

5. Statische Eigenschaften dünner ferromagnetischer Filme

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit sind Untersuchungen der magnetischen Eigenschaften ultradünner ferromagnetischer Metallfilme mittels der optischen Frequenzverdopplung im Ultrahochvakuum. Dabei wurden die Systeme Ni/Cu(001) und Co/Cu(001) im Dickenbereich von 1 bis 16 ML untersucht, deren statische¹ Eigenschaften in der Literatur recht gut dokumentiert sind [20]–[24]. Es existieren in der Literatur auch Untersuchungen von Co/Cu(001) [81, 15] und Fe/Cu(001) [14] mittels des nichtlinearen magnetooptischen Kerreffektes, wobei in [81] nur einige separate Filmdicken und in [14] eine keilförmige Probe untersucht wurden.

Nach einer kurzen Einführung in den experimentellen Aufbau und die Filmpräparation werden im folgenden Kapitel die zeitintegralen Messungen an Ni/Cu(001) und Co/Cu(001) vorgestellt. Die ebenfalls an diesen Systemen durchgeführten zeitaufgelösten Pump-Probe-Experimente werden im nächsten Kapitel (Kap. 6) beschrieben.

Mit den zeitintegralen Messungen ist es möglich, das Herausbilden der ferromagnetischen Ordnung der dünnen Filme in Abhängigkeit vom Bedeckungsgrad *in situ* zu beobachten. Speziell bei Ni/Cu(001) konnte der Reorientierungsübergang der Magnetisierung aus der Filmebene senkrecht dazu beobachtet werden. Es lassen sich Aussagen über die Curietemperaturen, die Sättigungs- und Koerzitivfelder, sowie über die leichten und schweren Magnetisierungsachsen treffen.

Eine genaue Analyse der nichtlinear magnetooptischen Signale ist in einigen Fällen nur mit Kenntnis der relativen Phasen der beteiligten Tensorkomponenten der Suszeptibilität zweiter Ordnung möglich. Mit einer kürzlich von Veenstra *et al.* [82] vorgestellten Methode wurden erstmals phasenempfindliche Messungen der Frequenzverdoppelten an den dünnen Filmen im UHV durchgeführt. Für eine bestimmte Geometrie läßt sich dabei das direkte Verhältnis einer magnetisierungsunabhängigen und einer magnetisierungsabhängigen Tensorkomponente bestimmen und mit theoretischen Vorhersagen vergleichen.

¹Statisch meint dabei, im thermischen Gleichgewicht zwischen Elektronen und Gitter befindlich

5.1 UHV-Apparatur und Präparation der Filme

Die Präparation der Metallfilme, sowie die Messungen daran, erfolgt in einer Ultrahochvakuumkammer mit einem Basisdruck von ungefähr $2 \cdot 10^{-10}$ mbar. Als Substrat dient die (001)-Oberfläche eines Kupfereinkristalls, mit einer Orientierungsgenauigkeit von $\leq 1^\circ$. Vor jedem Bedampfen wird die Kupferoberfläche durch mehrfachen Beschuß mit Ar-Ionen und anschließendes Heizen gereinigt, wobei die Oberflächenreinheit mit Auger-Elektronen-Spektroskopie kontrolliert werden kann.

Nickel und Kobalt werden durch Elektronenstrahlheizung aus Stäben mit einer Reinheit von 99.99 % verdampft. Das lagenweise Wachstum kann anhand der Oszillationen in der Beugungsintensität für streifend einfallende Elektronen mit einer kinetischen Energie von ungefähr 2.5 keV verfolgt werden (MEED: medium energy electron diffraction). Sowohl Nickel als auch Kobalt wachsen epitaktisch auf Cu(001) [22, 20] mit einer Gitterfehlانpassung von 2.6 % im Falle von Nickel und 1.9 % für Kobalt. Zur Kompensation dieser Fehlanpassung besitzen die Filme im betrachteten Dickenbereich fct-Struktur (face centered tetragonal), d. h. sie sind im Vergleich zum entsprechenden Bulk vertikal leicht komprimiert und lateral leicht expandiert [22, 83].

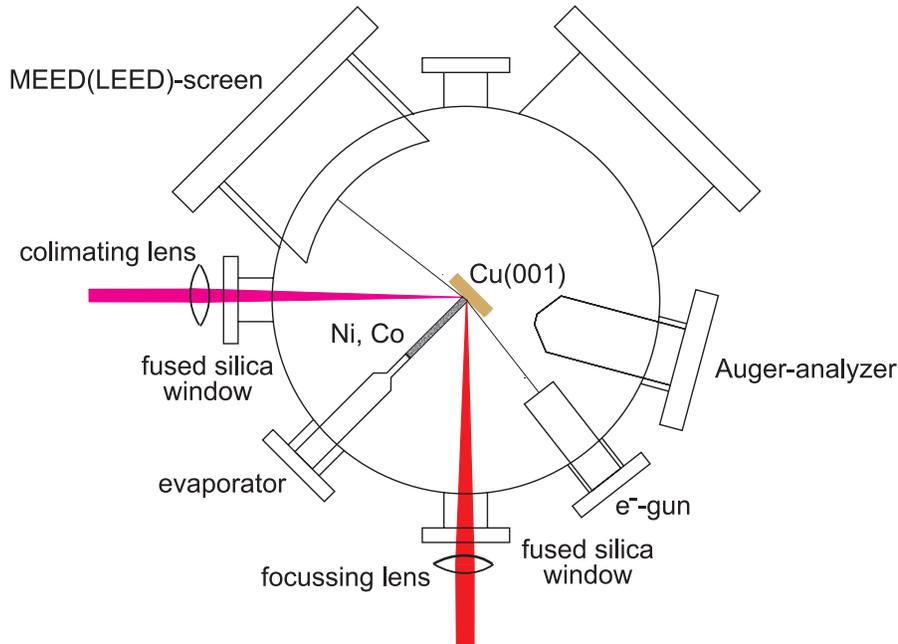


Abbildung 5.1: Skizze der UHV-Apparatur. Horizontaler Schnitt durch die Hauptkammer mit den wichtigsten Präparations- und Analysegeräten, sowie den ein- und ausfallenden Laserstrahlen.

Zur Ein- und Auskoppelung der Laserstrahlung verfügt die UHV-Kammer über

zwei Fenster aus spannungsfreien synthetischen Quarz. Die Spannungsfreiheit ist erforderlich, um keine Polarisationsdrehungen durch die Fenster zu induzieren. Die Fenster befinden sich in einem Winkel von 90° zueinander, so daß es mit den außerhalb der UHV-Kammer befindlichen Fokussierungs- und Kollimierungslinsen möglich ist, Laserstrahlung unter einem Winkel von 45° auf die Probenoberfläche zu fokussieren und wieder aus der UHV-Kammer auszukoppeln. Aus dem Beugungsmuster senkrecht zurückreflektierter niederenergetischer Elektronen (LEED : low energy electron diffraction) läßt sich die Kristallorientierung relativ zur Einfallsebene bestimmen, bzw. durch azimutale Drehung der Probe einstellen. Zur Magnetisierung der Probe in der Probenebene und senkrecht zur Einfallsebene befindet sich die Probe in der Mitte eines Helmholtz-Spulen-Paares entlang der y -Richtung. Die Probe befindet sich auf der Mittenachse einer dritten Spule, mit welcher ein Magnetfeld senkrecht zur Probenebene angelegt werden kann. Die mit den Spulen maximal erreichbaren Magnetfelder liegen in der Größenordnung von 50 G, was ausreicht, um die ultradünnen ferromagnetischen Filme im betrachteten Dickenbereich in Sättigung zu magnetisieren [20, 23].

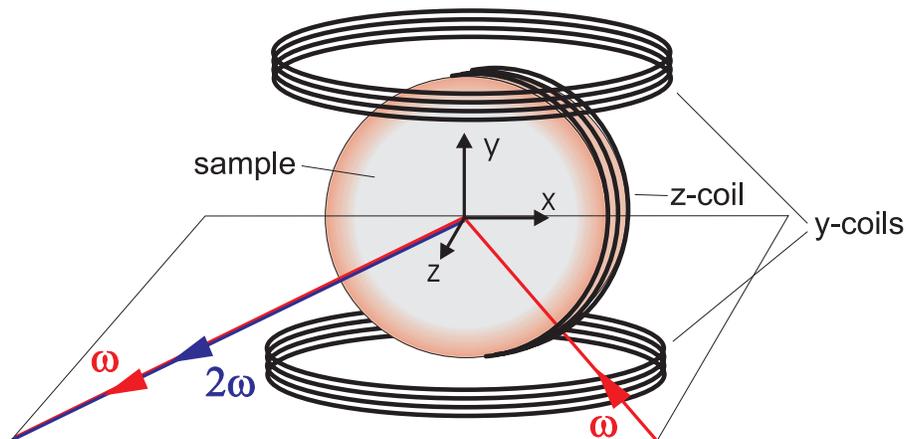


Abbildung 5.2: Schematische Darstellung der Probe und der Magnetspulen in der UHV-Kammer. Zusätzlich ist die Einfallsebene und das Laborkoordinatensystem eingezeichnet.

5.2 Bedeckungsabhängigkeiten

Zur Beobachtung des Einsetzens der ferromagnetischen Ordnung *in situ* während des Aufdampfens von Nickel und Kobalt auf Kupfer mittels der Frequenzverdoppelten werden die Laserpulse des in Kapitel 3.2 beschriebenen Ti:Sa-Laseroszillators in die UHV-Kammer eingekoppelt. Dieser Meßmodus wird zeitintegral genannt, da hier die ultrakurzen Laserpulse nicht für ein Pump-Probe-Experiment genutzt

werden, sondern lediglich die von dem einen Laserstrahl erzeugte zweite Harmonische detektiert wird. Aufgrund der sehr kurzen Pulsdauer (≈ 25 fs) bei gleichzeitig sehr hoher Repetitionsrate (≈ 90 MHz) ist die Erzeugung der zweiten Harmonischen sehr effizient, ohne die dünnen Filme durch zu starke thermische Belastung zu evaporieren.

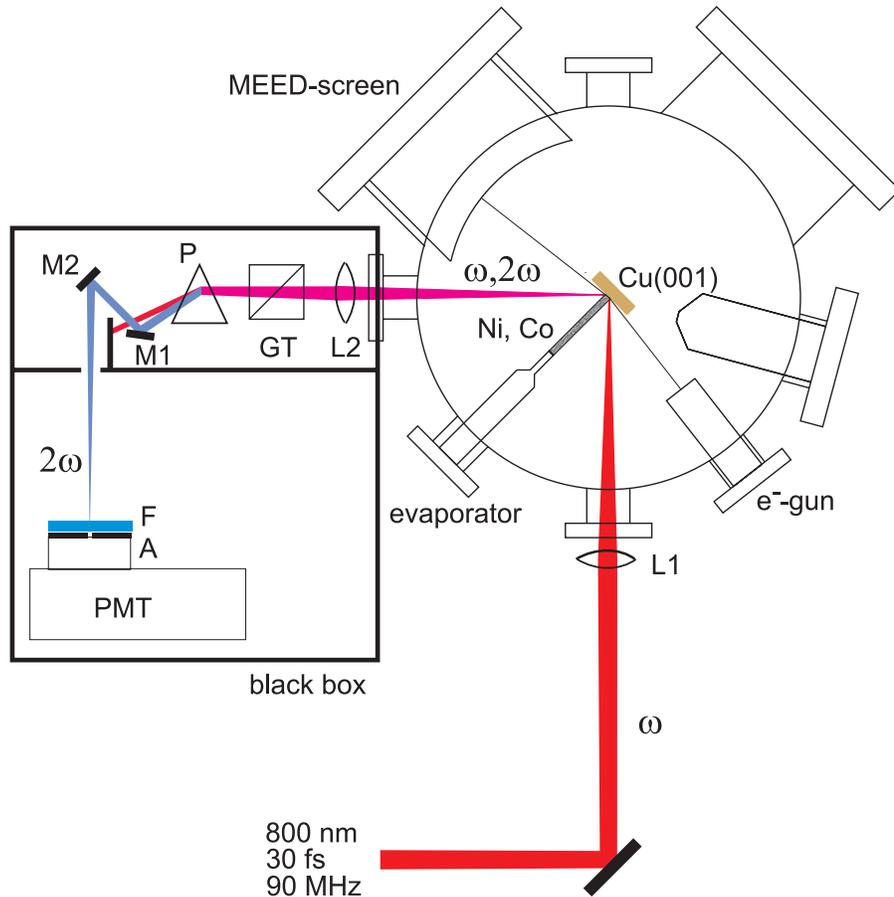


Abbildung 5.3: Skizze des Aufbaus für die zeitintegralen Messungen in der UHV-Kammer. Darin bedeuten: WP $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte, L1, L2 Fokussierungs- bzw. Kollimierungslinse ($f = 30$ cm), GT Glan-Taylor-Prisma, P Dispersionsprisma, M1-M2 Spiegel (HR 400 nm), F Farbfilter, A Apertur, PMT Photomultiplier.

Die Polarisationsrichtung des einfallenden Laserstrahls kann mit einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte aus Quarz (Laser Components, low order) eingestellt werden. Mittels einer Plankonvexlinse ($f = 30$ cm, BK7) wird der Laserstrahl unter einem Winkel von 45° auf die Probenoberfläche auf einen Laserstrahldurchmesser von ungefähr $100 \mu\text{m}$ fokussiert und tritt durch das Auskoppelfenster in einen lichtdichten Kasten, in welchem das Nachweissystem untergebracht ist (s. Abb.5.3). Der Laserstrahl wird mit einer zur Fokussierungslinse identischen Linse kollimiert

und tritt zur Polarisationsanalyse durch ein Glan-Taylor-Prisma (GT-10, Laser Components) aus Kalzit. Zur räumlichen Trennung der Laserstrahlung bei der fundamentalen und der verdoppelten Frequenz wird ein Quarzdispersionsprisma verwendet. Über zwei dielektrische Spiegel, welche für 400 nm hochreflektierend sind, wird die Frequenzverdoppelte in die Eingangsblende eines Photomultipliers (R4220P, Hamamatsu) justiert. Dieser besitzt seine höchste Empfindlichkeit bei einer Wellenlänge von 410 nm und ist zum Schutz vor Streulicht der Fundamentalen an seiner Eingangsblende mit einem 1 mm dicken BG-39-Farbfiler (Schott) versehen. Wie die Messungen zeigen, beträgt die Effizienz zur Erzeugung der zweiten Harmonischen an den dünnen Filmen ungefähr $1 \cdot 10^{-11}$, d. h. daß im Mittel nur ca. jeder zehnte fundamentale Laserpuls ein verdoppeltes Photon generiert. Daher erfolgt die Detektion im Einzelphotonennachweis. Der Nachweis mit Lock-In-Technik gelingt aufgrund der hohen Repititionsrate auch, besitzt aber ein nur etwa halb so großes Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Vor der Zählung der Spannungspulse mit einem schnellen Zähler (SR400, Stanford Research Systems) werden diese mit einem 250 MHz-Vorverstärker (Elektronikwerkstatt des Fachbereichs) um einen Faktor 30 verstärkt.

Um die Gruppengeschwindigkeitsdispersion der Laserpulse, welche von der Fokussierungslinse und dem UHV-Fenster verursacht werden, kompensieren zu können, durchlaufen die Laserpulse vor der Einkoppelung in die UHV-Kammer den bereits in Kapitel 4.1.2 vorgestellten Prismenkompressor. Die sich nach Tabelle C.2 für die Linse und das UHV-Fenster ergebende Gruppengeschwindigkeitsdispersion von ca. 300 fs^2 läßt sich mit dem Prismenkompressor leicht kompensieren, der eine Dispersion von bis zu -4550 fs^2 bietet (vergl. Kap. 4.1.2).

5.2.1 Co/Cu(001)

Von dünnen Kobaltfilmen auf Cu(001) ist bekannt, daß die Magnetisierung in der Filmebene liegt [20]. Gemäß der Tabelle 2.1 sollten bei einer Magnetisierung in y-Richtung (vergl. Abb. 5.2), also in transversaler Konfiguration, die Polarisationskombinationen p-P und s-P einen magnetischen Kontrast zeigen. Im Falle der p-P-Polarisationskombination setzt sich die Suszeptibilität zweiter Ordnung aus drei geraden ($\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e, \chi_{xzx}^e$) und drei ungeraden ($\chi_{xxx}^o, \chi_{xzx}^o, \chi_{zzx}^o$) unabhängigen Tensorkomponenten zusammen (vergl. Tab. 2.1). Mit der s-P-Polarisationskombination werden nur zwei Tensorkomponenten angesprochen, nämlich das gerade χ_{zyy}^e und das ungerade χ_{xyy}^o . Mit beiden Polarisationskombinationen ist während des Filmwachstums gemessen worden, was im folgenden vorgestellt wird.

Gleichzeitig während des Aufdampfens des Filmes wird die Frequenzverdoppelte detektiert, wobei hintereinander im Abstand von ca. 1 s erst mit dem äußeren Magnetfeld in der einen und dann in der entgegengesetzten Richtung gemessen wird. Parallel dazu wird das lagenweise Wachstum des Filmes mit MEED doku-

mentiert, wobei die Substrattemperatur für optimales Wachstums angepaßt wird. In der Abbildung 5.4 ist der Verlauf der Ausbeute an zweiter Harmonischer für die beiden entgegengesetzten Magnetfeldrichtungen über der mit MEED bestimmten Filmdicke dargestellt.

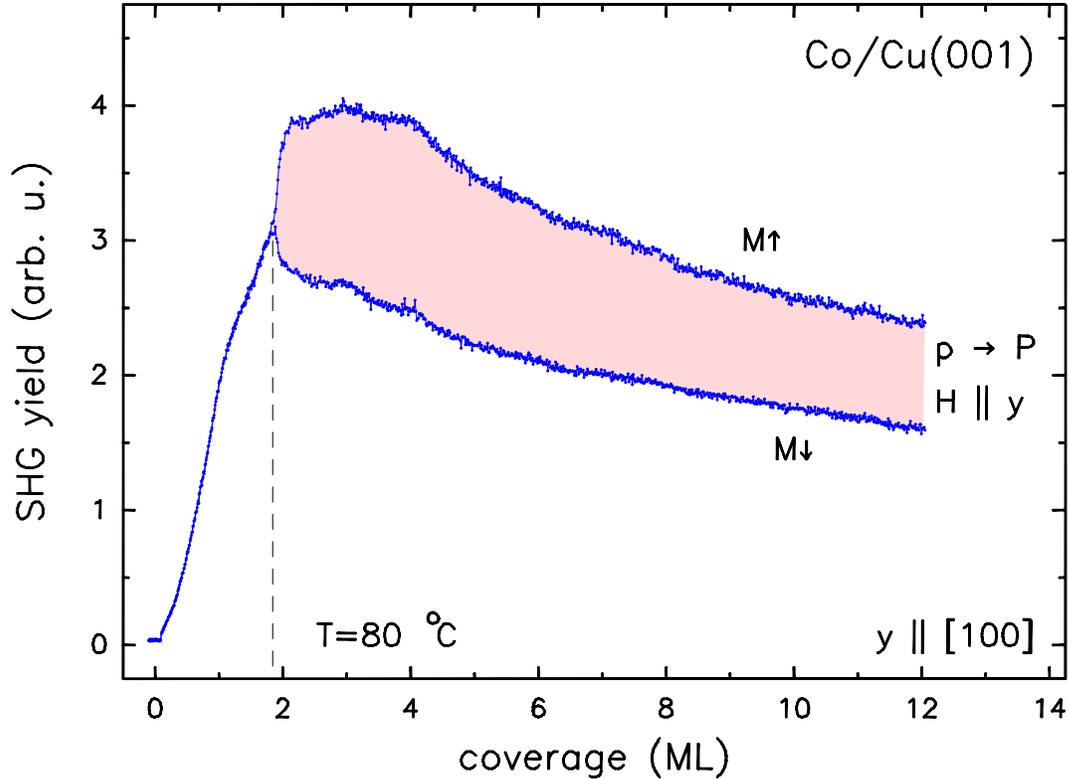


Abbildung 5.4: Verlauf der Ausbeute an zweiter Harmonischer für die beiden entgegengesetzten Magnetfeldrichtungen parallel zur y -Achse über der mit MEED bestimmten Filmdicke für Co/Cu(001). Die y -Achse ist hierbei parallel zur $[100]$ -Richtung. Die Polarisationskombination ist p-P. Die Messung erfolgt während des Filmwachstums mit einer Rate von ungefähr 0.2 ML/min bei einer Substrattemperatur von 80 °C.

Zwei Erscheinungen sind dabei besonders auffallend. Erstens ist die Ausbeute an Frequenzverdoppelter von der reinen Kupferoberfläche sehr klein und das Signal steigt mit beginnender Kobaltbedeckung steil an. Dieses demonstriert die Oberflächenempfindlichkeit an diesem System und rechtfertigt die Vernachlässigung nichtlokaler Beiträge. Zweitens tritt ab einer bestimmten Schichtdicke ein Kontrast zwischen den Signalen für die beiden unterschiedlichen Magnetfeldrichtungen auf.

Der erste Effekt ist eine Konsequenz der sich mit der Bedeckung ändernden elektronischen Struktur. Wie der in Gl.(2.14) gegebene mikroskopische Ausdruck für die dielektrische Suszeptibilität zweiter Ordnung zeigt, kann diese durch Übergänge resonant überhöht werden, deren Anfangs- und Endzustände große Besetzungs-

zahldifferenzen aufweisen. Wellenlängenabhängige Messungen der zweiten Harmonischen an Cu [84] zeigen, daß mit Überschreiten der Interbandübergangsschwelle, dem energetischen Abstand von der d-Bandoberkante zur Fermienergie, von ca. 2.15 eV eine starke Überhöhung der Ausbeute an zweiter Harmonischer einsetzt. Mit der Photonenenergie von 1.5 eV sind diese Übergänge nicht möglich, sondern nur innerhalb des s/p-Bandes, in welchem aber die Besetzungszahldichten viel kleiner sind. Zur Veranschaulichung ist dazu in der Abbildung 5.5 die berechnete Zustandsdichte von Kupfer gezeigt.

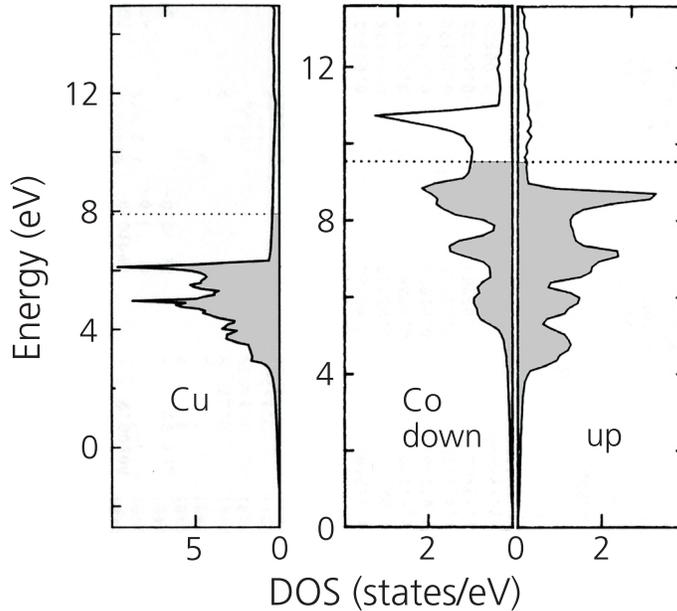


Abbildung 5.5:

Darstellung der für den Bulk berechneten Zustandsdichten von Kupfer und Kobalt. Die Zustandsdichte von Kobalt bezieht sich auf die ferromagnetische Phase. Die Zustandsdichten sind [85] entnommen.

Bei Co liegt die Fermikante im d-Band, so daß von dort aus Übergänge in die darüberliegenden unbesetzten Bänder möglich sind. Dies ist aus der berechneten Zustandsdichte in der Abbildung 5.5 ersichtlich. Da in diesem Fall keine wirkliche Übergangsschwelle existiert, kann man hier eigentlich nicht von einer *resonanten* Überhöhung sprechen, aber im Vergleich zum Kupfer sollte die Ausbeute an Frequenzverdoppelter durch die hohe Besetzungszahldichte des d-Bandes erhöht sein. Dieses erklärt die steile Zunahme an zweiter Harmonischer mit wachsender Bedeckung als Folge der sich ausbildenden Kobaltbandstruktur.

In dem Bereich zwischen 2 und 4 ML erreicht die Ausbeute an zweiter Harmonischer ihren maximalen Wert und fällt bei zunehmender Schichtdicke wieder ab. Die genaue Ursache dieses Maximums ist noch nicht eindeutig geklärt. Zum einen wird nicht nur an der Vakuum-Kobalt-Grenzfläche zweite Harmonische generiert, sondern auch an der darunter liegenden Kobalt-Kupfer-Grenzfläche. Je dicker der Film wird, umso geringer wird der Beitrag der zweiten Grenzfläche, so daß die Ausbeute an Frequenzverdoppelter mit Erreichen der Eindringtiefe asymptotisch in den Wert für Kobaltbulkmaterial übergeht. Mit einer Eindringtiefe von ca. 13 nm

bei einer Wellenlänge von 800 nm, bzw. einer Austrittstiefe von etwa 10 nm für die Frequenzverdoppelte entspricht dies einer Dicke von ungefähr 65 ML. In [14] wurde an dünnen Eisenfilmen auf Cu(001) gezeigt, daß auch Rekonstruktionen innerhalb des Filmes zu solchen Änderungen in der Ausbeute an zweiter Harmonischer führen können. In dem betrachteten Schichtdickenbereich ist für Co/Cu(001) aber kein Rekonstruktionsübergang bekannt. Außerdem können bei diesen ultradünnen Filmen mit wachsender Schichtdicke starke Änderungen innerhalb der elektronischen Struktur geschehen, welche die Ausbeute an zweiter Harmonischer ebenfalls stark beeinflussen können [81].

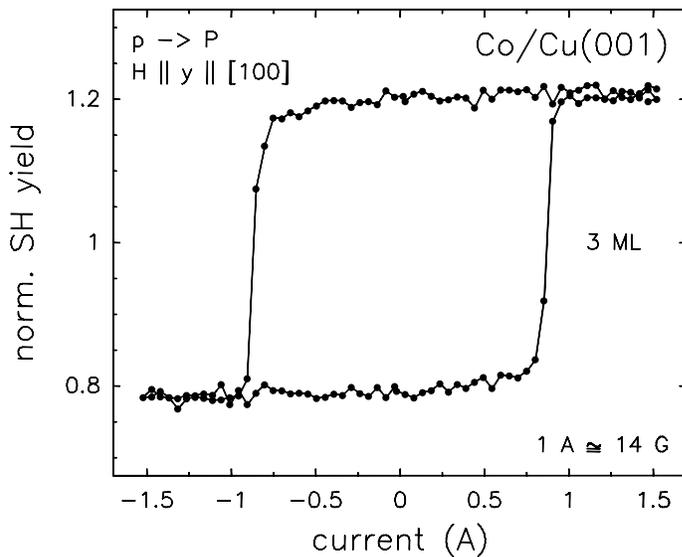


Abbildung 5.6: Hysteresemessung an 3 ML Co/Cu(001) bei einer Substrattemperatur von ungefähr 35 °C. Die Ausbeute an zweiter Harmonischer ist auf den Mittelwert normiert. Das angelegte Magnetfeld ist parallel zur [100]-Richtung der Probe und senkrecht zur Einfallsebene. Die Polarisationskombination ist p-P.

Das Auftreten des magnetischen Kontrastes ab einer bestimmten Schichtdicke zeigt den Übergang von der paramagnetischen in die ferromagnetische Phase an. Bei dieser Schichtdicke überschreitet die Curietemperatur T_C des Filmes die Substrattemperatur. Die magnetischen Eigenschaften und insbesondere die Curietemperatur dünner Filme können sich erheblich von den entsprechenden Bulkwerten unterscheiden, wenn die Filmdicke in den atomaren Bereich kommt. Als Folge der gebrochenen Symmetrie senkrecht zur Filmebene nimmt die Curietemperatur mit sinkender Schichtdicke ab (s. z.B. [21]). Aus der in der Abbildung 5.4 gezeigten Messung folgt also, daß der ca. 1.9 ML dicke Kobaltfilm auf Cu(001) in guter Übereinstimmung mit [20] eine Curietemperatur von ungefähr 80 °C besitzt, während der Bulkwert der Curietemperatur von Kobalt etwa 1115 °C beträgt [86]. Ab einer Filmdicke von ungefähr 6 ML ist der magnetische Kontrast konstant mit einem Wert von ca. 40 %, welches in sehr guter Übereinstimmung mit [15] ist. Der magnetische Kontrast wird dabei im allgemeinen ρ genannt und ist definiert als :

$$\rho = 2 \frac{I^\uparrow(2\omega) - I^\downarrow(2\omega)}{I^\uparrow(2\omega) + I^\downarrow(2\omega)} \quad , \quad (5.1)$$

wobei $I^{\uparrow\downarrow}(2\omega)$ die sich für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen ergebenden Intensitäten der zweiten Harmonischen sind (vergl. Kapitel 2.3). Gelegentlich wird ρ auch magnetische Asymmetrie genannt und wird manchmal auch nicht auf den Mittelwert der beiden Intensitäten, sondern auf deren Summe normiert.

In der Abbildung 5.6 ist eine Hysterese für einen 3 ML dicken Kobaltfilm dargestellt. Die zur Verfügung stehenden Magnetfelder sind also groß genug, um die Probe magnetisch zu sättigen. Es zeigt sich eine Koerzitivfeldstärke von ungefähr 13 G. Auch dieses ist in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen in [20]. Ohne weiter in die Details gehen zu wollen, sei noch gesagt, daß sich die [100]-Richtung hier als leichte Magnetisierungsachse und die [110]-Richtung als schwere Magnetisierungsachse herausstellt, was im Gegensatz zu den Ergebnissen von [20] ist. Wahrscheinlich sind diese Effekte stark substratabhängig, und werden weiter systematisch untersucht, wobei ich auf die Dissertation von Herrn V. Jähnke [87] verweisen möchte.

Die Beobachtung des Filmwachstums mit der Polarisationskombination s-P ist in der Abbildung 5.7 dargestellt. Für diese Messung wird die Polarisation der Fundamentalwellen mittels einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte um 90° gedreht. Es treten mehrere Effekte auf, die einer Erklärung bedürfen. Erstens ist die Ausbeute an zweiter Harmonischer an Kupfer in der s-P-Polarisationskombination ca. 5 mal größer, als in der p-P-Polarisationskombination. Dabei ist zu beachten, daß die Skalen der Abbildungen 5.4 und 5.7 nicht absolut miteinander vergleichbar sind, da die Messungen an verschiedenen Tagen durchgeführt wurden. Der Wert ergibt sich aus Vergleichen an jeweils einem Meßtag. Es wurden schon anisotrope Bulkbeiträge zur Frequenzverdoppelten an der reinen Cu(001)-Oberfläche im UHV nachgewiesen [88], aber diese führen zu keiner größeren Ausbeute in der Polarisationskombination s-P als in p-P. Es gibt aber Untersuchungen die einen starken Einfluß der Stufenkantendichte und -orientierung auf die Ausbeute an zweiter Harmonischer an einer Al-Oberfläche nachweisen [89], und darin wird wohl auch hier die Ursache für die Überhöhung liegen. Auch hierzu werden weitere, klärende Messungen folgen [87].

Mit beginnender Bedeckung der Kupferoberfläche durch Kobalt bricht das Signal der zweiten Harmonischen bis zu einem Minimum bei etwa 0.7 ML stark ein und steigt dann bei weiter steigender Bedeckung wieder steil an. Dieser Effekt ist durch einen Phasenunterschied von π zwischen den Beiträgen vom Kupfer und vom Kobalt zur Frequenzverdoppelten zu erklären. Bei einer Phasenverschiebung von π wird das Gesamtsignal mit dem sich ausbildenden Kobaltsignal erst kleiner, bis beide Beiträge gleich groß sind. Theoretisch sollte das Signal dann ganz ver-

schwinden. Im Experiment ist dieser Punkt bei 0.7 ML mit einem Signal an der Rauschgrenze erreicht. Dann übernimmt das größer werdende Kobaltsignal und die Ausbeute an zweiter Harmonischer steigt wieder an. Letztlich wird ein Wert erreicht, der ca. 30 mal kleiner ist als die Ausbeute in der Polarisationskombination p-P. Bei der Beobachtung mit der p-P-Polarisationskombination ist nicht auszuschließen, daß auch hier ein Phasenversatz von π zwischen den Beiträgen von Kupfer und Kobalt existiert. Zwar geben die Messungen keinen Hinweis auf einen Einbruch des Signals bei beginnender Bedeckung, aber dieser könnte sehr klein sein, denn zum einen ist der Anfangslevel der reinen Kupferoberfläche sehr klein, zum anderen ist der Beitrag des Kobalts sehr groß.

Bei einer Dicke von ungefähr 1.9 ML ist wieder durch das Aufspalten der Signale für die entgegengesetzten äußeren Magnetfeldrichtungen das Einsetzen der ferromagnetischen Ordnung zu beobachten. Im Gegensatz zu der Messung in der Abbildung 5.4 nähert sich der magnetische Kontrast aber nicht langsam einem konstanten Wert, sondern zeigt bis zu einer Dicke von ungefähr 7 ML sehr starke Variationen, einschließlich einer Kontrastumkehr bei etwa 4.8 ML. Dieses bedeutet aber nicht, daß sich die Magnetisierungsrichtung umgekehrt hat. Wie in Kapitel 5.3.2 gezeigt werden wird, wird dieses Verhalten durch eine Änderung der Phase zwischen dem magnetisierungsabhängigen und dem magnetisierungsunabhängigen Anteil der Suszeptibilität zweiter Ordnung hervorgerufen.

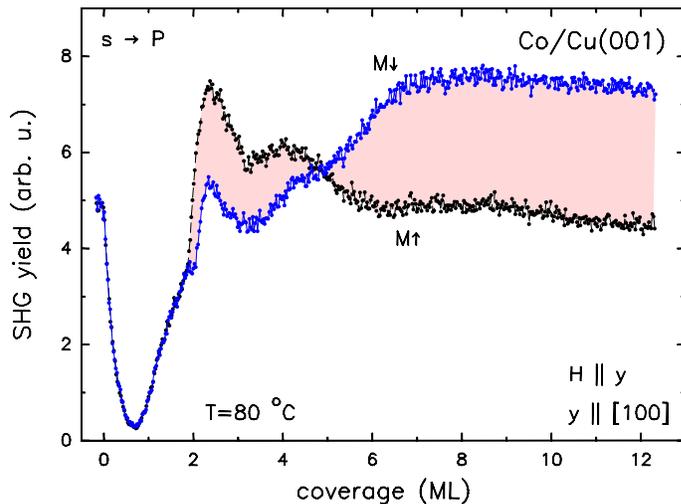


Abbildung 5.7: Verlauf der Ausbeute an zweiter Harmonischer für die beiden entgegengesetzten Magnetfeldrichtungen parallel zur y-Achse für die Polarisationskombination s-P. Zur besseren Unterscheidbarkeit wurden die beiden „Signaläste“ verschiedenfarbig dargestellt.

Die in [15] beschriebenen Monolagenoszillationen im magnetischen Anteil des Signals bei der s-P-Polarisationskombination konnten nicht nachgewiesen werden. Wohl aber sind in der Abbildung 5.4 bei genauerer Analyse der Daten Oszillationen der Signale mit der Lagendicke erkennbar [90, 15]. Diese und weitere z. T. schon angesprochene Effekte sind Gegenstand einer laufenden Dissertation [87], die sich unter anderem genau diesen Fragestellungen explizit widmen wird und auf die ich hier nochmals verweisen möchte.

5.2.2 Ni/Cu(001)

Von dünnen Nickelfilmen auf Cu(001) ist bekannt [21, 91], daß die Magnetisierung im Dickenbereich bis ungefähr 8 ML genauso wie bei Kobalt in der Probenebene liegt. In dem Dickenintervall von etwa 8 bis 10 ML findet dann aber ein Reorientierungsübergang der Magnetisierung statt, so daß ab ca. 10 ML die Magnetisierung vollständig senkrecht zur Probenoberfläche steht, wobei die genauen Übergangswerte augenblicklich noch Teil der Diskussion in der Literatur sind. Die Ursache für diese Spinreorientierung liegt in dem diffizilen Wechselspiel von Form- und Oberflächenanisotropie auf der einen, und der Volumenanisotropie auf der anderen Seite [91, 92]. Erstere fördern eine Magnetisierung in der Filmebene, letztere senkrecht dazu.

Die Beobachtung der zweiten Harmonischen erfolgt hier im Prinzip genau so, wie im vorhergehenden Kapitel für Co/Cu(001) beschrieben. Allerdings soll die senkrecht zur Probe stehende Magnetisierung bei größeren Lagendicken ebenfalls detektiert werden. Wie aus der Tabelle 2.1 hervorgeht, gibt es bei einer Magnetisierung der Probe in z-Richtung, also in polarer Geometrie, ein ungerades Tensorelement (χ_{yxz}^o) für die Polarisationskombination p-S, d.h. p-polarisierte Fundamentale und in s-Polarisationsrichtung analysierte zweite Harmonische. Allerdings wird dabei keine gerade Tensorkomponente angesprochen, so daß sich in der Intensität kein Kontrast ergibt. Ein Kontrast kann aber erzielt werden, in dem der Analysator nicht genau senkrecht zur Einfallsebene eingestellt wird, sondern ungefähr 5 bis 6° davon abweichend. Dann kann ein gewisser Anteil der bei p-Polarisation beobachtbaren geraden Tensorkomponenten mit der ungeraden Tensorkomponente interferieren und es ergibt sich ein magnetischer Kontrast. Im folgenden wird diese Polarisationskombination vereinfachend p-S genannt.

Um sowohl die Magnetisierung innerhalb der Filmebene, als auch senkrecht dazu während des Aufdampfens in einem Durchgang beobachten zu können, befindet sich der Analysator bei dieser Messung auf einem schnellen Rotationsmotor (M-037.DD, PI), welcher den Analysator in etwa 1 s um 90° dreht. Zu Beginn steht der Analysator in Richtung p-Polarisation und es wird das Magnetfeld in der Filmebene entlang der y-Achse angelegt. Zuerst 1 s in die eine Richtung, dann 1 s in die entgegengesetzte Richtung. Anschließend wird der Analysator in Richtung der s-Polarisation, bzw. leicht daneben, gedreht, und es wird das Magnetfeld senkrecht zur Filmebene entlang der z-Richtung angelegt. Erst 5 s in die eine, dann 5 s in die entgegengesetzte Richtung. Die Integrationszeit wurde hier fünfmal so groß gewählt wie bei der p-P-Polarisationskombination, da die Ausbeute an zweiter Harmonischer um ca. einen Faktor $4 \cdot 10^{-3}$ kleiner ist. Danach wird der Analysator wieder in die Stellung parallel zur Einfallsebene gedreht und der Zyklus beginnt von neuem. Insgesamt dauert ein vollständiger Zyklus mit dem Schalten des Magnetfeldes und Abspeichern der Daten ungefähr 20 s, was bei einer Aufdampftrate von 0.2 ML/min für jeden Meßkanal einer Auflösung von 15 Meßpunkten pro Mo-

nolage entspricht.

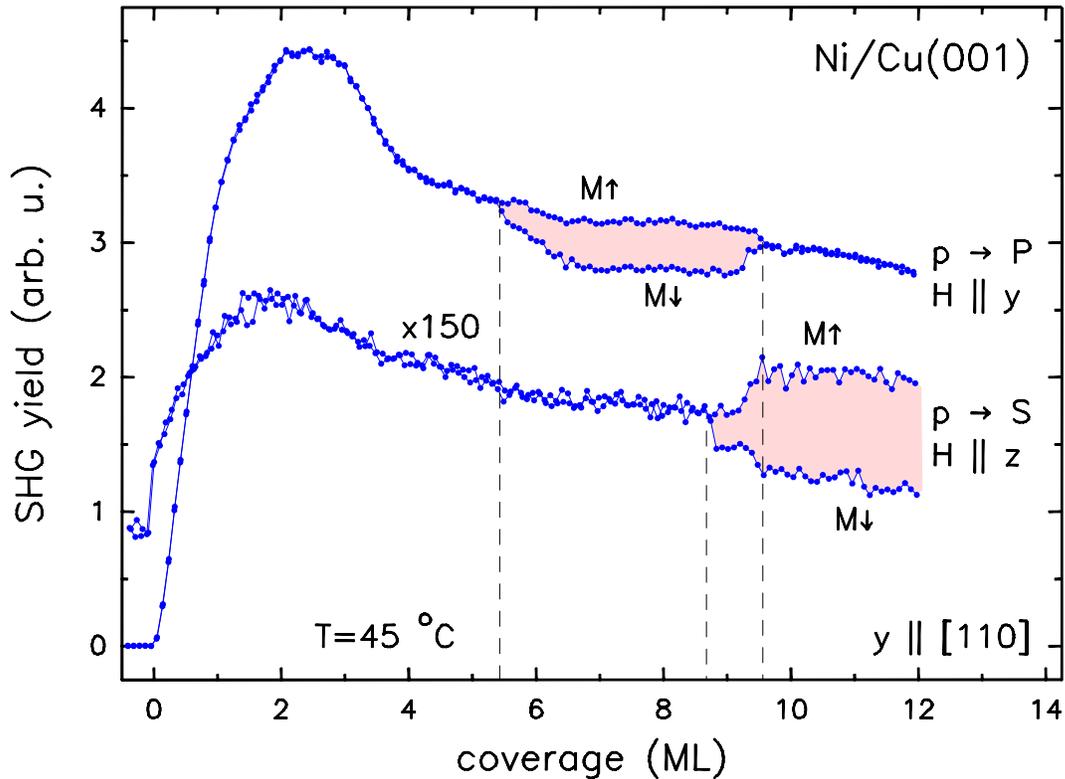
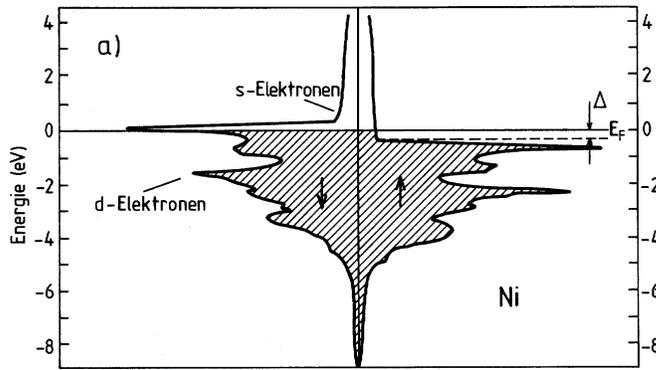


Abbildung 5.8: Verlauf der Ausbeute an zweiter Harmonischer für die beiden Polarisationskombinationen p-P und p-S über der mit MEED bestimmten Filmdicke für Ni/Cu(001). Die y-Achse ist hierbei parallel zur [110]-Richtung. Für die Polarisationskombination p-P wird das Magnetfeld entlang y, in der Filmebene angelegt; für p-S entlang z, senkrecht zur Filmebene. Die Messung erfolgte während des Filmwachstums mit einer Rate von ungefähr 0.2 ML/min bei einer Substrattemperatur von 45 °C.

In der Abbildung 5.8 sind die sich ergebenden Ausbeuten an zweiter Harmonischer über der Bedeckung dargestellt, wobei die Werte für die p-S-Polarisationskombination zur Anschaulichkeit mit einem Faktor 150 multipliziert sind. Für jede der beiden Polarisationskombinationen zeigt sich, wie bei Co/Cu(001), ein starker Signalanstieg mit beginnender Bedeckung, der ebenso wie bei Co/Cu(001) durch den Wandel der elektronischen Struktur bedingt ist. Aufgrund der großen Zustandsdichte im d-Band, gibt es bei Nickel genauso wie bei Kobalt eine *resonante* Überhöhung der Ausbeute an zweiter Harmonischer. Zur Veranschaulichung ist in der Abbildung 5.9 die berechnete Besetzungsdichte von Nickel dargestellt. Ebenso kann der sich insgesamt ergebende Signalverlauf durch das Vorhandensein zweier Grenzflächen verstanden werden.

Die in der p-P-Polarisationskombination gemessenen Signale zeigen durch das

**Abbildung 5.9:**

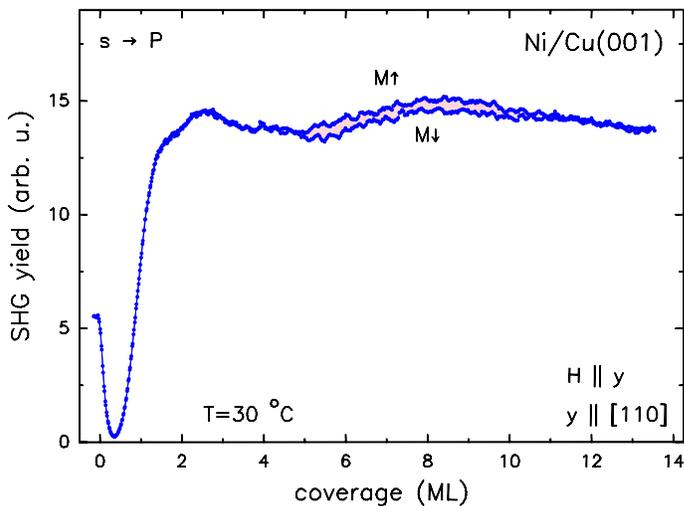
Darstellung der berechneten austauschaufgespaltenen Zustandsdichte von Nickelbulk für die ferromagnetische Phase. Die Austauschspaltung Δ beträgt etwa 0.4 eV. Die Abbildung ist [93] entnommen.

Auftreten eines magnetischen Kontrastes bei ungefähr 5.4 ML den Übergang von der paramagnetischen in die ferromagnetische Phase mit dem Ausbilden einer Magnetisierung in der Probenebene an. Die Curietemperatur dieser Filmdicke beträgt also ca. 45 °C, in guter Übereinstimmung mit [21]. Bei dieser Filmdicke ist im p-S-Signal noch keine Magnetisierung senkrecht zur Filmebene zu erkennen. Erst ab einer Filmdicke von etwa 8.7 ML tritt senkrecht zur Probenebene eine Magnetisierung auf, die an dem magnetischen Kontrast im p-S-Signal zu erkennen ist. Im anschließenden Dickenintervall bis ca. 9.6 ML bildet sich die Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche voll aus, während die Magnetisierung parallel zur Oberfläche kleiner wird und letztlich bei dieser Dicke verschwindet. Damit konnte der Reorientierungsübergang der Magnetisierung bei dünnen Nickelfilmen auf Cu(001) erstmals gewissermaßen in Echtzeit direkt während des Wachstums des Filmes beobachtet werden.

Die Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche bleibt bestehen bis zu einer Filmdicke von ca. 60 ML [22]. Diese zweite Magnetisierungsreorientierung, zurück in die Filmebene, konnte jedoch nicht detektiert werden, da die maximal erreichbaren Magnetfelder nicht mehr ausreichen, um die stark mit der Filmdicke wachsenden Koerzitivfelder bei höheren Bedeckungen zu überwinden.

Der in Gleichung 5.1 definierte magnetische Kontrast ρ beträgt in dem Dickenintervall von ungefähr 6.5 bis 9 ML, also mit der Magnetisierung in der Filmebene, relativ konstant 10 %. Der etwa viermal größere magnetische Kontrast von Co/Cu(001) in diesem Dickenbereich ist tendenziell im Einklang mit den unterschiedlich großen magnetischen Momenten von Nickel und Kobalt, welche bei dünnen Filmen etwa im Verhältnis 1 : 3 oder kleiner stehen [94, 95]. Allerdings hat das Beispiel der Messung an Co/Cu(001) mit der s-P-Polarisationskombination gezeigt, daß man genau prüfen muß, ob nicht etwa ein Phaseneffekt den magnetischen Kontrast in seiner Größe beeinflusst.

Auch an Ni/Cu(001) wurde mit der s-P-Polarisationskombination während des Aufwachsens der Filme gemessen. Eine solche Messung ist in der Abbildung 5.10

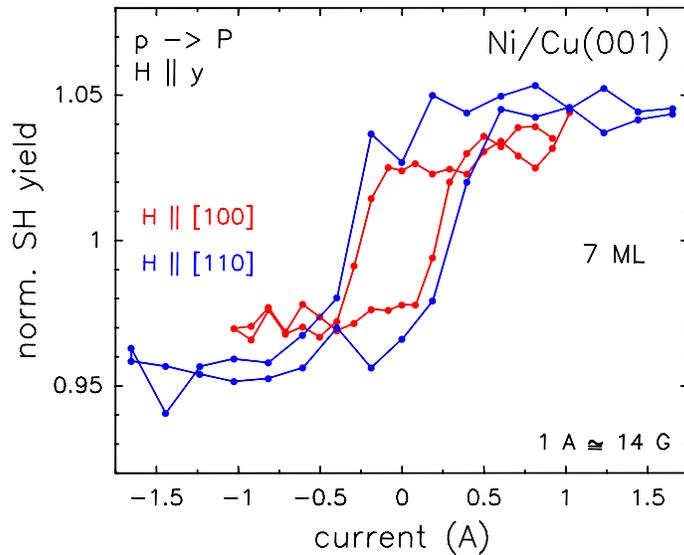
**Abbildung 5.10:**

Verlauf der Ausbeute an zweiter Harmonischer für die beiden entgegengesetzten Magnetfeldrichtungen parallel zur y-Achse für die Polarisationskombination s-P.

dargestellt. Der Signalverlauf bei Bedeckungen kleiner als ungefähr 2 ML ist entsprechend zu der s-P-Messung an Co/Cu(001) (vergl. Abb. 5.7), und das dort gesagte, gilt hier analog. Genau wie bei der p-P-Messung tritt bei ca. 5.4 ML ein magnetischer Kontrast ρ bei Magnetisierung in der Filmebene auf, welcher bis zu seinem Verschwinden bei etwa 10 ML eine relativ konstante Größe von ca. 3% besitzt. Große Änderungen oder sogar eine Kontrastumkehr wie bei Co/Cu(001) treten nicht auf. Der im Verhältnis zu der p-P-Messung etwa ein Drittel kleinere magnetische Kontrast ρ bei gleicher Magnetisierung der Probe zeigt noch einmal deutlich, daß allein daraus keine eindeutige Aussage über die Größe der beteiligten magnetischen Momente im Vergleich zu anderen Messungen gemacht werden kann. Dazu sind weitere Informationen nötig, wie in Kapitel 5.3 gezeigt wird.

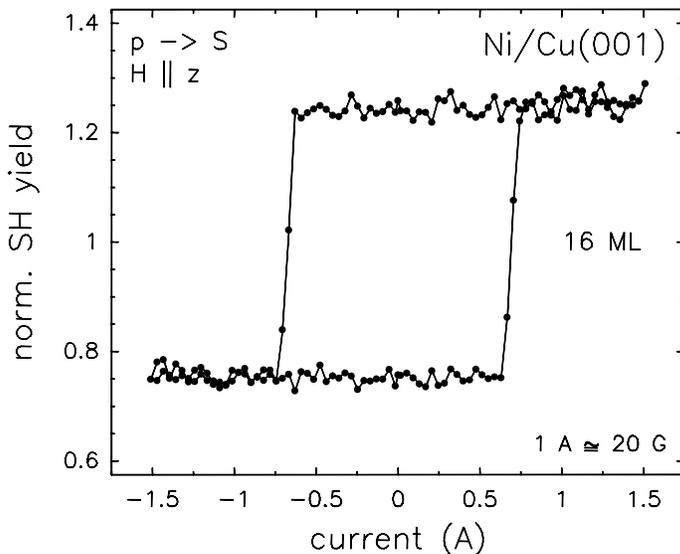
In dem Dickenbereich, in welchem die Magnetisierung in der Filmebene liegt, läßt sich, im Gegensatz zu Co/Cu(001), keine ausgezeichnete leichte Magnetisierungsachse feststellen. Die Form der in Abbildung 5.11 gezeigten Hysteresekurven ist unabhängig davon ob das Magnetfeld in der [100]- oder in der [110]-Richtung der Probenoberfläche liegt. Auch sind die Hysteresen weniger stark rechteckig als bei Co/Cu(001) (vergl. Abb.5.6), wobei sie immer noch deutliche Remanenz zeigen. Es ergeben sich Koerzitivfelder von etwa 4 G, was größenordnungsmäßig mit dem in [21] gegebenen Wert übereinstimmt. Die zur Verfügung stehenden Magnetfelder sind groß genug, um die Filme magnetisch zu sättigen.

In der Abbildung 5.12 ist die Hysterese eines 16 ML dicken Nickelfilmes gezeigt, bei welchem die Magnetisierung senkrecht zur Filmebene steht. Die Messung erfolgt dabei mit der p-S-Polarisationskombination und dem Magnetfeld entlang der z-Achse. Es zeigt sich eine rechteckige Hystereseform mit deutlicher Remanenz und einem Koerzitivfeld von ca. 15 G. Der magnetische Kontrast ρ beträgt etwa 40%, wobei die Größe von ρ in diesem Fall durch den Analysatorwinkel in gewissen

**Abbildung 5.11:**

Hysteresemessungen an 7 ML Ni/Cu(001) bei einer Substrattemperatur von ungefähr 45 °C. Die Ausbeute an zweiter Harmonischer ist auf den Mittelwert normiert. Das angelegte Magnetfeld ist einmal parallel zur [100]- und einmal parallel zur [110]-Richtung der Probenoberfläche und senkrecht zur Einfallsebene. Die Polarisationskombination ist p-P.

Grenzen einstellbar ist. Die maximal erreichbaren Magnetfeldstärken sind bei dieser Spule ausreichend, um die Probe bis zu einer Dicke von ca. 20 ML magnetisch zu sättigen.

**Abbildung 5.12:**

Hysteresemessung an 16 ML Ni/Cu(001) bei einer Substrattemperatur von ungefähr 60 °C. Die Ausbeute an zweiter Harmonischer ist auf den Mittelwert normiert. Das angelegte Magnetfeld ist parallel zur [100]-Richtung der Probe und senkrecht zur Einfallsebene. Die Polarisationskombination ist p-S.

Auch hier sei noch einmal darauf hingewiesen, daß weiterführende systematische Untersuchungen im Hinblick auf die genaue Lage des Übergangsbereiches der Magnetisierungsreorientierung, sowie dessen Abhängigkeit von den Präparationsbedingungen, als auch die insgesamt Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften vom Substrat bzw. der Filmpräparation Gegenstand einer weiteren laufenden Dissertation sind [87].

5.3 Phasensensitive SHG-Messungen

In den vorhergehenden Kapiteln wurde die Interferenz zwischen den kristallografischen (geraden) und den magnetischen (ungeraden) Tensorcomponenten der Suszeptibilität zweiter Ordnung genutzt, um einen magnetischen Kontrast im Intensitätssignal der zweiten Harmonischen zu erzeugen. Bei dieser Art Messung gehen die Phaseninformationen der komplexen Tensorcomponenten verloren. Durch phasensensitive Messungen lassen sich weitergehende Aussagen ableiten, z. B. über die relativen Größen der beteiligten geraden und ungeraden Tensorcomponenten.

5.3.1 Methoden

Unabhängig von den bei einer bestimmten Polarisationskombination tatsächlich auftretenden Tensorcomponenten läßt sich die detektierte Intensität der zweiten Harmonischen für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen schreiben als (vergl. Kap. 2.3) :

$$I^{\uparrow\downarrow}(2\omega) \propto \left| A\chi_{\text{even}}^{(2)} \pm B\chi_{\text{odd}}^{(2)} \right|^2 I^2(\omega) \quad , \quad (5.2)$$

wobei $\chi_{\text{even}}^{(2)}$ bzw. $\chi_{\text{odd}}^{(2)}$ den geraden bzw. ungeraden Anteil der Suszeptibilität zweiter Ordnung darstellen und A bzw. B die zugehörigen effektiven Fresneffaktoren. $I(\omega)$ ist die Intensität der fundamentalen Laserstrahlung.

Für die daraus gebildete Summe und Differenz folgt :

$$I^{\uparrow}(2\omega) + I^{\downarrow}(2\omega) = 2I^2(\omega) \left[\left| A\chi_{\text{even}}^{(2)} \right|^2 + \left| B\chi_{\text{odd}}^{(2)} \right|^2 \right] \quad (5.3)$$

$$I^{\uparrow}(2\omega) - I^{\downarrow}(2\omega) = 4I^2(\omega) \left| A\chi_{\text{even}}^{(2)} B\chi_{\text{odd}}^{(2)} \right| \cos \phi \quad , \quad (5.4)$$

mit der Phase ϕ zwischen den geraden und ungeraden Beiträgen.

Damit folgt für den in Gleichung 5.1 definierten magnetischen Kontrast :

$$\rho = 2 \frac{I^{\uparrow}(2\omega) - I^{\downarrow}(2\omega)}{I^{\uparrow}(2\omega) + I^{\downarrow}(2\omega)} = \frac{4 \left| \frac{B\chi_{\text{odd}}^{(2)}}{A\chi_{\text{even}}^{(2)}} \right|}{1 + \left| \frac{B\chi_{\text{odd}}^{(2)}}{A\chi_{\text{even}}^{(2)}} \right|^2} \cos \phi \quad , \quad (5.5)$$

d.h. wenn der magnetische Kontrast ρ und die Phase ϕ bekannt sind, läßt sich das Verhältnis der kristallografischen und magnetischen Anteile der Suszeptibilität zweiter Ordnung bestimmen.

Experimentell relativ leicht zugänglich sind die Intensitäten $I^{\uparrow\downarrow}(2\omega)$ bei entgegengesetzten Magnetfeldrichtungen, aus denen sich der magnetische Kontrast berechnen läßt. Die Phase ϕ zwischen den geraden und ungeraden Anteilen von $\chi^{(2)}$ ist nicht direkt meßbar. Mit einer phasensensitiven Meßmethode ist es aber möglich, die Phasenverschiebung $\Delta\Theta$ zwischen den erzeugten elektrischen Feldern $\vec{E}^{\uparrow\downarrow}(2\omega)$ der zweiten Harmonischen bei Umkehrung der Magnetfeldrichtung zu messen, wobei gilt :

$$I^{\uparrow\downarrow}(2\omega) \propto |\vec{E}^{\uparrow\downarrow}(2\omega)|^2 \propto |A\chi_{\text{even}}^{(2)} \pm B\chi_{\text{odd}}^{(2)}|^2 \quad . \quad (5.6)$$

Bevor die experimentelle Umsetzung dieser Methode weiter unten ausführlich beschrieben wird, soll noch kurz dargelegt werden, wie sich die Phase ϕ und das Verhältnis der geraden zu den ungeraden Anteilen aus der Kenntnis der Intensitäten $I^{\uparrow\downarrow}(2\omega)$ und der Phasenverschiebung $\Delta\Theta$ berechnen läßt. Dazu sind in der Abbildung 5.13 die geraden und ungeraden Anteile von $\chi^{(2)}$ in der komplexen Zahlenebene für den Fall der Magnetisierungsumkehr dargestellt.

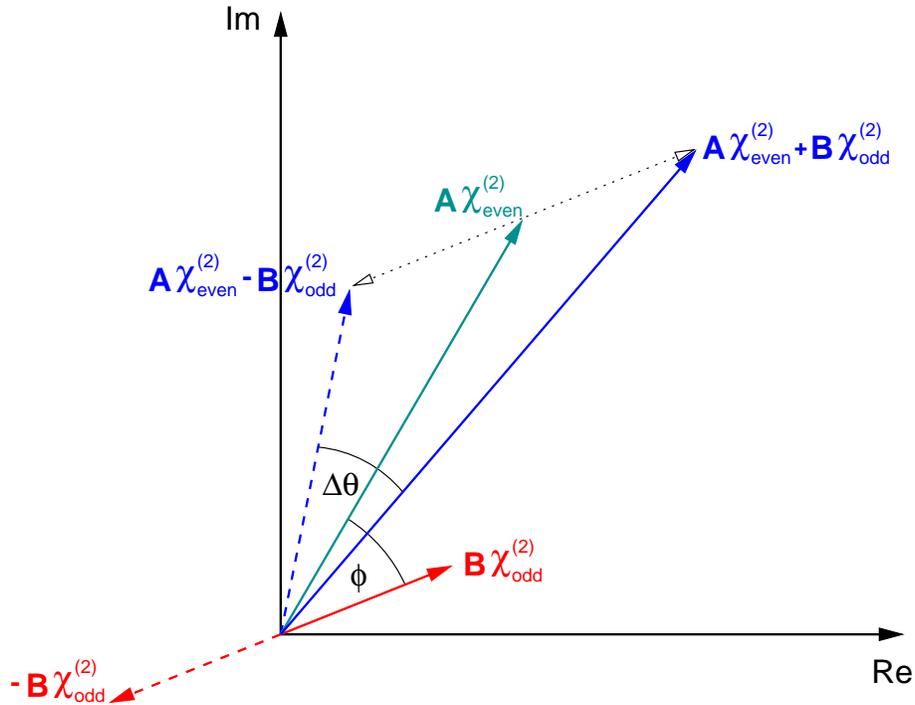


Abbildung 5.13: Darstellung der geraden und ungeraden Anteile von $\chi^{(2)}$ in der komplexen Ebene bei Umkehrung der Magnetisierung.

Durch Betrachtung mehrerer schiefwinkliger Dreiecke in dieser Anordnung und

unter Berücksichtigung von Gleichung 5.6 ergibt sich daraus :

$$\cos \phi = \frac{1 - (I^\downarrow/I^\uparrow)}{\left[(1 + (I^\downarrow/I^\uparrow))^2 - 4(I^\downarrow/I^\uparrow) \cos^2(\Delta\Theta) \right]^{1/2}} \quad (5.7)$$

$$\left| \frac{B\chi_{\text{odd}}^{(2)}}{A\chi_{\text{even}}^{(2)}} \right| = \left[\frac{1 + (I^\downarrow/I^\uparrow) - 2\sqrt{I^\downarrow/I^\uparrow} \cos(\Delta\Theta)}{1 + (I^\downarrow/I^\uparrow) + 2\sqrt{I^\downarrow/I^\uparrow} \cos(\Delta\Theta)} \right]^{1/2}, \quad (5.8)$$

worin die Frequenzabhängigkeit der Intensitäten $I^{\uparrow\downarrow}$ nicht mehr explizit geschrieben ist.

Im folgenden wird nun das Prinzip der phasenempfindlichen Messung der zweiten Harmonischen erläutert. Es beruht auf der Interferenz der an der Probe erzeugten Frequenzverdoppelten mit einer Referenz bei der Frequenz 2ω [96].

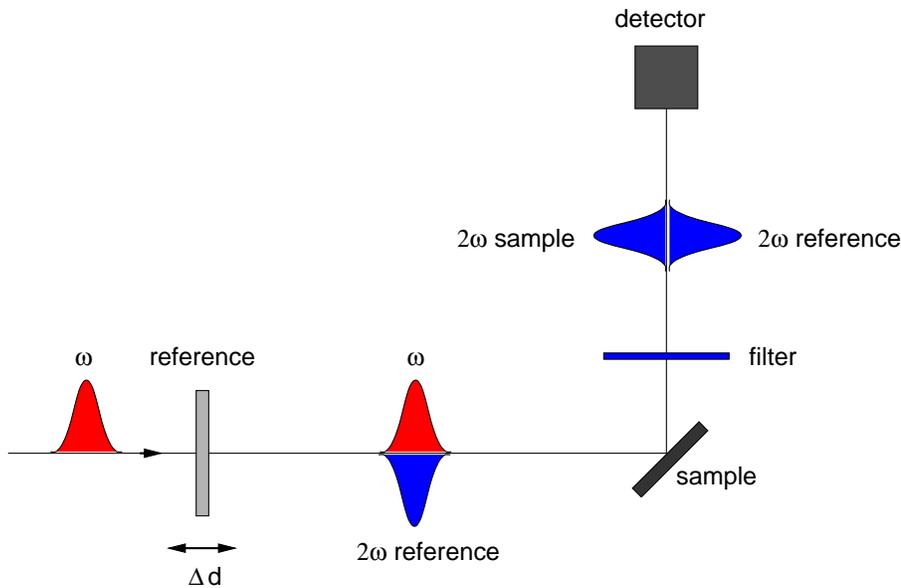


Abbildung 5.14: Prinzipskizze der Phasenmessung an Luft. Das Interferogramm entsteht in der Intensität durch Verschieben der Referenzquelle um Δd .

Der prinzipielle Aufbau einer solchen Anordnung an Luft ist in der Abbildung 5.14 gezeigt. In den einfallenden Laserstrahl wird eine Referenzquelle für die zweite Harmonische eingebracht. Dabei kann es sich z. B. um einen dünnen Quarzkristall [97] oder einen dünnen gepolten Polymerfilm handeln [98]. Bei der Ausbreitung in Luft ändert sich die Phase zwischen dem elektrischen Feld der zweiten Harmonischen und der Fundamentalen leicht in Abhängigkeit von der Länge der zurückge-

legten Strecke d . Diese Phasenänderung ist gegeben durch :

$$\Theta(d) = \Theta_0 + \frac{4\pi\Delta n_{\text{air}}}{\lambda}d \quad , \quad (5.9)$$

wobei λ die fundamentale Wellenlänge und $\Delta n_{\text{air}} = n_{\text{air}}(2\omega) - n_{\text{air}}(\omega) \approx 7 \cdot 10^{-6}$ (vergl. Abb. C.6) ist.

Aufgrund dieser Phasenverschiebung ergibt sich eine Interferenz zwischen der an der Probe generierten zweiten Harmonischen $I_{2\omega,s}$ und der Referenzverdoppelten $I_{2\omega,r}$ in Abhängigkeit der Entfernung von Referenzquelle und Probe der Form :

$$I_{2\omega,tot} = I_{2\omega,s} + I_{2\omega,r} + 2\alpha\sqrt{I_{2\omega,s}I_{2\omega,r}}\cos[\Theta(d)] \quad , \quad (5.10)$$

mit dem Kohärenzparameter α , der die zeitliche und räumliche Kohärenz des Lasers [99] berücksichtigt. Es ergibt sich ein Interferogramm in Abhängigkeit von d mit einer Periodizität von ca. 57 mm für eine Wellenlänge von 800 nm. Durch Aufnahme des Interferogramms für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen ergibt sich die Phasenverschiebung $\Delta\Theta$.

Diese Methode funktioniert ganz hervorragend an Luft, ist aber in einer UHV-Kammer nicht einsetzbar. Bei dem Durchgang durch das UHV-Fenster laufen die Laserpulse bei der fundamentalen und der verdoppelten Frequenz aufgrund der starken Dispersion zeitlich so weit auseinander, daß sie nicht mehr überlappen und damit nicht mehr interferieren können. Für den Zeitversatz Δt zwischen den beiden Pulsen gilt :

$$\Delta t = z \left[\frac{1}{v_g(2\omega)} - \frac{1}{v_g(\omega)} \right] \quad , \quad (5.11)$$

mit den Gruppengeschwindigkeiten :

$$\frac{1}{v_g} = \frac{1}{c} \left[n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} \right] \quad . \quad (5.12)$$

Die in der Vakuumkammer verwendeten UHV-Fenster aus Quarz haben nach Herstellerangaben eine Dicke von 3.3 mm. Mit den Werten für n und $dn/d\lambda$ für Quarz für 800 nm (s. Kap. C) ergibt sich damit aus den Gleichungen 5.11 und 5.12 eine Zeitverzögerung Δt von ca. 0.52 ps. Damit geht die Interferenz in der Intensität der zweiten Harmonischen verloren, und eine Phasenmessung ist unmöglich.

Kürzlich wurde eine Lösung diese Problems vorgeschlagen und demonstriert [82]. Durch den Übergang zur spektralen Interferometrie [100], also durch den Wechsel vom Zeit- in den Frequenzraum, macht man sich die vorher vernichtend wirkende Zeitverzögerung Δt positiv zunutze. Im Spektrum der Überlagerung der zweiten Harmonischen der Probe und der Referenz führt diese Zeitverzögerung

nämlich zu einer Modulation, aus welcher sich wieder die Phase ableiten läßt. Eine schematische Anordnung zur Phasenmessung in einer UHV-Kammer ist in der Abbildung 5.15 gezeigt. Statt die Intensität der zweiten Harmonischen wie an Luft total zu detektieren (vergl. Abb. 5.14), wird dabei mit einem Monochromator das Spektrum der Frequenzverdoppelten aufgenommen.

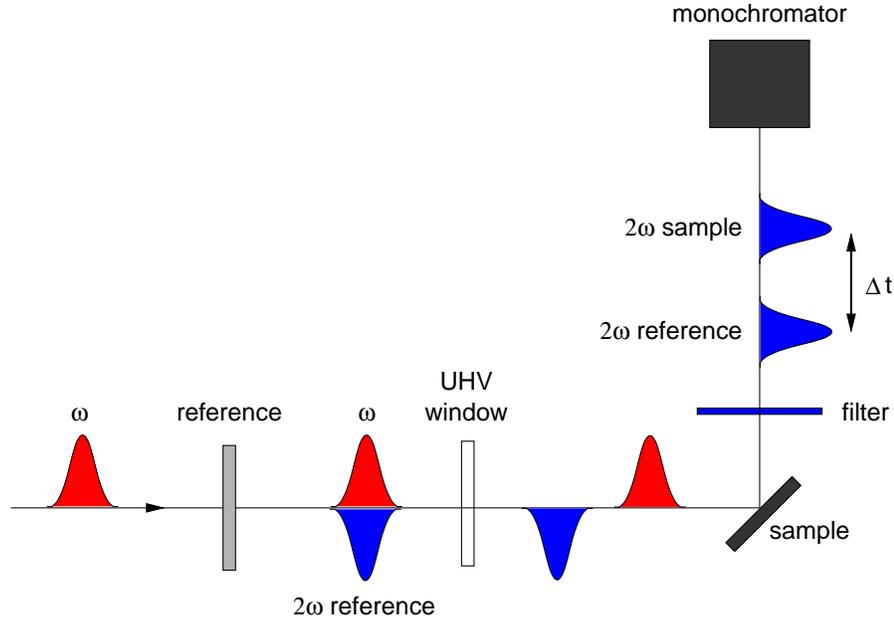


Abbildung 5.15: Prinzipskizze der Phasenmessung in einer UHV-Kammer. Die Referenzquelle behält ihre Position bei. Das Interferogramm entsteht im Spektrum durch die Zeitverzögerung Δt .

Im Zeitraum läßt sich das elektrische Feld $E_{2\omega,tot}(t)$ am Detektor zweier frequenzverdoppelter Pulse mit einer Zeitverzögerung Δt schreiben als :

$$E_{2\omega,tot}(t) = E_{2\omega,s} g(t) e^{-i2\omega_0 t} + E_{2\omega,r} g(t - \Delta t) e^{-i2\omega_0 t + i\Theta} + \text{c.c.} \quad , \quad (5.13)$$

mit den langsam veränderlichen Einhüllenden $E_{2\omega,s} g(t)$ und $E_{2\omega,r} g(t - \Delta t)$. Die relative Phase Θ der Pulse steht in den schnell oszillierenden Exponentialtermen.

Wenn $G(\Delta\omega)$ die Fouriertransformierte von $g(t)$ ist, dann ist $G(\Delta\omega)e^{i\Delta\omega\Delta t}$ die Fouriertransformierte von $g(t - \Delta t)$. Mit dieser sogenannten „time-shifting-identity“ ergibt sich das am Detektor gemessene Spektrum zu :

$$I(2\omega_0 + \Delta\omega) \propto |G(\Delta\omega)|^2 [I_{2\omega,s} + I_{2\omega,r} + 2\alpha \sqrt{I_{2\omega,s} I_{2\omega,r}} \cos(2\omega_0 \Delta t + \Delta\omega \Delta t + \Theta)] \quad , \quad (5.14)$$

wobei $\Delta\omega$ den Abstand zur zentralen Frequenz $2\omega_0$ innerhalb des Spektrums angibt. Der erste Term des Kosinusargumentes, $2\omega_0 \Delta t$, ist eine feste Zahl. Die Periodizität wird durch den zweiten Term festgelegt auf $2\pi/\Delta t$ und beträgt mit der

weiter oben ausgerechneten Zeitverzögerung und einer zentralen Wellenlänge von 400 nm ungefähr 1 nm. Der Monochromator sollte daher mindestens eine Auflösung von 0.25 nm besitzen. Aus dem modulierten Spektrum läßt sich die Phase Θ der zweiten Harmonischen der Probe relativ zur Referenzverdoppelten bestimmen. Für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen läßt sich die interessierende Phasenverschiebung $\Delta\Theta$ zwischen diesen beiden Signalen aus den zugehörigen Spektren ermitteln.

5.3.2 Messungen der Phase im UHV

Der Aufbau für phasempfindliche Messungen mit der zweiten Harmonischen in der UHV-Kammer ist in der Abbildung 5.16 schematisch dargestellt. Dieser ist dem Aufbau für die zeitintegralen Messungen der Frequenzverdoppelten (s. Abb. 5.3) ähnlich.

Auch hier wird als Strahlquelle der selbstaufgebaute Ti:Sa-Laseroszillator (vergl. Kap. 3.2) verwendet. Der einfallende Laserstrahl durchläuft eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte aus Quarz (Laser Components, low order), um die einfallende Polarisationsrichtung variieren zu können. Zwischen der Fokussierungslinse und dem UHV-Einkoppelfenster befindet sich ein dünner Quarzkristall, der der Erzeugung der Referenzverdoppelten dient. Nach dem Austritt aus der UHV-Kammer wird der Laserstrahl kollimiert und die zweite Harmonische mit einem Glan-Taylor-Prisma (GT-10, Laser Components) analysiert. Ein 2 mm dicker BG-39 Farbfilter (Schott) absorbiert den größten Teil der Laserstrahlung bei der fundamentalen Wellenlänge. Mit Hilfe dreier für 800 nm hochreflektierender dielektrischer Spiegel und einer langbrennweitigen plankonvexen Linse ($f = 350$ mm), wird die Frequenzverdoppelte auf den Eingangsspalt eines hochauflösenden Gittermonochromators (305MV, Minuteman Laboratories) fokussiert, der eine maximale Auflösung von 0.03 nm besitzt. An dessen Ausgangsspalt ist lichtdicht ein Photomultiplier (R4220P, Hamamatsu) montiert, mit welchem die zweite Harmonische im Einzelphotonennachweis detektiert wird.

Laserlicht bei der fundamentalen Frequenz, das nach dem Farbfilter und den drei 400 nm-Spiegeln noch in den Monochromator dringt, wird spätestens dort räumlich von der zweiten Harmonischen getrennt. In der Abbildung 5.17 ist das Spektrum der Frequenzverdoppelten ohne Überlagerung mit der Referenz von einem 7 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001) gezeigt. Ein gaußförmiger Fit an dieses Spektrum liefert eine Halbwertsbreite von ca. 8.9 nm. Mit der gemessenen fundamentalen Bandbreite von ca. 29.3 nm stimmt das Verhältnis der Bandbreiten von 3.3 recht gut mit dem zu erwartenden Faktor von $2\sqrt{2}$ überein. Das zeigt, daß es sich bei den auch schon vorher (s. Kap. 5.2.1, 5.2.2) gemessenen Signalen tatsächlich um „reine“ zweite Harmonische handelt, und nicht z. B. um Plasmaleuchten.

Zur Erzeugung der Referenzverdoppelten wird ein ca. 200 – 300 μm dicker soge-

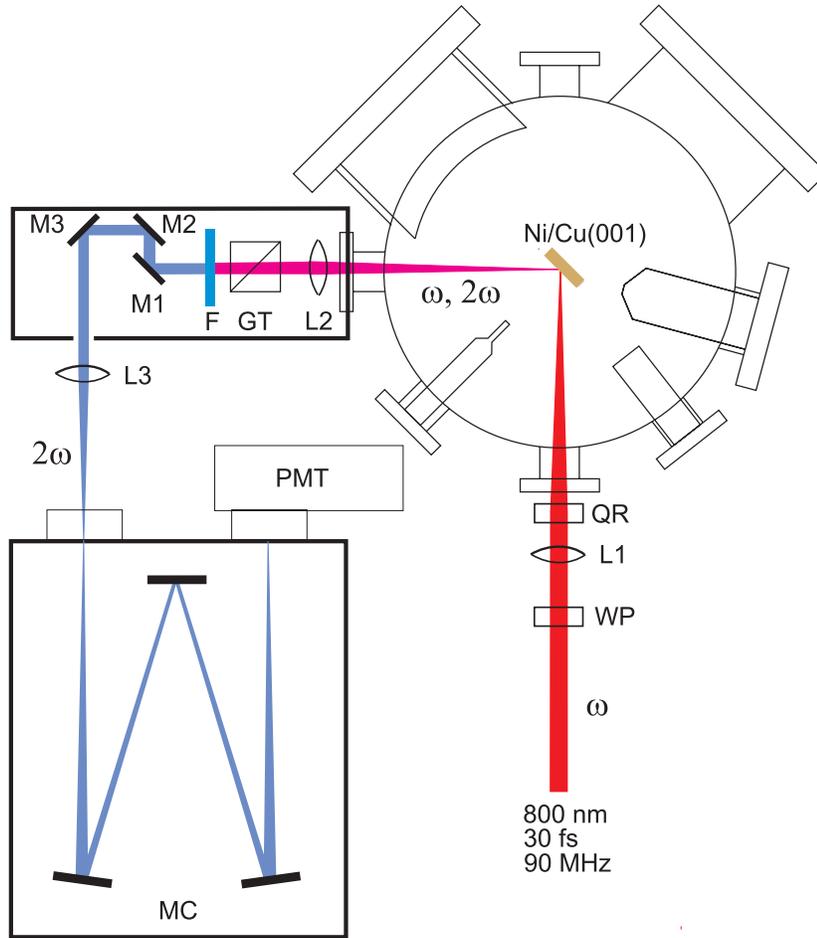


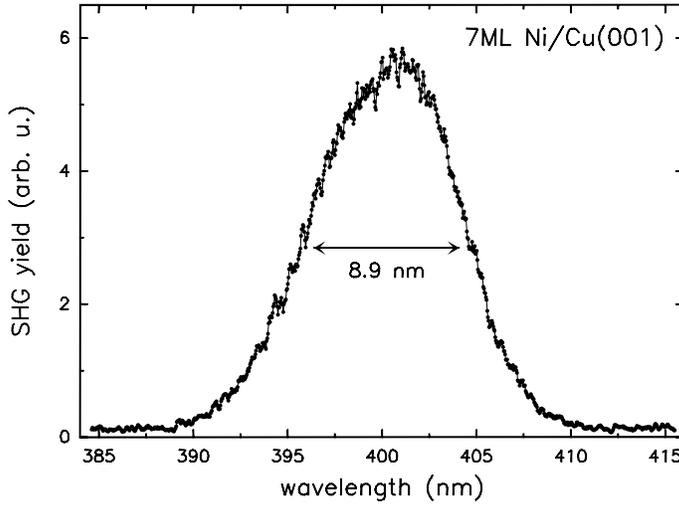
Abbildung 5.16: Skizze des Aufbaus für die Phasenmessungen in der UHV-Kammer. Darin bedeuten: WP $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte, L1 Fokussierungslinse, QR Quarzreferenzkristall, L2 Kollimierungslinse, GT Glan-Taylor-Prisma, F Farbfilter, M1-3 Spiegel (HR 400 nm) L3 plankonvexe Linse, MC Monochromator, PMT Photomultiplier.

nannter „z-cut“-Quarzkristall (Laser Components) verwendet, was bedeutet, daß der Einkristall senkrecht zur optischen Achse geschnitten ist. Damit gibt es bei senkrechter Einstrahlung keine Doppelbrechung.

Bei normalen Einfall wird nur ein unabhängiges Tensorelement $\chi_{x'x'x'}^{(2)}$ der Suszeptibilität zweiter Ordnung angesprochen [97], wobei x' eine kristallografische Achse ist. Für die Komponenten des elektrischen Feldes der zweiten Harmonischen des Referenzkristalles gilt in Laborkoordinaten [97] :

$$\begin{pmatrix} E_{2\omega,x} \\ E_{2\omega,y} \end{pmatrix} \propto \begin{bmatrix} \cos 3\theta & -\cos 3\theta & \sin 3\theta \\ \sin 3\theta & -\sin 3\theta & -\cos 3\theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (E_{\omega,x})^2 \\ (E_{\omega,y})^2 \\ 2E_{\omega,x}E_{\omega,y} \end{bmatrix}, \quad (5.15)$$

worin θ der Winkel zwischen der Laborkoordinatenachse x und der kristallogra-

**Abbildung 5.17:**

Spektrum der zweiten Harmonischen von 7ML Ni/Cu(001) ohne Überlagerung mit der Referenzverdoppelten. Ein gaußförmiger Fit ergibt eine Halbwertsbreite von ca. 8.9 nm.

fischen Achse x' ist. Für eine linear, z.B. entlang der x-Achse, polarisierte einfallende fundamentale Laserstrahlung ergibt sich damit für das elektrische Feld der Frequenzverdoppelten :

$$\begin{pmatrix} E_{2\omega,x} \\ E_{2\omega,y} \end{pmatrix} \propto \begin{pmatrix} \cos 3\theta (E_{\omega,x})^2 \\ \sin 3\theta (E_{\omega,y})^2 \end{pmatrix} . \quad (5.16)$$

Wenn die so erzeugte zweite Harmonische in x- oder y-Richtung analysiert wird, ist es damit möglich durch Drehen des Referenzkristalles um die Strahlachse, die Signalstärke der Referenzverdoppelten kontinuierlich von Null bis zu einem bestimmten Maximalwert einzustellen. Damit läßt sich die Modulationsstärke in den zu betrachtenden Spektren optimieren.

Ein Nachteil bei der Verwendung eines solchen Quarzkristalls als Referenzquelle ist das Auftauchen sogenannter „Maker-Oszillationen“ im Spektrum der zweiten Harmonischen des Quarzkristalls, welches in der Abbildung 5.18 dargestellt ist. Im engeren Sinne spricht man bei Oszillationen in der Intensität der erzeugten Frequenzverdoppelten in Abhängigkeit vom Einfallswinkel von „Maker-Oszillationen“ [30], aber sie sind auch im Spektrum zu beobachten. Da die Phasenanpassungsbedingung für die effiziente Erzeugung der zweiten Harmonischen im Volumen des Quarzkristalls nicht erfüllt ist, sind die Beiträge zur Frequenzverdoppelung im Volumen und an den Grenzflächen von vergleichbarer Größe. Gemäß [101] führt dies bei senkrechten Einfall zu einer Oszillation in der Referenzverdoppelten mit :

$$E_{2\omega,r} \propto \sin^2 \left(\frac{2\pi L}{\lambda} |n_{\omega} - n_{2\omega}| \right) , \quad (5.17)$$

mit L der Dicke des Kristalls, λ der Wellenlänge und n_{ω} und $n_{2\omega}$ den Brechungsindizes bei ω und 2ω . Mit den Werten für synthetischen Quarz (s. Anhang

C) für n_ω und $n_{2\omega}$ ergibt sich damit im interessierenden Wellenlängenbereich eine Oszillationsperiode von ca. 14 nm, was gut mit dem experimentellen Ergebnis übereinstimmt (vergl. Abb. 5.18).

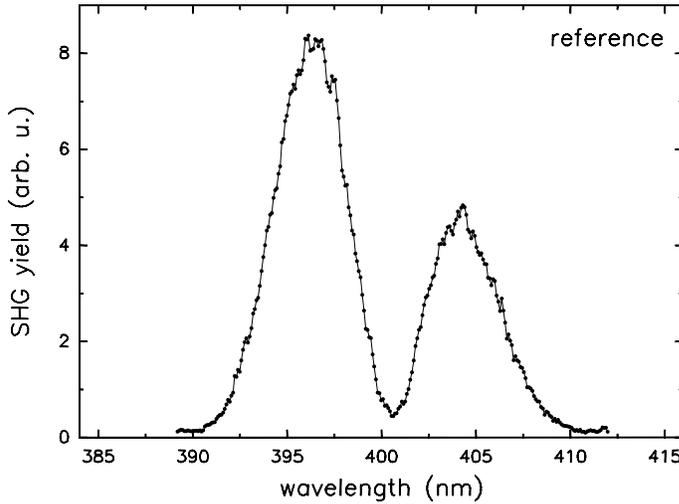


Abbildung 5.18:

Spektrum der zweiten Harmonischen des Quarzreferenzkristalls. Für diese Messung wurde die fundamentale Laserstrahlung direkt hinter dem Referenzkristall mit einem BG-39 Farbfilter absorbiert, so daß an der Probenoberfläche keine Frequenzverdoppelte generiert werden konnte.

5.3.2.1 Ni/Cu(001)

Als erstes werden Phasenmessungen an einem 7 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001) bei Raumtemperatur vorgestellt. In diesem Dickenbereich liegt die Magnetisierung in der Filmebene, wie in Kapitel 5.2.2 gezeigt wurde. Wie aus der Tabelle 2.1 hervorgeht ergibt sich mit einer Magnetisierung entlang der y-Richtung für die Polarisationskombinationen p-P und s-P ein magnetischer Kontrast.

In der Abbildung 5.19 sind die Spektren für die Polarisationskombination p-P und die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen gezeigt. Die Überlagerung der zweiten Harmonischen der Probe mit der Referenzverdoppelten führt gemäß Gleichung 5.14 zu einer deutlichen Modulation des Spektrums mit einer Periode von ca. 1.04 nm. Die Bestimmung einer Phasenverschiebung direkt aus den gemessenen Spektren wie in Abbildung 5.19 ist nur schwer möglich. Daher werden die gemessenen Daten noch weiter verarbeitet.

Durch Fourierfilterung werden die oszillierenden Anteile der Spektren extrahiert, aus denen dann die Phasenverschiebung bestimmt werden kann. Anhand dieses Beispiels soll das Auswerteverfahren exemplarisch vorgestellt werden. In der Abbildung 5.20 ist die Fouriertransformierte $\mathcal{F}(t)$ des Spektrums für M^\uparrow aus der Abbildung 5.19 gezeigt. Diese ist proportional zur Autokorrelationsfunktion

$$\mathcal{F}(t) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}(t') \mathcal{E}^*(t' - t) dt' \quad (5.18)$$

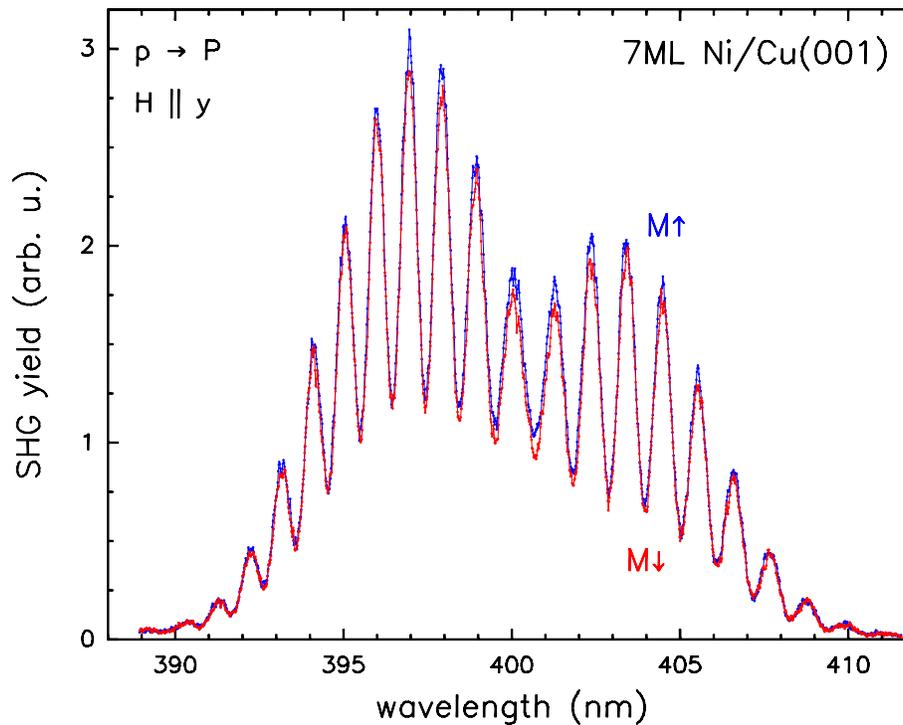


Abbildung 5.19: Darstellung der gemessenen Spektren von 7 ML Ni/Cu(001) bei Überlagerung mit der Referenzverdoppelten für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen. Die Polarisationskombination ist p-P.

der Totaleinhüllenden $\mathcal{E} = E_1g(t) + E_2g(t - \Delta t)e^{i\theta}$ der beiden Pulse am Eingang des Monochromators. Die Autokorrelationsfunktion besitzt eine zentrale Komponente bei $t = 0$, welche die Form der einzelnen Pulse beinhaltet. Zusätzlich besitzt sie an den Stellen $t = \pm\Delta t$ Satelliten, welche die Informationen über den oszillierenden Anteil des gemessenen Spektrums tragen. Die Mittenpositionen der Satelliten sind etwa ± 0.53 ps, was sehr gut mit der Abschätzung für die Zeitverzögerung der beiden Pulse aufgrund der Gruppengeschwindigkeitsdispersion nach Gleichung 5.11 von 0.51 ps übereinstimmt. Bei der Rücktransformation werden nur diese beiden Satelliten berücksichtigt. Dazu wird die Fouriertransformierte mit einer Bandpaßfilterfunktion entsprechender Zentralfrequenz und Breite multipliziert und dann zurücktransformiert. Die Position und Breite dieses Filters ist exemplarisch in der Abbildung 5.20 durch die horizontalen Linien angedeutet, wobei ein Zentrum von 0.53 ps und eine Breite von 0.44 ps verwendet wurden.

Die Rücktransformierten dieser Prozedur sind in der Abbildung 5.21 dargestellt. Sie beinhalten nur noch die oszillierenden Anteile der gemessenen Spektren und sind zudem geglättet, da durch den Bandpaß auch die hohen Frequenzen der Fouriertransformierten, d. h. das hochfrequente Rauschen, abgeschnitten werden. Mit großer Sorgfalt wurde darauf geachtet, die Parameter für die Fourierfil-

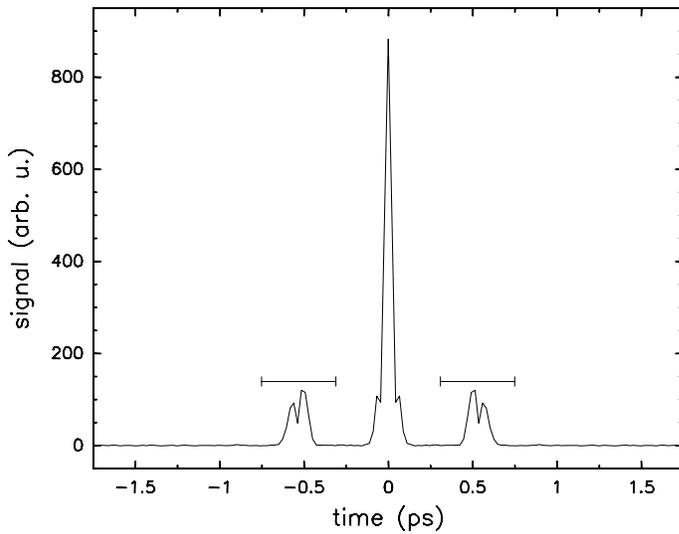


Abbildung 5.20: Fouriertransformierte des Spektrums von 7 ML Ni/Cu(001) aus der Abb. 5.19. Die beiden horizontalen Linien markieren die bei der Rücktransformation berücksichtigten Bereiche, welche die Informationen über den oszillierenden Anteil des Spektrums tragen.

terung, nämlich die zentrale Position und die Breite der Bandpaßfilterfunktion, so zu wählen, daß das letztendliche Ergebnis von dieser Wahl unabhängig ist.

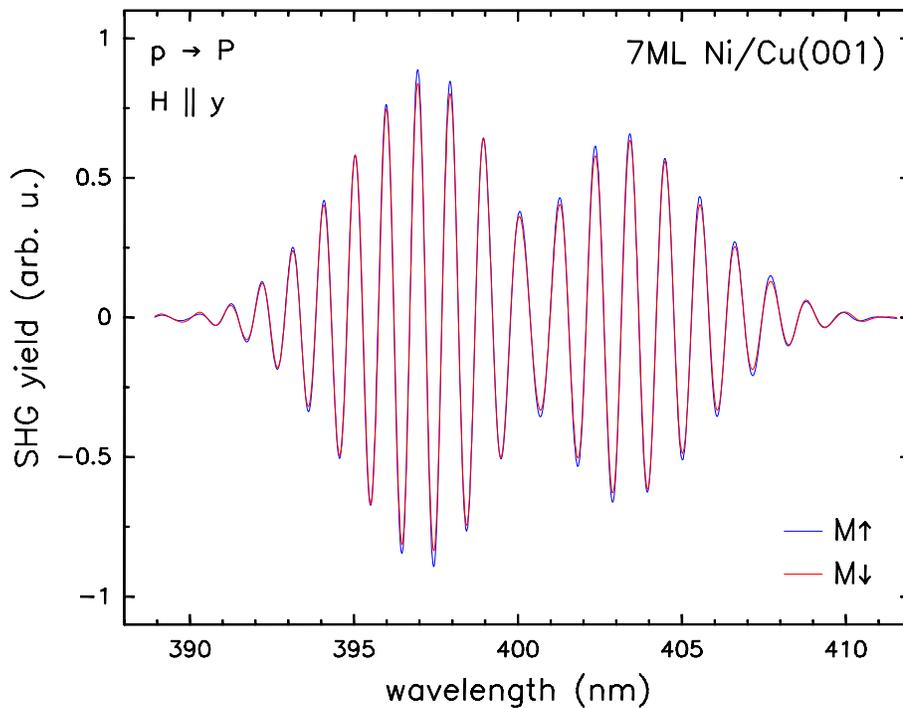


Abbildung 5.21: Darstellung der oszillierenden Anteile der Spektren aus Abb. 5.19 für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen von 7 ML Ni/Cu(001) für die Polarisationskombination p-P. Sie ergeben sich aus der Rücktransformation der markierten Bereiche in der Abb. 5.20. Aus den Nullstellen dieser beiden Verläufe wird die Phasenverschiebung Θ zwischen ihnen bestimmt.

Mittels einer numerischen Prozedur werden die Nullstellen der oszillierenden Anteile jeweils für beide Magnetisierungsrichtungen bestimmt und daraus dann paarweise die Phasenverschiebung Θ zwischen den Spektren ermittelt. Für die endgültige Bestimmung der Phase werden dann nur diejenigen Werte berücksichtigt, die eine statistische Verteilung zeigen. So werden z. B. die Oszillationen am Rand des Spektrums in der Regel nicht mit zur Mittelwertbildung herangezogen. Die größte statistische Sicherheit zeigt sich in den Bereichen mit den größten Amplituden. In dem exemplarischen Beispiel der Abbildung 5.21 werden von den insgesamt 44 Nullstellenpaaren letztlich nur 15 zur Phasenbestimmung herangezogen. In diesem Fall ergibt sich eine Phase Θ von $(1.5 \pm 0.2)^\circ$.

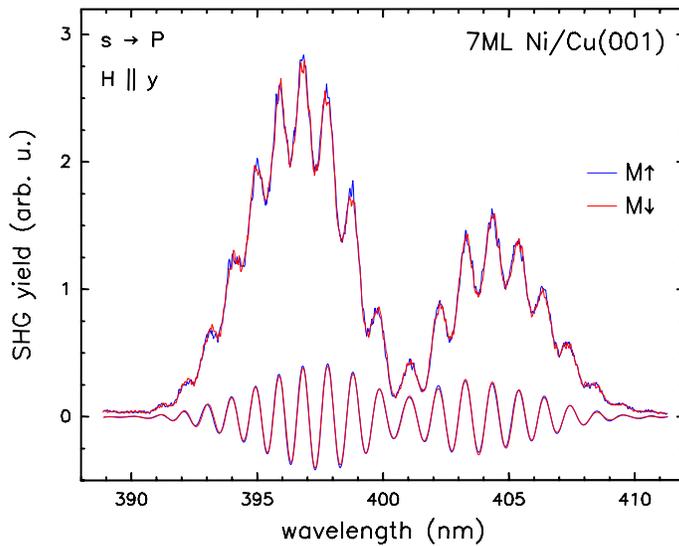


Abbildung 5.22:

Gemessene Spektren und deren oszillierende Anteile von 7 ML Ni/Cu(001) bei Überlagerung mit der Referenzverdoppelten für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen. Die Polarisationskombination ist s-P.

Die Spektren und deren oszillierende Anteile für die Polarisationskombination s-P gemessen an den gleichen 7 ML Ni/Cu(001) sind in der Abbildung 5.22 gezeigt. Die Auswertung erfolgt genauso wie für die p-P-Polarisationskombination. Zwischen den Signalen ergibt sich eine Phasenverschiebung θ von $(2.0 \pm 0.6)^\circ$.

Um aus den so ermittelten Phasen θ gemäß der Gleichungen 5.7 und 5.8 die Phasen ϕ und die Betragsverhältnisse der kristallografischen und der magnetischen Beiträge zur Suszeptibilität zweiter Ordnung bestimmen zu können, werden noch die Intensitätsverhältnisse $I^\downarrow(2\omega)/I^\uparrow(2\omega)$ benötigt. Dazu wird einfach bei geöffneten Eingangs- und Ausgangspalt des Monochromators integral die Intensität der Frequenzverdoppelten für die beiden Magnetisierungsrichtungen und die beiden Polarisationskombinationen aufgenommen. Für die 7 ML Ni/Cu(001) ergeben sich Intensitätsverhältnisse $I^\downarrow(2\omega)/I^\uparrow(2\omega)$ von 0.92 ± 0.01 für die p-P- und (0.97 ± 0.01) für die s-P-Polarisationskombination.

Die sich entsprechend der Gleichungen 5.7 und 5.8 ergebenden Phasen und das Betragsverhältnisse zwischen den geraden und den ungeraden Anteilen der Sus-

zeptibilität zweiter Ordnung für dieses spezielle System sind in der nachfolgenden Tabelle 5.1 zusammengefaßt :

System	Messung	ϕ	$ B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)} $
7 ML Ni/Cu(001)	p-P	$(33 \pm 7)^\circ$	(0.024 ± 0.003)
	s-P	$(62 \pm 11)^\circ$	(0.020 ± 0.005)

Tabelle 5.1: Ergebnisse der Phasenmessungen an 7 ML Ni/Cu(001) für die beiden Polarisationskombinationen p-P und s-P. Die Magnetisierung ist dabei parallel zur y-Achse.

Im Falle der s-P-Polarisationskombination werden bei transversaler Magnetisierung nur zwei Tensorkomponenten der Suszeptibilität zweiter Ordnung angesprochen, das gerade χ_{zyy}^e und das ungerade χ_{xyy}^o (vergl. Tab. 2.1). Durch Einsetzen der zugehörigen Fresnelkoeffizienten (s. Gl. 2.25) reduziert sich das Betragsverhältnis der geraden und der ungeraden Beiträge dabei auf :

$$\left| \frac{B\chi_{\text{odd}}^{(2)}}{A\chi_{\text{even}}^{(2)}} \right| = \left| \sqrt{\frac{1}{N^2 \sin^2 \vartheta} - \frac{1}{N^4}} \right| \frac{|\chi_{xyy}^o|}{|\chi_{zyy}^e|} = \underbrace{\left| \sqrt{\frac{2}{N^2} - \frac{1}{N^4}} \right|}_C \frac{|\chi_{xyy}^o|}{|\chi_{zyy}^e|}, \quad (5.19)$$

mit dem Einfallswinkel $\vartheta = 45^\circ$ und dem Brechungsindex N des Films bei 2ω . Damit wird die direkte Bestimmung des Verhältnisses zwischen einem geraden und einem ungeraden Tensorelement möglich, vorausgesetzt der Brechungsindex bei 2ω ist bekannt. Die Verwendung der Bulkwerte des Brechungsindex ist dabei durchaus gerechtfertigt, denn z. B. in [81] wurde gezeigt, daß sich die Signale des linearen magnetooptischen Kerreffektes bereits ab einer Bedeckung von 3 ML Co auf Cu(001) mit den Bulkwerten des Brechungsindex beschreiben lassen. Mit dem Bulkwert des Brechungsindex für Nickel bei 400 nm von $(1.70 + i \cdot 2.69) \pm 2\%$ [76] ergibt sich für C ein Wert von (0.43 ± 0.01) und damit für $|\chi_{xyy}^o|/|\chi_{zyy}^e|$ ein Wert von (0.047 ± 0.013) . Das ungerade Tensorelement χ_{xyy}^o beträgt also nur ca. 5 % des geraden Elementes χ_{zyy}^e . Unabhängig voneinander haben theoretische Analysen für Nickel einen Wert von 0.07 vorausgesagt [9, 102], wobei zur Berechnung das magnetische Moment einer freien Ni(100)-Oberfläche von $0.68 \mu_B$ verwendet wurde [94], welches multiplikativ in das Ergebnis eingeht. In einer Untersuchung dünner Nickelfilme auf Cu(001) mit magnetischem Zirkulardichroismus im Röntgenbereich wurden kürzlich erheblich kleinere magnetische Momente gemessen [95], nämlich z. B. $(0.275 \pm 0.1) \mu_B$ für 4 ML Ni/Cu(001). Für 7 ML Ni/Cu(001) ergibt sich durch lineare Interpolation der Ergebnisse aus [95] ein Wert von ungefähr $0.43 \mu_B$, womit sich der zu erwartende Wert von 0.07 auf ca. 0.044 reduziert. Das ist in hervor-

gender Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert von (0.047 ± 0.013) .

Bei der Polarisationskombination p-P tragen drei gerade ($\chi_{zzz}^e, \chi_{zxx}^e, \chi_{xzx}^e$) und drei ungerade ($\chi_{xxx}^o, \chi_{xzz}^o, \chi_{zzx}^o$) Tensorkomponenten und deren zugehörige Fresnelkoeffizienten zu dem Verhältnis $|B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)}|$ bei (vergl. Tab. 2.1). Die Phasen zwischen diesen Komponenten wären experimentell nur durch einfallswinkelabhängige Messungen zugänglich, die in der UHV-Kammer nicht möglich sind. Daher läßt sich auch keine direkte Aussage über die Größenverhältnisse der Tensorkomponenten untereinander machen. Allerdings ist auch hier das Verhältnis des magnetisierungsabhängigen zu dem magnetisierungsunabhängigen Anteil der effektiven Suszeptibilität zweiter Ordnung recht klein. Für die Phasen sind im allgemeinen keine Vorhersagen möglich.

Experimentelle Daten für ein vergleichbares System im UHV sind in der Literatur bisher nicht bekannt. Es gibt lediglich Werte für einen Ni(110)-Einkristall, an welchem in der p-P-Polarisationskombination im Ultrahochvakuum $\phi = (17 \pm 4)^\circ$ und $|B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)}| = (0.052 \pm 0.011)$ gemessen wurden [82]. Dieses ergibt ebenfalls einen relativ kleinen magnetisierungsabhängigen Beitrag.

Da sich der magnetische Kontrast für Ni/Cu(001), wie in Kapitel 5.2.2 gezeigt, in dem Dickenbereich von etwa 6–9 ML sowohl für die p-P-Polarisationskombination (vergl. Abb. 5.8) als auch für die Polarisation s-P (vergl. Abb. 5.10) kaum ändert, ist anzunehmen, daß die so ermittelten Werte für ϕ und $|B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)}|$ in dem kompletten Dickenbereich gültig sind.

5.3.2.2 Co/Cu(001)

Anders ist hingegen die Situation bei Co/Cu(001). Wie in Kapitel 5.2.1 gezeigt, ist der magnetische Kontrast für die Polarisationskombination p-P recht konstant in dem Dickenbereich von ungefähr 2–12 ML (vergl. Abb. 5.4). Für die s-P-Polarisationskombination ändert sich der magnetische Kontrast stark in dem betrachteten Filmdickenbereich, wobei es sogar zu einer Kontrastumkehr bei ca. 4.8 ML kommt (vergl. Abb. 5.7). Änderungen des Kontrastes können durch Änderungen der Beträge der beteiligten Tensorkomponenten oder durch Änderungen ihrer Phasen verursacht werden. Um diese Frage zu klären, wurden phasenempfindliche Messungen einmal bei ungefähr 5.0 ML, also in direkter Nähe des Umschlagpunktes des Kontrastes bei der s-P-Polarisationskombination, und einmal bei ca. 12 ML durchgeführt, also in einem Bereich, wo der Kontrast für beide Polarisationskombinationen relativ konstant ist.

Die Aufnahme und die Auswertung der Spektren erfolgt genauso wie bei den Spektren der Nickelfilme. Die Spektren und deren fouriergefilterte, oszillierende Anteile sind alle in der Abbildung 5.23 zusammengefaßt. Gezeigt sind jeweils die

gemessenen Spektren, sowie deren durch Fourierfilterung extrahierte oszillierende Anteile für die beiden Polarisationskombinationen und Magnetfeldrichtungen.

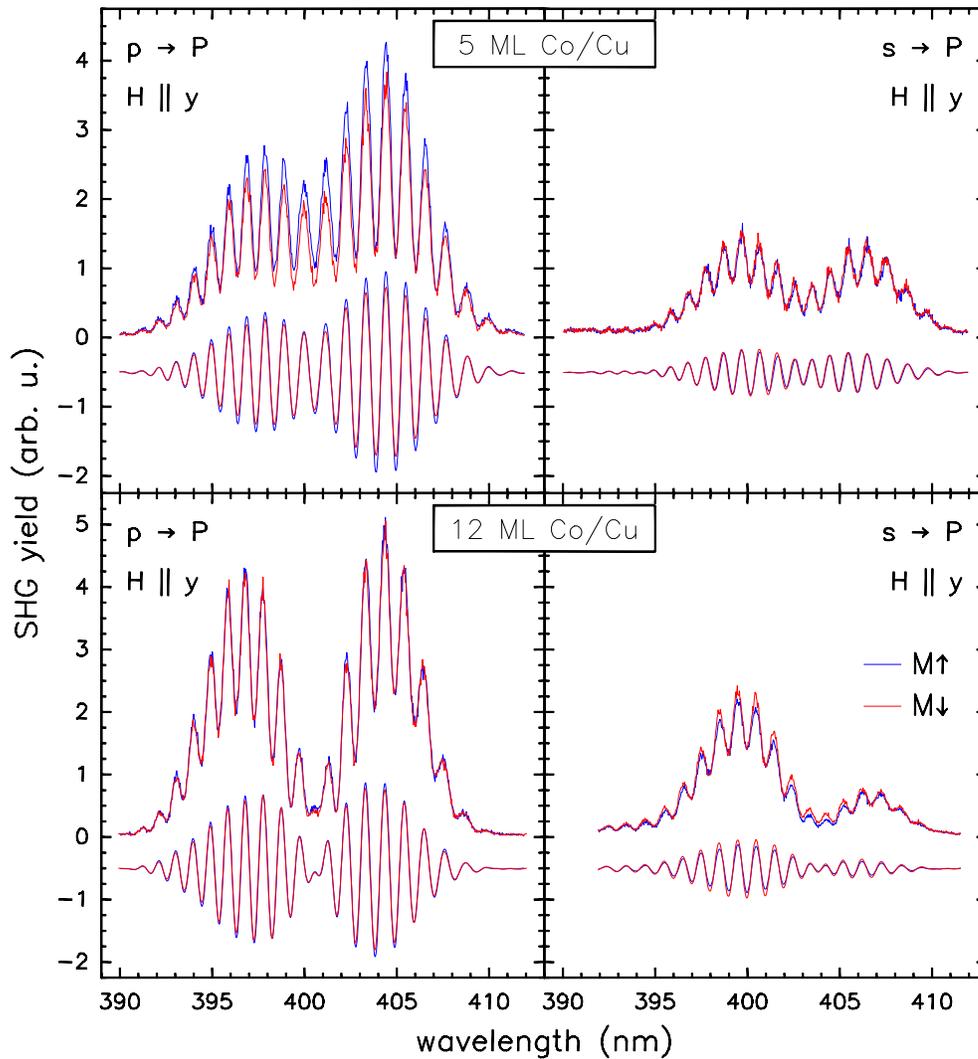


Abbildung 5.23: Gemessene Spektren und deren oszillierende Anteile von Co/Cu(001) bei Überlagerung mit der Referenzverdoppelten für die beiden entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen. Die Polarisationskombinationen sind p-P (links) und s-P (rechts). Die Filmdicken betragen ungefähr 5 ML (oben) und 12 ML (unten). Zur klareren Darstellung sind die Fouriergefilterten um 0.5 Einheiten nach unten verschoben.

In der Tabelle 5.2 sind die sich ergebenden Phasen ϕ und die Verhältnisse $|B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)}|$ zusammengefaßt.

Wie bei Nickel lassen die p-P-Polarisationsmessungen auch hier keinen Schluß auf die Phasen und die Größen der beteiligten drei geraden und drei ungeraden

System	Messung	ϕ	$ B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)} $
5 ML Co/Cu(001)	p-P	$(18 \pm 3)^\circ$	(0.076 ± 0.002)
	s-P	$(85 \pm 1)^\circ$	(0.112 ± 0.003)
12 ML Co/Cu(001)	p-P	$(45 \pm 4)^\circ$	(0.039 ± 0.003)
	s-P	$(19 \pm 3)^\circ$	(0.129 ± 0.004)

Tabelle 5.2: Ergebnisse der in Abb.5.23 gezeigten Phasenmessungen an 5 ML und 12 ML Co/Cu(001) jeweils für die beiden Polarisationskombinationen p-P und s-P. Die Magnetisierung ist dabei parallel zur y-Achse.

Tensor­komponenten untereinander zu. Allerdings ist auch hier das Verhältnis des magnetisierungsabhängigen zu dem magnetisierungsunabhängigen Anteil der effektiven Suszeptibilität zweiter Ordnung mit ca. $(7.6 \pm 0.2)\%$ für 5 ML und ca. $(3.9 \pm 0.3)\%$ für 12 ML recht klein.

Die Ergebnisse für die s-P-Polarisationskombination sollen etwas näher erläutert werden, wobei, wie gesagt, nur ein gerades und ein ungerades Tensorelement auftreten. Es sei nochmal an die starke Variation des magnetischen Kontrastes ρ für diese Polarisationskombination in Abhängigkeit der Lagendicke erinnert (vergl. Abb. 5.7). Wie aus der Tabelle 5.2 hervorgeht sind die Verhältnisse $|B\chi_{\text{odd}}^{(2)}/A\chi_{\text{even}}^{(2)}|$ für den 5 ML und für den 12 ML dicken Film in etwa gleich groß. Der Unterschied zwischen den beiden Betragsverhältnissen von ca. 8 % kann nicht die Ursache für die großen Änderungen des magnetischen Kontrastes ρ sein.

Die Phasen ϕ aber unterscheiden sich sehr. Während die Phase für den 12 ML dicken Kobaltfilm ca. $(19 \pm 3)^\circ$ beträgt, beträgt sie für den 5 ML dicken Film $(85 \pm 1)^\circ$. Diese Phasenänderung reduziert bei fast konstanten Betragsverhältnis der Tensor­komponenten den magnetischen Kontrast von 48 % bei 12 ML auf 4 % bei 5 ML. Der in der Abbildung 5.7 gezeigte Verlauf von ρ mit der Lagendicke kann damit folgendermaßen erklärt werden. Bei Schichtdicken kleiner als 4.8 ML besitzt die Phase offenbar einen Wert größer als 90° , der dann mit wachsender Bedeckung kleiner wird. Bei einer Phase ϕ von genau 90° , wenn also das ungerade Tensorelement in der komplexen Ebene orthogonal auf dem geraden Tensorelement steht, verschwindet der magnetische Kontrast vollständig. Dies ist bei 4.8 ML gerade der Fall. Mit weiter zunehmender Schichtdicke wird der Winkel kleiner und erreicht 0.2 ML weiter, also bei 5 ML, die gemessenen $(85 \pm 1)^\circ$, wobei sich der magnetische Kontrast im Verhältnis zu den Werten bei Dicken kleiner als 4.8 ML umgekehrt hat. Danach nimmt der Wert der Phase weiter ab, bis er ungefähr bei 7 ML $(19 \pm 1)^\circ$ erreicht. Von dieser Dicke ab ändert sich die Phase und damit

der magnetische Kontrast bis zu der Dicke von 12 ML, wo diese Phase gemessen wurde, nicht weiter (vergl. Abb. 5.7).

Die Ursachen für die Änderung der Phase mit der Schichtdicke können vielfältig sein, so z. B. Änderungen im Betrag der oberen und der unteren Grenzfläche. Da ein derartiges Verhalten bei Ni/Cu(001) nicht beobachtet wurde, scheint es aber keine allgemeine Eigenschaft solcher dünnen Filme zu sein, sondern hat offenbar eher systemspezifischen Charakter.

Genauso wie für Nickel kann auch hier für die s-P-Polarisationskombination unter Verwendung des Bulkwertes des Brechungsindex von Kobalt bei 2ω , nämlich $(1.61 + i \cdot 3.05) \pm 2\%$ [76], und der Gleichung 5.19 direkt das Verhältnis $|\chi_{xyy}^o|/|\chi_{zyy}^e|$ berechnet werden. Für C ergibt sich ein Wert von 0.40 ± 0.08 , woraus sich für $|\chi_{xyy}^o|/|\chi_{zyy}^e|$ für 5 ML Co/Cu(001) (0.28 ± 0.02) und für 12 ML Co/Cu(001) (0.32 ± 0.02) ergibt. Das ungerade Tensorelement χ_{xyy}^o beträgt also immerhin ca. 30 % des geraden Elementes χ_{zyy}^e .

Leider gibt es im Gegensatz zu Nickel für Kobalt keine theoretische Vorhersage für das Größenverhältnis der geraden zu den ungeraden Tensorkomponenten. Durch sogenanntes Skalieren des Nickelwertes mit dem Verhältnis der magnetischen Momente von Nickel und Kobalt kann ein Wert für Kobalt abgeschätzt werden, der zwischen 0.20 und 0.22 liegt, je nachdem, ob man die Werte der freien Oberfläche oder die des Bulkmaterials benutzt [94]. Dieses Skalieren ist aber nicht ganz unproblematisch, denn z. B. für Eisen gibt es eine Vorhersage von 0.18 [103], wobei bloßes Skalieren des Nickelwertes mit dem Verhältnis der magnetischen Momente zwischen Nickel und Eisen [94] etwa 0.31 ergeben hätte.

In [95] wurden neben Nickelfilmen auch dünne Kobaltfilme auf Cu(001) bezüglich ihres magnetischen Momentes untersucht. Dabei wurde festgestellt, daß das magnetische Moment der Kobaltfilme bei ganz dünnen Lagen einen gegenüber dem Bulkwert erhöhten Wert aufweist. So besitzt z. B. ein 2.1 ML dicker Kobaltfilm ein um ca. 20 % größeres magnetisches Moment als das Bulkmaterial, was den zu erwartenden skalierten Wert des Betragsverhältnisses auf 0.26 erhöhen würde. Für einen 5 bzw. 12 ML dicken Film ist die wahrscheinliche Erhöhung des magnetischen Momentes aber sehr viel kleiner, so daß diese für die betrachteten Filmdicken nur einen untergeordneten Effekt bedeutet.

Insgesamt ist das Betragsverhältnis $|\chi_{xyy}^o|/|\chi_{zyy}^e|$ für dünne Kobaltfilme also ca. 6-mal größer, als für dünne Nickelfilme, was tendenziell mit der Entwicklung der magnetischen Momente von Nickel und Kobalt bei dünnen Filmen in Einklang steht. Für Kobalt ergibt sich dabei keine so gute Übereinstimmung des gemessenen Wertes mit der theoretischen Erwartung, was aber wohl am ehesten daran liegt, daß es keinen adäquat hergeleiteten Erwartungswert für Kobalt gibt.

5.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden einige statische Eigenschaften dünner Nickel- und Kobaltfilme auf Cu(001) mit Hilfe der optischen Frequenzverdoppelung im Dickenbereich von 1 bis 16 ML untersucht.

Dabei konnte direkt während des Aufdampfens der Filme der Übergang von der paramagnetischen in die ferromagnetische Phase bei einer bestimmten Schichtdicke beobachtet werden. Für Co/Cu(001) beträgt diese Schichtdicke bei einer Temperatur von ca. 80° C ungefähr 1.9 ML, wobei die sich ausbildende Magnetisierung im gesamten betrachteten Dickenbereich in der Filmebene liegt. Bei Ni/Cu(001) setzt die ferromagnetische Ordnung bei einer Temperatur von ca. 45° C bei etwa 5.4 ML ein, und führt ebenfalls zu einer Magnetisierung in der Filmebene. Überdies konnte bei Ni/Cu(001) der Reorientierungsübergang der Magnetisierung bei ungefähr 9.6 ML von einer Ausrichtung in der Filmebene zu einer Ausrichtung senkrecht zur Filmebene direkt während des Wachstums, also gewissermaßen in Echtzeit, verfolgt werden.

In dem Dickenbereich, in welchem die Magnetisierung in der Filmebene liegt, läßt sich dabei für Ni/Cu(001) keine leichte Magnetisierungsachse feststellen. Die sich für einen 7 ML dicken Film ergebenden Koerzitivfelder betragen in etwa 4 G. Für einen 16 ML dicken Film, bei welchem die Magnetisierung senkrecht zur Filmebene steht, ergibt sich ein Koerzitivfeld von ca. 15 G. Für Co/Cu(001) ergibt sich als leichte Magnetisierungsachse die [100]-Richtung und als schwere Magnetisierungsachse die [110]-Richtung. Die Koerzitivfeldstärke liegt dabei für einen 3 ML dicken Kobaltfilm bei ca. 13 G. Diese Ergebnisse sind zum größten Teil im Einklang mit der Literatur, zum Teil auch nicht, wie z. B. die Richtungen der leichten und schweren Magnetisierungsachsen. Vermutlich sind diese Unterschiede substratinduziert und werden u. a. Gegenstand weiterer systematischer Untersuchungen der statischen Eigenschaften dieser Filme sein, wobei ich noch einmal auf die laufende Dissertation von Herrn V. Jähnke hinweisen möchte [87].

Ferner konnten erstmals phasenempfindliche SHG-Messungen an dünnen ferromagnetischen Filmen im UHV durchgeführt werden. Nur mit Hilfe der zusätzlichen Phaseninformationen eines 5 ML und eines 12 ML dicken Kobaltfilmes auf Cu(001) war es möglich, das komplexe Verhalten des magnetischen Kontrastes bei der s-P-Polarisationskombination in Abhängigkeit der Bedeckung richtig zu deuten. Als allgemeines Ergebnis für nichtlinear magnetooptische Messungen folgt daraus, daß mögliche Phaseneffekte dringend mit in die Analyse einbezogen werden müssen, wenn eine definitive Aussage über die Magnetisierung abgeleitet werden soll.

Außerdem konnte gezeigt werden, daß die magnetisierungsabhängigen Beiträge zum nichtlinearen Respons bei der p-P-Polarisationskombination klein sind (einige Prozent) im Verhältnis zu den magnetisierungsunabhängigen Beiträgen. Für die s-P-Polarisationskombination konnte direkt das Verhältnis der beteiligten zwei Tensorkomponenten ermittelt und mit theoretischen Vorhersagen verglichen wer-

den. Unter Berücksichtigung der gegenüber den Bulkwerten geänderten magnetischen Momente der dünnen Filme ergibt sich für Ni/Cu(001) eine hervorragende Übereinstimmung. Für Co/Cu(001) ist die Übereinstimmung aufgrund eines nicht wirklich angemessen hergeleiteten Erwartungswertes nicht so gut, wenngleich die tendenzielle Entwicklung des Wertes mit der Erwartung im Einklang ist.