

# 1. Einleitung

Die nichtlineare Optik an Oberflächen hat in den letzten Jahren eine rasante Entwicklung durchgemacht und stellt heute eine wertvolle Erweiterung herkömmlicher Standardverfahren der Oberflächenanalyse dar. Insbesondere die optische Summenfrequenzmischung (SFG: sum frequency generation) und, als Spezialfall davon, die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG: second harmonic generation) haben dabei aufgrund ihrer intrinsischen Ober- und Grenzflächenempfindlichkeit ein breites Anwendungspotential bewiesen (s. z.B. [1, 2]): von der Untersuchung der Struktur und Symmetrie von Metall- und Halbleitergrenzflächen [3, 4], über die Beobachtung von Oberflächenzuständen an Metallen und Halbleitern [5, 6], bis hin zu Untersuchungen an Adsorbaten auf Metall- und Halbleiteroberflächen [7, 8], um nur einige zu nennen.

Daneben hat sich in jüngster Zeit als weiteres Anwendungsfeld die nichtlineare Magnetooptik eröffnet. Kurz nach der theoretischen Vorhersage einer Magnetisierungsabhängigkeit der Erzeugung der zweiten Harmonischen (MSHG: magnetization-induced second harmonic generation) [9, 10] wurde diese Anfang der 90-er Jahre experimentell nachgewiesen [11, 12, 13]. Durch die Entwicklung neuer und stabiler Kurzpulslaser auf Festkörperbasis hat sich dieses Teilgebiet in extrem kurzer Zeit zu einem wertvollen Werkzeug bei der Untersuchung magnetischer Eigenschaften ultradünner Filme [14, 15] und Multilagensysteme [16, 17] entwickelt. Gegenüber der *linearen* besitzt die *nichtlineare* Magnetooptik den Vorteil der Ober- und Grenzflächenempfindlichkeit, gegenüber Techniken mit spinpolarisierten Elektronen den Vorteil, auch in äußeren Feldern anwendbar und auf verdeckte Grenzflächen empfindlich zu sein.

Von augenblicklich großem Interesse sind die magnetischen Eigenschaften dünner ferromagnetischer Filme der 3d-Übergangsmetalle. Neben ihrer technologischen Bedeutung zeigen sie eine Reihe außergewöhnlicher Effekte, wie z. B. den Reorientierungsübergang der Magnetisierungsrichtung bei dünnen Nickelfilmen auf Cu(001) von in der Filmebene liegend, nach senkrecht dazu stehend [18, 19]. Um auszuloten, inwieweit die Methode der optischen Frequenzverdopplung zur Aufklärung der magnetischen Eigenschaften ultradünner ferromagnetischer Metallfilme beitragen kann, wurden in der vorliegenden Arbeit die Systeme Ni/Cu(001) und Co/Cu(001) im Ultrahochvakuum mittels der Erzeugung der zweiten Harmo-

nischen untersucht. Diese Systeme sind mit anderen Methoden gut charakterisiert [20]–[24], so daß ein Vergleich der erhaltenen Ergebnisse möglich ist.

Als Laserquelle wurde dabei ein im Rahmen dieser Arbeit selbst aufgebauter modengekoppelter Ti:Sa-Laserszillator verwendet. Das Ausbilden der ferromagnetischen Ordnung wurde dabei *in situ* während des Wachstums der Filme beobachtet. Es lassen sich Aussagen über die Magnetisierungsrichtungen, leichte und schwere Magnetisierungsachsen und Curietemperaturen treffen.

Darüber hinaus wurden erstmals phasenempfindliche Messungen der zweiten Harmonischen an diesen ultradünnen Filmen im UHV durchgeführt. Dabei zeigte sich, daß es unbedingt erforderlich ist, Phaseninformationen in die Analyse nichtlinear magnetooptischer Experimente miteinzubeziehen, wenn daraus auf die Größe einer Magnetisierung geschlossen werden soll. Außerdem konnte mit den Phaseninformationen erstmals direkt das Größenverhältnis einer magnetisierungsabhängigen und einer magnetisierungsunabhängigen Tensorkomponente der nichtlinearen Suszeptibilität zweiter Ordnung bestimmt und mit theoretischen Erwartungswerten verglichen werden.

Über die rein statischen Untersuchungen hinaus bietet die optische Frequenzverdopplung die Möglichkeit unter Verwendung intensiver kurzer Laserpulse in einem zeitauflösenden Pump-Probe-Experiment (Anrege-Abfrage-Experiment) Messungen der Kurzzeitdynamik durchzuführen. Bis heute sind alle Untersuchungen mittels der optischen Frequenzverdopplung an ultradünnen ferromagnetischen Filmen und auch an Multilagensystemen auf die statischen Eigenschaften beschränkt geblieben. Es ist allerdings von großem fundamentalen und auch technologischen Interesse, etwas über die Elektronen- und Spindynamik in ultradünnen Filmen zu erfahren. Zu Beginn dieser Arbeit gab es zwei Arbeiten, in denen die ultraschnelle Spindynamik in Ferromagneten untersucht wurde. In dem einen Experiment wurde ein polykristalliner 20 nm dicker Nickelfilm mittels zeitaufgelöstem linearem magnetooptischen Kerreffektes untersucht [25], in dem anderen Experiment eine polykristalline Nickelbulkoberfläche an Luft mittels zeitaufgelöster Erzeugung der zweiten Harmonischen [26]. Dabei traten Widersprüche bezüglich eines Unterschiedes von Elektronen- und Spindynamik auf. Um zur Klärung dieser Widersprüche beizutragen, schien die Messung der Magnetisierungsdynamik an einer definierten Oberfläche unter definierten Bedingungen angebracht. Dazu, und um etwas über die Dynamik in den dünnen Filme zu lernen, wurden zeitaufgelöste nichtlinear magnetooptische Messungen im UHV durchgeführt. Durch die Dickenabhängigkeit der Curietemperatur gibt es dabei einen weiteren variablen Parameter. Es wurden systematische Messungen der Magnetisierungsdynamik in Abhängigkeit von der Pumpfluenz und der Substrattemperatur durchgeführt, und auf Konsistenz mit der statischen Gleichgewichtsmagnetisierungskurve untersucht. Ferner konnten Aussagen über die Kurzzeitdynamik des Gitters der Filme abgeleitet werden.

---

Neben der Kombination der Erzeugung der zweiten Harmonischen mit der hohen Zeitauflösung, wurde in der vorliegenden Arbeit auch die Kombination von nicht-linearer Optik mit hoher Ortsauflösung realisiert. Dazu wurde ein kommerzielles Auflichtmikroskop um die Möglichkeit der nichtlinearen Mikroskopie erweitert. Dieses bietet mithin die Möglichkeit, den nichtlinearen optischen Responz einer Oberfläche mit  $\mu\text{m}$ -Auflösung abzubilden. Gegenüber der linearen bietet die nicht-lineare Mikroskopie unter anderem die bereits genannten Vorteile der Ober- und Grenzflächenempfindlichkeit, einer höheren Symmetriempfindlichkeit, der im allgemeinen größeren magnetischen Effekte und einer theoretisch größeren Auflösung. Anhand einiger exemplarischer Beispiele wird demonstriert, daß die nichtlineare Mikroskopie ein erhebliches Anwendungspotential in sich birgt, was sicherlich in dem einen oder anderen Fall zukünftig von technologischer Bedeutung sein dürfte.

Die Arbeit ist im weiteren wie folgt gegliedert : Als erstes wird in Kapitel 2 eine Einleitung in die Grundlagen der Erzeugung der zweiten Harmonischen in Reflexion gegeben. Daran schließt sich in Kapitel 3 die Vorstellung des selbstaufgebauten Ti:Sa-Laseroszillators und des verwendeten kommerziellen Verstärkerlasersystems an. In Kapitel 4 wird der Aufbau des SHG-Mikroskopes, sowie die Messungen damit beschrieben. Im Anschluß an die Präsentation der zeitintegralen Messungen an den ultradünnen Metallfilmen im UHV in Kapitel 5 werden in Kapitel 6 die Untersuchungen zur Elektronen- und Magnetisierungsdynamik der Filme vorgestellt. Am Ende der Arbeit wird in Kapitel 7 eine Zusammenfassung und ein Ausblick gegeben.

