

6. Dynamische Eigenschaften dünner ferromagnetischer Filme

Nachdem im vorherigen Kapitel (Kap. 5) einige statische magnetische Eigenschaften dünner Nickel- und Kobaltfilme auf Cu(001) untersucht worden sind, sollen in diesem Kapitel die dynamischen Eigenschaften der Magnetisierung dieser Filme auf einer ultrakurzen Zeitskala untersucht werden. Dazu wurden in der UHV-Kammer zeitauflösende Pump-Probe-Experimente (Anrege-Abfrage-Experimente) an den dünnen Filmen mittels der Erzeugung der zweiten Harmonischen durchgeführt. Eine wichtige Fragestellung hierbei war, wie schnell die Magnetisierung auf eine optische Anregung reagiert. Zu Beginn dieser Arbeit gab es dazu zwei Veröffentlichungen. Eine mittels zeitaufgelöster linearer Kerreffektmessungen an 22 nm dicken polykristallinen Nickelfilmen von Beaufreire *et. al* [25] und eine mittels zeitaufgelöster Frequenzverdopplung an Nickelbulk von Hohlfeld *et. al* [26]. Während in [25] ein um ca. 2 ps verzögerter Einbruch der Magnetisierung bezüglich der optischen Anregung festgestellt wird, ergibt sich in [26] keine Verzögerung zwischen der Anregung und dem Einbruch der Magnetisierung. Ein Ziel dieser Arbeit war es, zur Klärung dieser Widersprüche beizutragen und außerdem erstmals die Magnetisierungsdynamik an nur wenige monolagendicken ferromagnetischen Filmen zu studieren. Diese bieten durch die Filmdickenabhängigkeit der Curietemperaturen einen zusätzlichen variablen Parameter. Außerdem stellen sie im Gegensatz zu Experimenten an polykristallinen Proben in Luft eine definierte Oberfläche zur Verfügung, was aufgrund der extremen Oberflächenempfindlichkeit der Erzeugung der zweiten Harmonischen besonders wichtig ist.

Nach einer kurzen Darstellung des experimentellen Aufbaus, werden die zeitaufgelösten Messungen vorgestellt. Zuerst an Ni/Cu(001), dann an Co/Cu(001). Es wird sich zeigen, daß es möglich ist, die Magnetisierung ultradünner metallischer Filme auf einer wenige Pikosekunden umfassenden Zeitskala zu manipulieren und daß der Einbruch der Magnetisierung, in Übereinstimmung mit [26], keine Zeitverzögerung im Rahmen der experimentellen Zeitauflösung von ca. 150 fs zur Anregung durch die Laserpulse zeigt. Im Falle von 8 ML Ni auf Cu(001) kann als Folge

der stark reduzierten Curietemperatur sogar eine vollkommene Unterdrückung der Magnetisierung über mehrere Pikosekunden erreicht werden, d. h. es wird ein ultraschneller Phasenübergang getrieben, von ferro- nach paramagnetisch und wieder zurück.

Zwischenzeitlich gibt es eine neuere Veröffentlichung von Beaufreire *et. al* [104], welche die in [25] gemachte Beobachtung einer Zeitverzögerung des Magnetisierungseinbruches revidiert. Ferner wurde in [105] ein stark verzögerter Einbruch der Magnetisierung an dünnen Nickelfilmen auf Silber beschrieben, welcher mit einem Spin-polarisierten zeitaufgelösten Zwei-Photonen-Photoemissionsexperiment gemessen wurde. Daher wurden auch Messungen mit sehr langen Verzögerungszeiten durchgeführt, die aber keinen verspäteten Einbruch der Magnetisierung zeigen.

Weiterhin läßt sich bei den Nickelfilmen eine Gitterexpansion erkennen, aus der sich deren Schallgeschwindigkeit ableiten läßt. Bei geringen Bedeckungen führt diese Ausdehnung zu einer vibratorischen Anregung der Filme, welches sich als Oszillation im Signal der zweiten Harmonischen widerspiegelt.

6.1 Experimenteller Aufbau

Zur Durchführung der zeitaufgelösten Messungen wurde das in Kapitel 3.3 vorgestellte kommerzielle Verstärkersystem benutzt. Zwar liefert der selbstgebaute Ti:Sa-Laseroszillator etwa fünfmal kürzere Pulse (vergl. Kap. 3.2), aber die Pulsenergie von nur ca. 3 nJ reicht nicht aus, um die Elektronentemperatur und damit die Magnetisierung merklich zu beeinflussen. Das Verstärkersystem stellt Laserpulse mit einer Dauer von ungefähr 150 fs bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Pulsenergie von ca. 3.75 μ J zu Verfügung. Durch die Repititionsrate von 40 kHz ist eine akkumulative Erwärmung der Probe ausgeschlossen.

Da sich das Verstärkersystem räumlich im Nachbarlabor befindet, beträgt der Lichtweg vom Ausgang des regenerativen Verstärkers bis zum Einkoppelfenster der UHV-Kammer in etwa 10 m. Die Pulsverlängerung aufgrund der Dispersion in Luft beträgt dabei für einen 150 fs langen Puls lediglich 0.05 fs (vergl. Kap. C: Gl. C.2 und Tab. C.2) und ist daher zu vernachlässigen¹. Die Strahlaufweitung ist allerdings nicht unerheblich, so daß nach ca. 6 m Lichtweg zur Strahlformung ein 1:5-Teleskop aus einer plankonvexen ($f = 50$ cm) und einer plankonkaven ($f = -10$ cm) Quarzlinse eingeführt wurde.

In der Abbildung 6.1 ist die experimentelle Realisierung des eigentlichen Pump-Probe-Aufbaus schematisch wiedergegeben. Durch einen Strahlteiler (R:20 %, T:80 %, Laser Components) werden die Laserpulse im energetischen Verhältnis 1 : 4 in den Probe- bzw. Pumpimpuls aufgeteilt. Mittels eines computergesteuerten Linearverstellers (M-510.12, PI) wird zwischen den beiden Pulsen eine variable Weglänge

¹Ein 20 fs langer Laserpuls würde dadurch bereits um 16 fs verlängert.

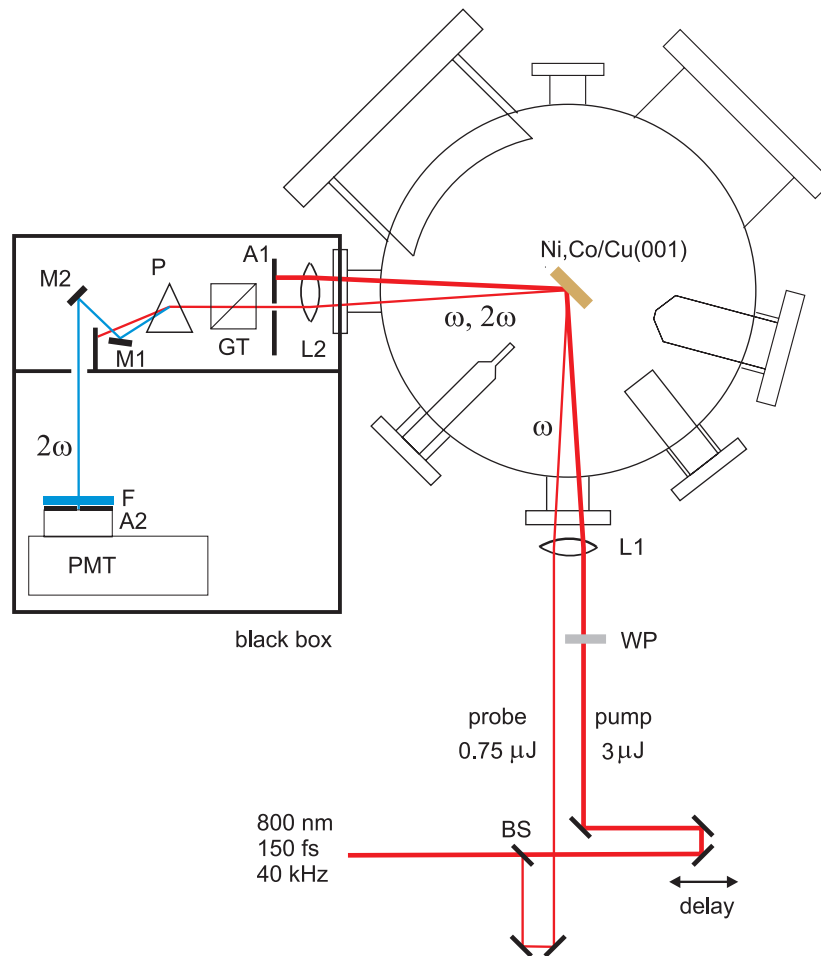


Abbildung 6.1: Skizze des Aufbaus für die zeitaufgelösten Messungen in der UHV-Kammer. Darin bedeuten: BS Strahlteiler, WP $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte, L1, L2 Fokussierungs- bzw. Kollimierungslinse ($f = 30$ cm), A1 Lochblende, GT Glan-Taylor-Prisma, P Dispersionsprisma, M1-M2 Spiegel (HR 400 nm), F Farbfilter, A2 Apertur, PMT Photomultiplier.

eingeführt, was einer variablen zeitlichen Verzögerung der beiden Pulse gegeneinander entspricht. Die Positionsreproduzierbarkeit beträgt dabei $1 \mu\text{m}$, was einer Zeitauflösung von ungefähr 7 fs entspricht. Nach der Aufteilung und der optischen Verzögerung werden die beiden Teilstrahlen parallel zueinander in einem Abstand von ca. 1 cm in die UHV-Kammer eingekoppelt. Während der Probestrahlung bei den zeitaufgelösten Messungen immer p-polarisiert ist, wird die Polarisationsrichtung des Pumpstrahls mit einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte aus Quarz (Laser Components, low order) wahlweise in p- oder s-Polarisation eingestellt. Beide Strahlen werden mit derselben Plankonvexlinse ($f = 30$ cm, BK7) unter einem Winkel von ungefähr 2° auf die Probenoberfläche auf Durchmesser von ungefähr $180 \mu\text{m}$ fokussiert. Der Winkel zwischen beiden Strahlen von ungefähr 2° , führt damit zu einer geometrischen Pulsverlängerung von ca. 10 fs [106], was gegenüber der Pulsbreite von

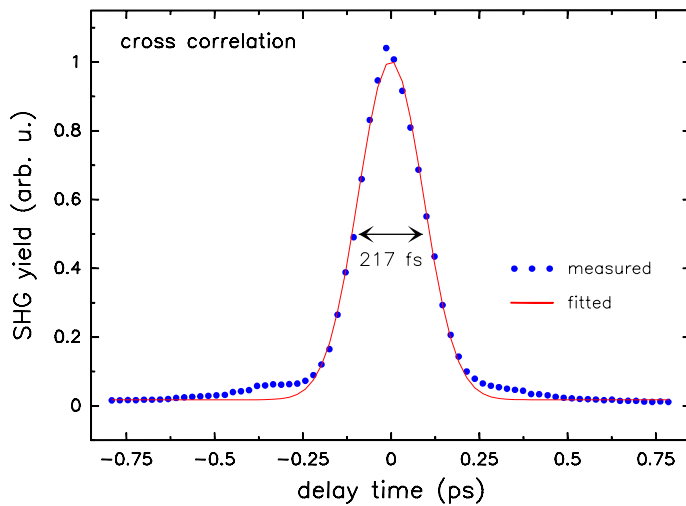
ca. 150 fs vertretbar ist. Die durch das Teleskop, die Fokussierungslinse und das Einkoppelfenster induzierte Pulsverlängerung beläuft sich auf ca. 0.3 fs (vergl. Kap. C), so daß auf eine zusätzliche externe Kompression wie im Falle der zeitintegralen Messungen mit dem Ti:Sa-Laseroszillator (vergl. Kap. 5.2) verzichtet werden kann. Die zusätzliche Pulsverlängerung der Pumppulse durch das Durchlaufen des Strahlteilers und der $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte beträgt nur ca. 0.007 fs und ist damit vernachlässigbar.

Die Position der Laserspots auf der Probenoberfläche sowie deren räumlicher Überlapp kann dabei mit einem Fernfeldmikroskop (Spindler und Hoyer) zusammen mit einer im nahinfraroten Spektralbereich empfindlichen CCD-Kamera (SDT-131C, Seitner Datentechnik) durch ein UHV-Fenster beobachtet und justiert werden.

Nach der Kollimierung durch eine Linse, die der fokussierenden Linse gleicht, wird der von der Probe reflektierte Pumpstrahl mit einer Lochblende abgeblockt. Der weitere Nachweis geschieht genauso wie bei den zeitintegralen Messungen. Mit einem Glan-Taylor-Prisma (GT-10, Laser Components) aus Kalzit wird die p-polarisierte Komponente der zweiten Harmonischen zur Detektion selektiert. Alle zeitaufgelösten Messungen wurden in der p-P-Polarisationskombination durchgeführt. Mit einem Dispersionsprisma aus Quarz wird die Frequenzverdoppelte räumlich von der Fundamentalen getrennt und mit zwei für 400 nm hochreflektierenden dielektrischen Spiegeln auf die Eingangsblende eines Photomultipliers (R4220P, Hamamatsu) justiert. Zum Schutz vor Streulicht ist diese zusätzlich mit einem 1 mm dicken BG-39-Farbfiler (Schott) versehen.

Da bei den verstärkten Laserpulsen im Mittel ungefähr 100 verdoppelte Photonen pro einfallenden fundamentalen Laserpuls generiert werden, ist der Einzelphotonennachweis im Gegensatz zu den zeitintegralen Messungen mit dem Laseroszillator nicht möglich. Es wird daher mit Lock-In-Technik gemessen, wobei zur Erhöhung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses der Pumpstrahl mit einem mechanischen Chopper bei einer Frequenz von ca. 850 Hz moduliert wird. Damit werden nur die von den Pumppulsen induzierten Änderungen der Ausbeute an zweiter Harmonischer detektiert.

In der Mitte zwischen den reflektierten Pump- und Probestrahlen ist die untergrundfreie Kreuzkorrelation des Pump- und des Probestrahles detektierbar. Diese wird zum einen zur Bestimmung des zeitlichen Nullpunktes der beiden Pulse zueinander, zum anderen zur Bestimmung der Pulsdauer auf der Probenoberfläche in der UHV-Kammer genutzt. In der Abbildung 6.2 ist exemplarisch eine solche Kreuzkorrelation gezeigt, die an der reinen Cu(001)-Oberfläche aufgenommen wurde. Es ergibt sich eine Korrelationsbreite von ca. 217 fs (volle Breite bei halben Maximum), was mit dem sogenannten Formfaktor für gaußförmige Intensitätskorrelationen von $\sqrt{2}/2$ [107] einer Pulsdauer von ungefähr 154 fs am Probenort entspricht. Die Pulsform zeigt leichte Schultern, die aus der nicht vollständigen Kompensation der Gruppengeschwindigkeitsdispersion aller Ordnungen durch den

**Abbildung 6.2:**

Darstellung des Signals der Kreuzkorrelation und eines gaußförmigen Fits daran. Die Korrelationsbreite beträgt 217 fs (FWHM), was einer Pulsbreite von ca. 154 fs entspricht.

Gitterkompressor im regenerativen Verstärker resultieren. Da diese Schultern aber relativ flach und auch nicht sehr breit sind, ist von ihnen kein nennenswerter Einfluß auf die Signale zu erwarten.

6.2 Magnetisierungsdynamiken

Zur Messung der Magnetisierungsdynamiken der dünnen Nickel- und Kobaltfilme wurden diese jeweils bis zur gewünschten Filmdicke im UHV aufgewachsen. Dabei kann der Verlauf der zweiten Harmonischen wie in Kap. 5 beschrieben wurde zeitintegral mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Laserszillator beobachtet werden. Ist die gewünschte Filmdicke erreicht, wird die Probe zur Verbesserung der Filmqualität kurzzeitig stark erhitzt und wieder abgekühlt. Dann werden die verstärkten Laserpulse in die UHV-Kammer eingekoppelt und es können zeitaufgelöste Messungen an den Filmen durchgeführt werden.

Das Vorgehen ist dabei das folgende. Wie bereits erwähnt, ist das Signal-zu-Rauschverhältnis bei Modulation des Probestrahls aufgrund der räumlichen Laserstrahlschwankungen zu gering, um die kleinen pumpinduzierten Änderungen zu detektieren. Daher werden zuerst stationär durch Modulation des Probestrahls mit einem mechanischen Chopper die Ausbeuten an zweiter Harmonischer für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen ohne den Pumpstrahl aufgenommen. Durch Mittelung über einen gewissen Zeitraum (typisch einige Hundert Sekunden), lassen sich damit die absoluten Ausgangssignale für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen $I_0^\uparrow(2\omega)$ und $I_0^\downarrow(2\omega)$ bei negativen Verzögerungszeiten, also vor Eintreffen des Pumpulses, mit einer Unsicherheit von ca. 10% bestimmen. Dann wird der Pumpstrahl moduliert und die pumpinduzierten Änderungen des Probesignals $\delta I^{\uparrow\downarrow}(2\omega, t)$ in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit t detektiert. Zu jedem Verzögerungszeitpunkt werden die Ausbeuten an Frequenzverdoppelter

für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen aufgenommen. Damit läßt sich die Zeitabhängigkeit des absoluten Signals der zweiten Harmonischen schreiben als :

$$I^{\uparrow\downarrow}(2\omega, t) = I_0^{\uparrow\downarrow}(2\omega) + \delta I^{\uparrow\downarrow}(2\omega, t) \quad , \quad (6.1)$$

vorausgesetzt, die Phase des Lock-In-Verstärkers wird korrekt berücksichtigt.

Im Falle der hier ausschließlich untersuchten p-P-Polarisationskombination, also p-polarisierte Fundamentale und in p-Richtung analysierte Frequenzverdoppelte, ergeben sich nach der Tabelle 2.1 drei gerade ($\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e, \chi_{xxz}^e$) und drei ungerade ($\chi_{xxx}^o, \chi_{xzx}^o, \chi_{zzx}^o$) unabhängige Tensorkomponenten (vergl. auch Kap. 5.2). Diese werden jeweils wieder in den effektiven Beiträgen $\chi_{\text{even}}^{(2)}$ und $\chi_{\text{odd}}^{(2)}$ zusammengefaßt (s. Kap. 5.3.1).

Es läßt sich zeigen [108, 10], daß die geraden Beiträge in erster Näherung magnetisierungsunabhängig sind, während die ungeraden Beiträge proportional zum Betrag der Magnetisierung sind :

$$\chi_{\text{even}}^{(2)}(M) = \chi_{\text{even},0}^{(2)} \quad , \quad \chi_{\text{odd}}^{(2)}(M) = \gamma M \quad , \quad (6.2)$$

mit der Proportionalitätskonstanten γ . Damit lassen sich die Summen und Differenzen der Ausbeuten an zweiter Harmonischer, wie sie in den Gleichungen 5.3 und 5.4 definiert sind, schreiben als :

$$I^{\uparrow}(2\omega) + I^{\downarrow}(2\omega) = 2I^2(\omega) \left[\left| A\chi_{\text{even},0}^{(2)} \right|^2 + |B\gamma M|^2 \right] \quad (6.3)$$

$$I^{\uparrow}(2\omega) - I^{\downarrow}(2\omega) = 4I^2(\omega) \left| A\chi_{\text{even},0}^{(2)} B\gamma M \right| \cos \phi \quad , \quad (6.4)$$

wobei $I(\omega)$ die Intensität der Fundamentalen, A und B effektive Fresneffaktoren und ϕ die effektive Phase zwischen den geraden und ungeraden Beiträgen ist.

Mit den in Gleichung 6.1 definierten zeitabhängigen Ausbeuten an Frequenzverdoppelter lassen sich nun analog auch zeitabhängige Summen und Differenzen $\Delta^{\pm}(t)$ bilden, die zweckmäßigerweise auf ihre Werte bei negativen Verzögerungszeiten, also zu Zeiten vor Eintreffen des Pumpimpulses, normiert werden :

$$\Delta^{\pm}(t) = \frac{I^{\uparrow}(2\omega, t) \pm I^{\downarrow}(2\omega, t)}{I_0^{\uparrow}(2\omega) \pm I_0^{\downarrow}(2\omega)} \quad . \quad (6.5)$$

Durch Einsetzen von Gleichung 6.1 ergibt sich daraus :

$$\Delta^{\pm}(t) = 1 + \frac{\delta I^{\uparrow}(2\omega, t) \pm \delta I^{\downarrow}(2\omega, t)}{I_0^{\uparrow}(2\omega) \pm I_0^{\downarrow}(2\omega)} \quad . \quad (6.6)$$

Mit der Annahme, daß die effektiven Fresneffaktoren A und B eine verschwindende Zeitabhängigkeit besitzen, was durch die sehr kleine Änderung ($\approx 0.5\%$ bei 7 mJ/cm^2) der transienten linearen Reflektivität von Nickel bei 800 nm [108] nahegelegt wird, und unter Vernachlässigung der Terme, welche quadratisch sind in $\chi_{\text{odd}}^{(2)}$, was durch deren Kleinheit gegenüber $|A\chi_{\text{even}}^{(2)}|^2$ (s. Kap. 5.3) gerechtfertigt ist, läßt sich durch Einsetzen von Gleichung 6.3 in Gleichung 6.5 schreiben :

$$\Delta^+(t) = \frac{|\chi_{\text{even}}^{(2)}(t)|^2}{|\chi_{\text{even},0}^{(2)}|^2} . \quad (6.7)$$

Wie sich zeigen wird, hängt $\chi_{\text{even}}^{(2)}$ nur wenig von der Zeit ab, so daß sich zusammen mit der Annahme, daß auch die Phase ϕ eine verschwindende Zeitabhängigkeit besitzt, mit Gleichung 6.4 ergibt :

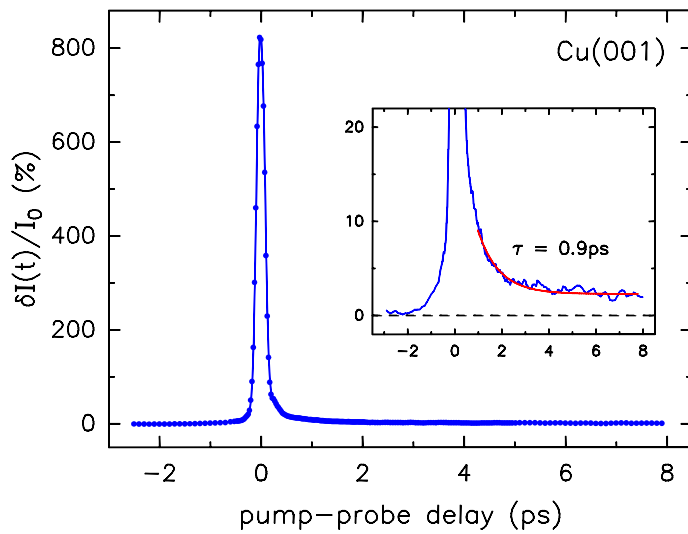
$$\Delta^-(t) = \frac{M(t)}{M_0} . \quad (6.8)$$

Unter den gemachten Annahmen beschreibt $\Delta^-(t)$ also direkt die Magnetisierungsdynamik, während $\Delta^+(t)$ die Dynamik des elektronischen Subsystems widergibt.

6.2.1 Ni/Cu(001)

Die zeitaufgelösten Messungen zur Magnetisierungsdynamik der Nickelfilme wurden im Schichtdickenbereich bis 8 ML durchgeführt, also in dem Bereich, in welchem die Magnetisierung in der Filmebene liegt (s. Kap. 5.2.2). Die Detektion der zweiten Harmonischen erfolgt dabei in der p-P-Polarisationskombination mit der Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Einfallsebene und parallel zur $[110]$ -Richtung. Die Messung der Magnetisierungsdynamik in dem Schichtdickenbereich größer als 10 ML , in welchem die Magnetisierung senkrecht zur Filmebene steht, war nicht möglich, da das Signal-zu-Rausch-Verhältnis für die dann notwendige p-S-Polarisationskombination zu gering ist (vergl. Kap. 5.2.2). Bevor aber die Messungen an den ferromagnetischen Schichten dargelegt werden, werden zuerst die zeitaufgelösten Ergebnisse an den paramagnetischen Schichten bzw. an der reinen Kupferoberfläche vorgestellt.

In der Abbildung 6.3 ist die Zeitabhängigkeit der pumpinduzierten relativen Änderung $\delta I(t)/I_0$ an zweiter Harmonischer des Probestrahls an der reinen Cu(001)-Oberfläche dargestellt. Die starke Überhöhung des Signals zur Verzögerungszeit Null ist ein kohärenter Artefakt. Dieser wird von einem transienten Gitter hervorgerufen, welches von den parallel polarisierten Pump- und Probepulsen an der

**Abbildung 6.3:**

Pumpinduzierte Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer an der reinen Cu(001)-Oberfläche. In dem Inset ist ein vergrößerter Ausschnitt gezeigt, mit einem exponentiellen Fit an die Daten ab 1 ps.

Probenoberfläche induziert wird und an welchem dann ein Teil der zweiten Harmonischen des Pumpstrahles in Richtung der zweiten Harmonischen des Probestrahles gebeugt wird [109, 110]. Wie in [110] gezeigt ist, wird der Korrelationspeak von der Suszeptibilität vierter Ordnung $\chi^{(4)}$ bestimmt, d. h. daß seine Breite kleiner sein sollte als die, der in Kapitel 6.1 vorgestellten Kreuzkorrelation (theoretisch um einen Faktor $\sqrt{2}$), was sich auch ergibt. Der Korrelationspeak tritt nur auf, solange beide Pulse zeitlich überlappen, d. h. er hat keinen Einfluß auf das Signal bei größeren Verzögerungszeiten. Neben der Kreuzkorrelationsfunktion, kann auch der kohärente Artefakt zur Nullpunktsbestimmung herangezogen werden. Der Inset in Abbildung 6.3 zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des Sockels des kohärenten Artefaktes. Es ist ein asymmetrischer Verlauf erkennbar, der auf die Erwärmung des Materials durch den Pumpimpuls zurückzuführen ist.

Wenn ein ultrakurzer Laserpuls auf ein Metall trifft, werden Elektronen durch Absorption von Photonen energetisch angeregt. Aufgrund von Stößen unter den Elektronen, wird die dabei absorbierte Energie auf das gesamte Elektronenbad verteilt, das heißt, es etabliert sich eine Elektronentemperatur, was, je nach Metall und Energiedichte, innerhalb einer Zeitspanne von einigen zehn bis einigen hundert Femtosekunden geschieht (s. z.B. [111]). Konkurrierend dazu gibt es bei den Edelmetallen in diesem Zeitbereich ballistischen Transport heißer Elektronen aus dem ursprünglich angeregten Volumen hinaus, was die sich lokal ausbildende Elektronentemperatur verringert [112]. Aufgrund der geringen Wärmekapazität der Elektronen kann die transiente Elektronentemperatur sehr hohe Werte annehmen (s. z.B. [113, 114]), während die Gittertemperatur bei kurzen Zeiten noch relativ unverändert bleibt. Durch Stöße mit Phononen geben die Elektronen ihre Energie an das Gitter ab und gelangen mit diesem auf einer Pikosekundenzeitskala ins thermische Gleichgewicht. Ein starker Konkurrenzprozeß dazu ist die Diffusion heißer Elektronen in die Tiefe des Materials, was die Temperatur im primär angeregten Volumen erheblich reduziert (s. z.B. [115, 116]). Daran anschließend kühlt

sich die Probe durch Wärmediffusion innerhalb mehrerer hundert Pikosekunden wieder ab.

Ein exponentieller Fit an die Meßdaten in Abbildung 6.3 ab einer Verzögerungszeit von 1 ps ergibt eine Relaxationszeit von 0.9 ps (1/e-Zeit), was in sehr guter Übereinstimmung mit zeitaufgelösten Messungen der Elektronendynamik an polykristallinem Kupferbulkmaterial ist [37, 116].

In der Abbildung 6.4 ist die Zeitabhängigkeit der pumpinduzierten, relativen Änderung $\delta I(t)/I_0$ der Ausbeute an zweiter Harmonischer des Probestrahls für die Filmdicken von 1 ML bis 6 ML dargestellt. Alle dort gezeigten Messungen wurden hintereinander an einem Meßtag durchgeführt, so daß die Größen der Effekte durchaus miteinander verglichen werden können. Da sowohl der Pump- als auch der Probestrahl p-polarisiert waren, tritt wieder der oben beschriebene kohärente Artefakt auf. Daneben treten aber noch weitere wichtige Effekte auf.

Zum einen ist für den 6 ML dicken Film an der Aufspaltung der Signale für die entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen deutlich zu erkennen, daß er ferromagnetisch ist, was bei einer Substrattemperatur von ca. 323 K in Übereinstimmung mit den Ergebnissen der zeitintegralen Messungen in Kapitel 5.2 ist. Die dünneren Filme sind bei dieser Temperatur noch paramagnetisch. Auf die magnetischen Effekte wird weiter unten noch genauer eingegangen.

Mit zunehmender Bedeckung der Kupferoberfläche mit Nickel, sollte sich die Relaxationszeit der von Nickel annähern, welche bei polykristallinem Bulkmaterial ca. 0.75 ps (1/e-Zeit) beträgt [26, 108]. Exponentielle Fits an die abklingenden Verläufe für 3, 4 und 5 ML ergeben allerdings Relaxationszeiten in der Größenordnung von 2 ps. Es ergeben sich Hinweise auf eine reduzierte Diffusivität der thermalisierten Elektronen durch die Ni/Cu-Grenzfläche und auf eine Expansion des Filmgitters, was in Kapitel 6.3 näher untersucht werden wird.

Interessant ist ferner das Verhalten bei den ganz geringen Bedeckungen, 1 und 2 ML. Während der Verlauf bei 1 ML dem an der reinen Kupferoberfläche (Abb. 6.3) ähnelt, zeigt sich bei einer Dicke von 2 ML, auch im Gegensatz zu allen anderen Bedeckungen, ein Einbruch in der Ausbeute der Frequenzverdoppelten, welchem der kohärente Artefakt überlagert ist. Dieser Effekt ist zwar nicht absolut, in Bezug auf die Filmdicke, reproduzierbar, tritt aber immer bei geringen Bedeckungen auf. In der Abbildung 6.5 ist einmal ein Beispiel gezeigt, bei welchem sich für 1 ML ein Einbruch ergibt, während bei 2 ML ein Anstieg auftritt. Bei dieser Messung wurde die pumpinduzierte Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer bei einer festen Zeitverzögerung von 0.5 ps während des Aufdampfens des Filmes detektiert. Eine Normierung auf das Signal bei negativen Verzögerungszeiten ist dabei nicht möglich, so daß die absoluten Änderungen mit wachsender Schichtdicke größer werden. Aber auch die relativen Änderungen in der Abbildung 6.4 werden mit wachsender Bedeckung größer, was wahrscheinlich eine Folge der wachsenden Absorption im Film ist.

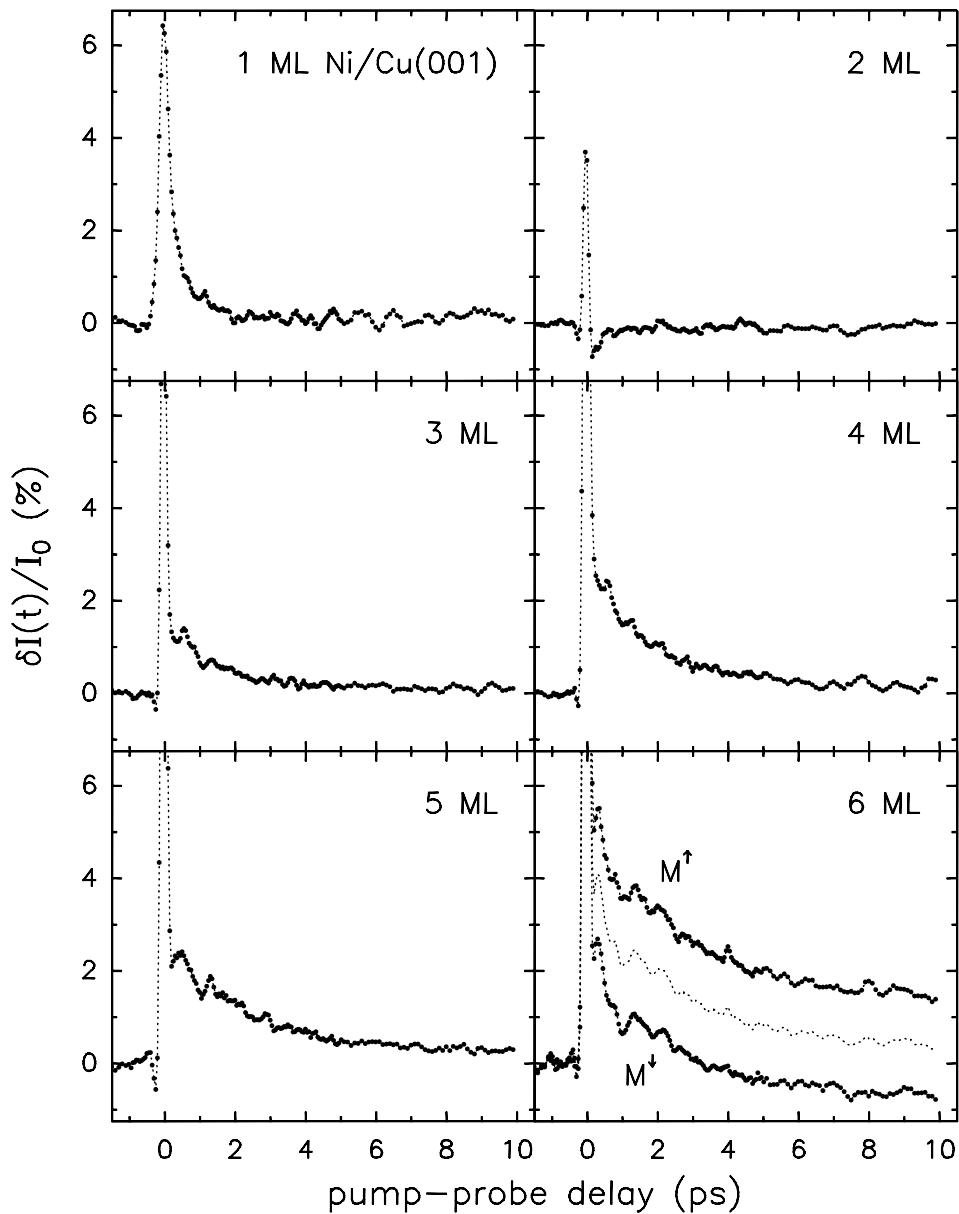
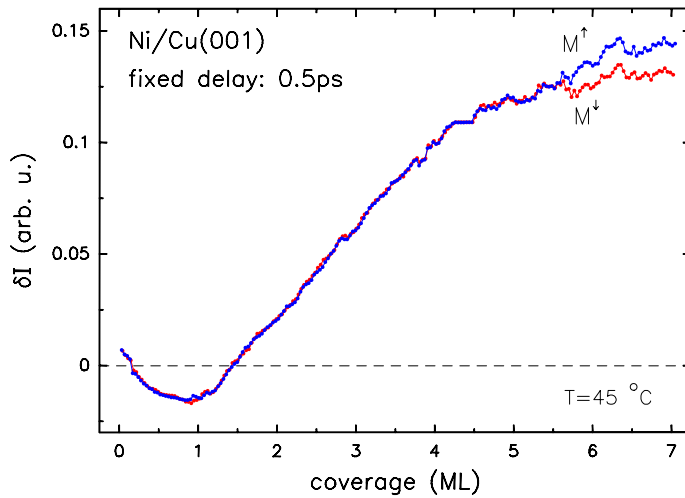


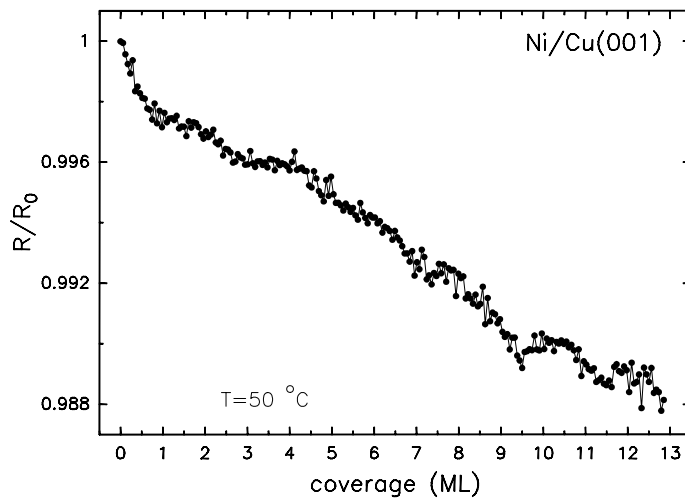
Abbildung 6.4: Darstellung der pumpinduzierten Änderungen der Ausbeute an zweiter Harmonischer an Ni/Cu(001) für die Filmdicken von 1 bis 6 ML. Die Polarisationskombination ist p-P; die Pumppulse sind p-polarisiert mit einer Fluenz von etwa 12 mJ/cm^2 . Der 6 ML dicke Film ist bei der Substrattemperatur von ca. 323 K ferromagnetisch, die übrigen Filme paramagnetisch. Für den 6 ML Film ist der Mittelwert der beiden magnetischen „Äste“ mit eingezeichnet. Alle Messungen erfolgten an einem Meßtag.

Mit wachsender Schichtdicke sollte sich die Reflektivität des Systems nämlich verringern. Zum einen ist die Bulkreflektivität von Kupfer für p-Polarisation und

**Abbildung 6.5:**

Darstellung der pumpinduzierten Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer an Ni/Cu(001) für die feste Verzögerungszeit 0.5 ps als Funktion der Schichtdicke. Die Messung erfolgte während des Aufdampfens des Filmes. Die Polarisationskombination ist p-P; die Pumpulse sind p-polarisiert. Die Substrattemperatur beträgt etwa 45°C .

einen Einfallswinkel von 45° mit einem Wert von 0.9505 ca. 1.6-mal größer als die von Nickel mit 0.5854 [76], zum anderen ist die Reflektivität zwischen Nickel und Kupfer mit einem Bulkwert von 0.0586 [76] etwa 16-mal kleiner als die Reflektivität zwischen dem Vakuum und Kupfer. In der Abbildung 6.6 ist der relative Verlauf der linearen Reflektivität für p-Polarisation für einen Einfallswinkel von 45° in Abhängigkeit von der Bedeckung dargestellt. Diese wurde mit Lock-In-Technik während des Aufdampfens mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Laserszillator und einer Photodiode (DET100, Thorlabs) aufgenommen. Es zeigt sich, daß die lineare Reflektivität wie erwartet mit zunehmender Bedeckung kleiner wird. Im interessierenden Schichtdickenbereich bis etwa 10 ML ist die Änderung mit maximal 1% allerdings sehr klein und könnte auch von Laserdrift hervorgerufen sein.

**Abbildung 6.6:**

Bedeckungsabhängigkeit der linearen Reflektivität von Ni/Cu(001) für p-Polarisation bei 800 nm gemessen mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Laserszillator. Die Werte sind normiert auf den Kupferbulkwert von 0.9505 [76].

Da die optischen Konstanten des Schichtsystems, sowie dessen thermische Eigenschaften nicht genau bekannt sind, ist eine genaue Analyse der thermischen

Verhältnisse nicht möglich. Mit einigen plausiblen Überlegungen kann die Situation aber näherungsweise beschrieben werden. Obwohl der Nickelfilm nur einige Atomlagen dick ist, kann die darin absorbierte Energiedichte dennoch sehr hoch sein. Das soll durch die folgende grobe Abschätzung veranschaulicht werden. Unter Verwendung der Bulkwerte für Absorption und Reflexion von Nickel und Kupfer [76] ergibt sich bei einem 4 ML dicken Nickelfilm bereits ein Verhältnis der absorbierten Energien zwischen Film und Substrat von etwa 1 : 2.6. Unter der Annahme, daß es keine thermische Kopplung des Filmes an das Substrat zu kurzen Verzögerungszeiten gäbe, ergäbe sich unter Verwendung der applizierten Fluenz eine Gittertemperatur von ca. 1100 K. Dieses ist, wie gesagt, nur eine Abschätzung, die eine obere Grenze angeben und die im Film absorbierte Energiedichte verdeutlichen soll.

Tatsächlich zeigt sich aber, daß es eine erhebliche thermische Kopplung an das Substrat geben muß. Zum einen ergäbe sich bei diesen hohen Temperaturen sicherlich eine Schädigung des Filmes, z. B. durch Diffusion der Nickelatome in das Kupfersubstrat, was nicht beobachtet wurde. Zum anderen muß die Gittertemperatur nach wenigen Pikosekunden unterhalb der Curietemperatur sein, was sich aus den Messungen im ferromagnetischen Bereich ergibt, die weiter unten vorgestellt werden. Ein Großteil der im Nickelfilm absorbierten Energie gelangt wahrscheinlich direkt nach der Anregung durch ballistischen Elektronentransport mit der Fermigeschwindigkeit von ca. 10^6 m/s in das Kupfersubstrat. Zwar beträgt die mittlere freie Weglänge ballistischer Elektronen in Bulknickel etwa nur 10 nm [117], im Kupfersubstrat sollte sich aber eine ähnlich große mittlere freie Weglänge wie in Gold von ca. 100 nm [117] ergeben, so daß die in dem nur wenige Monolagen dicken Film angeregten Elektronen aus diesem hinaus in das Substrat und dort aus der optischen Eindringtiefe hinaus gelangen können. Die Grenzfläche zwischen dem Film und dem Substrat scheint dabei keine Barriere für die ballistischen Elektronen darzustellen. Die Ursache hierfür ist wahrscheinlich, daß es sowohl im Nickel als auch im Kupfer für die hochangeregten noch nicht thermalisierten Elektronen genügend freie Zustände gibt und außerdem die Wechselwirkungszeit mit der Grenzfläche extrem kurz ist. Auf der anderen Seite ist die Elektronen-Phononen-Kopplungskonstante g für Nickel mit einem Wert von ungefähr $36 \cdot 10^{16}$ W/m³K [112] fast viermal größer als für Kupfer mit $10 \cdot 10^{16}$ W/m³K [114]. Also wird die maximale Gittertemperatur in dem dünnen Nickelfilm größer sein als im Kupfersubstrat. Damit ergibt sich also die Situation eines stark erwärmten dünnen Filmes auf einem relativ kalten Substrat.

In der Abbildung 6.7 ist nun der zeitabhängige Verlauf der Ausbeute an zweiter Harmonischer für einen 7 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001) für p- und für s-polarisierte Pumpimpulse dargestellt. Dabei wurden gemäß Gleichung 6.1 zur Veranschaulichung die pumpinduzierten Änderungen der Ausbeute $\delta I^{\uparrow\downarrow}(t)$ zu den verzögerungsunabhängigen Anfangswerten $I_0^{\uparrow\downarrow}$ addiert. Dabei beträgt die Differenz der Signale der Frequenzverdoppelten bei negativen Verzögerungszeiten etwa 5 %, was auf einen gewissen Selbstheizeffekt durch die Probepulse hindeutet. Für p-polarisierte Pumpimpulse tritt wieder der kohärente Artefakt auf, während er für s-polarisierte Pumpimpulse, also bei gekreuzten Polarisierungen von Pump- und Probepulsen, nicht auftritt. Die optischen Konstanten von Bulknickel ergeben aber eine ca. doppelt so große Absorption für p-polarisierte Strahlung wie für s-polarisierte Strahlung, so daß die mit s-polarisierten Pumpimpulsen induzierten Effekte bei gleicher Fluenz kleiner sind, als die mit p-polarisierten Pumpimpulsen induzierten.

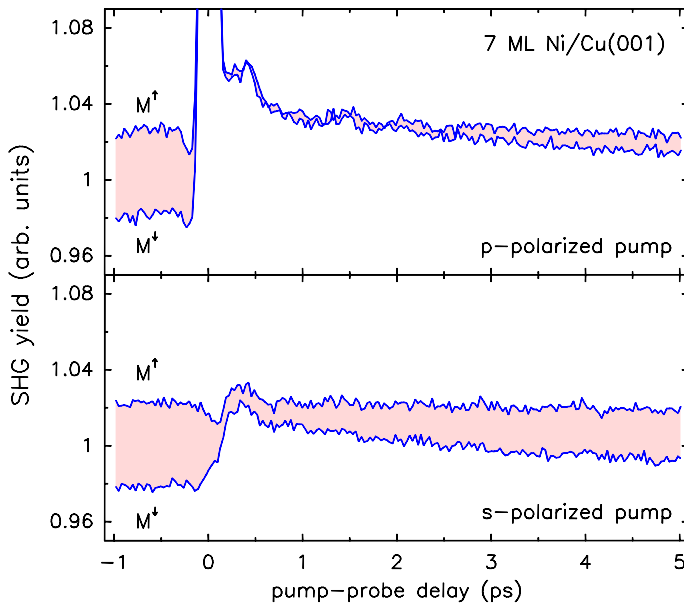


Abbildung 6.7: Zeitabhängigkeit der Ausbeute an zweiter Harmonischer für 7 ML Ni/Cu(001), für p- und s-polarisierte Pumpimpulse. Die Polarisationskombination ist p-P. Die Substrattemperatur beträgt 323 K, die verwendete Fluenz $12\text{mJ}/\text{cm}^2$.

Dieses wird in der Abbildung 6.8 noch deutlicher. Darin sind die nach Gleichung 6.5 definierten normierten Summen und Differenzen der Signale für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen dargestellt; auf der linken Seite für p-polarisierte, auf der rechten Seite für s-polarisierte Pumpimpulse. Wie ein Vergleich der normierten Summen $\Delta^+(t)$ (Abb. 6.8a und b) zeigt, sind die mit p-polarisierten Pumpimpulsen erreichbaren Änderungen mit ca. 6 % etwa doppelt so groß, wie die mit s-polarisierten Pumpimpulsen erreichbaren von ca. 3 %, d.h. die erreichbaren Temperaturen sind für p-polarisierte Pumpimpulse offensichtlich größer als die für s-polarisierte Pumpimpulse. Darüber hinaus geben die relativ kleinen Änderungen von $\Delta^+(t)$ eine obere Grenze für den Einfluß der geraden Tensoranteile auf $\Delta^-(t)$ und rechtfertigen somit ihre Vernachlässigung bei der Herleitung von Gleichung 6.8.

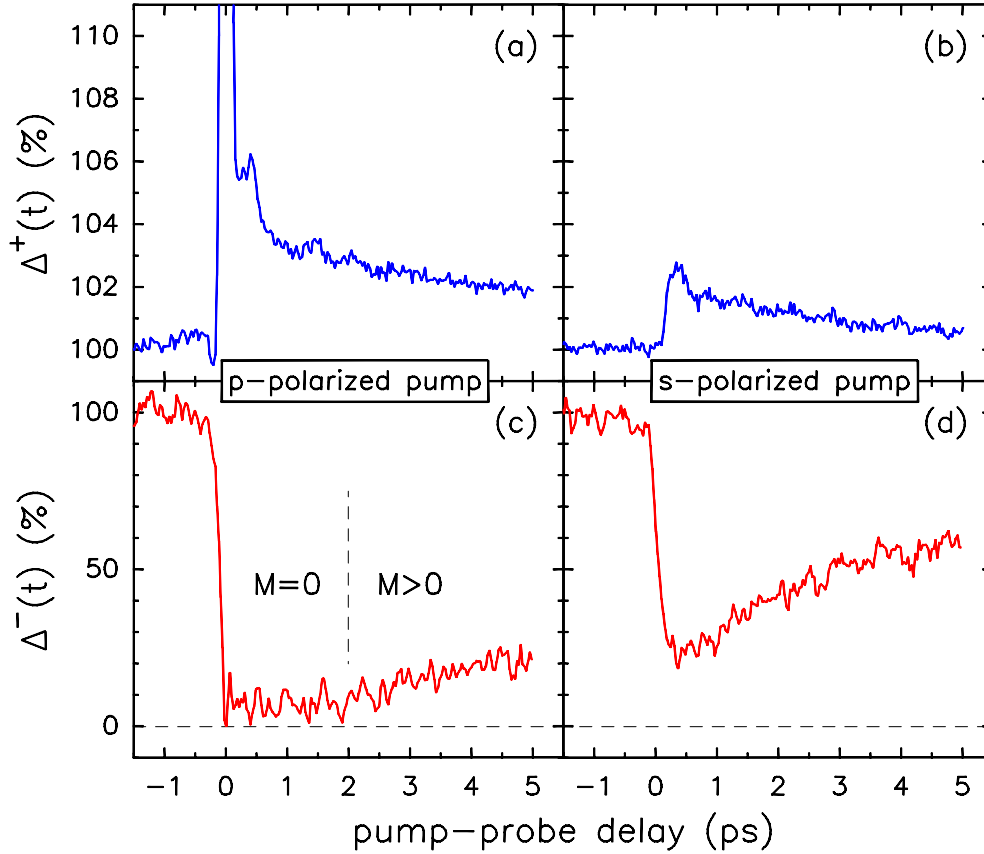


Abbildung 6.8: Zeitabhängigkeit der relativen Summen und Differenzen für 7 ML Ni/Cu(001) für p- und s-polarisierte Pumppulse. Die Polarisationskombination ist p-P. Die Substrattemperatur beträgt 323 K, die verwendete Fluenz 12 mJ/cm^2 .

Wie aus Abbildung 6.8c ersichtlich ist, bricht die relative Differenz $\Delta^-(t)$ für p-polarisierte Pumppulse innerhalb der Pulsbreite auf fast Null zusammen, bleibt für ca. 2 ps ausgelöscht (während die relative Summe $\Delta^+(t)$ nicht sättigt) und beginnt dann langsam wieder zu steigen. Die Abweichung von der exakten Null hat ihren Ursprung in der Ungenauigkeit mit der die Anfangssignale $I_0^{\uparrow\downarrow}$ bei negativen Verzögerungszeiten bestimmt werden können, wobei der Probestrahl moduliert wird. Der schnelle magnetische Zusammenbruch zeigt, daß die Elektronentemperatur die Curietemperatur von ca. 390 K [21, 24] unmittelbar nach der Absorption des Pumpulses überschreitet. Innerhalb der experimentellen Auflösung ist keine Zeitverzögerung zwischen Elektronen- und Spintemperatur feststellbar. Die Tatsache, daß $\Delta^-(t)$ für über 2 ps nahe bei Null sättigt ist ein Beweis dafür, daß der Einbruch von $\Delta^-(t)$ nicht durch eine Zeitabhängigkeit der Phase ϕ zwischen den geraden und ungeraden Beiträgen zur Suszeptibilität zweiter Ordnung verursacht wird (vergl. Gl. 6.4). Wenn es einen Phaseneffekt gäbe, dann könnte $\Delta^-(t)$ auch negativ werden, was aber in keiner einzigen Messung beobachtet wurde. Entweder

waren die Einbrüche nicht vollständig, oder sättigten bei Null. Aus diesem Grund wurde bei der Herleitung von Gleichung 6.8 eine Zeitabhängigkeit der Phase ϕ ausgeschlossen. Aufgrund dieser Phasenunabhängigkeit und aufgrund der verschwindend kleinen Änderungen der geraden Beiträge der Suszeptibilität zweiter Ordnung ist $\Delta^-(t)$ die Größe, die die Magnetisierungsdynamik adäquat beschreibt. Das heißt also, daß die in den Abbildungen 6.8c und d gezeigten Verläufe die Zeitabhängigkeit der Magnetisierung eines 7 ML dicken Nickelfilmes für zwei verschieden starke Anregungen wiedergeben. Für die p-polarisierten Pumppulse war die Absorption groß genug, um die Elektronentemperatur über die Curietemperatur des Filmes anzuheben. Damit ist lokal ein ultraschneller Phasenübergang von der ferromagnetischen in die paramagnetische Phase getrieben worden. Es dauert ca. 2 ps bis die Elektronentemperatur durch Abkühlung an das Kristallgitter und durch Diffusion wieder unter die Curietemperatur fällt, und die Magnetisierung wieder einsetzt. Diese beiden Zeitbereiche sind in der Abbildung 6.8c durch „ $M = 0$ “ und „ $M > 0$ “ gekennzeichnet. Mit s-polarisierten Pumpspulsen können die Elektronen nicht über die Curietemperatur geheizt werden. Daher ist der magnetische Einbruch nur in der Größenordnung von 80 %, aber dennoch genauso schnell wie im p-polarisierten Fall (vergl. Abb. 6.8d).

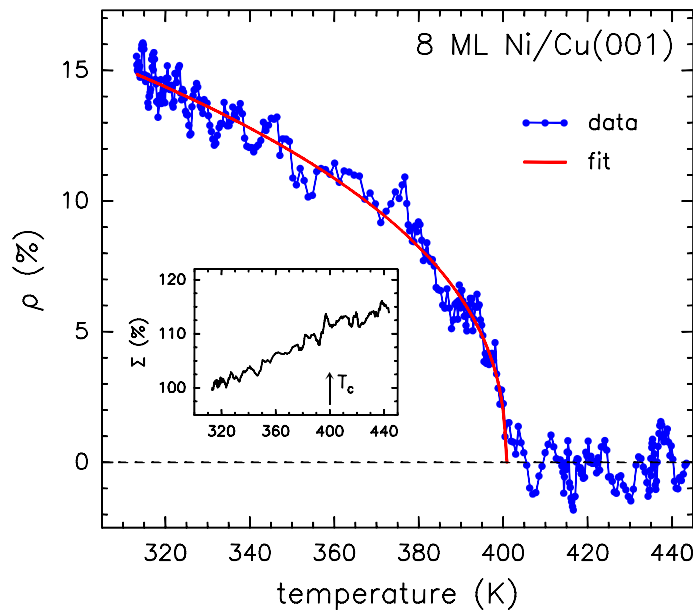


Abbildung 6.9:

Magnetisierungskurve für 8 ML Ni/Cu(001), gemessen mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Lasersoszillator in der p-P-Polarisationskombination. Daran ist ein exponentieller Fit angepaßt, der eine Curietemperatur von 400 K und einen kritischen Exponenten von 0.41 ergibt. Der Inset zeigt die Temperaturabhängigkeit von Σ , der normierten Summe.

Um das dynamische Verhalten der Magnetisierung systematischer zu untersuchen, wurden Pump-Probe-Messungen in Abhängigkeit von der Pumpfluenz und der Substrattemperatur durchgeführt, welche im folgenden vorgestellt werden. Zum Vergleich ist in der Abbildung 6.9 die statische Magnetisierungskurve eines 8 ML dicken Nickelfilmes auf Cu(001) dargestellt, wie sie sich durch Messung des magnetischen Kontrastes ρ in Abhängigkeit von der Substrattemperatur ergibt.

Dazu wird ρ mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Laseroszillator (s. Kap. 3.2) in transversaler Magnetisierungsgeometrie in der Polarisationskombination p-P gemessen. Bei 310 K beträgt der magnetische Kontrast ρ ca. 15 % und es ergibt sich eine Curietemperatur von etwa 400 K, in guter Übereinstimmung mit [21, 24]. Außerdem ist in der Abbildung 6.9 ein exponentieller Fit der Form $M = M_0(1 - T/T_c)^\beta$ gezeigt, der einen kritischen Exponenten β von ca. 0.41 in hervorragender Übereinstimmung mit [21] liefert. Da in die Berechnung des magnetischen Kontrastes ρ die nach Gleichung 6.4 definierten Differenzen eingehen, ist auch dieses ein Beweis dafür, daß die Phase ϕ zwischen den geraden und ungeraden Beiträgen zur Ausbeute an Frequenzverdoppelter wenn überhaupt eine verschwindend kleine Temperaturabhängigkeit besitzt. Der Inset in Abbildung 6.9 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Summe der Ausbeuten an zweiter Harmonischer für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen normiert auf die Werte bei der Anfangstemperatur $T_0 = 310$ K :

$$\Sigma = \frac{I^\uparrow(2\omega, T) + I^\downarrow(2\omega, T)}{I^\uparrow(2\omega, T_0) + I^\downarrow(2\omega, T_0)}. \quad (6.9)$$

Der Verlauf von Σ zeigt keinen Bruch bei T_C (vergl. Abb. 6.9), was eine weitere Bestätigung für die Vernachlässigbarkeit der ungeraden gegenüber den geraden Anteilen in der Summe gemäß Gleichung 6.3 ist. Außerdem läßt sich daran ablesen, daß die geraden Anteile selbst tatsächlich eine verschwindende Magnetisierungsabhängigkeit besitzen, wie es in der Gleichung 6.2 beschrieben und in [10] vorausgesagt wurde. Der Anstieg von Σ mit der Temperatur ist dabei konsistent mit dem transienten Anstieg von $\Delta^+(t)$ im Pump-Probe-Modus (vergl. Abb. 6.8a und b).

Wenn jetzt in einer zeitaufgelösten Messung bei gleichbleibender Substrattemperatur die Energie der Pumppulse erhöht wird, startet man jeweils an demselben Punkt auf der Magnetisierungskurve (s. Abb. 6.9) treibt die Magnetisierung aber immer weiter in Richtung Curiepunkt, wo sie schließlich verschwindet. Durch Einbringen einer Kombination aus einem Glan-Taylor-Prisma (GT-10, Laser Components) und einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte (Laser Components, low order) in den Pumpstrahlengang, läßt sich die Energie der Pumppulse stufenlos einstellen, wobei sich die maximale Pulsenergie durch Reflexionsverluste auf ca. $2.25 \mu\text{J}$ verringert.

In der Abbildung 6.10 ist die zeitliche Entwicklung der relativen Differenzen $\Delta^-(t)$ der Ausbeuten an zweiter Harmonischer für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtung für 8 ML Ni/Cu(001) für vier verschiedene Pumpfluenzen dargestellt. In allen Fällen bricht die Magnetisierung innerhalb desselben kurzen Zeitintervalls ein. Für eine Pumpulsenergie von $0.75 \mu\text{J}$ beläuft sich der Einbruch der

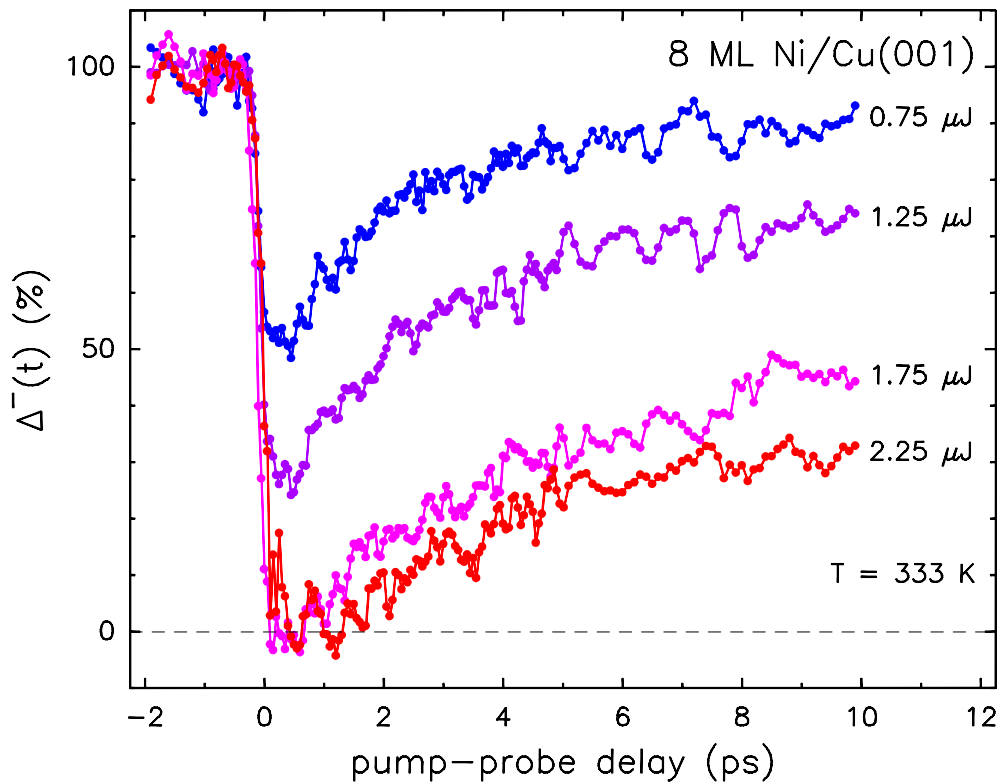


Abbildung 6.10: Darstellung der Pumpenergieabhängigkeit des Magnetisierungseinbruchs für 8 ML Ni/Cu(001). Gezeigt sind die relativen Differenzen $\Delta^-(t)$ in der p-P-Polarisationskombination für vier verschiedene Pumpenergien. Die Substrattemperatur beträgt 333 K und die Pumpenergie von $2.25 \mu\text{J}$ entspricht einer Fluenz von ca. $10 \text{mJ}/\text{cm}^2$.

Magnetisierung auf ca. 50 %, für $1.25 \mu\text{J}$ auf ca. 75 % und für $1.75 \mu\text{J}$ wird die Curietemperatur überschritten und die Magnetisierung für ungefähr 0.5 ps vollständig ausgelöscht (vergl. Abb 6.10). Wenn die Pumpenergie weiter auf $2.25 \mu\text{J}$ erhöht wird, wird die Magnetisierung über einen noch längeren Zeitraum von ca. 1 ps lokal unterdrückt. Dieses Verhalten ist in guter Übereinstimmung mit den Messungen an 7 ML Ni/Cu(001) in der Abbildung 6.8. Dieser Film besitzt eine etwas kleinere Curietemperatur und es wurde eine größere Pumpenergie verwendet, so daß die Magnetisierung für einen längeren Zeitraum unterdrückt werden konnte. Bei Verzögerungszeiten von ungefähr 10 ps nimmt $\Delta^-(t)$ Werte an, die der Magnetisierung entsprechen, wenn sich Elektronen und Gitter wieder im thermischen Gleichgewicht befinden. Wie erwartet werden diese Werte mit zunehmender Pumpenergie entsprechend einer höheren Gleichgewichtstemperatur kleiner.

Ein quantitativer Vergleich zwischen den zeitaufgelösten Messungen und der Magnetisierungskurve wie in [26] ist aufgrund experimenteller Beschränkungen allerdings nicht möglich. Da die Pump- und Probestrahlen auf etwa gleich große Spottedurchmesser fokussiert werden, ist die Probestfläche lateral nicht gleichmäßig

geheizt. Obgleich die Frequenzverdoppelte als Prozeß zweiter Ordnung nur die Hälfte der fundamentalen Spotgröße testet, resultiert das insgesamt Probesignal von unterschiedlichen Magnetisierungsgraden.

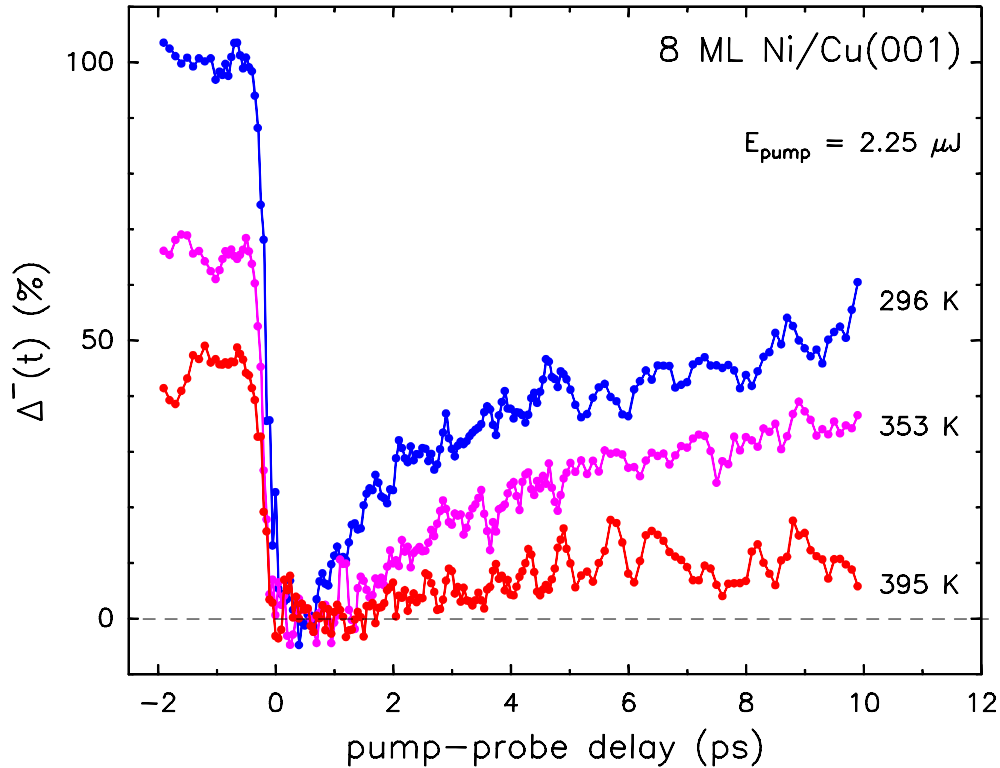


Abbildung 6.11: Darstellung der Substrattemperaturabhängigkeit des Magnetisierungseinbruchs für 8 ML Ni/Cu(001). Gezeigt sind die relativen Differenzen $\Delta^-(t)$ in der p-P-Polarisationskombination für drei verschiedene Substrattemperaturen. $\Delta^-(t)$ ist hierbei für alle Kurven auf $(I_0^\uparrow - I_0^\downarrow)$ mit $T_0 = 296$ K normiert. Die Pumpimpulsenergie beträgt für alle Messungen $2.25 \mu\text{J}$.

Die zweite Möglichkeit die Konsistenz der transienten Magnetisierungsdynamiken mit der statischen Magnetisierungskurve zu überprüfen besteht darin, für eine feste Pumpfluenz die Substrattemperatur zu variieren. In der Abbildung 6.11 ist die Magnetisierungsdynamik von 8 ML Ni/Cu(001) exemplarisch für drei verschiedene Substrattemperaturen bei einer festen Pumpimpulsenergie von ca. $2.25 \mu\text{J}$ gezeigt. Dabei ist die Skala für Δ^- dadurch definiert, daß eine Pumpimpulsenergie von $2.25 \mu\text{J}$ gerade ausreicht, um bei einer Substrattemperatur von 296 K einen vollständigen Zusammenbruch der Magnetisierung zu induzieren ($\Delta^- = 100\%$). Wenn die Substrattemperatur unter Beibehaltung der Pumpimpulsenergie geändert wird, beginnen die Verläufe an verschiedenen Punkten auf der Magnetisierungskurve. Höhere Substrattemperaturen führen dabei zu kleineren relativen Differenzen Δ^- bei negativen Verzögerungszeiten, welche sich in der Abbildung 6.11 in den

niedrigeren Ausgangsleveln widerspiegeln. Da die Pumpimpulsenergie fest ist, übersteigt die Elektronentemperatur die Curietemperatur um so mehr, je höher die Substrattemperatur ist. Daher wird die Zeitspanne, in welcher die Magnetisierung vollständig unterdrückt ist, für größer werdende Substrattemperaturen immer länger. Der Grad des magnetischen Wiederanstiegs bei einer Verzögerungszeit von 10 ps, wenn sich Elektronen und Gitter wieder im thermischen Gleichgewicht befinden, wird in Übereinstimmung mit der Magnetisierungskurve mit steigender Substrattemperatur kleiner.

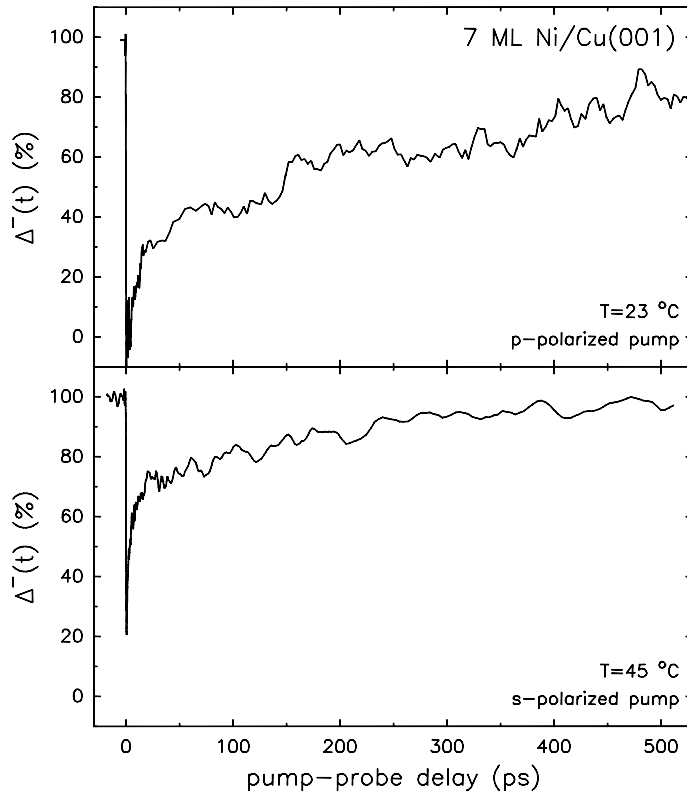


Abbildung 6.12:

Darstellung der Zeitabhängigkeit der Magnetisierung für 7 ML Ni/Cu(001) bei großen Verzögerungszeiten für p- und für s-polarisierte Pumpimpulse. Die Detektion von $\Delta^-(t)$ geschieht in der p-Polarisationskombination. Die Substrattemperaturen betragen 296 K bzw. 318 K.

Der schnelle magnetische Einbruch nach der optischen Anregung zeigt also innerhalb der experimentell möglichen Werte weder eine Abhängigkeit von der Pumpfluenz noch von der Substrattemperatur. Es wurde keine Zeitverzögerung zwischen der Etablierung der Elektronentemperatur und dem Einbruch der Magnetisierung beobachtet. Die Größen und die Zeitdauern der magnetischen Einbrüche sind vollkommen konsistent mit den Erwartungen von der klassischen Magnetisierungskurve her, und zeigen, daß die Magnetisierungsdynamik im Falle der dünnen Nickelfilme ebenso wie bei Nickelbulk [26] von der Elektronentemperatur bestimmt wird.

Um den in [105] gemachten Vorschlag eines Einbruchs der Magnetisierung aufgrund von Phonon-Magnon-Streuung bei Verzögerungszeiten von mehreren hun-

dert Pikosekunden zu untersuchen, wurde die Magnetisierungsdynamik eines 7 ML dicken Nickelfilmes auf Cu(001) bis zu Verzögerungszeiten von 500 ps verfolgt. Dieses ist in der Abbildung 6.12 für p- und für s-polarisierte Pumpimpulse durch Darstellung von $\Delta^-(t)$ gezeigt. Es zeigt sich eine stetige Wiederherstellung der Magnetisierung mit der Zeit, wie es von der Absenkung der Temperatur durch thermische Diffusion in das Substrat zu erwarten ist. Es ergeben sich keinerlei Anzeichen für eine Reduktion der Magnetisierung in diesem Zeitbereich, wie es in [105] berichtet wurde, sondern es ergibt sich, daß die Magnetisierung zu allen Zeiten von der Elektronentemperatur bestimmt wird.

Während des Entstehens dieser Arbeit gab es in jüngster Zeit weitere Veröffentlichungen, die mittels des linearen Kerreffektes einen ebenso schnellen Einbruch der Magnetisierung dokumentieren. Dabei haben Beaupaire *et al.* [104] ca. 50 nm dicke CoPt₃-Filme und Ju *et al.* ca. 20 nm dicke CoPt₃-Filme [118] und etwa 50 nm dicke zweilagige NiFe/NiO-Filme [119, 120] untersucht. Bei dem beobachteten Einbruch handelt es sich also nicht um einen Artefakt der verwendeten Technik, der Erzeugung der zweiten Harmonischen. Der zugrunde liegende Prozeß, der zu dem schnellen Magnetisierungseinbruch führt, ist aber noch nicht eindeutig geklärt und in der Literatur Gegenstand der Kontroverse. Fest steht, daß ein optischer Dipolübergang keine Spinumkehr induzieren kann, so daß es einen schnellen Streuprozeß geben muß, der zu einem Drehimpulsübertrag führt. Bei der Coulombstreuung zwischen Elektronen können diese zwar ihre Spinorientierung untereinander austauschen, insgesamt bleibt der Nettospin dabei aber erhalten. Ein Prozeß bei dem ein Drehimpulsübertrag möglich ist, ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung bei der Streuung angeregter Elektronen mit nichtangeregten während der Thermalisierung des Elektronengases. Da aber die Spin-Bahn-Wechselwirkung sehr klein ist, ist dieser Prozeß nicht sehr wahrscheinlich. Ein Drehimpulsübertrag ist ebenfalls möglich bei der Streuung von Elektronen mit dem Gitter. Im allgemeinen wird dieser Prozeß als zu langsam eingestuft, um den schnellen Einbruch der Magnetisierung zu erklären, denn die Energierelaxation zwischen Elektronen und Gitter vollzieht sich auf einer Pikosekundenzeitskala. Zwar beträgt die mittlere Stoßzeit zwischen den Elektronen und den Phononen etwa 20 – 30 fs [111], aber aufgrund des großen Energieunterschiedes zwischen den heißen Elektronen (1.5 eV) und den Phononen mit Energien von einigen meV muß ein angeregtes Elektron größenordnungsmäßig 100 Stöße vollziehen, um seine Energie an das Phononenbad abzugeben. Abgesehen von dem kleinen Energieübertrag ist jedoch bei jedem einzelnen Stoß ein Impulsübertrag möglich, was den schnellen Verlust der Spinorientierung erklären könnte.

Von den hier vorgestellten Experimenten kann nicht weiter auf die Natur des zugrundeliegenden physikalischen Prozesses geschlossen werden und es sind theoretische Behandlungen des Problems notwendig. Es gibt dafür bereits erste Ansätze im Rahmen von Vielteilchenberechnungen, die eine ultraschnelle Spindynamik zeigen [121, 122]. Eine einfache Interpretation der ablaufenden Prozesse scheint aber nicht

ohne weiteres möglich. Als untere Grenze für die Geschwindigkeit der Spindynamik in Nickel ergeben die Berechnungen einen Wert von 10 fs. Durch Einbeziehung der spektralen Anregungsbreite eines realen Laserpulses verlangsamt sich die berechnete Dynamik auf ca. 30 fs, was durchaus in den Bereich zugänglicher intensiver Pulsdauern kommt. Mit einer Zeitauflösung von ca. 40 fs wurden bereits nichtlinear magnetooptische Experimente an einer polykristallinen Nickeloberfläche an Luft durchgeführt [108], welche noch keine Zeitverzögerung zwischen dem Elektronen- und dem Spinsystem ergab.

6.2.2 Co/Cu(001)

Bei den dünnen Kobaltfilmen auf Cu(001) liegt die Magnetisierung ebenso in der Filmebene, wie bei den im vorhergehenden Abschnitt untersuchten Nickelfilmen. Es wird also wieder in der p-P-Polarisationskombination gemessen, mit der Magnetisierung senkrecht zur Einfallsebene und parallel zur [100]-Richtung. Im Gegensatz zu den Nickelfilmen besitzen die Kobaltfilme aber wesentlich höhere Curietemperaturen. Wie in Kapitel 5.2.1 gezeigt wurde, beträgt die Curietemperatur bereits bei einer Dicke von 1.9 ML ca. 350 K und steigt danach steil mit der Schichtdicke an.

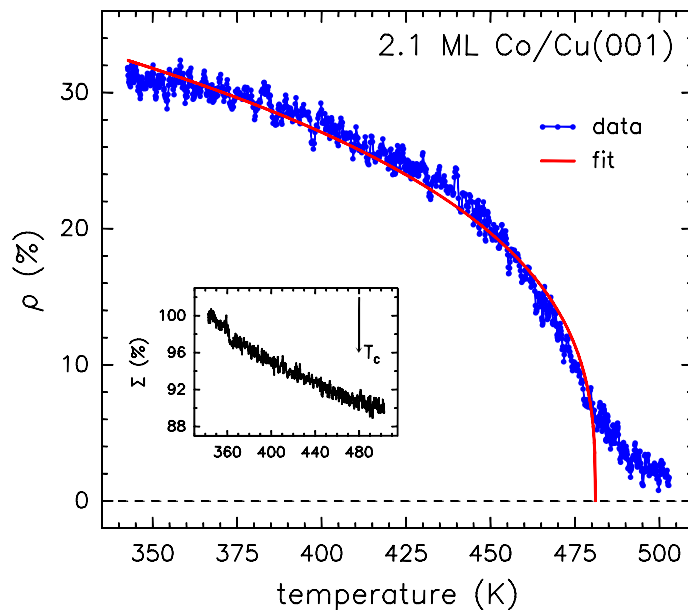


Abbildung 6.13:

Magnetisierungskurve für 2.1 ML Co/Cu(001), gemessen mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Laserszillator in der p-P-Polarisationskombination. Daran ist ein exponentieller Fit angepaßt, der eine Curietemperatur von 480 K und einen kritischen Exponenten von 0.33 ergibt. Der Inset zeigt die Temperaturabhängigkeit von Σ , der normierten Summe.

In der Abbildung 6.13 ist die statische Magnetisierungskurve für 2.1 ML Co/Cu(001) dargestellt. Diese ergibt sich genau wie im Falle des 8 ML dicken Nickelfilmes (Abb. 6.9) aus der Messung des magnetischen Kontrastes ρ mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Laserszillator als Funktion der Substrattemperatur. Die Messung

wurde nicht bei noch höheren Temperaturen weitergeführt, um Interdiffusion zwischen dem Kobalt und dem Kupfer zu vermeiden. Ein exponentieller Fit der Form $M = M_0(1 - T/T_c)^\beta$ liefert hierbei eine Curietemperatur von ca. 480 K in sehr guter Übereinstimmung mit [21]. Der kritische Exponent β ergibt sich zu 0.33, wofür es leider keinen Vergleichswert in der Literatur gibt. Im Gegensatz zu dem 8 ML dicken Nickelfilm wird die normierte Summe der Ausbeuten an zweiter Harmonischer für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen Σ mit steigender Substrattemperatur kleiner, wie in dem Inset in der Abb. 6.13 gezeigt ist. Für die zeitaufgelösten Messungen wird daher ein transienter Einbruch in den Summen $\Delta^+(t)$ erwartet. Auch hier zeigt sich in dem Verlauf von Σ bei Überschreiten der Curietemperatur keine Unstetigkeit, was wiederum eine Bestätigung für die Vernachlässigbarkeit der ungeraden gegenüber den geraden Anteilen in der Gleichung 6.3 und für die Magnetisierungsunabhängigkeit der geraden Anteile entsprechend Gleichung 6.2 ist.

Die Beobachtbarkeit der Magnetisierungsdynamik der Kobaltfilme auf Cu(001) ist beschränkt auf den relativ kleinen Dickenbereich zwischen zwei und vier Monolagen. Dünnere Filme sind bei Raumtemperatur noch paramagnetisch und die dickeren Filme haben derart hohe Curietemperaturen, daß die zur Verfügung stehende Laserpulsenergie nicht ausreicht, um die Magnetisierung merklich zu beeinflussen.

Eine Serie von zeitaufgelösten Messungen an Kobaltfilmen auf Cu(001) für die Dicken von zwei, drei und vier Monolagen ist in der Abbildung 6.14 wiedergegeben. Um den kohärenten Artefakt zu eliminieren, wurden hierbei s-polarisierte Pumpulse verwendet. In der Abbildung 6.14b, d und e sind die normierten Summen $\Delta^+(t)$ dargestellt. Sie zeigen den von der statischen Messung von Σ her erwarteten Einbruch mit steigender Elektronentemperatur (vergl. Abb. 6.13) und die Änderungen bewegen sich wie bei den Nickelfilmen im Bereich einiger Prozent. Die normierten Differenzen $\Delta^-(t)$, welche die Magnetisierungsdynamik wiedergeben, sind in der Abbildung 6.14a, c und e gezeigt. Die Einbrüche der Magnetisierung sind genauso schnell wie bei den Nickelfilmen, aber aufgrund der sehr viel höheren Curietemperaturen nicht so stark ausgeprägt. Der steile Anstieg der Curietemperatur mit der Filmstärke spiegelt sich in der schnellen Abnahme des maximal erreichbaren Magnetisierungseinbruchs mit zunehmender Bedeckung wider. Die Relaxation sowohl der Summen $\Delta^+(t)$ als auch der Differenzen $\Delta^-(t)$ ist bei den Kobaltfilmen viel schneller als bei den Nickelfilmen (vergl. Abb. 6.4 und 6.10). Die Ursache hierfür dürfte die noch stärkere Elektron-Phonon-Kopplung als in Nickel sein, was zu einer deutlich schnelleren Thermalisierung zwischen Elektronen und Gitter führt. In der Literatur werden für die Elektronen-Phononen-Kopplungskonstante von Kobalt doppelt [123] bis dreimal [124] so hohe Werte angegeben wie für Nickel mit einem g von etwa $36 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3\text{K}$ [112].

Um die Größe der maximal induzierbaren magnetischen Einbrüche auszuloten,

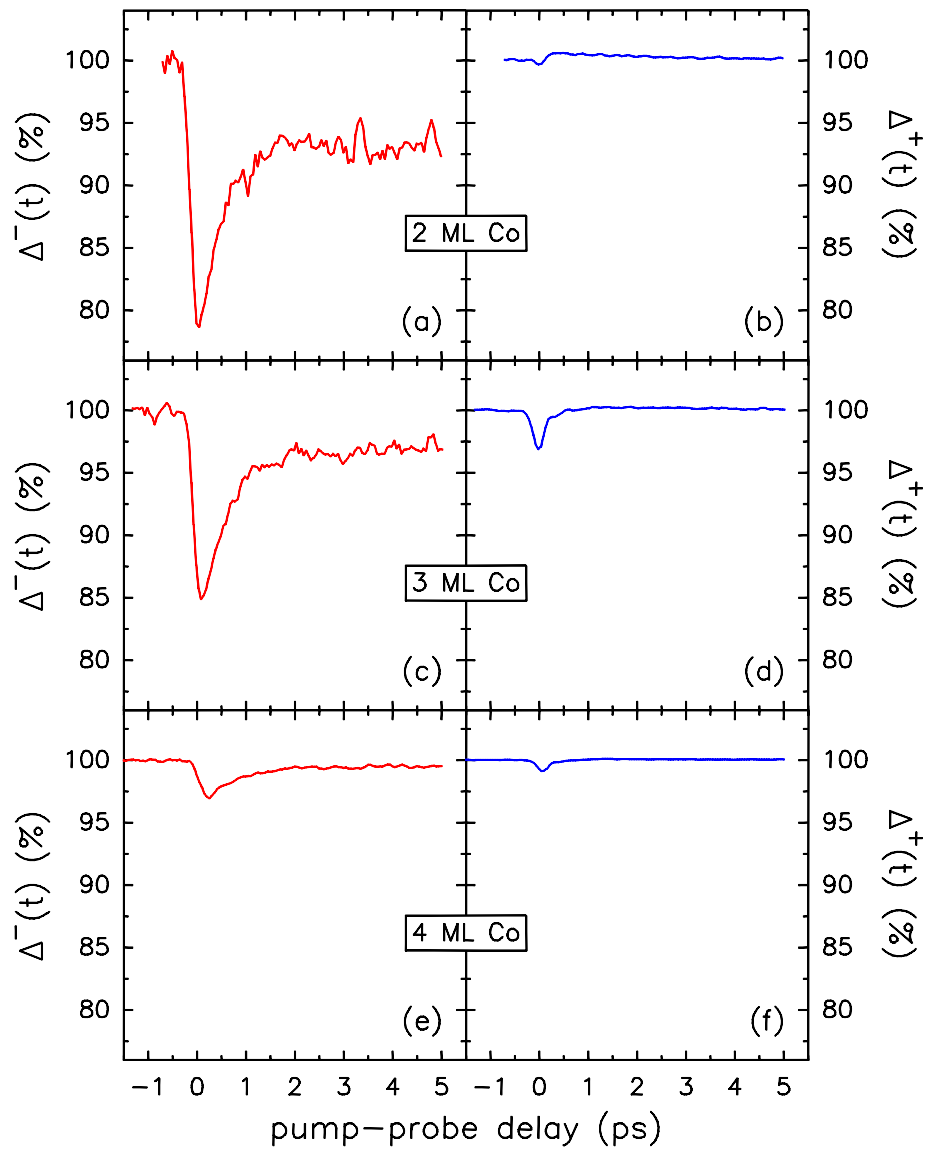


Abbildung 6.14: Zeitabhängigkeit der normierten Differenzen $\Delta^-(t)$ (a, c und e) und der normierten Summen $\Delta^+(t)$ (b, d und f) für 2, 3 und 4 ML Co/Cu(001). Die Substrattemperatur beträgt etwa 323 K und die Detektion erfolgt in der p-P-Polarisationskombination. Die Pumpulse sind s-polarisiert, mit einer Fluenz von ca. 10 mJ/cm².

wurden an den 3 und den 4 ML Co/Cu(001) auch Messungen mit p-polarisierten Pumpimpulsen durchgeführt. Die dabei verwendeten Pumpfluenzen betragen etwa 12 mJ/cm², d. h. die Messungen sind vergleichbar mit den Messungen an dem 7 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001) (s. Abb. 6.7). Wie aufgrund der sehr viel höheren Curietemperaturen von ca. 700 K bzw. 880 K [21] zu erwarten ist, können auch mit p-polarisierten Pumpimpulsen keine vollständigen Einbrüche der Magnetisierung induziert werden. Die erreichbaren Einbrüche liegen bei etwa 70 % für 3 ML und

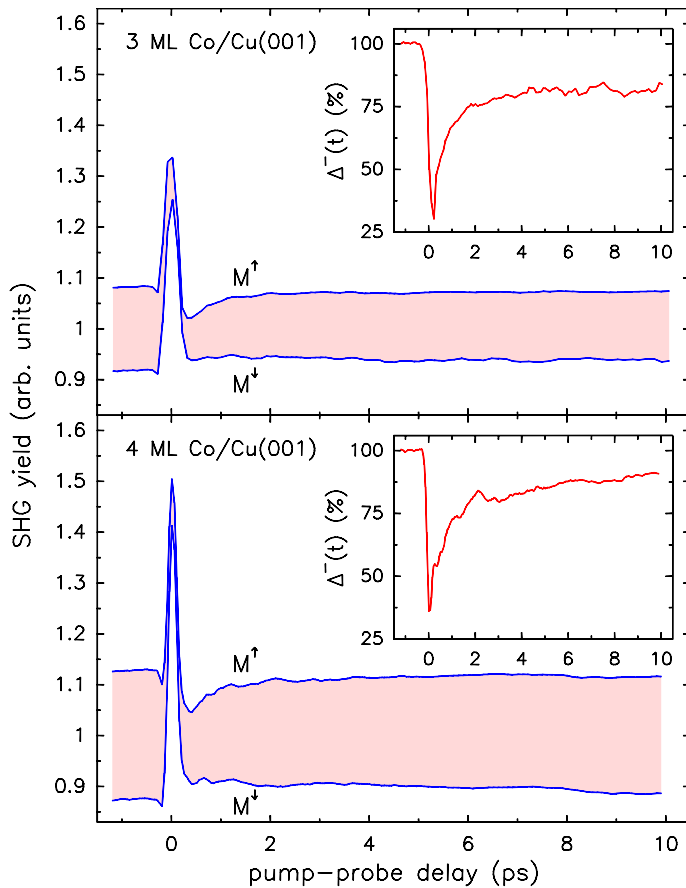


Abbildung 6.15:

Zeitabhängigkeit der Ausbeute an zweiter Harmonischer für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen für 3 und 4 ML Co/Cu(001) bei p-polarisierten Pumpimpulsen mit einer Fluenz von ca. 12 mJ/cm^2 . Die Insets zeigen jeweils die zugehörigen normierten Differenzen. Die Polarisationskombination ist p-P und die Substrattemperatur beträgt etwa 323 K.

etwa 60 % für 4 ML (vergl. Insets in Abb. 6.15). Die größere relative Aufspaltung zwischen den Ausbeuten an zweiter Harmonischer für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen bei negativen Verzögerungszeiten für 4 ML Co/Cu(001) im Verhältnis zu 3 ML, ist konform mit der Entwicklung des magnetischen Kontrastes ρ für geringe Bedeckungen, wie es in Kapitel 5.2.1 gezeigt wurde.

Genauso wie bei Nickel tritt auch bei Kobalt ein schneller Magnetisierungseinbruch nach optischer Anregung auf. Obwohl eine systematische Analyse der Pumpfluenz- und Substrattemperaturabhängigkeit des magnetischen Einbruchs wie bei den Nickelfilmen auch hier wünschenswert wäre, so sind die allgemeinen Überlegungen die im vorhergehenden Kapitel gemacht wurden, insbesondere auch die zu dem zugrundeliegenden Prozeß, analog übertragbar.

6.3 Gitterdynamik

Während sich das vorhergehende Kapitel 6.2 auf die Kurzzeitdynamik der Elektronen und der Magnetisierung konzentriert hat, wird in diesem Kapitel gezeigt, daß es daneben auch zu einer Anregung mechanischer Schwingungen der Filme kommen kann.

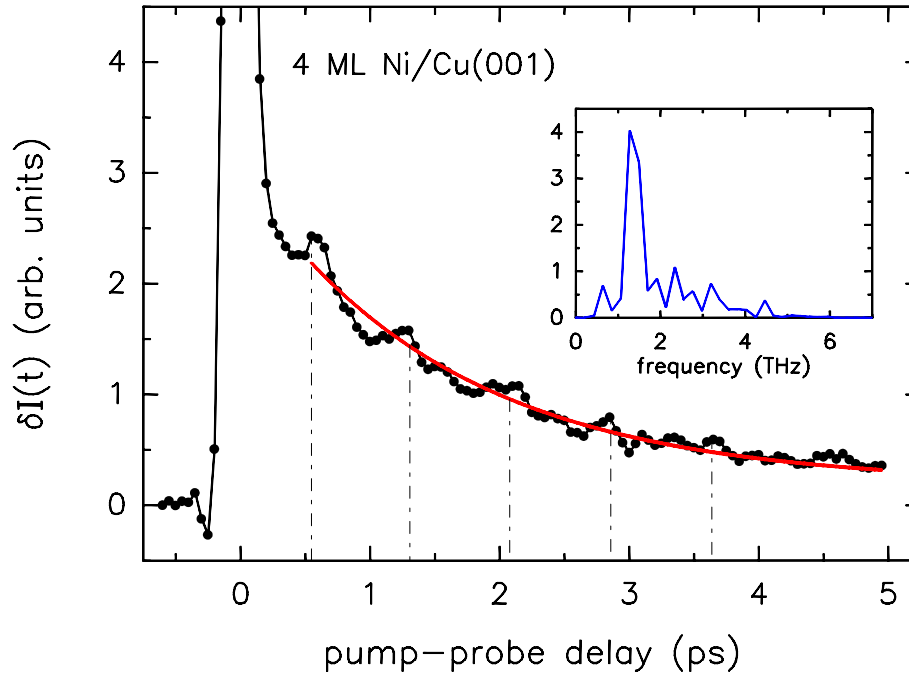


Abbildung 6.16: Darstellung der pumpinduzierten Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer an 4 ML Ni/Cu(001). Die Polarisationskombination ist p-P und die Pumppulse sind p-polarisiert mit einer Fluenz von ca. 12 mJ/cm^2 . Die Substrattemperatur beträgt ca. 323 K. Der exponentielle Fit liefert eine Zeitkonstante von etwa 1.6 ps. Die vertikalen Linien markieren die dem Zerfall überlagerte Oszillation. Der Inset zeigt die Fouriertransformierte, welche eine Frequenz von ca. $(1.4 \pm 0.2) \text{ THz}$ ergibt.

In der Abbildung 6.16 ist noch einmal die bereits in der Abbildung 6.4 gezeigte pumpinduzierte Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer an 4 ML Ni/Cu(001) dargestellt. Bei dieser Dicke und einer Substrattemperatur von etwa 323 K ist der Film paramagnetisch (vergl. Kap.5.2.2). Neben dem kohärenten Artefakt um den Zeitnullpunkt zeigt sich ein exponentieller Abfall des Signals mit einer Zeitkonstanten von ca. 1.6 ps (1/e-Zeit), was länger ist als die Relaxationsdauern von Nickelbulk mit ca. 0.75 ps [26, 108] und von Kupferbulk mit ca. 0.9 ps [37, 116]. Dieses könnte ein Hinweis darauf sein, daß die thermalisierten heißen Elektronen im Gegensatz zu den nichtthermalisierten ballistischen Elektronen (s. Kap. 6.2.1) bei ihrer Diffusion durch die Ni/Cu-Grenzfläche behindert sind, z. B.

durch Streuung an residualen Defekten. Eine solche Verringerung der thermischen Diffusivität ist für Ni/Ti- und Ni/Zr-Multilagensysteme in pikosekundenzeitaufgelösten Thermoreflexionsmessungen nachgewiesen worden [125].

Interessanterweise zeigt sich auf dem abfallenden Signal eine schwache Oszillation, dessen Maxima in der Abbildung 6.16 durch die vertikalen Linien angedeutet sind. Die Fouriertransformierte des oszillierenden Anteils des exponentiellen Zerfalls ist in dem Inset in der Abbildung 6.16 gezeigt und ergibt eine Oszillationsfrequenz von etwa (1.4 ± 0.2) THz, wobei der Fehler aus der Peakbreite resultiert. Der Ursprung dieser Oszillation liegt wahrscheinlich in einer vibratorischen Anregung des Nickelfilmes.

Wie in Kapitel 6.2.1 dargelegt wurde, sind die in den dünnen Nickelfilmen absorbierten Energiedichten recht hoch. Aufgrund der sehr großen Elektronen-Phononen-Kopplungskonstante von Nickel thermalisieren die Elektronen und das Gitter in weniger als 1 ps [124], das heißt, daß das Gitter des Nickelfilmes schon zu kurzen Zeiten merklich geheizt ist. Es kommt zu einer schnellen Expansion des Nickelfilmes, die eventuell noch von der vertikalen Verspannung des Filmgitters aufgrund der Gitterfehlانpassung unterstützt wird. Diese schnelle Expansion gegenüber dem noch nicht ausgedehnten Substrat führt zu einer vibratorischen Anregung des Filmes.

Die Frage ist nun, um was für eine Anregung es sich dabei handelt. In [126] wurden die Phononen-Dispersionen unter anderem für 4 ML Ni/Cu(001) berechnet. Es ergeben sich dabei mögliche Phononenmoden innerhalb des Filmes und Oberflächenphononen, also Scherr- und Streck-schwingungen der oberen Atomlagen, sogenannten Rayleighmoden [127]. Beide Phononenarten wurden experimentell auch mittels Elektronenenergieverlustspektroskopie nachgewiesen [128]. Mit der Erzeugung der zweiten Harmonischen als optischer Methode ist man auf die unmittelbare Umgebung des $\bar{\Gamma}$ -Punktes [129] festgelegt. Dort zeigen die Oberflächenphononen aber verschwindend kleine Frequenzen, weit unterhalb von 1.4 THz, und die Frequenzen der Filmmoden sind mit ca. 8 THz jenseits der experimentellen Zeitauflösung.

Eine einfache Abschätzung mittels der Kraftkonstanten führt aber zu der Erkenntnis, daß der Nickelfilm als ganzes gegen die Substratoberfläche schwingen sollte. In [130] werden die Bulkwerte der Kraftkonstanten für die Cu-Cu- und die Ni-Ni-Wechselwirkung mit $k_{\text{Cu}} = 28.1 \text{ kg/s}^2$ und $k_{\text{Ni}} = 37.9 \text{ kg/s}^2$ angegeben. Dieses zeigt zum einen, daß der Nickelfilm eine größere Steifigkeit besitzt als das Kupfersubstrat, zum anderen kann daraus durch Mittelwertbildung ein Wert von $k_{\text{Cu-Ni}} = 33.0 \text{ kg/s}^2$ für die Cu-Ni-Wechselwirkung abgeschätzt werden. Bei einem 4 ML dicken Nickelfilm sind, unter der Annahme, daß die Nickelatome nicht gegeneinander schwingen, im Mittel vier Nickelatome über die Kraftkonstante $k_{\text{Cu-Ni}}$ an ein Kupferatom gekoppelt. Mit einer relativen Atommasse für ein Nickelatom von 58.71 [131] und der atomaren Masseneinheit m_u ergibt sich für jeweils vier Nickelatome eine Masse m von ca. $3.9 \cdot 10^{-25} \text{ kg}$. Mit der klassischen Formel für

die Frequenz ν eines Federpendels mit der Masse m und der Kraftkonstanten $k_{\text{Cu-Ni}}$ ergibt sich daraus :

$$\nu = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_{\text{Cu-Ni}}}{m}} = 1.46 \text{ THz} \quad , \quad (6.10)$$

in Übereinstimmung mit der gemessenen Oszillationsfrequenz von (1.4 ± 0.2) THz. Aufgrund der harmonischen Störung der elektronischen Struktur der Ni/Cu-Grenzfläche durch diese Vibration, werden die Oszillationen im Signal der zweiten Harmonischen sichtbar.

Die Oszillationen treten im Filmdickenbereich von etwa 3 bis 7 ML auf, wobei die Oszillationen mal stärker und mal weniger stark ausgeprägt waren, und die Messung in Abbildung 6.16 diese besonders deutlich zeigt. Neben der Messung an dem 4 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001), erwiesen sich in Bezug auf die Fouriertransformierten auch die Messungen an dem 5 ML und dem 6 ML dicken Nickelfilm als auswertbar. Die sich ergebenden Oszillationsfrequenzen sind zusammen mit dem gemäß Gleichung 6.10 berechneten Verlauf in der Abbildung 6.17 dargestellt. Es zeigt sich, daß die Oszillationsfrequenz mit zunehmender Filmdicke abnimmt, wie man es von der größer werdenden Masse erwarten würde. Außerdem ist die Übereinstimmung der Messungen mit der einfachen Abschätzung auf Grundlage des Federpendels auch für diese beiden Filmdicken im Rahmen der Fehler recht gut.

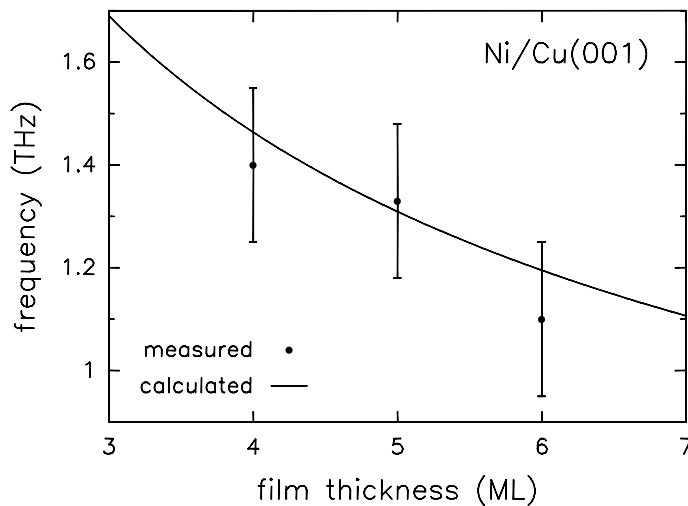
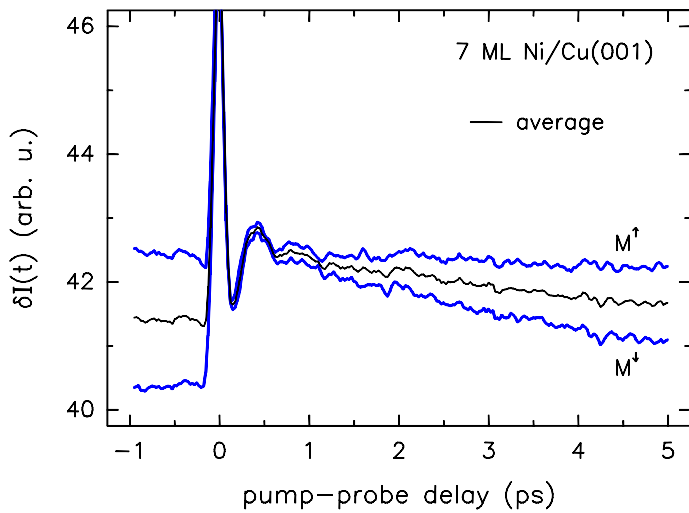


Abbildung 6.17:

Darstellung der sich ergebenden Oszillationsfrequenz als Funktion der Filmdicke. Für 4, 5 und 6 ML existieren Messwerte. Zusätzlich ist der gemäß Gl. 6.10 berechnete Verlauf dargestellt.

Mit steigender Bedeckung dämpft die Oszillation stark aus, was auf die größer werdende Masse und die wahrscheinlich zunehmende Rauigkeit der Filme zurückzuführen ist. Dieses ist in der Abbildung 6.18 erkennbar in welcher die zeitabhängigen Ausbeuten an Frequenzverdoppelter für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen, sowie deren Mittelwert für 7 ML Ni/Cu(001) dargestellt sind.

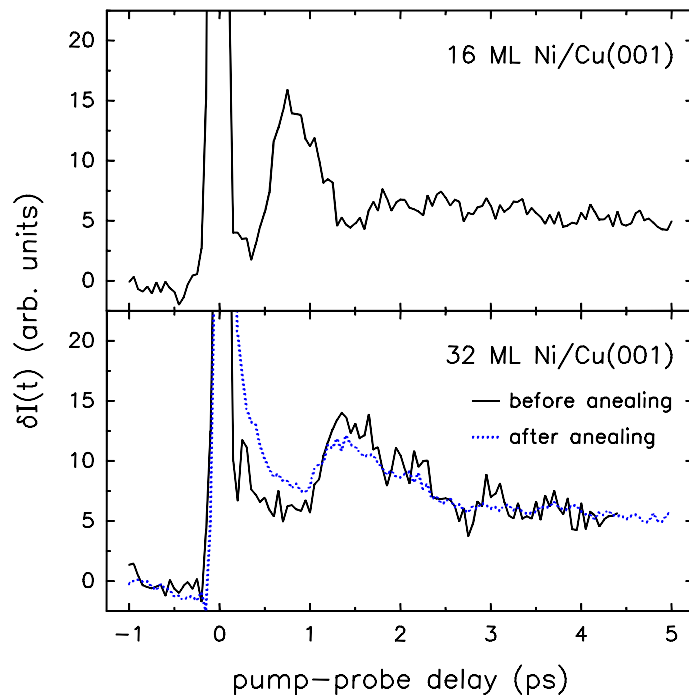
**Abbildung 6.18:**

Darstellung der Zeitabhängigkeit der Ausbeute an zweiter Harmonischer für 7 ML Ni/Cu(001) für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen, sowie deren Mittelwert. Die Polarisationskombination ist p-P und die Pumppulse sind p-polarisiert mit einer Fluenz von ca. 12 mJ/cm^2 . Die Substrattemperatur beträgt ca. 300 K.

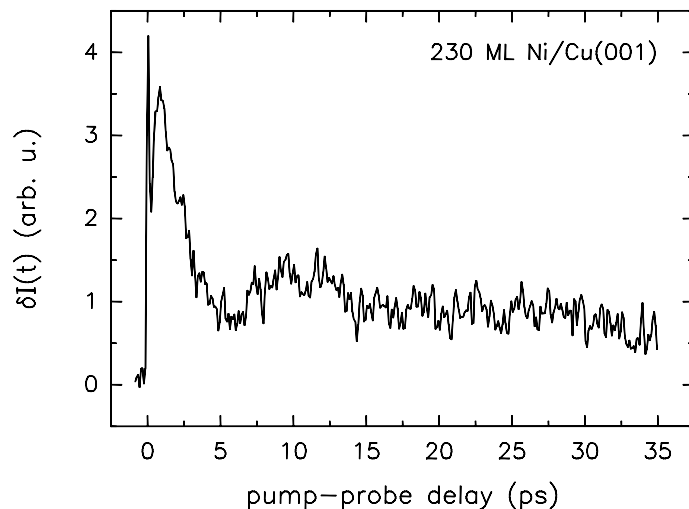
Bemerkenswert in der Abbildung 6.18 ist der steile Signalanstieg bei der positiven Verzögerungszeit von ca. 0,5 ps. Wie mit den optischen Konstanten des Bulks für einen 4 ML dicken Nickelfilm abgeschätzt wurde (vergl. Kap. 6.2.1) beträgt das Absorptionsverhältnis zwischen dem Kupfersubstrat und dem Nickelfilm etwa 1 : 2,6. Für einen 7 ML dicken Nickelfilm ergibt sich bereits ein Absorptionsverhältnis von ca. 1 : 1,5, so daß mehr Energie im Film deponiert wird. Da bei den dünnen Filmen die Absorption nach dem Lambert-Beer-Gesetz noch stärker zunimmt, als das Volumen, steigt auch die Energiedichte, so daß die Expansion effizienter wird. Die Ausdehnung führt zu einer Verringerung der Dispersion der d-Bänder in der Nickelbandstruktur, was äquivalent zu einer Erhöhung der Besetzungszahldichte an der Fermienergie ist [132]. Als Resultat ergibt sich eine Verstärkung der Ausbeute an zweiter Harmonischer (vergl. Kap. 6.2.1), die dem elektronischen Relaxationssignal wie in Abb. 6.16 überlagert ist.

Da sich jede Gitterausdehnung mit der Schallgeschwindigkeit des entsprechenden Materials ausbreitet, muß sich das Expansionsmaximum mit weiter steigender Bedeckung zu längeren Verzögerungszeiten hin verschieben, wenn die Erklärung dafür richtig sein soll. Daß dieses tatsächlich der Fall ist, ist in den Abbildungen 6.19 und 6.20 gezeigt. Es ergibt sich eine Verschiebung des Maximums von den ca. 0,8 ps für 16 ML auf etwa 1,5 ps für 32 ML (s. Abb. 6.19). In diesem Dickenbereich sind die Filme bei einer Substrattemperatur von etwa 313 K ferromagnetisch, aber die Magnetisierung steht senkrecht zur Probenoberfläche (s. Kap. 5.2.2), so daß bei der verwendeten p-P-Polarisationskombination kein magnetischer Kontrast im Signal der Frequenzverdoppelten auftritt (vergl. Tab. 2.1).

Für 230 ML, was etwa 40 nm entspricht, ergibt sich eine Verschiebung auf ungefähr 10 ps (s. Abb. 6.20). Um diese Verschiebung qualitativ auszuwerten, wurden noch weitere Messungen wie die in den Abbildungen 6.19 und 6.20 an unterschied-

**Abbildung 6.19:**

Darstellung der pumpinduzierten Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer an 16 und 32 ML Ni/Cu(001). Die Polarisationskombination ist p-P und die Pump-pulse sind p-polarisiert mit einer Fluenz von ca. 12 mJ/cm^2 . Die Substrattemperatur beträgt ca. 310 K. Die gestrichelte Linie für den 32 ML dicken Film zeigt eine Messung nachdem der Film thermisch geglättet wurde.

**Abbildung 6.20:**

Darstellung der pumpinduzierten Änderung der Ausbeute an zweiter Harmonischer an 230 ML Ni/Cu(001). Die experimentellen Parameter sind die gleichen wie in der Abb. 6.19, nur daß die Substrattemperatur 300 K beträgt.

lichen Filmdicken durchgeführt. Das Ergebnis ist in der Abbildung 6.21 dargestellt, wobei dort die Filmdicke über der Zeit des Auftretens des Expansionsmaximums aufgetragen ist. Es zeigt sich, daß alle Meßpunkte für Filmdicken größer als etwa 2 nm ($= 16 \text{ ML}$) auf einer Geraden mit einer Steigung von 4200 m/s liegen. Der Einfluß leicht unterschiedlicher Substrattemperaturen wurde dabei vernachlässigt. Die eingetragenen Fehler ergeben sich aus der Ungenauigkeit der Maximums- bzw. der Dickenbestimmung. Es ergibt sich eine Schallgeschwindigkeit von 4200 m/s . Gemäß [131] gilt für die longitudinale Schallgeschwindigkeit v_l eines kubischen Kristalls bei Ausbreitung in der $[100]$ -Richtung :

$$v_l = \sqrt{\frac{c_{11}}{\rho}} \quad , \quad (6.11)$$

mit dem Steifigkeitsmodulus c_{11} und der Dichte ρ . Mit den in [131] angegebenen Werten von $c_{11} = 16 \cdot 10^{10} \text{ N/m}^2$ und $\rho = 8.9 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ ergibt sich für diesen Fall eine Schallgeschwindigkeit von 4240 m/s , was in Anbetracht der Meßfehler exakt mit dem ermittelten Wert übereinstimmt.

Der Inset in der Abbildung 6.21 zeigt eine Abweichung von der Geschwindigkeitsgeraden für die geringen Bedeckungen zu kleineren Schallgeschwindigkeiten hin, was für Metallfilme bei Dicken unter 10 nm auch schon dokumentiert wurde [133]. Die gestrichelte Linie in der Abbildung 6.21 soll diesen Verlauf verdeutlichen.

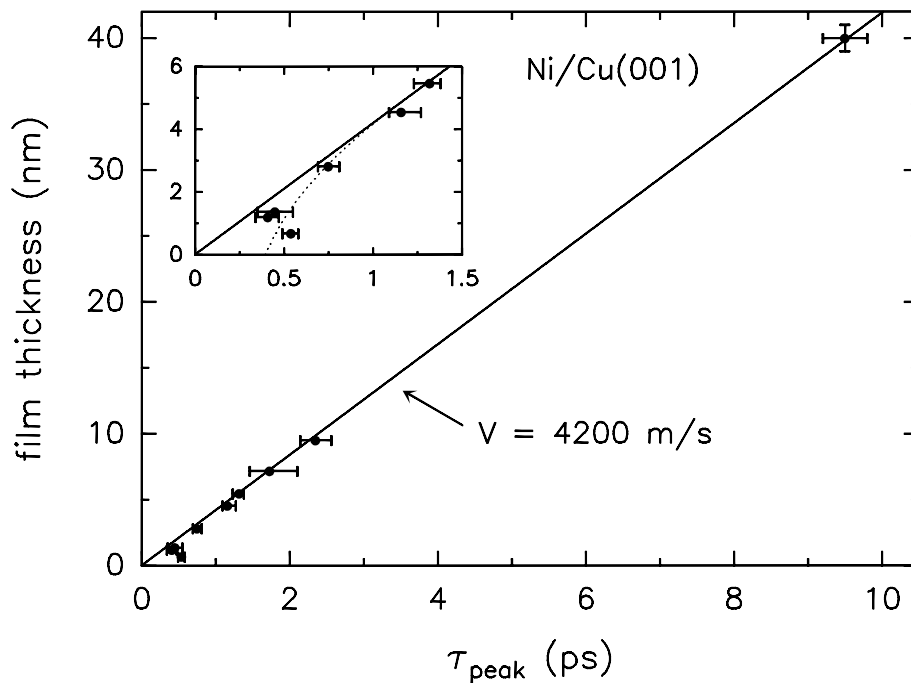


Abbildung 6.21: Darstellung der Schichtdicke über den Zeitpunkten zu denen das erste Maximum in den transienten Signalen der zweiten Harmonischen wie in den Abb. 6.16-6.20 auftritt. Alle Punkte über 2 nm liegen auf einer Geraden, die eine Schallgeschwindigkeit von ca. 4200 m/s ergibt. Der Inset zeigt die Abweichung von der Geraden für ganz geringe Bedeckungen. Umrechnungsfaktor : $1 \text{ ML} = 0.17 \text{ nm}$.

Die in den Verläufen für 7, 16 und 32 ML in den Abbildungen 6.19 und 6.20 erkennbaren Strukturen sind im Rahmen des Rauschens qualitativ dieselben. Für den thermisch geglätteten 32 ML dicken Film zeigt sich vor dem Auftreten des Expansionsmaximums in der Asymmetrie des Korrelationspeaks die Andeutung einer elektronischen Relaxation. Bei dem 230 ML dicken Film in der Abbildung 6.20 ist das Expansionsmaximum zu so langen Verzögerungszeiten verschoben,

daß die elektronische Relaxation zu kurzen Zeiten klar zu erkennen ist. Es ergibt sich dafür eine Zeitkonstante ($1/e$ -Zeit) von etwa 2 ps, was vergleichbar ist mit den 1.6 ps für 4 ML und damit noch einmal auf eine behinderte Diffusion der heißen Elektronen durch die Ni/Cu-Grenzfläche hindeutet.

Es sei noch kurz darauf hingewiesen, daß der Korrelationspeak mit zunehmender Nickelbedeckung kleiner wird und bei 230 ML Ni/Cu(001) fast gar nicht mehr auftritt. Dies ist im Einklang mit der allgemeinen Beobachtung, daß an den Edelmetallen ein solch kohärenter Artefakt generiert werden [37, 116] kann, an Nickelbulk aber nicht auftritt [26, 108]. Das bedeutet, daß die Edelmetalle ein deutlich größeres $\chi^{(4)}$ besitzen als Nickel (vergl. Kap. 6.2.1).

Um ein umfassendes Bild der Gitterdynamik zu erhalten, sind weitere Messungen, insbesondere mit höherer Zeitauflösung, sicherlich erforderlich. Aus den momentan vorliegenden Messungen geht aber zweifelsfrei hervor, daß es eine schnelle Gitterexpansion gibt, die sich mit der Schallgeschwindigkeit von ca. 4200 m/s ausbreitet. Bei geringen Bedeckungen, d. h. kleiner als ungefähr 7 ML, nimmt die Schallgeschwindigkeit ab und die Gitteranregung führt zusätzlich zur Ausdehnung zu einer Oszillation des gesamten Filmes gegen das Substrat, mit Frequenzen im Bereich von 1.5 THz.

6.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die Messungen zur Magnetisierungs- und Gitterdynamik dünner Nickel- und Kobaltfilme auf Cu(001) im UHV mittels zeitaufgelöster Frequenzverdoppelung vorgestellt.

Die Untersuchung der Magnetisierungsdynamik beschränkte sich dabei auf die Dickenbereiche von 6 bis 8 ML im Fall von Nickel und 2 bis 4 ML im Fall von Kobalt, wobei die Magnetisierung in beiden Fällen in der Filmebene liegt. Dickere Nickelfilme sind senkrecht zur Oberfläche magnetisiert, was experimentell ein zu geringes Signal-zu-Rausch-Verhältnis bedeutet, während dickere Kobaltfilme so hohe Curietemperaturen besitzen, daß die induzierbaren Effekte zu klein werden.

Insgesamt hat sich gezeigt, daß sich die Magnetisierung der dünnen Filme auf einer ultrakurzen Zeitskala, die nur durch die verwendete Pulsdauer begrenzt ist, mit einer optischer Anregung manipulieren läßt. Aufgrund der geringen Curietemperaturen der Nickelfilme, war es möglich die Magnetisierung für Zeitdauern in der Größenordnung einer Pikosekunde vollkommen auszulöschen, d. h. lokal einen ultraschnellen Phasenübergang von der ferromagnetischen in die paramagnetische Phase zu induzieren. Für einen 7 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001) konnte die

Magnetisierung sogar für eine Dauer von 2 ps unterdrückt werden. Ferner ergibt sich im Rahmen der experimentellen Zeitauflösung keine Verzögerung zwischen der Elektronen- und der Spindynamik. Außerdem konnte ein Phaseneffekt im nichtlinearen Resonanz ausgeschlossen werden.

Durch systematische Messungen des Magnetisierungseinbruches in 8 ML Ni/Cu(001) in Abhängigkeit von der Pumpfluenz und der Substrattemperatur konnte durch Vergleich mit der im thermischen Gleichgewicht gemessenen Magnetisierungskurve konsistent geschlossen werden, daß die Magnetisierungsdynamik von der Elektronentemperatur bestimmt wird und qualitativ der klassischen Magnetisierungskurve folgt. Die dafür im thermischen Gleichgewicht gemessene Magnetisierungskurve für 8 ML Ni/Cu(001) zeigt einen kritischen Exponenten von 0.41, der mit dem Literaturwert übereinstimmt. Durch Messung des Zeitverhaltens bis hin zu 500 ps konnte gezeigt werden, daß es keinen verzögerten Einbruch der Magnetisierung durch Phonon-Magnon-Streuung gibt, sondern daß ihr Wiederaufbau einfach durch die thermische Abkühlung bestimmt ist.

Da die Kobaltfilme höhere Curietemperaturen besitzen als die Nickelfilme, sind die dort erreichbaren Magnetisierungseinbrüche bei gleicher Pumpfluenz nicht so weitgehend wie bei Ni/Cu(001). Es zeigt sich aber auch hier, daß die Magnetisierungsdynamik von der Elektronendynamik bestimmt wird und daß es innerhalb der experimentellen Zeitauflösung keine Verzögerung der Spindynamik gegenüber der Elektronendynamik gibt. In Übereinstimmung mit der steil mit der Filmdicke anwachsenden Curietemperatur werden die mit der gleichen Fluenz erzielbaren Einbrüche mit steigender Bedeckung kleiner. Ebenso sind die mit s-polarisierten Pumpimpulsen bei gleicher Filmdicke erzeugten Einbrüche aufgrund der kleineren Absorption kleiner, als für p-polarisierte Pumpimpulse. Obwohl für die Kobaltfilme keine systematische Untersuchung der Pumpfluenz- und Substrattemperaturabhängigkeit des magnetischen Einbruchs wie bei den Nickelfilmen durchgeführt wurde, zeigt sich insgesamt dennoch eine Konsistenz der magnetischen Kurzdynamik mit den magnetischen Eigenschaften im thermischen Gleichgewicht. Die statische Magnetisierungskurve liefert für 4 ML Co/Cu(001) einen kritischen Exponenten von 0.33.

Neben der Kurzdynamik der Magnetisierung wurden auch Anregungen mechanischer Schwingungen der Nickelfilme beobachtet. Dabei zeigte sich, daß es in Folge der optischen Anregung zur einer schnellen Expansion der Filme kommt, die bei geringen Bedeckungen zu einer Oszillation des gesamten Filmes gegen das Kupfersubstrat führt. Diese Vibration äußert sich als kleine Oszillation auf den transienten Signalen der zweiten Harmonischen. Eine einfache Abschätzung der Oszillationsfrequenz eines 4 ML dicken Nickelfilmes liefert mit 1.4 THz eine exzellente Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Oszillationen sind aufgrund starker Dämpfung nur bis zu Schichtdicken von ca. 7 ML sichtbar, wobei sie stark ausdämpfen. Bei dickeren Lagen ist nur noch die Ausdehnung des Filmes zu be-

obachten, die zu einem Maximum in der Ausbeute an zweiter Harmonischer führt. Durch Auswertung der Maximumsposition als Funktion der Schichtdicke ergibt sich eine Schallgeschwindigkeit von ca. 4200 m/s, was mit dem Literaturwert für einen Nickeleinkristall bei Schallausbreitung senkrecht zur Oberfläche sehr gut übereinstimmt.

