

LASER-INDUZIERTE
MAGNETISIERUNGSDYNAMIK IN
HALBMETALLEN UND
FERROMAGNETISCHEN
NANOSTRUKTUREN

Diplomarbeit

vorgelegt von

Georg Martin Müller

aus

Emden

angefertigt
im Institut für Halbleiterphysik
der Georg-August-Universität
zu Göttingen

2007

Referent: Prof. Dr. Markus Münzenberg
Korreferent: Prof. Dr. Wolfgang Felsch
Abgabedatum der Arbeit: 11. Juni 2007

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Die Bewegungsgleichung der Magnetisierung | 5 |
| 2.1 | Ungedämpfte Dynamik von Ferromagneten | 5 |
| 2.2 | Beschreibung der magnetischen Dämpfung | 11 |
| 2.3 | Integration der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung | 13 |
| 2.3.1 | Linearisierung und analytische Integration in Makrospin- näherung | 13 |
| 3 | Experimenteller Aufbau und Beschreibung des Experiments | 17 |
| 3.1 | Der magneto-optische Kerreffekt | 17 |
| 3.2 | Aufbau | 20 |
| 3.2.1 | Das Lasersystem | 20 |
| 3.2.2 | Der Messaufbau | 21 |
| 3.3 | Interpretation und Beschreibung des Experiments | 24 |
| 3.3.1 | Das Zwei- und Drei-Temperatur-Modell | 25 |
| 3.3.2 | Induzierte magnetische Präzession | 34 |
| 3.3.3 | Zusammenhang zwischen Dämpfung und Entmagnetisierung | 36 |
| 4 | Laser-induzierte Entmagnetisierung und Magnetisierungsdynamik in halbmetallischen Filmen | 39 |
| 4.1 | Laser-induzierte Entmagnetisierung in Halbmetallen | 43 |
| 4.1.1 | CrO_2 | 43 |
| 4.1.2 | Fe_3O_4 | 49 |
| 4.1.3 | $\text{La}_{0,66}\text{Sr}_{0,33}\text{MnO}_3$ | 52 |
| 4.1.4 | Co_2MnSi | 56 |
| 4.1.5 | Vergleich und Fazit | 59 |
| 4.2 | Präzessionelle Magnetisierungsdynamik in $\text{CrO}_2(100)$ | 63 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 4.2.1 | Magnetische und elastische Anisotropie | 63 |
| 4.2.2 | Präzessionelle Dynamik | 68 |
| 5 | Laser-induzierte Dynamik in ferromagnetischen Nanostrukturen | 79 |
| 5.1 | Die Probenpräparation | 80 |
| 5.2 | Kreisstrukturen | 82 |
| 5.2.1 | Theoretisches Modenspektrum für flache Kreiszyylinder . . | 82 |
| 5.2.2 | Statische Messungen | 87 |
| 5.2.3 | Transiente Reflektivitätsänderung | 90 |
| 5.2.4 | Transiente Änderung der Kerrdrehung | 93 |
| 5.3 | Elliptische Strukturen | 98 |
| 5.3.1 | Statische Messungen | 98 |
| 5.3.2 | Polarisationsabhängigkeit der Entmagnetisierung und der Reflexionsänderung | 99 |
| 5.3.3 | Transiente Reflektivitätsänderung | 101 |
| 5.3.4 | Transiente Änderung der Kerrdrehung | 103 |
| 5.4 | Fazit und Ausblick | 105 |
| 6 | Zusammenfassung der Ergebnisse | 107 |
| | Verwendete Symbole | 112 |
| | Literaturverzeichnis | 113 |
| | Danksagung | 130 |

KAPITEL 1

Einleitung

Nach der mittlerweile Berühmtheit erlangten Prognose von Moore im Jahr 1965 soll sich die Dichte der Transistoren auf Computerchips jeweils in einem bestimmten Zeitraum verdoppeln (Moore 1965). Zusammen mit der Taktfrequenz der Mikrochips bestimmt die Transistoranzahl die Rechenleistung eines Computers. Die Energiedissipation und die endliche Dicke der Oxidbarrieren in den heutigen Feldeffekttransistoren setzen heute der Zunahme der Rechnerleistung durch Erhöhung der Taktfrequenz und weiterer Miniaturisierung der Bauteile anscheinend ein Ende (vgl. Schulz 1999).

Heutige Ansätze, eine Computerlogik aus über ihr Streufeld wechselwirkenden Nanomagneten zu konstruieren, stellen neuartige Prozessoren mit erhöhter Bauteildichte und deutlich niedrigerer Energiedissipation in Aussicht (Cowburn u. Welland 2000).

Aber auch schon im Rahmen der heutigen Computerelektronik versprechen magnetische Arbeitsspeicher (*magnetic random access memories*, MRAM) höhere Bauteildichten und größere Datenverarbeitungsgeschwindigkeiten bei niedrigeren elektrischen Strömen (vgl. z.B. Wolf u. a. 2001 und Prinz 1998). Ein weiterer Vorteil ist die Nichtvolatilität der gespeicherten Daten. In den heutigen magnetischen Arbeitsspeichern werden die Daten aus einzelnen GMR-Elementen (*Giant Magneto Resistance*) ausgelesen, die über Oerstedfelder geschaltet werden. Die maximale Taktfrequenz ist damit durch den Zeitaufwand für das magnetische Umschalten begrenzt, die Bauteildichte hängt unter anderem von der Größe der einzelnen Elemente ab. Somit ist die Magnetisierungsdynamik in ferromagnetischen Nanostrukturen ein interessantes Gebiet der anwendungsorientierten Forschung.

1996 entdeckten Bearepaire u.a. die ultraschnelle Antwort der Magnetisierung von Nickel auf einen Femtosekunden-Laserpuls (Bearepaire u. a. 1996):

Die Magnetisierung brach innerhalb weniger 100 fs ein. Diese Entdeckung zeigt mögliche neue Zeitgrenzen der Magnetisierungsdynamik von Ferromagneten auf; ihre mikroskopische Ursache ist aber noch nicht verstanden. Die weitere Erforschung dieser Laser-induzierten Entmagnetisierung ist ein relevanter Teil der Grundlagenforschung. Mit der Untersuchung der Laser-induzierten Dynamik in ferromagnetischen Nanostrukturen werden damit in dieser Arbeit zwei interessante Forschungsgebiete miteinander verknüpft.

1983 sagten de Groot u.a. die Existenz einer neuen Klasse von Materialien, der Halbmetalle, vorher (de Groot u. a. 1983). Ihre Eigenschaft, nur Zustände für eine Spinsorte an der Fermikante zu besitzen, macht sie zu möglichen Materialien für elektronische Bauteile, die den Spin als weiteren Freiheitsgrad der Ladungsträger ausnutzen (vgl. Pickett u. Moodera 2001). In Experimenten zur Bestimmung der Laser-induzierten Entmagnetisierung zeigen sie eine deutlich langsamere Antwort der Magnetisierung auf den Laserpuls als der Übergangsmetallferromagnet Nickel (vgl. Kise u. a. 2000 und Zhang u. a. 2006).

In der hier vorliegenden Arbeit steht die Untersuchung von Laser-induzierter Dynamik in Halbmetallen und ferromagnetischen Nanostrukturen im Mittelpunkt. Dazu wird ein optisches Pump-Abfrage-Experiment, das auf dem magneto-optischen Kerreffekt (vgl. Abschnitt 3.1) basiert, verwendet. Dieser Aufbau wird in dem Abschnitt 3.2 näher beschrieben. Zuvor werden im Kapitel 2 die Grundlagen der Magnetisierungsdynamik besprochen. Im Abschnitt 3.3.1 wird das phänomenologische Drei-Temperatur-Modell (Beaurepaire u. a. 1996) vorgestellt und seine Anwendbarkeit zur Beschreibung der Laser-induzierten ultraschnellen Entmagnetisierung diskutiert. Darüber hinaus wird auch die durch den Laserpuls in kontinuierlichen Filmen induzierte Präzessionsdynamik auf der Zeitskala von einigen 100 ps diskutiert. Ziel ist es in beiden Fällen, mathematische Ausdrücke zur Quantifizierung der experimentellen Ergebnisse abzuleiten. Mit diesem Rüstzeug wird ein mikroskopisches Modell von Koopmans, das die kurze mit der langen Zeitskala verknüpft (Koopmans u. a. 2005), mit Hilfe von Messungen an Permalloy-Metall-Legierungen, die eine unterschiedlich hohe magnetische Dämpfung aufweisen, experimentell überprüft (Abschnitt 3.3.3).

In Kapitel 4 wird die Laser-induzierte Entmagnetisierung von potentiell halbmetallischen Filmen untersucht. Bei den untersuchten Proben handelt es sich um CrO_2 , $\text{La}_{0,66}\text{Sr}_{0,33}\text{MnO}_3$, Fe_3O_4 und Co_2MnSi . Diese Filme weisen tatsächlich eine unterschiedlich hohe Spinpolarisation auf und erlauben so eine Untersuchung der Entmagnetisierung in Abhängigkeit von dieser. Der Chromdioxidfilm wird aufgrund seiner magnetischen Anisotropie in der Filmebene, die eine kohärente Rotation der Magnetisierung ermöglicht, auch ausführlich hinsichtlich seiner präzessionellen Dynamik untersucht (Abschnitt 4.2).

Die Laser-induzierte Magnetisierungsdynamik in Nickelnanostrukturen wird in Kapitel 5 behandelt. Dazu werden großflächig nanostrukturierte Nickelfilme untersucht. Im Mittelpunkt sollen dabei einerseits die durch die Entmagnetisierung induzierten magnetischen Moden, andererseits eine etwaige Abhängigkeit der ultraschnellen Entmagnetisierung von der Polarisierbarkeit der Nanostruk-

turen stehen.

Die Bewegungsgleichung der Magnetisierung

2.1 Ungedämpfte Dynamik von Ferromagneten

In diesem Abschnitt soll die Bewegungsgleichung der Magnetisierung, ausgehend von einem einzelnen Elektronenspinoperator \mathcal{S} , quantenmechanisch abgeleitet werden. Im Heisenbergbild ist die Zeitentwicklung einer Observablen durch den Kommutator mit dem Hamiltonoperator \mathcal{H} festgelegt (vgl. Sakurai 1994, S. 83); damit gehorcht der Erwartungswert der Spinobservablen der Bewegungsgleichung

$$i\hbar \frac{d}{dt} \langle \mathcal{S} \rangle = \langle [\mathcal{S}, \mathcal{H}] \rangle. \quad (2.1)$$

Bei Vernachlässigung aller räumlichen Freiheitsgrade ist der Hamiltonoperator von der Form (vgl. Sakurai 1994, S. 322)

$$\mathcal{H} = -\frac{g \cdot \mu_B}{\hbar} \mathcal{S} \cdot \mathbf{B}, \quad (2.2)$$

wobei g der Landé-Faktor, μ_B das Bohr'sche Magneton und $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ das auf das Elektron wirkende Magnetfeld ist. Zusammen mit der Drehimpulsalgebra $[\mathcal{S}_i, \mathcal{S}_j] = i\hbar \epsilon_{ijk} \mathcal{S}_k$ (vgl. Sakurai 1994, S. 156ff) folgt aus Gleichung (2.1)

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \langle \mathcal{S}_i \rangle &= -\frac{g \cdot \mu_B}{\hbar} \langle [\mathcal{S}_i, \mathcal{S}_j] \rangle B_j \\ \frac{d}{dt} \langle \mathcal{S}_i \rangle &= -\frac{g \cdot \mu_B}{\hbar} \epsilon_{ijk} \langle \mathcal{S}_k \rangle B_j, \end{aligned} \quad (2.3)$$

wobei über zweifach erscheinende Indizes summiert wird. Es gilt also:

$$\frac{d}{dt} \langle \mathcal{S} \rangle = \frac{g \cdot \mu_B}{\hbar} \langle \mathcal{S} \rangle \times \mathbf{B}. \quad (2.4)$$

Falls der Beitrag des Bahndrehimpulses zum magnetischen Moment vernachlässigbar ist, wie es in den Übergangsferrromagneten nahezu gegeben ist (vgl. Chikazumi 1997, S. 74ff u. 173ff), kann das magnetische Moment \mathfrak{M} eines Elektrons über das gyromagnetische Verhältnis $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar} = \frac{ge}{2m_e} < 0$ mit

$$\mathfrak{M} = \gamma \langle \mathbf{S} \rangle \quad (2.5)$$

berechnet werden. Damit lässt sich leicht der Zusammenhang

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}_i) = \frac{\sum_{\Delta V(\mathbf{r}_i)} \mathfrak{M}}{\Delta V(\mathbf{r}_i)} \quad (2.6)$$

zwischen der Magnetisierung und dem lokalen magnetischen Moment am Ort \mathbf{r}_i herstellen. Daraus folgt die Bewegungsgleichung der Magnetisierung

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}, \quad (2.7)$$

wobei $\gamma_0 = \mu_0 |\gamma|$ definiert wird. Diese Bewegungsgleichung lässt sich auch für ein klassisches magnetisches Moment im Magnetfeld ableiten (vgl. z.B. Miltat u. a. 2002, S. 3f). Durch sie wird eine Präzessionsbewegung um den Vektor des magnetischen Feldes beschrieben. Durch Bildung des Skalarproduktes mit \mathbf{M} auf beiden Seiten von (2.7), erhält man

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dt} \mathbf{M} \right) \cdot \mathbf{M} &= -\gamma_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H}) \cdot \mathbf{M} \\ \frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} \mathbf{M}^2 \right) &= 0. \end{aligned} \quad (2.8)$$

Damit ist der Betrag der Magnetisierung eine Erhaltungsgröße.

Nun soll die Bewegungsgleichung der Magnetisierung noch einmal abgeleitet werden, allerdings nicht - wie zuvor - für einzelne magnetische Momente, sondern für einen ferromagnetischen Festkörper. Dazu wird das Problem von einem thermodynamischen Standpunkt aus betrachtet, so dass die relevanten mikroskopischen Mechanismen phänomenologisch über ihre Beiträge zur Gesamtenergie des Systems berücksichtigt werden (vgl. z.B. Gurevich u. Melkov 1996, S. 32ff; Gilbert 2004). Der Festkörper habe die freie Energiedichte F^1 . Es sei auf den thermodynamischen Zusammenhang zwischen freier und innerer Energiedichte U über eine Legendre-Transformation

$$F = U - TS \quad (2.9)$$

hingewiesen, wobei T die Temperatur und S die Entropiedichte des Systems ist. Wenn in späteren Abschnitten die freie Energiedichte nicht explizit mit dem

¹Es erscheint im Folgenden widersprüchlich, thermodynamische Konzepte für das Gleichgewicht zu verwenden, um Dynamik zu beschreiben. Daher wird vorausgesetzt, dass die zeitlichen Änderungen klein oder die Frequenzen niedrig genug sind (vgl. Brown 1963, S. 4f).

zweiten Summanden angegeben wird, so ist stattdessen implizit eine Temperaturabhängigkeit aller auftretenden Größen angenommen, die, wie später gezeigt wird, zur Beschreibung des Experiments eine entscheidende Rolle spielt (vgl. Abschnitt 3.3.1). Die Gesamtenergie ist ein Funktional der Magnetisierung $\mathbf{M}(\mathbf{r})$, die hier im Gegensatz zu (2.6) als klassische Feldgröße betrachtet wird. Im Gleichgewicht wird die gesamte freie Energie des Festkörpers stationär:

$$\delta \int_V F d\mathbf{r} = 0. \quad (2.10)$$

Die Magnetisierung im Gleichgewicht ist nun die Lösung eines Variationsproblems unter der Nebenbedingung (2.8), die mit der Methode der Lagrange'schen Multiplikatoren implementiert wird:

$$\frac{\delta}{\delta \mathbf{M}}(F + \lambda \mathbf{M}^2) = \frac{\delta F}{\delta \mathbf{M}} + 2\lambda \mathbf{M} = 0. \quad (2.11)$$

Eine nicht verschwindende Lösung kann es nur geben, wenn \mathbf{M} und $\frac{\delta F}{\delta \mathbf{M}}$ kollinear sind, also wenn

$$\mathbf{M} \times \frac{\delta F}{\delta \mathbf{M}} = 0. \quad (2.12)$$

Gleichung (2.7) zeigt, dass die zeitliche Änderung der Magnetisierung verschwindet, falls magnetisches Feld und Magnetisierung sich kollinear ausrichten. Ein Vergleich der Vorfaktoren legt folgende Definition eines effektiven magnetischen Feldes nahe

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{eff} &= -\frac{1}{\mu_0} \frac{\delta F}{\delta \mathbf{M}} \\ &= -\frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\partial F}{\partial \mathbf{M}} - \sum_{i=1}^3 \frac{\partial}{\partial r_i} \frac{\partial F}{\partial (\partial \mathbf{M} / \partial r_i)} \right). \end{aligned} \quad (2.13)$$

Im Unterschied zu dem angelegten Feld in (2.7) ist also das effektive magnetische Feld wiederum von der Magnetisierung abhängig. Im Falle homogener Magnetisierung verschwindet der zweite Summand in (2.13). Magnetisierung und Magnetfeld sind also thermodynamisch konjugiert.

Um die Dynamik abzuleiten, kann man mit Hilfe der freien Energiedichte für die potentielle Energie sowie eines weiteren Terms, der die kinetische Energie beschreibt, eine Lagrangedichte aufstellen (vgl. Gilbert 2004; Brown 1963, S. 30ff):

$$\mathcal{L} = T - F, \quad (2.14)$$

wobei T von der kinetischen Energie eines Kreisels im klassisch unmöglichen Grenzfall zweier verschwindender Hauptachsenträgheitsmomente und eines endlichen, positiven Hauptachsenträgheitsmomentes abgeleitet wird. Eine Variationsrechnung nach dem Hamilton'schen Prinzip der kleinsten Wirkung liefert zusammen mit der Nebenbedingung (2.8) dann

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}, \quad (2.15)$$

wobei im Gegensatz zu (2.7) hier das effektive magnetische Feld auftritt.

Im Folgenden sollen die unterschiedlichen Beiträge zur Energie eines Ferromagneten, die von seiner Magnetisierung abhängen und damit für die Dynamik relevant sind, kurz diskutiert werden.

Zeeman-Energie

Durch die Wechselwirkung mit dem angelegten magnetischen Feld erhält, wie aus der Elektrodynamik bekannt (vgl. z.B. Jackson 1999, S. 190), ein magnetisches Moment eine potentielle Energie der Form $-\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{ext}}$. Dies führt zu folgendem Zeeman-artigen Beitrag zur Energiedichte

$$F_Z = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{ext}}. \quad (2.16)$$

Die Form dieser Zeeman-Energie legt im Übrigen auch die Bezeichnung effektives Feld in (2.13) nahe.

Entmagnetisierungsenergie

In einem unendlichen ausgedehnten und homogen magnetisierten Ferromagneten heben sich die Dipol-Dipol-Kräfte zwischen den einzelnen magnetischen Momenten auf. Aus einer endlichen Ausdehnung und inhomogener Magnetisierung resultieren jedoch Dipol-Dipol-Wechselwirkungen, die sich effektiv durch magnetische Oberflächen- und Volumenladungen (vgl. z.B. Jackson 1999, S. 196ff) beschreiben lassen. Im allgemeinen Fall müssen daher zur Berechnung der Magnetisierung die entsprechenden Maxwell-Gleichungen mit dem dazugehörigen Randwertproblem gelöst werden. Falls der Ferromagnet ein Ellipsoid ist (vgl. z.B. Becker 1969, S. 135 und S. 76ff) und nur uniforme Dynamik homogener Magnetisierung (vgl. Gurevich u. Melkov 1996, S. 23f) betrachtet wird, können die effektiven magnetischen Ladungen durch ein sogenanntes Entmagnetisierungsfeld, das mit der Magnetisierung wechselwirkt, beschrieben werden. Dieses Entmagnetisierungsfeld hat die Form (vgl. Gurevich u. Melkov 1996, S. 23f)

$$\mathbf{H}_{\text{ent}} = -\vec{N} \mathbf{M}, \quad (2.17)$$

wobei \vec{N} als Magnetisierungstensor bezeichnet wird und in mks-Einheiten die Spur eins hat, da das Entmagnetisierungsfeld betragsmäßig maximal die Größe der Magnetisierung erlangen kann. Durch infinitesimale Änderung der Magnetisierung $d\mathbf{M}$ ergibt sich nun eine infinitesimale Änderung der Entmagnetisierungsenergie $dF_{\text{ent}} = -\mu_0 \mathbf{H}_{\text{ent}} d\mathbf{M}$, und aufgrund des linearen Zusammenhangs (2.17) folgt durch Quadratur

$$F_{\text{ent}} = \frac{1}{2} \mu_0 \mathbf{M} \vec{N} \mathbf{M}. \quad (2.18)$$

Viele der in dieser Arbeit untersuchten Proben liegen als dünner Film vor, der einen Grenzfall eines Ellipsoiden darstellt. Die Form des Entmagnetisierungstensors lässt sich im Falle homogener Magnetisierung leicht bestimmen. Da der

Film in diesem Grenzübergang nur entlang der Filmmormalen nicht unendlich ausgedehnt ist, kann nur homogene Magnetisierung in dieser Richtung zu einem Entmagnetisierungsfeld führen. Mit der z -Koordinate in Richtung der Filmmormalen ergibt sich also

$$\vec{N} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (2.19)$$

Austauschenergie

Die Austauschwechselwirkung, deren mikroskopischer Ursprung hier nicht besprochen werden soll, ist die eigentliche Ursache für die ferromagnetische Ordnung. Die Austauschenergie des Ferromagneten wird minimal, wenn sich alle Spins parallel ausrichten. Damit handelt es sich bei ihr im Fall uniformer Magnetisierung um eine Konstante, die für die obige Betrachtung keine Rolle spielt. Wenn allerdings einzelne magnetische Momente im Ferromagneten gegeneinander verdreht sind, muss dieser zusätzliche Energiebeitrag berücksichtigt werden. Er lässt sich bei Annahme eines isotropen Ferromagneten schreiben als (vgl. Morrish 2001, S. 590)

$$F_{\text{aus}} = \frac{A}{M^2} \sum_{i=1}^3 \left(\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial r_i} \right)^2, \quad (2.20)$$

wobei A üblicherweise als Austauschkonstante oder als Spinsteifigkeit bezeichnet wird. Jegliche Abhängigkeit der Austauschenergie von der Magnetisierungsrichtung im Kristall soll hier als zusätzlicher Anisotropieenergiebeitrag aufgefasst werden.

Anisotropieenergie

Die Spin-Bahn-Kopplung lässt die Spins indirekt mit dem Kristallgitter wechselwirken, so dass es magnetische Vorzugsrichtungen gibt. Ein weiterer Beitrag zur Anisotropie durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den Spins ist um ein bis zwei Größenordnungen niedriger (vgl. Chikazumi 1997, S. 249ff). Die Energie eines entlang einer sogenannten leichten Achse magnetisierten Ferromagneten ist also niedriger als die eines entlang der harten Achse magnetisierten. Phänomenologisch lässt sich die Energie als Funktion der Magnetisierungsrichtung bei Berücksichtigung der vorliegenden Kristallsymmetrie entwickeln, wobei in der Reihe aufgrund der Invarianz der Energie unter Zeitumkehr nur gerade Potenzen der Magnetisierung nicht verschwinden (vgl. Gurevich u. Melkov 1996, S. 39). Die uniaxiale Anisotropie beschreibt Ferromagneten mit tetragonaler, trigonaler oder hexagonaler Symmetrie. Die freie Anisotropieenergiedichte lässt sich somit entwickeln als

$$F_{\text{aniso}} = K_{u1} \sin^2 \phi + K_{u2} \sin^4 \phi + \dots, \quad (2.21)$$

wobei ϕ der Winkel zwischen Magnetisierung und der c -Achse ist und die basale Anisotropie für eine hexagonale Struktur aufgrund der sechszähligen Symmetrie erst in höheren Potenzen in der Magnetisierung auftritt und somit in den meisten Fällen vernachlässigbar ist. In dieser Arbeit wird mit dem CrO_2 -Film nur eine monokristalline Probe auf ihre Anisotropie hin untersucht, die uniaxiale Anisotropie aufweist (vgl. Abschnitt 4.2). Daher sollen hier keine anderen Anisotropietypen besprochen werden.

Unabhängig von der physikalischen Ursache der Anisotropie weisen die Anisotropiekonstanten im Allgemeinen eine stärkere Abhängigkeit von der Temperatur als die Magnetisierung auf. Dies folgt aus der oben beschriebenen Entwicklung nach Potenzen der Magnetisierungskomponenten. Für eine endliche Temperatur müssen die Potenzen nämlich durch ihre thermischen Mittelwerte ersetzt werden; diese Temperaturabhängigkeit kann dann effektiv auf die Anisotropiekonstanten übertragen werden. Für eine Anisotropiekonstante n ter Ordnung gilt (vgl. Callen u. Callen 1966)

$$K^n(T) \propto M_s^{n(n+1)/2}, \quad (2.22)$$

womit sich für die Temperaturabhängigkeit von K_{u1} für die uniaxiale Anisotropie

$$\frac{K_{u1}(T)}{K_{u1}(0)} = \left(\frac{M_s(T)}{M_s(0)} \right)^3 \quad (2.23)$$

ergibt. Eine Diskussion der Anwendbarkeit dieses Zusammenhangs findet sich in der Literatur (Callen u. Callen 1966).

Alle bisherigen Energiebeiträge wurden für Volumenfestkörper angegeben. So wurde z.B. für Kristallanisotropieenergie eine bestimmte Kristallsymmetrie (vgl. Bennett u. Cooper 1971) und für die Austauschenergie die tatsächliche Existenz sämtlicher Nachbarspins vorausgesetzt. Eine Oberfläche verletzt diese Voraussetzungen. Phänomenologisch lässt sich für einen ferromagnetischen Film ein zusätzlicher Oberflächenanisotropie-Energieterm einführen (vgl. Brown 1963, S. 36f)

$$F_{\text{ober}} = \frac{K_{\text{ober}}}{d} (\mathbf{n} \cdot \mathbf{m})^2, \quad (2.24)$$

wobei \mathbf{n} der Normalenvektor und d die Schichtdicke des Films ist. Die Oberflächenanisotropie-Konstante K_{ober} selber kann i.A. auch eine Abhängigkeit von d aufweisen (vgl. Bennett u. Cooper 1971). Dieser Energiebeitrag hat dieselbe Form wie die Entmagnetisierungsenergie eines dünnen Films (2.18, 2.19). Effektiv wird durch die Oberfläche also die Magnetisierung erhöht (für positives K_{ober}) oder erniedrigt (für negatives K_{ober}).

Magneto-elastische Energie

Hauptsächlich aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung (vgl. z.B. Gurevich u. Melkov 1996, S. 31ff) ergibt sich des weiteren eine Wechselwirkung zwischen Mag-

netisierung und Gitterschwingungen. Dieser Energiebeitrag lässt sich mit Hilfe des Dehnungstensors und den Magnetisierungs Komponenten ausdrücken. Die bereits im vorherigen Abschnitt erwähnte Anisotropie der CrO_2 -Probe ist nicht nur kristallinen Ursprungs, sondern resultiert auch über die magneto-elastische Wechselwirkung aus der Verspannung durch das Substrat, lässt sich aber effektiv in der im vorherigen Abschnitt beschriebenen Form darstellen (vgl. Abschnitt 4.2.1).

2.2 Beschreibung der magnetischen Dämpfung

Sobald die Magnetisierung eine Komponente senkrecht zum effektiven Feld besitzt, wird der Magnetisierungsvektor gemäß (2.15) um den Vektor des effektiven Feldes präzedieren. Eine solche reine Präzessionsdynamik entspricht aber nicht der experimentellen Erfahrung, dass sich die Magnetisierung nach einiger Zeit parallel zum Feld ausrichtet. Dafür muss dem magnetischen System Energie entzogen werden. Die Prozesse, die zu dieser Dämpfung führen, müssen in dem mikroskopisch zu Grunde liegenden Hamiltonoperator durch Terme beschrieben werden, die - im Gegensatz zu dem Hamiltonoperator (2.2) der reinen Präzessionsbewegung - nicht invariant unter Rotationen um das effektive magnetische Feld sind (vgl. Mills u. Rezende 2003, S. 34f). Die Spin-Bahn-Kopplung, die eine Wechselwirkung zwischen dem Spin und den räumlichen Freiheitsgraden der Ladungsträger darstellt und die Symmetrie des Kristallgitters widerspiegelt, ist damit die Ursache vieler Dämpfungsmechanismen, wie z.B. der Elliot-Yafet-Streuung an Phononen (Elektronenstreuung mit gleichzeitigem Spin-Flip, vgl. z.B. Kamberský 1970). Die genannten Prozesse sind intrinsisch für das jeweilige Material. Daneben gibt es aber auch Mechanismen, die stark von dem Wachstum und der Topologie der Probe abhängen. Hierbei handelt es sich um extrinsische Beiträge zur Dämpfung (vgl. Mills u. Rezende 2003, S. 28). Als Beispiele sind hier Elliot-Yafet-Streuung an Störstellen (vgl. z.B. Koopmans u. a. 2005) und nichtlokale Spinstromdämpfung in Normalmetall-Ferromagnet-Schichtsystemen (vgl. Tserkovnyak u. a. 2002) zu nennen. Zusätzlich kann aber auch die Energie innerhalb des magnetischen Systems zwischen einzelnen Moden übertragen werden. Bemerkbar macht sich dieser Energieübertrag durch eine zusätzliche Dämpfung der uniformen magnetischen Präzession, der die Wellenzahl $k = 0$ zugeordnet wird, zugunsten von stehenden und propagierenden Spinwellen, die einer endlicher Wellenzahl entsprechen. Auch hier gibt es einerseits inhärente Spin-Spin-Prozesse, die per se die Wellenzahl k erhalten und daher auch in idealen Kristallen auftreten, wie z.B. Drei-Magnonen-Aufspaltung oder -Konfluenz und Vier-Magnonen-Streuung (vgl. Gurevich u. Melkov 1996, S. 288ff). Andererseits haben im Falle von Ungleichförmigkeiten jeglicher Art in der Probe auch im idealen Kristall verbotene Zwei-Magnon-Prozesse eine endliche Wahrscheinlichkeit (vgl. Gurevich u. Melkov 1996, S. 299ff). In Abbildung 2.1 ist der Energiefluss in einem Ferromagneten schematisch dargestellt.

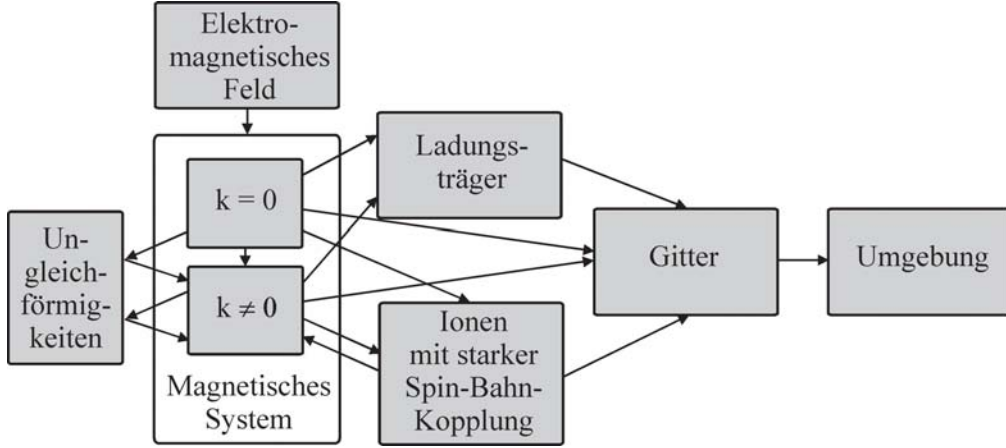


Abbildung 2.1: Energiefluss in einem Ferromagneten (nach Gurevich u. Melkov 1996, S. 284).

Um diese Dämpfungsmechanismen phänomenologisch in die Bewegungsgleichung (2.15) aufzunehmen, bedarf es eines zusätzlichen Terms, der die Reibung beschreibt. Fasst man die kartesischen Komponenten der Magnetisierung in (2.15) als verallgemeinerte Koordinaten auf, so sind die Komponenten des effektiven Feldes die entsprechenden verallgemeinerten Kräfte, da für eine Verdrückung der verallgemeinerten Koordinaten in Richtung des effektiven Feldes die Arbeit $\mathbf{H}_{\text{eff}} \cdot \delta \mathbf{M}$ aufgebracht werden muss. Somit liegt es nahe, einen dissipativen Term der Form $-\eta \frac{d}{dt} \mathbf{M}$ zum effektiven Feld zu addieren:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \left(\mathbf{H}_{\text{eff}} - \eta \frac{d}{dt} \mathbf{M} \right). \quad (2.25)$$

Diese Bewegungsgleichung wurde von Gilbert 1956 vorgeschlagen, wobei er die Dämpfung im Lagrange-Formalismus über ein Rayleigh-Dissipationsfunktional der Form

$$\mathcal{R} = \frac{\eta}{2} \int_V \frac{d}{dt} \mathbf{M} \cdot \frac{d}{dt} \mathbf{M} \, d\mathbf{r} \quad (2.26)$$

einführte (vgl. Gilbert 2004). Der Reibungsparameter η ist eine Materialkonstante; mit der Definition des dimensionslosen Gilbert-Dämpfungsparameters $\alpha = \eta \gamma_0 M$ nimmt die Bewegungsgleichung folgende Gestalt an:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \frac{d}{dt} \mathbf{M}. \quad (2.27)$$

Diese Differentialgleichung wird als Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung bezeichnet. Landau und Lifschitz hatten nämlich 1935

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{\lambda}{M^2} \mathbf{M} \times \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \quad (2.28)$$

zur Beschreibung der Magnetisierungsdynamik vorgeschlagen (vgl. Landau u. Lifschitz 1965, S. 101ff). Durch die Substitution

$$\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} = \gamma_0^{-1} \left(\frac{d}{dt} \mathbf{M} + \frac{\lambda}{M^2} \mathbf{M} \times \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} \right) \quad (2.29)$$

für den zweiten Term der rechten Seite von (2.28) erhält man wieder Gleichung (2.27) mit $\alpha = \lambda/\gamma_0' M$ und einem allerdings modifizierten gyromagnetischen Verhältnis $\gamma_0' = \gamma_0(1 + \alpha^2)$. Für kleine Dämpfung sind also beide Bewegungsgleichungen äquivalent. Der Dämpfungsterm ist in beiden Fällen orthogonal zu \mathbf{M} , so dass wieder gemäß (2.8) der Betrag der Magnetisierung erhalten bleibt. Aufgrund dieser Erhaltung der Länge des Magnetisierungsvektors sind diese Dämpfungsterme z.B. nicht geeignet, die eingangs dieses Abschnitts erwähnten Zwei-Magnonen-Prozessen zu beschreiben; zur korrekten Beschreibung dieser Dynamik bieten sich eher die Bloch-Bloembergen-Gleichungen an (vgl. Mills u. Rezende 2003, S. 39). Zusammenfassend ist festzustellen, dass sämtliche Ansätze für mögliche Dissipationsterme die zugrunde liegenden Dämpfungsmechanismen nur näherungsweise beschreiben, im Falle kleiner Auslenkungen und kleiner Dämpfung aber äquivalent zu gebrauchen sind (vgl. Gurevich u. Melkov 1996, S. 18).

2.3 Integration der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung

Mit der im vorherigen Abschnitt eingeführten Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung (2.27) liegt eine partielle Differentialgleichung vor. Die in Abschnitt 2.1 beschriebenen Energiebeiträge, die das effektive Feld bestimmen, hängen zum Teil nicht nur von der Magnetisierung ab, sondern sind zudem an die Maxwell-Gleichungen und im Falle magneto-elastischer Wechselwirkung auch an die elastischen Bewegungsgleichungen gekoppelt. Es ist allerdings schon unmöglich, die Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung exakt analytisch für die uniforme Dynamik eines homogen magnetisierten dünnen Films zu lösen (vgl. Miltat u. a. 2002, S. 7). Daher ist eine Linearisierung der Bewegungsgleichung notwendig. In dem Abschnitt 2.3.1 wird die linearisierte Bewegungsgleichung in der sogenannten Makrospinnäherung für die uniforme Dynamik von dünnen Filmen gelöst.

2.3.1 Linearisierung und analytische Integration in Makrospinnäherung

In diesem Abschnitt wird vorausgesetzt, dass sich alle magnetischen Momente eines dünnen ferromagnetischen Films unisono bewegen. Bestimmt man den Dämpfungsparameter aus einem Experiment, für das man wie in Abschnitt 3.3.2 zur Auswertung diese Makrospinnäherung voraussetzt, so überschätzt man α systematisch (vgl. Miltat u. a. 2002, S. 23). Der Grund hierfür ist, dass sich der

Dämpfungsparameter α mit der zeitlichen Änderung der Magnetisierungsrichtung $\frac{d\mathbf{M}}{dt}$ und der Energiedissipation $\frac{dF}{dt}$ als

$$\alpha = \gamma M_s \frac{\int_V \frac{dF}{dt} d\mathbf{r}}{\int_V \left(\frac{d\mathbf{M}}{dt}\right)^2 d\mathbf{r}} \quad (2.30)$$

ausdrücken lässt. Unter der Makrospinannahme bestimmt man aber nicht den Nenner, sondern $(\int_V \frac{d\mathbf{M}}{dt} d\mathbf{r})^2 \leq \int_V \left(\frac{d\mathbf{M}}{dt}\right)^2 d\mathbf{r}$ (Schwartz'sche Ungleichung), damit folgt

$$\alpha_{\text{Makrospin}} \geq \alpha. \quad (2.31)$$

Zur Lösung der Bewegungsgleichung schreibt man die Magnetisierung in Kugelkoordinaten ($\mathbf{M} = M_s(\cos \phi \sin \theta, \sin \phi \sin \theta, \cos \theta)$). Damit erlangt (2.28) die Form²:

$$\begin{aligned} \frac{d\theta}{dt} &= -\frac{\gamma_0}{\mu_0 M_s} \left(\alpha \frac{\partial F}{\partial \theta} + \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial F}{\partial \phi} \right) \\ \frac{d\phi}{dt} &= \frac{\gamma_0}{\mu_0 M_s} \left(\frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial F}{\partial \theta} + \frac{\alpha}{\sin^2 \theta} \frac{\partial F}{\partial \phi} \right), \end{aligned} \quad (2.32)$$

wobei die Definition des effektiven Feldes (2.13) genutzt wurde. Die Gleichgewichtsmagnetisierung (θ_0, ϕ_0) ist durch das Minimum der freien Energie der Probe bestimmt, zur Linearisierung der Bewegungsgleichung wird das Potential um dieses Minimum entwickelt:

$$F = F_0 + \frac{1}{2} (F_{\theta\theta} \Delta\theta^2 + F_{\phi\phi} \Delta\phi^2 + 2F_{\theta\phi} \Delta\theta \Delta\phi) + (\text{Terme höherer Ordnung}). \quad (2.33)$$

Dabei ist F_0 die freie Energiedichte am Minimum, $F_{xy} = \frac{\partial^2 F}{\partial x \partial y} \Big|_{x=x_0, y=y_0}$, $\phi = \phi_0 + \Delta\phi$ und $\theta = \theta_0 + \Delta\theta$. Aufgrund der Extremalbedingung verschwinden die ersten Ableitungen. Das Differentialgleichungssystem lässt sich damit schreiben als

$$\begin{pmatrix} \frac{d}{dt} + \frac{\gamma_0 F_{\theta\phi}}{\mu_0 M_s \sin \theta_0} + \frac{\alpha \gamma_0 F_{\theta\theta}}{\mu_0 M_s} & \frac{\gamma_0 F_{\phi\phi}}{\mu_0 M_s \sin \theta_0} + \frac{\alpha \gamma_0 F_{\theta\phi}}{\mu_0 M_s} \\ \frac{\gamma_0 F_{\theta\theta}}{\mu_0 M_s \sin \theta_0} + \frac{\alpha \gamma_0 F_{\theta\phi}}{\mu_0 M_s \sin^2 \theta_0} & \frac{d}{dt} - \frac{\gamma_0 F_{\theta\phi}}{\mu_0 M_s \sin \theta_0} + \frac{\alpha \gamma_0 F_{\phi\phi}}{\mu_0 M_s \sin^2 \theta_0} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \Delta\theta \\ \Delta\phi \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (2.34)$$

Zur Lösung wird ein Exponentialansatz $\Delta\phi, \Delta\theta \propto \exp(i\omega t - t/\tau)$ herangezogen; die Determinante des resultierenden linearen Gleichungssystems muss verschwinden, damit nichttriviale Lösungen existieren. Damit lässt sich Dämpfung und Eigenfrequenz des Systems bestimmen. Für die Dämpfung lässt sich exakt angeben:

$$\tau = \frac{2\mu_0 M_s}{\alpha \gamma_0 \left(F_{\theta\theta} + \frac{1}{\sin^2 \theta_0} F_{\phi\phi} \right)}. \quad (2.35)$$

²Die Gleichungen (2.28) und (2.27) unterscheiden sich durch quadratische Terme in α , die hier als vernachlässigbar klein angenommen werden, und können daher als äquivalent angesehen werden.

Für die ungedämpfte Eigenoszillation beträgt die Frequenz:

$$\omega_0 = \frac{\gamma_0}{\mu_0 M_s \sin \theta_0} \sqrt{F_{\theta\theta} F_{\phi\phi} - F_{\theta\phi}^2}. \quad (2.36)$$

Falls $F_{\theta\phi}$, wie in allen in dieser Arbeit untersuchten Konfigurationen (vgl. die Abschnitte 3.3.2 und 4.2), verschwindet, lässt sich die Frequenz für den gedämpften Fall mit

$$\omega = \sqrt{\omega_0^2 (1 + \alpha^2) - \left(\frac{1}{\tau}\right)^2} \quad (2.37)$$

angeben. Der relative Fehler bei Vernachlässigung der Dämpfung ist also quadratisch in α und beträgt damit

$$\frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} \approx \frac{1}{2} \left[\alpha^2 - \left(\frac{1}{\omega_0 \tau}\right)^2 \right], \quad (2.38)$$

womit dieser Fehler kleiner als derjenige ist, der aus der Wahl eines unzureichenden Dämpfungsterms in der Bewegungsgleichung resultiert.

Experimenteller Aufbau und Beschreibung des Experiments

In dieser Arbeit wird die Änderung der Magnetisierung in der Zeitdomäne mit Hilfe des magneto-optischen Kerreffekts untersucht. Bei dem Aufbau handelt es sich um ein optisches Pump-Abfrage-Experiment, bei dem die Dynamik zuerst durch ein Pumpaserpuls induziert und zeitlich verzögert von einem weiteren Puls abgefragt wird. Ein Überblick über weitere experimentelle Techniken zum Studium der Magnetisierungsdynamik findet sich bei Djordjevic (Djordjevic 2006, S. 21ff). In diesem Kapitel wird zunächst der magneto-optische Kerreffekt erläutert (Abschnitt 3.1), anschließend wird der experimentelle Aufbau beschrieben (Abschnitt 3.2); im letzten Abschnitt des Kapitels wird erläutert, auf welche Art und Weise in diesem Experiment die Dynamik durch den Pumpimpuls angeregt wird (Abschnitt 3.3).

3.1 Der magneto-optische Kerreffekt

Die Antwort eines Festkörpers auf ein angelegtes elektromagnetisches Feld ist durch den frequenzabhängigen dielektrischen Tensor $\vec{\epsilon}(\omega)$ bestimmt. Nach dem Neumann'schen Prinzip sollte dieser Tensor die Symmetrie des Kristalls aufweisen. Damit reduziert sich der Tensor für einen kubischen Kristall auf ein Vielfaches des Einheitstensors, der Festkörper ist also optisch isotrop. Durch eine Magnetisierung wird eine bestimmte Richtung ausgezeichnet, und es verbleibt eine kleinere Anzahl von Symmetrieoperationen, unter der der dielektrische Tensor invariant bleibt (vgl. Ebert u. Perlov 1999, S. 2). Für eine beliebige Magnetisierungsrichtung lässt sich der dielektrische Tensor nun schreiben als

$$\vec{\epsilon} = \epsilon \begin{pmatrix} 1 & iQm_z & -iQm_y \\ -iQm_z & 1 & iQm_x \\ iQm_y & -iQm_x & 1 \end{pmatrix}, \quad (3.1)$$

wobei $\mathbf{m} = 1/M_s \mathbf{M}$ und Q die im Allgemeinen komplexe materialabhängige Voigt-Konstante ist (vgl. Vollmer 1999, S. 2). Dass diese aus Symmetriegründen erlaubten Nichtdiagonalelemente tatsächlich endlich sind, hat seine Ursache in der Spin-Bahn-Wechselwirkung der Elektronen im Festkörper. Ohne diese Wechselwirkung könnten nach den Dipolauswahlregeln (vgl. Grawert 1989, S. 335ff) die optischen Übergänge nicht durch die hauptsächlich von den Spinmomenten der Ladungsträger erzeugte Magnetisierung bestimmt sein (vgl. auch Vollmer 1999, S. 17ff). In Bennett u. Stern (1965) findet sich eine quantenmechanische Berechnung der Elemente des dielektrischen Tensors unter Berücksichtigung der Spin-Bahn-Kopplung. Die Reflexion von Licht an der Oberfläche eines magnetisierten Festkörpers ist nun durch den dielektrischen Tensor (3.1) und damit durch die Magnetisierungsrichtung, den Einfallswinkel und die Polarisation des einfallenden Lichtes bestimmt. Im Jones-Formalismus (vgl. Hecht 2001, S. 547ff) lässt sich die Reflexion ausdrücken als

$$\begin{pmatrix} E_s^f \\ E_p^f \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_s^i \\ E_p^i \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

wobei E_s und E_p die Komponenten des elektrischen Feldes senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene bezeichnen. Unter Berücksichtigung der Maxwell'schen Gleichungen und der aus ihr resultierenden Stetigkeitsbedingungen kann diese Matrix auch für Schichtsysteme berechnet werden (Vgl. Zak u. a. 1991). Die Diagonalelemente der in (3.2) eingeführten Matrix beschreiben eine Rotation der Polarisation und eine Änderung der Phasenbeziehung zwischen den s - und p -polarisierten Komponenten des einfallenden Lichts. Rein p -polarisiertes Licht wird um den Winkel

$$\theta_k = \Re \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \quad (3.3)$$

gedreht, und die Phasendifferenz zwischen den beiden Komponenten beträgt

$$\epsilon_k = \Im \frac{r_{sp}}{r_{pp}}. \quad (3.4)$$

Dieser Effekt ist auf die Nichtdiagonalelemente in (3.1) und somit auf die Magnetisierung zurückzuführen. θ_k und ϵ_k werden nach dem Entdecker und Namensgeber des Effekts, Kerr (Kerr 1877), als Kerrwinkel und Kerrelliptizität bezeichnet. Zu bemerken ist, dass ihr Betrag allerdings auch von den Diagonalelementen des dielektrischen Tensors (3.1) abhängig ist.

Grundsätzlich sind drei verschiedene Konfigurationen zu unterscheiden, die durch die Winkel zwischen Probenoberfläche, Magnetisierung und Einfallsebene bestimmt sind (vgl. Abbildung 3.1): polar, longitudinal und transversal. In transversaler Konfiguration findet keine Rotation, sondern lediglich eine Änderung der Reflexion statt (vgl. Vollmer 1999, S. 6). In Abbildung 3.2 ist die Kerrdrehung für Licht mit der Wellenlänge 800 nm als Funktion des Einfallswinkels (gemessen gegen die Filmmnormale) in polarer und longitudinaler Konfiguration

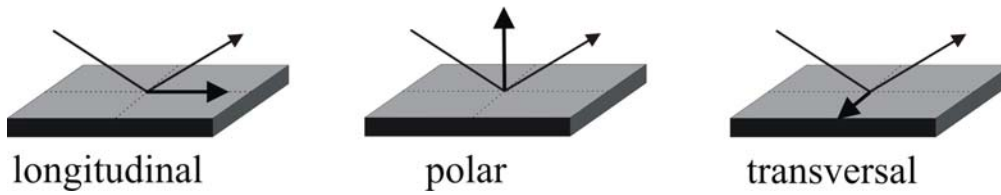


Abbildung 3.1: Unterschiedliche Kerrkonfigurationen.

für einen 8 nm dicken Nickelfilm ($n_{\text{Ni}} = 2.53 - 4.47i$, $Q_{\text{Ni}} = 0.0096 - 0.0076i$) mit einer 2 nm dicken Kupferdeckschicht ($n_{\text{Cu}} = 0.26 - 5.26i$) auf einem Siliziumsubstrat ($n_{\text{Si}} = 3.673 - 0.0050i$) nach der Transfermatrixmethode von Zak u.a. (Zak u.a. 1991) berechnet. In polarer Konfiguration ist die Kerrdrehung

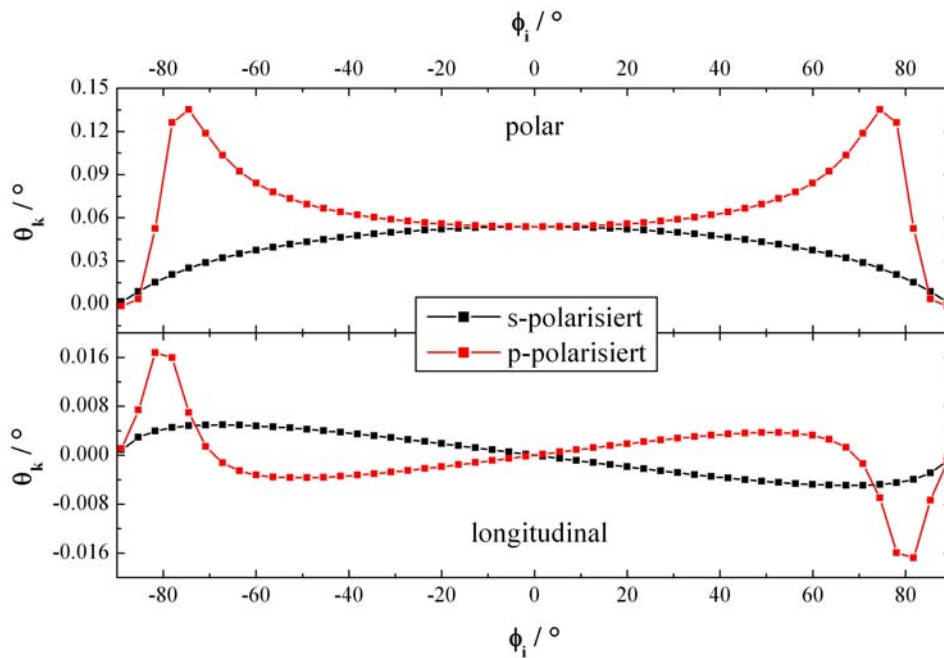


Abbildung 3.2: Berechnete Kerrdrehung als Funktion des Einfallswinkels in longitudinaler und polarer Konfiguration, $\lambda = 800 \text{ nm}$, Cu(2 nm)/Ni(8 nm)/Si.

also rund eine Größenordnung größer als in longitudinaler Konfiguration. Bei kleinen Einfallswinkeln ist der transversale Kerreffekt verschwindend klein (vgl. Vollmer 1999, S. 11). In einer gemischten Konfiguration sind diese Größenunterschiede der einzelnen Beiträge zum Kerrwinkel und zum Reflexionskoeffizienten

zu berücksichtigen. Das Vorzeichen der Nichtdiagonalelemente in (3.2) ändert sich mit der Umkehrung der Magnetisierungsrichtung.

3.2 Aufbau

In dem experimentellen Aufbau wird die zeitliche Änderung des Kerrwinkels gemessen. Dazu werden einerseits kurze Lichtpulse, andererseits ein empfindliches Detektionssystem benötigt. In diesem Abschnitt wird zunächst erläutert, wie in dem Aufbau kurze Lichtpulse erzeugt werden; anschließend wird der Messaufbau beschrieben.

3.2.1 Das Lasersystem

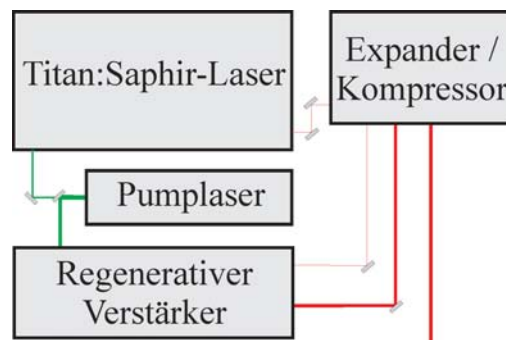


Abbildung 3.3: Schematischer Überblick über das Lasersystem.

Das Lasersystem besteht aus einem gepulsten Titan:Saphir-Laser, einem regenerativen Verstärker (Coherent RegA 9000), einem Dioden-gepumpten Festkörperlaser (Coherent Verdi V-18) und einem Expander-Compressor-System (Coherent) (vgl. Abbildung 3.3). Das Lasermedium des Verdi-Lasers ist ein Neodym:Vanadat-Kristall ($\text{Nd}:\text{YVO}_4$); die Besetzungsinversion wird durch optische Dioden erzeugt. Bei einer Wellenlänge von 532 nm, die durch Frequenzverdopplung erreicht wird, beträgt die maximale Laserleistung 18 W (vgl. Coherent 2004). In dem Aufbau ist die Austrittsleistung auf 16,5 W eingestellt, das emittierte kontinuierliche Licht wird zum optischen Pumpen des Titan:Saphir-Oszillators (5,2 W) und des regenerativen Verstärkers (11,3 W) verwendet. Der in der Arbeitsgruppe entworfene und aufgebaute Titan:Saphir-Laser (vgl. Freundt 1994 und Lüttich 2004, S. 7ff) wird im Instabilitätsbereich des kontinuierlichen Modus betrieben, so dass er durch eine kurze Störung des Systems in den Pulsbetrieb gebracht werden kann. Die für den Pulsbetrieb nötige feste Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Lasermoden wird hierbei durch die sogenannte Selbstphasenmodulation durch Selbstfokussierung aufgrund des nichtlinearen elektro-optischen Kerreffekts im Titan:Saphir-Kristall ($\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$) erreicht

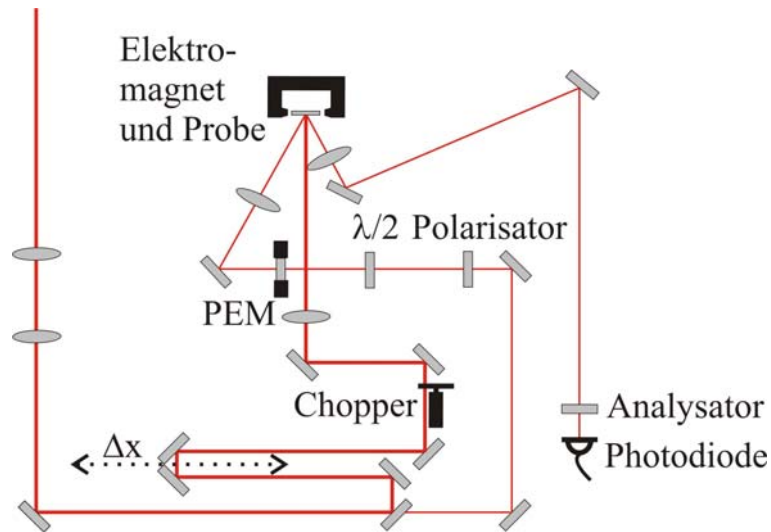


Abbildung 3.4: Messaufbau (schematisch).

(vgl. Ducasse u. a. 2003, S. 81ff). Die Dispersion des Kristalls wird durch ein Prismenpaar in der Kavität ausgeglichen (vgl. Fork u. Martinez 1984). Der hier erzeugte Puls hat eine zentrale Wellenlänge bei 800 nm und eine spektrale Breite (FWHM) von ungefähr 30 nm. Die Ausgangsleistung liegt bei 500 mW. Die Wiederholungsfrequenz beträgt gemäß der Resonatorlänge von $l = 1875$ mm bei $\nu = \frac{c}{2l} \approx 80$ MHz. Dieser Puls wird nun im Zeitraum mit Hilfe eines Beugungsgitters gestreckt, damit die Optik des regenerativen Verstärkers nicht beschädigt wird. In ihm befindet sich ein weiterer gepumpter Titan:Saphir-Kristall in einem Resonator, dessen optische Güte durch einen akusto-optischen Modulator geschaltet werden kann, so dass der Eingangspuls zulasten der Wiederholungsrate, die anschließend bei 250 kHz beträgt, verstärkt wird. Der Ausgangspuls wird danach wieder mit Hilfe eines Beugungsgitters komprimiert (vgl. Coherent 1994). Die Pulse aus dem Kompressor haben eine Autokorrelationslänge (vgl. Lüttich 2004, S. 26ff) zwischen 50 und 60 fs und sind p -polarisiert (parallel zur Tischoberfläche), die Leistung liegt zwischen 600 und 800 mW, was einer Energie von ca. $1 \mu\text{J}$ pro Puls entspricht. Über ein $\lambda/2$ -Plättchen und einen Polarisator in p -Richtung kann die Laser-Fluenz für das Experiment geregelt werden.

3.2.2 Der Messaufbau

In Abbildung 3.4 ist der Aufbau schematisch dargestellt. Durch den Strahlteiler wird der Laserstrahl in Pump- und Abfragepuls im Intensitätsverhältnis 95 : 5 aufgespalten. Die Polarisation des durch das $\lambda/4$ -Plättchen rechts-zirkularpolarisierten Abfragepulses wird mit einem photoelastischen Modulator (Hinds PEM-90) variiert. Dabei handelt es sich um ein isotropes Quarzglas,

bei dem außerordentlicher und ordentlicher Brechungsindex mechanisch über ein piezoelektrisches Element verändert werden (vgl. Hinds 1994). Der Modulator ist so auf die zentrale Wellenlänge des Laserlichtes eingestellt, dass er im Jones-Formalismus durch

$$\mathbf{M}(t) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp(i\frac{\pi}{2} \cos \Omega t) \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

repräsentiert werden kann, wobei $\frac{\Omega}{2\pi} = 50 \text{ kHz}$ ist. Der Abfragepuls fällt, fokussiert auf einen Durchmesser von ca. $40 \mu\text{m}$, unter einem Winkel von ca. 30° gegen die Normale auf die Probe und ist somit sensitiv auf den longitudinalen und den polaren Kerreffekt (vgl. Abbildung 3.2). Die Reflexion an der Probe ist durch (3.2) beschrieben. Der Analysator lässt die s -Komponente des Lichts hindurch, so dass das Detektorsignal durch

$$\frac{I}{I_0} = \left| \begin{pmatrix} 1 & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp(i\frac{\pi}{2} \cos \Omega t) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{-i}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \right|^2 \quad (3.6)$$

gegeben ist. Eine Fourierentwicklung des Signals liefert (Djordjevic 2006, S. 33ff)

$$\frac{I}{I_0} = \frac{R}{2} + J_1\left(\frac{\pi}{2}\right) R \left(\frac{\pi}{2} - \theta_k\right) \cdot \cos \Omega t - 2J_2\left(\frac{\pi}{2}\right) R \epsilon_k \cdot \cos 2\Omega t + \dots, \quad (3.7)$$

wobei $|r_{ss}|^2 = |r_{pp}|^2 = R$ angenommen wurde und J_n die Besselfunktion n ter Ordnung kennzeichnet. Mit Hilfe eines Lock-In-Verstärkers (Stanford Research Systems SR830 DSP) kann also der Kerrwinkel plus einer Konstante auf der Frequenz des photoelastischen Modulators und die Kerrelliptizität auf der ersten Oberfrequenz detektiert werden; das Gleichstrom-Signal ist nur durch die Reflexionskoeffizienten der Probe bestimmt. In dem Aufbau ist der Lock-In-Verstärker üblicherweise auf die Grundfrequenz eingestellt, so dass sein Ausgangssignal sensitiv auf den Kerrwinkel ist. Durch einen Elektromagneten (Abbildung 3.5) kann ein externes Magnetfeld an die Probe angelegt werden, in der longitudinalen Konfiguration können Feldstärken von bis zu $\mu_0 H_{\text{ext}} = 200 \text{ mT}$ erzeugt werden, in polarer bis zu $\mu_0 H_{\text{ext}} = 70 \text{ mT}$. In der jeweiligen Konfiguration kann die Richtung des Feldes bis 35° gegen die Probenoberfläche bzw. die Probennormale gedreht werden (mehr Angaben zu dem Elektromagneten finden sich bei Djordjevic (Djordjevic 2006, S. 38f)). In der Arbeit ist bei allen Messungen, soweit nicht anders angegeben, das angelegte Feld parallel zur Probenoberfläche. Das Ausgangssignal des ersten Lock-In-Verstärkers eignet sich zur statischen Messung der Magnetisierung als Funktion des angelegten Feldes und damit zur Messung von Hystereseschleifen.

Zur zeitaufgelösten Messung wird der Pumpstrahl, bevor er nahezu senkrecht, auf einen Durchmesser von ca. $60 \mu\text{m}$ fokussiert, auf die Probe trifft, mit einem mechanischen Chopper moduliert (vgl. z.B. Koopmans 2003, S. 269f), die Frequenz liegt bei 800 Hz . Das Ausgangssignal des ersten Lock-In-Verstärkers dient

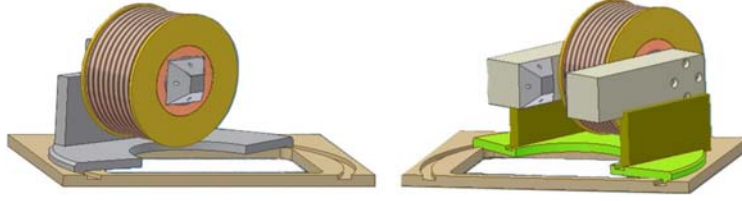


Abbildung 3.5: Der Elektromagnet in polarer (links) und longitudinaler Konfiguration (rechts).

als Eingangssignal eines zweiten Verstärkers, der auf der Frequenz des Choppers die durch den Pumpuls induzierte Änderung

$$\Delta \left[J_1 \left(\frac{\pi}{2} \right) R \left(\frac{\pi}{2} - \theta_k \right) \right] = J_1 \left(\frac{\pi}{2} \right) \left[\Delta R \left(\frac{\pi}{2} - \theta_k \right) - R \Delta \theta_k \right] \quad (3.8)$$

misst. Durch die Verschiebung Δx des Retroreflektors wird eine zeitliche Verzögerung zwischen Pump- und Abfragepuls $\Delta \tau = \frac{\Delta x}{c}$ erreicht, so dass mit Hilfe des Ausgangssignals des zweiten Lock-In-Verstärkers der Ausdruck (3.8) als Funktion der Zeit gemessen werden kann. Mit Hilfe einer weiteren Messung mit umgedrehter Magnetisierungsrichtung und anschließender Differenzbildung erhält man den Term

$$-2J_1 \left(\frac{\pi}{2} \right) [\Delta R \theta_k + R \Delta \theta_k] \approx -2J_1 \left(\frac{\pi}{2} \right) R \Delta \theta_k, \quad (3.9)$$

da sich die Kerrdrehung mit der Magnetisierungsrichtung umdreht (vgl. Abschnitt 3.1). Der erste Term in (3.9) ist unter der Annahme $R \gg \Delta R, \Delta \theta_k, \theta_k$ vernachlässigbar. Damit ist das Detektionssystem sensitiv auf die zeitliche Änderung des Kerrwinkels. Inwieweit die Änderung des Kerrwinkels die Magnetisierungsänderung widerspiegelt, wird im Abschnitt 3.3 diskutiert. Bei ausgeschalteter Modulation der Polarisation des Abfragepulses kann das Diodensignal auch zur Messung der zeitlichen Änderung des Reflexionsgrades der Probe genutzt werden. Dazu wird mit nur einem Lock-In-Verstärker die Komponente des Diodensignals auf der Chopperfrequenz detektiert. Der gemessene Transient sollte proportional zur Summe zweier polarisationsmodulierter Messungen mit umgedrehter Magnetisierungsrichtung sein (vgl. (3.8)).

Die zeitliche Auflösung dieses Experiments ist durch die Pulslänge von Abfrage- und Pumpuls gegeben und liegt damit unter 100 fs. In dieser Arbeit wird die transiente Änderung der Reflexion und der Kerrdrehung, wenn sie nicht

in die prozentuale Änderung umgerechnet wird, in der Einheit der elektrischen Spannung angegeben; hierbei handelt es sich um die Ausgabespannung der Lock-In-Verstärker. Wenn in dieser Arbeit der Ausdruck (3.9) in einem Graphen aufgetragen wird, so ist die Abszisse mit $\Delta\theta_k$ beschriftet. In einigen Graphen ist die Summe von (3.8) für beide Feldrichtungen aufgetragen; in diesem Fall wird die Abszisse - nicht ganz korrekt - mit $\Delta\theta_k(-M) + \Delta\theta_k(M)$ beschriftet.

3.3 Interpretation und Beschreibung des Experiments

Durch den Pumpulaserpuls wird die Probe entmagnetisiert. In einem frühen zeitaufgelösten Spin-polarisierten Photoemissionsexperiment wurde bei einer Pulsdauer von 30 ps die Spin-Relaxationszeit für ferromagnetisches Gadolinium mit (100 ± 80) ps angegeben (Vaterlaus u. a. 1992). Dieses Ergebnis war im Einklang mit theoretischen Berechnungen für die Spin-Gitter-Relaxation (Hübner u. Bennemann 1996). In einer zeitaufgelösten Messung der Kerrdrehung mit einer Pump- und Abfragepulslänge von unter 100 fs wurde 1996 ein Einbruch des Kerrsignals eines Nickelfilms nach deutlich unterhalb von 1 ps gefunden (vgl. Abbildung 3.6) und mit einem phänomenologischen Drei-Temperatur-Modell beschrieben, in dem dem Elektronen-, dem Gitter- und dem Spinsystem jeweils eine Temperatur zugeordnet wird (Beaurepaire u. a. 1996). Ein ausführlicher

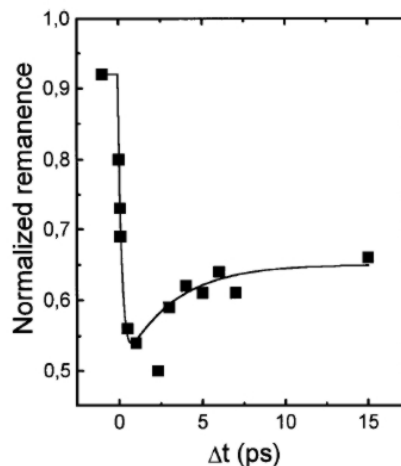


Abbildung 3.6: Erste Messung der Laser-induzierten ultraschnellen Entmagnetisierung (aus Beaurepaire u. a. 1996).

Überblick über die anschließende Diskussion dieser Beobachtung findet sich z.B. bei Koopmans (Koopmans 2003, S.289ff). Das erste theoretische Modell zur Beschreibung dieser schnellen Entmagnetisierung beinhaltet einen direkten Einfluss des Photonenfeldes auf die Magnetisierung (Zhang u. Hübner 2000). Eine

wichtige Frage ist, inwieweit die Änderung des Kerrsignals, die auch in den Experimenten in dieser Arbeit bestimmt wird (3.9), proportional zur Änderung der Magnetisierung ist. Ab ca. 1,5 ps kann man nach Koopmans (Koopmans 2003, S. 295f) von dieser Proportionalität ausgehen. Nach der Publikation dieses Überblickartikels gab es mehrere Veröffentlichungen, die diese ultraschnelle Entmagnetisierung untermauern: Es wurde aus den Messungen die zeitliche Änderung der Diagonal- und Nichtdiagonalelemente des dielektrischen Tensors extrahiert (Guidoni u. a. 2002). Nach Beaurepaire u.a. kann man durch die Messung der emittierten Terahertzstrahlung auf einen sich auf sehr kurzer Zeitskala ändernden magnetischen Dipol schließen (Beaurepaire u. a. 2004). Es wurde ferner ein mikroskopisches Modell angegeben, dass die Kopplung in dem Drei-Temperatur-Modell zwischen den Elektronen und den Spins durch Elliot-Yafet-Streuung der Elektronen (ohne direkten Einfluss des Laserfeldes) erklärt (Koopmans u. a. 2005). Cinchetti u.a. untermauerten in einer kombinierten Studie der zeitaufgelösten Kerrdrehung und der Spin-polarisierten Photoemission die Entmagnetisierung durch Elliot-Yafet-Streuung unterhalb von 300 fs (Cinchetti u. a. 2006). Weitere Evidenz für diesen Mechanismus der Entmagnetisierung wird von Dalla Longa u.a. erbracht, die zeigen, dass jeglicher Einfluss der Pump polarisation auf die Entmagnetisierung auszuschließen ist (Dalla Longa u. a. 2006). Das von Koopmans vorgeschlagene Modell setzt darüber hinaus die Entmagnetisierung mit der magnetischen Dämpfung in Beziehung; die Überprüfung dieser Relation ist Teil der vorliegenden Arbeit (vgl. Abschnitt 3.3.3).

Die Antwort eines Metallfilms auf einen ultrakurzen Lichtpuls kann phänomenologisch durch das sogenannte Zwei-Temperatur-Modell beschrieben werden; ein Ferromagnet kann in einem ergänzenden Drei-Temperatur-Modell behandelt werden. Diese beiden Modelle werden im Abschnitt 3.3.1 in Hinblick auf die Ableitung von Fitting-Funktionen zur Beschreibung des Experiments diskutiert, liefern aber auch ein anschauliches, wenn auch phänomenologisches Bild der Entmagnetisierung.

In Abschnitt 3.3.2 wird erläutert, wie in bestimmten Konfigurationen durch den Pumpuls eine uniforme Präzession gemäß der in Abschnitt 2.3.1 angegebenen Lösung der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung induziert wird.

3.3.1 Das Zwei- und Drei-Temperatur-Modell

Das Zwei-Temperatur-Modell wurde von Anisimov u.a. zur Beschreibung der Antwort eines Festkörpers auf die Bestrahlung durch einen ultrakurzen Lichtpuls vorgeschlagen (S. I. Anisimov u. a. 1974). In ihm werden Elektronen- und Gittersystem unterschiedliche Temperaturen zugewiesen. Diese beiden Systeme sind thermisch aneinandergeschaltet; die physikalische Ursache hierfür ist die Phonon-Elektron-Wechselwirkung (vgl. Hohlfeld 1998, S. 11ff). Der Laserpuls überträgt seine Energie nur auf das Elektronensystem. Ferner ist noch Diffusion zu berücksichtigen. Unter der Annahme, dass z.B. der Reflexionskoeffizient der Probe sich für kleine Pump laserfluenzen linear mit der Temperatur ändert,

lässt sich somit eine zeitaufgelöste Reflexionsmessung beschreiben. Dieses Modell wird durch folgendes Differentialgleichungssystem beschrieben

$$\begin{aligned} C_e \cdot \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \nabla(K_e \nabla T_e) + g_{ep} (T_p - T_e) + P(t, \mathbf{r}), \\ C_p \cdot \frac{\partial T_p}{\partial t} &= \nabla(K_p \nabla T_p) - g_{ep} (T_p - T_e), \end{aligned} \quad (3.10)$$

wobei g_{ep} die Kopplungskonstante, C_i die im Allgemeinen temperaturabhängige spezifische Wärme und K_i die Wärmeleitfähigkeit des jeweiligen Systems ist. Da der Durchmesser des Laserspots im Allgemeinen viel größer als die Dicke des Probenfilms ist, ist nur die räumliche Variation in Richtung der Filmmnormale zu berücksichtigen.

Zuerst soll angenommen werden, dass ein dünner Film der Dicke d homogen durch den Lichtpuls aufgeheizt wird. Außerdem soll auch die Diffusion ins Substrat vernachlässigt werden. Damit lässt sich im Falle konstanter spezifischer Wärme für beide Systeme eine allerdings längliche analytische Lösung für das Differentialgleichungssystem (3.10) angeben. Unter der weiteren Annahme, dass die spezifische Wärme des Gitters so groß ist, dass $\frac{dT_p}{dt} \approx 0$, reduziert sich das System auf eine einzige Differentialgleichung für die neue Variable $\Delta T = T_e - T_p$. Für eine Delta-Anregung in der Zeit durch den Laser lässt sich die Lösung unmittelbar über einen Exponentialansatz bzw. durch Fouriertransformation bestimmen. Die Lösungen für realistischere Anregungen folgen durch Faltung

$$T_e = T_p + \left(\frac{\Theta(t)}{C_e} \exp - \frac{g_{ep} t}{C_e} \right) * P(t), \quad (3.11)$$

wobei Θ die Heaviside-Funktion darstellt. Für ein Pumpterm der Form (A : Absorptionskoeffizient der Probe, F : Laserfluenz, σ : Pulsbreite)

$$P(t) = A \frac{F}{\sqrt{2\pi}\sigma d} \exp(-t^2/2\sigma^2) \quad (3.12)$$

ergibt sich als Lösung

$$T_e = T_p + \left[\frac{AF}{\sigma C_e} \exp\left(\frac{\sigma g_{ep}}{2C_e}\right)^2 \right] \operatorname{erf}\left(\frac{t}{\sigma} - \frac{\sigma g_{ep}}{C_e}\right) \exp\left(-\frac{g_{ep}}{C_e} t\right). \quad (3.13)$$

Die charakteristischen Zeitskalen sind einerseits für den Temperaturanstieg $\sigma < 100$ fs und andererseits für das Abklingen $\frac{C_e}{g_{ep}} \approx 1$ ps. Der also nahezu instantane Anstieg der Elektronentemperatur legt nahe, den Pumpterm wegzulassen und das Heizen des Elektronensystems in den Anfangsbedingungen zu erfassen. Die Lösung dieses homogenen Systems folgt unmittelbar aus der Diagonalisierung und einem Exponentialansatz

$$\begin{aligned} T_e &= T_e(-\infty) + \frac{\Delta T_e(0)}{C_e + C_p} \left[C_e + C_p \exp\left(-\frac{g_{ep}(C_e + C_p)}{C_e C_p} t\right) \right], \\ T_p &= T_e(-\infty) + \frac{T_e(0)}{C_e + C_p} \left[C_e - C_p \exp\left(-\frac{g_{ep}(C_e + C_p)}{C_e C_p} t\right) \right]. \end{aligned} \quad (3.14)$$

Die charakteristische Zeitskala sowohl für den Anstieg der Phonontemperatur als auch für den Abfall der Elektronentemperatur ist also $\tau_{ep} = \frac{C_e C_p}{g_{ep}(C_e + C_p)}$. Eine starke Kopplung führt also zu einer schnellen Relaxation; eine große spezifische Wärme wirkt wiederum verlangsamernd.

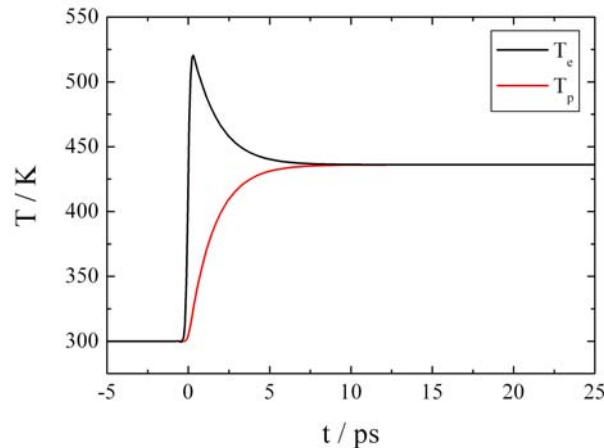


Abbildung 3.7: Numerische Lösung des Zwei-Temperatur-Modells für Nickel, (Konstanten nach Bearepaire u. a. 1996).

In Abbildung 3.7 ist eine numerische Lösung des Zwei-Temperatur-Modells für Nickel dargestellt ($d = 20 \text{ nm}$, $\sigma = 100 \text{ fs}$ und $A \cdot F = 1,2 \text{ mJ/cm}^2$ wie für alle weiteren numerischen Lösungen). Die verwendeten Konstanten für Nickel sind der Literatur (Bearepaire u. a. 1996) entnommen: $C_p = 2,2 \cdot 10^6 \frac{\text{J}}{\text{m}^3 \text{K}}$, $C_e = 6 \cdot 10^6 \frac{\text{J}}{\text{m}^3 \text{K}^2} T_e$ und $g_{ep} = 8 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \text{K}}$. Hier wurde, wie häufig in der Literatur, der für kleine Temperaturen abgeleitete lineare Zusammenhang zwischen spezifischer Wärme des Elektronensystems und seiner Temperatur verwendet, allerdings mit einer um eine Größenordnung größeren Proportionalitätskonstanten, die besser die vorliegenden experimentellen Ergebnisse beschreibt. Die Autoren rechtfertigten diese Annahme mit Singularitäten der Zustandsdichte von Nickel in der Umgebung der Fermikante. Wie schon von van Kampen bemerkt, stellt dieses Argument aber auch schon den linearen Zusammenhang zwischen spezifischer Wärme und Temperatur der Elektronen an sich in Frage (van Kampen 2003, S. 46). An dieser Stelle sollte bemerkt werden, dass im Zwei-Temperatur-Modell Konzepte für das thermodynamische Gleichgewicht in einem hochgradigen Ungleichgewichtszustand verwendet werden und somit numerische Werte von den jeweiligen Parametern nicht überinterpretiert werden sollten. Häufig wird in der Literatur ein erweitertes Zwei-Temperatur-Modell verwendet, das ein drittes Wärmebad für nicht-thermalisierte Elektronen beinhaltet, welches durch den Laser geheizt wird und seine Energie an das Bad von

thermalisierten Elektronen abgibt (vgl. Koopmans 2003, S. 274ff). Von Carpene wird ebenfalls ein erweitertes Zwei-Temperatur-Modell vorgestellt, das nicht-thermalisierte Elektronen behandelt (Carpene 2006). Ein Vergleich mit dem herkömmlichen Modell zeigt, dass dieses in den ersten 100 bis 200 fs die Elektronentemperatur überschätzt, anschließend aber vergleichbare Ergebnisse liefert. Die Thermalisierung der angeregten Ladungsträger über Elektronen-Elektronen-Stöße erfolgt also innerhalb einiger 100 Femtosekunden; ab hier ist also die dem einfachen Modell zugrunde liegende Annahme einer Fermiverteilung der Elektronen mit einer höheren Temperatur gerechtfertigt. Die niedrige Anzahl der unmittelbar photonisch angeregten Elektronen macht im Übrigen auch deutlich, dass die Entmagnetisierung vor allem über die Wechselwirkung der thermalisierten Elektronen mit den Spinfreiheitsgraden erfolgen muss (vgl. Koopmans 2003, S. 281f).

In Abbildung 3.8 ist die transiente Elektronentemperatur einmal mit dem linearen Zusammenhang für die spezifische Wärme und einmal mit einem konstanten Wert (bestimmt für $T_e = 365\text{ K}$) dargestellt. In beiden Fällen lässt sich eine Exponentialfunktion an den Abfall anpassen: Im zweiten Fall entspricht die Abklingkonstante dem nach (3.14) erwarteten Wert von $\tau_{ep} = 1,37\text{ ps}$, für den ersten Fall beträgt die Abklingkonstante $\tau_{ep} = 1,60\text{ ps}$; nach der Beziehung (3.14) entspräche dies einer mittleren Elektronentemperatur von $T_e = 509\text{ K}$. Eine Messung der transienten Änderung der Reflexion sollte sich also mit ei-

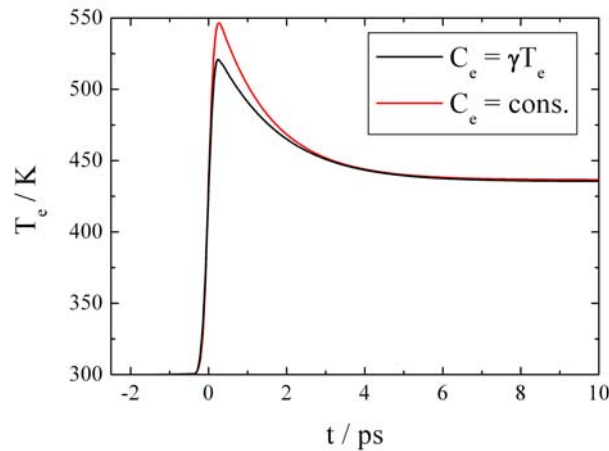


Abbildung 3.8: Transiente Elektronentemperatur für ein System mit konstanter spezifischer Wärme und mit einem linearen Zusammenhang zwischen spezifischer Wärme und Temperatur.

ner Exponentialfunktion anfitzen lassen, die ermittelte Abklingkonstante gibt Aufschluss über die Relaxation zwischen Elektronen- und Phononensystem.

Nun soll auch noch die Diffusion innerhalb des Metallfilms und in das Substrat

behandelt werden. Dazu wird ein System aus einem 20 nm dicken Nickelfilm auf einem Siliziumsubstrat von 500 nm Dicke betrachtet. Ferner hat der Pumpterm in (3.10) nun folgende Gestalt

$$P(t, z) = A \frac{F}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp(-t^2/2\sigma^2) \frac{\exp(-z/\delta)}{\delta(1 - \exp(-z/\delta))}, \quad (3.15)$$

wobei δ die optische Eindringtiefe ist. Sie ist gegeben durch (vgl. Hecht 2001, S. 199)

$$\delta = \frac{\lambda}{4\pi|\Im n|}, \quad (3.16)$$

wobei λ die Wellenlänge im Vakuum und n der komplexe Brechungsindex ist. Mit $n_{\text{Ni}} = 2.53 - 4.47i$ für $\lambda = 800$ nm ergibt sich eine Eindringtiefe von $\delta = 14,4$ nm. Die thermische Leitfähigkeit für Nickel bei Raumtemperatur beträgt $K_{\text{Ni}} = 91 \frac{\text{W}}{\text{mK}}$, für Silizium $K_{\text{Si}} = 170 \frac{\text{W}}{\text{mK}}$. Die spezifische Wärme von Silizium beträgt bei Raumtemperatur $C_{\text{Si}} = 1,7 \cdot 10^6 \frac{\text{J}}{\text{m}^3\text{K}}$. Alle Materialkonstanten sind der Literatur entnommen (Gray 1972). Aufgrund der geringen Dichte der freien Ladungsträger in Silizium wird die spezifische Wärme des Elektronensystems auf null gesetzt. Damit erfolgt die Diffusion im Substrat nur über das Gitter, während im Nickel in guter Näherung ausschließlich das Elektronensystem die Wärme transportiert (vgl. Hohlfeld 1998, S. 20f). Elektronen- und Gittertemperatur an der Nickeloberfläche sind in Abbildung 3.9 als Funktion der Zeit dargestellt. Wie nach den verwandten Parametern zu erwarten, verhält sich die Gittertemperatur träger unter der Diffusion. Bekanntermaßen ist die

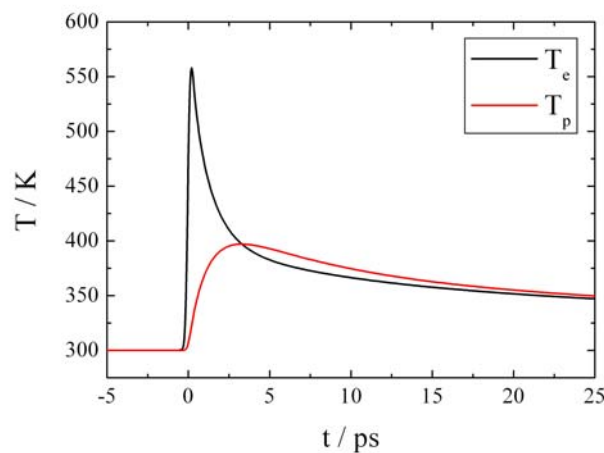


Abbildung 3.9: Lösung des Zwei-Temperatur-Modells für einen 20 nm dicken Nickelfilm auf einem Siliziumsubstrat an der Oberfläche unter Berücksichtigung der Diffusion.

Zeitentwicklung diffusiver Prozesse proportional \sqrt{t} . Daher liegt es nahe, den Abfall der Temperatur des Elektronensystem durch eine Funktion der Form $\Delta T(0) \cdot \exp(-t/\tau_{ep}) + \frac{T(\infty)}{\sqrt{1+t/\tau_d}}$ zu beschreiben. Tatsächlich liefert dieser Fit $\tau_{ep} = 1,37$ ps wie im Fall ohne Diffusion und eine charakteristische Diffusionszeit von $\tau_d = (100 \pm 1)$ ps. Der angesetzte Term ist also offensichtlich geeignet, die Diffusion zu beschreiben.

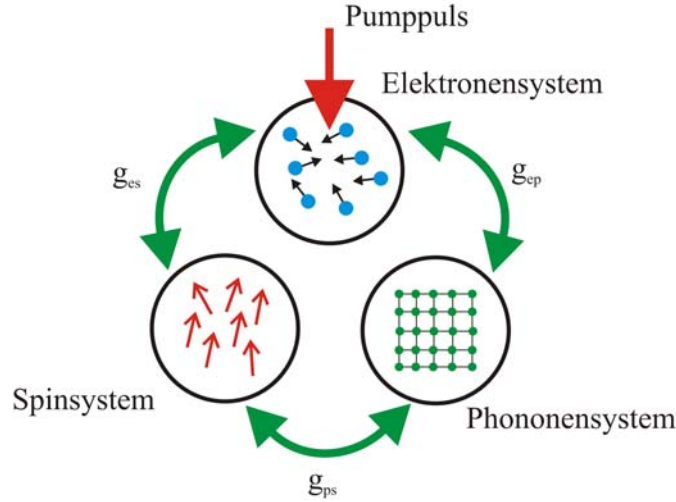


Abbildung 3.10: Schema des Drei-Temperatur-Modells.

Zur Beschreibung der ultraschnellen Entmagnetisierung wurde in der bereits erwähnten Veröffentlichung (Beaurepaire u. a. 1996) auch dem Spinsystem eine Temperatur zugewiesen und somit wurde das Modell auf ein Drei-Temperatur-Modell erweitert (vgl. Abbildung 3.10). Bei Vernachlässigung der Diffusion wird es durch folgendes Differentialgleichungssystem beschrieben:

$$\begin{aligned}
 C_e \cdot \frac{dT_e}{dt} &= g_{ep} (T_p - T_e) + g_{es} (T_s - T_e) + P(t), \\
 C_p \cdot \frac{dT_p}{dt} &= -g_{ep} (T_p - T_e) - g_{sp} (T_p - T_s), \\
 C_s \cdot \frac{dT_s}{dt} &= -g_{es} (T_s - T_e) + g_{sp} (T_p - T_s).
 \end{aligned} \tag{3.17}$$

In Abbildung 3.11 ist eine numerische Lösung des Drei-Temperatur-Modells für Nickel dargestellt. Alle Parameter aus dem Zwei-Temperatur-Modell sind wie oben angegeben. Ferner ist $\tau_{ps} = \frac{C_s}{g_{sp}} = 2$ ps und $\tau_{es} = \frac{C_s}{g_{sp}} = 0,3$ ps gewählt, wobei angenommen wird, dass $C_s \ll C_e, C_p$, so dass die Kopplung an die Spintemperatur in den ersten beiden Gleichungen von (3.17) vernachlässigt werden kann. Die Änderung der Spintemperatur sollte nun im Falle kleiner Anregungen, die eine Linearisierung von $M(T_s)$ um die Gleichgewichtstemperatur erlauben,

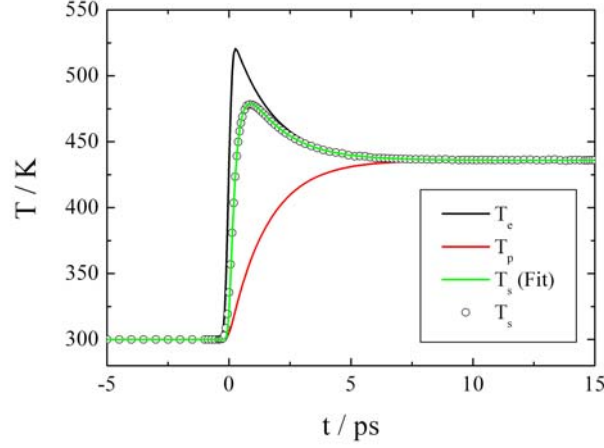


Abbildung 3.11: Numerische Lösung des Drei-Temperatur-Modells für Nickel.

proportional zur Änderung der Magnetisierung und damit auch proportional zum Einbruch des Kerrsignals sein. Zur Extraktion der Entmagnetisierungszeit ist also eine analytische Lösung des Drei-Temperatur-Modells wichtig. In dieser Arbeit wird eine näherungsweise Lösung für die Spintemperatur nach Koopmans und Dalla Longa verwendet (Koopmans. u. Dalla Longa 2006): Wie schon in der numerischen Lösung wird die spezifische Wärme des Spinsystems als so klein angenommen, dass (3.14) als näherungsweise Lösung für Elektronen- und Phonontemperatur verwendet werden kann. Damit reduziert sich (3.17) auf eine Differentialgleichung. Sie wird durch

$$\Delta T_s = \Theta(t) \cdot \left(\Delta T_e(\infty) - \frac{(\tau_{ep}\Delta T_2 - \tau_s\Delta T_1) \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) + \tau_{ep}(\Delta T_1 - \Delta T_2) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{ep}}\right)}{\tau_{ep} - \tau_s} \right) \quad (3.18)$$

gelöst. Dabei ist $\tau_s = \frac{\tau_{es}\tau_{ps}}{\tau_{es} + \tau_{ps}}$, $\Delta T_2 = \Delta T_e(0) \frac{\tau_s}{\tau_{es}}$ und $\Delta T_1 = T_e(\infty) - T_e(-\infty)$. Zur korrekteren Beschreibung des Experiments sollte diese Lösung noch mit einem Term der Form

$$\frac{P(t)}{AF} = \frac{1}{2\sqrt{\pi}\sigma} \exp(-t^2/2\sigma^2) \quad (3.19)$$

gefaltet werden. Anschließend kann zur Beschreibung der Diffusion $\Delta T_e(\infty)$ durch $\frac{\Delta T_e(\infty)}{\sqrt{1+t/\tau_d}}$ ersetzt werden¹. Diese Funktion kann in guter Übereinstimmung

¹Korrekt wäre auch eine Faltung des Diffusionsterms, die sich allerdings als schwierig erweist

an die numerische Lösung in Abbildung 3.11 gefittet werden; der Fit liefert die eingesetzten Parameter.

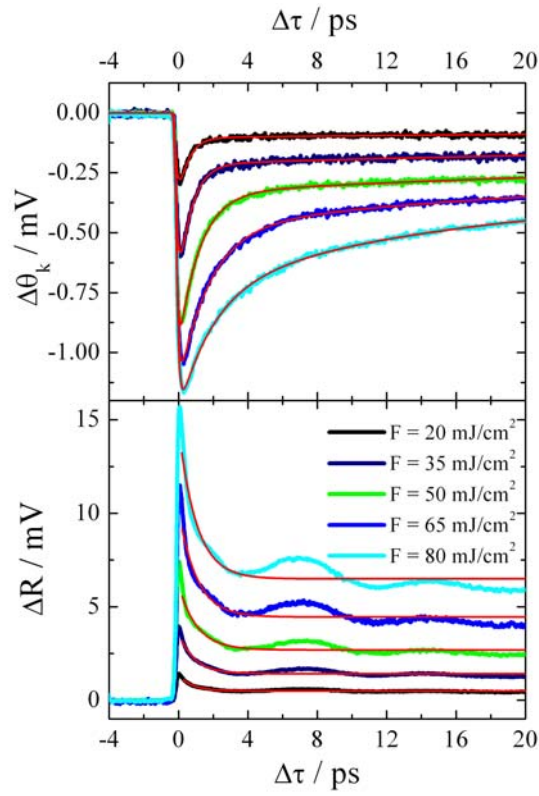


Abbildung 3.12: Änderung des Kerrwinkels und der Reflexion als Funktion der Zeit für verschiedene Pumpfluenszen, Cu(2 nm)/Ni(15 nm)/Si, mit den entsprechenden Fits (rot).

Zum Vergleich mit dem Experiment ist in Abbildung 3.12 für verschiedene Pumpfluenszen die transiente Änderung des Kerrwinkels (externes Feld in der Filmebene $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150 \text{ mT}$) und der Reflexion für einen Nickelfilm Cu(2 nm)/Ni(15 nm)/Si dargestellt. Qualitativ entsprechen die Transienten dem nach dem Drei-Temperatur-Modell erwarteten Verlauf. In den Reflexionsmessungen erkennt man die Ausbildung von stehenden Phononenwellen senkrecht zur Probenoberfläche (vgl. Guderian 2001). In Abbildung 3.13 sind die durch Anfitzen der oben angegebenen Lösung des Drei-Temperatur-Modells extrahierten Werte für τ_s und τ_{ep} angegeben. Die mit der Fluenz fallende Entmagnetisierungszeit entspricht nicht dem Drei-Temperatur-Modell, in dem die Entmagnetisierungszeit eine Materialkonstante ist. Die Remagnetisierung ist ferner nicht hauptsächlich durch die Elektronen-Phononen-Relaxationszeit bestimmt,

und, wie von Koopmans und Dalla Longa gezeigt, aufgrund der Unterschiede der Größenordnung zwischen τ_d und σ keine großen Änderungen mit sich bringt.

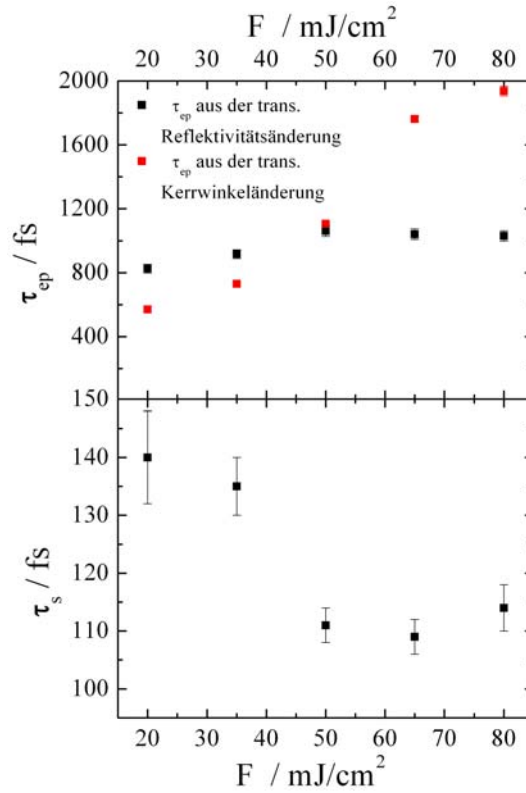


Abbildung 3.13: Aus Abbildung 3.12 extrahierte Fitparameter als Funktion der Fluenz.

wie das Drei-Temperatur-Modell suggeriert. Die aus den Reflexionstransienten bestimmte Elektronen-Phononen-Relaxationszeit ist nahezu unabhängig von der Pumpfluenz, während die nach dem Drei-Temperatur-Modell äquivalente Größe mit der Fluenz steigt (vgl. Abbildung 3.13). In mikromagnetischen Simulationen, die über einen statistischen Feldterm die Temperatur berücksichtigen, konnte gezeigt werden, dass sich die Spintemperatur deutlich schneller erholt als die Magnetisierung (vgl. Chantrell 2006). Die Ursache hierfür findet sich in Frustrationseffekten, die aus der Verdrehung der magnetischen Momente gegeneinander in der Probe resultieren. Der Grad der Frustration steigt mit der Pumpfluenz, wie auch von Djordjevic und Münzenberg gezeigt wurde (Djordjevic u. Münzenberg 2007) .

3.3.2 Induzierte magnetische Präzession

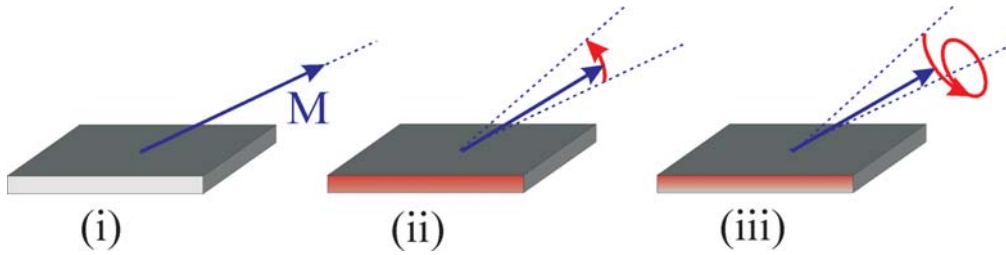


Abbildung 3.14: Schematischer Überblick über die Laser-induzierte magnetische Präzession: (i) $\Delta\tau < 0$, Gleichgewichtskonfiguration; (ii) $0 < \Delta\tau < 1$ ps, die Entmagnetisierung führt zu einem Anisotropiefeldpuls. (iii) $\Delta\tau \gg 1$ ps, nach erfolgter Remagnetisierung präzediert die Magnetisierung um die Gleichgewichtslage.

In bestimmten Konfigurationen kann durch den Pumpimpuls die uniforme magnetische Präzession eines ferromagnetischen dünnen Films induziert werden (vgl. van Kampen u. a. 2002): Falls das effektive magnetische Feld im Gleichgewicht eine Komponente senkrecht zur Filmebene besitzt, wird sich die Entmagnetisierung auf der ultraschnellen Zeitskala (vgl. z.B. 3.12) auf die Gleichgewichtskonfiguration der Magnetisierung auswirken. Die freie Energiedichte für einen dünnen Film sei gegeben durch

$$F = -\mu_0 M_s (H_{\text{ext},x} \cos \phi \sin \theta + H_{\text{ext},z} \cos \theta) + \left(\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 + \frac{K_{\text{ober}}}{2d} \right) \cos^2 \theta, \quad (3.20)$$

wobei die z -Achse senkrecht zur Filmebene gewählt ist, keine Anisotropie in der Filmebene angenommen wird und damit ohne Beschränkung der Allgemeinheit das externe Feld in der x - z -Ebene angenommen werden kann. Minimal wird die freie Energiedichte in der Gleichgewichtskonfiguration, die in linearer Näherung in $\cos \theta$ durch

$$\begin{aligned} \phi_0 &= 0, \\ \cos \theta_0 &\approx \frac{H_{\text{ext},z}}{H_{\text{ext},x} + M_s + \frac{2K_{\text{ober}}}{\mu_0 M_s d}} \end{aligned} \quad (3.21)$$

gegeben ist. Eine Änderung der Magnetisierung, die auch, wie erwähnt, mit einer noch stärkeren Änderung der Anisotropiekonstanten einhergeht, wird also in dieser Konfiguration die Gleichgewichtsrichtung der Magnetisierung ändern. Die ultraschnelle Entmagnetisierung kann also effektiv durch einen Anisotropiefeldpuls von einer Länge von wenigen Pikosekunden in der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung beschrieben werden:

$$\frac{d}{dt} \mathbf{M} = -\gamma_0 \mathbf{M} \times (\mathbf{H}_{\text{eff}} + \Delta \mathbf{H}_{\text{aniso}}(t)) - \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \frac{d}{dt} \mathbf{M}. \quad (3.22)$$

Der Puls induziert damit eine uniforme Präzession, die auch noch nach erfolgter Remagnetisierung anhält. Schematisch ist dieser Mechanismus in Abbildung 3.14 dargestellt. Zur Auswertung einer solchen Präzession können die Formeln (2.36) und (2.35) herangezogen werden. Für das angegebene Energiefunktional gewinnen sie die Form

$$\begin{aligned}\omega &\approx \gamma_0 \sqrt{H_{\text{ext},x} \left(H_{\text{ext},x} + M_s + \frac{2K_{\text{ober}}}{\mu_0 M_s d} \right)}, \\ \alpha &\approx \frac{2}{\tau \gamma_0 \left(2H_{\text{ext},x} + M_s + \frac{2K_{\text{ober}}}{\mu_0 M_s d} \right)},\end{aligned}\quad (3.23)$$

wobei wieder nur lineare Terme in $\cos \theta_0$ berücksichtigt worden sind.

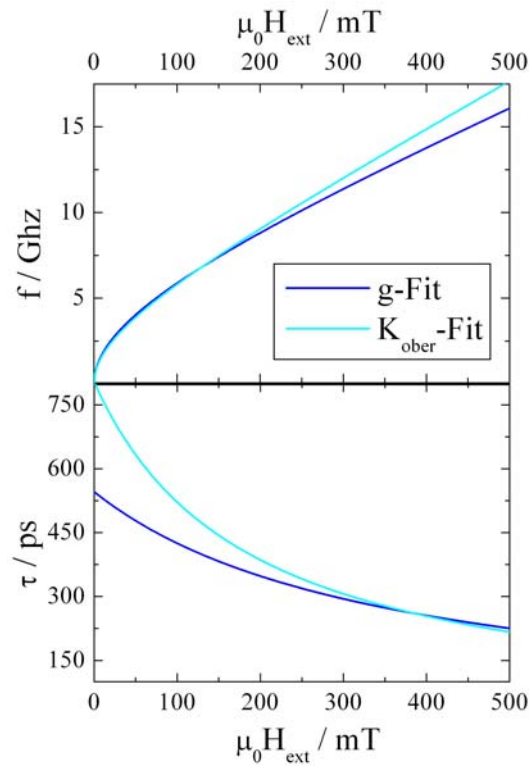


Abbildung 3.15: Feldabhängigkeit der Frequenz nach (3.23) für unterschiedliche Parameter (g -Fit: $g = 1,71$, $K_{\text{ober}} = 0$; K_{ober} -Fit: $g = 2,21$, $K_{\text{ober}}/d = -70 \cdot 10^3 \text{ J/m}^3$) und daraus mit $\alpha = 0,04$ berechnete Abklingzeit.

Experimentell kann nun die Frequenz als Funktion des angelegten Feldes bestimmt werden. Dazu werden unter Berücksichtigung des jeweiligen Remagneti-

sierungshintergrunds gedämpfte Sinusfunktionen an die gemessenen Spektren angefitet. Aus dieser Dispersion können die in (3.23) relevanten Parameter ermittelt werden, die wiederum zusammen mit der Dämpfungskonstanten der Präzession τ zur Berechnung von α herangezogen werden können. In Abbildung 3.15 ist dies für Messungen an einem Nickelfilm Cu(2 nm)/Ni(15 nm)/Si, durchgeführt. Der Winkel zwischen externem Feld und Probenoberfläche beträgt 30° . In den Frequenzfits ist eine grundsätzliche Problematik dieser Methode zu erkennen: Einmal ist die Frequenz mit der Oberflächenanisotropiekonstante angefitet und für Magnetisierung $\mu_0 M_s = 609 \text{ mT}$ (Kittel 2002, S. 478) und den Landé-Faktor $g = 2,21$ (Chikazumi 1997, S. 69) ist der Literaturwert angenommen, bei dem zweiten Fit wurde der Landé-Faktor angepasst, und es ist eine verschwindende Oberflächenanisotropie angenommen. Die beiden Funktionsverläufe stimmen in dem experimentell zugänglichen Feldbereich gut miteinander überein, erst für höhere Felder zeigt sich ein deutlicher Unterschied. In dem unteren Graphen von Abbildung 3.15 ist aus den jeweils bestimmten Parametern τ als Funktion des äußeren Feldes für $\alpha = 0,04$ berechnet. Hier zeigt sich umgekehrt eine große Diskrepanz für den unteren Feldbereich. Falls nicht eindeutig entschieden werden kann, welcher Fit sinnvoller ist, ist die experimentelle Bestimmung von α also mit einem systematischen Fehler versehen.

3.3.3 Zusammenhang zwischen Dämpfung und Entmagnetisierung

Koopmans u.a. setzen die ultraschnelle Entmagnetisierung in einen Zusammenhang mit der im vorherigen Abschnitt erwähnten Präzessionsbewegung (Koopmans u. a. 2005). Größenordnungsmäßig ist die Abklingzeit der Präzession gegeben durch $\tau \approx \frac{1}{\omega\alpha}$. Die der Veröffentlichung zugrunde liegende Idee ist, die ultraschnelle Entmagnetisierung als Gilbert-Dämpfung im Austauschfeld aufzufassen. Ein Austauschfeld der Größenordnung 1000 T liefere damit Abklingzeiten $\tau_s \approx \frac{1}{\gamma_0 H_{\text{aus}} \alpha}$ in der beobachteten Größenordnung von 100 fs. Untermuert wird diese Hypothese durch ein mikroskopisches Modell, in dem sowohl die Dämpfung als auch die Entmagnetisierung auf Elliot-Yafet-Streuung an Störstellen zurückzuführen ist. Innerhalb dieses Modells wird

$$\tau_s \propto \frac{\hbar}{k_B T_C} \frac{1}{\alpha} \quad (3.24)$$

als Zusammenhang zwischen Dämpfung und Entmagnetisierungszeit abgeleitet. Dabei ist T_C die Curietemperatur des Materials und k_B die Boltzmann-Konstante.

Ein Zusammenhang wie (3.24) wird auch von Chantrell angegeben (Chantrell 2006); wie bereits in Abschnitt 3.3.1 erwähnt, hat er über einen statistischen Feldterm in der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung die Temperatur als einen Parameter in die mikromagnetische Simulation einfließen lassen. Für das statis-

tische Feld werden folgende Korrelationen angenommen:

$$\begin{aligned}\langle H_{\text{stat}}^i(t) \rangle &= 0, \\ \langle H_{\text{stat}}^i(t) H_{\text{stat}}^j(t) \rangle &= \delta_{ij} \delta(t) \alpha k_B T M_s^2 / \gamma,\end{aligned}\quad (3.25)$$

wobei die Indizes i und j unterschiedliche Zellen bezeichnen. Für den Temperaturverlauf wird eine Lösung der Elektronentemperatur für das Zwei-Temperatur-Modell angenommen. Daraus lässt sich eine Entmagnetisierungszeit ableiten, die reziprok zu α ist.

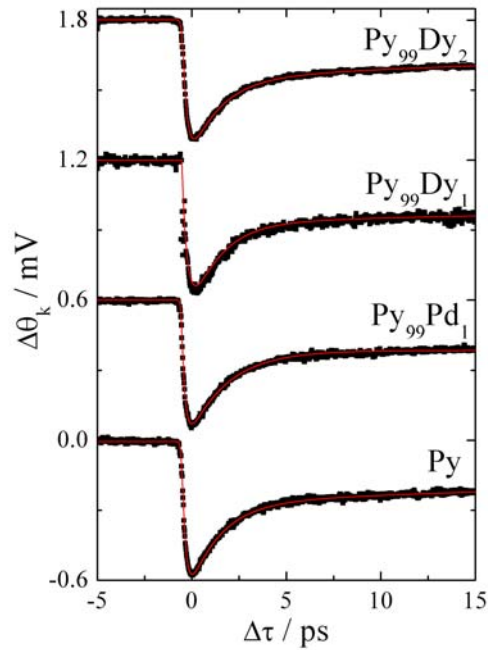


Abbildung 3.16: Laser-induzierte Entmagnetisierung von unterschiedlichen Permalloy-Legierungen (Au/PyX(12nm)/Si).

Dieser Zusammenhang wird in der vorliegenden Arbeit experimentell überprüft. Dafür wird die ultraschnelle Entmagnetisierung in Filmen von Permalloy-Metall-Legierungen (Au/PyX(12nm)/Si) gemessen ($\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150$ mT). Diese Proben weisen abhängig vom zulegierten Metall und dem Dotierungsgrad eine Veränderung der Dämpfung auf (für Probenpräparation und Bestimmung der Dämpfung: siehe Walowski 2007). Die transiente Änderung der Kerrrotation als Funktion der Zeit für die jeweiligen Proben ist in der Abbildung 3.16

dargestellt. In Abbildung 3.17 ist die Entmagnetisierungszeit, die aus den Transienten durch das Anfitzen der in Abschnitt 3.3.1 abgeleiteten Lösung des Drei-Temperatur-Modells bestimmt wird, gegen α aufgetragen. Nach 3.24 wäre hier ein mit α fallender Verlauf zu erwarten; die Messwerte zeigen aber eher den entgegengesetzten Trend, wobei die Messung an dem Py₉₉Dy₁-Film vermutlich lediglich wegen des größeren Rauschens eine deutlich langsamere Entmagnetisierung aufweist. Das Experiment an diesen Proben kann die Hypothese also nicht bestätigen.

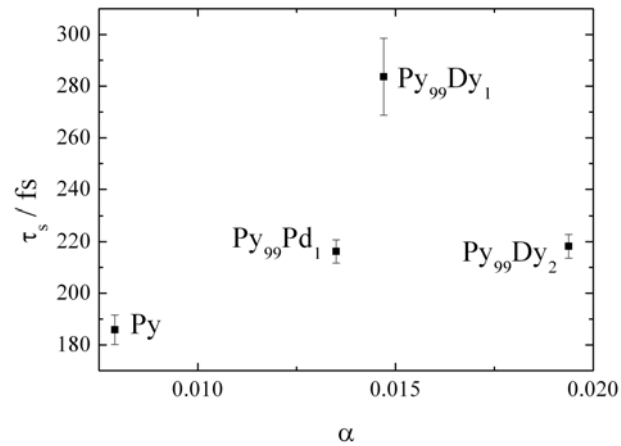


Abbildung 3.17: Entmagnetisierungszeit gegen den Gilbert-Dämpfungsparameter für verschiedene Legierungen.

Laser-induzierte Entmagnetisierung und Magnetisierungsdynamik in halbmetallischen Filmen

De Groot u.a. sagten nach theoretischen Bandstrukturberechnungen für die ferromagnetische Heusler-Legierung (vgl. Abschnitt 4.1.4) NiMnSb 1983 eine verschwindende Zustandsdichte an der Fermikante für die Minoritätsspins voraus (de Groot u. a. 1983); solche Materialien mit einer Bandlücke an der Fermikante für die eine Spinsorte und einer metallischen Zustandsdichte für die andere Spinsorte wurden von ihnen als Halbmetalle¹ klassifiziert. In Halbmetallen beträgt die Spinpolarisation an der Fermikante

$$P_0 = \frac{N_{\uparrow}(E_F) - N_{\downarrow}(E_F)}{N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F)} \quad (4.1)$$

100%, wobei $N_{\uparrow(\downarrow)}(E_F)$ die Zustandsdichte für Majoritätsspins (Minoritätsspins) an der Fermikante ist. Diese Materialklasse verspricht damit technologische Relevanz: Der Tunnelmagnetowiderstand (*Tunnel Magneto Resistance*, TMR) eines Schichtsystems Ferromagnet/Isolator/Ferromagnet hängt von der parallelen oder antiparallelen Ausrichtungen der Spins in den beiden Ferromagneten ab; der Größenunterschied des Widerstands für beide Konfigurationen ist u.a. durch die Spinpolarisation in den Ferromagneten gegeben. Die Verwendung von ferromagnetischen Halbmetallen verspricht damit eine Verstärkung dieses Effekts (vgl. z.B. Pickett u. Moodera 2001).

¹In der englischen Sprache wird diese Materialklasse als *half-metal* bezeichnet (vgl. Abbildung 4.1); sie ist nicht zu verwechseln mit den *semi-metals*, die sich lediglich durch einen kleinen Überlapp von Leitungsband und Valenzband auszeichnen. In der deutschen Sprache wird auch der Begriff *semi-metal* mit Halbmetall übersetzt. Uns ist allerdings kein anderer deutscher Ausdruck für die *half-metals* bekannt, so dass in dieser Arbeit diese durchgängig als Halbmetalle bezeichnet werden.

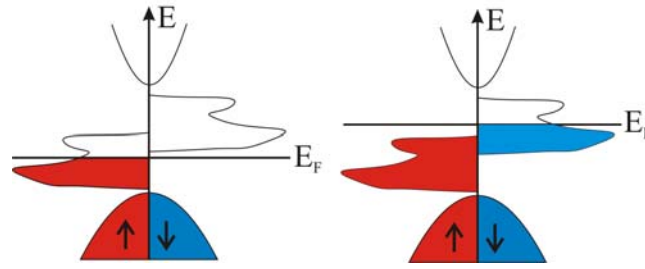


Abbildung 4.1: Schematische Spin-polarisierte Zustandsdichten eines Halbmetalls nur mit Majoritätsspins an der Fermikante und eines lediglich mit Minoritätsspins an der Fermikante.

Bei den gewöhnlichen Übergangsmetallferromagneten unterscheidet man auch zwischen starken mit vollständig polarisierten d -Bändern, wie z.B. Nickel, und schwachen Ferromagneten, wie z.B. Eisen; allerdings liegen bei diesen Metallen auch noch s -Zustände an der Fermikante vor (vgl. O’Handley 2000, S.150ff), so dass die Spinpolarisation ungefähr bei $P_0 = 40\%$ liegt (vgl. Coey u. Sanvito 2004). Nach der Benennung dieser neuen möglichen Materialklasse 1983 wurden für weitere Materialien halbmetallische Eigenschaften vorausgesagt oder experimentell bestimmt. Es hat sich, je nachdem welche Spinsorte an der Fermikante vorliegt, eine Einteilung in Klassen etabliert (vgl. z.B. Coey u. Venkatesan 2002). Diese Klassifikation ist in Tabelle 4.1 dargestellt.

| | \uparrow -Zustände an der Fermikante | \downarrow -Zustände an der Fermikante | Beispiel | Klasse |
|-----|--|--|--|------------------|
| HM | delokalisiert | - | CrO_2 | I _A |
| HM | - | delokalisiert | $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ | I _B |
| HM | lokalisiert | - | | II _A |
| HM | - | lokalisiert | Fe_3O_4 | II _B |
| THM | delokalisiert | lokalisiert | $\text{La}_{0,66}\text{Sr}_{0,33}\text{MnO}_3$ | III _A |
| THM | lokalisiert | delokalisiert | | III _B |

Tabelle 4.1: Klassifikation der Halbmetalle, die Kürzel HM und THM kennzeichnen Halbmetalle bzw. Transporthalbmetalle (vgl. Coey u. Sanvito 2004).

Es stellt sich allerdings heraus, dass der Wert der Spinpolarisation (4.1) experimentell schwierig zu bestimmen ist. Eine mögliche Methode sind Spin-polarisierte Photoemissionsmessungen, bei denen Spin-selektiv Photoelektronen detektiert werden (vgl. z.B. Dedkov u. a. 2002a und Dedkov u. a. 2002b). In Experimenten, die auf diffusiven oder ballistischen Transport basieren, sind in dem bestimmten Polarisationsgrad die Zustandsdichten mit der Fermigeschwin-

digkeit der Ladungsträger zu gewichten:

$$P_n = \frac{N_{\uparrow}(E_F)v_{\uparrow}(E_F)^n - N_{\downarrow}(E_F)v_{\downarrow}(E_F)^n}{N_{\uparrow}(E_F)v_{\uparrow}(E_F)^n + N_{\downarrow}(E_F)v_{\downarrow}(E_F)^n}, \quad (4.2)$$

wobei typischerweise $n = 1$ (ballistisch) oder $n = 2$ (diffusiv) zu wählen ist. Eine häufig verwendete Methode ist die Andreev-Reflexion an Punkt-Kontakten zu einem supraleitenden Material (Soulen u. a. 1998). In einem einfachen Bild lässt sich die der Messung zugrunde liegende Idee folgendermaßen verstehen: Im zu untersuchenden Material fließen die Elektronen in den beiden Spinkanälen. Während des Übergangs in den Supraleiter müssen die Elektronen aus den beiden Kanälen zusammen Cooper-Paare bilden, so dass der Strom in den Supraleiter durch die kleinere Zustandsdichte limitiert ist (Mazin 1999). Die in Messungen des Tunnelmagnetowiderstands ermittelte Polarisierung ist mit den entsprechenden Spin-polarisierten Tunnelwahrscheinlichkeiten gewichtet (vgl. z.B. Mazin 1999). Für ein Halbmetall nach obiger Definition ist der Polarisierungsgrad unabhängig von der Gewichtung 100%; demnach sind die verschiedenen Experimente zur Bestimmung der Spinpolarisation zur tatsächlichen Identifikation eines Halbmetalls als komplementär zu erachten. Es zeigt sich, dass für sogenannte Transporthalbmetalle mit delokalisierten Zuständen an der Fermikante für die eine Spinrichtung und stark lokalisierten Zuständen für die andere sich die Werte von P_n deutlich unterscheiden (vgl. Abschnitt 4.1.3). Solche Transporthalbmetalle finden auch in der oben eingeführten Klassifikation (vgl. Tabelle 4.1) Berücksichtigung; in ihnen liegt gewissermaßen eine Beweglichkeitslücke vor.

In der Literatur zeigen die Messungen der Laser-induzierten Entmagnetisierung von ferromagnetischen Halbmetallen (z.B. von $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ (Kise u. a. 2000) und CrO_2 (Zhang u. a. 2006)) eine um Größenordnungen langsamere Entmagnetisierung als in den gewöhnlichen Übergangsmetallferromagneten. Das Maximum der Entmagnetisierung wird nicht nach einigen 100 fs, sondern eher nach einigen 100 ps erreicht. Dies wird in den beiden Referenzen mit einer Entkopplung der Spinfreiheitsgrade von den elektronischen Freiheitsgraden begründet. In Abbildung 4.2 sind die Messergebnisse von Zhang u.a. dargestellt, die in einem ähnlichen Experiment wie dem hier verwendeten - mit allerdings deutlich geringerer Pumpfluenz von $F = 20 - 200 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$ - ermittelt worden sind. Die gemessenen Kurven zeigen einen sprunghaften Anstieg der Entmagnetisierung kurz nach $\Delta\tau = 0$. Von Zhang u.a. werden die Beobachtungen mit Hilfe der halbmetallischen Bandstruktur interpretiert: Die sprunghafte Entmagnetisierung wird nicht-thermalisierten Elektronen zugeschrieben, die im Gegensatz zu den thermalisierten Elektronen die Möglichkeit besitzen, ihren Spin umzuorientieren. Für die thermalisierten Elektronen des Majoritätsspins, deren Besetzungszahlen einer heißen Fermiverteilung entsprechen, gibt es um das Fermi-niveau herum keine entsprechenden Zustände in den Minoritätsspinbändern, so dass das Spinsystem nicht an die Elektronen im thermischen Gleichgewicht, sondern nur an das Gitter und die nicht-thermalisierten Elektronen gekoppelt ist. Belegt wird dies mit der numerischen Lösung eines um ein Bad von nicht-thermalisierten Elektronen

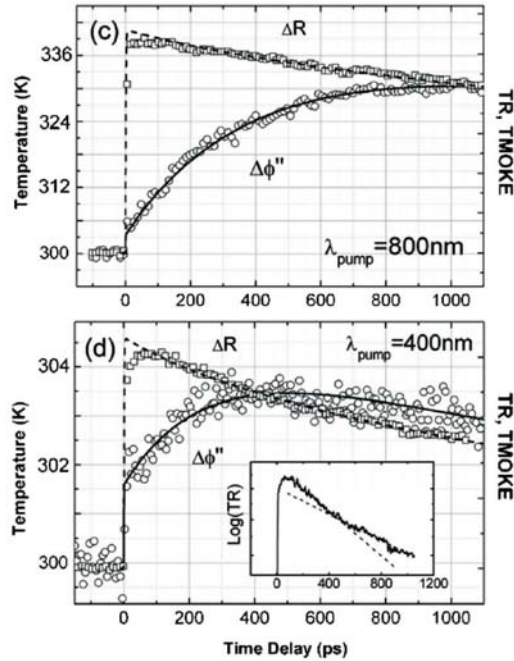


Abbildung 4.2: Ergebnisse von Zhang u.a. (Zhang u. a. 2006).

erweiterten Drei-Temperatur-Modells mit $g_{es} = 0$, das die gemessene Spindynamik widerspiegelt. Ferner konnte gezeigt werden, dass durch einen Frequenzverdoppelten Pumpuls die Magnetisierungsdynamik beschleunigt wird, da laut Zhang u.a. aufgrund des kurzwelligeren Lichts ($\hbar\omega = 3,1 \text{ eV}$) auch Anregungen der Minoritätsspins jenseits der Bandlücke von $1,8 \text{ eV}$ möglich werden.

In diesem Kapitel der Arbeit soll die Laser-induzierte Entmagnetisierung von unterschiedlichen Proben untersucht werden: CrO_2 (Abschnitt 4.1.1), Fe_3O_4 (Abschnitt 4.1.2), $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ (Abschnitt 4.1.3) und Co_2SiMn (Abschnitt 4.1.4). Diesen Materialien ist gemein, dass sie theoretischen Berechnungen nach halbmetallischen oder transporthalbmetallischen Charakter aufweisen. Der tatsächlich erreichte Polarisationsgrad weicht allerdings für einige der Proben deutlich von 100% ab. Die Untersuchung hat zum Ziel aufzuzeigen, inwieweit diese langsame Entmagnetisierung gemäß der Interpretation von Zhang u.a. tatsächlich Halbmetalle kennzeichnet und daher eventuell zur Überprüfung des halbmetallischen Charakters herangezogen werden kann.

Darüber hinaus wird in Abschnitt 4.2 die präzessionelle Magnetisierungsdynamik des Chromdioxidfilms untersucht. Seine magnetische Anisotropie ermöglicht nämlich eine kohärente Rotation der Magnetisierung, die eine Untersuchung der Richtungsabhängigkeit der magnetischen Dämpfung ermöglicht.

4.1 Laser-induzierte Entmagnetisierung in Halbmetallen

4.1.1 CrO₂

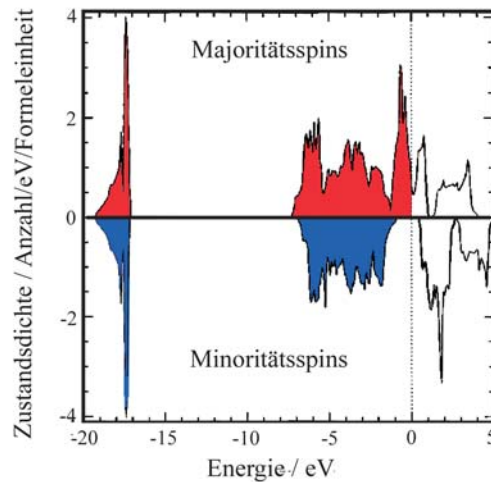


Abbildung 4.3: Theoretische Zustandsdichte von Chromdioxid (aus Lewis u. a. 1997).

Chrom(IV)oxid ist das einzige bekannte Metalloxid, das sich bei Raumtemperatur ferromagnetisch ordnet (O’Handley 2000, S. 691f). Ein guter Überblick über sämtliche physikalischen Eigenschaften findet sich in einer Veröffentlichung von Coey und Venkatesan (Coey u. Venkatesan 2002). Seine halbmetallische Eigenschaft mit einer metallischen Zustandsdichte für die Majoritätsspins und einer Bandlücke an der Fermikante für die Minoritätsspins (Klasse I_A (Coey u. Sanvito 2004)) wurde 1986 nach einer selbstkonsistenten Bandstrukturberechnung mittels lokaler Spindichtennäherung vorhergesagt (Schwarz 1986). In Abbildung 4.3 ist die Zustandsdichte nach einer späteren Berechnung (Lewis u. a. 1997), ebenfalls in lokaler Spindichtennäherung, dargestellt. Die 2s-Niveaus des Sauerstoffs liegen bei -17 eV. Die Zustände mit hauptsächlich 2p-Charakter des Sauerstoffs von -7 eV bis -1 eV gehen eine kovalente Bindung mit den durch die Austauschwechselwirkung aufgespaltenen 3d-Niveaus des Chroms ein, so dass durch die Aufspaltung in bindende und anti-bindende Niveaus eine Lücke in der Zustandsdichte der Minoritätsspins entsteht. Die Bandlücke beträgt 1,8 eV (Lewis u. a. 1997). Erste experimentelle Bestätigung der theoretischen Vorhersagen lieferte Spin-aufgelöste Photoemissionsspektroskopie (Kämper u. a. 1987). Aus Andreev-Reflexion an Punktkontakten konnte eine Spinpolarisation an der Fermi-Kante von $P = (96 \pm 1)\%$ (Ji u. a. 2001) ermittelt werden; in einem späteren Spin-aufgelösten Photoemissionsexperiment wurde $P = 95\%$ bei Raumtemperatur ge-

messen (Dedkov u. a. 2002a). In Punkt-Kontakt-Andreev-Reflexionsmessungen konnte eine Spinpolarisation von $P = 98,4\%$ bestimmt werden (Anguelouch u. a. 2001).

Der in dieser Arbeit untersuchte $\text{CrO}_2(100)$ -Film wurde an der Universität von Alabama, Tuscaloosa, in der Arbeitsgruppe von Professor Arunava Gupta mittels chemischer Gasphasenabscheidung auf einem monokristallinem $\text{TiO}_2(100)$ -Substrat (Rutil) präpariert (vgl. z.B. Miao u. a. 2005). Vor dem Wachstum wird das Substrat mit organischen Lösungsmitteln und verdünnter Flusssäure gereinigt. Der Reaktor besteht aus einer Quarzröhre in einem Zwei-Zonen-Ofen. In der ersten Zone wird das Substrat auf 400°C erhitzt, während in der zweiten Zone festes CrO_3 bei einer Temperatur von ungefähr 260°C sublimiert. Als Trägergas wird Sauerstoff mit einem Volumenstrom von $1,8 \frac{\text{mbar l}}{\text{s}}$ verwendet. CrO_2 hat dieselbe Gitterstruktur wie das Substrat: Das Rutilgitter besteht aus einem tetragonalen Bravaisgitter mit zwei Formeleinheiten pro Einheitszelle. Die Gitterfehlpassung in der Wachstumsebene ist anisotrop: $a_{\text{CrO}_2} = 4,421 \text{ \AA}$ und $c_{\text{CrO}_2} = 2,916 \text{ \AA}$ (Chamberland 1977), während $a_{\text{TiO}_2} = 4,594 \text{ \AA}$ und $c_{\text{TiO}_2} = 2,959 \text{ \AA}$ (Grant 1959). Dies führt zu unterschiedlicher Verspannung des Films in den einzelnen Kristallrichtungen, die über die magneto-elastische Wechselwirkung auch die uniaxiale magnetische Anisotropie beeinflusst. Die elastische, sowie die magnetische Anisotropie werden in Abschnitt 4.2 im Zusammenhang mit der Untersuchung der präzessionellen Dynamik des Films erläutert. Die magnetischen Eigenschaften dieser Filme sind vielfältig untersucht worden. In Squid-Messungen wurde die Curietemperatur zwischen $T_C = 390 \text{ K}$ und

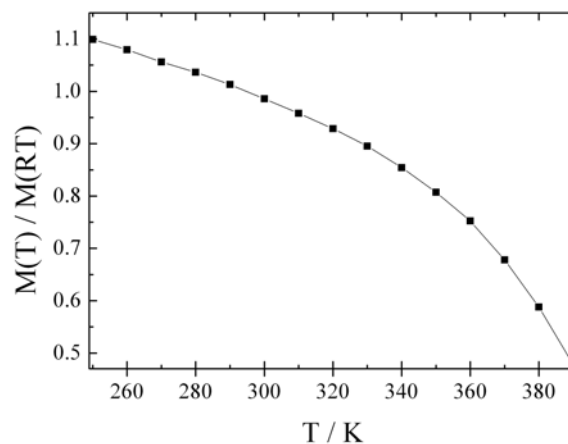


Abbildung 4.4: Sättigungsmagnetisierung des $\text{CrO}_2(300 \text{ nm})$ -Films als Funktion der Temperatur, experimentell bestimmt mit einem Squid-Magnetometer.

$T_C = 395$ K bestimmt, sowie eine Sättigungsmagnetisierung von $\mu_0 M_s = 817$ mT für sehr kleine Temperaturen und von $\mu_0 M_s = 603$ mT für Raumtemperatur ermittelt, was nahezu dem theoretisch erwarteten und im Volumenkristall gemessenen Moment von $2\mu_B$ pro Chrom-Atom entspricht (Li u. a. 1999).

Um die Laser-induzierte Änderung der Magnetisierung einer Temperatur des Spinsystems zuordnen zu können, wird in einer SQUID-Messung die Magnetisierung der Probe bei einem Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 100$ mT als Funktion der Temperatur bestimmt (Abbildung 4.4). Für die optischen Experimente wurde ausschließlich ein 300 nm dicker Film verwendet.

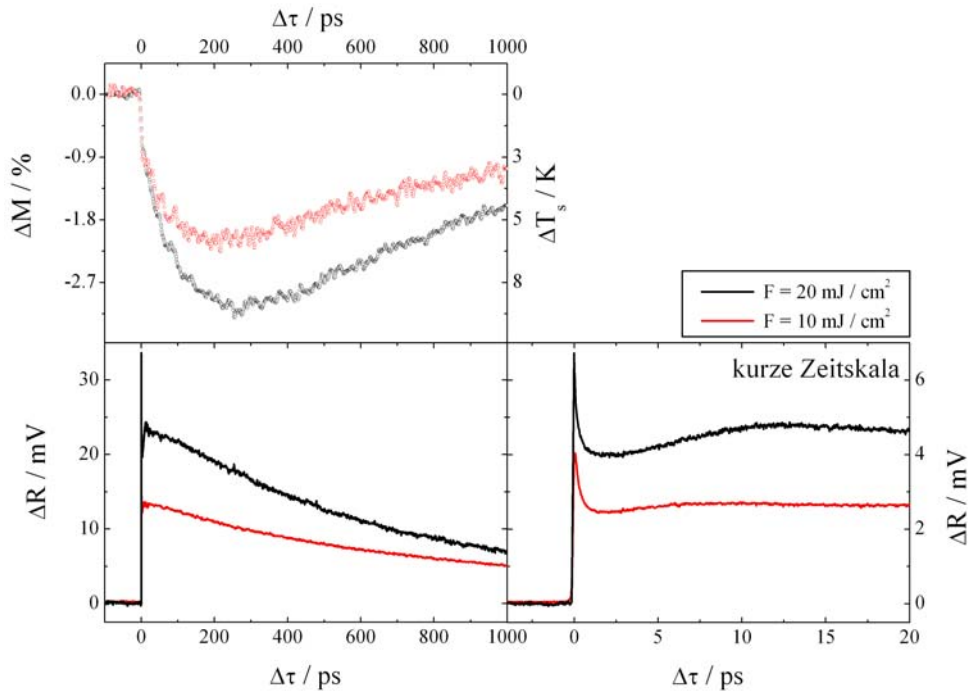


Abbildung 4.5: Laser-induzierte Entmagnetisierung und transiente Reflektivitätsänderung von CrO₂(300 nm).

Zur Bestimmung der Laser-induzierten Entmagnetisierung des CrO₂-Films wird die zeitaufgelöste Kerrmessung mit der magnetisch leichten Achse der Probe in Richtung des angelegten Feldes durchgeführt. In Abbildung 4.5 ist die Änderung des Kerrsignals als Funktion der Verzögerung zwischen Pump- und Abfragepuls dargestellt, wobei mittels Hysteresemessungen sowohl die relative Änderung der Magnetisierung als auch die Temperaturänderung des Spinsystems an der Abszisse aufgetragen werden können (siehe unten). Als Pumpfluenz für diese Messungen sind $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ und $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ gewählt. Diese Variation der Fluenz hat keine großen Auswirkungen auf den Verlauf dieser Kurve, verschiebt allerdings das Entmagnetisierungsmaximum zu etwas größeren Verzögerungen.

rungszeiten hin. Die maximale Entmagnetisierung findet zwischen 200 ps und 300 ps statt, wobei dieses Minimum sehr breit ist. Im Vergleich liegt das sehr scharfe Entmagnetisierungsmaximum von Nickel bei ungefähr 300 fs (vgl. Abbildung 3.12).

Die Frequenzverdopplung im Experiment von Zhang u.a. (vgl. Abbildung 4.2) geht offensichtlich mit einer deutlichen Reduktion der Pumpfluenz einher, welche auch hier ohne Frequenzverdopplung die Dynamik beschleunigt (vgl. Abbildung 4.5). Dies ist vermutlich auf die höhere Gleichgewichtstemperatur bei höherer Fluenz (s.u.) zurückzuführen, die gemäß der Theorie der Phasenübergänge zu einer langsameren Relaxation des Spinsystems führt (Kise u. a. 2000). Die Tatsache, dass die langsame Entmagnetisierung durch die Frequenzverdopplung sich nicht qualitativ verändert hat, ist im Übrigen ein Indiz dafür, dass in der Laser-induzierten Dynamik gemäß des Drei-Temperatur-Modells die nicht-thermalisierten Elektronen eine untergeordnete Rolle spielen. Die Anzahl der photonisch angeregten Elektronen wäre ja auch, wie bereits erwähnt, viel zu gering, um im ausreichenden Umfang zur Entmagnetisierung beizutragen (vgl. Koopmans 2003, S. 281f). Daher werden in diesem Kapitel, falls die Energie der Photonen des Pumpimpulses größer als die zu erwartende Bandlücke ist, wie es bei einigen der in diesem Kapitel untersuchten Materialien der Fall ist, elektronische Anregungen über die Bandlücke hinaus nicht als einer die Magnetisierungsdynamik wesentlich beschleunigender Faktor berücksichtigt.

Die transiente Reflexionsänderung dieses Films (Abbildung 4.5) zeigt weder qualitativ noch quantitativ eine Abhängigkeit von der Pumpfluenz. Es gibt sowohl Relaxation auf einer Zeitskala von 1 ps als auch von einigen 100 ps, wobei erstere Zeitskala bei Zhang u.a. keine Beachtung findet (vgl. Abbildung 4.2). Der Abfall auf der kurzen Zeitskala ist nach den Überlegungen zum Drei-Temperatur-Modell (vgl. Abschnitt 3.3.1) durch die Elektronen-Phononen-Relaxation gegeben. Die Tatsache, dass die Entmagnetisierung nicht innerhalb dieser Relaxation abgeschlossen ist, ist ein deutliches Indiz für die Entkopplung des Elektronensystems von dem Spinsystem. Ein Exponentialfit an den Abfall der Reflexionsänderung auf der kurzen Zeitskala liefert eine Elektronen-Phononen-Relaxationszeit von $\tau_{ep} \approx 200$ fs. Damit relaxieren Elektronen und Gittersystem vier- bis fünfmal schneller als in Nickel (vgl. Abbildung 3.13). Im Rahmen der Lösung des Zwei-Temperatur-Modells (3.14) wird diese Relaxationszeit mit $\tau_{ep} = \frac{C_e C_p}{g_{ep}(C_e + C_p)} \approx \frac{C_e}{g_{ep}}$ angegeben, wobei die letzte Näherung für $C_e \ll C_p$ gilt. Daraus folgt eine ähnlich große Kopplungskonstante zwischen Elektronen- und Phononensystem wie bei Nickel von $g_{ep} \approx 6 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \text{K}}$, wobei $C_e = 410 \frac{\text{J}}{\text{m}^3 \text{K}^2} \cdot 300 \text{ K}$ angenommen ist (Lewis u. a. 1997). Von Hohlfeld wird zur Abschätzung der Elektron-Phonon-Konstante ein analytischer Ausdruck genannt, der der Proportionalität $g_{ep} \propto n_e \rho$ genügt (Hohlfeld 1998, S. 13f). Dabei ist n_e die Ladungselektronendichte und ρ der spezifische Widerstand des Materials. Der spezifische Widerstand von Chromdioxid beträgt bei Raumtemperatur $\rho_{\text{CrO}_2} = 250 \mu\Omega \text{ cm}$ (Lewis u. a. 1997), während der Wert für Nickel bei

$\rho_{\text{Ni}} = 7,8 \mu\Omega \text{ cm}$ (Gray 1972) liegt. Die schlechtere Leitfähigkeit von Chromdioxid wird also durch die ebenfalls um Größenordnungen niedrigere Elektronendichte kompensiert. Die zweite Zeitskala der elektronischen Relaxation ist eindeutig der Diffusion zuzuordnen. Die charakteristische Diffusionslänge beträgt $x = \sqrt{Dt}$ mit $D = \frac{K}{C} = \frac{v\lambda}{3}$, wobei v die mittlere Geschwindigkeit und λ die mittlere freie Weglänge der Teilchen ist, die die Wärme transportieren (vgl. Hohlfeld 1998, S. 20ff). Damit folgt $t = \frac{3x^2}{v\lambda}$, so dass mit einer mittleren Elektronengeschwindigkeit von $v \approx 1,5 \cdot 10^5 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ und einer mittleren freien Weglänge bei Raumtemperatur von $\lambda = 14 \text{ \AA}$ (beide Größen aus Lewis u. a. 1997) thermische Diffusion aus dem Bereich der optischen Eindringtiefe $x = 2\delta \approx 120 \text{ nm}$ (optische Konstanten aus Chase 1974) auf einer Skala von ungefähr 200 ps stattfindet. Dies deckt sich mit dem experimentellen Befund. Die Annahme, dass vornehmlich die Elektronen die Wärme über ihre Stöße transportieren, folgt aus einem Vergleich der Größenordnungen von Fermigeschwindigkeit und Schallgeschwindigkeit der Phononen (vgl. Hohlfeld 1998, S. 21).

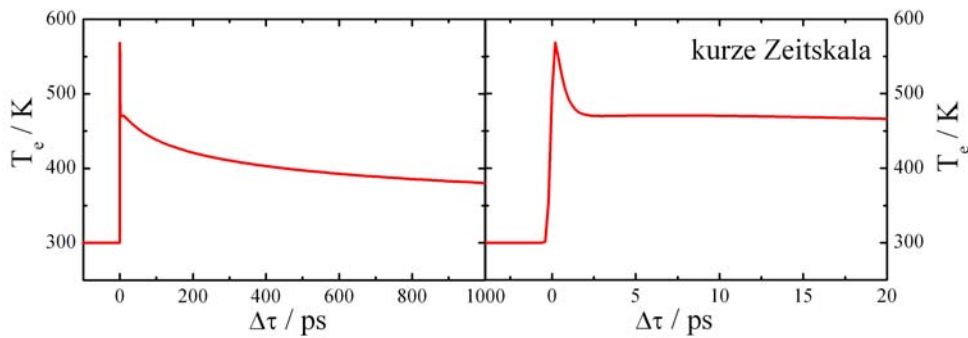


Abbildung 4.6: Transiente Elektronentemperatur von CrO_2 im Zwei-Temperatur-Modell.

In Abbildung 4.6 ist die mittels eines Zwei-Temperatur-Modells, das auch die Diffusion berücksichtigt, berechnete transiente Elektronentemperatur 50 nm unterhalb der Oberfläche dargestellt. Neben den bereits angegebenen Parametern wird eine absorbierte Laserfluenz von $A \cdot F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ angenommen. Die spezifische Wärme wird nach $C_e = \gamma T_e = 410 \frac{\text{mJ}}{\text{m}^3 \text{K}^2} T_e$ (Lewis u. a. 1997) und die spezifische Temperatur des Gitters nach der Regel von Dulong-Petit berechnet. Das Ergebnis zeigt bezüglich des Abfalls auf zwei Zeitskalen qualitative Übereinstimmung mit Abbildung 4.5.

Die Tatsache, dass die Remagnetisierung auf der Zeitskala der thermischen Diffusion stattfindet (vgl. Abbildung 4.5), erschwert natürlich die Extraktion der relevanten Zeitskalen gemäß des Drei-Temperatur-Modells. Ein sinnvolles Anpassen der in Abschnitt 3.3.1 angegebenen Lösung des Drei-Temperatur-Modells ist nicht möglich.

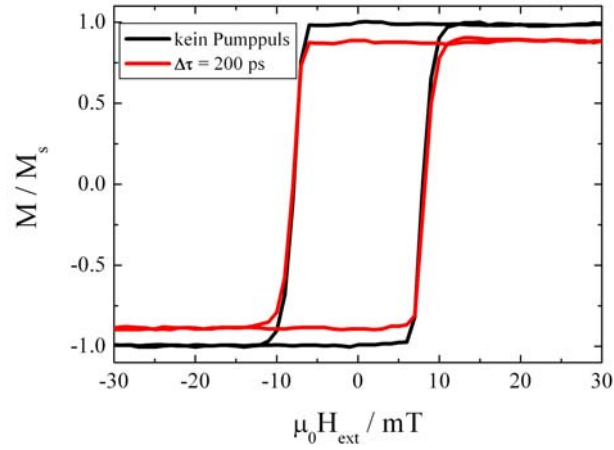


Abbildung 4.7: Kerr-Hysteresekurven des $\text{CrO}_2(300 \text{ nm})$ -Films mit und ohne Pumpuls, $F = 28,5 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$.

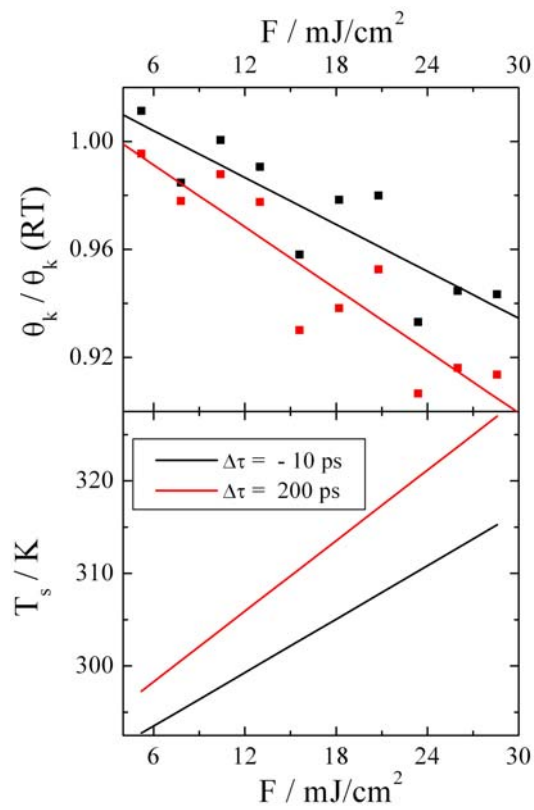


Abbildung 4.8: Kerrsignal, sowie Spintemperatur bei $\Delta\tau = -10 \text{ ps}$ und $\Delta\tau = 200 \text{ ps}$ im $\text{CrO}_2(300 \text{ nm})$ -Film als Funktion der Fluenz.

Ferner ist in Abbildung 4.8 die Reduktion des Kerrsignals in Sättigung bei Pump-Abfrage-Verzögerungen von $\Delta\tau = -10$ ps und $\Delta\tau = 200$ ps in Relation zu Messungen mit geblocktem Pumpuls als Funktion der Fluenz aufgetragen. Damit zeigt sich, dass schon für geringe Fluenzen die Probe so aufgeheizt wird, dass die Wärme nicht innerhalb der Zeit zwischen zwei Pulsen von ungefähr $4 \mu\text{s}$ aus dem vom Abfragepuls erfassten Bereich herausdiffundieren kann und so die Raumtemperaturmagnetisierung nicht erreicht wird. Tatsächlich findet Diffusion über eine Länge von $10 \mu\text{m}$ - in das Substrat oder lateral aus dem Laserspot heraus - nach obigem Zusammenhang bereits auf einer Zeitskala von $1,43 \mu\text{s}$ statt. Exemplarische Hysteresemessungen mit und ohne Pumpuls sind in Abbildung 4.7 gezeigt. Dies bedeutet aber, dass bei höheren Fluenzen das Experiment effektiv bei einer höheren Umgebungstemperatur stattfindet. Über einen Vergleich mit der Sättigungsmagnetisierung als Funktion der Temperatur (Abbildung 4.4) kann der Entmagnetisierung eine Temperatur zugeordnet werden (vgl. Abbildung 4.8).

4.1.2 Fe_3O_4

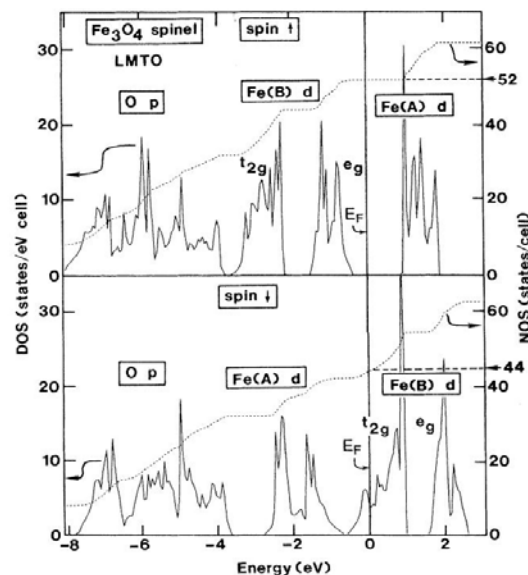


Abbildung 4.9: Theoretisch berechnete Zustandsdichte von Fe_3O_4 (aus Zhang u. Satpathy 1991).

Magnetit Fe_3O_4 , genauer $(\text{FeO}) \cdot (\text{Fe}_2\text{O}_3)$, ist das erste den Menschen als magnetisch bekannte Material (vgl. Chikazumi 1997, S. 204). Magnetit liegt in der Hochtemperaturphase in der Spinel-Kristallstruktur vor. In einem Untergitter dieser Struktur ordnen sich Fe^{3+} -Ionen ferromagnetisch, während ein weiteres

Untergitter von wieder für sich ferromagnetisch geordneten Fe^{2+} - und Fe^{3+} -Ionen besetzt ist, das sich antiferromagnetisch zu ersterem ausrichtet. Daraus resultiert ein magnetisches Moment von $4\mu_{\text{B}}$ pro Formeleinheit (vgl. Zhang u. Satpathy 1991). Die Elektronen können sich gut zwischen den unterschiedlich geladenen Ionen des zweiten Untergitters bewegen, so dass das Magnetit für ein Oxid einen recht niedrigen Widerstand hat. Unterhalb einer Temperatur von 125 K wechselt Magnetit zu einer Kristallstruktur niedrigerer Symmetrie, was mit einem Einbruch der Leitfähigkeit verbunden ist. Diese Transformation wird nach dem Entdecker als Verwey-Übergang bezeichnet (vgl. Chikazumi 1997, S. 204f). Die Curietemperatur liegt bei $T_{\text{C}} = 858 \text{ K}$ (Moussy u. a. 2004).

Theoretischen Bandstrukturberechnungen zufolge ist Fe_3O_4 in der Hochtemperaturphase halbmetallisch (vgl. Abbildung 4.9) mit ausschließlich lokalisierten Minoritätsspins an der Fermikante (Klasse II_B (Coey u. Sanvito 2004)); die Zustandslücke im Majoritätsband beträgt ungefähr 1,3 eV (Yanase u. Siratori 1984, Zhang u. Satpathy 1991). Mittels Spin-polarisierter Photoemission wurde bei Raumtemperatur $P = -(80 \pm 5) \%$ ermittelt (Dedkov u. a. 2002b).

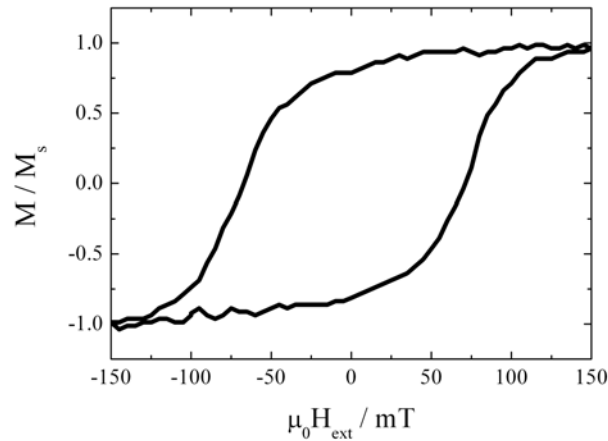


Abbildung 4.10: Kerrmessung der Hysterese von Fe_3O_4 , $d = 25 \text{ nm}$.

Die hier vorliegenden Proben wurden in der Arbeitsgruppe für die Physik und die Chemie von Oberflächen und Grenzflächen in der Abteilung für Festkörperforschung des französischen Kommissariats für Kernenergie (CEA/DRECAM/SPCSI) bei Paris mittels Sauerstoff-Plasma-unterstützter Molekularstrahlepitaxie präpariert. Als Substrat wird ein $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ -Einkristall verwendet; das Wachstum erfolgt in (111)-Richtung (weitere Details zur Probenpräparation in Ramos u. a. 2006). Diese Filme weisen ein hohes Koerzitivfeld von 10 bis 50 mT auf, das von der Filmdicke abhängt und auf Antiphasengrenzen (Grenze zwischen Ordnungsdomänen mit unterschiedlich besetzten Untergittern) zurückgeführt wird (Moussy u. a. 2004). Ferner liegt die Sättigungsmagnetisierung un-

ter dem Wert für den Volumenkristall: sie variiert ebenfalls mit der Filmdicke von 62% (5 nm) bis 78% (50 nm) von $4\mu_B$. Die vorliegenden Filme haben nominelle Dicken von 15 nm, 25 nm und 50 nm; eine Kerrhysteresemessung ohne Pumpuls für den 25 nm dicken Film findet sich in Abbildung 4.10. Die opti-

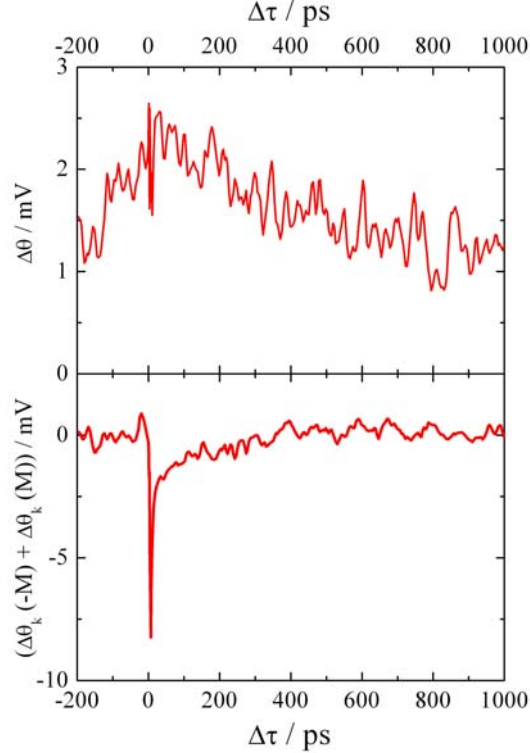


Abbildung 4.11: Transiente Messung der Änderung der Kerrdrehung für den $\text{Fe}_3\text{O}_4(15 \text{ nm})$ -Film.

schen Eigenschaften dieser Filme sind äußerst ungünstig für das Experiment: So wird das reflektierte Licht aufgrund der Rauigkeit sehr stark gestreut; ferner ist die Elektronendichte sehr niedrig, so dass auch die gemessene Kerrdrehung sehr klein ist. Während statische Messungen noch zufriedenstellende Ergebnisse liefern, weisen die zeitaufgelösten Messungen ein äußerst starkes Rauschen auf. Aufgrund der Streuung werden die Messergebnisse mit der Filmdicke deutlich schlechter. Die besten Ergebnisse werden für den dünnsten Film in longitudinaler Konfiguration - wegen der hohen Curietemperatur - mit einer Pumpfluenz von $F = 50 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ erzielt. Die Messung erfolgte in einem externen Feld $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150 \text{ mT}$. In Abbildung 4.11 ist die Summe und die Differenz der Transienten für beide Feldrichtungen dargestellt. Die Summe, die nach (3.8) der transienten Reflexionsänderung entsprechen sollte, zeigt eine relativ schnelle Dynamik von einigen Pikosekunden. Ein Exponentialfit liefert eine Elektronen-

Phonon-Relaxation von 6 ps. In der Differenz, die die Dynamik des Spinsystems widerspiegeln sollte, ist für negative Verzögerungszeiten ein Anstieg des Kerrwinkels mit der Zeit zu erkennen, für positive Verzögerungszeiten ein langsamer Abfall. Die Interpretation, dass das innerhalb von $4 \mu\text{s}$ noch nicht relaxierte Spinsystem durch einen erneuten Pumpimpuls angeregt wird, liegt nahe. Demnach wäre das Maximum erst nach einigen 100 ns erreicht. Eine längere Verzögerungsstrecke im Aufbau wäre wünschenswert, um diese Vermutung zu überprüfen. Transiente Reflexionsmessungen nur mit Pumpimpulsmodulation liefern ebenso wie Hystereseexperimente mit Pumpimpuls keine auswertbaren Ergebnisse. Damit kann hier nur zusammenfassend festgestellt werden, dass die vorliegenden Messungen auf eine schnelle Elektronendynamik auf der Pikosekenskala, aber auf eine davon entkoppelte deutlich langsamere Spindynamik hindeuten, die Messdaten aber keine eindeutige Interpretation zulassen.

4.1.3 $\text{La}_{0,66}\text{Sr}_{0,33}\text{MnO}_3$

Manganatperowskite vom Typ $(\text{SE})_{1-x}(\text{EA})_x\text{MnO}_3$, wobei SE für ein dreiwertiges Seltenes-Erd-Metall und EA für ein zweiwertiges Erdalkalimetall steht, stellen eine interessante Materialklasse dar: einige dieser Verbindungen zeigen bei Temperaturerniedrigung einen Übergang vom Isolator zum Metall, verbunden mit einem Wechsel von einer paramagnetischen in eine ferromagnetische Phase (vgl. Jonker u. Santen 1950), was zu einem negativen Magnetowiderstand, dem so genannten *Colossal Magneto Resistance* (CMR) führt (vgl. von Helmholt u. a. 1993). Die Leitfähigkeit dieser Materialien ist also an die Magnetisierung oder auch an das äußere Magnetfeld gekoppelt. In dieser Arbeit können die Ursachen dieser Effekte nicht weiter besprochen werden, ein guter Überblick findet sich allerdings in der Literatur (Samwer 1999).

In Spin-polarisierten Photoemissionsexperimenten konnte 1998 ein Polarisationsgrad von 100% in $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ nachgewiesen werden (Park u. a. 1998). In Punkt-Kontakt-Andreev-Reflexionsexperimenten wurde allerdings 2001 gezeigt, dass in Einklang mit theoretischen Berechnungen (Pickett u. Singh 1996) lokalisierte Minoritätszustände an der Fermikante vorhanden sind ($P_0 = 36\%$), aber aufgrund der Lokalisierung dieser Zustände in auf Transport basierenden Experimenten eine deutlich höhere Spinpolarisation gemessen wird ($P_1 = 76\%$, $P_2 = 96\%$) (Nadgorny u. a. 2001). $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ wird damit als Halbmetall der Klasse III_A eingeordnet und kann als Transporthalbmetall bezeichnet werden (Coe u. Sanvito 2004).

Der für diese Arbeit vorliegende, nominell 55 nm dicke, auf einem $\text{MgO}(100)$ -Substrat epitaktisch gewachsene $\text{La}_{0,66}\text{Sr}_{0,33}\text{MnO}_3$ -Film (LSMO) wurde in der Arbeitsgruppe von Professor K. Samwer am I. Physikalischen Institut der Universität Göttingen präpariert. Die zur Probenherstellung verwendete Methode wird als metallorganische Aerosol-Abscheidung (*metallorganic aerosol deposition*, MAD) bezeichnet. Hierbei wird ein Aerosol aus trockener Luft und in Dimethylformamid gelösten Metallacetylacetonaten in einem molaren Verhältnis

von $[\text{La}(\text{AA})_3]_{0.67} : [\text{Sr}(\text{AA})_2]_{0.33} : [\text{La}(\text{AA})_2]_1$ erzeugt und zu dem Substrat mit einer Temperatur von $T = (650 - 700)^\circ\text{C}$ transferiert. Die mittels Röntgendiffraktometrie ermittelte Gitterkonstante $c = 0.388\text{ nm}$ stimmt mit dem Wert für einen Volumenkristall überein. Die auf diese Weise präparierten Filme zeigen einen Metall-Isolator-Übergang bei $T_{\text{MI}} \approx 350\text{ K}$ (Moshnyaga u. a. 1999).

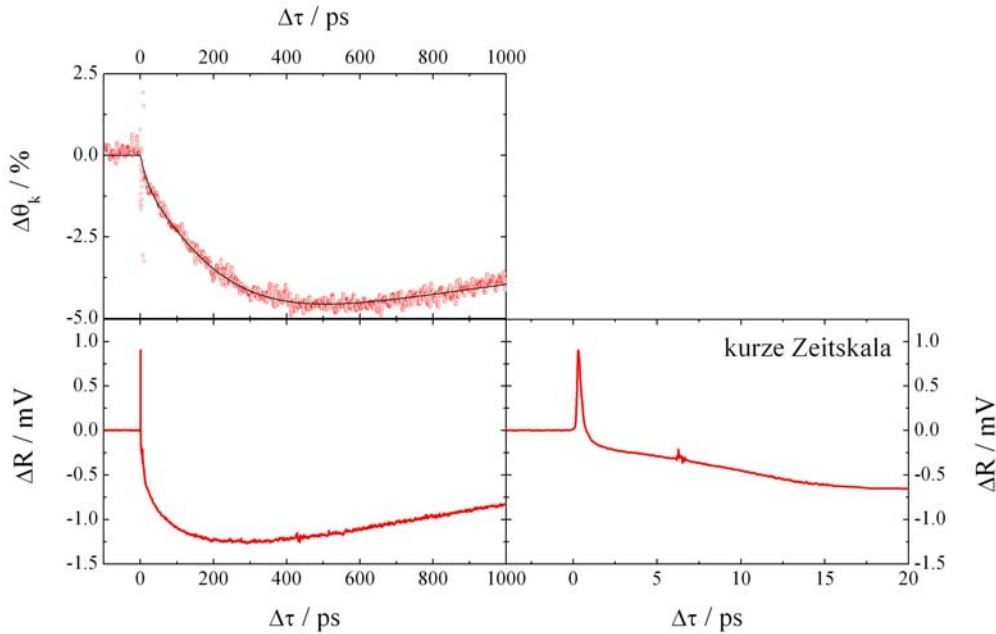


Abbildung 4.12: Laser-induzierte Entmagnetisierung und transiente Reflexionsänderung des LSMO-Films, $d = 55\text{ nm}$.

Die Messung der transienten Kerrdrehung ist in Abbildung 4.12 dargestellt. Sie erfolgte in longitudinaler Konfiguration. Die Pumpfluenz beträgt $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$, die Kerrdrehung wird wieder durch Differenzbildung der Messungen für $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150\text{ mT}$ bestimmt. Diese Messung zeigt deutliche Ähnlichkeit zu der entsprechenden Messung für Chromdioxid (vgl. Abbildung 4.5). Die maximale Entmagnetisierung erfolgt hier allerdings erst nach 400 bis 600 ps². Die Entmagnetisierung im Vergleich zu negativen Pump-Abfrage-Verzögerungszeiten liegt bei 4,5% und im Vergleich zu Hysteresemessungen ohne Pumpimpuls bei 7% (vgl. exemplarische Hystereseschleifen in Abbildung 4.13). Also kann auch hier, wie im Fall von Chromdioxid, in der Zeit zwischen zwei Pulsen nicht die ganze Wärme aus dem relevanten Bereich herausdiffundieren. Die transiente Änderung der Re-

²Den Einfluss der Zeitaufösung zeigt ein Vergleich mit der Veröffentlichung von Weber u. a.; ihre im Nullfeld bei einer Pulslänge von 8 ps ermittelten Daten zeigen eine deutlich veränderte Entmagnetisierungskurve (Weber u. a. 2006).

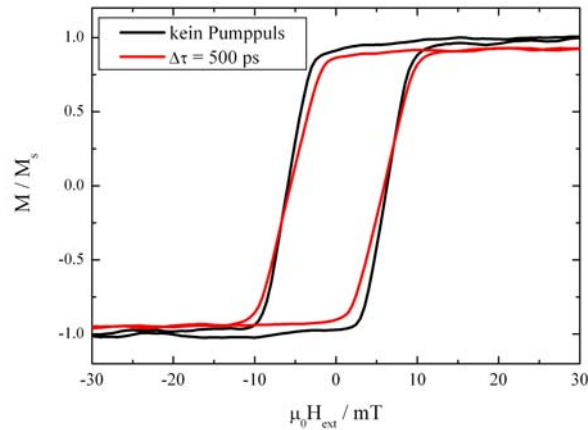


Abbildung 4.13: Exemplarische Kerr-Hysteresemessungen (LSMO, $d = 55 \text{ nm}$).

flexion und der Absorption von Perowskit-Manganaten wurde in der Literatur (vgl. z.B. Matsuda u. a. 1998) häufig aufgrund einer wegen des CMR-Effektes erwarteten starken Kopplung zwischen der Ladungsträgerdynamik und der Spindynamik als transiente Magnetisierungsänderung interpretiert. Die Unzulänglichkeit dieser Interpretation wurde von McGill u.a. gezeigt (McGill u. a. 2004) und kommt offensichtlich auch in den hier vorliegenden Messungen zutage (vgl. Abbildung 4.12). Dennoch lassen sich - auf der längeren Zeitskala - deutliche

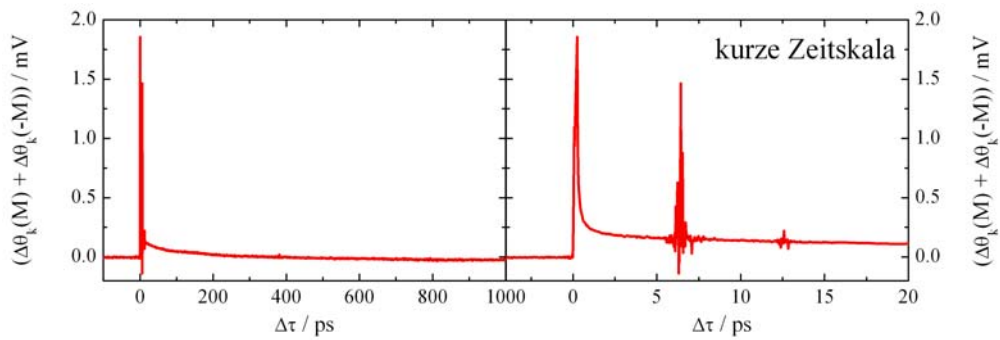


Abbildung 4.14: Summe der Kerrsignale für beide Magnetisierungsrichtungen (LSMO, $d = 55 \text{ nm}$).

Kopplungen zwischen der langsamen Spindynamik und der Ladungsträgerdynamik erkennen. In Abbildung 4.14 ist die Summe der Änderung der Kerrsignale für beide Magnetisierungsrichtungen dargestellt (der Ursprung der Artefakte bei

$\Delta\tau = 6$ ps und 12 ps wird weiter unten geklärt); durch die Summenbildung sollte in diesem Signal jegliche Magnetisierungsabhängigkeit absepariert worden sein. Sie verläuft allerdings nicht, wie für einen von der Magnetisierung unabhängigen Reflexionskoeffizienten zu erwarten (vgl. (3.8)), parallel zur zeitlichen Änderung der Reflexion, was damit auf eine Magnetisierungsabhängigkeit der Reflexion hinweist. Die transiente Änderung der Reflexion zeigt, wie im Fall von Chromdioxid, eine schnelle und eine langsame Komponente, wobei diese hier eine Änderung der Reflexion in unterschiedliche Richtungen hervorrufen (Abbildung 4.12). Die Komponente auf der kurzen Zeitskala zeigt einen exponentiellen Abfall mit einer Abklingkonstanten von $\tau_{ep} = (210 \pm 10)$ fs, während die Kurve in Abbildung 4.14 ein exponentielles Abklingen mit $\tau_{ep} = (260 \pm 10)$ fs zeigt. Die Spindynamik ist also auf jeden Fall langsamer als die Elektronen-Phononen-Relaxation. Die Unterschiede zwischen beiden Kurven für größere Pump-Abfrage-Verzögerungszeiten könnten aber auf eine Ankopplung der Reflektivität an die Magnetisierung zurückgeführt werden. Die Anregung von Elektronen durch den Laser ändert innerhalb der Pulslänge schlagartig den Reflexionsgrad, diese Elektronenanregung relaxiert nun auf der Zeitskala von einigen 100 fs mit dem Gitter. Dieses wiederum relaxiert auf der Zeitskala von 10 bis 100 ps mit dem Spinsystem, so dass sich die Spintemperatur erhöht und damit, wie gemessen, die Magnetisierung erniedrigt, was, wie weiter oben erwähnt, aufgrund des CMR-Effektes, der in dieser Probe zu beobachten ist (Moshnyaga u. a. 1999), zu einer Absenkung von Leitfähigkeit und Reflexion führt. Von Averitt u.a. konnte mittels Terahertzspektroskopie die Änderung der Leitfähigkeit von LSMO auf der Zeitskala der Elektronen-Phononen-Relaxationszeit und der Spin-Phononen-Relaxationszeit nachgewiesen werden (Averitt u. a. 2001).

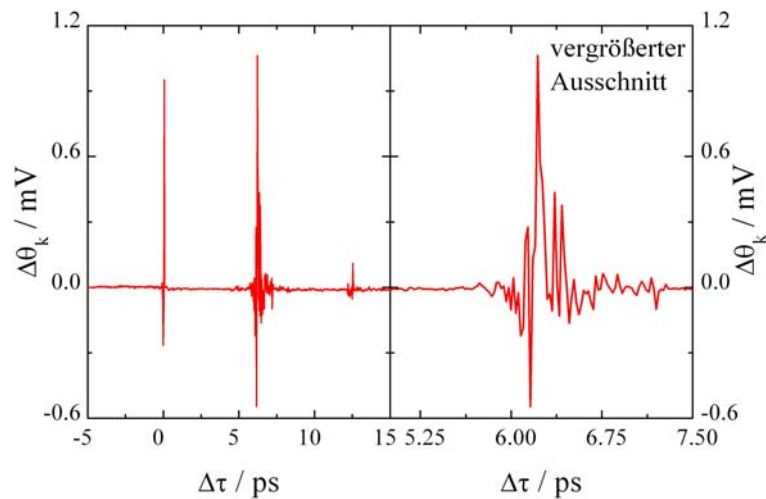


Abbildung 4.15: Kohärentes Artefakt in der transienten Änderung der Kerrdrehung.

In Abbildung 4.15 ist die Änderung des Kerrwinkels auf der kurzen Zeitskala dargestellt. Die drei ausgeprägten Artefakte bei $\Delta\tau = 0$ ps, 6 ps und 12 ps sind auf eine durch Interferenz von Pump- und Abfragepuls induzierte räumliche Modulation des komplexen Brechungsindex, die wie ein Gitter für den Abfragepuls wirkt, zurückzuführen (vgl. Eichler u. a. 1986, S. 215ff) und nicht magnetischer Natur. Die Wiederkehr dieses Kohärenzsignals ist auf Reflexion an der Rückseite des Substrats zurückzuführen. Der Abstand zwischen zwei Artefakten stimmt bei einer Dicke des Substrats von $d_{\text{MgO}} = 0,5$ mm und einem Brechungsindex von $\Re n_{\text{MgO}} = 1,73$ (Gray 1972) mit der erwarteten Periode von $\frac{2 d_{\text{MgO}} \Re n_{\text{MgO}}}{c_0} = 5,8$ ps überein. In der transienten Reflexionsmessung (vgl. Abbildung 4.12) taucht wegen der nahezu gekreuzten und nicht-modulierten Polarisation von Pump- und Abfragepuls kein ausgeprägtes kohärentes Artefakt auf. Zur Vermeidung dieser störenden Artefakte könnte ein dickerer Film verwendet werden, in dem die gesamte Strahlung absorbiert wird.

4.1.4 Co₂MnSi

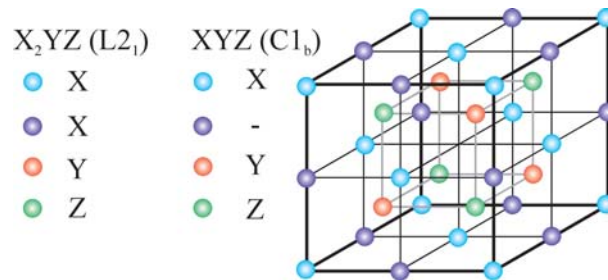


Abbildung 4.16: $C1_b$ - und $L2_1$ -Struktur.

1903 entdeckte Heusler das ferromagnetische Verhalten der Legierung Cu₂MnAl (Heusler 1903); sie kristallisiert in der $L2_1$ -Struktur, die aus vier kubisch-flächenzentrierten Untergittern besteht (vgl. Abbildung 4.16). Legierungen der Form X_2YZ in der $L2_1$ -Struktur, wobei X und Y für zwei unterschiedliche Übergangsmetalle und Z für ein Element der III. oder IV. Hauptgruppe des Periodensystems stehen, werden dementsprechend als (vollständige) Heusler-Legierungen bezeichnet; Legierungen der Form XYZ in der $C1_b$ -Struktur (wie $L2_1$ mit einem unbesetzten Untergitter, vgl. Abbildung 4.16) als halbe Heusler-Legierungen (vgl. Galanakis u. Dederichs 2005). Viele Heusler-Legierungen zeigen magnetische Ordnung, auch wenn keines der Legierungselemente für sich alleine diese aufweist. Wie bereits am Anfang dieses Kapitels erwähnt, wurde nach theoretischen Bandstruktur-Berechnungen für die halbe Heusler-Legierung NiMnSb ein halbmetallischer Charakter mit einer Lücke im Minoritätsband vorhergesagt (de Groot u. a. 1983). Für Volumenkristalle konnte tatsächlich sowohl in Spin-polarisierter Positronen-Vernichtung (Hanssen u. a. 1990) als auch in opti-

schen Absorptionsexperimenten (Kirillova u. a. 1995) eine Polarisation von nahezu 100% nachgewiesen werden. Für dünne NiMnSb-Filme ist allerdings bei Andreev-Reflexions-Experimenten ein maximaler Polarisationsgrad von 58% ermittelt worden (Soulen u. a. 1998). Im Gegensatz dazu sagen für die vollen

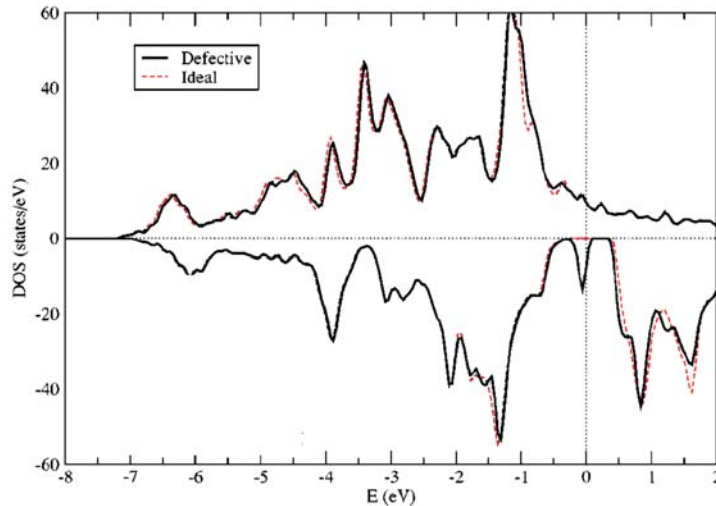


Abbildung 4.17: Berechnete Zustandsdichte von Co_2MnSi für einen idealen Kristall und einen Kristall mit einem Kobalt-Antisite-Defekt (aus Picozzi u. a. 2004).

Heusler-Legierungen Co_2MnSi und Co_2MnGe theoretische Berechnungen einen halbmetallischen Charakter, ebenfalls mit einer Lücke im Minoritätsband, sowohl für Volumenkristalle als auch für dünne Filme voraus (vgl. z.B. Ishida u. a. 1998). Eine anschauliche Erklärung des Ursprungs der Bandlücke für beide Arten von Heusler-Legierungen findet sich in der Literatur (Galanakis u. Dederichs 2005). Die Heusler-Legierungen sind als mögliche Halbmetalle besonders wegen ihrer hohen Curietemperatur interessant, wie z.B. $T_C = 985 \text{ K}$ für Co_2MnSi (Brown u. a. 2000). Das magnetische Moment pro Formeleinheit Co_2MnSi liegt dem theoretisch erwarteten Wert von $5\mu_B$ nahe (Picozzi u. a. 2004). Der halbmetallische Charakter ist aber stark von der idealen Kristallstruktur abhängig. Eine Diskussion des Einflusses unterschiedlicher Defekte auf die Bandstruktur findet sich in der Literatur (Picozzi u. a. 2004). In Abbildung 4.17 befinden sich berechnete Zustandsdichten von Co_2MnSi für einen idealen Kristall und einen Kristall mit einem Kobalt-Antisite-Defekt. Dieser Defekt hebt die Spinpolarisation an der Fermikante vollständig auf. Dementsprechend ist es auch noch nicht gelungen, halbmetallisches Co_2MnSi herzustellen.

Die für diese Arbeit vorliegende Probe wurde in der Gruppe von Professor G. Reiss an der Universität Bielefeld präpariert. Durch Magnetronsputtern wird auf einem oxidierten Silizium-Substrat folgendes Schichtsystem aufge-

bracht: Al(1,4 nm)/ Co₂MnSi(15 nm)/V(42 nm), wobei die Heusler-Legierung in (110)-Richtung texturiert ist; die Aluminiumdeckschicht wird anschließend oxidiert. Danach wird die Probe in situ für 40 Minuten bei 450 °C angelassen. In Messungen des Tunnelmagnetowiderstandes wird bei $T = 20$ K eine Spinpolarisation im Co₂MnSi von 66% ermittelt (Schmalhorst u. a. 2007).

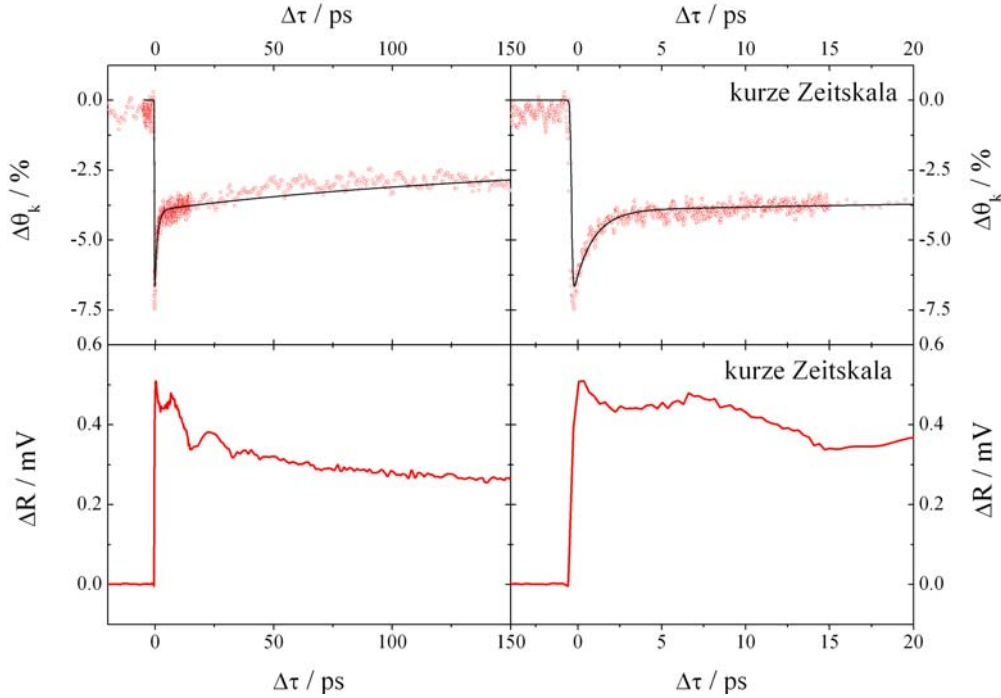


Abbildung 4.18: Laser-induzierte Entmagnetisierung und Reflexionsänderung im Co₂MnSi(15 nm)-Film.

Dieser eindeutige nicht-halbmimetallische Charakter macht sich in der transienten Kerrmessung unmittelbar bemerkbar (vgl. Abbildung 4.18). Die Messung erfolgt wieder in longitudinaler Konfiguration in einem externen Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 100$ mT, mit einer allerdings wegen der großen Curie-Temperatur deutlich höheren Pumpfluens von $F = 50 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$. Die maximale Entmagnetisierung erfolgt nach ca. 250 fs, schneller als in Nickel (vgl. Abschnitt 3.3.1) und liegt, wie aus Hysteresemessungen ermittelt, ungefähr bei 7,5%; damit liegt der Vorgang der Entmagnetisierung unterhalb der erreichten Auflösung. Ein Fit nach dem Drei-Temperatur-Modell liefert dementsprechend eine unrealistische Entmagnetisierungszeit von $\tau_s = (7,0 \pm 0,2)$ fs. Die über die Entmagnetisierung ermittelte Elektronen-Phononen-Relaxationszeit beträgt $\tau_{\text{ep}} = (1,1 \pm 0,1)$ ps, die Diffusion findet auf der Größenordnung von 100 ps statt. Aus der transienten Reflexion (vgl. Abbildung 4.18) ergibt sich ein Wert für die Elektronen-Phononen-Relaxationszeit von $\tau_{\text{ep}} = (750 \pm 70)$ fs. In dieser Kurve ist wieder die

Erzeugung von Schockwellen deutlich zu erkennen. Die maximale Entmagnetisierung ist also vor der Relaxation von Gitter und Elektronen erreicht. Damit wird deutlich, dass in dem vorliegenden Co_2MnSi -Film das Spinsystem noch stark an das elektronische System gekoppelt ist. Die ermittelten Werte entsprechen, abgesehen von der nicht auflösbaren Entmagnetisierungszeit, denen von Nickel (vgl. Abschnitt 3.3.1).

4.1.5 Vergleich und Fazit

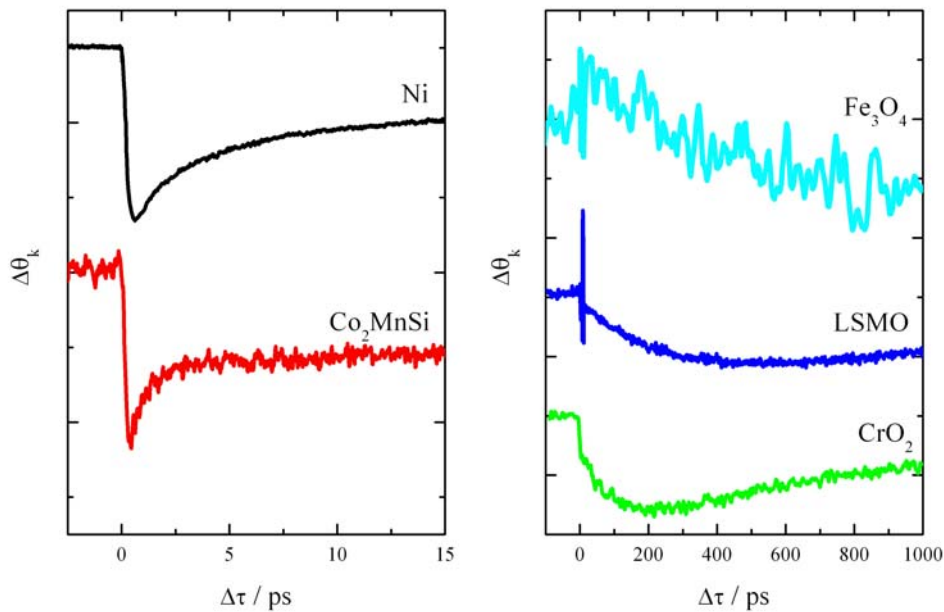


Abbildung 4.19: Transiente Änderung des Kerrwinkels für die untersuchten Materialien, im Vergleich dazu auch für Nickel ($\text{Cu}(2 \text{ nm})/\text{Ni}(15 \text{ nm})/\text{Si}$).

In Abbildung 4.19 sind die gemessenen Entmagnetisierungskurven für die untersuchten Materialien und dazu auch noch zum Vergleich für Nickel zusammengestellt. In Tabelle 4.2 ist jeweils die Zeit bis zur maximalen Entmagnetisierung und die Elektronen-Phononen-Relaxationszeit eingetragen. Darüber hinaus sind in der Tabelle auch Werte aus der Literatur für die Bandlücke, die Curietemperatur, den spezifischen Widerstand und die kristalline Anisotropiekonstante erster Ordnung zusammengestellt. Teilweise können Werte für den tatsächlich gemessenen Filmen identische Proben angegeben werden; bei den anderen Werten handelt es sich zum Teil um Werte für den Volumenkristall und zum Teil für Werte

| | Ni | CrO ₂ | Fe ₃ O ₄ | LSMO | Co ₂ MnSi |
|--|--------------------|---------------------|--------------------------------|---|----------------------|
| $\Delta E / \text{eV}$ (theoretisch) | - | 1,8 ^a | 1,3 ^b | - | 0,64 ^c |
| P (experimentell) | < 40% ^d | > 95%* ^e | -80% ^f | $P_0 = 36\%$, $P_1 = 76\%$, $P_2 = 92\%$ ^g | 66%* ^h |
| T_C / K | 627 ⁱ | 395* ^j | 858 ^k | 350* ^l | 985 ^m |
| $\rho / \mu\Omega\text{cm}$ | 7,8 ⁿ | 250 ^o | 100- 1000* ^p | ≈ 1000 * ^q | 170* ^r |
| Raumtemperatur | | | | | |
| $K_1 / 10^3 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$ (Raumtemperatur) | 5,7 ^s | 4 ^t | 11,2 ^u | 0,1-1 ^v | 13 ^w |
| $\tau_{\text{ep}} / \text{ps}$ | < 1 | 0,2 | 6 | 0,2 | < 1 |
| $\tau_{\text{m}} / \text{ps}$ | ca. 0,3 | 200-300 | > 1000 | 400-600 | ca. 0,25 |

^a(Lewis u. a. 1997)

^b(Zhang u. Satpathy 1991)

^c(Picozzi u. a. 2004)

^dCoeu u. Sanvito (2004)

^e(Anguelouch u. a. 2001)

^f(Dedkov u. a. 2002b)

^g(Nadgorny u. a. 2001)

^h(Schmalhorst u. a. 2007)

ⁱ(O'Handley 2000, S. 99)

^j(Li u. a. 1999)

^k(Moussy u. a. 2004)

^l(Moshnyaga u. a. 1999)

^m(Brown u. a. 2000)

ⁿ(Gray 1972)

^o(Lewis u. a. 1997)

^p(Ramos u. a. 2006)

^q(Gehrke 2007)

^r(Kammerer u. a. 2003)

^s(Chikazumi 1997, S. 251)

^t(Miao u. a. 2005)

^u(Bickford 1949)

^v(Ogasawara u. a. 2005)

^wWert fur Co₂MnGe, (Ambrose u. a. 2000)

Tabelle 4.2: Vergleich, an identisch praparierten Proben ermittelte Werte sind mit einem * Stern gekennzeichnet; τ_{m} kennzeichnet die Position des Entmagnetisierungsmaximums.

von dunnen Filmen. Es soll im ubrigen auch nicht der Sinn der Tabelle sein, exakte Werte anzugeben, sondern vielmehr sollen diese Werte mogliche Trends

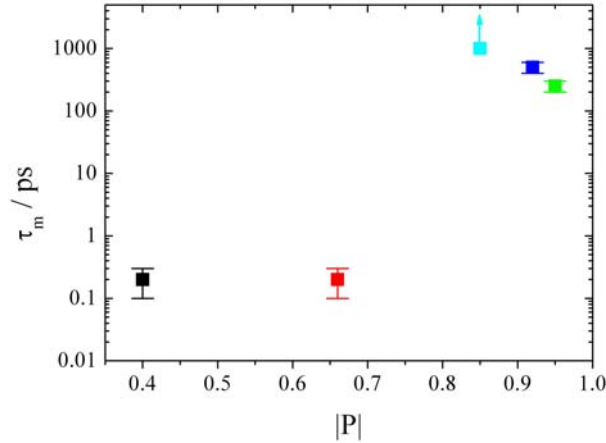


Abbildung 4.20: Entmagnetisierungszeit als Funktion der Spinpolarisation; für LSMO wird der Wert für P_2 verwendet, für Fe_3O_4 ($|P| = 0,85$) kann nur eine untere Schranke angegeben werden.

für die Entmagnetisierungszeit aufzeigen. Alle in diesem Abschnitt besprochenen Proben haben einen spezifischen Widerstand und eine Kristallanisotropie in derselben Größenordnung. Der deutlich höhere Widerstand im Vergleich zu Nickel macht sich, wie für die einzelnen Proben diskutiert, in einer sehr langsamen thermischen Diffusion bemerkbar. Auch die Elektronen-Phononen-Relaxation findet für alle Proben und auch für Nickel auf einer ähnlichen Zeitskala statt. Von den gemessenen Proben weisen zwei eine größere Curietemperatur als Nickel auf und zwei eine niedrigere; soweit man der abgeschätzten Entmagnetisierungszeit für Fe_3O_4 glauben schenken darf, korreliert die Curietemperatur also nicht mit τ_m ³. Die Tabelle legt damit nahe, die deutlichen Unterschiede in der Entmagnetisierungszeit auf einen etwaigen halbmetallischen Charakter zurückzuführen. Wie in Abschnitt 4.1.1 argumentiert wird, hat die Größe der Bandlücke keinen qualitativen Einfluss auf die Entmagnetisierung. Damit ist die entscheidende mit τ_m korrelierende Größe die Spinpolarisation der delokalisierten Elektronen an der Fermikante (vgl. Abbildung 4.20).

Gemäß der Argumentation in den vorherigen Abschnitten sind also ab einer ausreichend großen Polarisation Spin- und Elektronensystem entkoppelt, was $g_{\text{es}} = 0$ im Drei-Temperatur-Modell entspricht (vgl. Abbildung 4.21) und eine maximale Entmagnetisierung nach der Relaxation von Gitter und Elektro-

³Koopmans gibt im Rahmen seines Modells der Entmagnetisierung die Proportionalität $\tau_m \propto 1/T_C$ an (Koopmans u. a. 2005); hier ändert sich aber τ_m um einen Faktor 1000, während die Curietemperatur nur um einen Faktor 2 kleiner ist. Wie weiter unten ausgeführt, hat das Koopmans'sche Modell, das Elliot-Yafet-Streuung als Entmagnetisierungsmechanismus beinhaltet, keine Bedeutung für die Entmagnetisierung in einem Halbmetall.

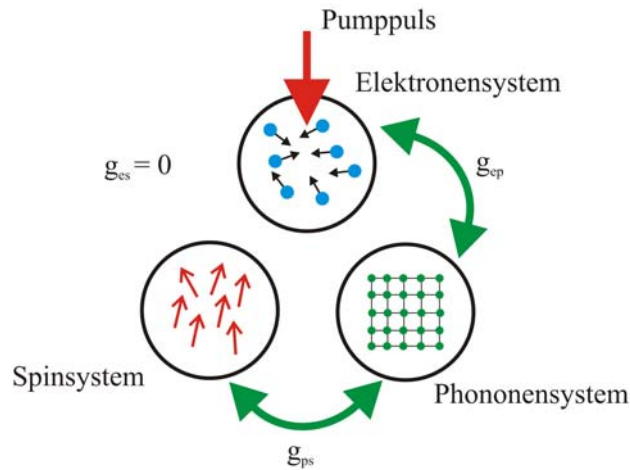


Abbildung 4.21: Schema des Drei-Temperatur-Modells mit dem geblockten Elektronen-Spin-Kanal im Falle eines Halbmetalls.

nen nach sich zieht. Damit ist die Messung einer langsamen Laser-induzierten Entmagnetisierung ein gutes Indiz für einen tatsächlich vorliegenden (transport)halbmetallischen Charakter und kann als Indikator die zu Anfang des Kapitels vorgestellten Methoden zur Messung der Spinpolarisation ergänzen.

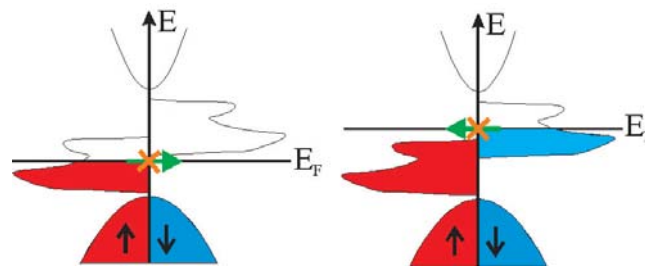


Abbildung 4.22: Unterdrückte Elliot-Yafet-Streuung in Halbmetallen.

In der Literatur (vgl. Abschnitt 3.3) wird zunehmend argumentiert, dass es sich bei dem der ultraschnellen Entmagnetisierung in Nickel zugrunde liegenden Mechanismus um Elliot-Yafet-Streuung (Elektronen-Streuung an Störstellen oder Phononen mit gleichzeitiger Spinumkehr) handelt. Das Vorliegen von delokalisierten Elektronen lediglich einer Spinsorte an der Fermikante wird offensichtlich diesen Mechanismus unterdrücken (vgl. Abbildung 4.22). Damit liefert die gefundene Korrelation zwischen Spinpolarisation und Entmagnetisierungszeit weitere Evidenz für diese mikroskopische Ursache der ultraschnellen Entmagnetisierung.

In dem Fall $g_{es} = 0$ kann also die Laser-induzierte Entmagnetisierung nur über die Kopplung zwischen Gitter und Spins erfolgen. Vor der ersten Mes-

sung der ultraschnellen Entmagnetisierung (Beaurepaire u. a. 1996) ging man davon aus, dass $g_{\text{sp}} \gg g_{\text{es}}$ (vgl. Abschnitt 3.3). In einem einfachen Modell, in dem die Kopplung zwischen Spinsystem und Gitter durch anisotrope Fluktuationen des Kristallfeldes erfolgt, fanden Hübner und Bennemann (Hübner u. Bennemann 1996) eine Proportionalität $g_{\text{sp}} \propto 1/\tau_{\text{sp}} \propto K$ zur kristallinen Anisotropiekonstanten. Zwar haben Hübner und Bennemann dieses Modell für ferromagnetische Lanthanoide angegeben; dieser Mechanismus sollte aber auch in Halbmetallen stattfinden können. Im Falle unterdrückter Elliot-Yafet-Streuung wäre also nach diesem Modell $\frac{1}{\tau_{\text{m}}} \propto K$. Gemäß Tabelle 4.2 wird dieser Trend von Chromdioxid und LSMO befolgt, der abgeschätzte Wert für Fe_3O_4 passt allerdings nicht in dieses Modell. Ein solcher Zusammenhang zwischen τ_{sp} und der Anisotropie konnte auch für unterschiedliche ferromagnetische Verbindungen in der Literatur bestätigt werden (Ogasawara u. a. 2005).

Zur weiteren Untermauerung der hier aufgestellten Thesen sollte die Laserinduzierte Entmagnetisierungszeit weiterer ferromagnetischer Verbindungen ermittelt werden. Insbesondere wäre es von großem Interesse durch temperaturabhängige Messungen und durch eine Variation der Wellenlänge des Pumpimpulses die Einflüsse der Größe der Bandlücke und der Höhe der Curietemperatur systematisch zu untersuchen.

4.2 Präzessionelle Magnetisierungsdynamik in $\text{CrO}_2(100)$

Aufgrund der bereits erwähnten magnetischen Anisotropie des Chromdioxid (100)-Films, die sowohl kristallinen als auch magneto-elastischen Ursprungs ist, bietet sich, eine genauere Untersuchung der präzessionellen Dynamik der Magnetisierung an. Im Abschnitt 4.2.1 werden ausführlich sowohl die magnetische Anisotropie als auch die Verspannungsanisotropie der Probe diskutiert, bevor im Abschnitt 4.2.2 auf die in dem optischen Pump-Abfrage-Experiment untersuchte präzessionelle Dynamik eingegangen wird.

4.2.1 Magnetische und elastische Anisotropie

Wie bereits im Abschnitt 4.1.1, in dem die Probenpräparation diskutiert wird, erwähnt, ist die Gitterfehlpassung in der Wachstumsebene anisotrop. Für Volumenkristalle sind die folgenden Gitterkonstanten ermittelt: $a_{\text{CrO}_2} = 4,421 \text{ \AA}$ und $c_{\text{CrO}_2} = 2,916 \text{ \AA}$ (Chamberland 1977), während $a_{\text{TiO}_2} = 4,594 \text{ \AA}$ und $c_{\text{TiO}_2} = 2,959 \text{ \AA}$ (Grant 1959). Dies entspricht einer Fehlpassung von 3,9% in b -Richtung und von 1,5% in c -Richtung.

Damit sollten die einzelnen Gitterkonstanten im Film in unterschiedlicher Größe von den Gitterkonstanten im Volumenkristall abweichen. In Abbildung 4.23 sind die durch Röntgenbeugung bestimmten und somit über den gesamten Film gemittelten Gitterkonstanten als Funktion der Filmdicke aufgetragen (Miao u. a. 2006). Der untersuchte Film einer Dicke von nominell 300 nm weist danach eine gemittelte Verspannung von ungefähr einem Prozent in der

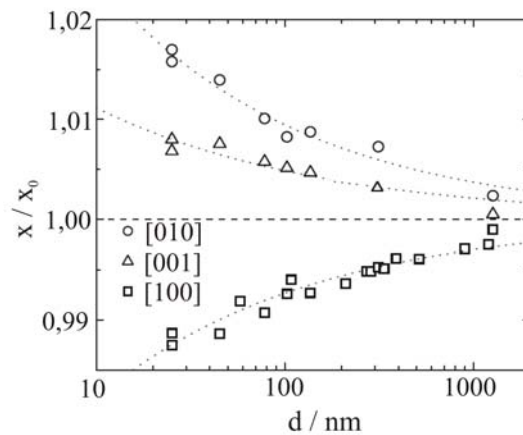


Abbildung 4.23: Gitterkonstanten der verspannten CrO_2 -Filme als Funktion der Filmdicke (aus Miao u. a. 2006).

b -Richtung und einem halben Prozent in der c -Richtung auf. Dies spricht dafür, dass in dieser Probe die Verspannung nicht vollständig durch Versetzungen an der Grenzfläche abgebaut wird. Zur weiteren Untersuchung dieser Verspannung und der daraus resultierenden Kristalldefekte, wird an dieser Probe Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) durchgeführt. Dafür werden mit Hilfe eines Gallium-Ionenstrahls (*focussed ion beam*, FIB) zwei Lamellen der Probe entnommen: eine parallel zur $[001]$ -Ebene, die andere parallel zur $[010]$ -Ebene. An der Oberfläche der Lamellen bildet sich - entweder durch Ionenbeschuss zur Probenpräparation oder durch den Kontakt mit der Luft - eine Cr_2O_3 -Phase, so dass die dünnen Bereiche der Lamellen überhaupt keine Auskunft mehr über die ursprüngliche Probe liefern und die TEM-Bilder der dickeren Bereiche aufgrund des darüber liegenden Cr_2O_3 -Gitters eine Überstruktur, ein sogenanntes Moiré-Muster, aufweisen. In Abbildung 4.24 ist die Grenze zwischen CrO_2 und TiO_2 in der $[001]$ -Ebene in Hochauflösung abgebildet. Eindeutig sind mehrere Gitterversetzungen zu erkennen, die dementsprechend gekennzeichnet sind. Nach einer groben Abschätzung wird durch die Versetzungen in der Nähe der Grenzfläche ungefähr die Hälfte der Verspannung abgebaut. Dies entspricht auch qualitativ den Ergebnissen aus der Röntgenbeugung (vgl. Abbildung 4.23). In Abbildung 4.25 ist eine Dunkelfeldaufnahme dieser Probe in kleinerer Vergrößerung dargestellt. Deutlich ist zu erkennen, dass sich Fadenversetzungen bilden, die durch die gesamte CrO_2 -Schicht reichen. Die Anzahldichte dieser Fadenversetzungen ist im Übrigen von derselben Größenordnung wie die der Versetzungen in der Nähe der Grenzfläche. Die Gitterfehlpassung führt also nicht nur zu einer Verspannung über die gesamte Filmdicke, sondern auch zu über die gesamte Dicke des Films ausgedehnten Defekten.

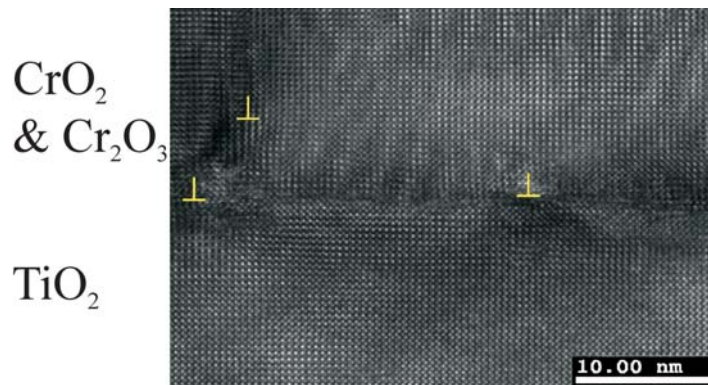


Abbildung 4.24: Querschnitt in der [001]-Ebene durch die Grenzfläche $\text{CrO}_2/\text{TiO}_2$ in Hochauflösung; Gitterversetzungen sind gekennzeichnet.



Abbildung 4.25: Dunkelfeldbild des Films parallel zur [001]-Ebene, die Platinschicht resultiert aus der FIB-Präparation.

In Abbildung 4.26 ist ein Querschnitt durch den Film parallel zur [010]-Ebene im Dunkelfeld dargestellt. Die Qualität dieses Bildes ist aufgrund des stärker ausgeprägten Moiré-Effekts deutlich schlechter als die des Bildes in Abbildung 4.25. Dies wird auf Unterschiede in der FIB-Lamellen-Präparation zurückgeführt: Die TEM-Bilder einer dünneren Lamelle sollte stärker durch Cr_2O_3 -Phase beeinflusst sein. Wieder sind auch durch den gesamten Film gehende Fadenversetzungen zu erkennen. Ob in dieser Ebene eine andere Versetzungsdichte vorliegt, ist weder mit diesem Bild noch mit den Bildern dieser Probe in Hochauflösung zu belegen. Es ist allerdings aufgrund der niedrigeren Fehlpassung der c -Gitterkonstante eine ebenfalls niedrigere Versetzungsdichte in der [010]-Ebene zu erwarten.

In Abbildung 4.27 ist die mit Hilfe von *atomic force microscopy* (AFM) ermit-

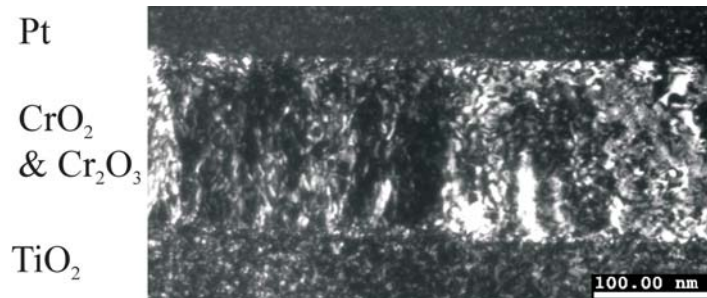


Abbildung 4.26: Dunkelfeldbild des Films parallel zur $[010]$ -Ebene, die Platinschicht resultiert aus der FIB-Präparation.

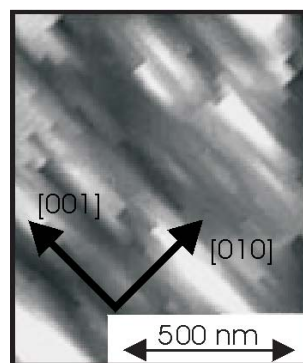


Abbildung 4.27: AFM-Bild der Oberfläche eines 85 nm dicken CrO_2 -Films (aus Miao u. a. 2006).

telte Oberflächenmorphologie eines 85 nm dicken CrO_2 -Films dargestellt (aus Miao u. a. 2006). Die Ausdehnung der Körner in $[010]$ -Richtung entspricht von der Größenordnung her den ermittelten Abständen zwischen den Fadenversetzungen in dieser Richtung (vgl. Abbildung 4.25). In $[001]$ -Richtungen sind die Körner deutlich ausgedehnter; die Verspannungsanisotropie spiegelt sich also auch in der Oberflächenmorphologie wieder. Es ist also festzustellen, dass der vorliegende CrO_2 -Film durch die gesamte Dicke eine Verspannungsanisotropie aufweist. Diese Verspannungsanisotropie führt vermutlich zu einer erhöhten Defektdichte in der b -Richtung.

Wie bereits erwähnt, zeigt die Probe ebenfalls eine magnetische Anisotropie in der Filmebene. Es konnte gezeigt werden, dass diese sowohl kristallinen als auch magneto-elastischen Ursprungs ist (Miao u. a. 2005). Die freie Anisotropie-

energiedichte kann für den tetragonalen Kristall geschrieben werden als

$$\begin{aligned}
 F_{\text{aniso}} &= K_{u1} \sin^2 \phi + K_{\sigma c} \sin^2 \phi + K_{\sigma b} \cos^2 \phi \\
 &= \text{const} + (K_{u1} + K_{\sigma c} - K_{\sigma b}) \sin^2 \phi \\
 &= \text{const} + K_{1,\text{eff}} \sin^2 \phi,
 \end{aligned} \tag{4.3}$$

wobei ϕ der Winkel in der Ebene zwischen Magnetisierungsrichtung und c -Achse ist und Terme höherer Ordnung hier vernachlässigt werden. Die effektive Anisotropiekonstante ist damit gegeben durch

$$K_{1,\text{eff}} = K_{u1} + K_{\sigma c} - K_{\sigma b} = K_{u1} + \frac{3}{2} \lambda Y (\epsilon_c - \epsilon_b), \tag{4.4}$$

wobei das Y das Young-Modul, λ den magneto-elastische Kopplungsparameter, ϵ_i die Dehnung in die jeweilige Kristallrichtung bezeichnet. Gemäß der Abhängigkeit der Dehnung von der Filmdicke in Abbildung 4.23 ist also auch eine Variation der effektiven Anisotropiekonstanten zu erwarten. Diese ist in Ab-

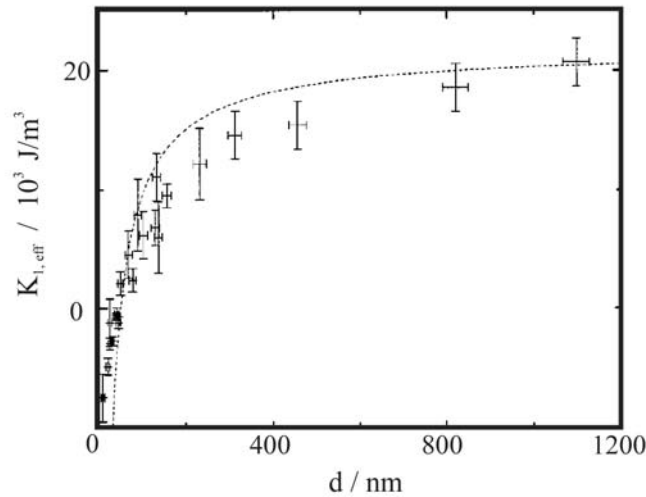


Abbildung 4.28: Effektive Anisotropiekonstante als Funktion der Dicke des verspannten CrO_2 -Films (aus Miao u. a. 2005).

bildung 4.28 dargestellt (Miao u. a. 2005). Für einen Volumenkristall ist also die c -Achse die leichte Achse, während sie für sehr dünne Filme die harte Achse darstellt. Die zur Verfügung stehenden Filme von einer nominellen Dicke von 150 nm und 300 nm sind dementsprechend beide jeweils in c -Richtung leicht und in b -Richtung hart zu magnetisieren. Dies entspricht den Squid-Hysteresemessungen bei Raumtemperatur für den 150 nm dicken Film (vgl. Abbildung 4.29). Von

Yang u.a. wurde gezeigt, dass die Hysteresen in harter Richtung in dieser Probe durch kohärente Rotation der Magnetisierung nach dem Stoner-Wohlfahrt-Modell zu erklären sind (Yang u. a. 2000); Domänenbildung ist also zu vernachlässigen.

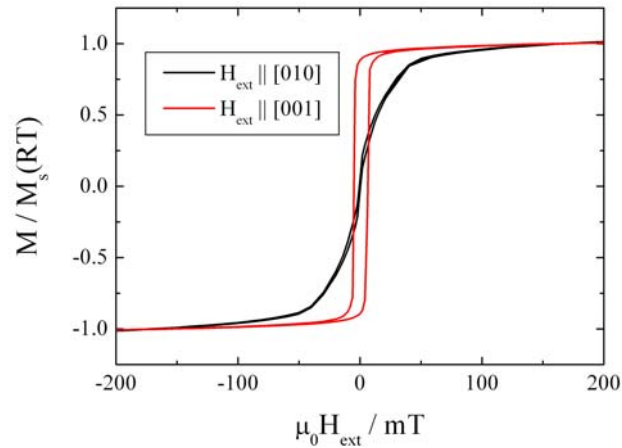


Abbildung 4.29: Squid-Hysteresekurven in leichter und in harter Richtung ($\text{CrO}_2(150 \text{ nm})$).

4.2.2 Präzessionelle Dynamik

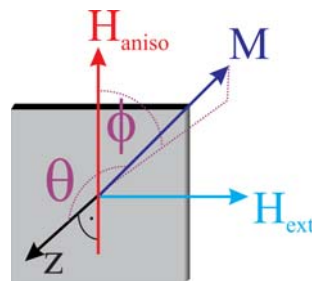


Abbildung 4.30: Konfiguration zur Messung der präzessionellen Dynamik in Chromdioxid, sowie verwendetes Koordinatensystem. Die leichte Achse (H_{aniso}) steht senkrecht zum angelegten Feld.

Zum Studium der präzessionellen Dynamik wird eine Konfiguration gemäß Abbildung 4.30 verwendet, in der die leichte Achse senkrecht zum angelegten Feld steht. Eine solche Konfiguration zur Induktion der Präzession in $\text{CrO}_2(100)$ wurde in der Literatur beschrieben, aber dort nicht zur systematischen Untersu-

chung der Dynamik genutzt (Zhang u. a. 2002). Das externe Feld wird parallel zur harten Achse angelegt, so dass durch Variation der Feldstärke die Magnetisierung in der Ebene kohärent gedreht werden kann (vgl. Yang u. a. 2000). In Abbildung 4.31 ist die mit den später ermittelten Parametern über Energieminimierung (vgl. (4.6)) berechnete Richtung der Magnetisierung in der Ebene als Funktion des äußeren Feldes aufgetragen. Die Anregung der Präzession durch

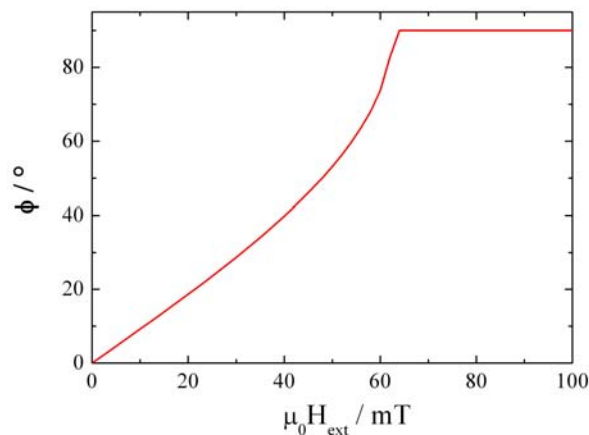


Abbildung 4.31: Aus Energieminimierung bestimmte Richtung der Magnetisierung als Funktion des senkrecht zur leichten Achse angelegten Feldes.

den Pumpimpuls ist analog zu dem in Abschnitt 3.3.2 beschriebenen Mechanismus mit dem Unterschied, dass hier die uniaxiale Anisotropie in der Ebene genutzt wird (vgl. Abbildung 4.32). Die freie Energiedichte in dieser Konfiguration ist unter Berücksichtigung der effektiven uniaxialen Anisotropie (4.3) gegeben durch

$$F = -\mu_0 M_s H_{\text{ext}} \sin \phi \sin \theta + \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 \cos^2 \theta + K_{1,\text{eff}} \sin^2 \phi, \quad (4.5)$$

wobei die Winkel gemäß Abbildung 4.30 gewählt sind. Der Gleichgewichtszustand ist damit gegeben durch

$$\begin{aligned} \sin \phi_0 &= \begin{cases} \frac{\mu_0 M_s H_{\text{ext}}}{2K_{1,\text{eff}}} & \text{für } \mu_0 M_s H_{\text{ext}} < 2K_{1,\text{eff}} \\ 1 & \text{für } \mu_0 M_s H_{\text{ext}} \geq 2K_{1,\text{eff}} \end{cases}, \\ \theta_0 &= 90^\circ. \end{aligned} \quad (4.6)$$

Sobald also das Anisotropiefeld $\frac{2K_{1,\text{eff}}}{\mu_0 M_s}$ kleiner als das externe Feld ist, richtet sich die Magnetisierung im Gleichgewicht parallel zur harten Achse aus. Für den ersten Fall erhält man damit nach (2.36) und (2.35) folgende Ausdrücke für

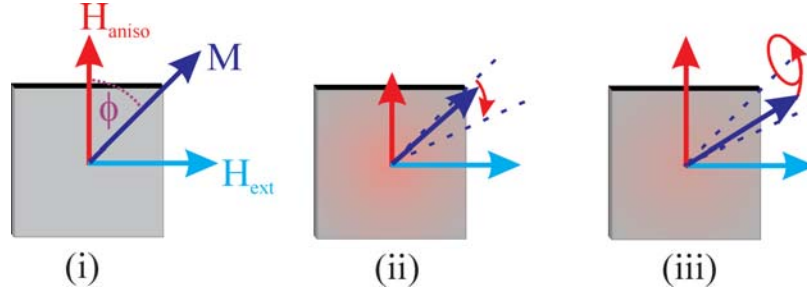


Abbildung 4.32: Schematische Darstellung des Laser-induzierten Anisotropiefeldpulses in Chromdioxid: (i) $\Delta\tau < 0$, Gleichgewichtskonfiguration; (ii) $0 < \Delta\tau < 1$ ps, die Entmagnetisierung führt zu einer Änderung der Magnetisierungsrichtung. (iii) $\Delta\tau \gg 1$ ps, während der Remagnetisierung präzediert die Magnetisierung um die jeweilige Gleichgewichtslage.

Frequenz und Dämpfungskonstante :

$$\begin{aligned}\omega_1 &= |\gamma| \sqrt{(\mu_0 H_{\text{ext}})^2 \left(1 - \frac{\mu_0 M_s^2}{K_{1,\text{eff}}}\right) - (\mu_0 H_{\text{ext}})^4 \left(\frac{\mu_0 M_s}{2K_{1,\text{eff}}}\right)^2 + 2\mu_0 K_{1,\text{eff}}}, \\ \tau_1 &= \frac{2M_s}{|\gamma| \alpha \mu_0 M_s^2 + 2K_{1,\text{eff}}},\end{aligned}\quad (4.7)$$

wobei bemerkenswert ist, dass τ unabhängig vom angelegten Feld ist. Für den zweiten Fall berechnet man

$$\begin{aligned}\omega_2 &= |\gamma| \sqrt{(\mu_0 H_{\text{ext}})^2 + \mu_0 H_{\text{ext}} \left(\mu_0 M_s - \frac{2K_{1,\text{eff}}}{M_s}\right)^2 - 2\mu_0 K_{1,\text{eff}}}, \\ \tau_2 &= \frac{2M_s}{|\gamma| \alpha 2\mu_0 H_{\text{ext}} M_s + \mu_0 M_s^2 - 2K_{1,\text{eff}}}.\end{aligned}\quad (4.8)$$

Exemplarische zeitaufgelöste Spektren finden sich in der Abbildungen 4.33. Es ist anzumerken, dass hier nicht wie sonst durch Differenzbildung der Spektren für beide Feldrichtungen die Reflexionsänderung separiert worden ist (vgl. (3.9) und (3.8)), da sich das Vorzeichen des Anisotropiefeldpulses im Gegensatz zu der Konfiguration wie in Abschnitt 3.3.2 bei Feldumpolung ändert⁴. Das liegt daran, dass die Gleichgewichtsrichtung der Magnetisierung bei der hier verwendeten Konfiguration zweifach entartet ist, bei Feldumpolung die Magnetisierung aber das nähere Energieminimum einnimmt und sich so nicht um 180° dreht. Dies ist in Abbildung 4.34 verdeutlicht: Hier ist jeweils die Richtung

⁴Die Richtung der Präzessionsbewegung ist dann über Bildung des Kreuzproduktes von Anisotropiefeldpuls und Magnetisierung zu bestimmen (vgl. 3.22). Wenn nur eine der beiden Größen ihr Vorzeichen ändert, dreht sich damit die Präzessionsbewegung um.

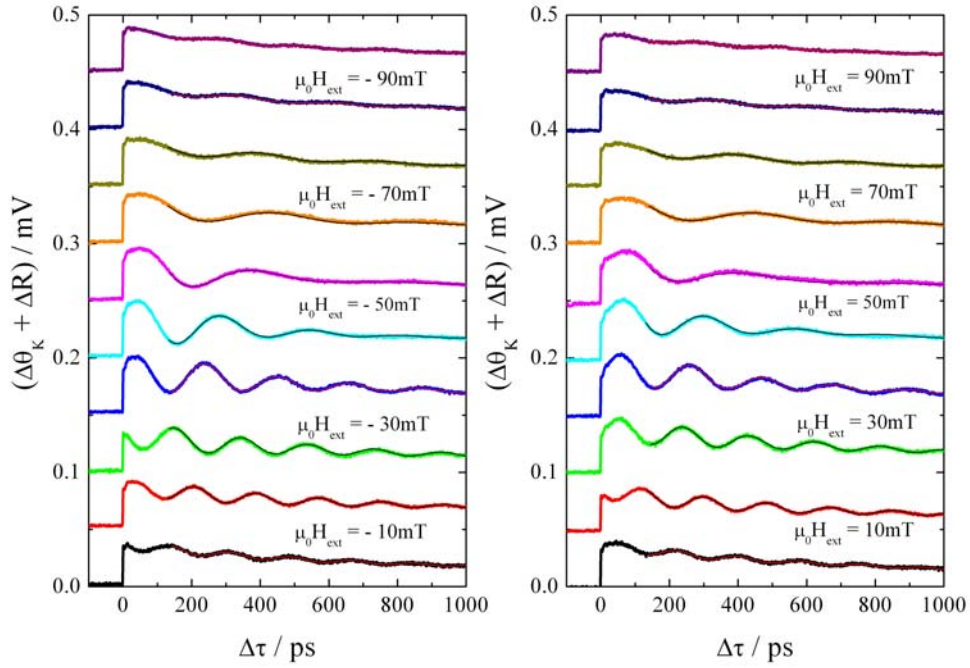


Abbildung 4.33: Zeitaufgelöste Messung der Präzessionsdynamik in CrO_2 (300 nm), $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$, mit Fits zur Extraktion von Frequenz und Abklingzeit.

des externen Feldes, der Magnetisierung und des Anisotropiefeldpulses eingezeichnet. Wenn sich also die Probe in einer Konfiguration gemäß Abbildung 4.34 (i) befindet, wird die Magnetisierung nach Umpolung des angelegten Feldes die in (ii) dargestellte Richtung einnehmen und nicht Stellung (iii), in der der Anisotropiefeldpuls dieselbe Richtung beibehält. Diese Ausführung gilt allerdings ausschließlich für die longitudinale Komponente der Magnetisierung, die ihr Vorzeichen beim Wechsel von Stellung (i) zu Stellung (ii) ändert. Das Vorzeichen der transversalen Komponente der Magnetisierung ändert sich nicht, so dass sich insgesamt die Präzessionsbewegung dieser Komponente (Kreuzprodukt aus Magnetisierung und Anisotropiefeldpuls) umdreht. Damit dreht sich für niedrige externe Felder, für die der transversale Kerreffekt die Messung dominiert, die Präzessionsbewegung mit der Umpolung um, wie in der Abbildung 4.33 für $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 10 \text{ mT}$ bis $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 30 \text{ mT}$ zu erkennen ist.

Die aus den Spektren extrahierte Abhängigkeit der Frequenz vom äußeren Feld ist in Abbildung 4.35 für Pumpfluenszen von $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ und $20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ dargestellt. Der Frequenzverlauf entspricht den Gleichungen (4.7) und (4.8). Dabei ist das Intervall der mit dem steigenden Betrag des äußeren Feldes fallenden

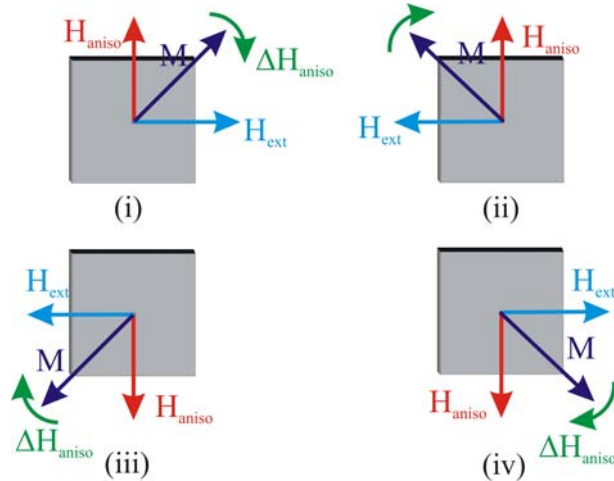


Abbildung 4.34: Richtung von Magnetisierung und Anisotropiefeldpuls; eine Beschreibung der Konfigurationen (i)-(iv) findet sich im Text.

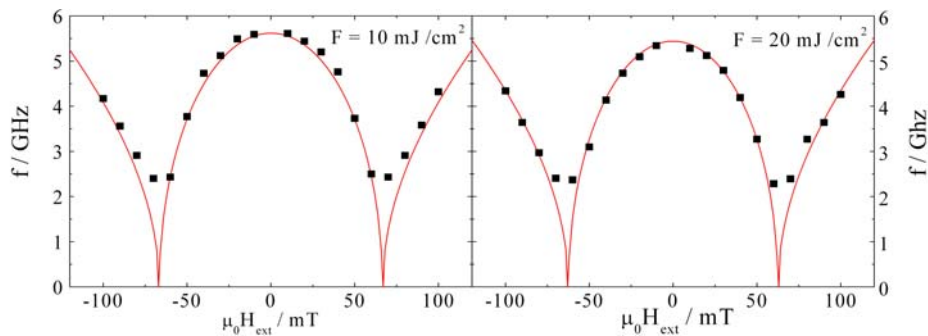


Abbildung 4.35: Präzessionsfrequenz im CrO_2 (300 nm)-Film als Funktion des angelegten Feldes für $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ (links) und $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ (rechts).

Frequenz durch (4.7) und das Intervall der steigenden Frequenz durch (4.8) beschrieben. Die Frequenz verschwindet entsprechend dieser Gleichungen, wenn $\mu_0 H_{\text{aniso}} = \frac{2K_{1,\text{eff}}}{2M_s} = \mu_0 H_{\text{ext}}$. Diesen Umstand kann man durch Betrachtung der Energiedichtelandschaft gemäß Gleichung (4.5) anschaulich verdeutlichen: In Abbildung 4.36 ist die freie Energiedichte des Systems für unterschiedliche Stärken des angelegten Feldes als Funktion des Winkels ϕ aufgetragen. Für ein verschwindendes äußeres Feld liegen die Energieminima in Richtung der leichten Achse und wandern für ansteigendes Feld in Richtung des anliegenden Feldes. Sobald sich die Magnetisierung parallel zum angelegten Feld ausrichtet, fallen diese beiden Minima zusammen. Dafür muss an dieser Stelle - in Abbildung 4.36

zwischen 60 mT und 70 mT - neben der ersten Ableitung, auch die Krümmung verschwinden, so dass Präzession aufgrund fehlender Rückstellkräfte nicht mehr möglich ist. Bei weiter ansteigendem Feld liegt in Richtung des angelegten Feldes wieder eine endliche Krümmung vor.

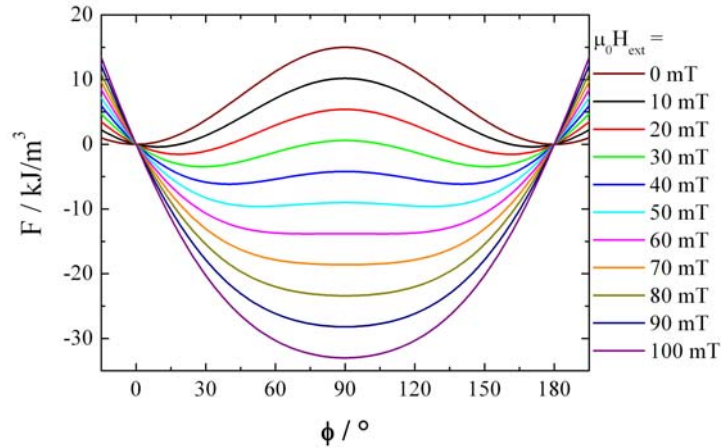


Abbildung 4.36: Freie Energiedichte des Probensystems als Funktion der Magnetisierungsrichtung.

Für den Fit gemäß (4.7) und (4.8) wird vereinfachend für beide Fluenzen eine Raumtemperaturmagnetisierung von $\mu_0 M_s = 603 \text{ mT}$ (s.o.) und ein Landé-Faktor von $g = 2$ angenommen. Jegliche Temperaturabhängigkeit wird in die effektive uniaxiale Anisotropiekonstante als einzigen Fitparameter aufgenommen. Diese Annahme ist vernünftig, da der letzte Term unter der Wurzel in (4.7) entsprechend (2.23) die stärkste Abhängigkeit von der Temperatur zeigen sollte. Die Anisotropiekonstante wird zu $K_{1,\text{eff}} = (15350 \pm 150)$ für $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ und zu $K_{1,\text{eff}} = (15990 \pm 75)$ für $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ ermittelt. Diese Werte liegen für die nominelle Dicke von $d = 300 \text{ nm}$ gemäß Abbildung 4.28 im zu erwartenden Bereich. Mit der effektiven Erhöhung der Temperatur des Experiments von ungefähr $T = 295 \text{ K}$ auf ungefähr $T = 305 \text{ K}$ (vgl. Abbildung 4.8) durch die höhere Pumpfluenz wird also eine Reduktion der Anisotropiekonstante um etwa 2% erreicht, während die Magnetisierung selbst aber um etwa 3% fällt (vgl. Abbildung 4.8).

Zur weiteren Rechtfertigung der zur Ableitung von (4.7) und (4.8) verwendeten Makrospinnäherung wird die gleiche Messung wiederholt durchgeführt, wobei die harte Achse der Probe um einen kleinen Winkel gegen das angelegte Feld verdreht wird. Für diese Konfiguration lässt sich kein geschlossener Ausdruck mehr für die Frequenz angeben. Die Gleichgewichtsrichtung der Magnetisierung kann aber numerisch berechnet werden und in Gleichung (2.36) eingesetzt wer-

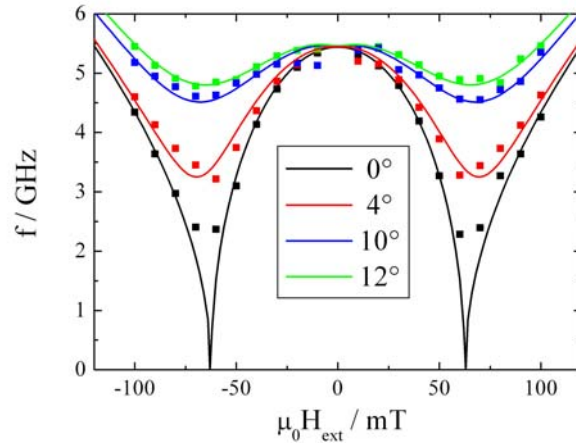


Abbildung 4.37: Präzessionsfrequenz im $\text{CrO}_2(300 \text{ nm})$ -Film als Funktion des angelegten Feldes für verschiedene Winkel zwischen harter Achse und angelegtem Feld ($F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$).

den. Dafür können die zuvor ermittelten Parameter verwendet werden. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.37 dargestellt ($F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$). Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen den berechneten und gemessenen Frequenzen, was die Annahme der Makrospinnäherung weiter rechtfertigt.

Ferner ist in der Abbildung 4.38 die aus den Spektren extrahierte Abklingzeit aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Dämpfung für Magnetisierung in Richtung der leichten Achse am geringsten und in Richtung der harten Achse am größten ist. Nach erfolgter Ausrichtung mit der harten Achse zeigt sich für die beiden unterschiedlichen Pumpfluenszen ein unterschiedliches Bild, während die Dämpfung für $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ mit weiter steigender externer Feldstärke abfällt, steigt diese für $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ an. Aus der Abklingzeit τ ist nach (4.7) und (4.8) der Gilbert-Dämpfungparameter berechnet und ebenfalls in Abbildung 4.38 dargestellt. Sowohl die Richtungsabhängigkeit von α für Felder unter $\mu_0 H_{\text{ext}} = 70 \text{ mT}$ als auch die Feldstärkeabhängigkeit oberhalb von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 70 \text{ mT}$ bedeuten, dass die Dämpfung nicht durch den in der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung angenommenen Dämpfungsterm korrekt beschrieben wird. Während die Richtungsabhängigkeit noch mit einem richtungsabhängigen Gilbert-artigen α beschrieben werden kann, zeigt die Feldstärkeabhängigkeit, dass zumindest in diesem Bereich der vorherrschende Dämpfungsmechanismus nicht korrekt durch den Gilbert-Term beschrieben wird. Ferner deutet die Unstetigkeit der Kurve an, dass hier für Felder ab $\mu_0 H_{\text{ext}} = 70 \text{ mT}$ ein anderer Mechanismus für die Dämpfung verantwortlich ist.

Die Richtungsabhängigkeit der Dämpfung kann entsprechend der Diskussi-

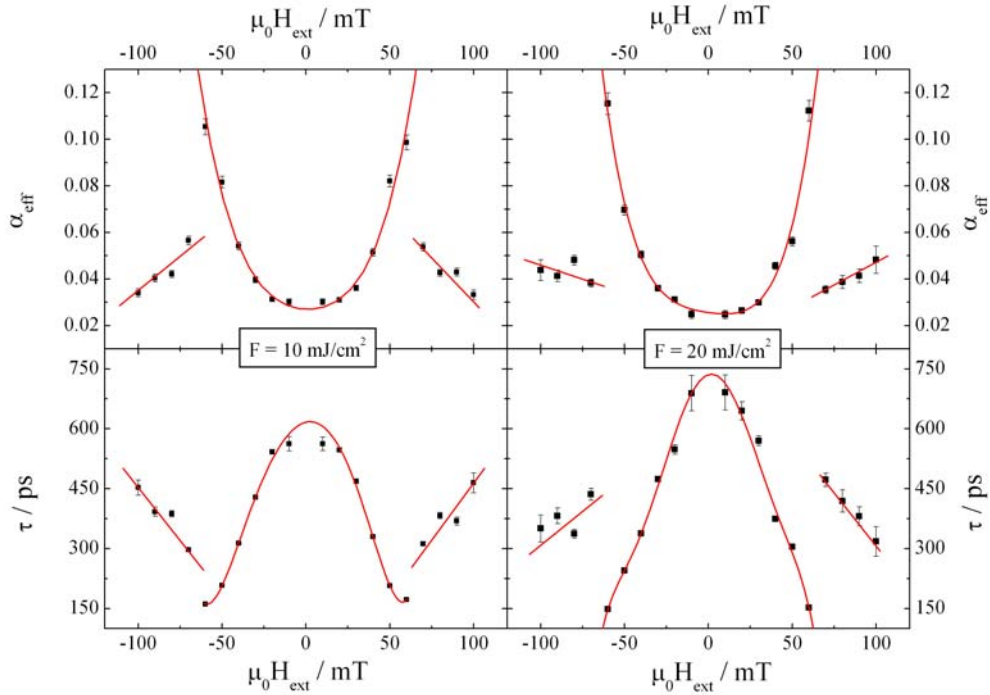


Abbildung 4.38: Abklingzeit und effektiver Gilbert-Dämpfungsparameter im CrO_2 (300 nm)-Film als Funktion des angelegten Feldes für $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ (links) und $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ (rechts).

on in Abschnitt 2.2 intrinsischen oder extrinsischen Ursprungs sein. Unter der Berücksichtigung der in Abschnitt 4.2.1 diskutierten Verspannungs- und Defektanisotropie mit stärkerer Verspannung und vermutlich erhöhter Defektdichte in Richtung der harten Achse ist allerdings ein extrinsischer Ursprung zu vermuten. Ein solcher Zusammenhang zwischen erhöhter Defektdichte und stärkeren extrinsischen Dämpfungsbeiträgen konnte auch von Woltersdorf und Heinrich nachgewiesen werden (Woltersdorf u. Heinrich 2004). Sie führten eine ferromagnetische Resonanzstudie an $\text{Pd/Fe(001)/GaAs(001)}$ -Filmen durch. In den Resonanzmessungen können Dämpfungsbeiträge, die aus Zwei-Magnonen-Streuung resultieren, extrahiert werden. Damit konnte in der Arbeit gezeigt werden, dass die anisotrope Dämpfung hauptsächlich auf Zwei-Magnonen-Streuung zurückzuführen ist. Es ist schon seit frühen Arbeiten zur magnetischen Dämpfung bekannt, dass Defekte die Zwei-Magnonen-Streureate erhöhen (vgl. z.B. Sparks u. a. 1961). Ob aber auch in diesem Fall Zwei-Magnonen-Streuung vorliegt, kann mit der hier verwendeten Methode nicht eindeutig geklärt werden.

Zur weiteren Untersuchung der magnetischen Dämpfung wird die Fluenzabhängigkeit der Präzessionsfrequenz und der Abklingzeit bei einem externen Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 20 \text{ mT}$ bestimmt. Die Frequenz nimmt, wie bereits weiter

oben erwähnt, mit steigender Fluenz ab (vgl. Abbildung 4.39), wobei sich ein linearer Zusammenhang zeigt. Dieser Abfall ist gemäß (4.7) für ein niedriges externes Feld vor allem durch die Temperaturabhängigkeit der Anisotropiekonstanten bestimmt. Die Abklingzeit nimmt bis zu einer Fluenz von $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$

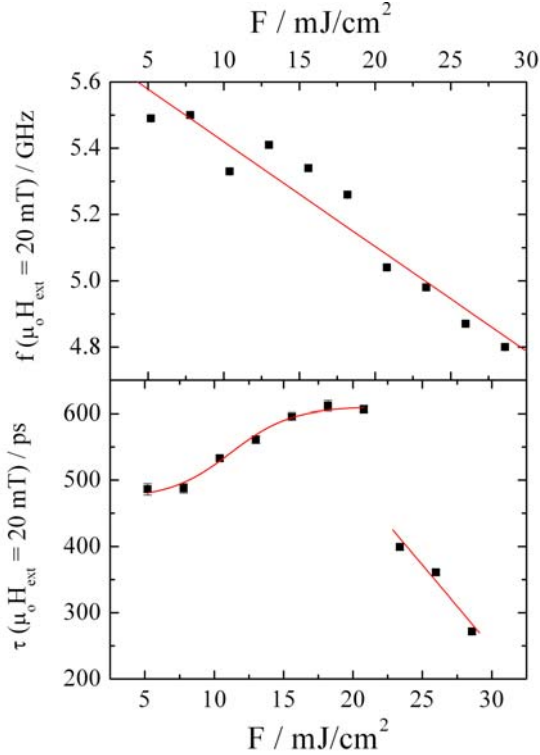


Abbildung 4.39: Frequenz und Abklingzeit der Präzession im $\text{CrO}_2(300 \text{ nm})$ -Film als Funktion der Pumpfluenz, $\mu_0 H_{\text{ext}} = 20 \text{ mT}$.

leicht zu. Eine sich mit der Temperatur abschwächende Dämpfung in Chromdioxid wird auch in ferromagnetischen Resonanzmessungen (Lubitz u. a. 2001) ermittelt. Überraschend ist allerdings der sprunghafte Anstieg der Dämpfung bei Fluenzen größer als $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$; dies deutet auf die Öffnung von weiteren Dissipationskanälen ab einer bestimmten Auslenkung aus der Gleichgewichtslage hin. Auf derartige Dissipationskanäle lässt sich auch der qualitativ unterschiedliche Dämpfungsverlauf ab $H_{\text{ext}} = 70 \text{ mT}$ für $F = 10 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ und $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ zurückführen (vgl. Abbildung 4.38). In der bereits zitierten Arbeit (Lubitz u. a. 2001) wird auch die in dieser Arbeit gemessene Dämpfungsanisotropie bestätigt, wobei ein Wert für den Gilbertdämpfungsparameter nur für die leichte Richtung mit $\alpha = 0,0023$ angegeben wird. Dieser Wert ist um eine Größenordnung niedriger als die hier bestimmten, wurde allerdings bei einer Resonanzfrequenz

von 35 GHz ermittelt, wobei erwähnt wird, dass für eine Resonanzfrequenz von 9,5 GHz, die dichter an den in dieser Arbeit gemessenen Frequenzen liegt, deutlich höhere Dämpfungen gemessen werden. Daraus ist zu schließen, dass die Dämpfung in diesem Experiment hochgradig extrinsischen Ursprungs ist⁵. Der optischen Pump-Abfrage-Experimenten zueigene extrinsische Mechanismus der Strahlungsdämpfung durch Emission von Spinwellen aus dem vom Abfragepuls erfassten Bereich kann allerdings ausgeschlossen werden. Wie von Eilers u.a. gezeigt wird, ist in Nickel dieser Mechanismus erst für Strahldurchmesser unter $1 \mu\text{m}$ von Bedeutung (Eilers u. a. 2006). Die in dieser Berechnung relevanten Größen, Sättigungsmagnetisierung und Spinwellensteifigkeit, liegen für CrO_2 mit $A = 6 \cdot 10^{-12} \frac{\text{J}}{\text{m}}$ und $\mu_0 M_s = 603 \text{ mT}$ denen in der zitierten Berechnung mit $A = 9 \cdot 10^{-12} \frac{\text{J}}{\text{m}}$ und $\mu_0 M_s = 616 \text{ mT}$ recht nahe.

⁵ Ferner ist in Abschnitt 2.2 gezeigt worden, dass in Experimenten, zu deren Auswertung unberechtigterweise die Makrospinnäherung angenommen wird, der Dämpfungsparameter systematisch überschätzt wird.

Laser-induzierte Dynamik in ferromagnetischen Nanostrukturen

Die Dynamik in ferromagnetischen Nanostrukturen ist in den letzten zehn Jahren zu einem großen Forschungsgebiet geworden. Die theoretische Berechnung der hier auftretenden Eigenmoden - also eine Lösung der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung - ist aufgrund der notwendigen Berücksichtigung der nicht-uniformen Austausch- und Entmagnetisierungsfelder eine komplizierte Aufgabe, die meist nur numerisch erfolgt. Die Messung der orts- und zeitaufgelösten Kerrdrehung von Hiebert u.a in einer tangential magnetisierten Permalloyscheibe mit einem Durchmesser von $8\ \mu\text{m}$, in der durch einen Feldpuls Dynamik induziert wurde, zeigte Hinweise auf nicht-uniforme Präzession (Hiebert u. a. 1997). Später konnten Buess u.a. in einem ähnlichen Aufbau - allerdings in einer Vortex-Konfiguration - mittels Fouriertransformation der orts- und zeitaufgelösten Kerrwinkel unmittelbar die angeregten Moden identifizieren (Buess u. a. 2004). Zur Bestimmung der Eigenfrequenzen einer magnetischen Nanostruktur eignen sich in besonderer Weise Messungen in der Frequenzdomäne wie ferromagnetische Resonanz (vgl. z.B. Neudecker u. a. 2006) und *Brioullin-Light-Scattering* (inelastische Streuung von Photonen an Magnonen, vgl. z.B. Gubbiotti u. a. 2003). Bei Experimenten in der Zeitdomäne werden zur Anregung der Dynamik fast ausschließlich Feldpulse verwandt.

In dieser Arbeit soll daher geprüft werden, ob auch im Zuge der ultraschnellen Entmagnetisierung durch einen Laserpuls magnetische Eigenmoden in Nanostrukturen angeregt werden können. Dazu werden keilförmige Nickelfilme mit ellipsen- und kreiszylindrischen Nanostrukturen untersucht. Diese Filme werden mittels Interferenzlithographie und Elektronenstrahlverdampfung präpariert (vgl. Abschnitt 5.1).

Von diesen Keilproben wird für unterschiedliche Schichtdicken nun jeweils die transiente Änderung der Kerrdrehung in longitudinaler Konfiguration und die

transiente Änderung der Reflexion gemessen. Dabei können Anfang und Ende des Keils über die Messung der Intensität des reflektierten Pumpimpulses bestimmt werden: Bis zu einem Sättigungsbereich steigt die Reflektivität mit der Schichtdicke. Bei diesen Messungen wird über eine Vielzahl von einzelnen Strukturen gemittelt: Eine Elementarzelle des mit Kreiszyklindern besetzten Quadratgitters hat einen Flächeninhalt von $(280 \text{ nm})^2$ (vgl. Abbildung 5.2), damit befinden sich in dem vom Abfragepuls erfassten Bereich (Durchmesser ca. $40 \mu\text{m}$) ungefähr 16000 Kreiszyklinder. Eine mögliche Wechselwirkung zwischen den einzelnen Nanostrukturen über Dipolfelder ist dabei ein zu berücksichtigender Faktor.

Bei den elliptischen Strukturen soll insbesondere auf die Abhängigkeit der Magnetisierungsdynamik von der Polarisation des Pumpstrahls geachtet werden (Abschnitt 5.3). Bei den Kreisstrukturen sind in der Hauptsache die angeregten magnetischen Moden von Interesse (Abschnitt 5.2). Zur Identifikation der angeregten Moden wird daher ausführlich die Dynamik mit Hilfe von mikromagnetischen Simulationen untersucht und mit den theoretischen Berechnungen aus der Literatur verglichen. Alle Messungen in diesem Abschnitt erfolgen mit einer Pumpfluenz von $F = 20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$. Bei den Messungen in den elliptischen Strukturen wird sorgfältig darauf geachtet, dass das äußere Magnetfeld parallel zur langen Achse der Ellipsen liegt.

Im Laufe dieser Arbeit wurden zwei Arbeiten publiziert, in denen die magnetische Präzessionsdynamik in Nanostrukturen durch einen Laserpuls induziert wird: Barman u.a. haben zeitaufgelöste Kerrmessungen an einzelnen Nanostrukturen in Vortexkonfiguration durchgeführt, wobei das Messsignal mittels Vielfachreflexion erhöht wurde, und konnten eine Änderung der Frequenz mit dem Strukturdurchmesser nachweisen (Barman u. a. 2006). Comin u.a. führten - wie in dieser Arbeit - optische Pump-Abfrage-Experimente an großflächig nanostrukturierten, tangential magnetisierten, ferromagnetischen Filmen durch (Comin u. a. 2006). Die angeregten magnetischen Moden weisen allerdings nicht die für Eigenmoden einzelner Nanostrukturen erwarteten Eigenschaften auf. Ihre Ergebnisse werden teilweise in den folgenden Abschnitten erwähnt.

5.1 Die Probenpräparation

Die verwendeten Proben sind mit Hilfe von Interferenzlithographie präpariert worden, das die zur Keilherstellung benötigte großflächige Strukturierung (Größenordnung cm^2) ermöglicht. Der Lithographieprozess erfolgt am Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik in der Forschungsgruppe von Dr. Kornelius Nielsch. Als Substrat wird thermisch oxidiertes Silizium(100) verwandt. Auf das Substrat wird eine Antireflexionsschicht (WiDE-B ARC, Brewer Science) und Negativphotolack (TSMR-iN027, Ohka Company) aufgetragen. Mit Hilfe eines He-Cd-Lasers mit einer Wellenlänge von 325 nm wird auf dem Photolack ein Interferenzbild erzeugt. Dafür fällt der aufgeweitete Laserstrahl auf ein sogenanntes Lloyds-Spiegel-Interferometer, so dass zwei Lichtbündel unter einem

Winkel von $\pm\theta$ auf den Film fallen. Die Periodizität $\lambda/(2 \sin \theta)$ des Interferenzbildes ist damit durch die Wellenlänge und den Einfallswinkel gegeben. Durch weitere Belichtung nach Drehung des Substrats ist ein zweidimensionales Gitter auf dem Photolack belichtet, das an den Kreuzungspunkten aufgrund der sinusförmigen Intensitätsverteilung abgerundet ist. Nach der Belichtung werden die Proben entwickelt (Entwickler AZ726 MIF, Microchemicals), so dass nur der belichtete Photolack zurückbleibt. Diese Filme erhalten wir zur weiteren Prozessierung. Nähere Informationen zur Interferenzlithographie, sowohl speziell für die vorliegenden Proben als auch allgemein, finden sich in der Literatur (Moralejo u. a. 2007 und Martin u. a. 2003).

Die Metallabscheidung erfolgt mittels Elektronenstrahlverdampfung in einer Ultrahochvakuumkammer. Nähere Angaben zu den Elektronenstrahlverdampfern und der Vakuumkammer finden sich in der Diplomarbeit von Eilers (Eilers 2004). Zur Präparation von Keilproben befindet sich ein über ein Schrittmotor steuerbarer Shutter zwischen Probenhalter und dem Verdampfer, so dass durch Synchronisation der Schrittmotorsteuerung (Schrittweite ca. $2,5 \mu\text{m}$) mit der über einen Schwingquarz bestimmten Wachstumsrate keilförmige Filme mit einer typischen Steigung von einigen nm/mm gewachsen werden können. Der Basisdruck in der Kammer liegt bei $p < 5 \cdot 10^{-10}$ mbar. Kontinuierliche Filme zeigen typische Rauigkeiten von unter 5 \AA . Die vorliegenden Negativstrukturen werden mit einer Rate von ca. $0,5 \text{ \AA/s}$ mit Nickel bedampft. Anschließend wird eine Deckschicht von 2 nm MgO gewachsen. Zum Liftoff werden die Proben nach der Metallabscheidung für ca. eine Minute in heißes ($> 100^\circ$) 1-Methyl-2-Pyrrolidinon getaucht; anschließend wird die Probe bis zu zwanzig Minuten einem Ultraschallbad in Propanol ausgesetzt. Dieser Vorgang wird, falls nötig, wiederholt. Dieses Verfahren hat sich als am erfolgreichsten erwiesen.

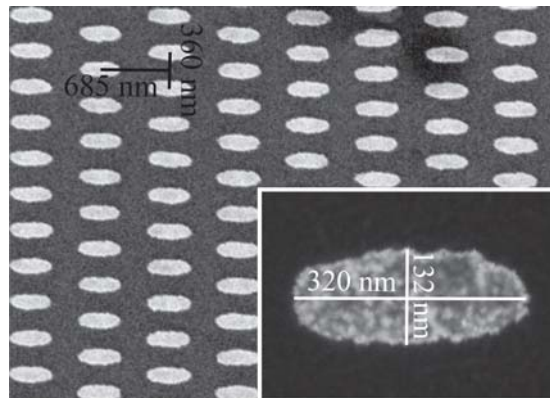


Abbildung 5.1: Rasterelektronenmikroskopbilder der elliptischen Nickelnanostrukturen; bei den angegebenen Dimensionen handelt es sich um gemittelte Werte.

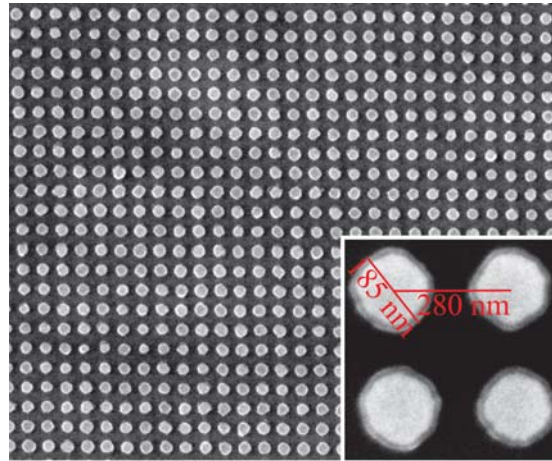


Abbildung 5.2: Rasterelektronenmikroskopbilder der kreisförmigen Nickelnanostrukturen; bei den angegebenen Dimensionen handelt es sich um gemittelte Werte.

Im Folgenden werden die Messergebnisse von zwei Proben diskutiert: Bei der ersten Probe handelt es sich um ein Feld von Zylindern mit elliptischer Grundfläche (Achsen: 320 nm und 132 nm, vgl. Abbildung 5.1). Die Dicke des Nickelfilms wird bei einer Steigung von 4 nm/mm zwischen 2 nm und 26 nm variiert. Bei der zweiten Probe handelt es sich um ein Feld von quadratisch angeordneten Kreiszyklindern (Durchmesser 185 nm, Periodizität 280 nm, vgl. Abbildung 5.2). Die Dicke des Films wird bei einer Steigung von 5 nm/mm zwischen 2 nm und 42 nm variiert.

5.2 Kreisstrukturen

5.2.1 Theoretisches Modenspektrum für flache Kreiszyklinder

Der Grundzustand eines flachen, tangential magnetisierten Kreiszyklinders wird zwar als *single-domain*-Zustand bezeichnet; tatsächlich ist aber auch bei sehr hohen externen Feldern durch die Minimierung der Streufeldenergie die Magnetisierung an den Grenzen des Zylinders eingeklappt (vgl. Abbildung 5.3). Diese Magnetisierungskonfiguration wird in der Literatur als *onion*-Zustand bezeichnet (Höllinger 2004). Für Kreiszyklinder mit hinreichend kleinem Aspektverhältnis $\beta = \frac{d}{D}$ stellt er auch bei verschwindendem äußeren Feld die Konfiguration niedrigster Energie dar; mit dem Aspektverhältnis steigt allerdings die Streufeldenergie dieses Zustandes, so dass ab einem β_{krit} eine Vortex-Konfiguration mit verschwindendem Entmagnetisierungsfeld am Zylinderrand, aber einem relativ hohen Austauschenergiebeitrag für den Vortextkern energetisch günstiger wird.

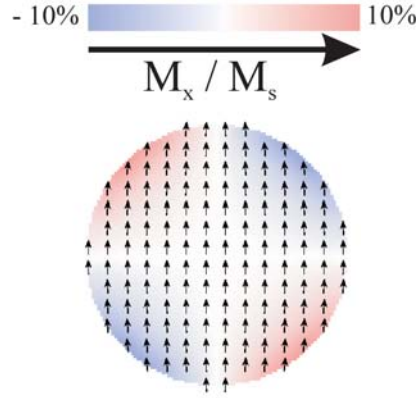


Abbildung 5.3: *onion*-Zustand der Magnetisierung eines flachen Nickelkreiszylinders.

Ein hinreichend großes äußeres Feld drückt den Vortexkern aus dem Zylinder (vgl. Abschnitt 5.2.2).

Die Lösung der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung für einen solchen *onion*-Zustand ist analytisch nicht ohne gravierende Näherungen möglich. Kritisch ist hier besonders die örtliche Variation des Entmagnetisierungsfeldes (vgl. Abbildung 5.5). Slavin und Gusilenko haben im Rahmen einer Linearisierung der Landau-Lifschitz-Gleichung (ohne Berücksichtigung der Dämpfung) und mit einer Vielzahl von Näherungen - vor allem für das Entmagnetisierungsfeld - die Normalmoden eines solchen Zustandes angegeben (Gusilenko u. Slavin 2000). Der Radialteil einer Lösung $\Delta \mathbf{M}_{mn} = \mathbf{M}_{mn} - \mathbf{M}_0$ ist durch die m te Besselfunktion $J_m(\alpha_{mn}\rho/R)$, die azimutale Variation durch $\exp(-im\phi)$ gegeben. Die Eigenfrequenzen können in diesem Rahmen angegeben werden als (vgl. Höllinger 2004, S. 80f)

$$\omega_{mn} = \gamma_0 \sqrt{H_{\text{ext}} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \alpha_{mn}^2 - M_s \left[\frac{\beta}{2} + \frac{1}{2} f(2\beta\alpha_{mn}) \right]} \cdot \sqrt{H_{\text{ext}} + \frac{2A}{\mu_0 M_s} \alpha_{mn}^2 + M_s \left[1 - \frac{\beta}{2} - f(2\beta\alpha_{mn}) \right]}, \quad (5.1)$$

wobei $f(x) = 1 - (1 - \exp(-x))/x$ das statische Entmagnetisierungsfeld beschreiben soll. Auch wenn in diese Ableitung zu starke Näherungen eingegangen sind, so eignet sich dieser analytische Ausdruck doch zur Veranschaulichung wichtiger Eigenschaften der Magnetisierungsdynamik in Nanostrukturen, die sowohl von der Dipol- als auch von der Austauschwechselwirkung bestimmt ist: So fällt (5.1) im Grenzfall $\beta \rightarrow 0$ mit dem für einen dünnen Film bestimmten Ausdruck (3.23) zusammen, da die Beiträge vom nicht-uniformen Austauschfeld und vom statischen Entmagnetisierungsfeld gegen null gehen. Die z -Komponente des dy-

namischen Entmagnetisierungsfeldes nähert sich in diesen Grenzfall dem Wert M_s . Für die Eigenmoden des Zylinders sind nach (5.1) folgende Abhängigkeiten zu erwarten: Die jeweiligen Frequenzen sollten mit steigendem Aspektverhältnis fallen. Eigenmoden hoher Symmetrie (niedriges α_{mn}) sollten Frequenzen unterhalb der Frequenz eines dünnen Films (3.23) besitzen.

Zivieri und Stamps konnten zeigen (Zivieri u. Stamps 2006), dass der Produkansatz für $\Delta\mathbf{M}$ von Slavin und Gusilenko nicht für das Problem geeignet ist. Stattdessen wählten sie zur Beschreibung verschiedener Arten von Eigenmoden unterschiedliche Ansätze. Sie unterscheiden zwischen Damon-Eshbach-artigen Moden, die sich durch Oszillationen hauptsächlich senkrecht zur Magnetisierungsrichtung auszeichnen, *backward*-artigen Moden, bei denen die Oszillationen vornehmlich in Richtung der Magnetisierungsrichtung stattfinden, gemischten Moden, die keine ausgezeichnete Richtung aufweisen, und Endmoden, bei denen an den Enden der Struktur die größte Oszillationsamplitude vorliegt. Es zeigt sich, dass eine Endmode die niedrigste Frequenz aufweist und alle rein *backward*-artigen Moden unterhalb der Frequenz des Dünnschichtgrenzfalls liegen, während alle Damon-Eshbach-Moden darüber liegen. Die Frequenzen der Damon-Eshbach-Moden steigen monoton mit dem Aspektverhältnis, während die *backward*-artigen Moden fallen. Zu erklären ist dieses Verhalten damit, dass die Frequenzen der letzteren Moden stark von der z -Komponente des Entmagnetisierungsfeldes abhängen, das mit β fällt, während erstere von den Komponenten des Entmagnetisierungsfeldes in der Ebene abhängen, die mit dem Aspektverhältnis wachsen.

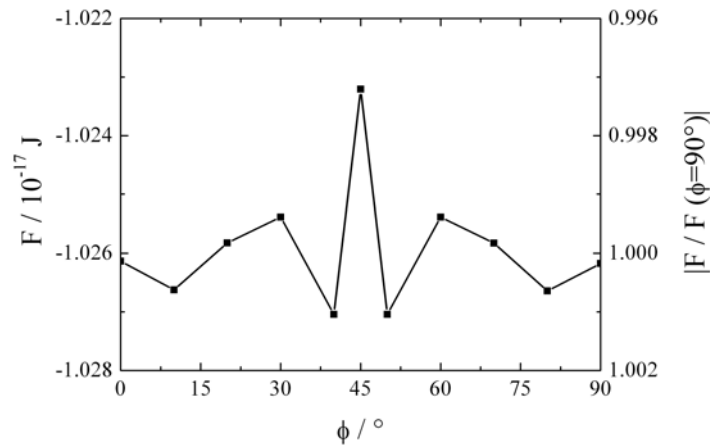


Abbildung 5.4: Diskretisierungsanisotropie: Energie als Funktion der Magnetisierungsrichtung in der Kreisebene, $d = 4 \text{ nm}$, $D = 185 \text{ nm}$.

Zur Berechnung des Modenspektrums der vorliegenden Kreiszyylinder ($d = 4\text{--}40 \text{ nm}$, $D = 185 \text{ nm}$) wird die Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung numerisch in

einer mikromagnetischen Simulation integriert. Dazu wird das Probenvolumen in diskrete Volumina eingeteilt. In jedem Integrationsschritt werden sämtliche Beiträge zum effektiven Feld (vgl. Abschnitt 2.1) für jede Zelle ausgerechnet. Dabei sind die Beiträge der Austausch-, der Anisotropie- und der Zeeman-Energie zum effektiven Feld auf einen lokalen Bereich beschränkt. Die Berechnung des Entmagnetisierungsfeldes erhöht den Rechenaufwand ungemein, da die Wechselwirkung über die Dipolfelder weitreichender ist. In dieser Arbeit wird für die mikromagnetischen Simulationen der OOMMF-Code (Donahue u. Porter 1999) verwendet. Hier stehen zur numerischen Integration unterschiedliche Algorithmen zur Verfügung; in dieser Arbeit wird ausschließlich der Runge-Kutta-Algorithmus genutzt. Die gewählte Zellgröße beträgt $3 \text{ nm} \times 3 \text{ nm} \times 4 \text{ nm}$, wobei geprüft worden ist, dass sowohl ein etwas feineres als auch ein etwas größeres Gitter die Ergebnisse nicht verändern. Als Parameter für Nickel werden die in dieser Arbeit bereits zitierten Materialkonstanten für Raumtemperatur $\mu_0 M_s = 609 \text{ mT}$, $g = 2,21$, $A = 9 \cdot 10^{-12} \text{ J/m}$ und $K_1 = -5,7 \cdot 10^3 \text{ J/m}^3$ verwendet. Die leichte Achse wird dabei, um den polykristallinen Charakter der Proben widerzuspiegeln, für jede Zelle als zufällig angenommen, wobei jegliche Raumrichtung gleich wahrscheinlich ist. Der Gilbert-Dämpfungsparameter wird mit $\alpha = 0,01$ sehr klein gewählt, so dass die einzelnen Moden möglichst ausgeprägt sind. Aus der Einteilung des Probenvolumens in Quader resultiert eine Diskretisierungsanisotropie. Um ihre Größe zu ermitteln, wird die Gesamtenergie eines 4 nm Zylinders als Funktion des Azimutwinkels berechnet (vgl. Abbildung 5.4). Die Größeneinteilung der Abszisse beträgt auf das Volumen der Probe umgerechnet ungefähr $90 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$, damit ist die Diskretisierungsanisotropie deutlich kleiner als die Kristallanisotropie und kann daher vermutlich vernachlässigt werden. Für die weiteren Simulationen wird das äußere Feld in y -Richtung ($\phi = 90^\circ$) angelegt. Die statischen Eigenschaften der Zylinder in Abhängigkeit ihrer Höhe werden im nächsten Abschnitt zusammen mit den Hysteresemessungen diskutiert. In der mikromagnetischen Simulation wird ein Anregungsmechanismus gewählt, der dem des Experiments entspricht: Der Anfangszustand wird aus dem Grundzustand errechnet, indem die Magnetisierungsrichtungen der einzelnen Zellen statistisch so gegeneinander verdreht werden, dass die gesamte Magnetisierung der Struktur um ein Prozent reduziert ist. Aus dieser Entmagnetisierung resultiert eine Reduktion des Entmagnetisierungsfeldes, das hauptsächlich in Richtung der $-y$ -Achse zeigt (vgl. Abbildung 5.5). Damit resultiert aus der Entmagnetisierung ein Anisotropiefeldpuls in die y -Richtung. Allerdings sind innerhalb der Probe Puls und Gleichgewichtsmagnetisierung parallel, so dass hier der Puls keine Dynamik anregen kann. Hauptsächlich am Rand der Probe sollte daher präzessionelle Dynamik angeregt werden. Zur Identifikation der angeregten Moden wird nun die x -Komponente der numerisch errechneten, diskreten Lösung der Magnetisierung $M_x(\mathbf{r}_j, t_m)$ ($m = 1, \dots, N$) für jede Zelle j einzeln fourier-

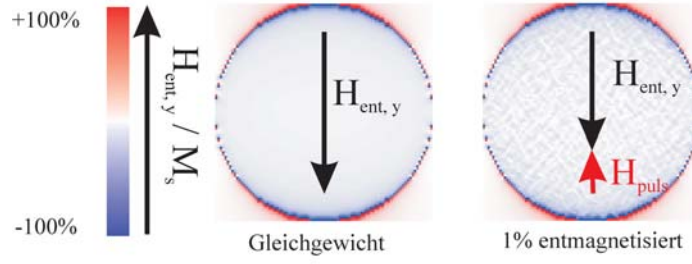


Abbildung 5.5: Formanisotropiefeldpuls durch Entmagnetisierung, $d = 4$ nm, $D = 185$ nm.

transformiert:

$$M_x(\mathbf{r}_j, f_n) = \frac{1}{N} \sum_m M_x(\mathbf{r}_j, t_m) \exp(-i2\pi mn/N). \quad (5.2)$$

Das Betragsquadrat der Fouriertransformierten $|M_x(\mathbf{r}_j, f_n)|^2$ gibt für eine mögliche Oszillation der Frequenz f_n ein Maß für die Amplitude an der Stelle \mathbf{r}_j an. Die jeweiligen Frequenzen der Eigenmoden sind die Maxima der Funktion $S(f_n) = \sum_j |M_x(\mathbf{r}_j, f_n)|^2$. Sie ist für einen 8 nm hohen Zylinder in einem externen Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 130$ mT dargestellt (Abbildung 5.6). Zu den jeweiligen Eigenfrequenzen f_i ist $|M_x(\mathbf{r}_j, f_i)|^2$ abgebildet. Tatsächlich werden - wie gemäß des Anregungsmechanismus erwartet - hauptsächlich Randmoden angeregt. Die Mode 1 ist auch von Zivieri und Stamps als Mode niedrigster Energie identifiziert worden (Zivieri u. Stamps 2006). Die Frequenz im Grenzfall eines dünnen Films liegt nach (3.23) bei 8,7 GHz. Tatsächlich tritt unterhalb dieser Frequenz nur die Mode 1 auf, die entsprechend Zivieri und Stamps Oszillationen nur entlang der Magnetisierungsrichtung aufweist. Im Wesentlichen treten die gleichen Moden auch bei anderen Schichtdicken auf; die Mode 1 ist für alle Dicken von 4 nm bis 40 nm die dominierende; ihre Frequenz fällt genauso wie die der Mode 2 mit steigender Schichtdicke (vgl. Abschnitt 5.2.4). In den Simulationen gibt es für keine Schichtdicke Anzeichen für Moden, die eine deutliche Variation der Amplitude oder gar eine Knotenebene entlang der z -Achse aufweisen. Falls solche Oszillationen überhaupt mit dem hier verwandten Anregungsmechanismus induziert werden, sollten sie eine deutlich niedrigere spektrale Intensität besitzen. Diese Moden sind im Übrigen in den oben zitierten Quellen auch nicht theoretisch behandelt worden.

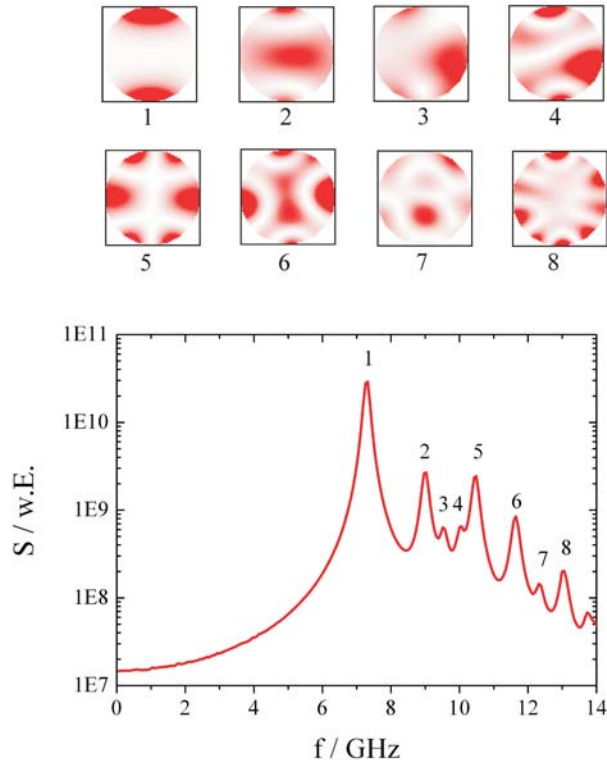


Abbildung 5.6: Modenspektrum für einen 8 nm hohen Nickelzylinder in einem Magnetfeld von $\mu_0 H_{ext} = 130$ mT in der Ebene, $D = 185$ nm.

5.2.2 Statische Messungen

In Abbildung 5.7 sind für einige Schichtdicken exemplarisch Hysteresekurven dargestellt. Zwischen den Kurven für $d = 16$ nm und $d = 20$ nm zeigt sich ein deutlicher qualitativer Unterschied. Das äußere Feld, das zur Sättigung der Magnetisierung aufgewandt werden muss, steigt ab dieser Schichtdicke sprunghaft an (vgl. Abbildung 5.8). Diese Hysteresemessungen zeigen, dass für die Zylinder ab einer Schichtdicke zwischen $d = 16$ nm und $d = 20$ nm, der *Onion*-Zustand nicht mehr der Gleichgewichtsmagnetisierung für ein verschwindendes äußeres Feld entspricht. Stattdessen wird hier, wie im Abschnitt 5.3 erläutert, um die Entmagnetisierungsenergie zu reduzieren, eine Vortexkonfiguration eingenommen. In Abbildung 5.9 wird mit Hilfe der Ergebnisse von mikromagnetischen Simulationen der Verlauf der Hystereseschleifen für $d = 8$ nm bzw. $d = 40$ nm erläutert: Während im ersten Fall die Hystereseschleife über kohärente Rotation der Magnetisierung zu erklären ist, so bildet sich im zweiten Fall ein Vortekern, der durch Erhöhung des angelegten Feldes aus der Struktur gedrückt wird.

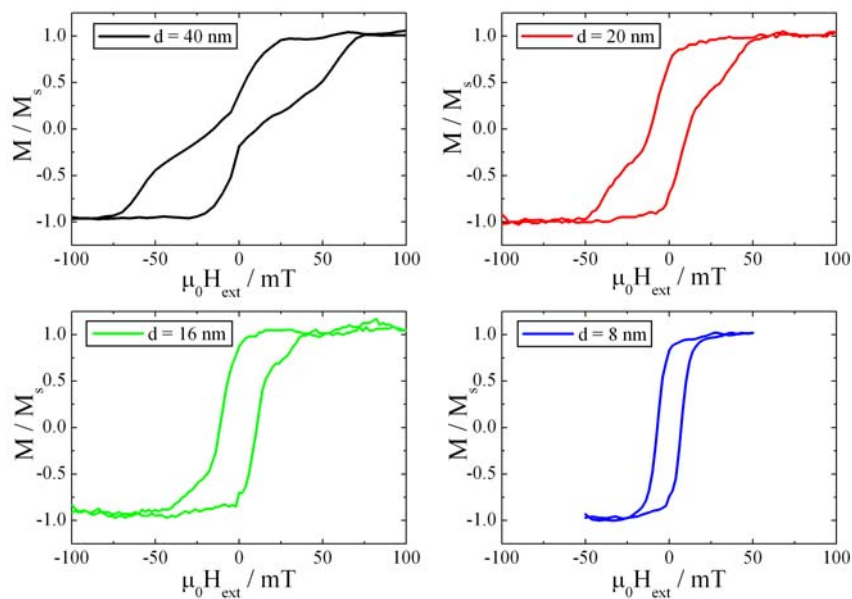


Abbildung 5.7: Hystereseschleifen für unterschiedliche Nickelschichtdicken, $D = 185 \text{ nm}$.

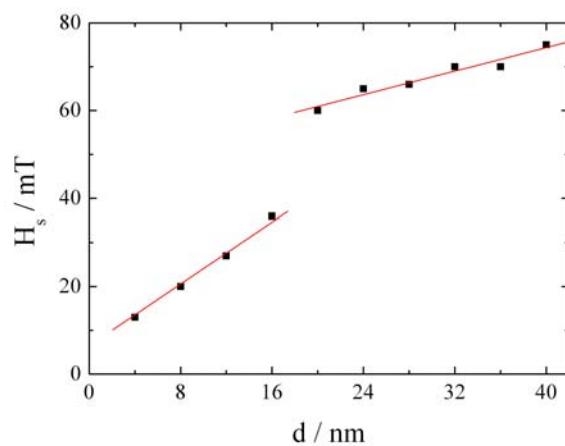


Abbildung 5.8: Sättigungsfeld als Funktion der Schichtdicke des Nickels.

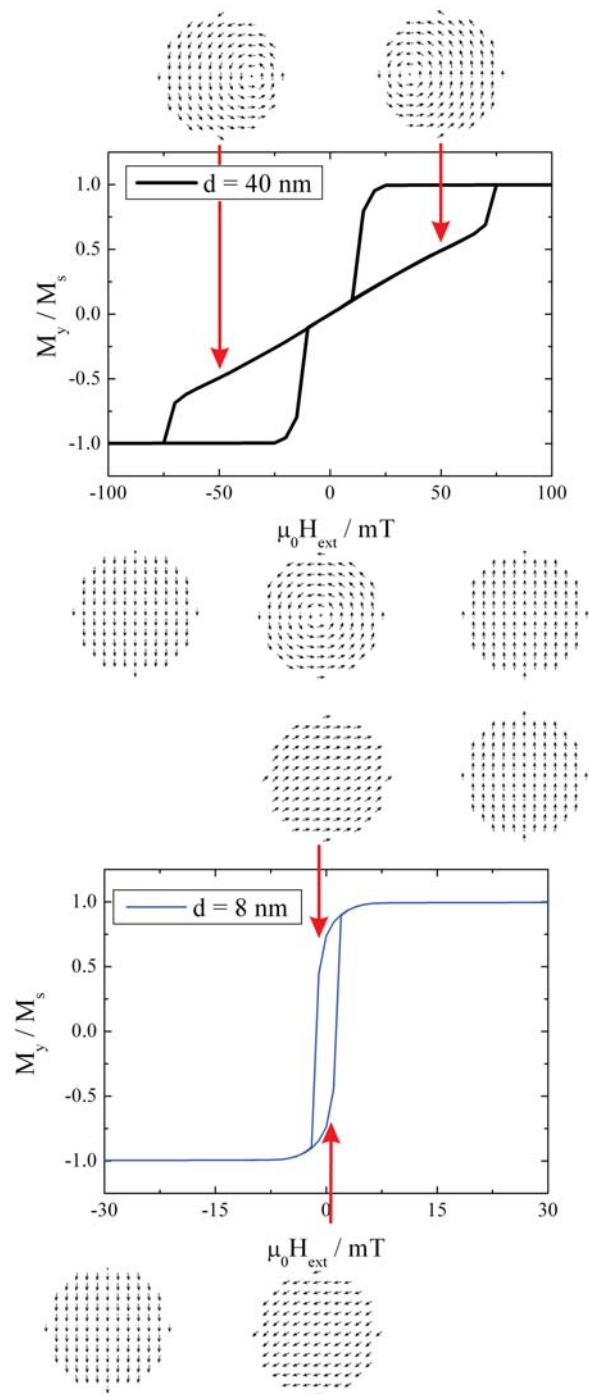


Abbildung 5.9: Simulierte Hystereseschleifen für einen 8 nm und einen 40 nm dicken Nickelkreiszyylinder, $D = 185 \text{ nm}$.

5.2.3 Transiente Reflektivitätsänderung

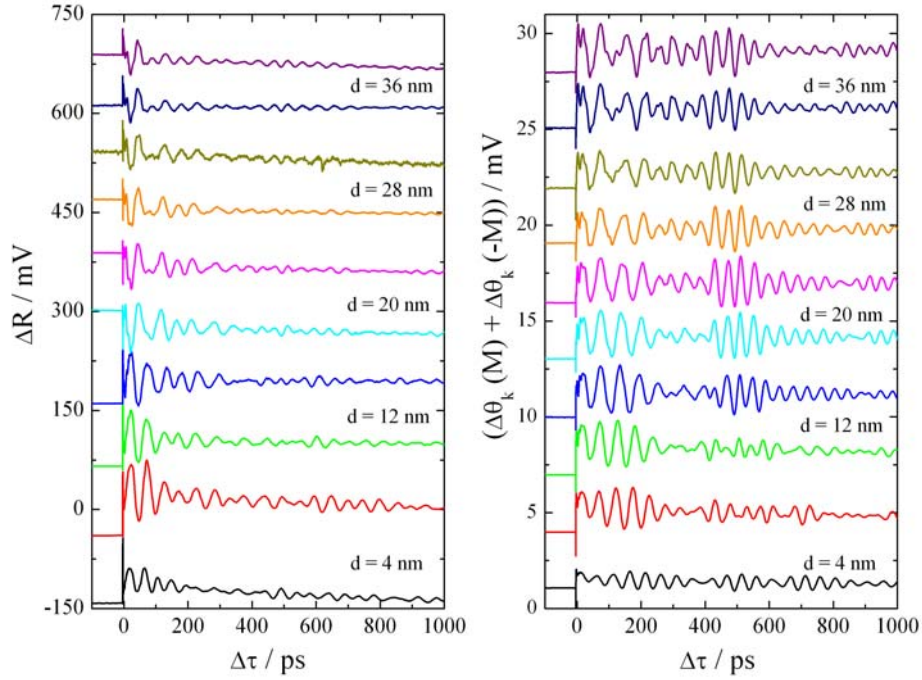


Abbildung 5.10: Transiente Änderung der Reflexion und Summe der transienten Änderung der Kerrdrehung für $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 200 \text{ mT}$ (Nickelkreiszyylinder: $D = 185 \text{ nm}$, $p = 280 \text{ nm}$).

Die transiente Änderung der Reflektivität für die jeweiligen Schichtdicken der Kreiszyylinder von $d = 4 \text{ nm}$ bis $d = 40 \text{ nm}$ ($D = 185 \text{ nm}$, $p = 280 \text{ nm}$) ist in Abbildung 5.10 dargestellt. Es zeigt sich, dass die Probe eine oszillatorische Reflektivitätsänderung aufweist. Dieses Verhalten kann durch die Erzeugung von sich zeitlich ändernden elastischen Spannungen im System Nickel-Siliziumoxid erklärt werden: Die optische Eindringtiefe in Nickel beträgt für die verwendete Wellenlänge $\delta_{\text{Ni}} = 14 \text{ nm}$ (vgl. Abschnitt 3.3.1), während sie für Silizium bei $\delta_{\text{Si}} \approx 13 \mu\text{m}$ liegt (optische Konstanten nach Gray 1972) und die Absorption in der Oxidschicht zu vernachlässigen ist. Die Lichtabsorption im Substrat ist damit gegenüber der in den Nickelzylindern vernachlässigbar gering. In den Nickelzylindern bilden sich durch die Erwärmung infolge der Absorption des Pumpimpulses akustische Moden aus; durch die Kopplung an das Substrat laufen damit Spannungswellen in dieses (vgl. Abbildung 5.12). Die angeregten Moden und die Spannungswellen im Substrat, die eine stehende Welle bilden, ändern die optischen Eigenschaften des Nickelfilms, so dass die Reflektivität des Films mit den entsprechenden Frequenzen moduliert ist. Den in dem Substrat ausgebil-

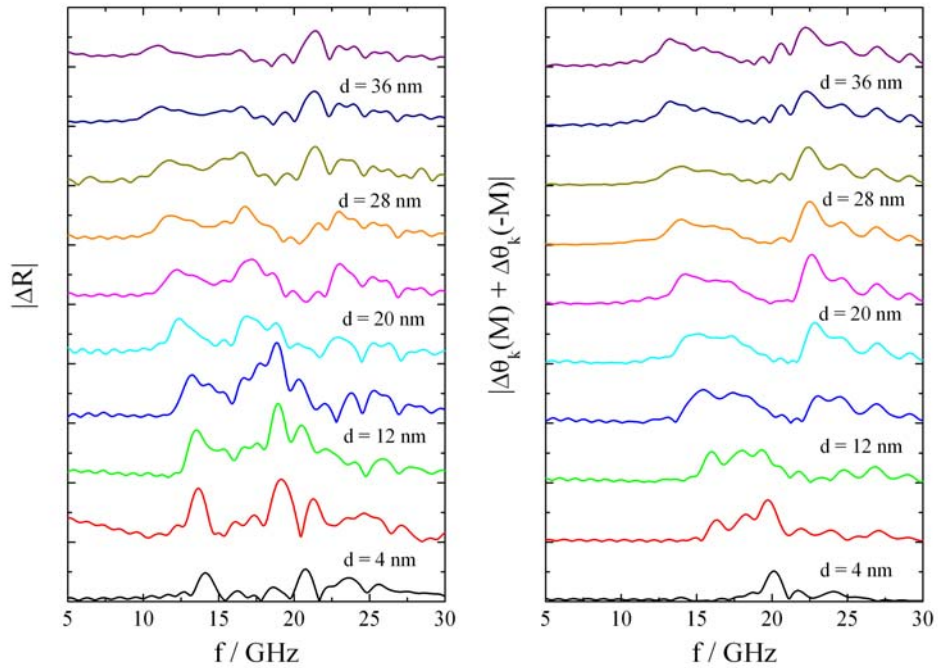


Abbildung 5.11: Änderung der Reflexion und Summe der transienten Änderung der Kerrdrehung für $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 200 \text{ mT}$ nach Fouriertransformation (Nickelkreiszyylinder: $D = 185 \text{ nm}$, $p = 280 \text{ nm}$).

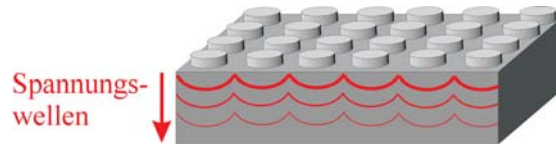


Abbildung 5.12: Propagation von Spannungswellen in das Substrat und Ausbildung einer stehenden Oberflächenwelle.

deten stehenden akustischen Oberflächenwellen (*surface acoustic waves*, SAW), auch als Rayleigh-Wellen bezeichnet, kann in einem einfachen Bild für die niedrigste Ordnung die Frequenz

$$f_{\text{SAW}} = \frac{v_{\text{SAW}}}{p} \quad (5.3)$$

zugewiesen werden. Dabei ist $v_{\text{SAW}} = 3410 \text{ m/s}$ die Geschwindigkeit der Rayleigh-Wellen in SiO_2 und $p = 280 \text{ nm}$ die Periodizität des Gitters; der Formel liegt die Tatsache zugrunde, dass sich im Substrat in niedrigster Ordnung jeweils unter den Kreiszyklindern ein Bauch der Spannungswelle befindet (Lin u. a.

1993). Dies entspräche einer Frequenz von ungefähr 12 GHz. Tatsächlich liegt im Fourierspektrum¹ der Reflexionsänderung in Abbildung 5.11 für $d = 4$ nm ein Maximum bei ungefähr 14 GHz. Die Diskrepanz zwischen diesen beiden Werten von 10 bis 20% findet sich auch in ähnlichen Messungen in der Literatur (vgl. z.B. Hurley u. Telschow 2002 und Lin u. a. 1993). In diesem einfachen Bild kann die recht große spektrale Breite dieser Oszillationen mit der großen Ausdehnung der Strukturen im Vergleich zur Wellenlänge der stehenden Oberflächenwelle erklärt werden. Dieses einfache Modell ist jedoch problematisch: Lin u. a. (Lin u. a. 1993) schätzen die Eindringtiefe der Oberflächenwelle unter einem Gitter der Periodizität p mit $p/2\pi$ ab². Damit ist die Masse des an der Oszillation beteiligten Nickels größer als die Masse des beteiligten Siliziums, und dieses oben verwandte Bild erscheint nicht mehr gerechtfertigt. Stattdessen muss tatsächlich korrekterweise ein aus dem Substrat und den Nickelzylindern gekoppeltes System betrachtet werden. Daher nimmt die beobachtete Frequenz dieser gekoppelten Mode auch mit steigender Schichtdicke ab (vgl. Lin u. a. 1993). Eine weitere Mode resultiert laut Lin u. a. (Lin u. a. 1993) aus der Interferenz zwischen Licht des Abfragepulses, das an den Metallzylindern reflektiert wird, und Licht des Abfragepulses, das an der in das Substrat hinein propagierenden Spannungswelle in der Tiefe $v_1\Delta\tau$ reflektiert wird (vgl. Abbildung 5.13), dabei ist v_1 die longitudinale Schallgeschwindigkeit des Substrats. Die Frequenz liegt danach bei

$$f = \frac{2v_1 ((\Re n)^2 - \sin^2 \phi_i)}{\lambda}, \quad (5.4)$$

wobei $\phi_i \approx 30^\circ$ der Einfallswinkel des Abfragepulses gegen die Normale ist und n der Brechungsindex des Substrats ist. Mit $\Re n = 1,54$ für kristallines Quarz bei einer Wellenlänge von 800 nm (Gray 1972) und $v_1 = 5970$ m/s (Lin u. a. 1993) ist nach dieser Formel der reflektierte Anteil des Abfragepulses mit einer Frequenz von 21,7 GHz moduliert. Die in das Substrat propagierende Welle verlässt allerdings schon nach ca. 20 ps die Siliziumoxidschicht und tritt in das Silizium ($\Re n = 2,53$ und $v_1 = 8900$ m/s) ein. Damit sollte das beobachtete Frequenzmaximum zu größeren Frequenzen hin verbreitert sein. Im Fourierspektrum der Reflektivität (Abbildung 5.11) zeigt sich durchgängig für alle Schichtdicken ein breites Maximum bei 20 bis 22 GHz; die zugehörigen Oszillationen im Zeitraum (Abbildung 5.10) mit einer Periode von ca. 50 ps finden in den ersten 100 ps statt und werden stark gedämpft. Der Ursprung der übrigen Maxima in den

¹Für die diskrete Fouriertransformation der Messwerte wird - wie für alle weiteren Fouriertransformationen in diesem Kapitel - ein etwaiger thermischer Hintergrund zuvor abgezogen. Die Fouriertransformation der N diskreten Messwerte $I(t_m)$ erfolgt über

$$I(f_n) = \frac{1}{N} \sum_m I(t_m) H(t_m) \exp(-2\pi i m n / N),$$

wobei $H(t)$ die Hamming-Fensterfunktion darstellt, durch deren Verwendung eine deutlich bessere Auflösung im niedrigen Frequenzbereich erzielt wird.

²So ist es auch erlaubt, die akustische Oberflächenwelle ausschließlich in der ca. 100 nm dicken SiO₂-Schicht und nicht im Silizium anzunehmen.

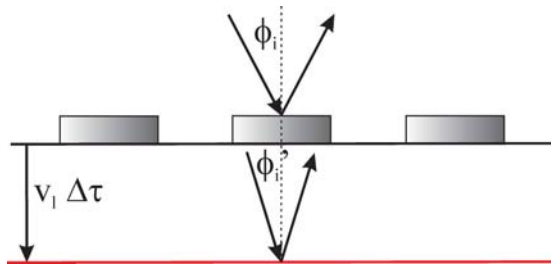


Abbildung 5.13: Reflexion des Abfragepulses am Metallfilm und an der Spannungswelle (rot).

Reflektivitätsspektren kann nicht geklärt werden, ist aber eventuell auf höhere Eigenmoden des Nickel-Siliziumoxid-Systems zurückzuführen.

5.2.4 Transiente Änderung der Kerrdrehung

Es zeigt sich, dass der in Abschnitt 5.2.1 beschriebene Mechanismus zur Induktion der präzessionellen Dynamik in den kreiszylindrischen Nanostrukturen ($D = 185 \text{ nm}$, $p = 280 \text{ nm}$), der in mikromagnetischen Simulationen ein reiches Modenspektrum anregt, im Experiment nicht stark genug ist. Daher wird, wie auch für kontinuierliche Filme (vgl. Abschnitt 3.3.2), das äußere Feld in einem Winkel von 30° gegen die Probenoberfläche gedreht. Die Summe der transienten Kerrdrehungen für beide Feldrichtungen $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 200 \text{ mT}$, die nach (3.8) der Reflektivität entsprechen sollte, ist in Abbildung 5.10 und als Fourier-transformierte in Abbildung 5.11 dargestellt. Diese Äquivalenz ist jedoch nicht gegeben. Nach Hurley und Telschow (Hurley u. Telschow 2002) hängt die mit einem Abfragepuls gemessene Reflektivitätsänderung einer solchen Nanostruktur aufgrund von optisch angeregten akustischen Oberflächenwellen auch von der Polarisierung des Lichts ab, welche bei der Messung der Kerrdrehung moduliert wird. Allerdings sollte eine Änderung der jeweiligen Polarisierungsebene lediglich die spektrale Intensität einzelner Moden und nicht die Frequenzen dieser Moden verändern. Die Mode niedrigster Frequenz in Abbildung 5.11, die eine deutliche Abhängigkeit von der Schichtdicke zeigt, liegt im rechten Graphen bei deutlich höheren Frequenzen als im linken Graphen. Das Spektrum der Summe der transienten Kerrdrehungen hängt im Übrigen aber nicht vom Betrag des äußeren Feldes ab. Diese Beobachtungen ließen sich mit einer magnetischen Mode erklären, die über magneto-elastische Wechselwirkung (vgl. Abschnitt 2.1) so stark an die phononischen Moden des Systems gekoppelt ist, dass in dem Experiment keine Abhängigkeit vom äußeren Feld aufgelöst werden kann und der Feldpuls, der effektiv die Anregung beschreibt, sich nicht mit der Magnetisierung umdreht (vgl. Abbildung 4.32 und die dazugehörigen Ausführungen). Eine Kopplung zwischen den phononischen und magnetischen Moden einer Nano-

struktur wird auch von Tsoi u.a. (Tsoi u. a. 2002) zur Erklärung von Resonanzen des differentiellen elektrischen Widerstandes herangezogen. Ebenso weisen auch Comin u.a in ihrer hier bereits zitierten Veröffentlichung (Comin u. a. 2006) auf eine solche mögliche Kopplung in einem optischen Pump-Abfrage-Experiment hin. Auch die hier vorliegenden Messdaten lassen allerdings keine eindeutige Deutung bezüglich dieser Kopplung zu.

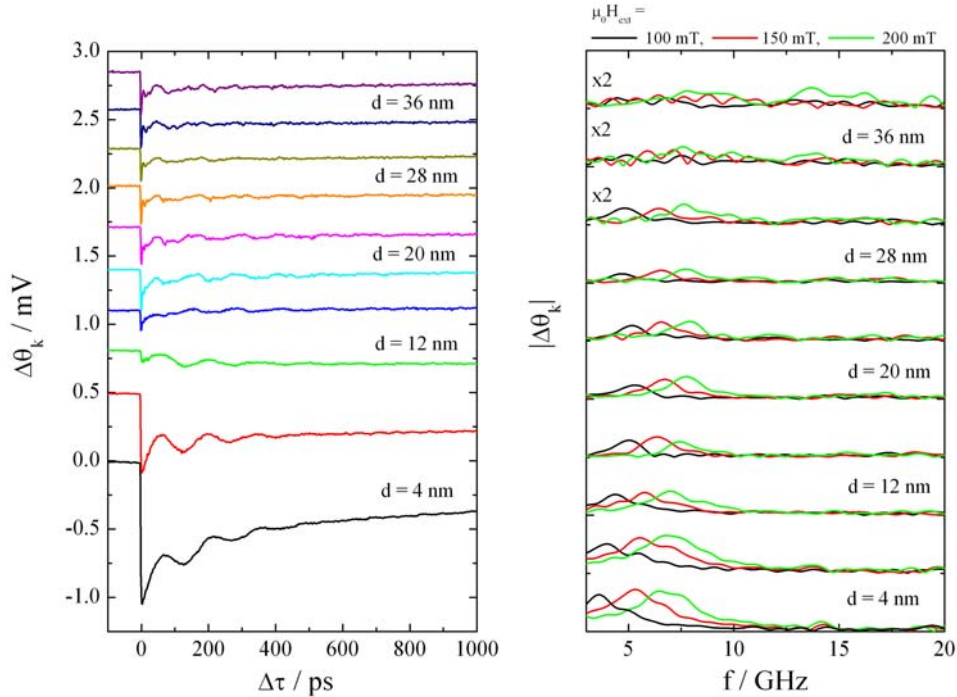


Abbildung 5.14: Änderung des Kerrwinkels im Zeit- ($\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 200 \text{ mT}$) und im Frequenzraum für die kreiszylindrischen Nickelnanostrukturen, $D = 185 \text{ nm}$, $p = 280 \text{ nm}$ (ermittelt aus der Differenz der Messungen für beide Feldrichtungen).

In Abbildung 5.14 ist die durch Differenzbildung ermittelte Änderung der Kerrdrehung sowohl im Zeitraum ($\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 200 \text{ mT}$) als auch nach Fouriertransformation ($\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 200 \text{ mT}$, $\pm 150 \text{ mT}$ und $\pm 100 \text{ mT}$) dargestellt. Für die dünnste Schichtdicke werden die ausgeprägtesten Oszillationen angeregt. Dies ist insofern verwunderlich, als die Stärke des Feldpulses mit steigender Schichtdicke und damit wachsender Komponente der Gleichgewichtsmagnetisierung in Richtung der Filmmormalen wachsen sollte. Zur effizienten Anregung von magnetischer Präzession muss also offensichtlich der Pumpimpuls in eine Nanostruktur möglichst tief eindringen, so dass für die Nanostrukturen, deren Höhe die optische Eindringtiefe in Nickel von $\delta_{\text{Ni}} = 14 \text{ nm}$ übersteigt, die angereg-

te präzessionelle Dynamik deutlich weniger ausgeprägt ist³. Zumindest für die Schichtdicken $d = 4$ nm, 8 nm und 12 nm werden mehrere Moden angeregt, denen aber bei dieser Frequenzauflösung nicht allen eindeutig eine Frequenz zugeordnet werden kann, so dass diese Arbeit sich auf eine Analyse der Schichtdickenabhängigkeit der Mode größter spektraler Intensität beschränkt. Diese Mode ist - wie in den mikromagnetischen Simulationen (vgl. Abbildung 5.6) - gleichzeitig diejenige kleinster Frequenz. Aus den Fouriertransformierten in Abbildung

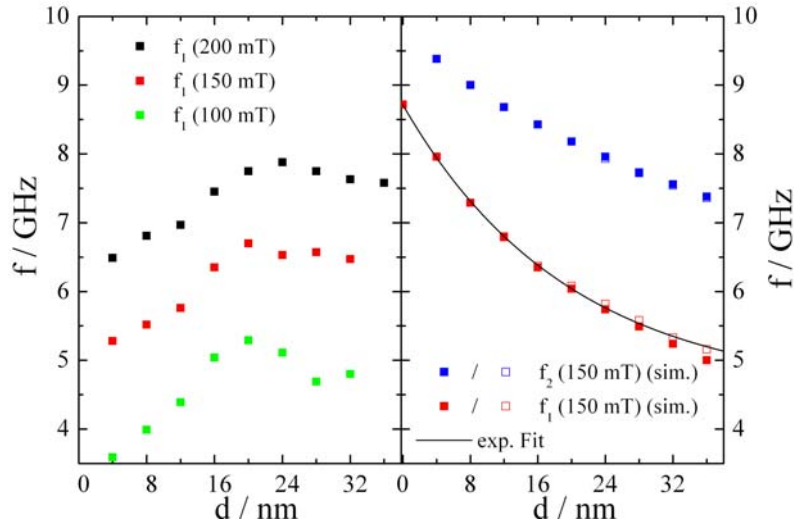


Abbildung 5.15: Links: Experimentell gefundene Schichtdickenabhängigkeit der Mode 1 (Endmode). Rechts: Schichtdickenabhängigkeit der Moden 1 und 2 aus den mikromagnetischen Simulationen; die mikromagnetischen Simulationen sind einmal mit äußerem Feld wie im Experiment (offenes Symbol) und einmal mit verschwindender z -Komponente (gefülltes Symbol) durchgeführt.

5.14 ist die Frequenz dieser Mode extrahiert und für die drei Feldwerte in Abbildung 5.15, links, gegen die Schichtdicke aufgetragen. Ihnen sind die Frequenzen aus den beschriebenen mikromagnetischen Simulationen für das äußere Feld $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150 \text{ mT}$ gegenübergestellt (Abbildung 5.15, rechts). Dabei stellt es sich in den Simulationen in qualitativer Hinsicht als unwesentlich heraus, ob mit einem angelegten Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 150 \text{ mT}$ im Winkel von 30° gegen die Probenoberfläche oder mit einem Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 150 \cos 30^\circ \text{ mT}$ ausschließlich in der Probenebene gerechnet wird. In quantitativer Hinsicht erhöht sich bei einer wie im Experiment verwendeten Konfiguration die Frequenz der niedrigsten

³Hier liegt ein deutlicher Unterschied zu den kontinuierlichen Filmen, bei denen die Amplitude der uniformen magnetischen Präzession für Schichtdicken, die der optischen Eindringtiefe entsprechen, am größten ist.

Mode leicht. Diese Differenz steigt, wie aufgrund der ansteigenden Normalkomponente der Gleichgewichtsmagnetisierung zu erwarten, mit der Schichtdicke an (Abbildung 5.15, rechts). Für die nächsthöher liegende Mode ist der Unterschied in der Frequenz zwischen den beiden Konfigurationen deutlich geringer. Es zeigt sich, dass die Schichtdickenabhängigkeit der Frequenzen der Mode 1 aus der Simulation durch einen exponentiellen Abfall ($f = f_{\text{uni}} \exp(-d/d_0)$) beschrieben werden kann, wobei f_{uni} die Frequenz der uniformen Präzession eines dünnen Films (Formel (3.23)) darstellt. Für $d \rightarrow 0$ und dementsprechend $\beta \rightarrow 0$ geht die Frequenz der Endmode also gegen die Frequenz der uniformen Präzession. Die Mode 2 weist für hohe Schichtdicken eine Frequenz unterhalb dieser und für niedrige Schichtdicken eine oberhalb dieser Frequenz auf. Nach der Nomenklatur in Abschnitt 5.2.1 wäre diese Mode 2 also eine gemischte Mode.

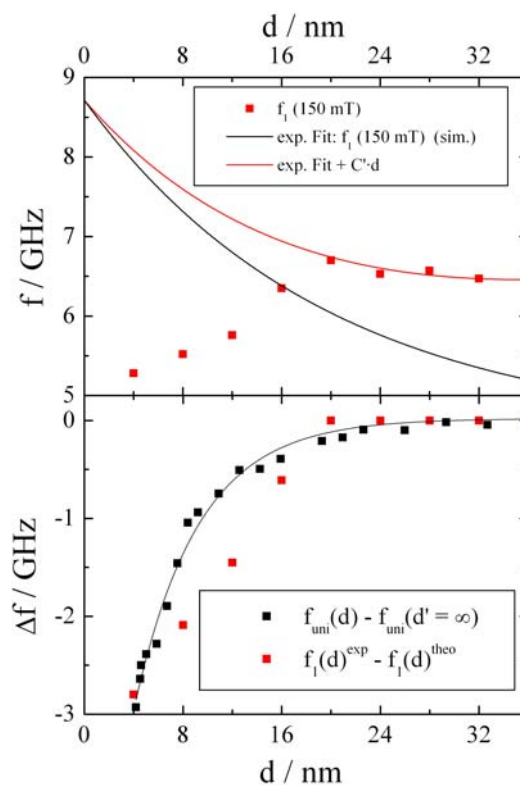


Abbildung 5.16: Oben: Schichtdickenabhängigkeit der Mode 1 (Endmode). Unten: Abweichung vom theoretisch zu erwartenden Wert im Vergleich mit dem Abfall der Präzessionsfrequenz eines kontinuierlichen Nickelfilms

Beide Moden aus der mikromagnetischen Simulation beschreiben nicht den Verlauf der experimentellen Daten. In den Simulationen ist allerdings, da nur

einzelne Zylinder betrachtet worden sind, die Wechselwirkung zwischen den Nanostrukturen nicht berücksichtigt. In dem einfachsten Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung könnte man annehmen, dass das Streufeld eines einzelnen gesättigten Zylinders in der Filmebene durch ein reines Dipolfeld beschrieben wird, das aufgrund der geringen Amplitude der präzessionellen Dynamik als statisch betrachtet werden kann⁴. In diesem Bild kann man nun wieder die Dynamik einzelner Nanostrukturen in einem allerdings modifizierten äußeren Feld betrachten: Wie man sich leicht überlegt, heben sich damit die Beiträge der Streufelder, die nicht in die Richtung der Sättigungsmagnetisierung zeigen, auf, und die Beiträge in diese Richtung addieren sich. Das Dipolmoment eines Zylinders \mathfrak{M} ist proportional zu seiner Schichtdicke. Damit ist das äußere Feld zur Berechnung der Eigenfrequenzen durch $H_{\text{ext}} + C \cdot d$ zu ersetzen. Unter der Annahme, dass die Feldabhängigkeit der Frequenzen durch einen Ausdruck wie (5.1) beschrieben wird, wird die Eigenfrequenz durch das Dipolfeld in erster Näherung durch eine additive Größe modifiziert:

$$f \rightarrow f + \frac{\gamma_0 C}{2\pi} d. \quad (5.5)$$

Tatsächlich lassen sich mit Hilfe dieses Summanden die experimentell ermittelten Frequenzen ab 20 nm an die entsprechenden Werte aus der mikromagnetischen Simulation anpassen (vgl. Abbildung 5.16, oben). Die Konstante wird zu $\mu_0 C = 1,25(5)$ mT/nm bestimmt. Damit können die gemessenen Frequenzen der Endmode zugeordnet werden (Mode 1 in Abbildung 5.6).

Für Schichtdicken unterhalb von 20 nm zeigt die dominante Frequenz, die im Experiment beobachtet wird, jedoch ein davon deutlich abweichendes Verhalten und fällt mit abnehmender Schichtdicke (vgl. Abbildung 5.16, oben). Um der Ursache dieses Frequenzabfalls nachzugehen, wird mit der gleichen experimentellen Konfiguration die Frequenz der uniformen Präzession eines entsprechenden kontinuierlichen Nickelkeils bestimmt. In der Tat, zeigt sich auch hier ein Abfall der Frequenz für Schichtdicken unterhalb von 20 nm. In Abbildung 5.16, unten, ist die Frequenzdifferenz dieser uniformen Präzession zwischen Schichtdicken im Sättigungsbereich und einer Schicht der Dicke d aufgetragen. Es gibt also in den vorliegenden Nickelproben einen Effekt, der mit dem Verhältnis von Volumen zu Oberfläche skaliert und die Frequenz der uniformen magnetischen Präzession reduziert. Allerdings kann in dem optischen Pump-Abfrage-Experiment nicht eindeutig bestimmt werden, welche der relevanten Parameter (z.B. die Oberflächenanisotropie oder der Landé-Faktor) in welcher Art und Weise mit d variieren (vgl. Abschnitt 3.3.2), so dass dieser Effekt in den mikromagnetischen Simulationen nicht berücksichtigt werden kann. In Abbildung 5.16, unten, ist auch die Differenz zwischen den in Nanostrukturen gemessenen und den

⁴Damit eignet sich dieses Modell offensichtlich nicht zur Beschreibung von kollektiven Moden des Gitters. Deren Frequenzdispersion wird von Galkin u.a. ausgerechnet (Galkin u. a. 2005); experimentell gibt es aber keine Hinweise auf die tatsächliche Existenz solcher kollektiven Oszillationen.

nach den Simulationen unter Berücksichtigung der Streufeldwechselwirkung erwarteten Frequenzen aufgetragen. Für eine Schichtdicke von $d = 4$ nm, für die die zu erwartende Frequenz schon fast der Frequenz der uniformen Präzession entspricht, liegen diese beiden Differenzen dicht beieinander. Für die höheren Schichtdicken liegt ein größerer Unterschied zwischen den beiden Differenzen vor, was auch nicht weiter verwunderlich ist, da z.B. eine Oberflächenanisotropie auf andere Weise in die Frequenz der Endmode in der Nanostruktur als in die Frequenz der uniformen Präzession eines kontinuierlichen Films eingehen wird.

5.3 Elliptische Strukturen

5.3.1 Statische Messungen

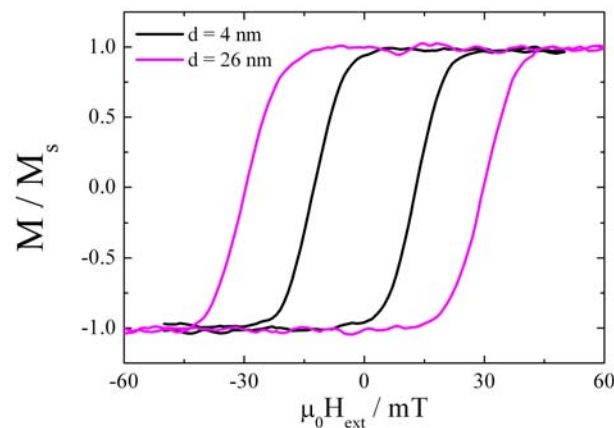


Abbildung 5.17: Hystereseschleifen der elliptischen Strukturen hinsichtlich der Magnetisierung in Richtung der langen Achse für die Nickel-schichtdicken $d = 4$ nm und 26 nm (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm).

In Abbildung 5.17 sind exemplarisch Hystereseschleifen für zwei unterschiedliche Schichtdicken der elliptischen Nanostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm) aufgetragen. Wie aufgrund des höheren Entmagnetisierungsfeldes zu erwarten, steigen Koerzitiv- und Sättigungsfeld mit der Schichtdicke, qualitativ ändert sich die Form der Hystereseschleifen allerdings nicht.

5.3.2 Polarisationsabhängigkeit der Entmagnetisierung und der Reflexionsänderung

An den elliptischen Strukturen wird untersucht, ob die Laser-induzierte Entmagnetisierung in Geschwindigkeit oder im Betrag von der Polarisierung des Pumpimpulses abhängt. Ein angelegtes statisches elektrisches Feld \mathbf{E}_0 induziert nämlich in einem Ellipsoiden ein Dipolmoment

$$\mathfrak{D} = \vec{\alpha} \mathbf{E}_0, \quad (5.6)$$

wobei $\vec{\alpha}$ hier den Polarisierbarkeitstensor bezeichnet, der von der dielektrischen Konstante ϵ des Materials und der Form des Ellipsoiden abhängt. Es zeigt sich, dass ein Feld in Richtung der längsten Achse das vom Betrage her größte Dipolmoment induziert (vgl. Böttcher 1973, S. 86f); man beachte hier die Analogie zur Diskussion des Entmagnetisierungsfeldes (vgl. Abschnitt 2.1). Das im Ellipsoiden durch Einstrahlung einer elektromagnetischen Welle induzierte Dipolmoment folgt aus (5.6) unter Ersetzung von ϵ durch $\epsilon(\omega)$ und unter zusätzlicher Berücksichtigung der Strahlungsverluste des schwingenden Dipols (vgl. Wokaun u. a.). Damit ist auch im dynamischen Fall in Richtung der längsten Achse das größte Dipolmoment zu induzieren. Danach sollten die elliptischen Zylinderstrukturen bei Polarisierung des Pumpstrahls parallel zur langen Achse mehr Licht absorbieren als bei dazu senkrechter Polarisierung. Mit Hilfe eines $\lambda/2$ -Plättchen im Strahlengang des Pumpimpulses kann die lineare Polarisierungsebene des einfallenden Lichtes gedreht werden. In Abbildung 5.18 ist die gemessene Intensität des reflektierten Pumpstrahles gegen den Winkel zwischen Tischoberfläche und Polarisierungsebene aufgetragen. Aus der leichteren Polarisierbarkeit in die Richtung der langen Achse resultiert damit auch eine höhere Reflexion. Die Messungen in diesem Abschnitt erfolgen an einer Stelle des Keils mit $d = 26$ nm. Die Polarisierbarkeit einer Nanostruktur in einem ausgedehnten zwei-dimensionalen Feld von Nanostrukturen kann aber auch im hohem Maße von der Struktur des Feldes abhängen, so dass Licht, dessen Polarisierungsebene mit einer niedrig indizierten Richtung des Gitters zusammenfällt, ein höheres Dipolmoment induziert (vgl. Zhao u. a. 2003). Um diesen Effekt für die obige Polarisationsabhängigkeit der Reflexion an dem Feld von elliptischen Nanostrukturen auszuschließen, wurde dieses Experiment für die kreiszylindrischen Strukturen wiederholt; es konnte hier keine Polarisationsabhängigkeit der Reflexion festgestellt werden. Dieser Effekt sollte auch stark von der verwendeten Wellenlänge abhängen und für kleine Verhältnisse $\frac{p}{D} = 1,5$ bis 2, wie bei den hier gemessenen Proben, sehr schwach sein (vgl. Zhao u. a. 2003), so dass das Ausbleiben dieser Polarisationsabhängigkeit nicht weiter verwunderlich ist. Die Abhängigkeit der Reflektivität von der Polarisierung in Abbildung 5.18 ist somit eindeutig auf die elliptische Form der Strukturen zurückzuführen. In Abbildung 5.19 ist die transiente Änderung der Reflektivität dargestellt. Für einen p -polarisierten Pumpimpuls zeigt sich in den ersten hundert Femtosekunden - also ungefähr innerhalb der Pumpimpulslänge - eine deutlich stärkere Änderung der

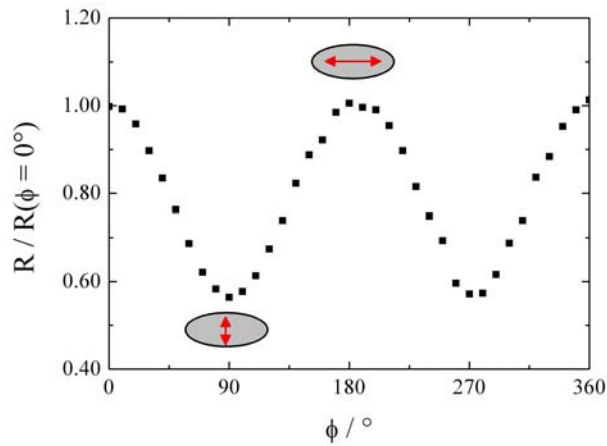


Abbildung 5.18: Abhängigkeit der Reflektivität der elliptischen Nanostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm, $d = 26$ nm) von der Polarisation.

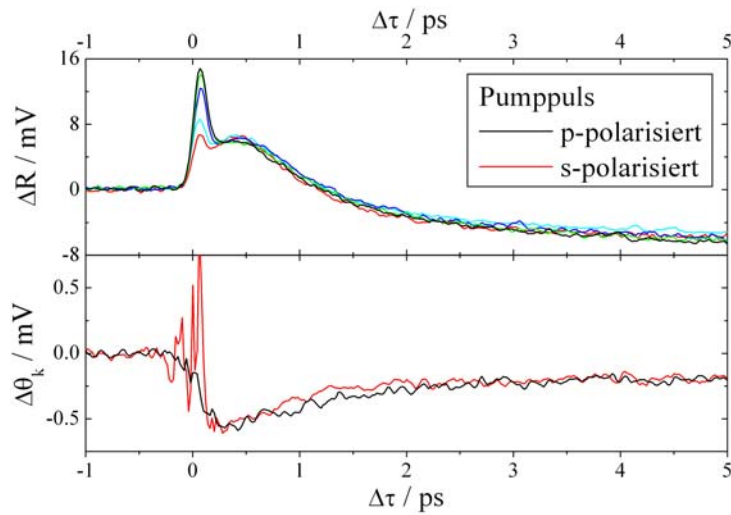


Abbildung 5.19: Transiente Änderung der Reflektivität und der Kerrdrehung für unterschiedliche Polarisationen des Pumppulses in den elliptischen Nanostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse 132 nm, $d = 26$ nm).

Reflektivität als für s -polarisiertes Licht. Eine Drehung der linearen Polarisation von dem s - zum p -Zustand lässt die Höhe dieses Maximums kontinuierlich steigen. Für Verzögerungszeiten größer als ca. 150 fs ist die Änderung der Re-

flektivität bereits für alle Polarisationsrichtungen identisch. Der beobachtete Antenneneffekt erhöht also nicht nachhaltig die Temperatur des Elektronensystems in einer Nanostruktur. Die Laser-induzierte Änderung des Kerrwinkels ($\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 100 \text{ mT}$), der ebenfalls in Abbildung 5.19 aufgetragen ist, zeigt keine Abhängigkeit von der Polarisierung des Pumpimpulses. Für einen s -polarisierten Pumpimpuls liegt lediglich eine bessere Kohärenz mit dem Licht des Abfragepulses vor, dessen p -Komponente mit dem photoelastischen Modulator variiert wird, während seine s -Komponente weitgehend erhalten bleibt, so dass im Falle vom s -polarisierten Pumplicht ein deutlich ausgeprägteres kohärentes Artefakt vorliegt (vgl. Abschnitt 4.1.3). Dieses Experiment zeigt damit eindeutig, dass die Laser-induzierte Entmagnetisierung in diesem Probensystem nicht vom Photonenfeld (wie von Zhang und Hübner (Zhang u. Hübner 2000) behauptet, vgl. Abschnitt 3.3) beeinflusst wird.

5.3.3 Transiente Reflektivitätsänderung

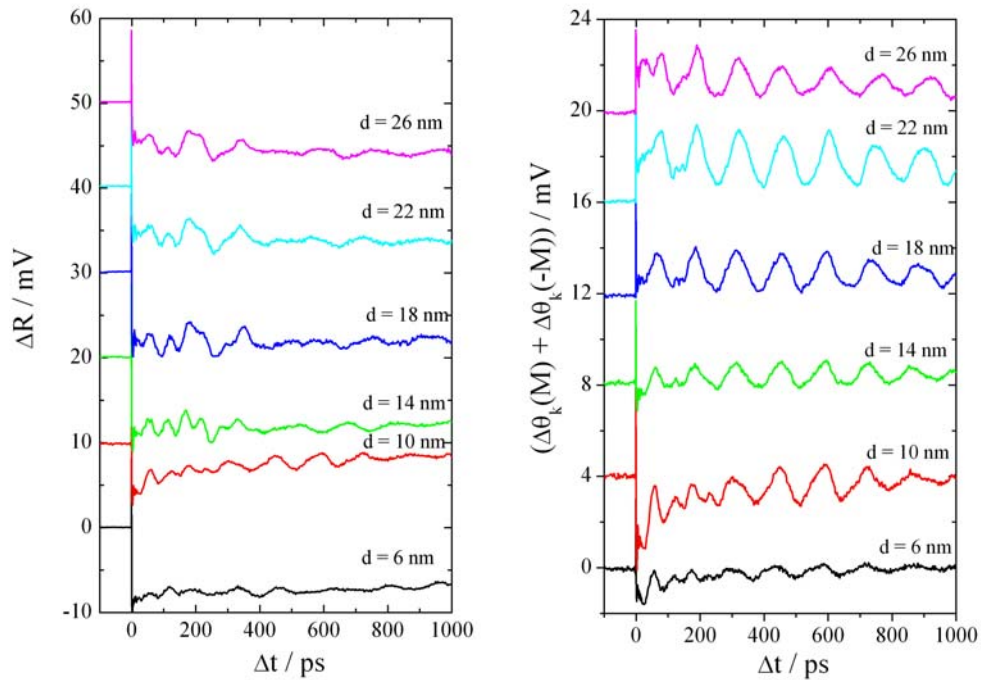


Abbildung 5.20: Transiente Änderung der Reflexion und Summe der transienten Änderung der Kerrdrehung für $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150 \text{ mT}$ in den elliptischen Nickelnanostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm).

Die Laser-induzierte Reflektivitätsänderung des Films mit den elliptischen Na-

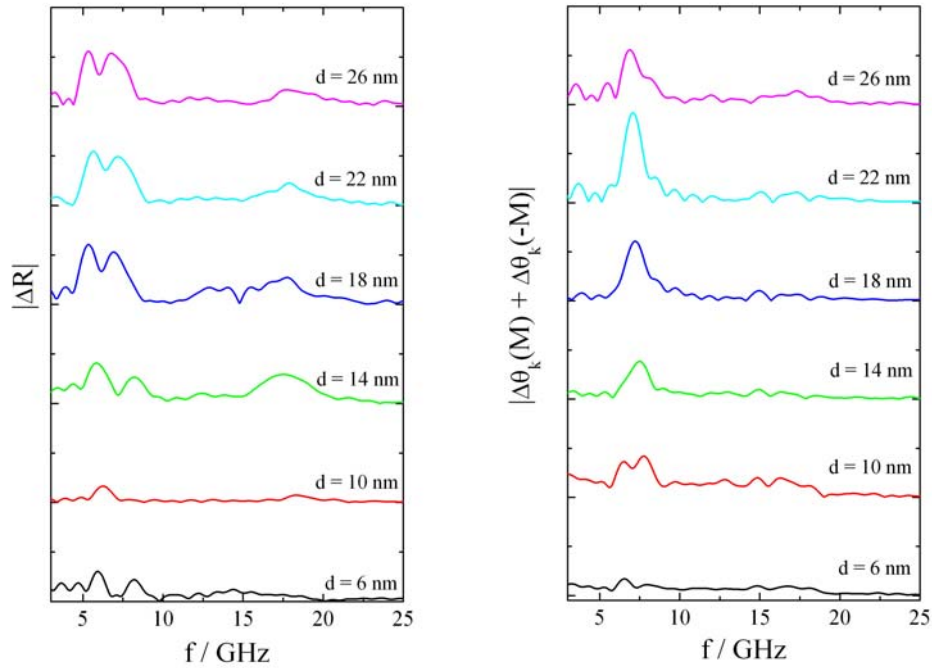


Abbildung 5.21: Änderung der Reflexion und Summe der transienten Änderung der Kerrdrehung für $\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150 \text{ mT}$ in elliptischen Nickelnanostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm) nach Fouriertransformation.

nostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm) für Schichtdicken von $d = 6 \text{ nm}$ bis $d = 26 \text{ nm}$ ist in Abbildung 5.20 im Zeitraum und in Abbildung 5.21 als Fouriertransformierte im Frequenzraum dargestellt. Zu den stehenden akustischen Oberflächenwellen in einem solchen Gitter (vgl. Abbildung 5.1) finden sich keine Berechnungen in der Literatur. In erster Näherung wird hier allerdings angenommen, dass die Moden dieses Gitters ungefähr denen eines Liniengitters mit $p = 685 \text{ nm}$ entsprechen. Damit ist zumindest die Grundfrequenz dieses Systems durch (5.3) gegeben. Dies entspricht einer Frequenz von $f = 4,98 \text{ GHz}$. Tatsächlich findet sich hier im Fourierspektrum (Abbildung 5.21) auch ein Maximum, das allerdings im Gegensatz zu dem niedrigsten Maximum im Reflexionsspektrum der Kreisstrukturen (vgl. Abbildung 5.11) keine so eindeutige Abhängigkeit von der Schichtdicke zeigt. Die Kopplung der elastischen Moden der Nickelstrukturen an die Oberflächenmoden ist sicher im Fall der Kreisstrukturen - man bedenke das größere Verhältnis von Strukturgröße zu Periodizität - größer, was zu dem stärkeren Einfluss der Schichtdicke führt. Wie auch bei den Kreisstrukturen findet sich bei ca. 20 GHz ein Maximum im Reflexionsspektrum, das auch wieder hier aus Oszillationen in den ersten 100 ps

resultiert (vgl. 5.20); die Existenz dieser Oszillationen in der transienten Reflexionsänderung bestätigt noch einmal die Hypothese bezüglich ihres Ursprungs (vgl. Abschnitt 5.2.3), nach der die Frequenz unabhängig von dem jeweiligen Gitter sein soll. Der Ursprung der Mode zwischen 7 und 8 GHz kann hier nicht eindeutig angegeben werden. Es ist zu vermuten, dass es sich um eine elastische Mode der elliptischen Zylinder handelt, wofür spricht, dass die Frequenz mit der Schichtdicke abnimmt.

5.3.4 Transiente Änderung der Kerrdrehung

Die Summe der transienten Änderungen der Kerrdrehung für beide Feldrichtungen zeigt hier, wie für die Kreisstrukturen, keine Abhängigkeit vom Betrag des Feldes; die Unterschiede zum Reflexionsspektrum sind allerdings noch ausgeprägter als im Fall der Kreisstrukturen (vgl. Abbildungen 5.20 und 5.21).

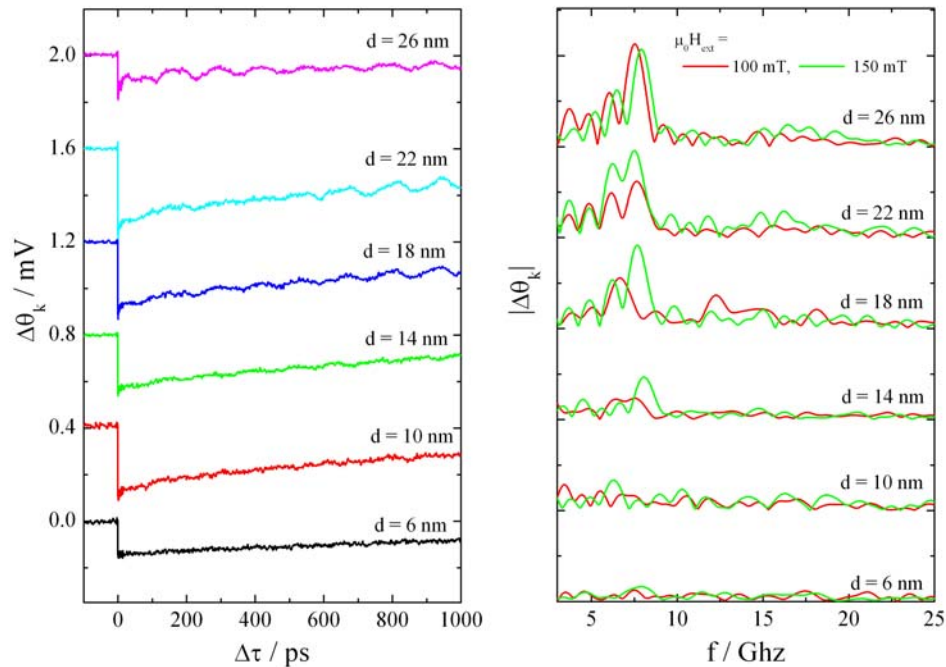


Abbildung 5.22: Änderung des Kerrwinkels in den elliptischen Nickelnanostrukturen (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm) im Zeit- ($\mu_0 H_{\text{ext}} = \pm 150$ mT) und im Frequenzraum (ermittelt aus der Differenz der Messungen für beide Feldrichtungen).

Die transiente Änderung der Kerrdrehung (bestimmt aus der Differenzbildung für beide Feldrichtungen) weist hier im Gegensatz zu den Kreisstrukturen (Abbildung 5.22) auch bei einem äußeren Feld, das keine Komponente in der

Probennormale besitzt, Oszillationen auf. Der Formanisotropiefeldpuls ist in den elliptischen Strukturen also vermutlich stärker ausgeprägt; falls die lange Achse nicht perfekt parallel zum äußeren Feld ausgerichtet ist, sollte dies die Größe dieses Feldpulses vergrößern. Die Feldabhängigkeit der angeregten Moden entspricht allerdings nicht einer Formel vom Typ (5.1), sondern verhält sich deutlich unsystematischer. Lediglich für $d = 26$ nm steigen die Frequenzmaxima eindeutig mit der Feldstärke.

Um den Charakter dieser angeregten magnetischen Moden zu erforschen, wird mit Hilfe von mikromagnetischen Simulationen - wie in Abschnitt 5.2.1 beschrieben - das Modenspektrum eines elliptischen Zylinders der Schichtdicke $d = 26$ nm für ein Feld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 150$ mT entlang der Probenachse berechnet. Die Zellgröße und alle weiteren Parameter sind wie in Abschnitt 5.2.1 gewählt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.23 veranschaulicht.

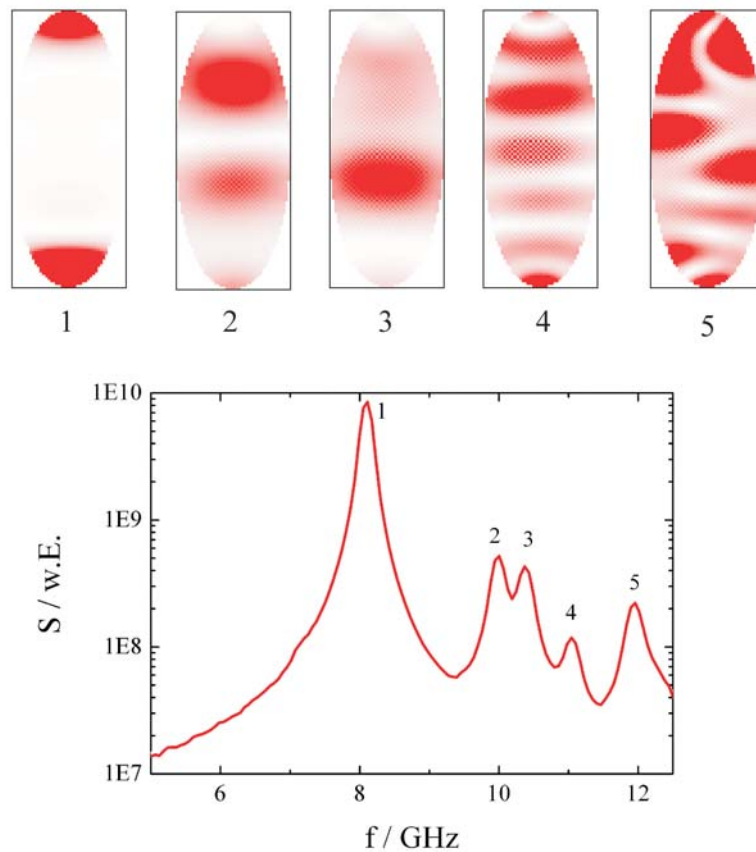


Abbildung 5.23: Modenspektrum für einen 26 nm hohen elliptischen Nickelzylinder (lange Achse: 320 nm, kurze Achse: 132 nm) in einem Magnetfeld von $\mu_0 H_{\text{ext}} = 150$ mT in der Ebene.

Die niedrigste angeregte Mode ist wie im Falle der Kreiszyylinder eine Endmode, die bei ca. 8 GHz liegt. Um 10 GHz finden sich mehrere Moden. Diese Simulationen entsprechen auch den Ergebnissen, die sich in der Literatur zu den Eigenmoden von entlang der langen Achse magnetisierten Ellipsen finden (Guyader u. a. 2006). Damit liegen - anders als bei den Kreisstrukturen - die magnetischen Eigenmoden der Struktur im selben Frequenzbereich wie die elastischen Moden des Systems. Tatsächlich befindet sich im Fourierspektrum in Abbildung 5.22 ein Maximum, das der Endmode zuzuordnen ist. An dieser Stelle liegt auch ein Maximum im Spektrum der Summe der Änderungen der Kerrdrehung für beide Richtungen (vgl. Abbildung 5.21), so dass wieder die Vermutung nahe liegt, dass die Oszillationen sich nicht mit der Magnetisierungsrichtung umdrehen und auch die Summe der Änderung der Kerrwinkel ein magnetisches Signal enthält, was auch den sehr deutlichen Unterschied zum Reflexionsspektrum um 8 GHz erklärte. Des weiteren tritt für $d = 26$ nm eine Mode auf, die deutlich unterhalb der Frequenz der theoretisch errechneten niedrigsten Mode liegt. Dies deutet wieder auf eine mögliche Kopplung zwischen magnetischen und den elastischen Moden hin.

5.4 Fazit und Ausblick

Insgesamt konnten die meisten Beiträge zur transienten Änderung der Reflektivität identifiziert werden. Dabei gibt es einen Beitrag, der aus Interferenz von unterschiedlich reflektierten Teilbündeln des Abfragepulses herrührt (vgl. Abbildung 5.13) und unabhängig von der Gestalt des Gitters ist. Darüber hinaus gibt es elastische Moden des Systems, die von der Kopplung zwischen den einzelnen Nanostrukturen und dem Substrat beeinflusst werden, in erster Näherung allerdings als stehende akustische Oberflächenwellen beschrieben werden können. Zur besseren Identifikation dieser Oszillationen, wären weitere Messungen an Gittern mit unterschiedlicher Periodizität hilfreich. Ferner wären Finite-Elemente-Methoden ein hilfreiches Werkzeug, die elastischen Eigenmoden dieses gekoppelten System zu berechnen (vgl. Lin u. a. 1993).

In den elliptischen Strukturen weist die transiente Reflektivitätsänderung in den ersten 100 fs eine Abhängigkeit von der Polarisation des Pumpimpulses auf. Dieser Antenneneffekt hat allerdings weder Einfluss auf die Temperatur des Elektronensystems noch auf die Entmagnetisierung. Damit ist der Mechanismus dieser ultraschnellen Entmagnetisierung nicht von der Stärke des in der Probe induzierten Dipolmomentes abhängig, was wiederum Evidenz für den in Abschnitt 3.3 erwähnten Entmagnetisierungsmechanismus durch Elliot-Yafet-Streuung liefert.

Durch die Laser-induzierte Entmagnetisierung werden eindeutig auch magnetische Moden angeregt. Die angeregten Modenspektren - zumindest die bei einem gegen die Oberfläche gedrehten äußeren Feld - sind nicht ärmer als diejenigen, die in vergleichbaren Experimenten durch einen kurzen Feldpuls ange-

regt werden (vgl. z.B. Guyader u. a. 2006). Insofern stellt die Laser-induzierte Entmagnetisierung eine sinnvolle Möglichkeit zur Anregung von Magnetisierungsdynamik in Nanostrukturen dar. Einziger Nachteil ist die Trennung des magnetischen Anteils von der Reflektivitätsänderung, da nicht eindeutig geklärt werden kann, ob einige magnetische Oszillationen sich nicht mit Richtung des äußeren Feldes umdrehen. Die Messungen in dieser Arbeit liefern einige Indizien, die für eine gekoppelte Dynamik zwischen dem magnetischen und dem elastischen System sprechen. Ein kombiniertes Experiment, in dem die durch einen Feldpuls angeregten Moden mit denjenigen, die durch einen Laserpuls angeregt werden, verglichen werden, könnte helfen, diese mögliche Kopplung näher zu untersuchen. Eine Variation der elastischen Moden mit Hilfe der Gitterperiodizität wäre hierfür aber auch bereits sehr hilfreich.

Die dominierenden magnetischen Moden konnten mit Hilfe von mikromagnetischen Simulationen als Endmoden identifiziert werden. In dieser Arbeit findet sich die erste experimentelle Untersuchung der Schichtdickeabhängigkeit magnetischer Eigenmoden von tangential magnetisierten Kreiszyklindern⁵. Die gemessene Schichtdickeabhängigkeit erlaubt - wieder zusammen mit den mikromagnetischen Simulationen - eine Bestimmung der Streufeldwechselwirkung zwischen den einzelnen Nanostrukturen. Die Frequenz der Moden wird allerdings von einem Ober- oder Grenzflächeneffekt beeinflusst, der auch in den kontinuierlichen Filmen auftritt.

⁵Gubbiotti u.a. haben in ihrer *Brillouin-Light-Scattering*-Studie den Durchmesser variiert (Gubbiotti u. a. 2003).

Zusammenfassung der Ergebnisse

In dieser Arbeit wird mit Hilfe eines optischen Pump-Abfrage-Experiments die Laser-induzierte Magnetisierungsdynamik von halbmetallischen Proben und großflächig nanostrukturierten Nickelfilmen untersucht. Außerdem wird ein von Koopmans theoretisch abgeleiteter Zusammenhang zwischen der Laser-induzierten Entmagnetisierung und der magnetischen Präzession (Koopmans u. a. 2005) mit Hilfe von Messungen an Permalloy-Metall-Legierungen, die eine unterschiedliche hohe magnetische Dämpfung aufweisen, experimentell überprüft.

In Abschnitt 2.3.1 dieser Arbeit wird die Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung für die uniform präzedierende Magnetisierung eines dünnen Films gelöst. Dabei wird der relative Fehler für die Präzessionsfrequenz, der aus Vernachlässigung der Dämpfung resultiert, abgeschätzt und als vernachlässigbar identifiziert.

Zur effektiven Beschreibung des Experiments werden in Abschnitt 3.3 das Zwei- und das Drei-Temperatur-Modell ausführlich diskutiert. Ein Vergleich mit den experimentellen Daten zeigt, dass mit Hilfe der angegebenen näherungsweise Lösungen die gemessenen Transienten quantitativ untersucht werden können, eine korrekte Beschreibung der Remagnetisierung im Rahmen dieses Modells allerdings nicht möglich ist. Der Aspekt des Koopmans'schen Modells (Koopmans u. a. 2005), der die Zeitskala der Entmagnetisierung mit der magnetischen Dämpfung in Verbindung bringt, findet in dieser Arbeit keine experimentelle Bestätigung.

Für den dem Koopmans'schen Modell zugrunde liegenden Mechanismus der Entmagnetisierung, die Elliot-Yafet-Streuung, kann allerdings in dieser Arbeit Evidenz geliefert werden. Der experimentelle Befund, dass die Stärke des in den elliptischen Nanostrukturen induzierten Dipolmoments nicht die Entmagnetisierung beeinflusst (vgl. Abschnitt 5.3), spricht gegen das konkurrierende Modell von Zhang und Hübner, in dem das Laserfeld direkten Einfluss auf die

Entmagnetisierung hat (Zhang u. Hübner 2000).

Darüber hinaus kann in dieser Arbeit anhand der Untersuchung der Laser-induzierten Entmagnetisierung in Halbmetallen (Abschnitt 4.1) geschlossen werden, dass für eine ultraschnelle Entmagnetisierung wie in Nickel hinreichend viele delokalisierte elektronische Zustände beider Spinrichtungen an der Fermikante vorliegen müssen. Dieser Umstand spricht wiederum für Elliot-Yafet-Streuung als Mechanismus der Entmagnetisierung in Nickel und der untersuchten Heusler-Legierung Co_2MnSi . In den Materialien CrO_2 , $\text{La}_{0,66}\text{Sr}_{0,33}\text{MnO}_3$ und Fe_3O_4 , die eine höhere Spinpolarisation aufweisen, erreicht die Laser-induzierte Entmagnetisierung erst nach der Relaxation zwischen Gitter- und Elektronensystem ihr Maximum. Dies spricht für eine weitgehende Entkopplung des Spinsystems von den räumlichen Freiheitsgraden der Elektronen. Die Entmagnetisierung muss in diesem Fall über eine Wechselwirkung zwischen Gitter und Spins erfolgen. Die von Hübner und Bennemann für Lanthanoid-Ferromagneten vorgeschlagene Wechselwirkung durch Phononen-induzierte anisotrope Fluktuationen des Kristallfeldes (Hübner u. Bennemann 1996) könnte auch in dem Fall der Halbmetalle die zur langsamen Entmagnetisierung führende Kopplung erklären. Damit kann dieses Experiment als Indikator für (transport)halbmetallisches Verhalten verwendet werden.

Durch Variation der angelegten Feldstärke kann in dem Chromdioxid-Film aufgrund der magnetischen Anisotropie in der Filmebene die Magnetisierung kohärent gedreht werden (Abschnitt 4.1.1). Mit der Laser-induzierten Entmagnetisierung geht ein Anisotropiefeldpuls einher, durch den magnetische Präzession induziert wird. Die Feldabhängigkeit der Präzessionsfrequenz entspricht der in Abschnitt 2.3.1 angegebenen Lösung der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung. Die Dämpfung weist allerdings eine Feld- und Fluenzabhängigkeit auf, die nicht im Rahmen einer einfachen Gilbert-Dämpfung (vgl. Abschnitt 2.2) verstanden werden kann. Dieses Dämpfungsverhalten zeigt in vielerlei Hinsicht extrinsisches Verhalten. Die Richtungsabhängigkeit der Dämpfung kann vermutlich auf eine Anisotropie der Defektdichte, die aus den unterschiedlichen Gitterfehlpassungen in den jeweiligen Kristallrichtungen und den daraus folgenden Verspannungen resultiert, zurückgeführt werden.

In den großflächig nanostrukturierten Filmen werden durch die Laser-induzierte Entmagnetisierung magnetische Eigenmoden angeregt (Abschnitt 5). Mit Hilfe von mikromagnetischen Simulationen können die dominierenden Oszillationen als Endmoden identifiziert werden. Ferner gelingt mit dem Vergleich der numerisch bestimmten Eigenfrequenzen eine Quantifizierung der Streufeldwechselwirkung zwischen den einzelnen Strukturen. Auch die transiente Reflexionsänderung dieser Nanostrukturen weist Oszillationen auf. Diese können zum einen Teil elastischen Moden des Films zugeordnet werden. Eine andere Oszillation resultiert vermutlich aus der Interferenz vom Teil des Abfragepulses, die an der Metalloberfläche reflektiert werden, mit den Teilen, die an der sich im Substrat ausbreitenden Spannungswelle zurückgeworfen werden. Darüber hinaus gibt es einige Indizien für eine Kopplung zwischen elastischen und magnetischen

Moden, die in dieser Arbeit aber nicht bestätigt werden kann.

Zur weiteren Untersuchung dieser etwaigen Kopplung und der besseren Trennung von Reflexions- und Magnetisierungszillationen bietet sich eine Untersuchung von nanostrukturierten Filmen an, bei denen systematisch die Periodizität variiert wird. Für die Bestätigung der Ergebnisse zur Laser-induzierten Entmagnetisierung in Halbmetallen könnten weitere Materialien mit unterschiedlicher Spinpolarisation untersucht werden. Um den Einfluss der Größe der Bandlücke und der Curietemperatur auf die Entmagnetisierungszeit in den Halbmetallen zu studieren, wären Experimente mit einer Variation der Proben temperatur und der Wellenlänge des Pumpimpulses von Interesse.

Verwendete Symbole

In der folgenden Tabelle sind alle in der Arbeit verwendeten physikalischen Größen, Operatoren, Konstanten und Materialparameter mit den zugeordneten Symbolen aufgelistet. Einige der Symbole kennzeichnen mehrere unterschiedliche Größen; hier sollte der Zusammenhang eindeutig zeigen, welche physikalische Größe gemeint ist.

| Größe | Symbol |
|---------------------------------------|---------------------------|
| Absorptionskoeffizient | A |
| Aspektverhältnis | $\beta = \frac{d}{D}$ |
| Azimutwinkel | ϕ |
| Bohr'sches Magneton | μ_B |
| Brechungsindex (komplex) | n |
| Dielektrischer Tensor | $\vec{\epsilon}$ |
| Dissipationskonstante | η |
| Durchmesser | D |
| Elektrisches Dipolmoment | \mathcal{D} |
| Elektrischer Polarisierbarkeitstensor | $\vec{\alpha}$ |
| Einfallswinkel | ϕ_i |
| Entmagnetisierungstensor | \vec{N} |
| Energiedichte | U |
| Entropiedichte | S |
| Filmdicke | d |
| Fluenz | F |
| Freie Energiedichte | F |
| Frequenz | $\Omega, \omega = 2\pi f$ |
| Geschwindigkeit | v |
| Gilbert-Dämpfungsparameter | α |
| Gitterkonstante | a, b, c |

| | |
|---|---|
| Gyromagnetisches Verhältnis | $\gamma < 0, \gamma_0 = \mu_0 \gamma $ |
| Hamiltonoperator | \mathcal{H} |
| Kerrelliptizität | ϵ_k |
| Kerrwinkel | θ_k |
| Kopplungskonstante (zwischen den Systemen i und j) | g_{ij} |
| Lagrangedichte | \mathcal{L} |
| Landau-Lifschitz-Dämpfungsparameter | λ |
| Landé-Faktor | g |
| Magnetische Anisotropiekonstante | K |
| Magnetische Erregung (magnetisches Feld) | \mathbf{H} |
| Magnetische Flussdichte (Magnetfeld) | \mathbf{B} |
| Magnetische Permeabilität des Vakuums | μ_0 |
| Magnetisches Dipolmoment | \mathfrak{M} |
| Magnetisierung | $\mathbf{M}, \mathbf{m} = \frac{\mathbf{M}}{M}$ |
| Magneto-elastische Konstante | λ |
| Mittlere freie Weglänge | λ |
| Normalenvektor | \mathbf{n} |
| Optische Eindringtiefe | δ |
| Ort | \mathbf{r} |
| Periodizität | p |
| Plancksches Wirkungsquantum (reduziert) | \hbar |
| Polarwinkel | θ |
| Position | x |
| Pulsbreite | σ |
| Rayleigh-Dissipationsfunktional | \mathcal{R} |
| Reflexionskoeffizient | R |
| Spezifische Wärme (pro Volumen) | C |
| Spezifischer Widerstand | ρ |
| Spinoperator | \mathbf{S} |
| Spinpolarisation | P_n |
| Spinwellensteifigkeit | A |
| Zeit | t, τ |
| Temperatur | T |
| Vakuumllichtgeschwindigkeit | c_0 |
| Verspannung | ϵ |
| Voigt-Konstante (komplex) | Q |
| Volumen | V |
| Wellenlänge | λ |
| Wellenzahl | k |
| Young-Modul | Y |
| Zustandsdichte | N |

Ambrose u. a. 2000

AMBROSE, T. ; KREBS, J. J. ; PRINZ, G. A.: Epitaxial growth and magnetic properties of single-crystal Co₂MnGe Heusler alloy films on GaAs (001). In: *Appl. Phys. Lett.* 76 (2000), 3280

Anguelouch u. a. 2001

ANGUELOUCH, A. ; GUPTA, A. ; XIAO, Gang ; ABRAHAM, D. W. ; JI, Y. ; INGVARSSON, S. ; CHIEN, C. L.: Near-complete spin polarization in atomically-smooth chromium-dioxide epitaxial films prepared using a CVD liquid precursor. In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), 180408

Averitt u. a. 2001

AVERITT, R. D. ; LOBAD, A. I. ; KWON, C. ; TRUGMAN, S. A. ; THORSMØLLE, V. K. ; TAYLOR, A. J.: Ultrafast Conductivity Dynamics in Colossal Magnetoresistance Manganites. In: *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001), 017401

Barman u. a. 2006

BARMAN, A. ; WANG, S. ; MAAS, J.D. ; HAWKINS, A.R. ; KWON, S. ; LIDDLE, A. ; BOKOR, J. ; SCHMIDT, H.: Magneto-Optical Observation of Picosecond Dynamics of Single Nanomagnets. In: *Nano Lett.* 6 (2006), 2939

Beaurepaire u. a. 1996

BEAUREPAIRE, E. ; MERLE, J.-C. ; DAUNOIS, A. ; BIGOT, J.-Y.: Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel. In: *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996), 4250

Beaurepaire u. a. 2004

BEAUREPAIRE, E. ; TURNER, G. M. ; HARREL, S. M. ; BEARD, M. C. ; BIGOT, J.-Y. ; SCHMUTTENMAER, C. A.: Coherent terahertz emission from ferromagnetic films excited by femtosecond laser pulses. In: *Appl. Phys. Lett.* 84 (2004), 3465

Becker 1969

BECKER, R.: *Theorie der Elektrizität*. 10. Auflage. Stuttgart : B. G. Teubner, 1969

Bennett u. Cooper 1971

BENNETT, A. J. ; COOPER, B. R.: Origin of the Magnetic Surface Anisotropy of Thin Ferromagnetic Films. In: *Phys. Rev. B* 3 (1971), 1642

Bennett u. Stern 1965

BENNETT, H. S. ; STERN, E. A.: Faraday Effect in Solids. In: *Phys. Rev.* 137 (1965), A448

Bickford 1949

BICKFORD, L. R.: Ferromagnetic Resonance Absorption Magnetite. In: *Phys. Rev.* 76 (1949), 137

Brown u. a. 2000

BROWN, P. J. ; NEUMANN, K. U. ; WEBSTER, P. J. ; ZIEBECK, K. R. A.: The magnetization distributions in some Heusler alloys proposed as half-metallic ferromagnets. In: *J. Phys.: Cond. Mat.* 12 (2000), 1827

Brown 1963

BROWN, W. F.: *Micromagnetics*. New York : John Wiley & Sons, 1963 (Interscience Tracts on Physics and Astronomy 18)

Böttcher 1973

BÖTTCHER, C.J.F.: *Theory of Electric Polarization*. Amsterdam : Elsevier, 1973

Buess u. a. 2004

BUESS, M. ; HÖLLINGER, R. ; HAUG, T. ; PERZLMAIER, K. ; KREY, U.; PESCIA, D. ; SCHEINFEIN, M. R. ; WEISS, D. ; BACK, C. H.: Fourier Transform Imaging of Spin Vortex Eigenmodes. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), 077207

Callen u. Callen 1966

CALLEN, H. B. ; CALLEN, E.: The present status of the temperature dependence of magnetocrystalline anisotropy, and the $l(l+1)/2$ power law. In: *J. Phys. Chem. Solids* 27 (1966), 1271

Carpene 2006

CARPENE, E.: Ultrafast laser irradiation of metals: Beyond the two-temperature model. In: *Phys. Rev. B* 74 (2006), 024301

Chamberland 1977

CHAMBERLAND, B. L.: The chemical and physical properties of CrO₂ and tetravalent chromium oxide derivatives. In: *Crit. Rev. Sol. State. Mater. Sci.* 7 (1977), 1

Chantrell 2006

CHANTRELL, R.: Atomistic models of magnetisation processes and devices. ICM Kyoto, 2006

Chase 1974

CHASE, L. L.: Optical properties of CrO₂ and MoO₂ from 0.1 to 6 eV. In: *Phys. Rev. B* 10 (1974), 2226

Chikazumi 1997

CHIKAZUMI, S.: *Physics of Ferromagnetism*. 2. Auflage. Oxford : Clarendon Press, 1997

Cinchetti u. a. 2006

CINCETTI, M. ; ALBANEDA, M. S. ; HOFFMANN, D. ; ROTH, T. ; WUSTENBERG, J.-P. ; KRAUSS, M. ; ANDREYEV, O. ; SCHNEIDER, H. C. ; BAUER, M. ; AESCHLIMANN, M.: Spin-Flip Processes and Ultrafast Magnetization Dynamics in Co: Unifying the Microscopic and Macroscopic View of Femtosecond Magnetism. In: *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006), 177201

Coey u. Sanvito 2004

COEY, J. M. D. ; SANVITO, S.: Magnetic semiconductors and half-metals. In: *J. Phys. D* 37 (2004), 988

Coey u. Venkatesan 2002

COEY, J. M. D. ; VENKATESAN, M.: Half-metallic ferromagnetism: Example of CrO₂. In: *J. Appl. Phys.* 91 (2002), 8345

Coherent 1994

COHERENT (Hrsg.): *RegA Model 9000 Laser Operator's Manual*. Santa Clara, Kalifornien: Coherent, 1994

Coherent 2004

COHERENT (Hrsg.): *Verdi V-18 Diode Pumped Lasers Operator's Manual*. Santa Clara, Kalifornien: Coherent, 2004

Comin u. a. 2006

COMIN, A. ; GIANNETTI, C. ; SAMOGGIA, G. ; VAVASSORI, P. ; GRANDO, D. ; COLOMBI, P. ; BONTEMPI, E. ; DEPERO, L. E. ; METLUSHKO, V. ; ILIC, B. ; PARMIGIANI, F.: Elastic and Magnetic Dynamics of Nanomagnet-Ordered Arrays Impulsively Excited by Subpicosecond Laser Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006), 217201

Cowburn u. Welland 2000

COWBURN, R. P. ; WELLAND, M. E.: Room Temperature Magnetic Quantum Cellular Automata. In: *Science* 287 (2000), 1466

Dalla Longa u. a. 2006

DALLA LONGA, F. ; KOHLHEPP, J. T. ; DE JONGE, W. J. M. ; KOOPMANS, B.: The influence of photon angular momentum on ultrafast spin dynamics in Nickel. In: *arXiv:cond-mat/0609698v1* (2006)

Dedkov u. a. 2002a

DEDKOV, Yu. S. ; FONINE, M. ; KÖNIG, C. ; RÜDIGER, U. ; GÜNTHERODT, G. ; SENZ, S. ; HESSE, D.: Room-temperature observation of high-spin polarization of epitaxial CrO₂(100) island films at the Fermi energy. In: *Appl. Phys. Lett.* 80 (2002), 4181

Dedkov u. a. 2002b

DEDKOV, Yu. S. ; RÜDIGER, U. ; GÜNTHERODT, G.: Evidence for the half-metallic ferromagnetic state of Fe₃O₄ by spin-resolved photoelectron spectroscopy. In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), 064417

Djordjevic 2006

DJORDJEVIC, M.: *Magnetization dynamics in all-optical pump-probe experiments: spin-wave modes and spin-current damping*, Universität Göttingen, Diss., 2006

Djordjevic u. Münzenberg 2007

DJORDJEVIC, M. ; MÜNZENBERG, M.: Connecting the timescales in picosecond remagnetization experiments. In: *Phys. Rev. B* 75 (2007), 012404

Donahue u. Porter 1999

DONAHUE, M.J. ; PORTER, D.G.: OOMMF User's Guide / National Institute of Standards and Technology, Version 1.2a3. Gaithersburg, Maryland, 1999 (Interagency Report). – NISTIR 6376

Ducasse u. a. 2003

DUCASSE, A. ; RULLIÈRE, C. ; COULLAUD, B.: Methods for the Generation of Ultrashort Laser Pulses. In: RULLIÈRE, C. (Hrsg.): *Femtosecond Laser Pulses*. 2. Auflage. New York : Springer, 2003, S. 57–87

Ebert u. Perlov 1999

EBERT, H. ; PERLOV, Y.: Magneto-optische Effekte. In: *Magnetische Schichtsysteme*. Jülich, 1999 (Schriften des Forschungszentrums Jülich 2)

Eichler u. a. 1986

EICHLER, H. J. ; GÜNTER, P. ; POHL, D. W.: *Laser-Induced Dynamic Gratings*. Berlin : Springer, 1986 (Springer Series in Optical Sciences)

Eilers 2004

EILERS, G.: *Grundlegende Untersuchungen zu Tunnelmagnetowiderstandselementen: Schichtrauigkeit, Tunnelbarriere und mikromagnetische Simulationen*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2004

Eilers u. a. 2006

EILERS, G. ; LÜTTICH, M. ; MÜNZENBERG, M.: Giant nonlocal damping by spin-wave emission: Micromagnetic simulations. In: *Phys. Rev. B* 74 (2006), 054411

Fork u. Martinez 1984

FORK, R. L. ; MARTINEZ, O. E.: Negative dispersion using pairs of prisms. In: *Opt. Lett.* 9 (1984), 150

Freundt 1994

FREUNDT, S.: *Interferometrische Kreuzkorrelation mit Titan-Saphir-Laserpulsen an GaAs*, Universität Göttingen, Diss., 1994

Galanakis u. Dederichs 2005

GALANAKIS, I. ; DEDERICHS, P. H.: Half-Metallicity and Slater-Pauling Behavior in the Ferromagnetic Heusler Alloys. In: GALANAKIS, I. (Hrsg.); DEDERICHS, P. H. (Hrsg.): *Half-metallic Alloys*. Berlin : Springer, 2005 (Lecture Notes in Physics 676), S. 1–39

Galkin u. a. 2005

GALKIN, A. Y. ; IVANOV, B. A. ; ZASPEL, C.E.: Collective magnon modes for magnetic dot arrays. In: *J. Magn. Magn. Mater.* 286 (2005), 351

Gehrke 2007

GEHRKE, K.: *Private Mitteilung*. Göttingen, 2007

Gilbert 2004

GILBERT, T. L.: A Phenomenological Theory of Damping in Ferromagnetic Materials. In: *IEEE Transactions on Magnetics* 40 (2004), 3443

Grant 1959

GRANT, F. A.: Properties of Rutile (Titanium Dioxide). In: *Rev. Mod. Phys.* 31 (1959), 646

Grawert 1989

GRAWERT, G.: *Quantenmechanik*. 5. Auflage. Wiesbaden : Aula-Verlag, 1989

Gray 1972

GRAY, D. E. (Hrsg.): *American Institute of Physics Handbook*. 2. Auflage. New York : McGraw-Hill, 1972

de Groot u. a. 1983

GROOT, R. A. ; MUELLER, F. M. ; ENGEN, P. G. v. ; BUSCHOW, K. H. J.: New Class of Materials: Half-Metallic Ferromagnets. In: *Phys. Rev. Lett.* 50 (1983), 2024

Gubbiotti u. a. 2003

GUBBIOTTI, G. ; CARLOTTI, G. ; OKUNO, T. ; SHINJO, T. ; NIZZOLI, F. ; ZIVIERI, R.: Brillouin light scattering investigation of dynamic spin modes confined in cylindrical Permalloy dots. In: *Phys. Rev. B* 68 (2003), 184409

Guderian 2001

GUDERIAN, P.: *Entmagnetisierungsdynamik und Photonenpuls- generation: Untersuchungen an Eisenschichten mit Hilfe des zeitaufgelösten magneto- optischen Kerr-Effektes*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2001

Guidoni u. a. 2002

GUIDONI, L. ; BEAUREPAIRE, E. ; BIGOT, J.-Y.: Magneto-optics in the Ultrafast Regime: Thermalization of Spin Populations in Ferromagnetic Films. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), 017401

Gurevich u. Melkov 1996

GUREVICH, A. G. ; MELKOV, G. A.: *Magnetization Oscillations and Waves*. Boca Raton : CRC Press, 1996

Guslienko u. Slavin 2000

GUSLIENKO, K. Y. ; SLAVIN, A. N.: Spin-waves in cylindrical magnetic dot arrays with in-plane magnetization. 87 (2000), 6337

Guyader u. a. 2006

GUYADER, L. L. ; ANCEAU, C. ; KIRILYUK, A. ; RASING, Th. ; BERKOV, D. ; BAR, L.: Frequency analysis of the magnetization dynamics in thin ellipsoidal magnetic elements. In: *Phys. Rev. B* 73 (2006), 060402

Hanssen u. a. 1990

HANSSEN, K. E. H. M. ; MIJNARENDS, P. E. ; RABOU, L. P. L. M. ; BUSCHOW, K. H. J.: Positron-annihilation study of the half-metallic ferromagnet NiMnSb: Experiment. In: *Phys. Rev. B* 42 (1990), 1533

Hecht 2001

HECHT, E.: *Optik*. 3. Auflage. München : Oldenbourg Wissenschaftsverlag, 2001

von Helholt u. a. 1993

HELMOLT, R. von ; WECKER, J. ; HOLZAPFEL, B. ; SCHULTZ, L. ; SAMWER, K.: Giant negative magnetoresistance in perovskitelike $\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_x$ ferromagnetic films. In: *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993), 2331

Heusler 1903

HEUSLER, F.: Titel unbekannt. In: *Verh. Deutsche Physikalische Gesellschaft* 5 (1903)

Hiebert u. a. 1997

HIEBERT, W. K. ; STANKIEWICZ, A. ; FREEMAN, M. R.: Direct Observation of Magnetic Relaxation in a Small Permalloy Disk by Time-Resolved Scanning Kerr Microscopy. In: *Phys. Rev. Lett.* 79 (1997), 1134

Hinds 1994

HINDS INSTRUMENTS (Hrsg.): *PEM-90 Photoelastic Modulator Systems User Manual*. Hillsboro, Oregon: Hinds Instruments, 1994

Höllinger 2004

HÖLLINGER, Rainer: *Statische und dynamische Eigenschaften von ferromagnetischen Nano-Teilchen*, Universität Regensburg, Diss., 2004

Hohlfeld 1998

HOHLFELD, J.: *Ultrafast Electron-, Lattice and Spin-Dynamics in Metals*. Berlin : Verlag für Wissenschaft und Forschung, 1998

Hübner u. Bennemann 1996

HÜBNER, W. ; BENNEMANN, K. H.: Simple theory for spin-lattice relaxation in metallic rare-earth ferromagnets. In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), 3422

Hurley u. Telschow 2002

HURLEY, D. H. ; TELSCHOW, K. L.: Picosecond surface acoustic waves using a suboptical wavelength absorption grating. In: *Phys. Rev. B* 66 (2002), 153301

Ishida u. a. 1998

ISHIDA, S. ; MASAKI, T. ; FUJII, S. ; ASANO, S.: Theoretical search for half-metallic films of Co_2MnZ ($Z = \text{Si}, \text{Ge}$). In: *Physica B* 245 (1998), 1

Jackson 1999

JACKSON, J. D.: *Classical Electrodynamics*. 3. Auflage. New York : John Wiley & Sons, 1999

Ji u. a. 2001

JI, Y. ; STRIJKERS, G. J. ; YANG, F. Y. ; CHIEN, C. L. ; BYERS, J. M. ; ANGUELOUCH, A. ; XIAO, Gang ; GUPTA, A.: Determination of the Spin Polarization of Half-Metallic CrO_2 by Point Contact Andreev Reflection. In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), 5585

Jonker u. Santen 1950

JONKER, G. H. ; SANTEN, J. H. V.: Ferromagnetic compounds of manganese with perovskite structure. In: *Physica* 16 (1950), 337

Kamberský 1970

KAMBERSKÝ, V.: On the Landau-Lifshitz relaxation in ferromagnetic metals. In: *Can. Jour. Phys.* 48 (1970), 2906

van Kampen 2003

KAMPEN, M. van: *Ultrafast Spin Dynamics in Ferrromagnetic Metals*, Technische Universität Eindhoven, Diss., 2003

van Kampen u. a. 2002

KAMPEN, M. van ; JOZSA, C. ; KOHLHEPP, J. T. ; LECLAIR, P. ; LAGAE, L. ; JONGE, W. J. M. ; KOOPMANS, B.: All-Optical Probe of Coherent Spin Waves. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), 227201

Kämper u. a. 1987

KÄMPER, K. P. ; SCHMITT, W. ; GÜNTHERODT, G. ; GAMBINO, R. J. ; RUF, R.: CrO₂ A New Half-Metallic Ferromagnet? In: *Phys. Rev. Lett.* 59 (1987), 2788

Kerr 1877

KERR, J.: On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet. In: *Phil. Mag.* 3 (1877), 321

Kirillova u. a. 1995

KIRILLOVA, M. M. ; MAKHNEV, A. A. ; SHREDER, E. I. ; DYAKINA, V. P. ; GORINA, N. B.: Interband Optical Absorption and Plasma Effects in Half-Metallic XMnY Ferromagnets. In: *phys. stat. sol. (b)* 187 (1995), 231

Kise u. a. 2000

KISE, T. ; OGASAWARA, T. ; ASHIDA, M. ; TOMIOKA, Y. ; TOKURA, Y. ; KUWATA-GONOKAMI, M.: Ultrafast Spin Dynamics and Critical Behavior in Half-Metallic Ferromagnet: Sr₂FeMoO₆. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), 1986

Kittel 2002

KITTEL, C.: *Einführung in die Festkörperphysik*. 13. Auflage. München : Oldenbourg, 2002

Kämmerer u. a. 2003

KÄMMERER, S. ; HEITMANN, S. ; MEYNER, D. ; SUDFELD, D. ; THOMAS, A. ; HÜTTEN, A. ; REISS, G.: Room-temperature preparation and magnetic behavior of Co₂MnSi thin films. In: *J. Appl. Phys.* 93 (2003), 7945

Koopmans 2003

KOOPMANS, B.: Laser-Induced Magnetization Dynamics. In: HILLEBRANDS, B. (Hrsg.) ; OUNADJELA, K. (Hrsg.): *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II*. Berlin : Springer, 2003 (Topics in Applied Physics 87), S. 253–316

Koopmans. u. Dalla Longa 2006

KOOPMANS., B. ; DALLA LONGA, F.: *Derivation of the fitting function for ultrafast demagnetization*. Eindhoven, 2006. – Private Mitteilung

Koopmans u. a. 2005

KOOPMANS, B. ; RUIGROK, J. J. M. ; DALLA LONGA, F. ; JONGE, W. J. M.: Unifying Ultrafast Magnetization Dynamics. In: *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005), 267207

Landau u. Lifschitz 1965

LANDAU, L. D. ; LIFSCHITZ, E. M.: To the theory of the dispersion of the ferromagnetic-body permeability. In: TER HAAR, D. (Hrsg.): *L. D. Landau, Collected Papers*. Oxford : Pergamon, 1965

Lewis u. a. 1997

LEWIS, S. P. ; ALLEN, P. B. ; SASAKI, T.: Band structure and transport properties of CrO_2 . In: *Phys. Rev. B* 55 (1997), 10253

Li u. a. 1999

LI, X. W. ; GUPTA, A. ; XIAO, Giang: Influence of strain on the magnetic properties of epitaxial (100) chromium dioxide (CrO_2) films. In: *Appl. Phys. Lett.* 75 (1999), 713

Lin u. a. 1993

LIN, H.-N. ; MARIS, H. J. ; FREUND, L. B. ; LEE, K. Y. ; LUHN, H. ; KERN, D. P.: Study of vibrational modes of gold nanostructures by picosecond ultrasonics. In: *J. Appl. Phys.* 73 (1993), 37

Lüttich 2004

LÜTTICH, M.: *Wiederaufbau eines Titan-Saphir-Lasers und magnetische Simulation*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2004

Lubitz u. a. 2001

LUBITZ, P. ; RUBINSTEIN, M. ; OSOFSKY, M. S. ; NADGORNÝ, B. E. ; SOULEN, R. J. ; BUSSMANN, K. M. ; GUPTA, A.: Ferromagnetic resonance observation of exchange and relaxation effects in CrO_2 . In: *J. Appl. Phys.* 89 (2001), 6695

Martin u. a. 2003

MARTIN, J. I. ; NOGUES, J. ; LIU, Kai ; VICENT, J. L. ; SCHULLER, Ivan K.: Ordered magnetic nanostructures: fabrication and properties. In: *J. Magn. Mater.* 256 (2003), 449

Matsuda u. a. 1998

MATSUDA, K. ; MACHIDA, A. ; MORITOMO, Y. ; NAKAMURA, A.: Photoinduced demagnetization and its dynamical behavior in a $(Nd_{0.5}Sm_{0.5})_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$ thin film. In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), R4203

Mazin 1999

MAZIN, I. I.: How to Define and Calculate the Degree of Spin Polarization in Ferromagnets. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), Nr. 7, 1427

McGill u. a. 2004

MCGILL, S. A. ; MILLER, R. I. ; TORRENS, O. N. ; MAMCHIK, A. ; CHEN, I-Wei ; KIKKAWA, J. M.: Dynamic Kerr Effect and the Spectral Weight Transfer of the Manganites. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), 047402

Miao u. a. 2005

MIAO, G. ; XIAO, G. ; GUPTA, A.: Variations in the magnetic anisotropy properties of epitaxial CrO₂ films as a function of thickness. In: *Phys. Rev. B* 71 (2005), 094418

Miao u. a. 2006

MIAO, Guo-Xing ; XIAO, Gang ; GUPTA, A.: Influence of substrate treatment on the growth morphology and magnetic anisotropy of epitaxial CrO₂ films. In: *phys. stat. sol. (a)* 203 (2006), 1513

Mills u. Rezende 2003

MILLS, D. L. ; REZENDE, S. M.: Spin Damping in Ultrathin Magnetic Films. In: HILLEBRANDS, B. (Hrsg.) ; OUNADJELA, K. (Hrsg.): *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II*. Berlin : Springer, 2003 (Topics in Applied Physics 87), S. 27–59

Miltat u. a. 2002

MILTAT, J. ; ALBUQUERQUE, G. ; THIAVILLE, A.: An Introduction to Micromagnetics in the Dynamic Regime. In: HILLEBRANDS, B. (Hrsg.) ; OUNADJELA, K. (Hrsg.): *Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures I*. Berlin : Springer, 2002 (Topics in Applied Physics 83), S. 1–31

Moore 1965

MOORE, G.E.: Cramming more components onto integrated circuits. In: *Electronics* 38 (1965)

Moralejo u. a. 2007

MORALEJO, S. ; CASTANO, F.J. ; REDONDO, C. ; JI, R. ; NIELSCH, K. ; ROSS, C.A. ; CASTANO, F.: Fabrication and magnetic properties of hexagonal arrays of NiFe elongated nanomagnets. In: *J. Magn. Magn. Mater.* Im Druck (2007)

Morrish 2001

MORRISH, A. H.: *The Physical Principles of Magnetism*. New York : IEEE Press, 2001

Moshnyaga u. a. 1999

MOSHNYAGA, V. ; KHOROSHUN, I. ; SIDORENKO, A. ; PETRENKO, P. ; WEIDINGER, A. ; ZEITLER, M. ; RAUSCHENBACH, B. ; TIDECKS, R. ; SAMWER, K.: Preparation of rare-earth manganite-oxide thin films by metalorganic aerosol deposition technique. In: *Appl. Phys. Lett.* 74 (1999), 2842

Moussy u. a. 2004

MOUSSY, J.-B. ; GOTA, S. ; BATAILLE, A. ; GUITTET, M.-J. ; GAUTIER-SOYER, M. ; DELILLE, F. ; DIENY, B. ; OTT, F. ; DOAN, T. D. ; WARIN, P. ; BAYLE-GUILLEMAUD, P. ; GATEL, C. ; SNOECK, E.: Thickness dependence of anomalous magnetic behavior in epitaxial $\text{Fe}_3\text{O}_4(111)$ thin films: Effect of density of antiphase boundaries. In: *Phys. Rev. B* 70 (2004), 174448

Nadgorny u. a. 2001

NADGORNÝ, B. ; MAZIN, I. I. ; OSOFSKY, M. ; SOULEN, R. J. ; BROUSSARD, P. ; STROUD, R. M. ; SINGH, D. J. ; HARRIS, V. G. ; ARSENOV, A. ; MUKOVSKII, Ya.: Origin of high transport spin polarization in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$: Direct evidence for minority spin states. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), 184433

Neudecker u. a. 2006

NEUDECKER, I. ; KLÄUI, M. ; PERZLMAIER, K. ; BACKES, D. ; HEYDERMAN, L. J. ; VAZ, C. A. F. ; BLAND, J. A. C. ; RÜDIGER, U. ; BACK, C. H.: Spatially Resolved Dynamic Eigenmode Spectrum of Co Rings. In: *Phys. Rev. Lett.* 96 (2006), 057207

Ogasawara u. a. 2005

OGASAWARA, T. ; OHGUSHI, K. ; TOMIOKA, Y. ; TAKAHASHI, K. S. ; OKAMOTO, H. ; KAWASAKI, M. ; TOKURA, Y.: General Features of Photoinduced Spin Dynamics in Ferromagnetic and Ferrimagnetic Compounds. In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), 087202

O'Handley 2000

O'HANDLEY, R. C.: *Modern Magnetic Materials*. New York : John Wiley & Sons, 2000

Park u. a. 1998

PARK, J.-H. ; VESCOVO, E. ; KIM, H.-J. ; KWON, C. ; RAMESH, R. ; VENKATESAN, T.: Direct evidence for a halfmetallic ferromagnet. In: *Nature* 392 (1998), 794

Pickett u. Moodera 2001

PICKETT, W. E. ; MOODERA, J. S.: Half Metallic Magnets. In: *Physics Today* 54 (2001), 39

Pickett u. Singh 1996

PICKETT, Warren E. ; SINGH, David J.: Electronic structure and half-metallic transport in the $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ system. In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), 1146

Picozzi u. a. 2004

PICOZZI, S. ; CONTINENZA, A. ; FREEMAN, A. J.: Role of structural defects on the half-metallic character of Co_2MnGe and Co_2MnSi Heusler alloys. In: *Phy. Rev. B* 69 (2004), 094423

Prinz 1998

PRINZ, Gary A.: Magnetolectronics. In: *Science* 282 (1998), 1660

Ramos u. a. 2006

RAMOS, A. V. ; MOUSSY, J.-B. ; GUITTET, M.-J. ; BATAILLE, A. M. ; GAUTIER-SOYER, M. ; VIRET, M. ; GATEL, C. ; BAYLE-GUILLEMAUD, P.; SNOECK, E.: Magnetotransport properties of Fe₃O₄ epitaxial thin films: Thickness effects driven by antiphase boundaries. In: *J. Appl. Phys.* 100 (2006), 103902

S. I. Anisimov u. a. 1974

S. I. ANISIMOV, B.L. ; KAPELIOVICH ; PEREL'MAN, T. L.: Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. In: *Sov. Phys. JETP* 39 (1974), 375

Sakurai 1994

SAKURAI, J. J. ; TUAN, San Fu (Hrsg.): *Modern Quantum Mechanics*. 2. Auflage. Reading, Massachusetts : Addison-Wesley, 1994

Samwer 1999

SAMWER, K.: Kolossaler Magnetowiderstand (CMR) in Manganaten - ein Metall-Isolator Übergang im äußeren Magnetfeld. In: *Magnetische Schichtsysteme*. Jülich, 1999 (Schriften des Forschungszentrums Jülich 2)

Schmalhorst u. a. 2007

SCHMALHORST, J. ; THOMAS, A. ; KÄMMERER, S. ; SCHEBAUM, O. ; EBKE, D. ; SACHER, M. D. ; REISS, G. ; HÜTTEN, A. ; TURCHANIN, A. ; GOLZHÄUSER, A. ; ARENHOLZ, E.: Transport properties of magnetic tunnel junctions with Co₂MnSi electrodes: The influence of temperature-dependent interface magnetization and electronic band structure. In: *Phys. Rev. B* 75 (2007), 014403

Schulz 1999

SCHULZ, Max: The end of the road for silicon? In: *Nature* 399 (1999), 729

Schwarz 1986

SCHWARZ, K.: CrO₂ predicted as a half-metallic ferromagnet. In: *J. Phys. F* 16 (1986), L211

Soulen u. a. 1998

SOULEN, Jr. R. J. R. J. ; BYERS, J. M. ; OSOFSKY, M. S. ; NADGORNÝ, B. ; AMBROSE, T. ; CHENG, S. F. ; BROUSSARD, P. R. ; TANAKA, C. T. ; NOWAK, J. ; MOODERA, J. S. ; BARRY, A. ; COEY, J. M.: Measuring the Spin Polarization of a Metal with a Superconducting Point Contact. In: *Science* 282 (1998),85

Sparks u. a. 1961

SPARKS, M. ; LOUDON, R. ; KITTEL, C.: Ferromagnetic Relaxation. I. Theory of the Relaxation of the Uniform Precession and the Degenerate Spectrum in Insulators at Low Temperatures. In: *Phys. Rev.* 122 (1961), 791

Tserkovnyak u. a. 2002

TSERKOVNYAK, Y. ; BRATAAS, A. ; BAUER, G. E. W.: Enhanced Gilbert Damping in Thin Ferromagnetic Films. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), 117601

Tsoi u. a. 2002

TSOI, M. ; TSOI, V. ; BASS, J. ; JANSEN, A. G. M. ; WYDER, P.: Current-Driven Resonances in Magnetic Multilayers. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), 246803

Vaterlaus u. a. 1992

VATERLAUS, A. ; BEUTLER, T. ; GUARISCO, D. ; LUTZ, M. ; MEIER, F.: Spin-lattice relaxation in ferromagnets studied by time-resolved spin-polarized photoemission. In: *Phys. Rev. B* 46 (1992), 5280

Vollmer 1999

VOLLMER, R.: Lineare und nichtlineare Magneto-optik an ultradünnen ferromagnetischen Schichten und Vielfachschichten. In: *Magnetische Schichtsysteme*. Jülich, 1999 (Schriften des Forschungszentrums Jülich 2)

Walowski 2007

WALOWSKI, J.: *Local/Non-Local Gilbert Damping in Permalloy and Nickel Thin Films*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2007

Weber u. a. 2006

WEBER, M. C. ; HILLEBRANDS, B. ; MOSHNYAGA, V. ; SAMWER, K.: Spin-lattice relaxation phenomena in manganite $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ thin films. In: *Europhys. Lett.* 73 (2006), 285

Wokaun u. a.

WOKAUN, A. ; GORDON, J. P. ; LIAO, P. F.: Radiation Damping in Surface-Enhanced Raman Scattering. In: *Phys. Rev. Lett.* 48, 957

Wolf u. a. 2001

WOLF, S. A. ; AWSCHALOM, D. D. ; BUHRMAN, R. A. ; DAUGHTON, J. M. ; MOLNAR, S. von ; ROUKES, M. L. ; CHTCHELKANOVA, A. Y. ; TREGER, D. M.: Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future. In: *Science* 294 (2001), 1488

Woltersdorf u. Heinrich 2004

WOLTERSDFORF, G. ; HEINRICH, B.: Two-magnon scattering in a self-

assembled nanoscale network of misfit dislocations. In: *Phys. Rev. B* 69 (2004), 184417

Yanase u. Siratori 1984

YANASE, A. ; SIRATORI, K.: Band Structure in the High Temperature Phase of Fe_3O_4 . In: *J. Phys. Soc. Jpn.* 53 (1984), 312

Yang u. a. 2000

YANG, F. Y. ; CHIEN, C. L. ; FERRARI, E. F. ; LI, X. W. ; XIAO, Gang ; GUPTA, A.: Uniaxial anisotropy and switching behavior in epitaxial CrO_2 films. In: *Appl. Phys. Lett.* 77 (2000), 286

Zak u. a. 1991

ZAK, J. ; MOOG, E. R. ; LIU, C. ; BADER, S. D.: Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions. In: *Phys. Rev. B* 43 (1991), 6423

Zhang u. Hübner 2000

ZHANG, G. P. ; HÜBNER, W.: Laser-Induced Ultrafast Demagnetization in Ferromagnetic Metals. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), 3025

Zhang u. a. 2002

ZHANG, Qiang ; NURMIKKO, A. V. ; ANGUELOUCH, A. ; XIAO, G. ; GUPTA, A.: Coherent Magnetization Rotation and Phase Control by Ultrashort Optical Pulses in CrO_2 Thin Films. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), 177402

Zhang u. a. 2006

ZHANG, Qiang ; NURMIKKO, A. V. ; MIAO, G. X. ; XIAO, G. ; GUPTA, A.: Ultrafast spin-dynamics in half-metallic CrO_2 thin films. In: *Phys. Rev. B* 74 (2006), 064414

Zhang u. Satpathy 1991

ZHANG, Ze ; SATPATHY, S.: Electron states, magnetism, and the Verwey transition in magnetite. In: *Phys. Rev. B* 44 (1991), 13319

Zhao u. a. 2003

ZHAO, L. ; KELLY, K.L. ; SCHATZ, G.C.: The Extinction Spectra of Silver Nanoparticle Arrays: Influence of Array Structure on Plasmon Resonance Wavelength and Width. In: *J. Phys. Chem. B* 107 (2003), 7343

Zivieri u. Stamps 2006

ZIVIERI, R. ; STAMPS, R. L.: Theory of spin wave modes in tangentially magnetized thin cylindrical dots: A variational approach. In: *Phys. Rev. B* 73 (2006), 144422

Danksagung

An erster Stelle gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. Markus Münzenberg, für die Möglichkeit in seiner Arbeitsgruppe eine Diplomarbeit zu diesen interessanten Fragestellungen anzufertigen. Seine vielen Ratschläge waren mir sehr hilfreich.

Herrn Professor Dr. Felsch danke ich für Übernahme des Korreferats.

Darüber hinaus bin ich auch den Mitgliedern der Arbeitsgruppe Münzenberg - nicht nur für die gute Arbeitsatmosphäre - zu Dank verpflichtet: Dr. Marija Djordjevic hat mich in die Arbeit im Femtosekundenlabor eingewiesen und mir immer wieder beim Justieren geholfen. Gerrit Eilers hat mich mit der UHV-Probenpräparation bekannt gemacht und mir auch regelmäßig bei der Probenherstellung zur Seite gestanden. Ferner hat er die TEM-Lamellen präpariert. Den anderen Diplomanden im Femtosekunden-Labor Jakob Walowski, Zhao Wang und Benjamin Lenk danke ich für die Unterstützung beim Justieren und bei den Messungen. Dr. Anne Parge, Malte Scherff und Zhao Wang gilt mein Dank für die vielen Rasterelektronenmikroskopbilder, die sie für mich angefertigt haben.

Benjamin Lenk, Gerrit Eilers und Simon Friederich danke ich für die Fehlersuche in der fast fertigen Arbeit.

Die Transmissionselektronenmikroskopie wurde von Dr. Tore Niermann durchgeführt. Ihm sei auch - zusammen mit PD Dr. Michael Seibt - für die Diskussionsbereitschaft und die Interpretation der Daten gedankt.

Ferner danke ich Kai Gehrke für die Unterstützung bei der Röntgendiffraktometrie und Dong Du Mai für die Squid-Messungen.

Ohne die vielen Proben, die ich von außerhalb erhalten habe, wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Zu danken ist hierfür: Prof. Dr. Arunava Gupta und Guo-Xing Miao (University of Alabama), Dr. Jan Schmalhorst (Universität Bielefeld), Dr. Ana Ramos (CEA/DRECAM/SPCSI), Kai Gehrke und PD Dr.

V. Moshnyaga (I. Physikalisches Institut), Dr. Kornelius Nielsch und Ran Ji (Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik Halle). Ihnen sei ebenfalls für ihre Diskussionsbereitschaft und die vielen zusätzlichen Informationen gedankt.

Aus einem Aufenthalt in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Bert Koopmans an der Technischen Universität Eindhoven konnte ich großen Gewinn ziehen. Ich danke Prof. Dr. Bert Koopmans und Prof. Dr. Markus Münzenberg für die Ermöglichung dieses Aufenthaltes und Francesco Dalla Longa für die Einweisung und Zusammenarbeit in Eindhoven.

Ich danke dem Evangelischen Studienwerk e.V. Villigst für die Förderung.

Zu guter Letzt möchte ich meinen Eltern für die Unterstützung meines Studiums danken.