

7. Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde die Erzeugung der zweiten Harmonischen an Oberflächen zentrosymmetrischer Materialien eingesetzt, um zum einen die statischen und dynamischen Eigenschaften ultradünner ferromagnetischer Filme zu untersuchen, sowie zum anderen eine nichtlineare Mikroskopie zu entwickeln.

Zu diesem Zweck wurde zunächst ein modengekoppelter Ti:Sa-Laserszillator aufgebaut, welcher als Strahlquelle für die SHG-Mikroskopie und für die zeitintegrale Messungen an den dünnen Metallfilmen diente. Dieser liefert Laserpulse mit einer Pulsdauer von ca. 25 fs und einer Pulsenergie von ca. 3 nJ, was bei einer Repetitionsrate von 90 MHz einer mittleren Leistung von etwa 300 mW entspricht. Als Pumplaser konnte dabei ein diodengepumpter Festkörperlaser eingesetzt werden, woraus sich ein extrem stabiler und rauscharmer Betrieb ergibt.

Neben einem vorbereitenden Aufbau zur nichtlinearen Mikroskopie wurde ein kommerzielles Auflichtmikroskop zu einem SHG-Rastermikroskop umgebaut. Bei beiden Aufbauten wurde der selbstgebaute Ti:Sa-Laserszillator als Strahlquelle genutzt. Anhand einiger exemplarischer Beispiele ließ sich ein Auflösungsvermögen von mindestens $1 \mu\text{m}$ demonstrieren, wobei sich auch zeigte, daß dieses von der jeweils zu untersuchenden Probe abhängt und sich als Kompromiß zwischen Auflösung und Signalstärke ergibt. An einer polykristallinen Nickelbulkoberfläche konnten eindeutig ferromagnetische Domänenstrukturen im Bereich einiger zehn μm nachgewiesen werden. An künstlichem Diamant, der aufgrund seiner für einen elektrischen Isolator sehr hohen Wärmeleitfähigkeit technologisch an Bedeutung gewinnt, ergaben sich mit der nichtlinearen Mikroskopie Kontraste, die im linearen Mikroskopbild keine Entsprechung haben. Dabei könnte es sich zum Beispiel um Korngrenzen handeln, was für die Charakterisierung der Proben sehr interessant wäre. Schließlich wurden SHG-Mikroskopiemessungen an dünnen amorphen Germaniumfilmen durchgeführt, welche durch Applikation kurzer Laserpulse induzierte Phasenmodifikationen aufwiesen. Diese unterschiedlichen Relaxationsgrade innerhalb der amorphen Phase zeigen einen verschwindenden Kontrast in der linearen Reflektivität. Die Erzeugung der zweiten Harmonischen hingegen war darauf

sehr empfindlich, und ergab Kontraste von bis zu einem Faktor 2.5. Mit Blick auf die mögliche Anwendung solcher oder ähnlicher Halbleiterfilme als optische Speicher, bietet die Erzeugung der zweiten Harmonischen mit ihrer hier nachgewiesenen Sensitivität für die induzierten Phasenmodifikationen ein erhebliches Entwicklungs- bzw. Anwendungspotential.

Die unmittelbare Weiterentwicklung des aufgebauten SHG-Rastermikroskopes besteht in der Erweiterung zu einem direkt abbildenden nichtlinearen Mikroskop unter Verwendung einer intensivierten CCD-Kamera. Dieses wird die Meßdauern erheblich verkürzen und Intensitätsschwankungen unschädlich machen. Weitere neue Aspekte würden sich sicherlich durch eine Erweiterung zu einer phasenempfindlichen SHG-Mikroskopie oder durch zeitaufgelöste Mikroskopieexperimente ergeben. Um methodisch die Beugungsbegrenzung des Auflösungsvermögens zu umgehen, ist die Entwicklung einer nichtlinearen Nahfeldmikroskopie wünschenswert. In Zusammenarbeit mit der AG Kaindl wurden daher erste SHG-SNOM-Experimente (SNOM: scanning near-field optical microscopy) in Transmission an magnetischen Garnetfilmen durchgeführt [134].

Der zweite Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit ist die Untersuchung statischer und dynamischer Eigenschaften ultradünner metallischer Filme im UHV. Dabei wurden die Systeme Ni/Cu(001) und Co/Cu(001) im Bereich einiger Monolagen mit Hilfe der magnetisierungsabhängigen Erzeugung der zweiten Harmonischen untersucht.

Für die Messungen der statischen Eigenschaften wurde der selbstgebaute Ti:Sa-Laseroszillator eingesetzt. Sowohl bei Ni/Cu(001) als auch bei Co/Cu(001) konnte das Einsetzen der ferromagnetischen Ordnung bei einer bestimmten Schichtdicke direkt während des Wachstums der Filme beobachtet werden. Bei etwa 80° C beträgt diese Dicke bei Co/Cu(001) ca. 1.9 ML, bei Ni/Cu(001) ca. 5.4 ML bei einer Temperatur von etwa 45° C. Bei beiden Systemen liegt die Magnetisierung dabei in der Filmebene und zeigt für Co/Cu(001) eine leichte Magnetisierungsachse entlang der [100]-Richtung, während sich für Ni/Cu(001) keine ausgezeichnete Magnetisierungsachse feststellen läßt. Darüber hinaus konnte bei Ni/Cu(001) die Reorientierung der Magnetisierung von in der Filmebene liegend, nach senkrecht dazu stehend, bei einer Filmdicke von etwa 9.6 ML direkt während des Filmwachstums verfolgt werden. In dem Dickenbereich, in welchem die Magnetisierung in der Filmebene liegt, wurden für 8 ML Ni/Cu(001) und für 2.1 ML Co/Cu(001) Magnetisierungskurven aufgenommen, wobei sich Curietemperaturen von ca. 400 K für den Nickelfilm und von ca. 480 K für den Kobaltfilm ergaben, was in guter Übereinstimmung mit Literaturwerten ist. Als kritischer Exponent ergibt sich für den Nickelfilm 0.41, was sehr gut mit dem Literaturwert übereinstimmt. Für den Kobaltfilm ergibt sich ein kritischer Exponent von 0.33, wobei kein dokumentierter Vergleichswert zur Verfügung steht.

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 beiden beteiligten Tensorkomponenten ermittelt und mit theoretischen Vorhersagen verglichen werden. 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) konnte kein wirklich angemessener Erwartungswert hergeleitet werden, wobei die Tendenz des gemessenen Wertes mit der Erwartung im Einklang ist.

Für die Messungen der dynamischen Eigenschaften der Systeme Ni/Cu(001) und Co/Cu(001) wurde ein kommerzielles verstärktes Lasersystem eingesetzt. Dieses liefert Laserpulse mit einer Pulslänge von etwa 150 fs und einer Pulsenergie von bis zu $4 \mu\text{J}$, womit die Erzeugung der zweiten Harmonischen an den dünnen Filmen im Pump-Probe-Modus im UHV zeitaufgelöst beobachtet wurde. Die Untersuchung der Magnetisierungsdynamik beschränkte sich dabei auf die Dickenbereiche von 6 bis 8 ML im Falle von Nickel und 2 bis 4 ML im Falle von Kobalt.

Es zeigte sich, daß sich die Magnetisierung der dünnen Filme mit einer optischen Anregung auf einer ultrakurzen Zeitskala manipulieren läßt, wobei diese nur durch die verwendete Pulsdauer begrenzt ist. Aufgrund der geringen Curietemperaturen der Nickelfilme war es möglich die Magnetisierung über einen Zeitraum in der Größenordnung einer Pikosekunde vollständig zu unterdrücken, d. h. lokal einen ultraschnellen Phasenübergang von ferro- nach paramagnetisch zu induzieren. Für einen 7 ML dicken Nickelfilm auf Cu(001) konnte die Magnetisierung sogar für eine Dauer von 2 ps unterdrückt werden. Ferner ergibt sich im Rahmen der experimentellen Zeitauflösung keine Verzögerung zwischen der Elektronen- und der Spindynamik. Durch Messung des Zeitverhaltens bis hin zu 500 ps konnte gezeigt werden, daß es keinen verzögerten Einbruch der Magnetisierung durch Phonon-Magnon-Streuung gibt, sondern daß ihr Wiederaufbau einfach durch die thermische Abkühlung bestimmt ist. Durch systematische Messungen des Magnetisierungseinbruches in 8 ML Ni/Cu(001) in Abhängigkeit von der Pumpfluenz und der Substrattemperatur konnte durch Vergleich mit der im thermischen Gleichgewicht gemessenen Magnetisierungskurve konsistent geschlossen werden, daß die Magnetisierungsdynamik von der Elektronentemperatur bestimmt wird und qualitativ der klassischen Magnetisierungskurve folgt. Außerdem konnte ein Phaseneffekt im nichtlinearen Respons ausgeschlossen werden. Ein Vergleich mit Messungen an

polykristallinen Proben an Luft zeigt, daß die dort vorhandene Nickeloxidschicht weder einen wesentlichen Einfluß auf die Magnetisierungsdynamik, noch auf den nichtlinearen optischen Resonanz hat.

Für die Kobaltfilme ergeben sich in Bezug auf die Magnetisierungsdynamik prinzipiell die gleichen Aussagen wie für die Nickelfilme, nur daß die induzierbaren Magnetisierungseinbrüche wegen der höheren Curietemperaturen geringer sind. Die Abhängigkeit des Magnetisierungseinbruchs von der Filmdicke ist konsistent mit der wachsenden Curietemperatur.

Neben der Kurzeitdynamik der Magnetisierung, wurden auch Anregungen mechanischer Schwingungen der Nickelfilme beobachtet. Dabei zeigte sich, daß es in Folge der optischen Anregung zur einer schnellen Expansion der Filme kommt, die bei geringen Bedeckungen zu einer Oszillation des gesamten Filmes gegen das Kupfersubstrat führt. Eine einfache Abschätzung der Oszillationsfrequenz eines 4 ML dicken Nickelfilmes liefert mit 1.46 THz eine exzellente Übereinstimmung mit dem Experiment. Auch für 5 und 6 ML dicke Filme ist die Übereinstimmung zwischen der experimentell ermittelten und der abgeschätzten Oszillationsfrequenz recht gut. Die Frequenz nimmt dabei mit wachsender Bedeckung ab, wie es zu erwarten ist. Die Oszillationen sind aufgrund starker Dämpfung nur bis zu Schichtdicken von ca. 7 ML sichtbar, wobei sie stark ausdämpfen. Für dickere Filme läßt sich aus den Messungen aber ein Wert für die Schallgeschwindigkeit ableiten, welcher mit ca. 4200 m/s sehr gut mit dem Literaturwert für einen Nিকেleinkristall bei Schallausbreitung entlang der [100]-Richtung übereinstimmt.

Theoretischen Vorhersagen zufolge sollte sich im Bereich von 30 fs ein Unterschied zwischen der Elektronen- und der Spindynamik ergeben. Daher wäre es sehr interessant, die hier vorgestellten Messungen mit höherer Zeitauflösung zu wiederholen. Dazu wird der im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute Ti:Sa-Laseroszillator mit einem Cavity-Dumper ausgerüstet werden, der eine kontrollierte Güteschaltung des Resonators gestattet. Damit wird sich die Pulsenergie um einen Faktor von etwa 20 – 30 erhöhen, wobei die Pulslänge von 20 – 25 fs erhalten bleibt. Ferner wären damit die direkte zeitaufgelöste Bestimmung der Phase der Tensorkomponenten ähnlich wie bei den statischen Messungen möglich. Außerdem wäre es sehr interessant, die Filmoszillationen noch einmal mit besserer Zeitauflösung zu betrachten, da dann vielleicht auch höherenergetische Anregungen innerhalb der Filme sichtbar würden. Schließlich wäre auch die Untersuchung anderer Systeme reizvoll, wie zum Beispiel Fe/Cu(001) oder Multilagensysteme aus 3d-Übergangsmetallen und Edelmetallen, in welchen auch schon Quantumwellstrukturen entdeckt wurden. Wünschenswert wären auch vergleichende SHG-Messungen an schweren Lanthanidmetallen, wie z. B. Gd, die im Gegensatz zu den 3d-Übergangsmetallen einen eher atomaren Magnetismus aufgrund der 4f-Momente besitzen, welches eine andere Magnetisierungsdynamik bedeuten könnte.