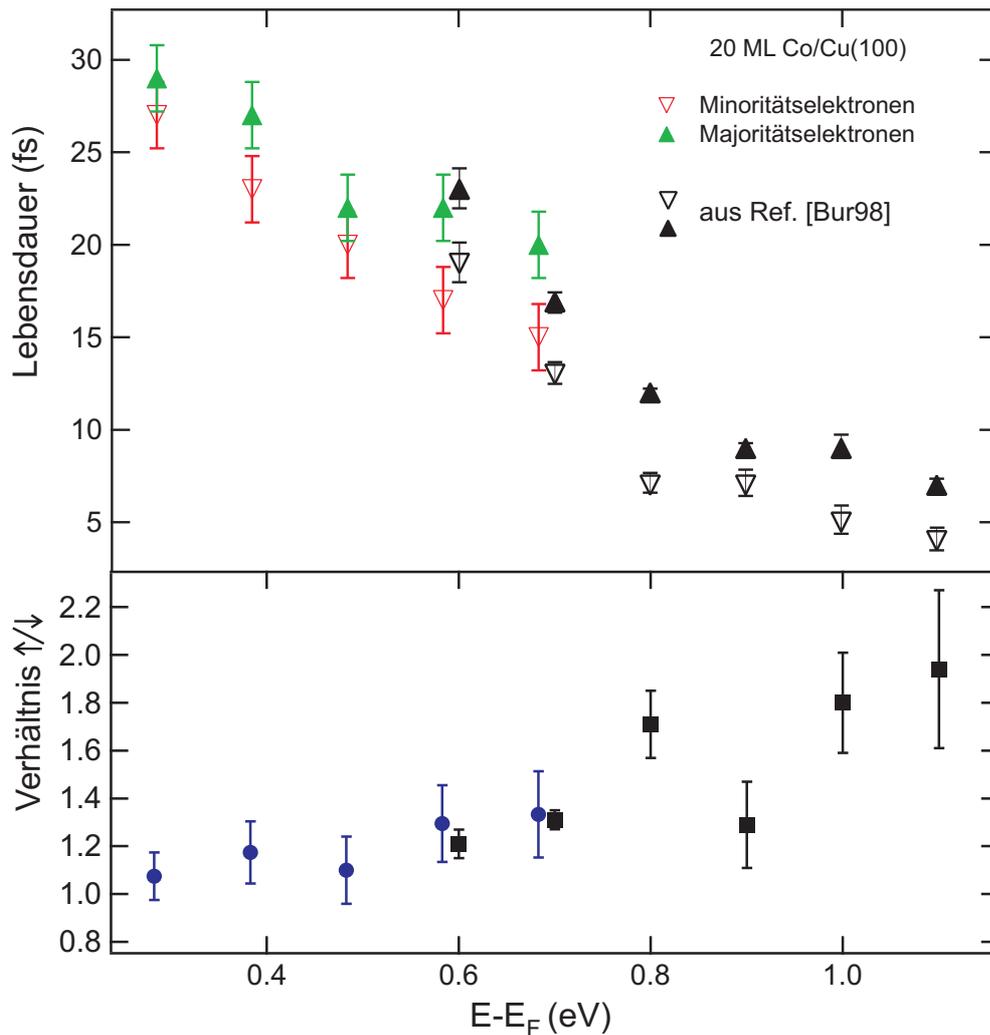


Abbildung 5.6.: Lebensdauern der heißen Elektronen für 20 ML Co/Cu(100). Die farbigen Datenpunkte wurden im Rahmen dieser Arbeit gemessen, die schwarzen Datenpunkte stammen von Aeschlimann et al. [Bur98] (Die Fehlerbalken der Daten aus Ref. [Bur98] geben den rein statistischen Fehler wieder). Die Majoritätselektronen leben bei allen Energien länger als die Minoritätselektronen. Ebenso ist eine kontinuierliche Zunahme der Lebensdauern hin zu niedrigeren Energien deutlich erkennbar.

Abbildung 5.4. Analog zum Eisenspektrum in Abbildung 5.1 wurde der Anteil des ersten Bildpotentialzustands am Signal der angeregten Elektronen durch Simulation bestimmt. Die Austrittsarbeit der Kobaltfilme beträgt 4.76 ± 0.02 eV. Die Lebensdauer der heißen Elektronen wurden für Energien zwischen 0.28 und 0.68 eV oberhalb E_F gemessen.

Die Farbcodierung bei der Simulation der Lebensdauer auf 20 ML Kobalt ist für die einzelnen Anteile in Abbildung 5.5 identisch zu den Simulationen auf Eisen in Abbildung 5.2. Im Fall von Kobalt müssen jedoch drei Anteile für eine konsistente Simulation der Daten bestimmt werden. Die Intensität der heißen Elektronen (blau) für Energien von 0.28 bis 0.68 eV wurde bestimmt, indem die Lebensdauer in den

Simulationen solange angepasst wurde, bis eine möglichst gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten erreicht wurde. Der Anteil des nicht-resonant angeregten Bildpotentialzustands wurde, wie im Fall von Eisen, für die jeweilige Energie aus der Simulation in Abbildung 5.4 mit einer Lebensdauer von 5 ± 2 fs bestimmt. Der dritte Anteil (rot) liefert lediglich in den Spektren der Majoritätsladungsträger einen signifikanten Beitrag (mit Ausnahme eines kleinen Anteils bei einer Energie von 0.28 eV für die Minoritätsladungsträger). Dieser Beitrag, mit einer per Simulation bestimmten Lebensdauer von 170 ± 5 fs stammt aus dem Zerfall von Photo-Löchern aus dem Oberflächenzustand auf Co(100) mit Minoritätscharakter (siehe Kapitel 6) und nimmt mit zunehmender Energie $E - E_F$ ab.

Die Lebensdauer der heißen Elektronen in Abhängigkeit von $E - E_F$ ist in Abbildung 5.6 graphisch aufgetragen. Die in meiner Arbeit bestimmten Werte bei 0.58 und 0.68 eV stimmen im Rahmen des experimentellen Fehlerbalkens mit den von Burgermeister gemessenen Werten überein. Der Anstieg zu kleineren Energien hin ist kleiner als in der theoretischen Arbeit von Zarate *et al.* vorausgesagt [ZAE99]. Das Verhältnis der Lebensdauern von Majoritäts- zu Minoritätselektronen nimmt mit abnehmender Energie weiter ab. Dieses Verhalten ist für einen starken Ferromagneten wie Kobalt untypisch, da hier erwartet wird, dass das Verhältnis der Lebensdauern aufgrund der starken Unterschiede in der Zustandsdichte in der Nähe der Fermi-Energie größer wird [ZCE06]. Für Nickel liegen die theoretisch bestimmten Werte für die Lebensdauer der Majoritäts- bzw. Minoritätsladungsträger bei einer Energie von 0.5 eV bei 35 bzw. 4 fs, was einem Verhältnis von etwa neun zu eins entspricht. Da Kobalt und Nickel ein ähnliches Verhältnis in der Zustandsdichte nahe der Fermi-Energie zeigen, wäre zu erwarten gewesen, dass auch das Lebensdauerungsverhältnis ähnlich ist. Der in dieser Arbeit bestimmte Wert für das Verhältnis der Lebensdauern von Majoritäts- zu Minoritätselektronen für Kobalt liegt dagegen bei 1 bis 1.5.

5.3. Nickel

Im Vergleich zu den Filmen aus Eisen mit 7 ML Dicke und Kobalt mit 20 ML Dicke sind die untersuchten Nickelfilme mit 200 ML (entsprechend 352 Å) deutlich dicker. Unter 200 ML Dicke ist eine Signatur des Kupfersubstrats in den zeitaufgelösten Messungen sichtbar. Für 7 ML Eisen bzw. 20 ML Kobalt auf Kupfer ist dies hingegen nicht der Fall. Da das Kupfersignal die Bestimmung der Lebensdauer der angeregten Elektronen in Nickel erschwert, wurde die Dicke der Nickelfilme so gewählt, dass der Beitrag der Kupferelektronen die Daten nicht mehr signifikant beeinflusst (mehr dazu in Kapitel 5.5).

Die Präparation der Nickelfilme erfolgte auf analoge Weise zu den Kobaltfilmen: Bei einer Temperatur von 110 K aufgedampft, wurden die Filme anschließend bei 390 K ausgeheilt. Bei einer Filmdicke von 200 ML liegt die Magnetisierung des Films in der Film-ebene (siehe Kapitel 2.1). Abbildung 5.7 zeigt das Energiespektrum des Nickelfilms für beide Spinorientierungen, sowie das simulierte 2PPE Signal der Bildpotentialzustände, ebenfalls für beide Spinorientierungen, analog zu

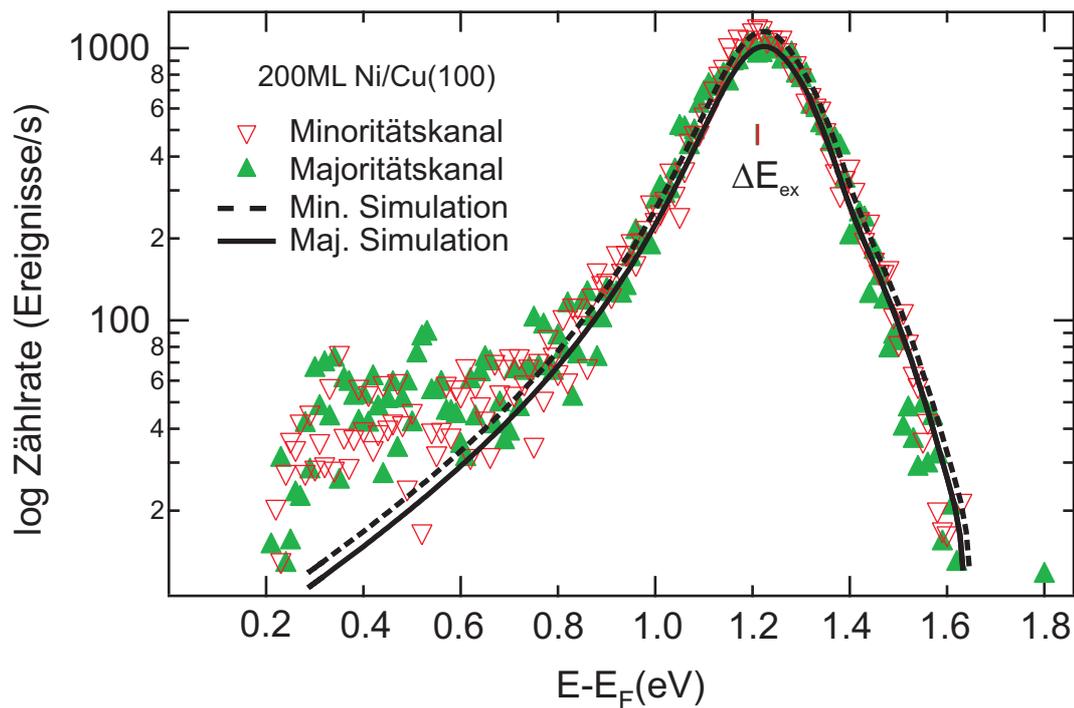


Abbildung 5.7.: Spinauflösendes Energiespektrum von 200 ML Ni/Cu(100). Der erste Bildpotentialzustand liegt bei 0.6 eV unterhalb der Vakuumenergie, die Austauschspaltung ist kleiner als die experimentelle Auflösung von 5 meV, wie mittels der vertikalen rot/grünen Linien angedeutet. Zur Bestimmung des Anteils des Bildpotentialzustandes am Gesamtsignal bei Energien nahe der Fermi-Energie wurde eine Simulation des Zustandes an das Spektrum angepasst.

den Abbildungen 5.1 und 5.4 für Eisen bzw. Kobalt. Die Austauschspaltung des ersten Bildpotentialzustands ist kleiner als der experimentelle Fehlerbalken von ± 5 meV und stimmt mit dem von Starke *et al.* bestimmten Wert von 13 ± 13 meV auf einem Ni-Einkristall in (100)-Orientierung überein [SED92]. Die Austrittsarbeit des Nickelfilmes wurde zu 5.10 ± 0.02 eV bestimmt, in Übereinstimmung mit den bei [SFFS92] gemessenen Werten für Nickel auf Cu(100).

Die Lebensdauer der heißen Elektronen in Nickel wurde in einem Energiebereich von etwa 0.33 eV bis 0.63 eV über der Fermi-Energie gemessen, bei einer Photonenergie von 1.63 eV für den IR-Puls und 4.89 eV für den UV-Puls. Aufgrund der höheren Austrittsarbeit von Nickel wurden größere Photonenergien verwendet, um heiße Elektronen mit Anregungsenergien möglichst nahe der Fermi-Energie messen zu können. Die gemessenen und simulierten Intensitäten finden sich in Abbildung 5.8, wobei die Analyse der Spektren analog zu denen von Eisen erfolgt.

Die aus den Messungen extrahierten Werte der Lebensdauer zeigt Abbildung 5.9. Die in dieser Arbeit bestimmten Werte sind in grün für die Majoritätselektronen und in rot für die Minoritätselektronen dargestellt. Zum Vergleich sind die für höhere Energiewerte gemessenen Werte von Burgermeister in schwarz eingetragen. Die hier bestimmten Werte liegen bei den überlappenden Energiewerten etwa 5 fs oberhalb den von Burgermeister gefundenen Werten. Ein möglicher Grund hierfür

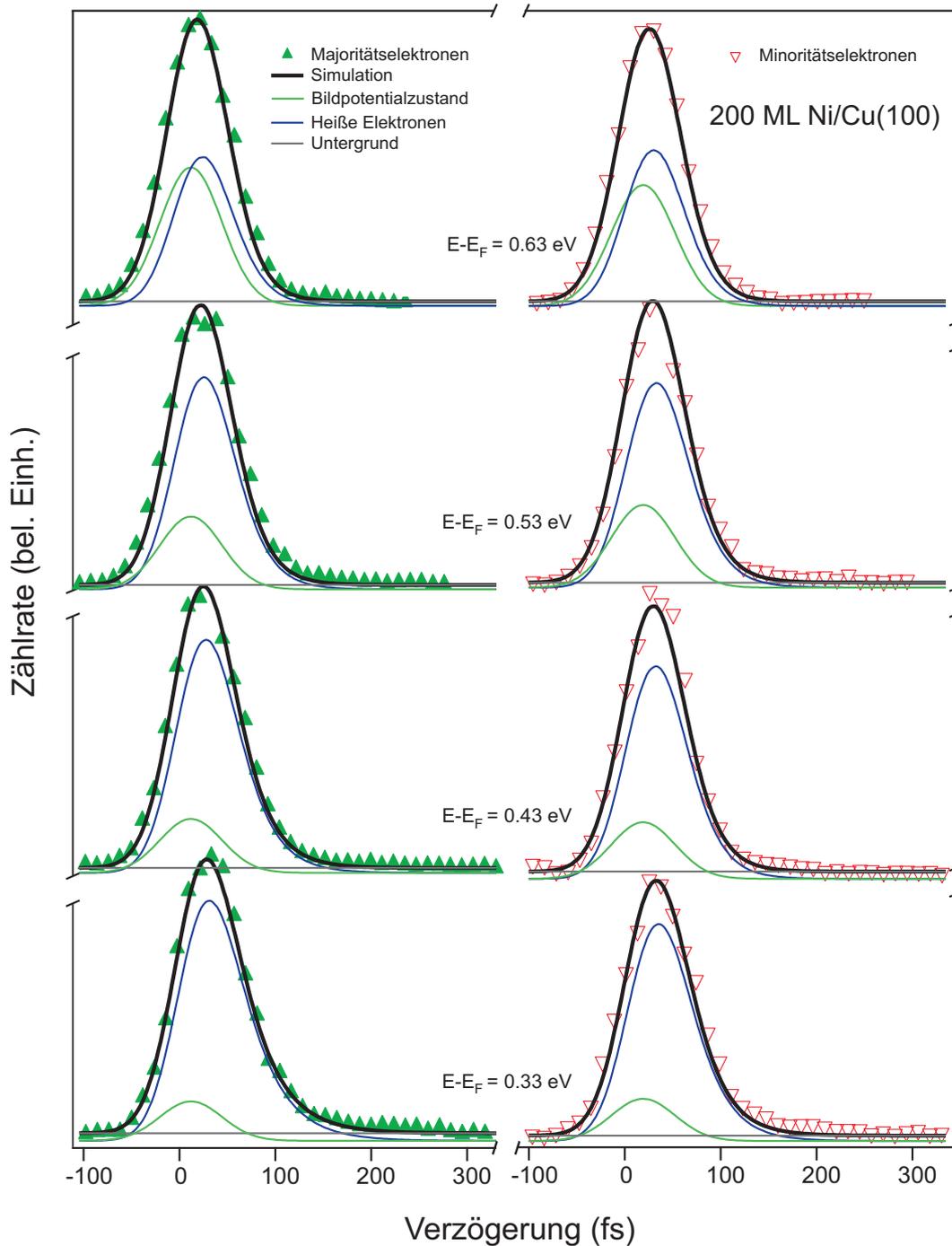


Abbildung 5.8.: Zeitauflösende Messungen heißer Elektronen von Majoritäts- (grüne Dreiecke) und Minoritätselektronen (rote Dreiecke) von 200 ML Ni/Cu(100). Die simulierten Anteile bestehen aus den heißen Elektronen (blau), deren Anteil mit zunehmender Energie über dem Fermi-Niveau abnimmt, dem Beitrag des ersten Bildpotentialzustands (grün), dessen Anteil mit abnehmender Energie abnimmt und einem konstanten Untergrund (grau).

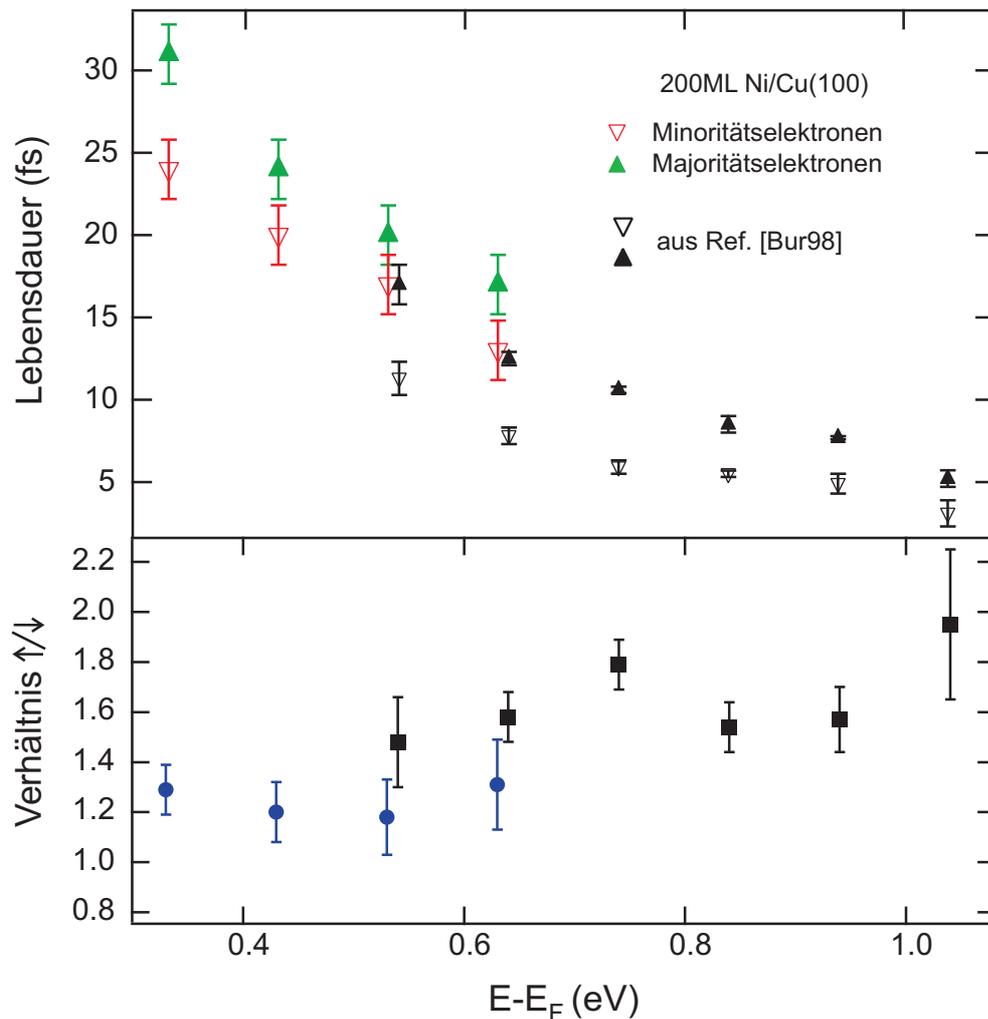


Abbildung 5.9.: Lebensdauer heißer Elektronen für 200 ML Ni/Cu(100), die farbigen Datenpunkte wurden im Rahmen dieser Arbeit bestimmt, zum Vergleich sind die Daten aus [Bur98] in schwarz aufgetragen (die Fehlerbalken sind dabei die rein statistischen Werte). Die Majoritätselektronen leben bei allen Energien länger als die Minoritätselektronen. Ebenso ist eine Zunahme der Lebensdauer hin zu niedrigerer Energie deutlich erkennbar.

könnte darin liegen, dass die Energieposition der Messpunkte in der vorliegenden Arbeit durch Unsicherheiten bei der Bestimmung der linken Kante nur bis auf ± 20 meV genau bestimmt werden kann. Bei einer Energieverschiebung von weniger als 100 meV entlang der x-Achse stimmen die Messergebnisse im Rahmen der experimentellen Fehlerbalken überein. Auch kann eine unterschiedliche Qualität der aufgedampften Filme die gemessenen Lebensdauer beeinflussen. Da die Vorgehensweise bei der Energiebestimmung und die Qualität der Filme bei Burgermeister in dessen Dissertation nicht diskutiert werden, kann eine genaue Ursache für die Abweichung nicht angegeben werden. Zu beachten ist jedoch, dass der bei Burgermeister angegebene Fehlerbalken lediglich den statistischen Fehler angibt, der

tatsächliche Fehler also größer ist. Die Tendenz ist allerdings bei beiden Messreihen sehr ähnlich: Zu niedrigeren Energien steigen die Werte der Lebensdauer an und die Lebensdauer der Majoritätselektronen liegt bei allen Energien über denen der Minoritätselektronen. Die gemessenen Werte für Nickel liegen über denen von Eisen und sind vergleichbar zu der Lebensdauer in Kobalt. Dieses Verhalten lässt sich aufgrund der für Kobalt und Nickel als starke Ferromagneten ähnlichen Bandstruktur in der Nähe der Fermi-Energie auch erwarten. Da die Zahl der möglichen Streuzustände und damit der Phasenraum für Minoritätselektronen bei den starken Ferromagneten deutlich größer ist als für Majoritätselektronen, würde man erwarten, dass die Lebensdauer der Minoritätselektronen deutlich größer ist, als die der Majoritätselektronen. Die hier ermittelten Werte zeigen aber, wie schon für Kobalt, eine ähnliche Lebensdauer für Elektronen beider Spinorientierungen, bei denen die heißen Majoritätselektronen nur minimal länger leben als die Minoritätselektronen.

5.4. Diskussion der Ergebnisse der Lebensdauerermessungen

In diesem Unterkapitel werden die gemessenen Werte der Lebensdauern der heißen Elektronen in Eisen, Kobalt und Nickel untereinander und mit Vorhersagen verschiedener theoretischer Modelle verglichen. Allen drei ferromagnetischen Materialien ist gemeinsam, dass die Lebensdauer der heißen Elektronen zu kleineren Anregungsenergien hin zunimmt, wie es auch schon das einfache Modell der Fermiflüssigkeit voraussagt (siehe Kapitel 2.2.1). Außerdem ist die Lebensdauer der Majoritätselektronen durchweg größer als die der Minoritätselektronen. Dies wird aufgrund der unterschiedlich besetzten Zustandsdichte für Majoritäts- und Minoritätszustände bei Kobalt und Nickel und dem damit verbundenen kleineren Phasenraum, der für die inelastische Streuung eines heißen Elektrons zur Verfügung steht, auch erwartet. Hingegen sollte der schwache Ferromagnet Eisen mit seinem weniger ausgeprägten Unterschied der spinabhängigen Zustandsdichten in der Nähe des Fermi-Niveaus und dem damit verbundenen Anstieg der Zerfallskanäle für die Majoritätszustände (siehe Abbildung 2.2) eine etwas kleinere Lebensdauer für die Majoritätselektronen zeigen. Dies wird im Experiment jedoch nicht beobachtet. Ursache dafür sind möglicherweise theoretisch vorhergesagte Anregungen von Magnonen (siehe Kapitel 2.2.3) im Minoritätskanal, die die Lebensdauer der Minoritätselektronen verkürzen [ZCE04, PM98].

Der Anstieg der Lebensdauer zu kleineren Anregungsenergien hin ist insbesondere bei Kobalt und Nickel geringer als erwartet. So haben Zarate *et al.* am Beispiel von Kobalt ein einfaches Modell aufgestellt, dem die Theorie der Fermiflüssigkeit in Kombination mit einer kastenförmigen Zustandsdichte für die Beschreibung der *d*-Bänder zugrundeliegt [ZAE99] (die Zustandsdichte der *s*-Bänder ist konstant). Nimmt man die im Rahmen meiner Arbeit gewonnenen Daten zu denen aus Referenz [Bur98] hinzu, so zeigt sich, dass sich dieses Modell bei niedrigen Energien über E_F nicht mehr anwenden lässt, da der Anstieg der Lebensdauer zur Fermi-Energie

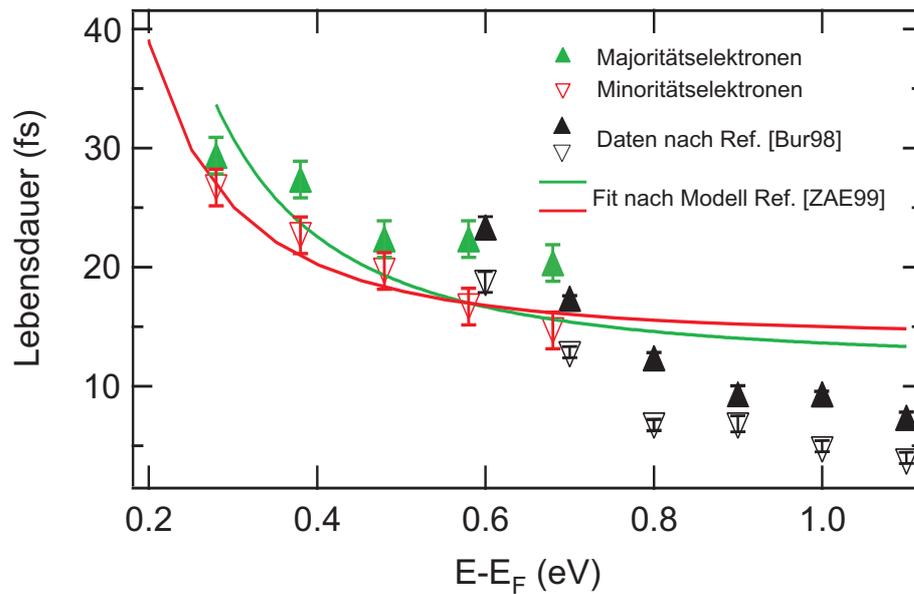


Abbildung 5.10.: Grüne, gefüllte Dreiecke und rote, offene Dreiecke geben die in dieser Arbeit gemessenen Werte der Lebensdauer für Majoritätselektronen und Minoritätselektronen an. Schwarze Dreiecke kennzeichnen die Werte aus Referenz [Bur98]. Die Fits, an den in beiden experimentellen Arbeiten ermittelten gemeinsamen Datensatz (farbige Linien), wurden nach dem Modell von Zarate et al. durchgeführt [ZAE99]. Das dort verwendete einfache Modell kann zur theoretischen Beschreibung aller Datenpunkte nicht mehr angewendet werden, da der Anstieg in den gemessenen Lebensdauern zu kleinen Energien hin zu gering ist.

hin geringer ist als mit dem Modell vereinbar (siehe Abbildung 5.10).

Aus den von Zhukov *et al.* in Referenz [ZCE04] mittels der GW+T-Theorie² berechneten Werten der inversen Lebensdauer, wurden die Lebensdauern für Eisen und Nickel bestimmt und mit den in dieser Arbeit und in Referenz [Bur98] bestimmten Werten verglichen (siehe Abbildung 5.11). Während die berechneten Daten für die Minoritätselektronen gut zu den experimentell ermittelten Werten passen, sind die berechneten Lebensdauern der Majoritätselektronen sowohl für Eisen, als auch für Nickel deutlich zu hoch. Bei Eisen spielt die Anregung von Magnonen im Minoritätskanal eine zentrale Rolle, denn die errechneten Werte stimmen bei der Berücksichtigung von Spin-Umklapp-Prozessen (GW+T mit Spin-Flip) gut mit den experimentellen Werten überein. Für Majoritätselektronen spielen Magnonen bei den in dieser Arbeit bei 110 K durchgeführten Messungen keine signifikante Rolle, da die Anzahl angeregter Magnonen bei dieser Temperatur zu gering ist, um die Lebensdauer der Majoritätselektronen durch Absorption zu verringern. Werden solche Prozesse nicht in den Rechnungen berücksichtigt (GW+T ohne Spin-Flip), so sind die berechneten Werte der Lebensdauer deutlich größer als die gemessenen Werte. Für Nickel erklären Zhukov *et al.* den geringeren Einfluss

²In Kapitel 2.2.1 werden die verschiedenen theoretischen Ansätze zur Berechnung der Lebensdauer heißer Elektronen vorgestellt.

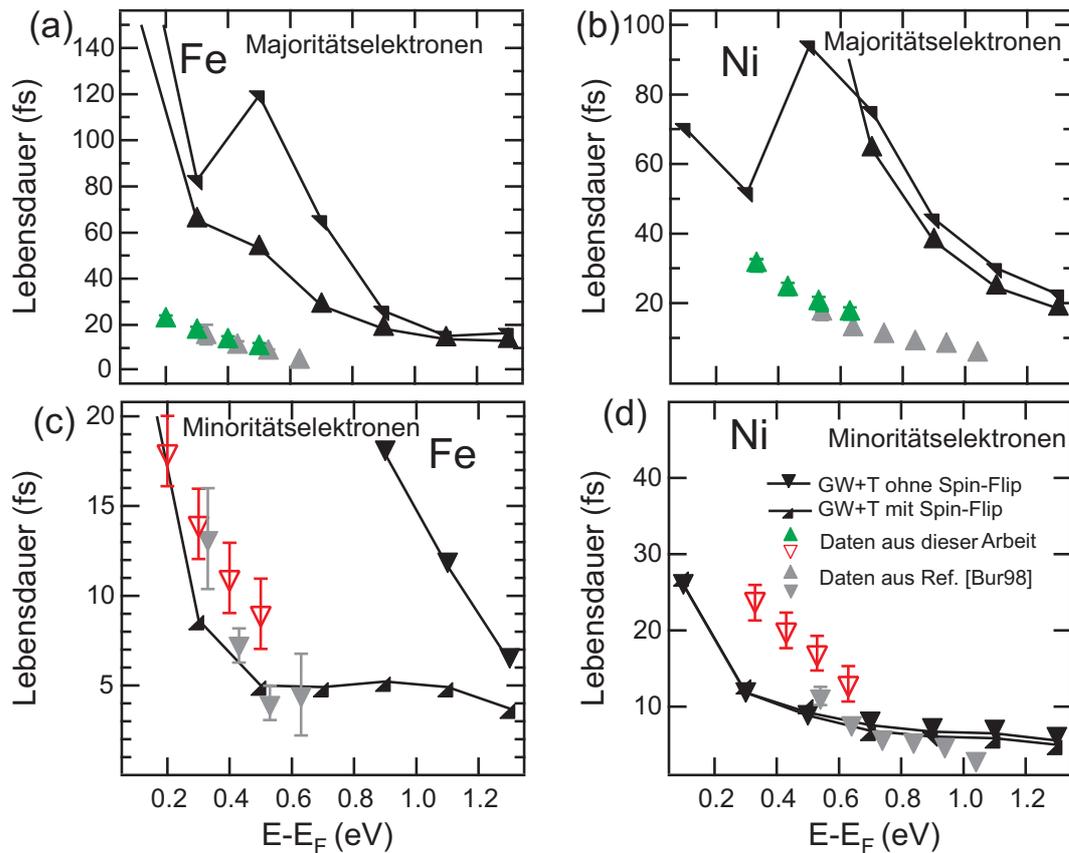


Abbildung 5.11.: Lebensdauern heißer Elektronen in Eisen- (a,c) und Nickel (b,d) für Minoritäts- (nach unten gerichtete Dreiecke) und Majoritätsladungsträger (nach oben gerichtete Dreiecke). Die blauen Datenpunkte sind die in dieser Arbeit bestimmten Werte für die Lebensdauern, grau gekennzeichnet sind die Daten aus Referenz [Bur98]. Die schwarzen Symbole stellen die von Zhukov et. al. im Rahmen der GW+T-Theorie ohne bzw. mit Spin-Umklapp vorhergesagten Werte dar (aus [ZCE04]). Während die Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie für die Minoritätselektronen gut ist, wird die Lebensdauer für die Majoritätselektronen um bis zu einem Faktor sechs zu groß vorhergesagt.

von Spin-Umklapp-Prozessen auf die Lebensdauer mit der in Nickel kleineren Austauschspaltung im Vergleich zu Eisen und einem dementsprechend geringeren Beitrag dieser Prozesse zum Zerfall heißer Elektronen. Bei Energien zwischen 0.3 und 0.5 eV nimmt die Lebensdauer der Majoritätselektronen in Eisen und Nickel im GW+T Modell mit Spin-Flip zu. Der Ursprung des daraus resultierenden Maximums in der Lebensdauer bei 0.5 eV wird in Referenz [ZCE04] allerdings nicht diskutiert und in den experimentellen Daten nicht beobachtet. Rechnungen zu Majoritätselektronen ohne Spin-Umklapp-Prozesse zeigen dieses Maximum nicht und passen im Fall von Eisen besser zu den experimentellen Ergebnissen.

In einer späteren Veröffentlichung führten Zhukov *et al.* *ab-initio* GWA-Rechnungen durch, um die mittleren freien Weglängen und die Lebensdauern der heißen Elektronen unter anderem in Eisen und Nickel zu bestimmen [ZCE06]. Die

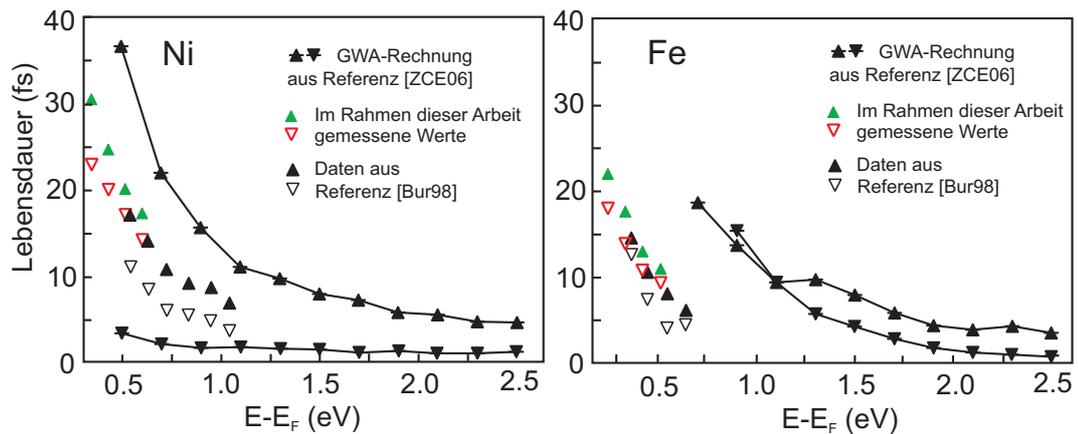


Abbildung 5.12.: Lebensdauer heißer Elektronen mittels GWA-Rechnungen (schwarze Dreiecke mit waagerechten Strichen) im Vergleich zu den in dieser Arbeit (grüne und rote Dreiecke) und in Referenz [Bur98] ermittelten Werten für Nickel und Eisen. Während die experimentell ermittelten Werte für Nickel zwischen den theoretisch bestimmten Werten liegen, sind die experimentell bestimmten Werte für Eisen kleiner als die berechneten Werte.

dort vorhergesagten Werte können jedoch im Experiment nicht bestätigt werden: Die berechneten Werte der Lebensdauer der Minoritätselektronen für Nickel sind im Vergleich zu meinen Daten etwa um einen Faktor fünf zu niedrig, während die der Majoritätselektronen um einen Faktor zwei zu hoch ist (siehe Abbildung 5.12). Der Anstieg in der Lebensdauer der Majoritätselektronen zu kleineren Energien hin ist mit den in dieser Arbeit bestimmten Werten vergleichbar, der Anstieg in der Lebensdauer der Minoritätselektronen ist in der Arbeit von Zhukov *et al.* jedoch deutlich kleiner. Der Vergleich der experimentellen Daten für Eisen zeigt sowohl für Minoritäts- als auch für Majoritätselektronen kleinere Werte als theoretisch berechnet, während das Verhältnis der Lebensdauer zwischen Experiment und Theorie ähnlich ist. Die Anregung von Magnonen, die zu einer niedrigeren Lebensdauer der Minoritätselektronen führt, ist in der GW-Näherung nicht enthalten, was im Fall von Eisen die höhere Lebensdauer der Minoritätselektronen in Rahmen der GW-Näherung erklären kann.

Von Knorren *et al.* wurde ein semiempirisches Modell zur Beschreibung der Lebensdauer angeregter Elektronen in Edelmetallen und 3d-Ferromagneten verwendet [KBBA00, KBB02]. Es basiert auf der Boltzmann-Gleichung, die in der sogenannten *random-k*-Näherung gelöst wird. Die Boltzmann-Gleichung ist eine Transportgleichung und beschreibt das Verhalten der Elektronen unter dem Einfluß äußerer Kräfte und Stöße zwischen den Elektronen [IL08]. Die *random-k*-Näherung beschreibt die Elektronen dabei als lokalisierte Wellenpakete mit einer isotropen Verteilung der Wellenvektoren. Dieses Modell weist drei wesentliche Merkmale auf: (a) Es impliziert eine semiklassische Beschreibung der Elektronen als lokalisierte Wellenpakete, (b) Kohärenz und Vielteilcheneffekte werden (unter der Annahme einer Anregung durch hinreichend schwache Laserpulse) vernachlässigt und (c) es werden, außer der integrierten Zustandsdichte, keine Details der Bandstruktur

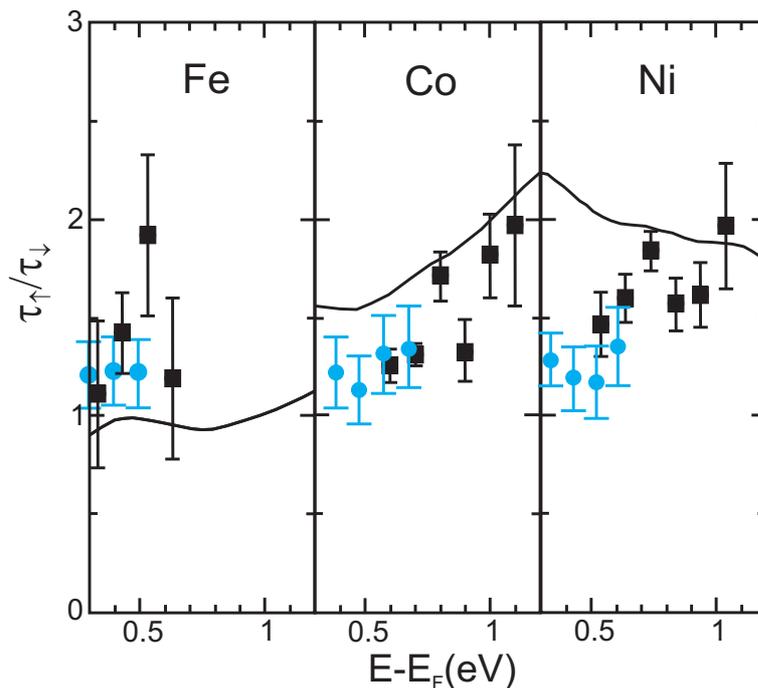


Abbildung 5.13.: Die von Knorren et al. mit angepassten Coulomb-Matrixelementen berechneten Werte für das Verhältnis der Lebensdauern von Majoritäts- zu Minoritätselektronen von Eisen, Kobalt und Nickel (durchgezogene Kurven, aus [KBB02]) im Vergleich zu den in dieser Arbeit und in Ref. [Bur98] gemessenen Werte (blaue Kreise und schwarze Quadrate).

benötigt. Die Spinabhängigkeit der Lebensdauer wird durch die Coulomb Matrixelemente M und m in die Rechnung eingebaut:

$$M^2 = \frac{|M^{\uparrow\uparrow}|^2 + |M^{\uparrow\downarrow}|^2}{2},$$

$$m = \frac{|M^{\uparrow\uparrow}|}{|M^{\uparrow\downarrow}|},$$

wobei $M^{\uparrow\uparrow}$ die Streuung zwischen Elektronen gleicher Spinorientierung und $M^{\uparrow\downarrow}$ die Streuung bei entgegengesetzter Spinorientierung beschreibt. Dabei beeinflusst M die gemittelte Relaxationszeit beider Spinorientierungen und m deren Verhältnis $\tau_{\uparrow}/\tau_{\downarrow}$. Für Kupfer bestimmten die Autoren den Wert $M = 0.8$, um eine Übereinstimmung mit *ab initio* Resultaten zu erreichen [KSE00]. Ausgehend von Kupfer werden die Werte M und m für Eisen, Kobalt und Nickel angepasst, um eine möglichst gute Übereinstimmung mit den in Referenz [Bur98] gemessenen Werten für die Lebensdauern zu erreichen. Die Anpassung von M und m wird von den Autoren mit dem Einfluss der d -Elektronen begründet. Das Ergebnis ihrer Rechnung ist in Abbildung 5.13 aufgetragen, zusammen mit den experimentellen Daten aus dieser Arbeit und Referenz [Bur98]. Die Lokalisierung der d -Elektronen führt zu einem kleinen Überlapp mit den Wellenfunktionen der sp -Elektronen und damit

zu einer kleineren Übergangswahrscheinlichkeit der $sp \rightarrow d$ im Vergleich zu den $sp \rightarrow sp$ Übergängen und dementsprechend kleineren Übergangsmatrixelementen. Da die Lokalisierung der Wellenfunktion der d -Elektronen von Eisen zu Kobalt zunimmt, erwartet man entsprechend kleinere Übergangs-Matrixelemente. Für Eisen stimmt das Lebensdauer Verhältnis $\tau_{\uparrow}/\tau_{\downarrow}$ durch die Anpassung von M und m gut mit den von Aeschlimann und den in dieser Arbeit gemessenen Werten überein. Für Kobalt können die Daten von Aeschlimann relativ gut bestimmt werden, die Extrapolation zu Energien nahe der Fermi-Energie ergibt jedoch ein Verhältnis von etwa 1.6, welches durch meine Daten mit einem Verhältnis von etwas mehr als 1 nicht bestätigt werden kann. Für Nickel nimmt der berechnete Wert von $\tau_{\uparrow}/\tau_{\downarrow}$ jedoch zu kleineren Energien hin zu, was durch die in dieser Arbeit gemessenen Werte nicht bestätigt werden kann. Um aussagekräftigere Resultate zu erhalten wären *ab initio* Werte für die Coulomb-Matrixelemente erforderlich, wie es die Autoren selbst diskutieren.

Grechnev *et al.* berechneten die spinabhängigen Werte des Imaginärteils Σ der Selbstenergie der Elektronen in den $3d$ -Ferromagneten [GDMK⁺07]. Dazu verwendeten die Autoren die Dichtefunktionaltheorie (*density-functional theory, DFT*) in der lokalen Dichtenäherung (*local-density approximation, LDA*), um die Bandstrukturen der Materialien zu bestimmen. Um die Dynamik der stark korrelierten Elektronen in den $3d$ -Ferromagneten zu beschreiben, kombinierten sie die *LDA* mit der dynamischen Molekularfeldtheorie (*dynamical mean-field theory, DMFT*), bekannt unter dem Akronym *LDA+DMFT*, und ermittelten damit den Imaginärteil der Selbstenergie der Elektronen. Die Lebensdauern τ_{σ} angeregter Elektronen sind mit dem Imaginärteil $\text{Im}(\Sigma_{\sigma})$ der Selbstenergie über $1/\tau_{\sigma} = -(1/\hbar)\text{Im}(\Sigma_{\sigma})$ verknüpft³.

Der in Referenz [GDMK⁺07] gezeigte Energiebereich reicht von -10 bis +5 eV (siehe Abbildung 5.14), sodass sich aus den dort dargestellten Graphen keine exakten Werte für den in dieser Arbeit relevanten Energiebereich ablesen lassen. Allgemeine Trends lassen sich aber ermitteln: Das Verhältnis der Lebensdauern zwischen Minoritäts- und Majoritätselektronen für fcc-Nickel liegt bei etwa 2 bis 3 und für fcc-Kobalt bei etwa 2 bis 4 im Energiebereich von 0.2 bis 0.7 eV oberhalb der Fermi-Energie. Damit sind die von Grechnev *et al.* berechneten Werte größer als die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen von 1.2 - 1.3 bzw. 1.1 - 1.3. Die Werte für Eisen wurden für bcc-Eisen berechnet, im Gegensatz zu den in dieser Arbeit gemessenen fcc-Eisenfilmen. Die Rechnungen wurden für die (111)-Oberflächen von fcc-Nickel und fcc-Kobalt durchgeführt und sind daher im Prinzip nicht direkt auf die Ergebnisse aus dieser Arbeit übertragbar. Es ist jedoch zu erwarten, dass der Einfluss der Kristalloberflächen ((100) im Experiment) keine substantielle Rolle spielt: In Kupfer unterscheiden sich die gemessenen Werte der Lebensdauern je nach Oberflächenorientierung nur geringfügig [ONP97]. Dabei zeigen heiße Elektronen in Cu(100) und Cu(111), je nach Energie, einen Unterschied in der Lebensdauer um einen Faktor 1.5, der von den Autoren durch Bandstruktureffekte erklärt wird.

³Der Realteil der Selbstenergie ergibt eine Energiekorrektur der Einteilchen-Bandstruktur des berechneten Materials.

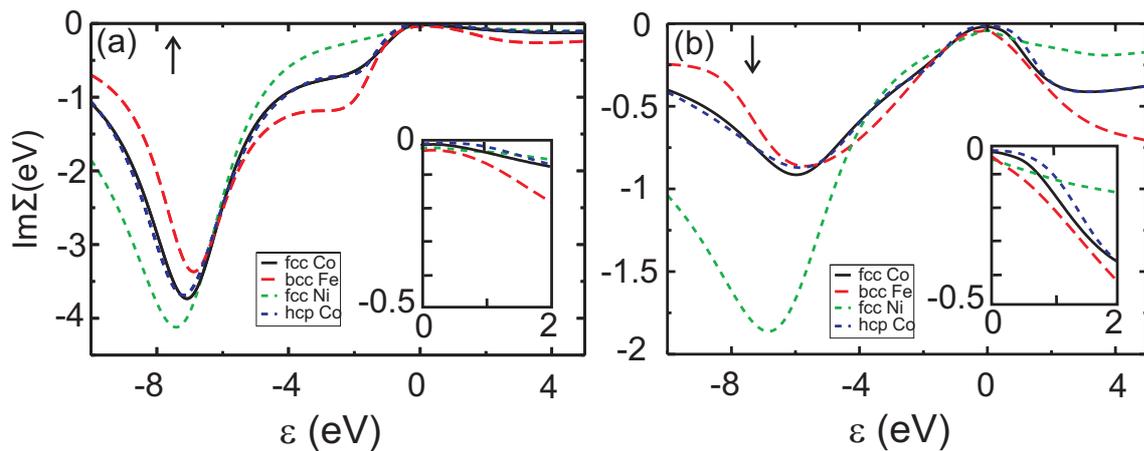


Abbildung 5.14.: Imaginärteil der Selbstenergie der Elektronen mit Majoritätsspin (a) und Minoritätsspin (b) für fcc Co(111), fcc Ni(111), bcc Fe(001) und hcp Co als Funktion der Anregungsenergie $\epsilon = E - E_F$ (aus [GDMK+07]). Trotz des großen Energiebereichs ϵ ist zu erkennen, dass das Verhältnis der Imaginärteile der Selbstenergie für Minoritätsspins und Majoritätsspins in der Nähe der Fermi-Energie größer ist als das Verhältnis der in dieser Arbeit bestimmten Lebensdauern. Man beachte die unterschiedlichen Skalen in den Imaginärteilen der Selbstenergie. Die Insets zeigen Vergrößerungen des Energiebereichs von 0 bis 2 eV.

Für Eisen, Kobalt und Nickel gibt es jedoch weder Messungen, noch Rechnungen für verschiedene Oberflächenorientierungen. Berücksichtigt man den in Kupfer gefundenen Faktor, so ist der Unterschied in den gemessenen Lebensdauern für Minoritäts- und Majoritätselektronen immer noch kleiner als der bei Grechnev *et al.* errechnete Wert.

Der Einfluss von Streuprozessen auf die Lebensdauer heißer Elektronen (siehe Kapitel 2.2.3.), wurde von Hong und Mills für Pseudo-Eisen, -Kobalt und -Nickel theoretisch untersucht⁴ [HM99]. Der Beitrag für Spin-Umklapp-Prozesse ist demnach am größten für Eisen, gefolgt von Kobalt und Nickel. Für Eisen ist dabei der Beitrag von Magnonen bis zu einer Elektronenenergie von 2 eV größer als der von Stoner-Anregungen (siehe Kap. 2.2.3.), nimmt zu höheren Energien hin aber rasch ab, so dass angenommen werden kann, dass in dem hier gemessenen Energiebereich die Anregung von Magnonen dominiert. Aus den Daten von Hong und Mills aus dem Jahre 1999 geht nicht hervor, wie groß der Anteil der spinumkehrenden Prozesse am gesamten Streuprozess ist. In einer späteren Veröffentlichung dieser Autoren wurde dieser für Eisen und Nickel bestimmt [HM00]. Der dort betrachtete Energiebereich ist allerdings deutlich größer als der hier gemessene (siehe Abbildung 5.15), mit der Minimalenergie von 1 eV. Die aus $Im(\Sigma)$ bestimmte Lebensdauer der angeregten Elektronen für Eisen sind dort, wie auch in der vorliegenden Arbeit, über den gesamten Energiebereich kleiner als die für Nickel. Das ausgeprägte Ma-

⁴Pseudo-Eisen, -Kobalt und -Nickel beschreibt ein stark vereinfachtes Modell mit nur einem d -Band (Ein-Band-Hubbard-Modell). Die Anzahl der Löcher im d -Band wird in den numerischen Rechnungen entsprechend der von Eisen, Kobalt und Nickel berücksichtigt [HM99].

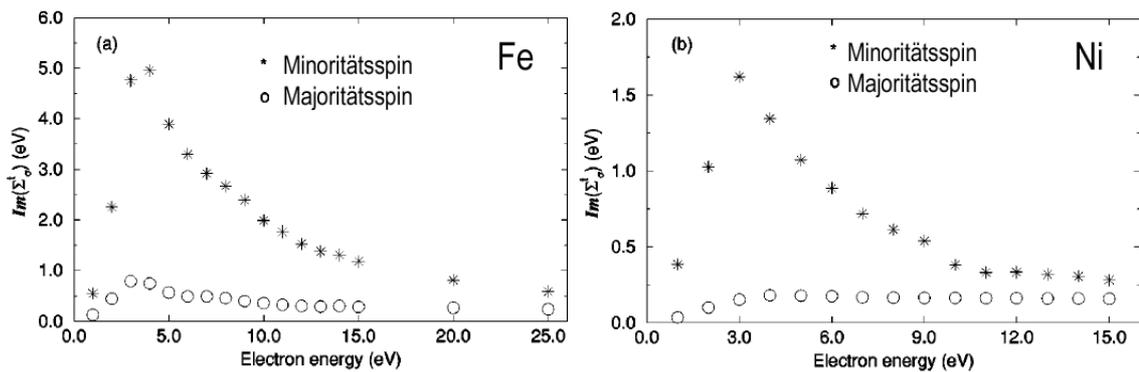


Abbildung 5.15.: Streureate von Majoritäts- und Minoritätszuständen in Abhängigkeit von der Elektronenenergie für (a) Eisen und (b) Nickel (aus [HM00]). Man beachte die unterschiedlichen Skalierungen von x- und y-Achse.

ximum des Imaginärteils der Selbstenergie (entsprechend einem Minimum in der Lebensdauer) für die Minoritätszustände um 3 eV, wird von den Autoren durch eine maximale Wahrscheinlichkeit für Stoneranregungen erklärt. Allerdings ist auch in den Referenzen [HM99] und [HM00] der Unterschied in den Lebensdauern zwischen Majoritäts- und Minoritätselektronen für Eisen und Nickel größer als die in dieser Arbeit bestimmten Werte.

Abschließend sollen die möglichen Ursachen für die Abweichung zwischen den theoretisch berechneten und experimentell beobachteten Werten der Lebensdauer heißer Elektronen diskutiert werden.

- Transportprozesse, die die experimentell ermittelten Werte der Lebensdauer signifikant verkürzen (siehe Kapitel 2.2.1.), können für die hier untersuchten Übergangsmetalle ausgeschlossen werden. Während Transporteffekte bei Edelmetallen 20-30 fs nach dem Maximum des anregenden Pulses die gemessene Lebensdauer der heißen Elektronen verfälschen, ist der Effekt für die Übergangsmetalle deutlich kleiner, da die hier beteiligten *d*-Elektronen einen höheren Lokalisierungsgrad und damit eine deutlich kleinere Geschwindigkeit besitzen [SCCL66, VvEK⁺02, BLJ07].
- Die Erzeugung von Sekundärelektronen kann dazu führen, dass die gemessene Lebensdauer größer ist als die Tatsächliche. Da durch den anregenden Laserpuls Zustände bis zu einer Energie $h \cdot \nu$ über E_F angeregt werden, können Elektronen höherer Energie in Zustände niedrigerer Energie relaxieren und dadurch die gemessene Lebensdauer dieser niederenergetischen Zustände erhöhen. Da die verwendeten Laserintensitäten jedoch gering sind und die in dieser Arbeit gemessenen Werte der Lebensdauer an der unteren Grenze der theoretisch bestimmten liegt, kann dieser Effekt nur eine untergeordnete Rolle spielen (siehe Abbildung 5.16a).
- Prozesse, die den Spin umklappen werden zwar von der Theorie berücksichtigt [ZCE04], nicht jedoch die Korrelation dieser Prozesse untereinander. So kann

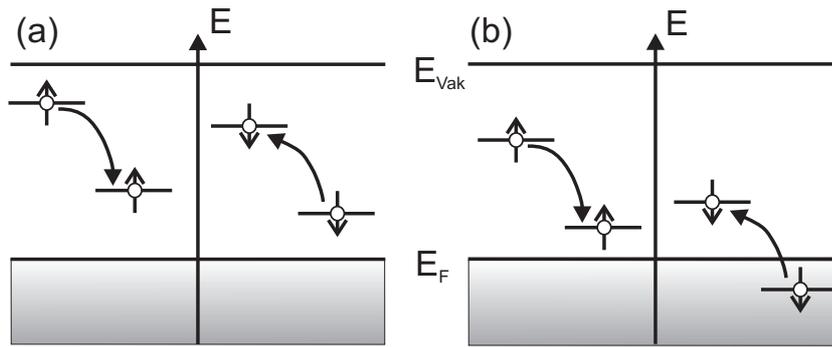


Abbildung 5.16.: (a) Auffüllen von Zuständen mit Elektronen aus energetisch höherliegenden Zuständen bei Anregung von heißen Elektronen des anderen Spinkanals. Dieser Effekt spielt bei den hier verwendeten Laserintensitäten keine signifikante Rolle. (b) Spin-Umklapp-Prozess, bei dem ein relaxierendes Majoritätselektron ein Minoritätselektron aus besetzten Zuständen anregt; dies ist ein generischer Prozess.

bei der Relaxation eines Minoritätselektrons ein Majoritätselektron angeregt werden und umgekehrt. Diese Prozesse können dazu führen, dass das Lebensdauerverhältnis von Minoritäts- und Majoritätsladungsträgern angeglichen wird. In Kapitel 6 dieser Arbeit wird gezeigt, dass solche Prozesse tatsächlich einen großen Einfluß auf die gemessene Lebensdauer der heißen Elektronen in den 3d-Ferromagneten haben (siehe Abbildung 5.16b).

Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass der Unterschied in den Ergebnissen zwischen experimentell und theoretisch ermittelten Lebensdauern durch die in dieser Arbeit erstmals im Energiebereich zwischen 0.2 eV und 0.5 eV über der Fermi-Energie gemessenen Werte noch deutlicher wird. Die Tendenzen in den Lebensdauern heißer Elektronen in 3d-Ferromagneten sind jedoch ähnlich: zu kleineren Energien über dem Fermi-Niveau nimmt die Lebensdauer zu und die Werte für Eisen sind die kürzesten, gefolgt von den Werten für Kobalt und Nickel, wobei die letzteren beiden ähnlich sind. Die größte Abweichung liegt in den im Experiment deutlich kürzeren Lebensdauern der Majoritätselektronen. Damit einhergehend ist das von der Theorie bestimmte Verhältnis der Lebensdauer von Majoritäts- zu Minoritätselektronen deutlich (bis zu einer Größenordnung) größer als das experimentell bestimmte.

Die hier gefundenen Werte können, zusammen mit den Daten von Aeschlimann *et al.*, dabei als Referenz für künftige erweiterte theoretische Ansätze genutzt werden, bei dem der Einfluss von spinumkehrenden Prozessen und die daraus entstehenden Korrelationen zwischen Minoritäts- und Majoritätselektronen berücksichtigt werden. Der im Experiment gefundene, deutlich geringere Unterschied in den Lebensdauern zwischen Minoritäts- und Majoritätselektronen legt einen starken Einfluss solcher Prozesse nahe. Diese könnten die theoretisch gefundenen Werte für beide Spinkanäle angleichen und damit die ähnliche Lebensdauer für beide Spinorientierungen, die im Experiment beobachtet wird, erklären.

5.5. Mittlere freie Weglänge in Eisen, Kobalt und Nickel

Die inelastische mittlere freie Weglänge eines Elektrons⁵ λ , also die mittlere Distanz, die ein Elektron zwischen zwei inelastischen Stößen zurücklegt, ist eine wichtige Größe in der Photoelektronenspektroskopie der Festkörper. Sie steht, wie in der Einleitung zu Kapitel 5 bereits diskutiert, im Zusammenhang mit der Lebensdauer angeregter Elektronen über deren Gruppengeschwindigkeit v . Die Aussagekraft der Analyse von Elektronenspektren hängt unter anderem von der Genauigkeit der Kenntnis von λ ab [Pow88]. Viele Metalle zeigen ein ähnliches Verhalten von λ als Funktion der Elektronen-Energie E über dem Fermi-Niveau: $\lambda(E - E_F)$ besitzt ein Minimum für Energien zwischen 50 und 100 eV, da in diesem Energiebereich die inelastische Streurrate der Elektronen durch Anregung von Rumpfelektronen, Plasmonen und die Erzeugung von Elektron-Loch Paaren am größten ist. Der als *Universal Curve* (UC) bekannte Verlauf zeigt die IMFP von Elektronen in Abhängigkeit von der Energie über dem Fermi-Niveau (Abbildung 5.17). Zur Bestimmung der UC wurde eine Vielzahl von Daten in [SD79] zusammengetragen. Dennoch zeigt diese Kurve eine starke Streuung für verschiedene Metalle und prinzipiell müsste λ für jedes Experiment neu bestimmt werden, da die Bewegung von Elektronen in Kristallen unter anderem von der Ausbreitungsrichtung und der Anzahl von Fehlstellen abhängt. Die UC dient daher nur als Anhaltspunkt für die mittlere freie Weglänge.

Experimentell wird λ meist bestimmt, indem die Intensität eines Substratsignals in Abhängigkeit von der Anzahl der Lagen eines aufgedampften Metalls gemessen wird. Als erste und meist ausreichende Näherung dient die exponentielle Abnahme des Substratsignals in Abhängigkeit von der Filmdicke L . Damit kann λ für das aufgedampfte Metall durch $I = I_0 e^{-L/\lambda}$ bestimmt werden, wobei I_0 das Substratsignal ist.

In ferromagnetischen Materialien hängt die mittlere freie Weglänge der Elektronen außerdem von der Spinorientierung der Elektronen relativ zur Magnetisierung der Probe ab. Dabei ist die mittlere freie Weglänge für Majoritätselektronen größer als für Minoritätselektronen [Hop99]. Im Energiebereich zwischen 5 und 15 eV über der Fermi-Energie beschreibt die UC die totale Streurrate $\sigma(E) = 1/\lambda(E)$ nur sehr ungenau. In diesem Energiebereich ist die Streurrate, und damit die mittlere freie Weglänge in hohem Maße materialabhängig. Die experimentell ermittelte Streurrate für die Übergangsmetalle lässt sich dabei, unabhängig von ihren magnetischen Eigenschaften, gut durch die Anzahl der Löcher in den d -Bändern beschreiben: $\sigma = \sigma_0 + \sigma_d(5 - n)$, wobei σ_0 eine Konstante ist, die die inelastische Streuung durch andere Prozesse als durch Streuung in d -Löcher beschreibt; σ_d gibt die Streurrate für die d -Löcher wieder und $(5 - n)$ entspricht der Anzahl der Löcher in den d -Bändern für jede Spinorientierung (Abbildung 5.18). Die über beide Spinorientierungen gemittelten Werte der mittleren freien Weglänge λ betragen dabei für Eisen 0.6 nm, für Kobalt 0.8 nm für Nickel 1.1 nm und für Kupfer 1.0 nm, bei Energien $E - E_F$

⁵englisch: *inelastic electron mean free path*, IMFP

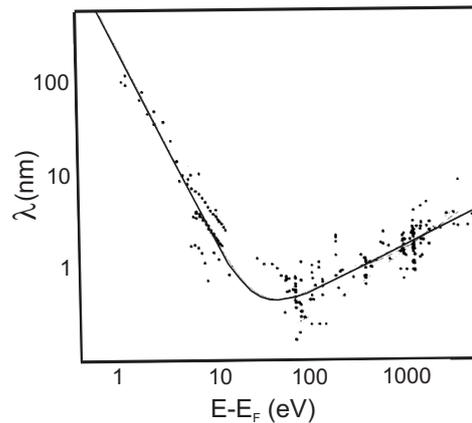


Abbildung 5.17: Die sogenannte Universal Curve zeigt die inelastische mittlere freie Weglänge in Abhängigkeit von $E - E_F$ und weist ein Minimum zwischen 50 und 100 eV auf (aus [SD79]).

zwischen 5 und 15 eV [SS93]. Bei Energien unterhalb von $E - E_F = 1$ eV nimmt die IMFP aufgrund einer geringeren Streuwahrscheinlichkeit nahe der Fermi-Energie zu und erreicht nach Referenz [ZC09] für Majoritätselektronen in Eisen und Nickel bei einer Energie von $E - E_F = 0.5$ eV einen Wert von etwa 260 Å, was einer Filmdicke von etwa 100 ML entspricht⁶. Hong und Mills [HM00] berechneten die inelastische mittlere freie Weglänge in Eisen und Nickel bis hinab zu $E - E_F = 1$ eV und ermittelten bei dieser Energie eine IMFP von 19 bzw. 28 Å für die Majoritätselektronen.

Die 3d-Metallschichten, die für die Bestimmung der Lebensdauern der heißen Elektronen verwendet werden, müssen also ausreichend dick sein, um keine Signatur der angeregten Elektronen des Kupfersubstrats zu messen. Da die Lebensdauer der heißen Elektronen in Kupfer deutlich länger ist als in Eisen, Kobalt und Nickel [CGM⁺97], lässt sich an einem langlebigen Signal in der zeitauflösenden Messung, das mit der Bedeckung der ferromagnetischen Filme abnimmt, der Einfluss des Kupfersubstrats beobachten. So zeigt Abbildung 5.19 exemplarisch spinintegrierte, zeitauflösende Messungen an drei bzw. sieben Monolagen Eisen auf Kupfer(100) bei einer Energie von $E - E_F = 400$ meV. Bei einer Schichtdicke von drei Monolagen ist in (a) deutlich der langlebige Anteil der heißen Elektronen des Kupfersubstrats zu erkennen, welcher bei sieben Monolagen (b) vollständig verschwunden ist.

Die Gitterkonstante von fcc-Eisen beträgt 0.366 nm [WL04], drei Monolagen entsprechen also einer Dicke von 5.5 Å und der Anteil des Kupfersubstrats ist etwa auf 1/e des Gesamtsignals abgefallen. Der in [ZC09] berechnete Wert für die mittlere freie Weglänge ist deutlich größer als die hier verwendete Schichtdicke von Eisen, bei der kein Signal der transmittierten Kupferelektronen mehr erkennbar ist. Die Lebensdauer des Kupfersignals in Abbildung 5.19(a) wurde mittels optischer Blochgleichungen, analog zu den Kapiteln 5.1 bis 5.3 simuliert und zu 170 ± 10 fs bei $E - E_F = 400$ meV bestimmt. Auch bei den zeitauflösenden Messungen an zwanzig Monolagen Kobalt auf Kupfer(100), entsprechend einer Filmdicke von 35 Å, ist keine Signatur der heißen Elektronen des Kupfersubstrats mehr zu erkennen (hier nicht gezeigt). Im Gegensatz zu Eisen und Kobalt zeigen zeitauflösende Messungen an 30 ML Nickel auf Kupfer jedoch noch einen erheblichen langlebigen Beitrag zum ge-

⁶Bei fcc-Lagen in (100) Richtung werden pro Gitterkonstante zwei Monolagen aufgebracht. Der Lagenabstand entspricht also der Hälfte der Gitterkonstanten.

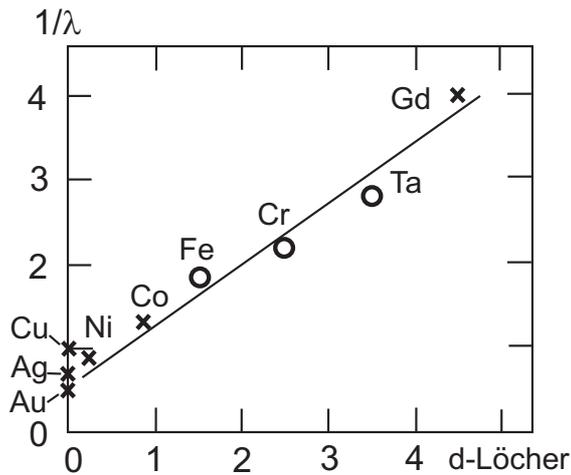


Abbildung 5.18: Der Kehrwert der mittleren freien Weglänge λ der Übergangsmetalle als Funktion der Anzahl an Löchern in den d -Bändern. Die Werte für λ für Eisen, Kobalt, Nickel und Kupfer unterscheiden sich dabei bei einer Energie von 5 eV über E_{vak} um einen Faktor von maximal zwei. Kreise kennzeichnen gemittelte Werte verschiedener Gruppen (aus [SS93]).

messenen Signal (siehe Abbildung 5.20 (c)). Da dessen Intensität mit zunehmender Bedeckung durch den Nickelfilm abnimmt, zeigt sich, dass dieser Beitrag nicht vom Nickel herrührt⁷. Zudem hat Sauerstoffadsorption auf der Nickeloberfläche keinen Einfluss auf die Intensität des langlebigen Anteils, sodass davon ausgegangen werden kann, dass es sich hierbei auch nicht um ein Signal eines Oberflächenzustands auf Nickel handelt, welcher bei dickeren Filmen ebenfalls abnehmen würde, da die Qualität der Oberfläche mit zunehmender Dicke abnimmt. Diese Beobachtungen zeigen, dass dieser Anteil am Messsignal vom Kupfersubstrat stammen muss. Die Lebensdauer dieses Anteils wird mit zunehmender Energie über der Fermi-Energie kleiner und zeigt damit ein Verhalten, wie es von heißen Elektronen erwartet wird. Die in dieser Arbeit bestimmte Lebensdauer des von den Kupferelektronen stammenden Anteils in Abhängigkeit von der Energie oberhalb E_F ist in Abbildung 5.21 für 12 ML Ni/Cu(100) aufgetragen (rote Quadrate). Zum Vergleich sind zusätzlich die in Referenz [CGM⁺97] ermittelten Werte für die Lebensdauer der heißen Elektronen auf cäsiiertem Cu(100) bei einer Anregungsenergie von 1.63 eV abgebildet. Die in dieser Arbeit bestimmte Lebensdauer liegt im überlappenden Energiefenster etwas oberhalb der in Referenz [CGM⁺97] bestimmten Werte. Die Autoren machen jedoch keine Angabe zur Unsicherheit in der Energiebestimmung, die zu einer zusätzlichen Unsicherheit in der Bestimmung der Lebensdauer führt. Zudem sind die Werte in dieser Arbeit und in Referenz [CGM⁺97] aufgrund der verschiedenen Systeme nicht direkt vergleichbar.

Über die Spinabhängigkeit der Lebensdauer der durch den Nickelfilm transmittierten Elektronen kann hier keine Aussage gemacht werden, da die in Abbildung 5.20 gezeigten Messungen aufgrund zu geringer Zählrate spinintegriert durchgeführt wurden. Testmessungen mit Spinauflösung für niedrige Nickel-Bedeckungen zeigten

⁷Der Beitrag des Kupfersubstrats zum Gesamtsignal in Abbildung 5.20 wurde durch Simulation der Intensitäten auf analoge Weise zu den Simulationen in den Abbildungen 5.2, 5.5 und 5.8 bestimmt. Die Maxima der simulierten Intensitäten sind teilweise schmäler als die gemessenen Intensitäten, da bei der Aufsummation eventuelle zeitliche Verschiebungen, im Gegensatz zu den Messungen in den Abbildungen 5.2, 5.5 und 5.8, nicht berücksichtigt wurden. Dies hat auf die Bestimmung des Anteils des Kupfersubstrats jedoch keinen Einfluss.

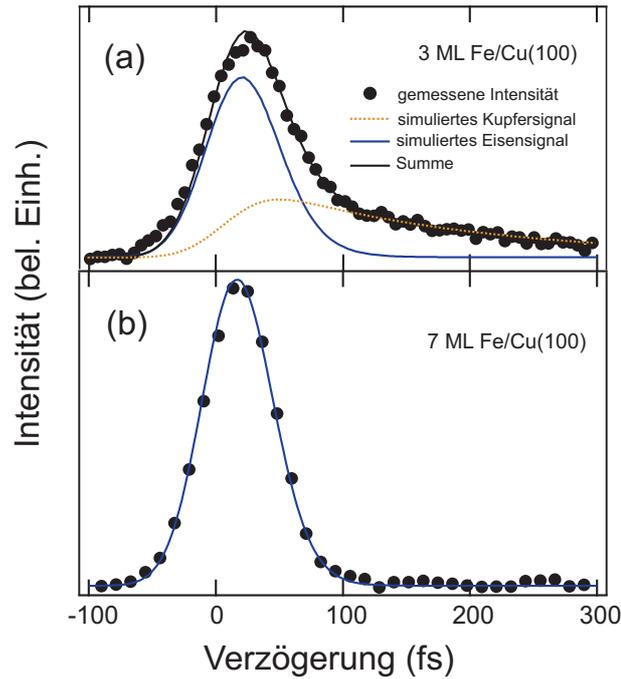


Abbildung 5.19.: Lebensdauermessungen an 3 und 7 ML Fe/Cu(100). Für eine Bedeckung von 3 ML Fe ist deutlich ein langlebiger Anteil der Elektronen aus dem Kupfersubstrat, mit einer Lebensdauer von 170 ± 10 fs, erkennbar (orange, gestrichelte Linie). Bereits bei einer Bedeckung von 7 ML Fe ist der Kupferanteil nicht mehr nachweisbar.

allerdings keine signifikante Spinabhängigkeit der Lebensdauer.

Die Abnahme des Kupfer-Substratsignals in Abhängigkeit von der Nickel-Bedeckung ist in Abbildung 5.22 dargestellt. Der exponentielle Fit liefert ein λ von 56 ML. Nach 56 Monolagen nimmt das Substratsignal um einen Faktor $1/e$ ab. Dies entspricht bei einer Gitterkonstanten von fcc-Nickel von 3.55 \AA einer Filmdicke von 100 \AA . Dieser Wert liegt um etwa eine Größenordnung über dem Wert von Eisen bzw. Kobalt, was nachfolgend diskutiert wird: Die mittlere freie Weglänge ist mit der Lebensdauer, wie am Anfang dieses Kapitels beschrieben, über die Gruppengeschwindigkeit verknüpft: $\lambda_{q\nu\sigma} = \mathbf{v}_{q\nu\sigma} \tau_{q\nu\sigma}$. Mittels *ab initio* GWA-Rechnungen berechneten Zhukov *et al.* die über den Impuls gemittelten Elektronengeschwindigkeiten für Eisen und Nickel [ZCE06]. Im hier interessierenden Energiebereich von 300 meV oberhalb E_F ist die Geschwindigkeit der Minoritätselektronen in beiden Metallen ähnlich, während der Wert für Majoritätselektronen in Nickel um den Faktor 1.5 größer ist. Erst bei höheren Energien steigen die Geschwindigkeiten der Nickel-Minoritätselektronen stark an, während sie für Eisen-Minoritätselektronen nahezu konstant bleiben.

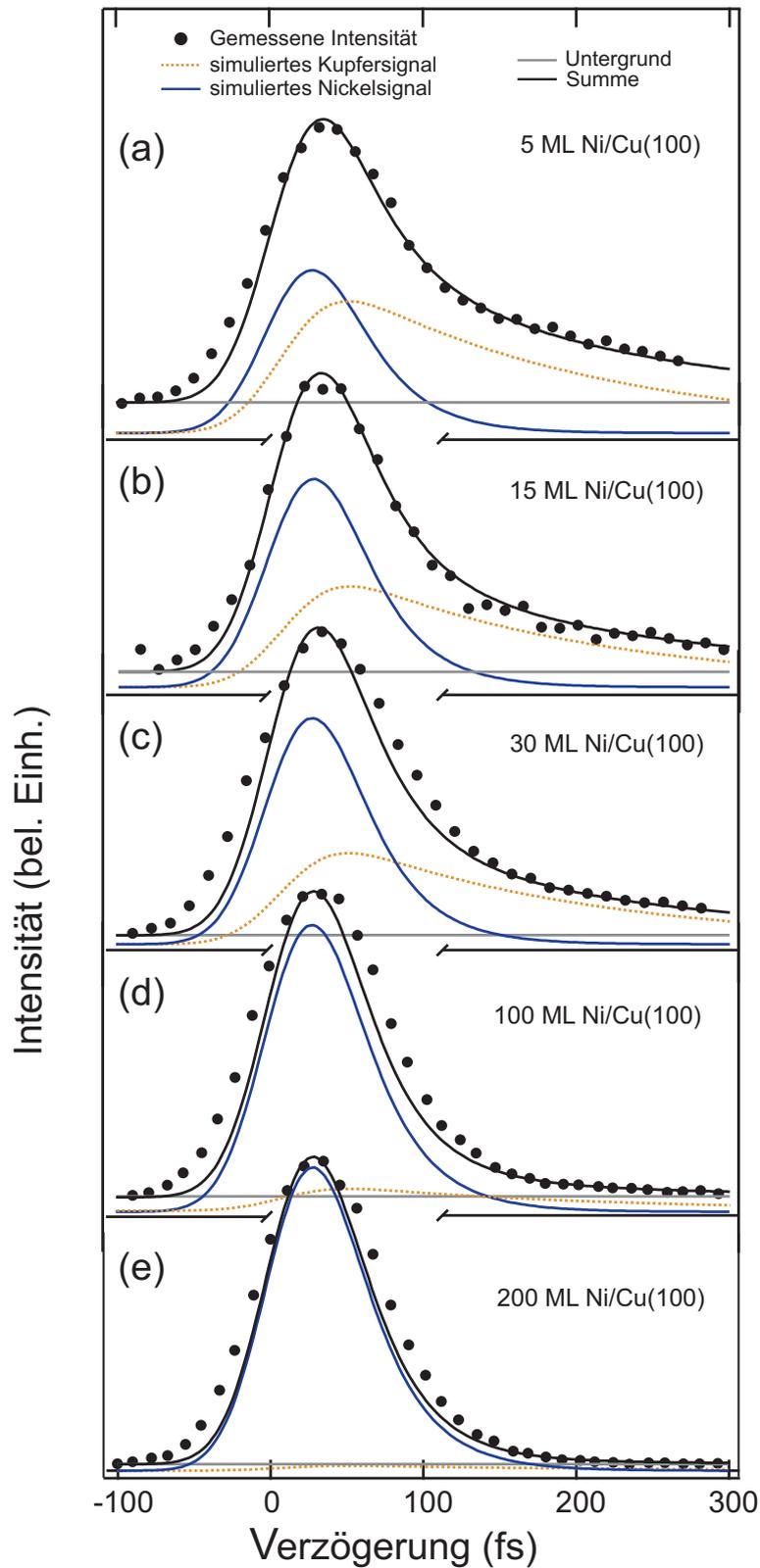


Abbildung 5.20.: Zeitauflösende Messungen an $Ni/Cu(100)$ für unterschiedliche Nickel-Bedeckungen, aufgenommen bei einer Energie $E - E_F = 400$ meV. Je geringer die Nickel-Bedeckung, desto stärker ist ein langlebiger Anteil, mit einer Lebensdauer von 170 ± 10 fs zu erkennen, der in (a-c) bei einer Verzögerung von etwa 100 fs die zeitauflösenden Spektren dominiert (orange, gestrichelte Linie).

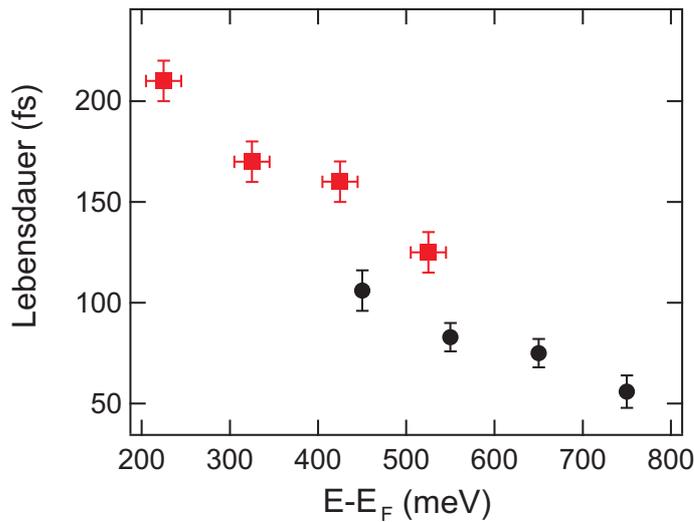


Abbildung 5.21.: Lebensdauer der durch 12 ML Nickel transmittierten Kupferelektronen aus dieser Arbeit (rote Quadrate) und eines cäsiierten Cu(100)-Kristalls aus Referenz [CGM⁺ 97] (schwarze Kreise).

Transportmessungen der mittleren freien Weglänge für Eisen wurden von Banerjee *et al.* für das Spin-Ventil Schichtsystem Ni₈₁Fe₁₉/Au/Fe bei einer Energie von 1.2 bis 1.6 eV durchgeführt. Die Autoren fanden für die Majoritätselektronen eine mittlere freie Weglänge, die um einen Faktor drei kleiner ist als die von Zhukov *et al.* berechneten Werte. Begründet wird diese Beobachtung durch elastische Streuung der Majoritätselektronen, die zu einer kleineren gemessenen mittleren freien Weglänge führt. Die Werte für die Minoritätselektronen sind dagegen um einen Faktor acht größer als die theoretisch bestimmten mittleren freien Weglängen. Nach Meinung der Autoren liegt diese Diskrepanz in der in Referenz [ZCE06] über den Impuls gemittelten Berechnung der mittleren freien Weglänge. In dem betrachteten Energiebereich von 1.2 bis 1.6 eV wird die Zustandsdichte in Eisen von einem leeren *d*-Band dominiert. Da die *d*-Zustände aufgrund ihrer stärkeren Lokalisierung eine kleinere Gruppengeschwindigkeit als *sp*-Zustände aufweisen, wird der theoretisch berechnete Wert für die inelastische mittlere freie Weglänge bei der hier betrachteten Energie mit gemitteltem Impuls zu groß vorhergesagt.

Der Vergleich von Experiment und Theorie zeigt, dass die mittlere freie Weglänge keine einfachen Rückschlüsse auf die Lebensdauer der angeregten Zustände zulässt. Die in Kapitel 5.1 bis 5.3 bestimmten Lebensdauern heißer Elektronen in Eisen, Kobalt und Nickel lassen zunächst vermuten, dass auch die mittleren freien Weglängen ähnlich sind. Allerdings spielen auch elastische Streuprozesse bei der gemessenen mittleren freien Weglänge eine signifikante Rolle, die von der Theorie nicht berücksichtigt wird. Zudem wird die starke *k*-Abhängigkeit der Gruppengeschwindigkeit deutlich, die in Referenz [ZCE06] nicht berücksichtigt wurde.

Betrachtet man die Morphologie der Eisen-, Kobalt- und Nickelfilme auf Cu(100) so wird deutlich, warum die gemessene mittlere freie Weglänge für Eisen und Kobalt deutlich unter der für Nickel liegt (siehe auch Kapitel 2.1). Während Eisen als

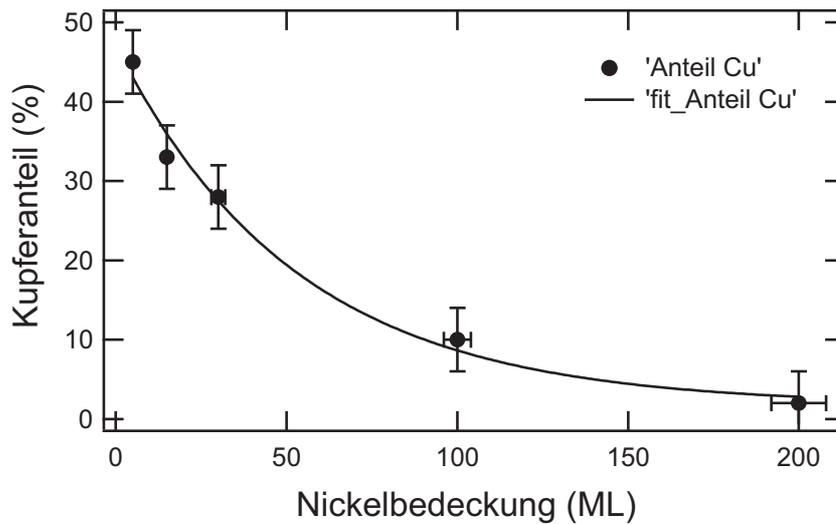


Abbildung 5.22.: Anteil der Elektronen aus dem Kupfersubstrat in Abhängigkeit der Nickelbedeckung nimmt mit zunehmender Energie exponentiell ab. Der exponentielle Fit an die experimentellen Daten liefert eine mittlere freie Weglänge λ von 56 ML, entsprechend 100 Å.

Volumenkristall in bcc-Struktur vorliegt und Kobalt in hcp-Struktur, weist lediglich Nickel mit seiner fcc-Struktur die gleiche Kristallstruktur wie das Kupfersubstrat auf. Die Qualität der Filme auf dem Kupfersubstrat nimmt dabei von Eisen über Kobalt und Nickel zu. Der Einfluss von Defekten und Fehlstellen sollte daher in den Eisenfilmen am größten und in den Nickelfilmen entsprechend geringer sein. Dies bedeutet, dass auch bei Eisen die Streuwahrscheinlichkeit angeregter Kupferatome bei der Transmission durch dünne Eisenfilme deutlich höher ist als bei der Transmission durch Nickelfilme. Die gemessenen Werte der inelastischen mittleren freien Weglänge dünner Schichten auf Cu(100) sind daher von deren Wachstumsverhalten abhängig. Die indirekte Messung der Lebensdauer heißer Elektronen mittels der Transmission durch aufgedampfte Filme ist daher kritisch zu sehen. Insbesondere an der Grenzfläche zwischen Substrat und aufgewachsenem Film sollte die Lebensdauer stark durch Defekte beeinflusst sein. Die hier mittels 2PPE durchgeführte direkte Messung der Lebensdauer ist daher bei ausreichend dicken Filmen gegenüber der indirekten Messung durch Transmission zu bevorzugen.

6. Austauschstreuung in Kobalt

Wie in Kapitel 5 ausführlich gezeigt wurde, stimmen die in dieser Arbeit und die von Aeschlimann *et al.* gemessenen Werte für die Lebensdauern heißer Elektronen in Eisen, Kobalt und Nickel nur teilweise mit den theoretisch vorhergesagten Werten überein. Eine mögliche Ursache für die Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie liegt darin, dass in den *ab initio* GW+T Rechnungen von Zhukov *et al.* zwar Ein-Teilchen-Prozesse, also Elektron-Elektron und Elektron-Loch Wechselwirkungen mit und ohne Spin-Umklapp berücksichtigt werden, Mehr-Teilchen-Prozesse in den Rechnungen jedoch nicht enthalten sind. So kann in einem Auger-Prozess ein in ein Loch relaxierendes Elektron ein Elektron mit identischer oder entgegengesetzter Spinorientierung anregen. Das durch diesen Prozess angeregte Elektron trägt dann zur Elektronenpopulation bei und beeinflusst somit das mittels TR2PPE gemessene Signal. Auch Elektronen, die aus höherenergetischen Zuständen in solche mit niedrigerer Energie streuen, (sogenanntes *Auffüllen* bzw. *Refilling*) können bei ausreichend hoher Laserintensität die Elektronenpopulation beeinflussen. Während das Auffüllen im Experiment durch hinreichend kleine Laserintensitäten, wie auch in dieser Arbeit, unterdrückt werden kann, können Auger-Prozesse zur Population angeregter Zustände beitragen.

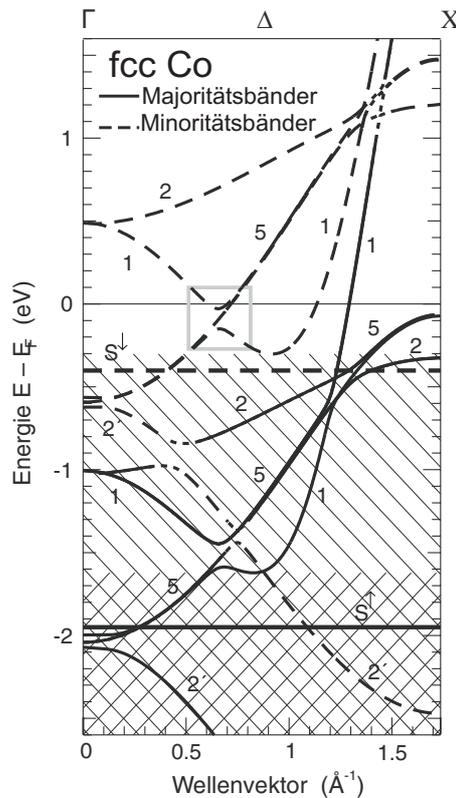
Betrachtet man die Lebensdauerkomponenten für 20 ML Co/Cu(100) in Abbildung 5.5 so zeigt sich neben dem Signal für die heißen Elektronen (blau) und dem nicht-resonant angeregten Bildpotentialzustand (grün) auch eine langlebige Komponente (rot). Diese langlebige Komponente weist drei wesentliche Merkmale auf:

- Die Lebensdauer beträgt unabhängig von der Anregungsenergie 170 ± 10 fs.
- Der Beitrag dieser langlebigen Komponente ist hauptsächlich im Majoritätskanal zu erkennen.
- Der Anteil nimmt mit zunehmender Energie über E_F ab und verschwindet bei einer Energie $E - E_F \geq 480$ meV fast vollständig.

Im folgenden wird gezeigt, dass der langlebige Beitrag im Majoritätskanal von Augerartigen-Elektronen herrührt, die beim Zerfall von Photolöchern von einem Oberflächen-zustand mit Minoritätscharakter durch einen Austauschstreuprozess erzeugt werden.

Die Existenz des Oberflächenzustands auf fcc Co/Cu(100) wurde von Schmidt *et al.* mittels Photoemissions (PE)- und 2PPE Experimenten, sowie Bandstruktur-rechnungen nachgewiesen [SPA⁺08]. Experimentell wurde der Oberflächenzustand

Abbildung 6.1: Bandstrukturrechnung von fcc Co entlang der Symmetriepunkte $\Gamma - \Delta - X$. Die durchgezogenen Linien kennzeichnen die Majoritätsbänder, die gestrichelten Linien die Minoritätsbänder. Die gestrichelte Linie bei konstanter Energie $E - E_F = -0.4$ eV kennzeichnet den Oberflächenzustand mit Minoritätscharakter, in dem durch den anregenden Laserpuls Photolöcher erzeugt werden. Der entsprechende Oberflächen-Majoritätszustand wird durch die durchgezogene Linie bei $E - E_F = -1.94$ eV gekennzeichnet und kann von den in dieser Arbeit verwendeten Laserpulsen mit einer Energie von 1.5 bis 1.63 eV nicht angeregt werden. Die Ziffern an den Bändern geben deren Symmetrie in der nichtrelativistischen Δ -Darstellung an (aus [SPA⁺08]).



bei etwa 450 meV unterhalb der Fermi-Energie gefunden¹. Die von den Autoren gezeigte Bandstrukturrechnung entlang der Δ -Richtung für fcc Co inklusive des Minoritätszustands ist in Abbildung 6.1 dargestellt. Die Majoritätsbänder sind in dieser Abbildung als durchgezogene Linien, die Minoritätsbänder als gestrichelte Linien gekennzeichnet. Hybridisierungspunkte zwischen zwei Bändern entgegengesetzter Spinorientierung sind punktiert dargestellt. Der für die Messungen dieser Arbeit relevante Minoritätszustand ist als gestrichelte waagerechte Linie eingezeichnet und wurde von den Autoren theoretisch zu 400 meV unterhalb der Fermi-Energie vorhergesagt.

Die Ergebnisse der nachfolgenden Messungen zeigen, dass der Oberflächenzustand verantwortlich ist für den langlebigen Anteil in den Lebensdauermessungen auf Kobalt.

Da Oberflächenzustände empfindlich auf die Eigenschaften der Oberfläche reagieren, lässt sich durch Adsorption von Sauerstoff feststellen, ob es sich bei dem gemessenen Signal um einen Oberflächen- oder Volumenbeitrag handelt. Abbildung 6.2(a) zeigt die zeitaufösende Messung der Majoritätselektronen auf 20 ML Co/Cu(100) für eine saubere Oberfläche (grüne Dreiecke) und nach einer Sauerstoffdosis von 1 L (grün umrandete, graue Dreiecke). Es ist dabei deutlich zu erkennen, dass die

¹Der entsprechende Majoritätszustand wird von den Autoren bei einer Energie von $E - E_F = -1.95$ eV angegeben und kann mit den in dieser Arbeit verwendeten Photonenenergien nicht angeregt werden.

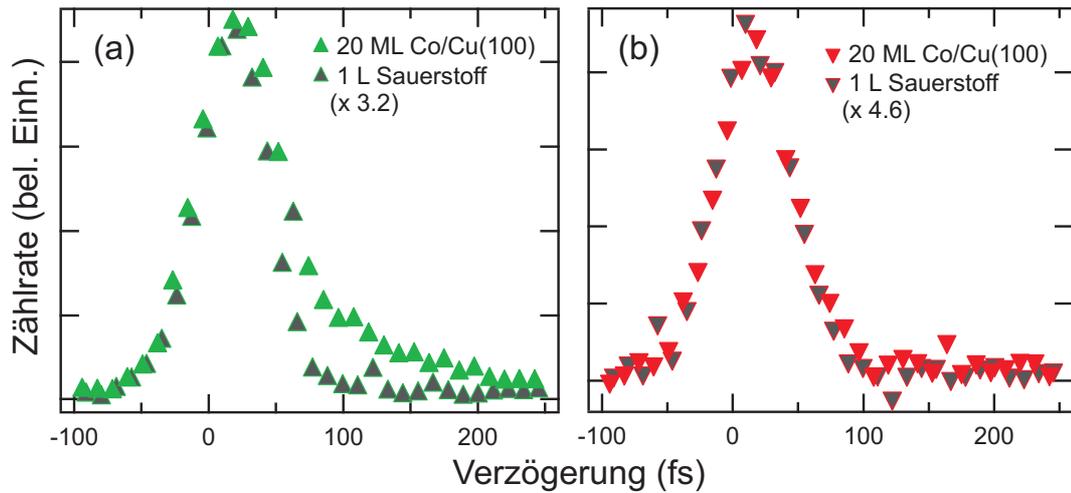


Abbildung 6.2.: (a) Lebensdauer der Majoritätselektronen bei sauberer Oberfläche und bei einer Dosis von 1L Sauerstoff. Deutlich ist der Unterschied in der Intensität des langlebigen Anteils zu erkennen. Befindet sich Sauerstoff auf der Oberfläche, so verändert sich der Oberflächenzustand und trägt nicht mehr zum gemessenen Signal bei. (b) Bei den Minoritätselektronen ist kein signifikanter Unterschied im Spektrum zwischen sauberer und mit Sauerstoff bedeckter Oberfläche sichtbar.

Form der Spektren verschieden ist, da der langlebige Anteil nach Sauerstoffzugabe keinen signifikanten Beitrag mehr liefert (die Messung nach Sauerstoffadsorption wurde mit einem Faktor 3.2 multipliziert, um gleiche Intensitäten im Maximum bei sauberer und mit Sauerstoff bedeckter Oberfläche zu erreichen). Diese Beobachtung stimmt mit den Ergebnissen von Miyamoto *et al.*, die eine Abnahme der Intensität des Oberflächenzustands bei Sauerstoffzugabe festgestellt haben, überein [MIS⁺08]. Die Form des Spektrums der Minoritätselektronen in Abbildung 6.2(b) zeigt dagegen keinen Unterschied zwischen unbedeckter und bedeckter Oberfläche (Zählrate x4.6). Da die heißen Elektronen aus Volumenbändern angeregt werden, würde man bei Sauerstoffadsorption keinen Unterschied in der Intensität des langlebigen Signals zu einer sauberen Oberfläche erwarten, falls dieses Signal von heißen Elektronen stammt. In Abbildung 5.5 ist zudem zu erkennen, dass die Lebensdauer des langlebigen Zustands unabhängig von der Energie gleich 170 ± 10 fs ist. Würde dieser Beitrag von heißen Elektronen stammen, so sollte die Lebensdauer abhängig von der Energie sein und mit abnehmender Energie zunehmen, im Gegensatz zur experimentellen Beobachtung.

Nicht nur die Adsorption von Adatomen, in diesem Fall Sauerstoff, beeinflusst die Eigenschaften der Oberflächenzustände, sondern auch die Güte der Oberfläche. So erwartet man bei einer rauhen Oberfläche, die vorliegt wenn die untersuchten Filme bei einer Temperatur von 160 K aufgedampft werden, ohne dass sie danach bei einer Temperatur von 390 K angelassen werden, einen geringeren Anteil des Signals aus dem Oberflächenzustand am Gesamtsignal als bei einem glatten Film, der bei 390 K angelassen wurde. Dieses Verhalten zeigt Abbildung 6.3. Hier ist das Spektrum bei glatter Oberfläche mit gefüllten Dreiecken dargestellt, die rauhe,

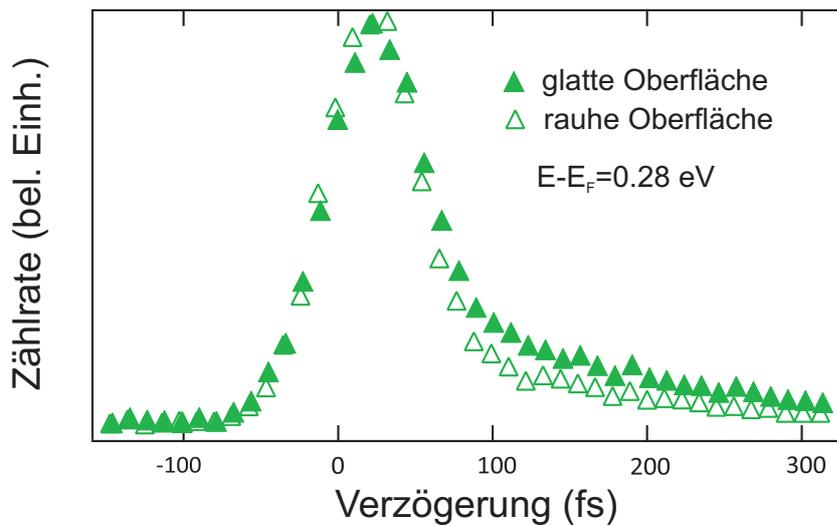


Abbildung 6.3.: Intensität der zeitauflösenden Spektren bei getempertem Film mit glatter Oberfläche (gefüllte Dreiecke) und ungetempertem Film mit rauher Oberfläche (offene Dreiecke). Für einen glatten Film ist der Beitrag des langlebigen Signals etwa doppelt so groß wie für einen rauhen Film.

nicht getemperte Oberfläche mit offenen Dreiecken. Der Anteil des langlebigen Zustands ist bei rauhem Film nur noch etwa halb so groß wie bei glattem Film.

In Abbildung 5.5 ist deutlich zu erkennen, dass der Anteil des langlebigen Beitrages am Gesamtsignal mit zunehmender Energie abnimmt und nur im Majoritätskanal einen signifikanten Beitrag liefert. Der prozentuale Anteil des langlebigen Signals zum Gesamtsignal in Abhängigkeit von der Energie $E - E_F$ ist in Abbildung 6.4 dargestellt. Mit zunehmender Energie nimmt dessen Beitrag am Gesamtsignal bis zu einer Energie von 0.48 eV etwa linear ab. Diese beiden Beobachtungen, die Abnahme des Signals mit zunehmender Energie und dessen lediglich im Majoritätskanal sichtbarer Beitrag, lassen sich wie folgt erklären: Relaxierende Minoritätselektronen füllen die durch den anregenden Laserpuls entstandenen Löcher im Minoritätszustand. Dabei können, unter Berücksichtigung von Energie- und Impulserhaltung, Majoritäts- oder Minoritätselektronen angeregt werden. Nach dem Pauli-Prinzip besitzen Elektronen mit gleichem Spinzustand im Ortsraum eine symmetrische Wellenfunktion. Im Realraum haben Elektronen mit antiparalleler Spinorientierung daher im Mittel einen kleineren Abstand zueinander, woraus eine höhere Streuwahrscheinlichkeit resultiert (siehe Abbildung 6.5, sowie Kapitel 2.2.3 und Referenz [Kir85a]). Rekombiniert nun ein Minoritätselektron an der Fermi-Energie mit einem Photoloch im Minoritäts-Oberflächenzustand, so überträgt es seine Energie auf ein Majoritätselektron, welches in einen Zustand 450 meV oberhalb E_F angeregt wird. Dementsprechend lässt sich bis zu einer Energie von 450 meV ein signifikanter Beitrag langlebiger Majoritätselektronen beobachten, da bis zu dieser Energie eine große Zahl an Majoritäts- und Minoritätselektronen im Grundzustand für den Austauschstreuprozess zur Verfügung steht. Ab einer Energie von 450 meV oberhalb der Fermi-Energie bricht der An-

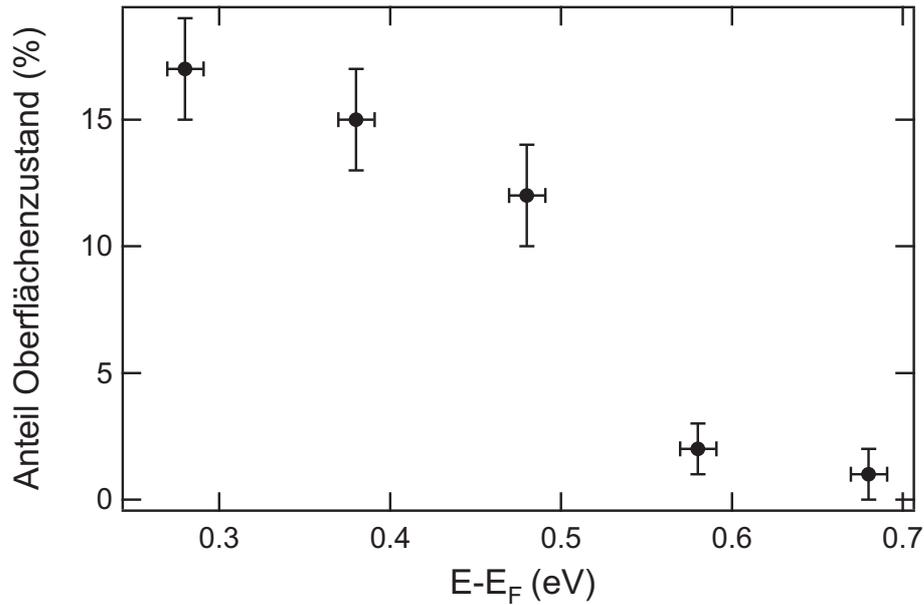


Abbildung 6.4.: Anteil des Beitrags des aus dem Oberflächenzustand gestreuten Majoritätselektronen in Abhängigkeit von der Energie über der Fermi-Energie in Prozent. Der Beitrag nimmt mit steigender Energie bis 0.48 eV linear ab. Oberhalb von 0.48 eV sinkt der Anteil stark, da hier nur noch angeregte Elektronen oberhalb der Fermi-Energie in den Minoritätszustand streuen können.

teil der durch den Austauschstreuprozess erzeugten Majoritätselektronen stark ein (von 12 auf 2%). Damit ein Elektron eine höhere Energie erreicht, muss zumindest einer der Streupartner, aus einer Energie oberhalb der Fermi-Energie stammen. Diese Zustände sind jedoch nur sehr schwach besetzt, da sich hier nur Elektronen befinden, die durch den Laserpuls angeregt wurden². Bei einer Freien-Elektronen-Verteilung würde man erwarten, dass der Anteil des langlebigen Beitrags etwa linear bis zur Fermi-Energie abnimmt. Durch die stark strukturierte Bandstruktur von Kobalt zeigt die Messung jedoch einen Sprung zwischen 0.48 und 0.58 eV.

Der für den im Majoritätskanal sichtbaren langlebigen Anteil verantwortliche Prozess der Austauschstreuung ist schematisch in Abbildung 6.5 dargestellt. Auf der linken Seite in grün befindet sich die Majoritätszustandsdichte (DOS), rechts entsprechend die um die Austauschspaltung energetisch verschobene Minoritätszustandsdichte in rot. Oberhalb der Fermi-Energie, die als Linie über beide Spinorientierungen dargestellt ist, sind die Zustandsdichten grau markiert, um anzudeuten, dass diese Zustände unbesetzt sind. Der Minoritäts-Oberflächenzustand ist als waagerechte Linie nur im Bereich der Minoritätszustandsdichte eingezeichnet, der entsprechende Majoritäts-Oberflächenzustand energetisch tiefer im Bereich der Majoritätszustandsdichte. Der anregende Laserpuls erzeugt nun Photolöcher im Minoritäts-Oberflächenzustand (schwarze Kreise). Ein Photoloch wird von einem höher liegenden Minoritäts-Elektron aufgefüllt und regt dabei ein Majoritätselektron an,

²Da die Messungen bei einer Temperatur von 110 K durchgeführt wurden, befinden sich aufgrund der Fermi-Verteilung bei einer Energie von 20 meV über E_F noch etwa 10% der Elektronen.

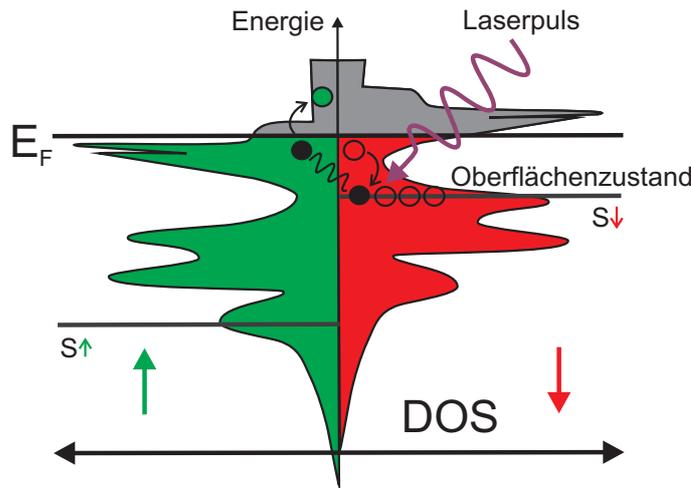


Abbildung 6.5.: Zustandsdichte für beide Spinorientierungen und Oberflächenzustände $S\uparrow$ und $S\downarrow$. Die Majoritäts-DOS ist in grün (links), die Minoritäts-DOS in rot (rechts) dargestellt. Die unbesetzten Zustände oberhalb der Fermi-Energie E_F sind grau markiert. Durch den anregenden Laserpuls werden Photolöcher im Minoritäts-Oberflächenzustand erzeugt, in die Minoritätselektronen relaxieren und dabei hauptsächlich Majoritätselektronen anregen. Bei diesem Prozess handelt es sich um Austauschstreuung vermittelt durch Lochzustände in einem langlebigen Oberflächenzustand.

dessen Energie bis zu 450 meV über der Fermi-Energie reicht. Wie in Kapitel 2.2.3 erläutert, ist die Wahrscheinlichkeit der Streuung für Elektronen entgegengesetzter Spinorientierung größer als für solche mit gleicher Spinorientierung [Kir85a]. Dementsprechend ist der Beitrag des langlebigen Anteils im Signal für die Minoritätselektronen in Abbildung 5.5 deutlich kleiner als der entsprechende Anteil für die Majoritätselektronen.

Die diskutierten Beobachtungen zeigen, dass es sich bei dem langlebigen Signal um die Relaxation von angeregten Elektronen in Photolöcher des Minoritäts-Oberflächenzustands handelt. Dieser Oberflächenzustand und dessen Einfluss auf die Lebensdauer konnte in den in Kapitel 5.1-3 gezeigten Messungen der Arbeitsgruppe von Aeschlimann *et al.* nicht beobachtet werden, da dort Cäsium zur Verringerung der Austrittsarbeit auf die Oberfläche aufgedampft wurde [ABP⁺97]. Dies hat zwar keinen direkten Einfluss auf die Lebensdauer der heißen Elektronen, wie der Vergleich zu den in dieser Arbeit gemessenen Lebensdauern zeigt, der hier nachgewiesene Beitrag von Oberflächenzuständen wurde dabei allerdings stark unterdrückt, wie die Arbeitsgruppe von Aeschlimann in einer späteren Veröffentlichung zeigte [CAH⁺06]. Die Autoren interpretieren den dort beobachteten deutlich kleineren Beitrag bei einer Energie $E - E_F = 0.4$ eV allerdings als Auffüllprozess. In den in dieser Arbeit durchgeführten Messungen ermöglichen die in dem Oberflächenzustand erzeugten Photolöcher dagegen die explizite Beobachtung eines spinumklappenden Streuprozesses. Diese Austauschprozesse sind zwar direkt nur im Oberflächenzustand beobachtet worden, es kann jedoch erwartet werden, dass auch bei den Volumenzuständen ähnliche Austauschprozesse eine große Rolle für die

Lebensdauer heißer Elektronen spielen. Durch analoge Prozesse bei Volumenelektronen kann auch die Abweichung der GW+T Rechnungen zum Experiment zum Teil erklärt werden. Mittels Austauschstreuung tragen Minoritätselektronen zum Zerfall von Majoritätselektronen bei und umgekehrt. Liegt ein signifikanter Unterschied in der Lebensdauer von Minoritäts- und Majoritätselektronen vor, so führt Austauschstreuung dazu, dass sich die Lebensdauer der Elektronen mit entgegengesetztem Spin angleichen. Die Rechnungen von Zhukov *et al.* zeigen für die Minoritätselektronen vergleichbare Werte wie die in dieser Arbeit gemessenen, lediglich die Majoritätslebensdauern werden von der Theorie als zu groß berechnet. Durch Spin-Umklapp-Prozesse erhalten Majoritätselektronen Zugang zum Phasenraum der Minoritätselektronen. Da die Lebensdauer der Minoritätselektronen kleiner und deren Phasenraum damit größer ist, führt dieser Vorgang dazu, dass sich die Lebensdauer der Majoritätselektronen dem der Minoritätselektronen annähert. Offenbar werden weder in den phänomenologischen noch in modernen *ab initio* Modellen alle für die Lebensdauer der heißen Elektronen relevanten Prozesse berücksichtigt.

Es ist zu erwarten, dass die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Daten als experimentelle Referenz zur Verbesserung künftiger theoretischer Modelle beitragen können. Ziel muss sein, eine bessere Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie zu erreichen, um ein tieferes Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Prozesse zu erzielen.

7. Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war es, die bisher vorhandenen experimentellen Daten zur Lebensdauer heißer Elektronen in den metallischen $3d$ -Ferromagneten Eisen, Kobalt und Nickel auf eine breitere Basis zu stellen — im Vergleich zu früheren Messungen wurde bei Energien näher an der Fermi-Energie gemessen — und, wenn möglich, Hinweise auf die Ursachen der Diskrepanzen zwischen den Vorhersagen verschiedener theoretischer Modelle und den im Experiment bestimmten Werten zu identifizieren. Zur Durchführung der dazu notwendigen Messungen wurde die bichromatische Zwei-Photonen-Photoemission (2PPE) verwendet, bei der direkt die zeitliche Entwicklung der Population heißer Elektronen und damit deren Lebensdauer bestimmt werden kann. Bei der bichromatischen 2PPE regt ein Laserpuls Elektronen unterhalb der Fermi-Energie in einen Zwischenzustand oberhalb der Fermi-Energie an (Anregepuls), welche durch einen zweiten Laserpuls (Abfragepuls), im vorliegenden Experiment mit der dreifachen Energie des Anregepulses über die Vakuumenergie angehoben wird. Durch die gewählten Pulsenergien von 1.5 bis 1.63 eV für den Anregepuls und 4.5 bis 4.89 eV für den Abfragepuls konnten die untersuchten Metallfilme ohne die Absenkung der Austrittsarbeit mittels Cäsium in einem Energiebereich von etwa 250 bis 700 meV oberhalb der Fermi-Energie untersucht werden. Nahe der Fermi-Energie treten Unterschiede zwischen Experiment und Theorie besonders deutlich hervor. Die $3d$ -Ferromagnete weisen signifikant unterschiedliche Zustandsdichten für Minoritäts- und Majoritätszustände auf. In der Nähe der Fermi-Energie ist dieser Unterschied sehr groß, wodurch der vorhandene Phasenraum für Streuprozesse und damit die vorgegebenen Streuwahrscheinlichkeiten für beide Spinkanäle sehr verschieden sind. Daher sollten auch die Lebensdauern für beide Spinkanäle in der Nähe der Fermi-Energie sehr unterschiedlich sein. Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen der Lebensdauern zeigen jedoch, dass auch heiße Elektronen nahe der Fermi-Energie für beide Spinorientierungen sehr ähnliche Lebensdauern aufweisen. Zudem steigen die gemessenen Werte der Lebensdauer der Majoritätselektronen zu kleineren Energien hin deutlich langsamer an, als von den theoretischen Modellen vorhergesagt.

Diese Beobachtungen zeigen, dass es Prozesse gibt, die die Lebensdauer der heißen Majoritätselektronen der der Minoritätselektronen angleicht, die offenbar weder in phänomenologischen noch in modernen *ab initio* Rechnungen vollständig berücksichtigt sind. Bei den in dieser Arbeit durchgeführten bichromatischen Messungen der sauberen Kobaltoberfläche konnte anhand eines Oberflächenzustands mit Minoritätscharakter bei einer Energie von 450 meV unterhalb der Fermi-Energie gezeigt werden, dass Spin-Umklapp-Prozesse einen großen Einfluss auf die Lebensdauer heißer Elektronen nahe der Fermi-Energie haben.

Zur näheren Untersuchung von Oberflächenzuständen auf Kobalt wurde deren

Verhalten bei Adsorption von Sauerstoff gemessen. Dabei zeigte sich, dass die magnetischen Eigenschaften von Bildpotentialzuständen — einer speziellen Form von Oberflächenzuständen — ein ungewöhnliches Verhalten zeigen. Untersucht wurde die Austauschaufspaltung des ersten Bildpotentialzustands in Abhängigkeit der Sauerstoffdosis bei 4.68 und 4.77 eV Anregungsenergie. Bei 4.77 eV nimmt die Austauschaufspaltung des ersten Bildpotentialzustands wie erwartet ab — die Kopplung der Bildpotentialzustände mit den Volumenzuständen wird durch die Zugabe von Sauerstoff verringert — um bei einer Sauerstoffdosis ab 0.5 L und einer Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfragepuls von $\Delta t=0$ vollständig zu verschwinden. Bei einer Anregungsenergie von 4.68 eV wird die Austauschaufspaltung zunächst ebenfalls mit steigender Sauerstoffdosis kleiner, steigt ab einer Dosis von 0.6 L jedoch wieder an. Da sich mit zunehmender Dosierung die Austrittsarbeit der Kobaltoberfläche vergrößert, ändern sich die Anfangszustände, aus denen der erste Bildpotentialzustand populierte wird, welche die Position der beobachteten Maxima beeinflussen können. Liegen energetisch schmale Anfangszustände vor, so sind diese bei $\Delta t=0$ im Spektrum sichtbar; ihre Intensitäten nehmen bei höheren zeitlichen Verzögerungen ab und erfahren eine energetische Verschiebung. Dadurch kann die Austauschaufspaltung der Bildpotentialzustände mit Δt variieren. Die Vergrößerung der Austauschaufspaltung ab 0.6 L Sauerstoffdosis bei 4.68 eV lässt sich auf einen solchen Anfangszustandseffekt zurückführen, da bei einer Zeitverzögerung von $\Delta t = 50$ fs die Austauschaufspaltung in etwa den gleichen Wert aufweist wie bei einer Anregungsenergie von 4.77 eV. Dies verdeutlicht, dass das komplexe Zusammenspiel von Anfangszuständen, anregenden Laserpulsen und Bildpotentialzuständen ungewöhnliche Effekte in den gemessenen Eigenschaften der Bildpotentialzustände hervorrufen kann. Weiterhin konnte in dieser Arbeit gezeigt werden, dass die energetische Position der Bildpotentialzustände auf Kobalt bei Sauerstoffadsorption an die Vakuumenergie gekoppelt ist. Dies wurde für Nickel und Platin in früheren Arbeiten gezeigt. Darüber hinaus nimmt die Linienbreite aufgrund von Streuprozessen der Elektronen an den aufgebrachtten Sauerstoffatomen mit zunehmender Sauerstoffdosis linear zu, ein Effekt, der ebenfalls auf Nickel bereits beobachtet wurde.

Für alle drei Metalle wurden die Lebensdauern im Vergleich zu früheren Experimenten erstmals bei niedrigeren Energien relativ zu E_F gemessen. Die zeitauflösenden Messungen, die zur Bestimmung der Lebensdauer der heißen Elektronen durchgeführt wurden, zeigen für Eisen direkt gemessene Werte der Lebensdauer bei einer Energie von 200 meV oberhalb der Fermi-Energie. Für die Majoritätselektronen beträgt die Lebensdauer bei dieser Energie 22 ± 2 fs, für die Minoritätselektronen 18 ± 2 fs, was einem Lebensdauerverhältnis $\tau_{\uparrow}/\tau_{\downarrow}$ von etwa 1.2 entspricht. Dieser Wert liegt deutlich unter dem von *ab initio* Rechnungen bestimmten Wert von etwa 8. Für Kobalt liegen die experimentellen Werte bei der direkt gemessenen Energie von $E - E_F=280$ meV bei 29 ± 2 bzw. 27 ± 2 fs für Majoritäts- bzw. Minoritätselektronen, was einem Lebensdauerverhältnis von etwa 1.1 entspricht (vergleichbare theoretische Vorhersagen wurden für Kobalt nicht veröffentlicht). Die Lebensdauer der heißen Elektronen in Nickel beträgt bei $E - E_F=330$ meV 31 ± 2 bzw. 24 ± 2 fs für Majoritäts- bzw. Minoritätselektronen, entsprechend einem Le-

bensdauerverhältnis von etwa 1.3. Der theoretisch berechnete Wert beträgt hier 5. Eine mögliche Erklärung für die deutlichen Unterschiede zwischen experimentell und theoretisch bestimmten Werten wurde in den zeitauflösenden Messungen auf Kobalt gefunden: Hier existiert neben dem Signal für die heißen Elektronen eine langlebige Komponente mit einer Lebensdauer von 170 fs. Durch Adsorption von Sauerstoff verschwindet die langlebige Komponente im zeitauflösenden Spektrum. Dies zeigt, dass die langlebige Komponente aus dem Oberflächenzustand auf Kobalt stammt. Da der Oberflächenzustand Minoritätscharakter hat, im zeitauflösenden Spektrum jedoch nur im Majoritätskanal ein signifikantes Signal mit entsprechender Lebensdauer gemessen wird, wird deutlich, dass Spin-Umklapp-Prozesse involviert sein müssen, die hier erstmals in dieser Form nachgewiesen werden konnten. Bei diesem Prozess relaxieren Minoritätselektronen in vom Anregepuls erzeugte Photolöcher im Oberflächenzustand und regen dabei Majoritätselektronen an. Die Lebensdauer des im zeitauflösenden Spektrum sichtbaren, langlebigen Anteils wird somit durch die Lebensdauer der Photolöcher bestimmt. Durch diesen Prozess ist der Majoritätsphasenraum in Zerfallsprozesse der Minoritätselektronen involviert und umgekehrt. Dies führt dazu, dass die Lebensdauer von Minoritäts- und Majoritätselektronen angeglichen wird und kann die Unterschiede in den experimentell und theoretisch bestimmten Lebensdauerverhältnissen erklären.

Die Lebensdauer heißer Elektronen ist über deren Gruppengeschwindigkeit mit der mittleren freien Weglänge verknüpft. Die in dieser Arbeit gemessene mittlere freie Weglänge von Nickel liegt deutlich über der von Eisen und Kobalt. Bei Anregungsenergien von einigen hundert meV oberhalb der Fermi-Energie ist die Lebensdauer der heißen Elektronen aus dem Kupfersubstrat deutlich länger als die in Eisen, Kobalt und Nickel. Anhand eines, von der Schichtdicke abhängigen, langlebigen Anteils im zeitauflösenden Spektrum kann bestimmt werden, welche Schichtdicke nötig ist, um keine Signatur der langlebigen heißen Elektronen aus dem Kupfersubstrat mehr zu messen. Der Wert der gemessenen mittleren freien Weglänge in Nickel liegt dabei um eine Größenordnung über dem von Eisen und Kobalt. Die Übereinstimmung mit theoretisch vorhergesagten Werten zur inelastischen mittleren freien Weglänge ist dabei für Nickel am besten; für Eisen liegen die theoretischen Werte deutlich darüber. Da Eisen und Kobalt eine andere Kristallstruktur als das Kupfersubstrat aufweisen (bcc für Eisen, hcp für Kobalt, fcc für Kupfer und Nickel), liegt die Ursache für deren kleine gemessene mittlere freie Weglänge wahrscheinlich an den an der Grenzfläche zwischen Substrat und Film entstehenden Defekten und Fehlstellen. Diese sind ursächlich für elastische Streuprozesse — sie werden von den theoretischen Modellen nicht berücksichtigt — die die gemessene mittlere freie Weglänge deutlich verkürzen können. Somit ist auch die indirekte Bestimmung der Lebensdauer heißer Elektronen mittels Transportmessungen kritisch zu sehen, da der Einfluss von Defekten und Fehlstellen an der Grenzschicht zwischen zwei Schichten nie vollständig vermieden werden kann und so zu Unsicherheiten bei der Bestimmung der Lebensdauer führt.

In dieser Arbeit wurde mit Hilfe der bichromatischen Zwei-Photonen-Photoemission sowohl die experimentelle Basis zur Lebensdauer heißer Elektronen in 3d-Ferromagneten zu kleineren Energien bezüglich der Fermi-Energie erweitert, als

auch eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz zwischen experimentell und theoretisch bestimmten Lebensdauern gefunden. Anhand eines Oberflächenzustands mit Minoritätscharakter auf Kobalt konnte erstmals in einem direkten Experiment gezeigt werden, dass Spin-Umklapp-Prozesse eine bedeutende Rolle in der Ultrakurzzeitdynamik heißer Elektronen in den $3d$ -Ferromagneten spielen, da solche Prozesse in der Lage sind, die Lebensdauer heißer Majoritätselektronen der Minoritätselektronen anzugleichen. Diese Prozesse werden weder in phänomenologischen noch in modernen *ab initio* Rechnungen vollständig berücksichtigt. Es sei darauf hingewiesen, dass diese Prozesse generischer Natur sind und keine Unzulänglichkeit des Experiments darstellen. Damit dienen die in dieser Arbeit gemessenen Werte als Referenz für zukünftige erweiterte Modelle zur Vorhersage von Lebensdauern heißer Elektronen in den $3d$ -Ferromagneten.

A. Aufbau eines Sagnac-Interferometers zur Detektion ultraschneller Magnetisierungsprozesse

Die Untersuchung ultraschneller Magnetisierungsprozesse auf Oberflächen benötigt experimentelle Methoden, die sowohl eine zeitliche Auflösung im sub-Pikosekundenbereich, als auch eine räumliche Auflösung im sub-Mikrometerbereich ermöglichen [BWM⁺06]. Allerdings können nicht alle Methoden zur Untersuchung des Oberflächenmagnetismus zur Untersuchung des sub-Pikosekundenbereichs eingesetzt werden [HO03]. Mittels Röntgen-Photoemissions-Elektronen-Mikroskopie (X-PEEM) kann eine räumliche Auflösung von etwa 50 nm erreicht werden (mit Aberrationskorrektur ist zukünftig eine Auflösung von 5 nm zu erwarten [SFP⁺05]), bei einer zeitlichen Auflösung von momentan 50 bis 70 ps, die durch die Länge der Röntgenpulse vorgegeben ist. Externe Magnetfelder können während der Messung jedoch nur bedingt eingesetzt werden. Der Einsatz weicher Röntgenstrahlung zur Mikroskopie erreicht eine räumliche Auflösung von etwa 20 nm, die zeitliche Auflösung wird wiederum durch die Länge der Röntgenpulse vorgegeben [PVWC⁺05].

Im Bereich der sichtbaren Wellenlängen erlaubt das optische Raster-Nahfeld-Mikroskop (scanning near-field optical microscope, SNOM) räumliche Auflösungen unterhalb der Beugungsbegrenzung, welches mittels des magneto-optischen Kerr-Effekts (MOKE) zur magnetischen Mikroskopie verwendet werden kann (Kerr-SNOM). Hierbei können auch während der Messung problemlos Magnetfelder appliziert werden [FRE⁺98, MBC⁺03, SSW94]. Bei der SNOM-Technik wird eine dünne Spitze, z.B. die Spitze einer Glasfaser, als lateral begrenzte Lichtquelle genutzt, die etwa 50 nm oberhalb der zu untersuchenden Oberfläche platziert wird. Wird das von der Oberfläche reflektierte Licht bezüglich der durch MOKE verursachten Änderung der Polarisation analysiert, so kann der magnetische Kontrast verwendet werden, um z.B. Domänenstrukturen auf Oberflächen sichtbar zu machen [MBC⁺03, PBM⁺98, Spi92]. Auf diese Weise können magnetische Strukturen, deren räumliche Ausdehnung weniger als die halbe Wellenlänge des verwendeten Lichts beträgt, untersucht werden [MBC⁺03].

In der Ultra-Kurzzeit-Physik haben Titan-Saphir-Laser zu einer Zeitauflösung im fs-Bereich geführt. In der oft verwendeten *pump-probe* Anordnung werden zwei Laserpulse verwendet, bei denen ein erster Puls mit hoher Leistung die Eigenschaften der zu untersuchenden Probe verändert, während ein zweiter Puls die-

se Veränderungen bei variabler Zeitverzögerung zum ersten Puls untersucht. Die Kombination der hohen räumlichen Auflösung eines SNOM mit der hohen zeitlichen Auflösung eines Femtosekundenlasers wurde in der Vergangenheit schon erfolgreich angewendet [GEI⁺99]. Soll diese Kombination zur Untersuchung von magnetischen Kontrasten auf Oberflächen mit Hilfe des Kerr-Effektes verwendet werden, so ist es wichtig, alle Effekte zu minimieren, die den Polarisationszustand ändern, mit Ausnahme der Polarisationsänderung durch den Kerr-Effekt selbst. Der magnetische Kontrast wird bei MOKE üblicherweise durch zwei nahezu gekreuzte Polarisatoren nachgewiesen. Diese Methode wird erfolgreich im optischen Fernfeld eingesetzt, im Nahfeld gibt es hierbei jedoch einige Nachteile: Da die Polarisation des Lichtes durch verschiedene Effekte beeinflusst werden kann, z.B. durch Doppelbrechung, Vielfachreflektion und die Geometrie der verwendeten Glasfaserspitze, wird die Signalqualität verschlechtert. Diese Effekte sind jedoch alle reziprok, d.h. dass sie bei Umkehrung der Strahlrichtung den gleichen Effekt auf das Signal haben. Im Gegensatz dazu sind magnetooptische Polarisationsänderungen nicht-reziprok, sie sind nicht symmetrisch in der Zeit, da sie unterschiedliche Effekte bei entgegengesetzten Strahlrichtungen haben.

Sagnac-Interferometer sind ausschließlich auf Phasenverschiebungen sensitiv, die durch Prozesse verursacht werden, die die Zeitumkehrsymmetrie verletzen [KDF94]. Daher heben sich die vorgenannten, nicht durch magnetooptische Effekte verursachten Polarisationsänderungen in einem Sagnac-Interferometer auf und lediglich die magnetooptischen Effekte werden detektiert. Diese Eigenschaft macht eine Kombination von Sagnac-Interferometer und SNOM zu einem idealen Werkzeug, um magnetooptische Phasenverschiebungen auf einer mikroskopischen Skala zu untersuchen [MBC⁺03, KDF94]. Die meisten Sagnac-Interferometer nutzen eine Glasfaser, damit der zur Detektion der Phasenverschiebungen verwendete Laserstrahl ein möglichst sauberes und konstantes Profil aufweist. Bei der Nutzung von ultrakurzen Laserpulsen verursacht die Verwendung von Glasfasern üblicher Länge (mehrere Meter) allerdings eine unerwünschte, erhebliche zeitliche Verbreiterung der Pulse. Dieses Problem kann mit der Verwendung von Sagnac-Interferometern umgangen werden, die einen freilaufenden Laserpuls verwenden [HW99]. In dieser Arbeit wurde der Aufbau aus Referenz [HW99] verändert, indem der Umlauf für den im Uhrzeigersinn und den gegen den Uhrzeigersinn durch ein *zero-area* Sagnac Interferometer mit gekreuzten Laserstrahlen ersetzt wurde. Ein solches Sagnac-Interferometer, allerdings unter Verwendung einer Glasfaser, wird in Referenz [XMB⁺06] beschrieben. Den hier verwendeten Aufbau zeigt schematisch Abbildung A.1. Die Laserpulse werden von einem Ti:Sa Laser erzeugt, dessen Fundamentale zwischen 750 und 830 nm eingestellt werden kann. In dem hier durchgeführten Experiment wurde eine Fundamentale mit einer Wellenlänge von 800 nm und einer Energie von 1.2 nJ als Anregepuls verwendet, während der etwa zehnmals schwächere frequenzverdoppelte Puls mit 400 nm als Abfragepuls verwendet wurde. Der rote Anregepuls hat eine per Autokorrelation gemessene Breite von etwa 100 fs, während der blaue Abfragepuls aufgrund des Durchgangs durch mehrere Strahlteiler mit jeweils 0.5 Zoll Durchmesser eine mittels Kreuzkorrelation bestimmte zeitliche Breite von etwa 500 fs aufweist.

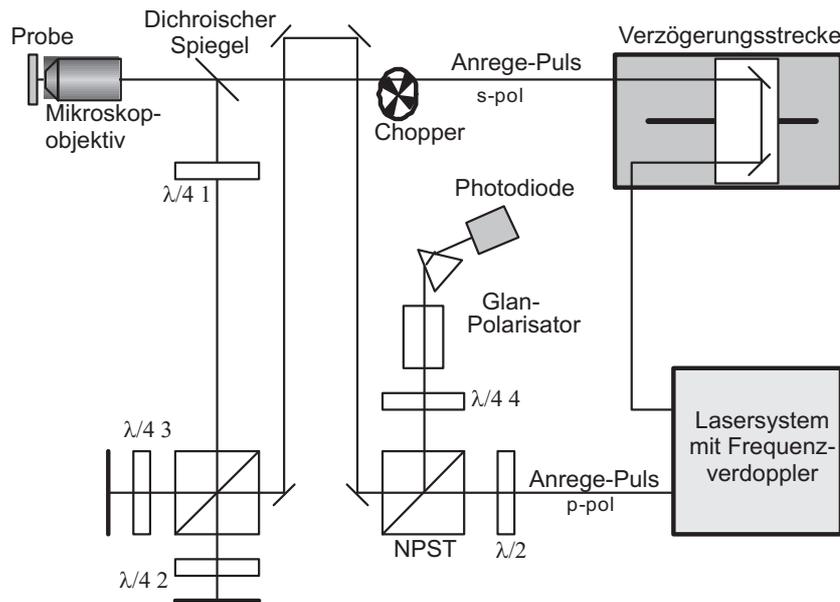


Abbildung A.1.: Schematische Darstellung des Sagnac basierten Kerr Aufbaus. Einzelheiten siehe Text.

Die $\lambda/2$ Platte dreht die Polarisation des blauen Pulses um 45° relativ zur Tischebene, sodass dessen Intensität durch den ersten Strahlteiler in zwei gleiche Anteile aufgeteilt wird. Mehrere $\lambda/4$ Platten ($\lambda/4 1 - 4$) konvertieren das linear polarisierte Licht in zirkular polarisiertes Licht, welches von den Spiegeln an den Enden der Interferometerarme reflektiert wird und dabei einen Phasensprung von $\pi/2$ erfährt. Nachdem beide Pulse wieder zur linearen Polarisation konvertiert wurden (mit der Polarisationsachse senkrecht zur Anfangspolarisation) werden sie durch den Strahlteiler (PST) transmittiert bzw. reflektiert. Diese Schritte sind notwendig, da in einem Sagnac-Interferometer beide Strahlen in entgegengesetzter Richtung propagieren müssen. Die $\lambda/4$ -Platte vor der Probe ($\lambda/4 1$) erzeugt erneut zirkular polarisiertes Licht, welches von der Probe, in diesem Fall ein 35 ML dünner Nickelfilm auf Cu(100), reflektiert wird.

Der Kerr-Effekt erzeugt nun eine nicht-reziproke Phasenverschiebung zwischen rechts- und linkszirkular polarisiertem Licht, die für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen der Oberfläche unterschiedlich ist. Diese Phasenverschiebung äußert sich in einer Änderung des Interferometersignals welches mit einer Photodiode gemessen wird. Ein dichroischer Spiegel vor dem Mikroskopobjektiv vereint den roten (Anrege-) und blauen (Abfragepuls) sowohl räumlich, als auch zeitlich. Beide Pulse werden auf eine Fläche von etwa $10 \mu\text{m}$ fokussiert, wobei der rote Puls von einem *Chopper* moduliert wird und den Nickelfilm demagnetisiert. Durch die Modulation wird die Detektion des Signals per *Lock-In* Verstärker ermöglicht, wodurch das Signalrauschen stark reduziert wird. Auf dem Weg zurück zur Photodiode passieren sowohl der rote, als auch der blaue Puls das Interferometer. Da der rote Puls eine deutlich höhere Intensität aufweist als der blaue Puls, wird er mittels Farbfilter, einem System aus Blenden (zur Verringerung des Anteils an rotem

Streulicht), und einem hochdispersiven Prisma aus dem Signalweg gefiltert. Beide blauen Pulse nehmen exakt die gleichen Wege und interferieren maximal, wenn der Glan-Polarisator in 45° relativ zur Tischebene orientiert ist. Die Intensität des transmittierten Signals hängt ab von der Phasenverschiebung zwischen beiden Pulsen ab. Für eine möglichst große Empfindlichkeit wird vor dem Glan-Polarisator eine $\lambda/4$ Platte angebracht, die eine Phasenverschiebung von 90° zwischen beiden Pulsen erzeugt.

Dünne Nickelfilme mit einer Dicke zwischen 7 und etwa 56 ML zeigen eine Magnetisierung senkrecht zur Filmebene [SB94]. Bei den hier durchgeführten Messungen von Nickel auf Cu(100) wurde eine Filmdicke von 35 ML gewählt, da dies etwa der Eindringtiefe des Lichts entspricht und somit eine hohe polare Kerr-Drehung erreicht wird. Um den Nickelfilm vor Korrosion zu schützen, wurde ein 2 ML dünner Kupfer Abschlussfilm aufgebracht. Der Film wurde mittels eines $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -Magnet magnetisiert, der ein magnetisches Feld von 330 mT senkrecht zur Probenoberfläche erzeugt. Das Magnetfeld erzeugt durch den Faraday-Effekt im Mikroskop-Objektiv eine zusätzliche Phasenverschiebung, die jedoch nur einen konstanten Beitrag zum Signal liefert und in der Größenordnung der durch den Kerr Effekt erzeugten Phasenverschiebung ist. Hysteresemessungen des Nickelfilms mit einem polaren MOKE Aufbau (siehe Inset in Abbildung A.2) zeigen, dass der Film senkrecht zur Filmoberfläche in einem Ein-Domänen-Zustand magnetisiert ist.

Zunächst wurde das MOKE-Signal mit konventionellem Aufbau mit gekreuzten Polarisatoren gemessen. Dazu wurde der Aufbau entsprechend Abbildung A.1 verwendet, das Signal allerdings hinter $\lambda/4$, nach der Reflektion an der Probenoberfläche, ausgekoppelt. Das Ergebnis ist in Abbildung A.2(a) zu sehen, hier ist das normierte Signal mit entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen gegen die zeitliche Verzögerung beider Laserpulse aufgetragen. Die Zeitkonstante der Relaxation ist in Übereinstimmung mit früher gemessenen Werten [BMDB96, KvKKdJ00], während die Zeitkonstante der Demagnetisierung (d.h. die fallende Signalfanke in Abbildung A.2) durch die größere Pulsbreite größer ist als in den vorgenannten Referenzen. Rotes Streulicht führt zu einem Signaloffset, daher ist der Beitrag zum normierten Signal in Abbildung A.2(a) im Vergleich zu Abbildung A.2(b) reduziert.

Nach der Überprüfung des MOKE-Signals durch den Aufbau mit gekreuzten Polarisatoren wurden verschiedene Messungen mit dem Sagnac-Interferometer durchgeführt. Ein Offset im Messsignal wird durch die Änderung der Reflektivität der Probenoberfläche durch den anregenden Laserpuls auf einer der Demagnetisierung ähnlichen Zeit-skala verursacht. Bei einer Stellung des Glan-Polarisators in 0° relativ zur Tischebene ist das Sagnac-Interferometer nicht sensitiv auf magnetooptische Phasenverschiebungen, d.h. die gemessenen Signale sind für beide Magnetisierungsrichtungen identisch (Abbildung A.2(c)). Befindet sich der Glan-Polarisator dagegen in 45° Richtung relativ zur Tischebene, so ist die Empfindlichkeit auf magnetooptische Phasenverschiebungen maximal (Abbildung A.2(d)). Deutlich ist ein magnetisches Signal zusätzlich zur Reflektivitätsänderung zu erkennen. Das normierte Signal dieser Messung ist in Abbildung A.2(b) zu sehen. Die Zeitkonstante stimmt mit der durch die Methode der gekreuzten Polarisatoren gemessenen überein. Die Abnahme der Magnetisierung, die von der Intensität des anregenden

Pulses abhängt, stimmt mit dem in Referenz [BMDB96] angegebenen Wert überein. Die Unterschiede in der Statistik in den Messungen mit Sagnac-Interferometer und gekreuzten Polarisatoren in Abbildung A.2(a) und (b) stammen vom schwächeren Signal des Abfragepulses beim Sagnac Interferometer.

Zusammenfassend wurde mit diesem Aufbau zum ersten mal gezeigt, dass ein modifiziertes *free-beam* Sagnac Interferometer dazu verwendet werden kann, magneto-optischen Kontrast auf einer Zeitskala von sub-Pikosekunden zu messen. Bei dem hier gezeigten Aufbau gibt es noch Raum für Verbesserungen, insbesondere im Hinblick auf die Statistik und die erzielten Pulsbreiten. Andere Typen von Strahlteilern und eine Stabilisierung der Lasermodulation würden zu kürzeren Pulsen und einer Reduzierung des Rauschens führen.

Die hier vorgestellten Resultate öffnen den Weg zu einer Kombination von SNOM und Sagnac Interferometer zur Untersuchung magnetischer Strukturen mit Nanometerauflösung im räumlichen und sub-Pikosekundenauflösung im Zeitbereich.

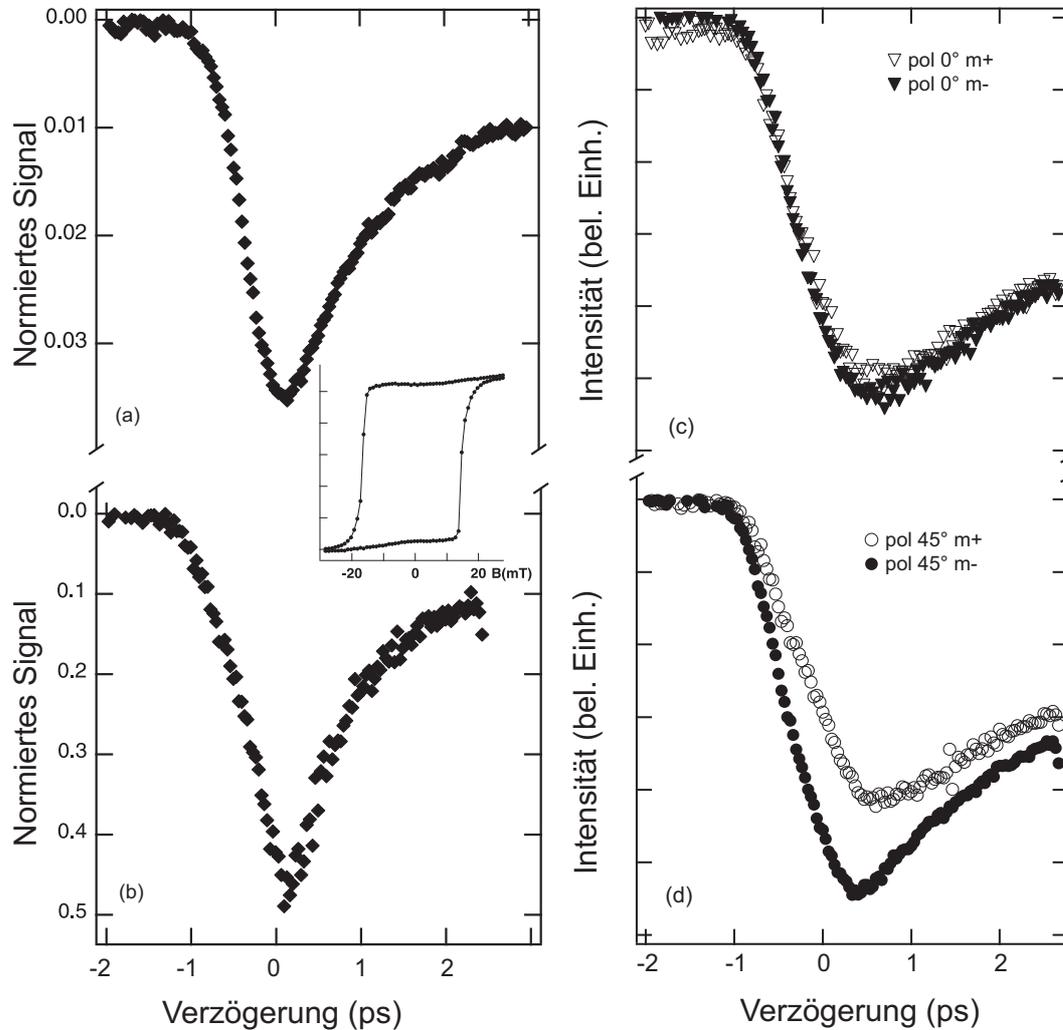


Abbildung A.2.: Das mit gekreuzten Polarisatoren aufgenommene Signal der Demagnetisierung von 35 ML Ni/Cu(100) zeigt Abbildung (a). Das gleiche Signal, jedoch mit dem in Abbildung A.1 gezeigten Sagnac-Aufbau gemessen. Wird der Glan-Polarisator in Abbildung A.1 in 0° zur Tischebene justiert, so zeigt sich kein magnetischer Kontrast, das Signal zwischen paralleler und Antiparalleler Magnetisierung ist identisch (c). In 45° Stellung zur Tischebene ist der magnetische Kontrast zwischen entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen maximal (d). Das Signal in (b) entspricht dabei der normierten Differenz aus (d).

Literaturverzeichnis

- [ABP96] M. Aeschlimann, M. Bauer, and S. Pawlik, *Competing nonradiative channels for hot electron induced surface photochemistry*, Chem. Phys. **205** (1996), 127–141.
- [ABP+97] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, W. Weber, R. Burgermeister, D. Oberli, and H. C. Siegmann, *Ultrafast Spin-Dependent Electron Dynamics in fcc Co*, Phys. Rev. Lett. **79** (1997), 5158–5161.
- [ABP+98] M. Aeschlimann, R. Burgermeister, S. Pawlik, M. Bauer, D. Oberli, and W. Weber, *Spin-dependent electron dynamics investigated by means of time- and spin-resolved photoemission*, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **88-91** (1998), 179–183.
- [ABP+00] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, R. Knorren, G. Bouzerar, and K. H. Bennemann, *Transport and dynamics of optically excited electrons in metals*, Appl. Phys. A **71** (2000), 485–491.
- [BBF+88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, Phys. Rev. Lett. **61** (1988), 2472–2475.
- [BBGW05] T. Bernhard, M. Baron, M. Gruyters, and H. Winter, *Surface Structure of Ultrathin Fe Films on Cu(001) Revisited*, Phys. Rev. Lett. **95** (2005), 087601.
- [BLJ07] T. Banerjee, J. C. Lodder, and R. Jansen, *Origin of the spin-asymmetry of hot-electron transmission in Fe*, Phys. Rev. B **76** (2007), 140407.
- [Blo96] Nicolaas Bloembergen, *Nonlinear optics*, World Scientific, 1996.
- [Blu03] S. Blundell, *Magnetism in condensed matter*, Oxford University Press, 2003.
- [BMDB96] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), 4250–4253.
- [Bog04] Klaus Boger, *Streuung heißer Elektronen an Adatomen auf Metalloberflächen*, Ph.D. thesis, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg, 2004.

- [BPGW05] T. Bernhard, R. Pfandzelter, M. Gruyters, and H. Winter, *Temperature-dependent intermixing of ultrathin Co films grown on Cu(100)*, Surf. Sci. **575** (2005), 154–162.
- [BRWF02] K. Boger, M. Roth, M. Weinelt, and Th. Fauster, *Linewidths in energy-resolved two-photon photoemission spectroscopy*, Phys. Rev. B. **65** (2002), 075104.
- [BSCK92] T. Brabec, Ch. Spielmann, P. F. Curley, and F. Krausz, *Kerr lens mode locking*, Opt. Lett. **17** (1992), 1292.
- [BTSV01] A. Biedermann, R. Tscheließnig, M. Schmid, and P. Varga, *Crystallographic Structure of Ultrathin Fe Films on Cu(100)*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), 086103.
- [Bur98] Rolf Burgermeister, *Spin- and Time-resolved Two-Photon Photoemission*, Ph.D. thesis, Swiss Federal Institute of Technology Zurich, 1998.
- [BWM+06] A. Barman, S. Wang, J. D. Maas, A. R. Hawkins, S. Kwon, A. Liddle, J. Bokor, and H. Schmidt, *Magneto-Optical Observation of Picosecond Dynamics of Single Nanomagnets*, Nano Letters **6** (2006), 2939–2944.
- [CAH+06] M. Cinchetti, M. Sanchez Albaneda, D. Hoffmann, T. Roth, J.-P. Wustenberg, M. Krauss, O. Andreyev, H. C. Schneider, M. Bauer, and M. Aeschlimann, *Spin-Flip Processes and Ultrafast Magnetization Dynamics in Co: Unifying the Microscopic and Macroscopic View of Femtosecond Magnetism*, Phys. Rev. Lett. **97** (2006), 177201.
- [CdAPLC+93] J. R. Cerda, de Andres P. L., A. Cebollada, R. Miranda, E. Navas, P. Schuster, C. M. Schneider, and J. Kirschner, *Epitaxial growth of cobalt films on Cu(100): a crystallographic LEED determination*, J. Phys. C.: Condens. Matter **5** (1993), 2055–2062.
- [CGM+97] J. Cao, Y. Gao, R. J. D. Miller, H. E. Elsayed-Ali, and D. A. Mantell, *Femtosecond photoemission study of ultrafast electron dynamics on Cu(100)*, Phys. Rev. B **56** (1997), 1099–1102.
- [DPSW09] M. Donath, M. Pickel, A. B. Schmidt, and M. Weinelt, *Ferromagnetic Fe on Cu(100) throughout the fcc-like phase: arguing from the viewpoint of the electronic structure*, J. Phys.: Condens. Matter **21** (2009), 134004.
- [DRCC96] S. De Rossi, F. Ciccacci, and S. Crampin, *Unexpected Negative Exchange Splitting of the Fe(001) Image State*, Phys. Rev. Lett **77** (1996), 908–911.

- [Dru00] P. Drude, *Zur Elektronentheorie der Metalle*, Annalen der Physik **3** (1900), 566–614.
- [Ein05] A. Einstein, *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*, Ann. d. Phys. **17** (1905), 132–148.
- [EP78] P. M. Echenique and J. B. Pendry, *The existence and detection of Rydberg states at surfaces*, J. Phys. C: Solid State Phys. **11** (1978), 2065–2075.
- [ESK00] W. Ekardt, W. D. Schöne, and R. Keyling, *The determination of the lifetime of hot electrons in metals by time-resolved two-photon-photoemission: the role of transport effects, virtual states, and transient excitons*, Appl. Phys. A. **71** (2000), 529–535.
- [FAD97] J. Fassbender, R. Allenspach, and U. Düring, *Intermixing and growth kinetics of the first Co monolayers on Cu(001)*, Surf. Sci. **383** (1997), L742–L748.
- [FRE⁺98] P. Fumagalli, A. Rosenberger, G. Eggers, A. Münnemann, N. Held, and G. Güntherodt, *Quantitative determination of the local Kerr rotation by scanning near-field magneto-optic microscopy*, Appl. Phys. Lett. **72** (1998), 2803–2805.
- [FSFS90] N. Fischer, S. Schuppler, Th. Fauster, and W. Steinmann, *Intrinsic linewidths of image-potential states on Ni(111)*, Phys. Rev. B. **42** (1990), 9717–9719.
- [GDMK⁺07] A. Grechnev, I. Di Marco, M. I. Katsnelson, A. I. Lichtenstein, J. Wills, and O. Eriksson, *Theory of bulk and surface quasiparticle spectra for Fe, Co and Ni*, Phys. Rev. B **76** (2007), 035107.
- [GDP96] B. Gubanka, M. Donath, and F. Passek, *Magnetically split spin-derived states in fcc-like Fe/Cu(001)*, Phys. Rev. B. **54** (1996), R11153–R11156.
- [GEI⁺99] T. Guenther, V. Emiliani, F. Intonti, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel, and K. H. Ploog, *Femtosecond near-field spectroscopy of a single GaAs quantum wire*, Appl. Phys. Lett. **75** (1999), 3500–3502.
- [Get07] M. Getzlaff, *Fundamentals of magnetism*, Springer, 2007.
- [Hüf03] S. Hüfner, *Photoelectron spectroscopy*, Springer, 2003.
- [Him83] F. J. Himpsel, *Angle-resolved measurements of the photoemission of electrons in the study of solids*, Advan. Phys. **83** (1983), 1–51.

- [Him91] F. J. Himpsel, *Exchange Splitting of epitaxial fcc Fe/Cu(100) versus bcc Fe/Ag(100)*, Phys. Rev. Lett. **67** (1991), 2363–2366.
- [HKMW94] F. Huang, M. T. Kief, G. J. Mankey, and R. F. Willis, *Magnetism in the few-monolayer limit: A surface magneto-optic Kerr-effect study of the magnetic behavior of ultrathin films of Co, Ni, and Co-Ni alloys on Cu(100) and Cu(111)*, Phys. Rev. B **49** (1994), 3962–3971.
- [HM99] J. Hong and D. L. Mills, *Theory of the spin dependence of the inelastic mean free path of electrons in ferromagnetic metals: A model study*, Phys. Rev. B **59** (1999), 13840–13848.
- [HM00] J. Hong and D. L. Mills, *Spin dependence of the inelastic electron mean free path in Fe and Ni: Explicit calculations and implications*, Phys. Rev. B **62** (2000), 5589–5600.
- [HMH04] L. Hammer, S. Müller, and K. Heinz, *Fe/Cu(100)- a test case for the understanding of epitaxially grown magnetic thin films*, Surf. Sci. **569** (2004), 1–3.
- [HO03] H. Hopster and H. P. Oepen, *Magnetic microscopy of nanostructures*, Springer, 2003.
- [Hop99] H. Hopster, *Spin dependent mean-free path of low-energy electrons in ferromagnetic materials*, Journ. of Elec. Spect. and Rel. Phenom. **99** (1999), 17–23.
- [HW99] D. H. Hurley and O. B. Wright, *Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer*, Opt. Lett. **24** (1999), 1305–1307.
- [IL08] H. Ibach and H. Lüth, *Festkörperphysik*, Springer, 2008.
- [IP93] Y. Idzerda and G. A. Prinz, *Auger intensity mapping of monolayers of Ni/Cu(100)*, Surf. Sci. **284** (1993), L394–L398.
- [Jan03] R. Jansen, *The spin-valve transistor: a review and outlook*, J. Phys. D: Appl. Phys. **36** (2003), R289–R308.
- [KA00] K. Karlsson and F. Aryasetiawan, *Spin-wave excitation spectra of nickel and iron*, Phys. Rev. B **62** (2000), 3006–3009.
- [Kan63] J. Kanamory, *Electron Correlation and Ferromagnetism of Transition Metals*, Prog. Theor. Phys. **30** (1963), 275–289.
- [KBB02] R. Knorren, G. Bouzerar, and K. H. Bennemann, *Theory for the dynamics of excited electrons in noble and transition metals*, J. Phys.: Condens. Matter **14** (2002), R739–R765.

-
- [KBBA00] R. Knorren, K. H. Bennemann, R. Burgermeister, and M. Aeschlimann, *Dynamics of Excited Electrons in Copper and Ferromagnetic Transition Metals: Theory and Experiment*, Phys. Rev. B **61** (2000), 9427–9440.
- [KDF94] A. Kapitulnik, J. S. Dodge, and M. M. Fejer, *High-resolution magneto-optic measurements with a Sagnac interferometer*, J. Appl. Phys. **75** (1994), 6872–6877.
- [KF79] J. Kirschner and R. Feder, *Spin Polarization in Double Diffraction of Low-Energy Electrons from W(001): Experiment and Theory*, Phys. Rev. Lett. **42** (1979), 1008–1011.
- [KHH⁺96] E. Knoesel, A. Hotzel, T. Hertel, M. Wolf, and G. Ertl, *Dynamics of photoexcited electrons in metals studied with time-resolved two-photon photoemission*, Surf. Sci. **368** (1996), 76–81.
- [KHW98] E. Knoesel, A. Hotzel, and M. Wolf, *Ultrafast dynamics of hot electrons and holes in copper: Excitation, energy relaxation, and transport effects*, Phys. Rev. B **57** (1998), 12812–12824.
- [Kir85a] J. Kirschner, *Direct and Exchange Contributions in Inelastic Scattering of Spin-Polarized Electrons from Iron*, Phys. Rev. Lett. **55** (1985), 973–976.
- [Kir85b] J. Kirschner, *Polarized electrons at surfaces*, Springer, 1985.
- [KMDL⁺10] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann, *Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization*, Nature Materials **9** (2010), 259–265.
- [KSE00] R. Keyling, W.-D. Schöne, and W. Ekardt, *Comparison of the lifetime of excited electrons in noble metals*, Phys. Rev. B **61** (2000), 1670–1673.
- [KvKKdJ00] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, *Ultrafast Magneto-Optics in Nickel: Magnetism or Optics?*, Phys. Rev. Lett. **85** (2000), 844–847.
- [Lan57] L. D. Landau, *Theory of a Fermi Liquid*, Sovjet Physics JETP **3** (1957), 920.
- [LDB⁺01] S. Link, H. A. Dürr, G. Bihlmayer, S. Blügel, W. Eberhardt, E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and P. M. Echenique, *Femtosecond electron dynamics of image-potential states on clean and oxygen-covered Pt(111)*, Phys. Rev. B. **63** (2001), 115420.
-

- [LFP⁺94] D. Li, M. Freitag, Z. Pearson, Q. Qiu, and S. Bader, *Magnetic Phases of Ultrathin Fe Grown on Cu(100) as Epitaxial Wedges*, Phys. Rev. Lett. **72** (1994), 3112–3115.
- [Lie80] A. Liebsch, *Ni d-band self-energy beyond the low-density limit*, Phys. Rev. B **23** (1980), 5203–5212.
- [MBC⁺03] G. Meyer, A. Bauer, T. Crecelius, I. Mauch, and G. Kaindl, *Magnetization reversal via the formation of stripe domains in ultrathin Fe films on Cu(100)*, Phys. Rev. B **68** (2003), 212404.
- [MBK⁺95] S. Müller, P. Bayer, A. Kinne, C. Reischl, R. Metzler, and K. Heinz, *Structure and stability of fcc Fe films on Cu(100) for coverages below five monolayers*, Surf. Sci. **331-333** (1995), 723–730.
- [MBR⁺95] S. Müller, P. Bayer, C. Reischl, K. Heinz, B. Feldmann, H. Zillgen, and M. Wuttig, *Structural Instability of Ferromagnetic fcc Fe Films on Cu(100)*, Phys. Rev. Lett. **74** (1995), 765–768.
- [Me05] W. Martienssen and H. Warlimont (eds.), *Springer handbook of condensed matter and materials data*, Springer, 2005.
- [MIS⁺08] K. Miyamoto, K. Iori, K. Sakamoto, H. Narita, A. Kimura, M. Taniguchi, S. Qiao, K. Hasegawa, K. Shimada, H. Namatame, and S. Blügel, *Spin polarized d surface resonance state of fcc Co/Cu(100)*, New J. Phys. **10** (2008), 125032.
- [MLB⁺06] A. Moennich, J. Lange, M. Bauer, M. Aeschlimann, I. A. Nechaev, V. P. Zhukov, P. M. Echenique, and E. V. Chulkov, *Experimental time-resolved photoemission and ab-initio study of lifetimes of excited electrons in Mo and Rh*, Phys. Rev. B **74** (2006), 035102.
- [MWH93] G. J. Mankey, R. F. Willis, and F. J. Himpsel, *Band Structure of the Magnetic fcc Pseudomorphs: Ni(100), Co(100), and Fe(100)*, Phys. Rev. B **48** (1993), 10284–10291.
- [NCI93] M. Nekovee, S. Crampin, and J. E. Inglesfield, *Magnetic Splitting of Image States at Fe(110)*, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), 3099–3102.
- [NGP⁺03] R. Nünthel, T. Gleitsmann, P. Pouloupoulos, A. Scherz, J. Lindner, E. Kosubek, Ch. Litwinski, Z. Li, H. Wende, K. Baberschke, S. Stolbov, and T.S. Rahman, *Epitaxial growth of Ni on Cu(100) with the assistance of O-surfactant and its magnetism compared to Ni/Cu(001)*, Surf. Sci. **531** (2003), 53–67.
- [ONP97] S. Ogawa, H. Nagano, and H. Petek, *Hot-electron dynamics at Cu(100), Cu(110), Cu(111) surfaces: Comparison of experiment with Fermi-liquid theory*, Phys. Rev. B **55** (1997), 10869–10877.

- [Pan09] Ilja Panzer, *Ultrakurzzeitdynamik angeregter Elektronen in 20 ML Co/Cu(100)*, Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, 2009.
- [PBM⁺98] B. L. Petersen, A. Bauer, G. Meyer, T. Crecelius, and G. Kaindl, *Kerr-rotation imaging in scanning near-field optical microscopy using a modified Sagnac interferometer*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998), 538–540.
- [Pic07] Martin Pickel, *Image-potential states as a sensor for magnetism*, Ph.D. thesis, Freie Universität Berlin, 2007.
- [PM98] M. Plihal and D. L. Mills, *Spin-flip exchange scattering of low-energy electrons in ferromagnetic iron*, Phys. Rev. B **58** (1998), 14407–14415.
- [PNO99] H. Petek, H. Nagano, and S. Ogawa, *Hot-electron dynamics in copper revisited: The d-band effect*, Appl. Phys. B. **68** (1999), 369–375.
- [Pow88] C. J. Powell, *The quest for Universal Curves to describe the surface sensitivity of electron spectroscopies*, J. Electr. Spec. Relat. Phenom. **47** (1988), 197–214.
- [PVWC⁺05] A. Puzic, B. Van Waeyenberge, K. W. Chou, P. Fischer, H. Stoll, G. Schütz, T. Tyliczszak, K. Rott, H. Brückl, G. Reiss, I. Neudecker, Th. Haug, M. Buess, and C. H. Back, *Spatially resolved ferromagnetic resonance: Imaging of ferromagnetic eigenmodes*, J. Appl. Phys. **97** (2005), 10E704.
- [QF58] J. J. Quinn and R. A. Ferrell, *Electron Self-Energy Approach to Correlation in a Degenerate Electron Gas*, Phys. Rev. **49** (1958), 812–827.
- [SAEA⁺94] C. A. Schmuttenmaer, M. Aeschlimann, H. E. Elsayed-Ali, R. J. D. Miller, D. A. Mantell, J. Cao, and Y. Gao, *Time-resolved two-photon photoemission from Cu(100): Energy dependence of electron relaxation*, Phys. Rev. B **50** (1994), 8957–8960.
- [SB94] B. Schulz and K. Baberschke, *Crossover from in-plane to perpendicular magnetization in ultrathin Ni/Cu(100) films*, Phys. Rev. B **50** (1994), 13467–13471.
- [SBS⁺90] C. M. Schneider, P. Bressler, P. Schuster, J. Kirschner, J. J. de Miguel, and S. Ferrer, *Epitaxy and magnetic properties of fcc cobalt films on Cu(100)*, Vacuum **41** (1990), 503–505.
- [SCCL66] S. M. Sze, C. R. Crowell, G. P. Carey, and E. E. LaBate, *Hot-Electron Transport in Semiconductor-Metal-Semiconductor Structures*, J. Appl. Phys. **37** (1966), 2690–2695.

- [Sch07] A. B. Schmidt, *Spin-dependent electron dynamics in front of ferromagnetic surfaces*, Ph.D. thesis, Freie Universität Berlin, 2007.
- [SD79] M. P. Seah and W. A. Dench, *Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces*, Surf. Interface Anal. **1** (1979), 2–11.
- [SED92] K. Starke, K. Ertl, and V. Dose, *Exchange Splitting of sp-like surface states on Ni(100)*, Phys. Rev. B **45** (1992), 6154–6162.
- [SFFS92] S. Schuppler, N. Fischer, Th. Fauster, and W. Steinmann, *Lifetime of image-potential states on metal surfaces*, Phys. Rev. B **46** (1992), 13539–13547.
- [SFP⁺05] P. Schmid, J. Feng, H. Padmore, D. Robin, H. Rose, R. Schlueter, W. Wan, E. Forest, and Y. Wu, *Correction and alignment strategies for the beam separator of the photoemission electron microscope 3 (PEEM3)*, Rev. Sci. Inst. **76** (2005), 023302.
- [SGSK95] J. Shen, J. Giergiel, A. K. Schmid, and J. Kirschner, *Surface alloying and pinhole formation in ultra-thin Fe/Cu(100) films*, Surf. Sci. **328** (1995), 32–46.
- [SI89] C. Stuhlmann and H. Ibach, *Surface phonon dispersion in ultrathin nickel films on Cu(100)*, Surf. Sci. **219** (1989), 117–127.
- [SKS91] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, *60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser*, Opt. Lett. **16** (1991), 42–44.
- [SPA⁺08] A. B. Schmidt, M. Pickel, T. Allmers, M. Budke, J. Braun, M. Weinelt, and M. Donath, *Surface electronic structure of fcc Co films: a combined spin-resolved one- and two-photon-photoemission study*, J. Phys. D: Appl. Phys. **41** (2008), 164003.
- [Spi92] S. Spielman, *Optical tests for broken time-reversal symmetry in the cuprate superconductors*, Ph.D. thesis, Edward L. Ginzton Laboratory, 1992.
- [SPW⁺05] A. B. Schmidt, M. Pickel, M. Wiemhöfer, M. Donath, and M. Weinelt, *Spin-Dependent Electron Dynamics in Front of a Ferromagnetic Surface*, Phys. Rev. Lett. **95** (2005), 107402.
- [SS93] G. Schönhense and H. C. Siegmann, *Transmission of electrons through ferromagnetic material and applications to detection of electron spin polarization*, Ann. Physik **2** (1993), 465–474.
- [SS06] J. Stöhr and H. C. Siegmann, *Magnetism, From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*, Springer, 2006.

-
- [SSW94] T. J. Silva, S. Schultz, and D. Weller, *Scanning near-field microscope for the imaging of magnetic domains in optically opaque materials*, Appl. Phys. Lett. **65** (1994), 658–660.
- [Ste89] W. Steinmann, *Spectroscopy of Image-Potential States by Two-Photon Photoemission*, Appl. Phys. A **50** (1989), 13467.
- [Sto36] E. C. Stoner, *Collective Electron Specific Heat and Spin Paramagnetism in Metals*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences **154** (1936), 656–678.
- [TMF⁺92] J. Thomassen, F. May, B. Feldmann, M. Wuttig, and H. Ibach, *Magnetic Live Surface Layers in Fe/Cu(100)*, Phys. Rev. Lett. **69** (1992), 3831.
- [TSWF99] U. Thomann, I. L. Shumay, M. Weinelt, and Th. Fauster, *Spin Splitting of Image-Potential States on fcc Fe/Cu(100)*, Appl. Phys. B: Lasers and Optics **68** (1999), 531–536.
- [VBL08] C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, and G. Lauhoff, *Magnetism in ultrathin film structures*, Rep. Prog. Phys. **71** (2008), 56501.
- [VvEK⁺02] R. Vlutters, O. M. J. van't Erve, S. D. Kim, R. Jansen, and J. C. Lodder, *Interface, Volume, and Thermal Attenuation of Hot-Electron Spins in Ni₈₀Fe₂₀ and Co*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 027202.
- [WA98] M. Wolf and M. Aeschlimann, *Femtosekunden-Dynamik in Metallen - das kurze Leben heißer Elektronen*, Phys. Bl. **54** (1998), 145–148.
- [Wan05] Jinxiong Wang, *Erzeugung und Anwendung von ultrakurzen Laserpulsen*, Ph.D. thesis, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg, 2005.
- [WBA⁺96] W. Weber, A. Bischof, R. Allenspach, C. H. Back, J. Fassbender, U. May, B. Schirmer, R. M. Jungblut, G. Güntherodt, and B. Hillebrands, *Structural relaxation and magnetic anisotropy in Co/Cu(001) films*, Phys. Rev. B **54** (1996), 4075–4079.
- [WFT⁺93] M. Wuttig, B. Feldmann, J. Thomassen, F. May, H. Zillgen, A. Brodde, H. Hannemann, and N. Neddermeyer, *Structural transformation of fcc iron films on Cu(100)*, Surf. Sci. **291** (1993), 14–28.
- [WL04] M. Wuttig and X. Liu, *Ultrathin Metal Films, Magnetic and Structural Properties*, Springer, 2004.
- [XMB⁺06] J. Xia, Y. Maeno, P. T. Beyersdorf, M. M. Fejer, and A. Kapitulnik, *High Resolution Polar Kerr Effect Measurements of Sr₂RuO₄: Evidence for Broken Time-Reversal Symmetry in the Superconducting State*, Phys. Rev. Lett. **97** (2006), 167002.
-

- [ZAE99] E. Zarate, P. Apell, and P. M. Echenique, *Calculation of low-energy-electron lifetimes*, Phys. Rev. B **60** (1999), 2326–2332.
- [ZC09] V. P. Zhukov and E. V. Chulkov, *The femtosecond dynamics of electrons in metals*, Physics Uspekhi **52** (2009), 105–136.
- [ZCE04] V. P. Zhukov, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *Lifetimes of Excited Electrons In Fe And Ni: First-Principles GW and the T-Matrix Theory*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004), 096401.
- [ZCE05] V. P. Zhukov, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *GW+T theory of excited electron lifetimes in metals*, Phys. Rev. B **72** (2005), 155109.
- [ZCE06] V. P. Zhukov, E. V. Chulkov, and P. M. Echenique, *Lifetimes and Inelastic Mean Free Path of Low-Energy Excited Electrons in Fe, Ni, Pt, and Au: Ab Initio GW + T Calculations*, Phys. Rev. B **73** (2006), 125105.
- [Zim92] J. M. Ziman, *Prinzipien der Festkörpertheorie*, Verlag Harri Deutsch, 1992.

Danksagung

An der Entstehung einer solchen Arbeit ist immer eine Vielzahl an Personen beteiligt. Zunächst möchte ich dabei Prof. Dr. Martin Weinelt danken, der mit seinem Enthusiasmus und seinem schier unerschöpflichen Fundus an Ideen immer wieder neue Aspekte und Denkansätze in das Projekt mit einbrachte. Es war immer wieder faszinierend zu erleben, wie er komplexe Sachverhalte auf einfache Art und Weise erklären konnte und nach jedem Gespräch hatte ich das Gefühl wieder einen tieferen Einblick in die Welt der Physik erlangt zu haben. Dr. Martin Pickel und Dr. Anke B. Schmidt danke ich für die Einführung in Vakuumkammer und Laser und die fruchtbaren Diskussionen über Experiment, Theorie und das Leben an sich. Mit seiner Geduld und Präzision hat Dr. Kristian Döbrich maßgeblich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. Ohne dich und die Maisbären wären die langen Meßtage wohl noch um einiges länger geworden. Ilja Panzer und Elli Siebert danke ich für die gemeinsame Zeit im Labor, Dr. Fabian Giesen für seine Unterstützung und für Diskussionen über Vortizes und ultraschnellen Magnetismus. Meinen „nicht spinner“ Leidensgenossen Christian Eickhoff, Roland Schmidt und Jens Kopprasch für unvergessliche Kickerturniere und Diskussionen zu Vakuumkobolden, Snackbären und sonstigem Getier. Reinhard Grosser, Reiner Schumann, Roman Peslin und Wolfgang Krüger haben immer dafür gesorgt, dass Vakuum, Computer, Mechanik und Elektronik ihren Dienst verrichteten. Danke dafür. Auch allen anderen Gruppenmitgliedern danke ich für ihre Unterstützung.

Prof. Dr. Dr. h.c. Günter Kaindl und Priv.-Doz. Andreas Bauer danke ich für die Aufnahme in ihr Projekt und die Arbeitsgruppe, die meinen Weg nach Berlin erst möglich gemacht hatte. Den Mitgliedern der „alten“ Gruppe, Dr. Gereon Meyer, Dr. Daniel Wegner und Tristan Crecelius wie auch Dr. Enrico Schierle für Tips, Diskussionen und Sushi. Auch den Mitarbeitern der Feinmechanik- und Elektronikwerkstätten gebührt mein Dank, die gerade beim Aufbau des neuen Experimentes wertvolle Dienste geleistet haben.

Allen Freunden ausserhalb der Physik danke ich für ihre Geduld und die Erinnerung daran, dass das Leben „draußen“ mindestens genau so spannend ist, wie im Labor. Gülsen Koch und Frank Nießen danke ich für die Übernahme des Korrekturlesens.

Nicht zuletzt danke ich meiner Familie für ihre wertvolle Unterstützung und aufmunternden Worte die geholfen haben so manche Klippe zu umschiffen.