

**Elektronen- und Magnetisierungsdynamik
in Metallen
untersucht mit zeitaufgelöster
Photoemission**

Im Fachbereich Physik
der Freien Universität Berlin
eingereichte Dissertation

Martin Julius Lisowski

Oktober 2005

email: mlisowsk@gmx.net

Diese Arbeit entstand in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Martin Wolf in der Zeit von Januar 2001 bis Oktober 2005 am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin.

Berlin, im Oktober 2005

Erstgutachter: Prof. Dr. Martin Wolf

Zweitgutachter: Prof. Dr. Paul Fumagalli

Datum der Disputation: 7. Dezember 2005

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	v
Abkürzungsverzeichnis	ix
Einleitung	1
1 Grundlagen	9
1.1 Absorption von Licht in Metallen	9
1.1.1 Optische Eindringtiefe	10
1.1.2 Thermalisierung	10
1.2 Elementare Streuprozesse in Festkörpern	12
1.2.1 Elektron-Elektron-Streuung	12
1.2.2 Elektron-Phonon-Streuung	13
1.2.3 Elektron-Magnon-Streuung	14
1.3 Ferromagnetismus	15
1.3.1 Das Stoner-Modell	17
1.3.2 Das Spin-Mixing-Modell	18
1.4 Das Zwei-Temperatur-Modell	19
1.4.1 Wärmetransport	22
1.4.2 Elektron-Phonon-Kopplung	23
1.5 Photoelektronen-Spektroskopie	25
1.5.1 Impulserhaltung	27
1.5.2 Linienbreite	27
1.5.3 Das Drei-Stufen-Modell der Photoemission	28
1.5.4 Das Ein-Stufen-Modell der Photoemission	29
1.5.5 Vielteilchen-Effekte	30
1.5.6 Zeitaufgelöste Photoemission	31
1.5.7 Der Raumladungseffekt	31
1.5.8 Zwei-Photonen-Photoemission	32
1.5.9 Beschreibung der Zwei-Photonen-Photoemission	34
2 Experimenteller Aufbau	37
2.1 UHV-Kammer	37
2.1.1 Der Probenhalter	40
2.2 Elektronik zur Datenaufnahme	43
2.3 Das Elektronen-Flugzeitspektrometer	44

2.3.1	Messung der Flugzeit	45
2.3.2	Impulsantwort	46
2.3.3	Energiemessung	47
2.3.4	Energieauflösung	48
2.3.5	Winkelauflösung und Transmissionsfunktion	49
2.3.6	Flugzeitmessung mit dem TAC	50
2.4	Verstärktes Femtosekunden-Lasersystem	51
2.4.1	Oszillator	52
2.4.2	Regenerativer Verstärker	54
2.4.3	Optisch Parametrische Verstärker	55
2.4.4	Frequenzvervierfachung	55
2.4.5	Optische Verzögerungsstrecke	56
2.4.6	Optische Spektrometer	56
2.4.7	Einkopplung in die Vakuum-Kammer	56
2.4.8	Strahlprofilanalyse	57
2.5	Allgemeine Gesichtspunkte	58
2.6	Messablauf	59
2.7	Datenanalyse	60
2.7.1	Untergrundabzug	63
2.7.2	Bestimmung der Energiedichte	64
3	Elektronendynamik in dünnen Cu(111)/Si(111)-7×7 Schichten	67
3.1	Stand der Forschung	68
3.2	Präparation der Kupfer-Filme	70
3.3	Ergebnisse	71
3.4	Diskussion	73
4	Elektronendynamik und Transport-Prozesse in Volumenmetallen	77
4.1	Stand der Forschung	78
4.2	Präparation von Ruthenium	80
4.2.1	Präparation der Ru(0001)-Oberfläche	80
4.2.2	Präparation der 1 BL D ₂ O/Ru(0001)-Oberfläche	81
4.3	Elektronendynamik in Ru(0001)	81
4.3.1	Modellierung der Photoelektronen-Spektren	84
4.3.2	Dynamik der Elektronen und Löcher	86
4.3.3	Thermalisierung im Elektronensystem	88
4.3.4	Transient der elektronischen Überschussenergie	89
4.3.5	Simulation mit dem 2-Temperatur-Modell	90
4.4	Das erweiterte 2-Temperatur-Modell	92
4.4.1	Thermalisierung und Sekundärelektronen	95
4.4.2	Numerische Details, Energieerhaltung	96
4.4.3	Ballistischer Elektronen-Transport	97
4.5	Diskussion	98
4.6	Elektronendynamik im Gd-Leitungsband	103
4.6.1	Ergebnisse	104

4.6.2	Diskussion	108
5	Elektronen- und Magnetisierungsdynamik in Gd(0001)/W(110)	109
5.1	Elektronische Struktur von Gadolinium	109
5.1.1	Der Oberflächenzustand auf Gd(0001)	111
5.2	Präparation der Gadolinium-Filme	114
5.3	Elektronendynamik in einem optisch dünnen Gd-Film	117
5.3.1	Transiente Energie im Elektronensystem	118
5.3.2	Simulation mit dem 2-Temperatur-Modell	120
5.4	Magnetisierungsdynamik	122
5.4.1	Einführung und Stand der Forschung	122
5.4.2	Ergebnisse	124
5.4.3	Besetzung und Linienbreite des Oberflächenzustandes	129
5.4.4	Austauschspaltung des Oberflächenzustandes	132
5.4.5	Spin-Polarisation des Oberflächenzustandes	133
5.4.6	Diskussion	135
5.5	Kohärente Dynamik	139
5.5.1	Ergebnisse	140
5.5.2	Diskussion	142
Zusammenfassung		147
Geräteliste		153
A Elektron-Phonon-Kopplung		157
B Elektronendynamik der D₂O/Ru(0001)-Oberfläche		161
C RKKY-Wechselwirkung		163
C.1	Erhaltungssätze	163
D Wechselwirkung eines intensiven Laser-Strahls mit Photoelektronen im Vakuum		165
D.1	Mechanismus	166
D.1.1	Bewegung eines freien Elektrons unter dem Einfluss zweier schnell oszillierender Lichtwellen	167
D.1.2	Berechnung der Driftbewegung im Feld zweier Lichtwellen	168
D.1.3	Pulse und Reflektion	171
D.1.4	Energiemodulation eines photoemittierten Elektrons	173
Literaturverzeichnis		175
Eigene Publikationen		193
Kurzfassung		195
Akademischer Lebenslauf		199

Abbildungsverzeichnis

1.1	Absorption eines Photons	9
1.2	Elektronen-Thermalisierung	11
1.3	Elektron-Elektron-Streuung	12
1.4	Schema der Austauschspaltung im Stoner-Modell	17
1.5	Temperatur-Abhängigkeit der Austauschspaltung	18
1.6	Schema des Spin-Mixing-Modells	19
1.7	Zwei-Temperatur-Modell	20
1.8	Wärmekapazität von Ruthenium und Gadolinium	22
1.9	Energieschema für Photoemission	26
1.10	Schema zeitaufgelöste Photoemission	31
1.11	Schema 2-Photonen-Photoemission	33
1.12	Anregungsmechanismen in der 2PPE	33
2.1	Ultrahochvakuum-Kammer	38
2.2	Probenhalter	40
2.3	Probenträger	41
2.4	Elektronik für Datenaufnahme	43
2.5	Elektronen-Flugzeitspektrometer	44
2.6	Flugzeitspektrometer, Eichung der Zeitskala	46
2.7	Impulsantwort des Flugzeitspektrometers, Vergleich P7887 und TAC	47
2.8	Transmissionsfunktion des Flugzeitspektrometers	49
2.9	Schema des Femtosekunden-Laser-Systems	52
2.10	Schema des fs-Oszillators	53
2.11	Spektren der Laser-Pulse von Oszillator und Verstärker	54
2.12	Schema des regenerativen Verstärkers	54
2.13	Einkopplung der Laser-Strahlen in die UHV-Kammer	56
2.14	Analyse der Laser-Strahlprofile am Ort der Probe	57
2.15	Datenanalyse zeitaufgelöste Photoemission	62
2.16	Untergrundabzug Photoemission	63
3.1	Schema optische Anregung der Cu/Si-Filme	67
3.2	LEED-Bilder Cu(111)/Si(111)-7×7 und Si(111)-7×7	70
3.3	Cu(111)/Si(111): 2PPE-Spektren	71
3.4	Cu(111)/Si(111): Kreuzkorrelationskurven	72
3.5	Cu(111)/Si(111): Elektronenpopulations-Zerfallszeiten	74

4.1	Energieschema optische Anregung Adsorbat/Metalloberfläche	77
4.2	Bandstruktur von Ruthenium	79
4.3	Photoemissionsspektren von Ru(0001)und D ₂ O/Ru(0001)	82
4.4	Zeitaufgelöste Photoemission von Ru(0001)und D ₂ O/Ru(0001)	83
4.5	Elektronen-Verteilungsfunktion im Nichtgleichgewicht	85
4.6	Pump-induzierte Änderung der Elektronenverteilung	86
4.7	Elektronen- und Löcherzahl nach optischer Anregung	87
4.8	transiente Elektronenzahl nach optischer Anregung	88
4.9	transiente Energiedichte im Elektronensystem	90
4.10	transiente Elektronen-/Gittertemperatur, 2TM	91
4.11	Schema des erweiterten 2-Temperatur-Modells	93
4.12	Erweitertes 2TM: Anteil der opt. angeregten Elektronen $r(t)$	94
4.13	Erweitertes 2TM: numerischer Datensatz	96
4.14	Erweitertes 2TM: Energiebilanz	97
4.15	Erweitertes 2TM: Implementierung ballistischer Transport	98
4.16	Erweitertes 2TM: Energiedichte im Elektronensystem, Variation der Simu- lationsparameter	99
4.17	transiente Energie im Elektronensystem, erw. 2TM	100
4.18	Photoelektronen-Spektren aus dem erw. 2TM	101
4.19	Übersicht zeitaufgel. Photoemission in 50 nm Gd(0001)/W(110)	104
4.20	Thermalisierung in Gd, $r(t)$	105
4.21	Transiente Energie und Temperatur im Elektronensystem von Gd	106
5.1	Gd: Energieschema des Elektronensystems	110
5.2	Bandstruktur der Gd(0001)-Oberfläche	110
5.3	Gd(0001): Photoemissionsspektrum	111
5.4	Temperaturabh. Bindungsenergie des Oberflächenzustands von Gd(0001)	112
5.5	Dispersion des Oberflächenzustands von Gd(0001)	113
5.6	Auger-Elektronen-Spektrum des Wolfram-Substrats	115
5.7	LEED-Bild des Wolfram(110)-Substrats	115
5.8	LEED-Bild eines Gd(0001)/W(110)-Films	116
5.9	Übersicht zeitaufgel. Photoemission, 10 nm Gd(0001)/W(110)	117
5.10	zeitaufgel. Photoemission Gd, $F_{\text{abs}} = 0.25 \text{ mJ/cm}^2$	119
5.11	Transiente Energiedichte im Elektronensystem von Gd	119
5.12	Absorptionsprofil für Pumpstrahlung im Gd-Film	120
5.13	Transiente Temperatur im Gd-Film	121
5.14	zeitaufgel. Photoemission, Oberflächenzustand von Gd(0001)	124
5.15	Transiente Energiedichte im Elektronensystem von Gd	125
5.16	Anpassung von Photoelektronenspektren	126
5.17	Normierte Photoelektronenspektren mit Oberflächenzustand	128
5.18	Transiente Besetzungszahl des Oberflächenzustands von Gd(0001)	129
5.19	Transiente Linienbreite des Oberflächenzustands von Gd(0001)	130
5.20	Transiente energetische Lage und Austauschspaltung des Oberflächen- zustands von Gd(0001)	132
5.21	Energiediagramm von Gd(0001) und SHG-Messprinzip	134

5.22	Magnetischer Beitrag des SHG-Signals auf Gd(0001)	134
5.23	Schema für Spin-Umklapp-Streuung in Gd(0001)	136
5.24	Transiente Bindungsenergie des Oberflächenzustands, kohärentes Phonon .	141
5.25	Phononen- und Magnonen-Dispersionskurve von Gd(0001)	142
5.26	Schematisches Potentialdiagramm für versetzende Anregung (DECP)	143
5.27	Änderung der Oberflächenzustands-Bindungsenergie in Gd(0001) nach LDA	144
B.1	1 BL D ₂ O/Ru(0001): 2PPE-Spektren Übersicht	162
D.1	Grauwertdarstellung der Photoelektronenausbeute-Änderung in Gd(0001) .	166
D.2	Kreuzkorrelationskurven für Gd(0001)	167
D.3	Photoelektronenspektren von Gd(0001) und Oszillationsfrequenzen	168
D.4	Schema des Modulationsmechanismus der Photoelektronen	169
D.5	Koordinatensystem	170
D.6	Oszillation der Energieposition des Oberflächenzustands in Gd(0001)	174

Abkürzungsverzeichnis

2PPE	2-Photonen-Photoemission (Abschn. 1.5.8)
2TM	Zwei-Temperatur-Modell (Abschn. 1.4)
AES	Auger-Elektronen-Spektroskopie
BBO	β -BaB ₂ O ₄ (Abschn. 2.4.3)
BL	Bilage (s. Fussnote auf S. 82)
DECP	Displacive Excitation of Coherent Phonons [Che91, Zei92, Lob01], (Abschn. 5.5.2)
DOS	Density-Of-States (engl. Zustandsdichte)
e2TM	erweitertes Zwei-Temperatur-Modell (Abschn. 4.4)
e-e	Elektron-Elektron
e-m	Elektron-Magnon
e-ph	Elektron-Phonon
FWHM	Full-Width-Half-Maximum (engl. Halbwertsbreite)
GMR	Giant Magneto-Resistance [Pri98]
HOMO	Highest Occupied Molecular Orbital
IR-OPA	OPA für infrarote Pulse (Abschn. 2.4.3)
LEED	Low-Energy-Electron-Diffraction (Elektronenbeugung bei $E < 1$ keV)
LUMO	Lowest Unoccupied Molekular Orbital
MCP	Micro-Channel-Plates (Mikrokanal-Platten), (Abschn. 2.3)
OPA	Optisch-Parametrischer Verstärker (Abschn. 2.4.3)
PES	Photo-Elektronen-Spektroskopie (Abschn. 1.5)
SHG	Second-Harmonic-Generation (Frequenzverdopplung), (Abschn. 5.4.5)
STS	Scanning-Tunneling Spectroscopy (Rastertunnelspektroskopie)
TDS	Thermische-Desorptions-Spektroskopie
TAC	Time-to-Amplitude Converter, (Abschn. 2.3.6)
TOF	Time-Of-Flight (engl. Flugzeit), auch Flugzeitspektrometer (Abschn. 2.3)
TR-PES	zeitaufgelöste Photoemission (Abschn. 1.5.6)
UHV	Ultra-Hoch-Vakuum
VIS-OPA	OPA für sichtbare Pulse (Abschn. 2.4.3)

