

8 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung von laserinduzierter Elektronen-, Gitter- und Spindynamik. Hierfür wurden zwei repräsentative Seltenerd-systeme untersucht: das ferromagnetische Gd(0001) und das paramagnetische Y(0001). Die wichtigsten Punkte dieser Arbeit sind:

- die Untersuchung des Anregungsmechanismus, der Kopplung einer kohärenten Gitter- und Spinanregung an der Gd(0001) Oberfläche
- die Detektion elementarer spinabhängiger Streuprozesse, die im Fall von Gd mit seinen lokalisierten magnetischen Momenten, verantwortlich sind für ultraschnelle, optisch induzierte Entmagnetisierung.
- die physikalischen Grundlagen propagierender akustischer Phononen in dünnen Y(0001) Filmen und die Auswertung von elastischen und photoelastischen Eigenschaften des Systems.

Die benutzten Untersuchungsmethoden sind zeitaufgelöste lineare Reflektivität und Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG), die eine simultane komplementäre Information über die Volumen und Oberfläche/Grenzfläche Dynamik ermöglichen. Die wichtigsten Ergebnisse sind:

Kohärente Gitter- und Spindynamik

Die optische Anregung des austauschufgespaltenen Oberflächenzustand von Gd(0001) löst simultan eine kohärente Schwingungsdynamik des Gitter- und Spin-Subsystems an der Oberfläche bei einer Frequenz von 3 THz aus. Die Gitter und Spindynamik konnte man trennen dank der Symmetrie von geraden und ungeraden SH Feldern bezüglich der Magnetisierungs Umkehrung. Das kohärente optische Phonon, gemessen mit dem geraden SH Feld, repräsentiert die Schwingung der obersten Atomlage in Bezug auf tieferliegende Schichten entlang der Oberfläche. Die periodische Modulation des Zwischenlagenabstands zwischen zwei benachbarten Ebenen senkrecht zur Oberfläche moduliert die Austauschwechselwirkung J zwischen benachbarten Atomen. Dadurch entsteht eine oszillatorische Variation des magnetischen Moments bei der Frequenz der Gitter-Schwingung. Wir zeigen damit eine Möglichkeit, wie das Spinsystem mit THz Frequenzen kohärent dem Gitter folgen kann. Die kohärente Phonon-Magnon-Mode stellt für Gd einen neuen Typ von magnetoelastischer Wechselwirkung dar, die nicht von der Spinbahnkopplung, sondern von der dynamischen Modulation der Austauschwechselwirkung vermittelt wird. Aus der kosinusartigen Phase der Oszillationen bei $t=0$ schließen wir auf einen DECP (displacive excitation of coherent phonons) Anregungsmechanismus der Gitter-Schwingung.

Wellenlänge-abhängige Messungen zeigen einen ladungsgesteuerten Anregungsmechanismus. Ausserdem wird dieses Ergebnis durch zeitaufgelöste Photoemissionmessungen unterstützt. Diese zeigen eine oszillatorische Bewegung der Bindungsenergie der Majorität des Oberflächenzustands der Bindungsenergie mit genau der Frequenz wie die der Gitterschwingung. Durch Temperaturerhöhung im System konnte man zeigen, dass die kohärente Phonon-Elektron Streuung der dominierende Relaxationspfad des Kohärenten Gitters war. Darüber hinaus sind Phonon-Phonon und Phonon-Magnon Streuung zu berücksichtigen.

Femtosekunden Entmagnetisierungs Dynamik

Ein weiteres Ziel dieses Projektes ist die Untersuchung der Femtosekunden-laserinduzierten Entmagnetisierung von Gadolinium mit seinem lokalisierten magnetischen Momenten und die Identifikation der verantwortlichen elementaren Prozesse für die ultraschnelle Entmagnetisierung. Für diesen Zweck wurde die Dynamik der Spin-Polarisation und der Austauschspaltung des Gd(0001) Oberflächenzustands untersucht. Die Spin-Polarisation des Gd(0001) Oberflächenzustands ist mit pump-probe MSHG gemessen worden. Sie zeigte einen schnellen Einbruch innerhalb der Laserpulsdauer von 50 fs. Eine zeitaufgelöste Photoemissionuntersuchung [13], die unter vergleichbaren Anregungsbedingungen durchgeführt wurde, zeigte eine konstante Austauschspaltung des Oberflächenzustandes. Diese Ergebnisse haben gezeigt, dass auf Gd(0001) die Spin-Polarisation des Oberflächenzustandes nicht der Austauschspaltung folgt und stattdessen auch auf der ultraschnellen Zeitskala das Spin-Mixing-Modell dominiert. Die Zeitskala der Entmagnetisierung ist mindestens vergleichbar, wenn nicht kürzer als für itinerante Ferromagneten beobachtet. Der ultraschnelle Einbruch der Spin-Polarisation ist durch die quasi-elastische Spin-Flip Streuung der heißen Elektronen zwischen spingemischten Zuständen erklärbar. Die Drehimpulserhaltung wird durch Emission bzw. Absorption eines Magnons erhalten, die auch 4f Momente involviert.

Phonon-Echo Dynamik

Epitaktisch gewachsene dünne Y(0001) Filme auf einem W(110) Substrat wurden mit zeitaufgelöster linearer Reflektivität und SHG untersucht. Nach Anregung mit dem Pump-Puls werden in der transienten linearen Reflektivität, scharfe Spitzen in regelmäßigen Zeitabständen beobachtet. Dies ist die Signatur der mit Schallgeschwindigkeit im Film propagierenden akustischen Phononen (sogenanntes Phonon-Echo). Die Signatur des Phonon-Echo kann auf Y(0001)/W(110) über lange Zeit beobachtet werden, dank der hohen optischen Absorption bei 800 nm, der hohen akustischen Impedanz der Film/Substrat Grenzfläche und einer vermutlich glatten Film/Substrat- Grenzfläche. Das Phonon-Echo wird durch eine plötzliche Temperatursteigerung nach Absorption des femtosekunden Laserpulses ausgelöst, was zu einer Gitterausdehnung und transienten Verzerrung führt. Genaue Werte für die Filmdicke, die Schallgeschwindigkeit und die optische Eindringtiefe konnten aus den Phonon-Echo Daten abgeleitet werden. Die zentrale Frequenz des propagierenden Phonons variiert, abhängig von der Filmdicke, zwischen 70 GHz und 200 GHz. Durch die Benutzung eines thermoelastischen Modell, kann man die Form des ersten Phonon-Echo berechnen, und Werte für die photoelastischen Konstanten des dünnen

Y(0001) Film angeben.

Spin-polarisierte Adsorbate untersucht mit der magnetisierungsinduzierten Summenfrequenz-Erzeugung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde außerdem ein Pilotexperiment aufgebaut, bei dem in Zukunft CO Moleküle adsorbiert auf ferromagnetischen Ni/Cu(100) Substrat untersucht werden sollen. Ziel dieses Projektes ist die Möglichkeiten einer neuen Spektroskopie der magnetisierungsinduzierten Summenfrequenz-Erzeugung (MSFG) zu prüfen. Hierzu wurde ein UHV System aufgebaut und Experimente zur Präparation und Charakterisierung von CO/Ni/Cu(001) durchgeführt.

Zukünftige Entwicklungen

Auf Basis dieser Arbeit, gibt es verschiedene Fragestellungen, die man in Zukunft erforschen könnte. Hinsichtlich der kohärenten Gitter- und Spindynamik, sind beiden verwandten Seltenerde Systeme Tb(0001) und Dy(0001) sehr interessante Kandidaten, da sie einen austauschungsgeordneten Oberflächenzustand zeigen und die selbe elektronische Valenzstruktur besitzen. Weiterhin haben sie ein ähnliches Phononenspektrum, aber mit einer höheren magnetischen Anisotropie und einer starken Spin-Bahnkopplung. Außerdem, ist in den beiden Systemen die Magnonenfrequenz deutlich geringer als die Phononenfrequenz. Die Anregung und der Kopplungsmechanismus der kohärenten Phononen und Magnonen kann daher getestet werden. Diese zwei Systeme eignen sich auch zur Untersuchung des Einflusses der Spin-Bahnkopplung auf die Femtosekunden-Magnetisierungsdynamik. Sowohl für die kohärente als auch für die inkohärente Spindynamik, würden zeitaufgelöste Untersuchungen mit Femtosekunden Lichtquellen, die die $4f$ Momente (9 eV Bindungsenergie) erreichen können, wie der UV und XUV Freier Elektronenlaser oder die Erzeugung von höheren Harmonischen in Gaszellen, wünschenswert sein. Auch ein zeitaufgelöstes XMCD (x-ray circular magnetic dichroism) Experiment, das die Bahn- und Spinbeiträge zum totalen magnetischen Moment ordnen könnte, könnte klären, ob die $4f$ Momente in dem kohärenten und inkohärenten Spinphänomen auf der Gd(0001) Oberfläche involviert sind.

