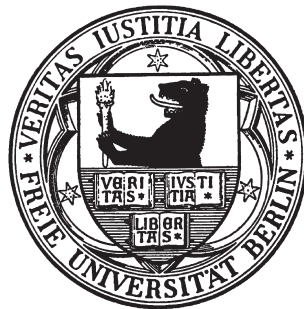


Spin-dependent electron dynamics  
in front of  
ferromagnetic surfaces

Im Fachbereich Physik der  
Freien Universität Berlin  
eingereichte Dissertation



Anke B. Schmidt

Juli 2007

Ein Teil dieser Arbeit entstand an der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg am Lehrstuhl von Prof. Dr. Thomas Fauster in der Zeit von August 2002 bis Januar 2005. Beim Aufbau der Vakuumapparatur und des Lasers standen uns insbesondere Dr. Lutz Hammer, Dr. Jinxiong Wang, Adam Schneider, Volker Geiger und Jürgen Linzmayer mit Rat und Tat zur Seite. Ende 2004 folgte mein Doktorvater, Prof. Dr. Martin Weinelt, einem Ruf an das Max-Born-Institut Berlin verbunden mit einer Professur an der Freien Universität Berlin. Deshalb wurde diese Arbeit am Max-Born-Institut Berlin in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Martin Weinelt abgeschlossen.

Betreuer:	Prof. Dr. Martin Weinelt
Zweitgutachter:	Prof. Dr. Markus Donath
Befürwortender Professor am Fachbereich:	Prof. Dr. Martin Wolf
Drittgutachter:	Prof. Dr. Martin Aeschlimann
Datum der Disputation:	18. Dezember 2007

# Contents

<b>Kurzfassung</b>	<b>v</b>
<b>Abstract</b>	<b>vii</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
<b>2 Setup</b>	<b>5</b>
2.1 Laser . . . . .	5
2.1.1 Details of the laser setup . . . . .	7
2.2 Chamber . . . . .	12
2.3 Samples . . . . .	15
<b>3 Fundamentals</b>	<b>19</b>
3.1 Image-potential states... . . . .	19
3.2 ...on ferromagnetic surfaces . . . . .	21
3.3 Spin-resolved two-photon photoemission . . . . .	22
3.4 Excitation into image-potential states . . . . .	26
3.5 Sampling the band structure . . . . .	28
3.6 Dichroism . . . . .	32
<b>4 Dynamics</b>	<b>37</b>
4.1 Optical Bloch Equations . . . . .	37
4.2 Spin-dependent lifetimes . . . . .	44
4.3 Spin-resolved quantum beats . . . . .	51
4.4 Energy-resolved measurements revisited . . . . .	53
4.4.1 Initial state effect . . . . .	55
4.4.2 Spin-dependent dephasing . . . . .	58
4.5 Defect scattering on cobalt . . . . .	68
4.6 Conquering k-space . . . . .	70
4.6.1 Spin-dependent resonant interband scattering . . . . .	71
4.6.2 Spin-dependent intraband scattering . . . . .	76

4.6.3 Magnon-enhanced exchange scattering . . . . .	87
<b>5 Conclusion</b>	<b>93</b>
<b>Bibliography</b>	<b>97</b>
<b>Publications</b>	<b>115</b>
<b>Danksagung</b>	<b>117</b>

# Kurzfassung

Auch mit Hilfe hochentwickelter Techniken wie der spinpolarisierten Elektronenverlustspektroskopie oder der spinaufgelösten Zweiphotonen-Photoemission an Volumenbändern stellt der experimentelle Zugang zu spinabhängigen Zerfallsprozessen niederenergetischer Elektronen in Bandferromagneten weiterhin eine Herausforderung dar. Um die Vorteile beider Methoden zu kombinieren, haben wir ein Experiment zur spin-, zeit-, winkel- und energieaufgelösten bichromatischen Zweiphotonen-Photoemission aufgebaut, das auf die Erforschung der spinabhängigen Elektronendynamik zielt.

Dabei dienen uns Bildpotentialzustände auf ultradünnen Eisen- und Kobaltfilmen als Modellsystem. Bildpotentialzustände sind Oberflächenzustände, die in einer Entfernung von einigen Ångstrom vor der Oberfläche lokalisiert sind und parallel zur Oberfläche frei dispergieren können. Die elektronische Struktur des ferromagnetischen Films bestimmt die Spinpolarisation und die Austauschspaltung dieser Oberflächenzustände. In unseren zeitaufgelösten Photoemissionsexperimenten mit Femtosekunden Laserpulsen fungieren sie als ultraschneller Sensor für die Magnetisierung. Indem wir Elektronen im dispergierenden Bildpotentialband als Primärelektron verwenden, können wir Zerfallsprozesse mit kleinem Energieverlust effektiv von solchen in freie  $d$  Bänder unterscheiden.

Die Lebensdauern der Bildpotentialzustände sind spinabhängig, da einerseits die Zustandsdichte im Ferromagneten austauschufgespalten ist und andererseits nur Minoritäts-Bildpotentialelektronen Magnonen emittieren können. Nicht nur die Populationsdynamik der Bildpotentialzustände sondern auch die Linienbreite der entsprechenden Übergänge sind spinabhängig. Quasielastische Streuprozesse im Minoritäts-Bildpotentialzustand interpretieren wir als quasielastische Elektron-Magnon Streuung, die auf der Femtosekundenzeitskala abläuft. Sie treten im Majoritätsband nicht auf, da entsprechende Streupartner fehlen.

Magnonenemission wurde auch als wahrscheinlichste Ursache für spinabhängige resonante Interbandstreuung vom  $n = 2$  Minoritäts- in das  $n = 1$  Ma-

joritätsband ausgemacht.

Im Einklang mit theoretischen Voraussagen, dass Spinflipprozesse mit Spinwellenemission wesentlich zum Zerfall der Minoritätselektronen im Eisen beitragen, beobachteten wir starken, signifikant spinabhängigen Intrabandzerfall in Eisen. Da Magnonenemission unter Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung nur im Zusammenhang mit dem Austausch eines Minoritätselektrons durch ein Majoritätselektron aus dem Volumenkristall und der Endzustandswechselwirkung des Elektron-Loch-Paares möglich ist, bezeichnen wir diesen spinabhängigen Intraband Streuprozess als magnonenunterstützte Austauschstreuung.

Für drei unterschiedliche Streuprozesse, quasi-elastische Intra- und Interbandstreuung, sowie inelastische Intrabandstreuung konnten wir einen starken Beitrag der Elektron-Magnon Streuung zur Femtosekundendynamik von Elektronen vor ultradünnen ferromagnetischen Schichten nachweisen. Entgegen weitverbreiteter Annahmen ist die Elektron-Magnon Wechselwirkung ultraschnell und konkurriert mit spin-unabhängiger Elektron-Elektron und Defektstreuung.

Die Emission von Magnonen ist daher kein limitierender Faktor für schnelles magnetisches Schalten und könnte sehr wohl einer der mikroskopischen Streuprozesse sein, die am Femtomagnetismus beteiligt sind.

# Abstract

Experimental access to the spin-dependent decay processes of low-energy electrons in  $d$  band ferromagnets remains a challenge despite advanced techniques such as spin-polarised electron energy loss spectroscopy or spin-resolved two-photon photoemission of bulk states. To combine the advantages of both methods, we built up a spin-, time-, angle- and energy-resolved bichromatic two-photon photoemission experiment to research spin-dependent electron dynamics. As a model system we investigated image-potential states on ultrathin iron and cobalt films on Cu(100). This class of surface states is localised several Ångstrom in front of the surface, dispersing free-electron like parallel to the surface. Polarisation and exchange splitting of the image-potential-induced surface states are governed by the underlying electronic structure of the ferromagnetic film. Hence the image-potential states act as “observer states” for the magnetisation even on an ultrafast timescale. The dispersing image-potential electron is employed as test charge or primary electron, thus effectively separating low-energy losses from direct decay into  $d$  holes.

Inelastic lifetimes of majority- and minority-spin image-potential states differ due to the spin-dependent density of bulk states and the possibility of spin-wave emission for minority-spin electrons only. We show in time-resolved studies of both, the population and the linewidth, of image-potential states that at the magnetic surface not only the lifetime is spin-dependent. On iron, there also exist spin-dependent, population-conserving quasielastic scattering processes, which we interpret as quasielastic electron-magnon scattering on a femtosecond timescale.

Magnon emission was also identified as the most obvious source for spin-dependent resonant interband scattering of electrons from the  $n = 2$  minority-spin band into the  $n = 1$  majority-spin band.

Consistent with theoretical predictions that spin-flip processes accompanied by spin-wave emission contribute significantly to the decay of minority-spin electrons in iron, we found that inelastic intraband decay on iron is not only

much stronger than on cobalt, but also highly spin-dependent. As magnon emission is only possible through the exchange of a minority-spin electron with a majority-spin electron from the bulk accompanied by the interaction of the final-state electron-hole pair, we dubbed this spin-dependent intraband scattering process magnon-enhanced exchange scattering.

We could identify several instances where electron-magnon scattering strongly contributed to the femtosecond electron dynamics in front of ultrathin ferromagnetic films. In contrast to a common argumentation we prove in our experiments directly in the time domain that electron-magnon scattering is ultrafast. Thus magnon emission does not constitute a bottleneck for the speed of magnetic switching and may very well be a microscopic process participating in femtomagnetism.