



Bachelorarbeit

Einfluss der Pulsdauer auf die Relaxation zum thermischen Gleichgewicht bei Entmagnetisierungsuntersuchungen auf der Femtosekundenzeitskala

Influence of the pulse duration on the thermal path to equilibrium in femtosecond demagnetization experiments

angefertigt von

Martin Lüttich

aus Blankenburg (Harz)

am I. Physikalischen Institut Institut für Tieftemperaturphysik

Bearbeitungszeit: 18. Juli 2011 bis 24. Oktober 2011

Erstgutachter: Prof. Dr. Markus Münzenberg

Zweitgutachter: Prof. Dr. Michael Seibt

Inhaltsverzeichnis

| 1 | Einl | eitung | 1 |
|---|------------|--|----|
| 2 | Grundlagen | | 3 |
| | 2.1 | Brechung am Dispersionsprisma | 4 |
| | 2.2 | Beugung am Echelette-Gitter | 5 |
| | 2.3 | Pulsverformung durch Dispersion | 6 |
| | 2.4 | Autokorrelation | 11 |
| | 2.5 | 2-Temperatur-Model | 11 |
| 3 | Ехр | erimentelle Vorgehensweise | 13 |
| | 3.1 | Aufbau des Ti:Saphir-Lasers | 13 |
| | 3.2 | Verschiedene Methoden zur Pulsstreckung des Pump-Pulses | 15 |
| | | 3.2.1 Pulsstreckung mittels zweier Dispersionsprismen | 15 |
| | | 3.2.2 Pulsstreckung mittels zweier Reflexionsgitter | 16 |
| | | 3.2.3 Pulsstreckung mittels Gruppengeschwindigkeitsdispersion in | |
| | | schwerem Glas | 17 |
| | 3.3 | Messung der zeitlichen Pulsdauer mittels Autokorrelation | 18 |
| | 3.4 | Messung des Strahldurchmessers | 18 |
| | 3.5 | Messung der Sättigungsmagnetisierung | 19 |
| | 3.6 | Messung der Magnetisierungsdynamik | 20 |
| | 3.7 | Messung der Reflektivitätsdynamik | 22 |
| 4 | Aus | wertung und Ergebnisse | 25 |
| | 4.1 | Zeitliche Streckung des Pump-Pulses | 25 |
| | | 4.1.1 mit zwei Dispersionsprismen | 25 |
| | | 4.1.2 mit zwei Reflexionsgittern | 25 |
| | | 4.1.3 mit SF6-Glas | 25 |
| | 4.2 | Pump-Strahldurchmesser | 26 |
| | 4.3 | Magnetisierung | 28 |

In halts verz eichnis

| | 4.4 | Magnetisierungsdynamik | 30 | |
|---|------------|---|----|--|
| | 4.5 | Elektronendynamik und -temperatur | 37 | |
| 5 | Diskussion | | | |
| | 5.1 | Streckung des Pump-Pulses | 41 | |
| | 5.2 | Magnetisierungsuntersuchungen | 41 | |
| 6 | Zusa | ammenfassung | 45 | |
| Α | Vorg | gehensweisen bei den Experimenten | 47 | |
| | A.1 | +/-Dynamik | 47 | |
| | A.2 | Reflektivität | 48 | |
| | A.3 | Hysterese (pump) | 48 | |
| | A.4 | Hysterese (nopump) | 48 | |
| в | zwei | iter Anhang | 51 | |
| | B.1 | Auswertung Magnetisierungsdynamik | 51 | |
| | B.2 | Ergänzungen zur Auswertung der Magnetisierungsdynamik | 52 | |
| | B.3 | Ergänzungen zur Auswertung der Elektronendynamik | 57 | |

1 Einleitung

Die 1996 von Beaurepaire et al. entdeckte ultraschnelle Laser-induzierte Entmagnetisierung von Nickel [6] warf ein neues Gebiet auf – die Magnetisierungsdynamik auf der Femtosekundenzeitskala.

Die vorliegende Arbeit untersucht die Magnetisierungsdynamik einer 15 nm dicken Nickelschicht mit Hilfe des magnetooptischen KERR-Effekts in zeitaufgelösten Pump-Tast-Experimenten. Der Einfluss der Pump-Pulsdauer ist dabei von besonderem Interesse, denn ein tiefes Verständnis der physikalischen Phänomene ist erforderlich, um dem anhaltenden Trend der Miniaturisierung von Datenträgern gerecht zu werden. Die zentrale Frage beschäftigt sich dabei mit dem zeitlichen Magnetisierungsverhalten bei verschieden langen Pump-Pulsen, welche von einigen zehn Femtosekunden bis hin zu einer Pikosekunde andauern sollen.

Ziel des Projektes ist es, mit Pump-Pulsen im Pikosekundenbereich die Magnetisierungsund Reflektivitätsdynamik der Nickelschicht zu untersuchen. Die resultierenden Messwerte sollen mit Messungen der Magnetisierungs- und Reflektivitätsdynamik mit kurzen 80 fs Pulsen verglichen und eine Aussage über die Gültigkeit des 2-Temperatur-Modells getroffen werden.

1 Einleitung

2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden die für das Verständnis dieser Arbeit notwendigen physikalischen Grundlagen erläutert. In den ersten Abschnitten werden die Grundlagen der Optik behandelt, welche insbesondere für den experimentellen Zugang zu den zu untersuchenden magnetischen Phänomenen genutzt werden. Die späteren Abschnitte werden sich mit den Grundlagen und Theorien zur ultraschnellen Magnetisierungsdynamik befassen; dieses Feld der Physik ist noch verhältnismäßig jung und wird gegenwärtig rege diskutiert.

In den ersten Kapiteln wird es um die Grundlagen und Hintergründe der verwendeten optischen Instrumente und Anordnungen gehen. Hierbei wird vorrangig auf die relevanten Aspekte Wert gelegt um den Rahmen dieser Arbeit nicht zu sprengen und weniger auf eine vollständige Beschreibung des jeweiligen Phänomens.

2.1 Brechung am Dispersionsprisma



Die Ausbreitung von Licht hängt unter anderem vom Medium ab, in dem es propagiert. Dies kann mit Hilfe eines Dispersionsprismas veranschaulicht werden. So wird der ausfallende Strahl aufgefächert und ein kontinuierliches Farbspektrum wird sichtbar.

Um den $Offnungswinkel \gamma$ zwischen zwei Wellenlängen zu berechnen, ist zunächst der Ausfallwinkel δ zu bestimmen. Diesen erhält man nach zweifachem Anwenden des SNELLIUSschen Brechungsgesetzes

Abb. 2.1: Schematische Darstellung der spektralen Aufspaltung "weißen" Lichts. $n_0 \sin \theta_i = n_1 \sin \theta_t \quad ,$

wobei θ_i und θ_t Einfall- und Ausfallwinkel an der ersten Grenzfläche und n_0 und n_1 die Brechzahlen von Luft

bzw. dem Material des Prismas sind. Wendet man das Brechungsgesetz auf ein gleichschenkliges Prisma an, erhält man aus geometrischen Überlegungen, dass sich der Ausfallwinkel δ wie folgt durch den Einfallwinkel θ_i , den kleinen Winkel α der dreieckigen Grundfläche und den Brechungsindex n ausdrücken lässt:

$$\delta = \theta_i + \arcsin\left(\sin\alpha\sqrt{n^2 - \sin^2\theta_i} - \sin\theta_i\cos\alpha\right) - \alpha \quad . \tag{2.1}$$

Die so abgeleitete Formel beschreibt jedoch nur monochromatisches Licht, da die Brechung in einem Medium (wie in Abb. 2.1 angedeutet) von der Wellenlänge des Lichtes abhängt – dieses Phänomen wird als *Dispersion* bezeichnet. Zur Charakterisierung der Dispersion wird hier die phänomenologisch motivierte SELLMEIER-Gleichung [13, Kapitel 1.6] genutzt:

$$n^{2}(\lambda) = 1 + \frac{B_{1}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - C_{1}} + \frac{B_{2}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - C_{2}} + \frac{B_{3}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - C_{3}} \quad , \qquad (2.2)$$

wobe
i B_i und C_i materialspezifische Konstanten sind. Aus Gleichung 2.1
ergibt sich so eine Gleichung zur Bestimmung des Öffnungswinkels
 γ zwischen zwei gebrochenen

Strahlen der Wellenlängen λ_1 und λ_2 nach dem Durchgang durch ein Prisma:

$$\gamma(\lambda_1, \lambda_2) = \left| \arcsin\left(\sin\alpha\sqrt{n^2(\lambda_1) - \sin^2\theta_i}\right) - \arcsin\left(\sin\alpha\sqrt{n^2(\lambda_2) - \sin^2\theta_i}\right) \right| \quad ,$$
(2.3)

wobei die verschiedenen Brechungsindizes $n(\lambda_i)$ mit Hilfe von Gleichung 2.2 ermittelt werden.

Stellt man ein zweites Prisma, welches gegenüber dem ersten um 180° verdreht ist, in den Strahlgang hinter das erste Prisma, sodass die beiden einander zugewandten Flächen parallel verlaufen¹, so wird der spektral aufgeweitete Strahl nach dem zweiten Prisma nicht mehr divergieren; er breitet sich als paralleler Strahl aus [11].

2.2 Beugung am Echelette-Gitter

Im Gegensatz zum herkömmlichen Beugungsgitter handelt es sich beim *Echelette-Gitter* um ein Reflexionsgitter. Anstelle der Mehrfachspalte besteht seine Oberfläche aus einer sägezahnartigen Struktur, wie sie in Abb. 2.2 zu erkennen ist. Analog zum



Abb. 2.2: Schematische Darstellung der Reflexion an einem *Echelette-Gitter*. Bildquelle: [10]

¹Dies wird in Kapitel 3.2, Abb. 3.3 dargestellt.

2 Grundlagen

Beugungsgitter lässt sich für das Echelette-Gitter eine Bedingung für *konstruktive Interferenz* aufstellen. Dazu betrachtet man zuerst den Gangunterschied, welcher sich für Strahl (2) bzgl. Strahl (1) für den Fall konstruktiver Interferenz wie folgt verhält:

$$d(\sin \alpha + \sin \beta) = 2d \sin \left(\frac{\alpha + \beta}{2}\right) \cos \left(\frac{\alpha - \beta}{2}\right) \stackrel{!}{=} n\lambda \quad . \tag{2.4}$$

Anhand des Reflexionsgesetzes lässt sich einer der beiden Winkel α und β mit Hilfe des konstanten Glanzwinkels² γ ausdrücken, denn

$$\gamma - \beta = \alpha - \gamma$$
$$\Leftrightarrow \alpha + \beta = 2\gamma \quad \text{und} \quad \alpha - \beta = 2(\gamma - \beta)$$

sodass sich aus Gleichung 2.4 eine vom Einfallwinke
l α unabhängige Gleichung für die konstruktive Interferenz
ergibt:

$$2d\sin\left(\gamma\right)\cos\left(\gamma-\beta\right) = n\lambda \quad . \tag{2.5}$$

,

Mit Hilfe der beiden erläuterten Methoden zur frequenzabhängigen Beugung von Licht lässt sich nun eine Anordnung zum zeitlichen Verlängern von Laserpulsen, welche eine geringe – aber nicht vernachlässigbare – spektrale Bandbreite aufweisen, konstruieren. Eine solche Anordnung lässt die verschiedenen Frequenzanteile des Laserpulses verschiedene optische Strecken passieren, sodass der Puls nach dem Zusammenführen der Frequenzanteile zeitlich gestreckt ist. Zwei Möglichkeiten zur Realisierung dieser Anordnung sind in Kapitel 3.2 beschrieben.

2.3 Pulsverformung durch Dispersion

Nachdem bisher das Hauptaugenmerk auf der geometrischen Optik lag, wird im Folgenden die moderne Optik – insbesondere die *nichtlineare Optik* – zunehmend an Bedeutsamkeit gewinnen.

Durchläuft eine elektromagnetische Welle ein Medium, so erfährt sie eine elektrische und magnetische Wechselwirkung mit der Materie, welche MAXWELL mit seinen Gleichungen beschrieb. Die dort auftretende *dielektrische Verschiebung* **D**

²Der Glanzwinkel (engl.: blaze angle) eines Echelette-Gitters beschreibt den Neigungswinkel seiner sägezahnartigen Oberflächenstruktur.

beschreibt die elektrische Wechselwirkung und hängt mit der elektrischen Feldstärke \mathbf{E} wie folgt zusammen:

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} = \varepsilon_0 (1 + \chi_e) \mathbf{E} \quad . \tag{2.6}$$

Die weiteren Parameter sind die elektrische Feldkonstante ε_0 und die elektrische Suszeptibilität χ_e , ein materialabhängiger Parameter, der im Folgenden aus Gründen der Übersichtlichkeit als χ bezeichnet wird.

Bei hohen elektrischen Feldstärken³ treten Effekte in Erscheinung, die bei geringen Feldstärken oftmals vernachlässigbar klein sind. Um diese weiterhin mit der dielektrischen Verschiebung beschreiben zu können, entwickeln wir \mathbf{P} [7, Kap. 1.1], sodass sich für die Polarisation folgende Gleichung ergibt:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \left[\chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 + \dots \right] \quad .$$
 (2.7)

Unter Verwendung der allgemeinen Definition des (komplexen) Brechungsindexes

$$\tilde{n}^2 := \chi + 1 \tag{2.8}$$

lässt sich die Wirkung des Brechungsindexes nach Real- und Imaginärteil aufteilen:

$$\mathfrak{Re}(\tilde{n}) := n(\omega) \stackrel{\circ}{=} \text{Dispersion}$$
$$\mathfrak{Im}(\tilde{n}) := \alpha(\omega) \stackrel{\circ}{=} \text{Absorption}$$

Ein qualitativer Verlauf der Brechzahl $n(\omega)$ und des Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ ist in Abb. 2.3 als Funktion der Wellenlänge dargestellt. Dabei ist klar erkennbar, dass der Absorptionskoeffizient $\alpha(\omega)$ im Wellenlängenbereich um 800 nm, in dem im Rahmen dieser Arbeit Experimente durchgeführt wurden, konstant ist.

Um nun die Auswirkungen der Dispersion auf einen Laserpuls zu ermitteln, definieren wir den Ausbreitungskoeffizienten

$$\beta(\omega) := \frac{\omega n(\omega)}{c} \quad , \tag{2.9}$$

mit dem sich eine Transferfunktion definieren lässt, die den Effekt eines Mediums auf hindurch propagierendes Licht auf Grund von Dispersion mathematisch beschreibt.

 $^{^3 {\}rm wie}$ beispielsweise bei der Verwendung eines intensiven Lasers



Abb. 2.3: Qualitativer Verlauf von Absorptionskoeffizient α und Brechzahl n von Glas als Funktion der Wellenlänge. Bildquelle: [13, Abb. 3.26].

Mit dieser Transferfunktion $\tau(z, \nu)$ und den Annahmen

$$\alpha(\omega) \simeq \alpha(\omega_0) = const \quad \text{und}$$
$$\beta(\omega) = \beta_0 + \frac{d\beta}{d\omega}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\frac{d^2\beta}{d\omega^2}(\omega - \omega_0)^2$$

lässt sich die *Pulsverformung* bei der Propagation eines gaußförmigen Laserpulses durch ein Medium der Länge l bestimmen. Wegen der hohen Fluenz⁴ einer Lasers ist auch die zweite Ordnung der Entwicklung des Ausbreitungskoeffizienten β zu beachten, welche die *Gruppengeschwindigkeitsdispersion* oder kurz GVD^5 darstellt. Sie lässt sich auch schreiben als

$$D_{\nu} = \frac{1}{2\pi} \frac{\mathrm{d}^2 \beta}{\mathrm{d}\nu^2} = 2\pi \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\omega} \left(\frac{1}{v_g}\right) \quad . \tag{2.10}$$

 $^{^4\}mathrm{Die}$ Fluenz ist definiert als eingestrahlte Leistung pro Fläche. $^5\mathrm{engl.:}$ group velocity dispersion

Damit ergibt sich für den gaußförmigen Puls E(z,t)

$$E(0,t) = E_0 \exp\left[-2\ln(2)(t/\tau_{ini.})^2\right] \exp\left[-i\omega_0 t\right]$$
(2.11)

nach Propagation durch ein Medium der Länge L:

$$E(L,t) = T_0 E_0 \exp\left[\beta_0 L - i\omega_0 t\right] \cdot$$

$$\exp\left[\frac{2\ln(2)(t-t_g)^2}{\tau_{fin.}^2(1+(L/L_D)^2)}\right] \exp\left[i\frac{L}{L_D}\frac{2\ln(2)(t-t_g)^2}{\tau_{fin.}^2(1+(L/L_D)^2)}\right] ,$$
(2.12)

wobei aus Gründen der Übersichtlichkeit $L_D := \tau_{ini.}^2/4\ln(2)D_{\nu}$ eingeführt wurde.

Neben der die Pulsform unverändernden Phasenverschiebung und einer zeitlichen Verschiebung der Gruppe um t_g ergibt sich ausßerdem eine zeitliche Streckung des Pulses, welche ein Ziel dieser Arbeit darstellt:

$$\tau_{fin.}(z=L) = \tau_{ini.}\sqrt{1 + (L/L_D)^2}$$
 (2.13)

Diese Herleitung orientiert sich an Quelle [13, Kap. 3.6]. Aus Gleichung 2.13 ergibt sich, in eine gebräuchlichere Form [8, Anhang C] umgeformt, mit Gl. 2.9 und Gl. 2.10 für die Pulsstreckung in Abhängigkeit der Brechzahl $n(\omega)$ und der Länge L des Glases:

$$\tau_{fin.}(z=L) = \tau_{ini.} \sqrt{1 + \left(4\ln(2)\frac{1}{\tau_{ini.}^2}\frac{L\lambda^3}{2\pi c}\frac{d^2n(\omega)}{d\lambda^2}\right)^2} \quad .$$
(2.14)

Die hier vorkommende zweite Ableitung der Brechzahl $n(\omega)$ wurde anhand der SELLMEIER-Formel analytisch berechnet.



Abb. 2.4: Pulsstreckung für verschiedene Dicken $L \in \{1, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 60\}$ cm eines BK7-Glases (2.4a), bzw. eines SF6-Glases (2.4b). Der grau schraffierte Bereich entspricht der Pulsdauer des verwendeten Ti:Saphir-Lasers von 50 - 60 fs vor der Streckung.

In den Abb. 2.4a und 2.4b ist die theoretische zeitliche Streckung auf Grund der frequenzabhängigen Gruppengeschwindigkeitsdispersion, beschrieben durch Gleichung 2.14, für zwei Glassorten (BK7 und SF6)⁶ bei verschiedenen Dicken *L* dargestellt. Als Ergebnis lässt sich festhalten, dass sich die Pulsstreckung proportional zur Dicke des Glases verhält ($\frac{\tau_{fin.}}{\tau_{ini.}} \sim L$).

2.4 Autokorrelation

Mit Hilfe der Autokorrelation lässt sich die Pulsdauer bestimmen. Die Autokorrelation nutzt eine spezielle Art des Zwei-Wellen-Mischens. Dabei wird mit Hilfe eines nichtlinearen Kristalls eine Zweite Harmonische (SH) aus zwei gleichen Laserpulsen erzeugt. Diese zweite Harmonische ist besonders intensiv, wenn es zum zeitlichen Überlapp beider Pulse im SHG-Kristall kommt. Mathematisch lässt sich die Autokorrelation wie folgt beschreiben

$$c_{\mathcal{E}\mathcal{E}}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}(t) \mathcal{E}^*(t-\tau) \mathrm{d}t \quad .$$
 (2.15)

Dabei ist \mathcal{E} das einfallende elektrische Feld. Das Autokorrelationssignal $c_{\mathcal{E}\mathcal{E}}$ hat somit dieselbe Pulsdauer wie die einfallenden Pulse und stellt so ein Messverfahren zur Bestimmung kürzester Ereignisse dar.

2.5 2-Temperatur-Model

Das 2-Temperatur-Modell wurde von ANISIMOV [3] entwickelt und ist ein phänomenologisches Modell zur Beschreibung des Verhaltens eines Festkörpers bei ultraschneller optischer Anregung. Es beschreibt einen Festkörper dabei durch zwei gekoppelte thermische Bäder: Das Elektronen- und das Gittersystem. Diese beiden Systeme sind über die Elektron-Phonon-Wechselwirkung gekoppelt, wobei die genaue Gestalt dieser Wechselwirkung gegenwärtig rege diskutiert wird. Zur Beschreibung wird die von U. Atxitia et al. in Paper [4] verwendete Notation für die

⁶Die Koeffizienten für die SELLMEIER-Gleichung entstammen den Datenblättern der Firma Schott AG [2],[1].

2 Grundlagen

gekoppelten Differenzialgleichungen genutzt

$$C_{e} \frac{\mathrm{d}T_{e}}{\mathrm{d}t} = -G_{el}(T_{e} - T_{l}) + P(t) - C_{e} \frac{T_{e} - T_{room}}{\tau_{th}}$$
(2.16)

$$C_l \frac{\mathrm{d}T_l}{\mathrm{d}t} = G_{el}(T_e - T_l) \quad , \tag{2.17}$$

mit den Wärmekapazitäten der Elektronen C_e und des Gitters C_l und der Elektronentemperatur T_e , der Gittertemperatur T_l und der Raumtemperatur T_{room} . P ist die eingestrahlte Leistung, G_{el} die Kopplungskonstante zwischen Elektronen- und Gittersystem und τ_{th} die charakteristische Zeitskala der Wärmediffusion. Unter Vernachlässigung der Wärmediffusion ergibt sich für eine gaußförmige Anregung mit einem Exponentialansatz eine Lösung für T_e und T_l , welche die in Abb. 2.5 dargestellt sind. Die Abbildung und die gewählten Konstanten entstammen der Diplomarbeit von G. Müller [15, Kap. 3.3.1].



Abb. 2.5: Darstellung der Lösungen des 2-Temperatur-Modells für T_e und T_l (hier T_p genannt) unter Vernachlässigung der Wärmediffusion. Quelle: [15]

3 Experimentelle Vorgehensweise

Im Folgenden werden alle Vorgehensweisen und Überlegungen zum experimentellen Aufbau beschrieben. Nach einem kurzen Überblick über die Laborbedingungen im Abschnitt 3.1 werden in Abschnitt 3.2 drei Methoden zur zeitlichen Streckung des Pump-Pulses erläutert. Abschnitt 3.3 thematisiert den Aufbau zur Messung der zeitlichen Pulslänge mit Hilfe der Autokorrelation. In den letzten beiden Abschnitten wird schließlich der *TRMOKE-Aufbau* beschrieben, mit dem sowohl die Magnetisierungs- (Abschnitt 3.6) als auch die Reflektivitätsdynamik (Abschnitt 3.7) vermessen werden.

3.1 Aufbau des Ti:Saphir-Lasers

Das Ti:Saphir-Lasersystem besteht im Wesentlichen aus vier Komponenten (Pumplaser, Oszillator, Verstärker und Stretcher/Kompressor), deren Anordnung Abb. 3.1 zu entnehmen ist. Als Pumplaser dient ein frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser ("Verdi V-18", Coherent), welcher mit einer Ausgangsleistung von 16,5 W im cw-Modus¹ bei der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm betrieben wird und den Ti:Saphir-Kristall sowohl im Oszillator wie auch im Verstärker anregt.

Der Oszillator ("Mira", Coherent) ist der eigentliche Kurzzeitlaser. Er beinhaltet das aktive Material, welches hier ein mit Titan dotierter Saphir-Kristall ist. Dieser Kristall wird mit Hilfe des Pumplasers in den Zustand der Besetzungsinversion gebracht, wodurch er den Laserbetrieb aufnimmt und Pulse der Pulsdauer $\tau_{Mira} \approx 60$ fs mit einer Bandbreite von $\omega \sim 50$ nm erzeugt. Die Repetitionsrate der Pulse beträgt 80 MHz und es ergibt sich eine mittlere Leistung von $\langle P_{Mira} \rangle = 650$ mW. Der Ti:Saphir-Laser lässt sich außerdem auch im cw-Modus betreiben, was für diese Arbeit jedoch unerheblich ist.

Die Verstärkung beruht auf der Methode der *Chirped Pulse Amplification*. Der Verstärker ("*RegA 9050", Coherent*) ist ähnlich aufgebaut wie der Oszillator. Er bein-

¹engl.: continuous wave (Dauerstrichbetrieb)



Abb. 3.1: Schematischer Aufbau des verwendeten Lasersystems, bestehend aus Pumplaser (Verdi-V18), Oszillator (Mira), Verstärker (RegA 9050), Strecker/Kompressor. Quelle: [12, Kap. 2.4].

haltet ebenfalls einen Ti:Saphir-Kristall, welcher vom Verdi V-18 gepumpt wird. Die im Strecker² zeitlich gestreckten Pulse des Oszillators werden in den Verstärker eingekoppelt, wobei die Streckung notwendig ist, um die Leistung pro Puls soweit zu verringern, dass der Verstärker nicht beschädigt wird. Dieser wird ebenfalls im gepulsten Modus betrieben, allerdings mit einer Repetitionsrate von ca. 250 kHz, sodass jeder Puls, der aus dem Verstärker ausgekoppelt wird, die Kumulation von ca. 320 Pulsen aus dem Oszillator darstellt. Damit erhöht sich die mittlere Leistung auf $\langle P_{RegA} \rangle \approx 1,5$ W. Diese verstärkten – aber langen – Pulse werden im Kompressor³ schließlich wieder auf eine Pulsdauer von ca. 60 fs komprimiert, wobei die Peak-Intensität verglichen mit den Pulsen aus dem Oszillator um ein Vielfaches erhöht wird (vgl. Abb. 3.2).

²Der Strecker ist ein kommerzielles System (Coherent), welches die Pulse des Oszillators mit Hilfe eines Reflexionsgitters vom Femto- in den Nanosekundenbereich streckt.

³Der Kompressor ist ebenfalls ein kommerzielles System (Coherent), welches die Pulse mit Hilfe eines Reflexionsgitters vom Nano- in den Femtosekundenbereich komprimiert.



Abb. 3.2: Chirped Pulse Amplification. Stationsweise Darstellung der Peak-Intensität des Laserpulses bei der Verstärkung. Bildquelle: [13, Kapitel 8.5].

3.2 Verschiedene Methoden zur Pulsstreckung des Pump-Pulses

Den drei im Folgenden beschriebenen Methoden zur zeitlichen Streckung eines Laserpulses im nahen Infrarot-Bereich liegen zwei verschiedene physikalische Phänomene zu Grunde. Die *Pulsstreckung mittels zweier Dispersionsprismen* und die *Pulsstreckung mittels zweier Reflexionsgitter* resultieren allein aus den unterschiedlichen optischen Wegstrecken, die die verschiedenen Frequenzanteile des gechirpten⁴ Pulses zurücklegen. Sie unterscheiden sich einzig durch das beugende Medium. Die dritte verwendete Methode, *Pulsstreckung mittels Gruppengeschwindigkeitsdispersion in schwerem Glas*, hingegen beruht auf der frequenzabhängigen Phasenverschiebung in optischen Medien.

3.2.1 Pulsstreckung mittels zweier Dispersionsprismen

Die zeitliche Pulsstreckung mit Hilfe zweier Dispersionsprismen nutzt die Winkeldispersion optischer Medien. Die experimentelle Anordnung ist in Abb. 3.3 schematisch dargestellt. Dabei wird der Strahlverlauf so justiert, dass der dispergierte Laserstrahl am Spiegel M in der Art reflektiert wird, dass er genau auf dem Strahlgang des einfallenden Strahls verläuft. Damit wird die Winkeldispersion kompensiert und sowohl die ursprüngliche räumliche Form wie auch der Strahldurchmesser des Pulses wiederhergestellt. Der zeitliche Versatz der verschiedenen Frequenzanteile des Pulses auf Grund der verschiedenen Wegstrecken – respektive Laufzeiten – Δl_i , insbesondere Δl_2 , durch das Prisma P₂ bleibt jedoch erhalten. Zum Vermessen des Bereichs der erreichbaren Pulslängen werden zwei Abstände Δl_1 und Δl_2 einjustiert. Die so

⁴Ein gechirpter Puls besteht aus einem kontinuierlich verteilten, der Wellenlänge nach geordneten Frequenzspektrum um eine Zentralfrequenz.

3 Experimentelle Vorgehensweise



Abb. 3.3: Schematischer Aufbau zur zeitlichen Pulsstreckung mittels zweier Dispersionsprismen P_1, P_2 , einem halbdurchlässigen Spiegel BS (engl.: beam splitter) und einem Spiegel M. Die Auskopplung erfolgt mit Hilfe eines halbdurchlässigen Spiegels. Das Ausmaß der Pulsstreckung wird über die Verschiebungen Δl_1 und Δl_2 eingestellt.

erreichten Pulslängen sind jedoch deutlich kürzer als das Ziel von einer Pikosekunde, sodass eine weitere Methode ausprobiert wurde, bei der die Winkeldispersion wesentlich stärker ist. Sie wird im folgenden Abschnitt erläutert.

3.2.2 Pulsstreckung mittels zweier Reflexionsgitter

Die Geometrie des Pulsstreckungsaufbaus mit zwei Reflexionsgittern nutzt dieselbe Symmetrie aus wie der Aufbau mit zwei Prismen, sodass auch hierbei die ursprüngliche räumliche Form des Pulses wiederhergestellt wird. Die Echelette-Gitter mit dem Glanzwinkel $\gamma = 26^{\circ}45'$ und der Gitterkonstanten $G = 150^{1}/\text{mm}$ dienen – wie die Dispersionsprismen – der spektralen Zerlegung des Laserstrahls. Bei einem Gitter ist die Dispersion allerdings wesentlich größer als bei einem Prisma, wodurch ein wesentlich kompakterer Aufbau realisierbar ist. Auf Grund der Beugung des Laserstrahls in verschiedene *Beugungsordnungen* ergibt sich bei der Verwendung zweier



Abb. 3.4: Schematischer Aufbau zur zeitlichen Pulsstreckung mittels zweier Reflexionsgitter G_1, G_2 und zweier Spiegel M_1, M_2 . Die Auskopplung erfolgt durch leichtes Schrägstellen der Gitter bzgl. ihrer vertikalen Achse. So verläuft der ausfallende Strahl unterhalb des einfallenden und muss mit einem (hier nicht eingezeichneten) Spiegel wieder horizontal ausgerichtet werden. Das Ausmaß der Pulsstreckung wird über den Abstand Δl eingestellt.

Gitter jedoch ein großer Intensitätsverlust, da nach jeder Beugung nur die erste Beugungsordnung weiter verwendet wird.

3.2.3 Pulsstreckung mittels Gruppengeschwindigkeitsdispersion in schwerem Glas

Zur Streckung wird der Laserstrahl durch ein schweres Glas^5 geleitet. Auf Grund der Gruppengeschwindigkeitsdispersion D_{ν} wird der Puls beim Durchlaufen zeitlich gestreckt, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben.

Zuerst wurde zur Pulsstreckung BK7-Glas verwendet, jedoch stand nur ein 1 cm dickes Glas zur Verfügung. Dieses erzielte (vgl. Abb. 2.4a) nur eine geringe Streckung und diente somit nur dazu, die grundsätzliche Funktionsfähigkeit zu demonstrieren. Ein 20 cm langer Glasstab aus SF6 mit stärkeren Brecheigenschaften als BK7 erzielt hingegen eine sehr starke Streckung, wie in Abb. 2.4b zu erkennen ist. Zur Pulsverlängerung wird der SF6-Glasstab in den bestehenden TRMOKE-Aufbau (vgl. Abb. 3.6) zwischen Strahlteiler und Verzögerungsschlitten (Delay-Stage) eingebaut.

 $^{^5\}mathrm{Bei}$ schwerem Glas handelt es sich um Glas mit einer hohen Brechzahln.

3.3 Messung der zeitlichen Pulsdauer mittels Autokorrelation

Zum Vermessen der Pulsdauer wurde das Verfahren der Autokorrelation verwendet. Dabei wird der Laserstrahl, wie in Abb. 3.5 schematisch dargestellt, mit Hilfe eines Strahlteilers in zwei Strahlen aufgeteilt. Ein Teilstrahl verläuft über eine Delay-Stage und wird danach wieder mit dem anderen Strahl, mittels einer Sammellinse auf einen SHG-Kristall fokussiert, zusammengeführt; der andere Teilstrahl läuft direkt in den Kristall. Als SHG-Kristall wird β -BaB₂O₄ (BBO) verwendet. In diesem addieren sich die Frequenzen [13, Kap. 13.4] der beiden einfallenden Teilstrahlen im Falle des zeitlichen Überlapps und erzeugen so einen Strahl der halben Wellenlänge $(\lambda_{T,BBO} \approx 400 \,\mathrm{nm})$ im Vergleich zum einfallenden $(\lambda_0 = (800 \pm 25) \,\mathrm{nm})$ Strahl. Diese Zweite Harmonische breitet sich in Richtung des halben Öffnungswinkels beider einfallender Strahlen aus, sodass auf diese Weise eine räumliche Trennung der Fundamentalen und der Zweiten Harmonischen erfolgt. Da der Öffnungswinkel der einfallenden Strahlen jedoch relativ klein ist, transmittiert der SHG-Kristall einen Teil der einfallenden Fundamentalen. Um dennoch ein reines Signal der Zweiten Harmonischen zu erhalten, wird ein Filter zwischen SHG-Kristall und Fotodiode plaziert, welcher nur einen schmalen Bereich um $\lambda = 400 \,\mathrm{nm}$ transmittiert. Als Filter wurden ein ca. 4 mm dicker *BG39*- bzw. ein *Bandpassfilter* ($\lambda_T = (400 \pm 50)$ nm) verwendet. Das so von der Erzeugung der Zweiten Harmonischen hervorgerufene Intensitätsprofil wird nun abhängig vom Laufzeitunterschied beider einfallenden Teilstrahlen – also der Fundamentalen – mit der Fotodiode aufgenommen.

3.4 Messung des Strahldurchmessers

Um später die Fluenz F des Pump-Strahls nach Gleichung 3.3 bestimmen zu können, ist es notwendig, den Strahldurchmesser auf der Probe zu bestimmen. Diese Messung geschieht anhand der reflektierten Laserleistung an einer Probe mit einer scharfen Kante. Die hierzu verwendete GaAs-Probe wird soweit verschoben, dass der Strahl beim automatisierten Verschieben mit einem Schrittmotor über eine scharfe Kante fährt. Bei jeder Position wird die reflektierte Leistung mit einem Powermeter gemessen. Mit diesem Scanverfahren erhält man eine Integration der Leistung über das reflektierende Gebiet. Daraus ergibt sich nach [14, Anhang C.1] für einen gaußförmigen Strahl die reflektierte Leistung P in Abhängigkeit der Verfahrstrecke



Abb. 3.5: Aufbau zur Messung der Pulsdauer mit Hilfe der Autokorrelation. Der einfallende Laserstrahl wird mit einem Strahlteiler in zwei Teilstrahlen aufgeteilt, welche schließlich im BBO-Kristall in Abhängigkeit des zeitlichen Überlapps eine Zweite Harmonische erzeugen. Der Überlapp wird mit Hilfe einer Delay-Stage (DS) gesteuert.

x als

$$P(x) \propto \operatorname{erf}\left(\frac{\sqrt{2}x}{w}\right) \quad ,$$
 (3.1)

wobei w der gesuchte Strahldurchmesser der Gauß-Mode $P_G = \exp\left(\frac{-x^2}{w^2}\right)$ ist.

3.5 Messung der Sättigungsmagnetisierung

Die Messung der Sättigungsmagnetisierung wird benötigt, um die Messungen der Magnetisierungsdynamik normieren zu können. Insbesondere ist die Sättigungsmagnetisierung bei optischer Anregung interessant, denn sie gibt Aufschluss darüber, wie stark eine Probe durch die Anregung entmagnetisiert werden kann.

Die Messung wird zunächst wie eine herkömmliche Hysteresemessung durchgeführt. Die Magnetisierung wird also bei variierendem externen Magnetfeld zwischen -20 und +20 mT und bei ausgeschaltetem Pump-Strahl mit dem Tast-Strahl auf Grundlage des *magnetooptischen* KERR-*Effekts* (siehe [15, Kap. 3.1]) gemessen. Zusätzlich wird die Sättigungsmagnetisierung bei optischer Anregung durch den Pump-Strahl bei Fluenzen zwischen 20 und $50 \,{}^{mJ}/{cm^2}$ gemessen, bei denen später auch die Magnetisierungs- und die Elektronendynamik gemessen werden soll.

3.6 Messung der Magnetisierungsdynamik

Das Hauptaugenmerk des experimentellen Teils dieser Arbeit liegt auf der Messung der Magnetisierung als Funktion der Zeit in Folge optischer Anregung. Mit Hilfe dieser Messung soll eine Aussage über die Gültigkeit des 2-Temperatur-Modells getroffen werden, welches in Abschnitt 2.5 eingeführt wurde.

Die Messung der Magnetisierung erfolgt mit Hilfe des magnetooptischen KERR-Effekts. Weiterhin wird eine Modulationsmethode angewendet, deren Aufbau einem $PCSA-Ellipsometer (Polarisator - Compensator - Sample - Analysator)^6 entspricht$ [5]. Der dazu verwendete Laserstrahl, welcher aus ca. 60 fs langen Laserpulsen mit einer Repetitionsrate von 250 kHz besteht, ist zunächst linear p-polarisiert. Mit Hilfe eines $\lambda/4$ -Plättchens wird die elektromagnetische Welle zirkular polarisiert. Dieser zirkulare Polarisationszustand wird für die Modulation des Signals mittels des Photoelastischen Modulators (kurz PEM) benötigt. Der PEM erzeugt aus zirkular polarisiertem Licht im $\lambda/4$ -Betrieb alternierend linear und zirkular polarisiertes Licht mit einer Modulationsfrequenz von 50 kHz. Der Phasenunterschied zwischen zwei gleichartig polarisierten Wellen beträgt 90°. Nach dem PEM propagiert der Tast-Strahl auf die zu untersuchende Probe und der reflektierte Strahl passiert vor der Detektion mit einer Fotodiode den Analysator. Das mit der Fotodiode aufgenommene Signal wird von einem LockIn-Verstärker, welcher mit der Frequenz des PEM getriggert wird, ausgewertet. Die Stellung des Analysators wird vor der Messung so justiert, dass bei eingeschaltetem externen Magnetfeld ohne optische Anregung das mit dem LockIn-Verstärker gemessene Signal verschwindet. Auf diese Weise wird die Änderung der Magnetisierung aufgrund der optischen Anregung gemessen. Eine detaillierte Beschreibung dieses Modulationsverfahrens mit Beispielrechnungen ist in der Diplomarbeit von M. Münzenberg [16, Kap. II.2] zu finden.

Um den zeitlichen Verlauf der Magnetisierung – also die Magnetisierungsdynamik – zu messen, bedarf es einer Anregung und einer Triggerung auf ebendiese. Dazu wird der einfallende Laserstrahl, wie in Abb. 3.6 dargestellt, an einem Strahlteiler in einen Pump- (reflektiert, 95%) und einen Tast-Strahl (transmittiert, 5%) aufgeteilt. Dieses Verfahren heißt Pump-Tast-Experiment⁷. Der Tast-Strahl verläuft wie beim eben erläuterten PCSA-Ellipsometer. Der Pump-Strahl hingegen verläuft zur Variation des Zeitunterschiedes $\Delta \tau$ zwischen Pump- und Tast-Puls über einen Verzögerungsschlitten. Der danach passierte Chopper besteht aus einer geschlitzten

⁶dt.: Polarisator – Phasenplatte – Probe – Analysator

⁷engl.: pump probe experiment

Scheibe. Die Rotationsfrequenz des Choppers wird so eingestellt, dass der Pump-Puls mit einer Frequenz von 800 Hz gechoppt wird und dient als Triggerung für einen zweiten LockIn-Verstärker, der so das Rauschen verringert.

Auf Grund des hohen Brechungsindizes von SF6-Glas erhöht sich die Propagationszeit durch den Stab (verglichen mit Luft) und der zeitliche Überlapp mit dem Tast-Strahl muss neu eingestellt werden. Für die Wellenlänge $\lambda = 852,1$ nm hat SF6 die Brechzahl n = 1,78157 [1], woraus für die Erhöhung der Propagationszeit folgt:

$$\Delta t = (1 - n) \frac{s}{c_0}$$

$$= 0.78 \cdot \frac{20 \,\mathrm{cm}}{2.998 \cdot 10^8 \,m/s} \approx 520 \,\mathrm{ps} \quad .$$
(3.2)

Im Vergleich zu TRMOKE-Messungen mit 60 fs-Pump-Pulsen wird die Delay-Stage so weit verschoben, dass die Propagation durch Luft um 550 ps verkürzt wird. Der genaue Zeitpunkt des Überlapps wird mit Hilfe des Messprogrammes +/-Dynamik⁸ bestimmt, welches die Magnetisierungsdynamik bei eingeschaltetem externen Feld für verschiedene zeitliche Abstände von Pump- und Tast-Puls aufzeichnet.

Die zu messende Nickelprobe befindet sich in einem externen Magnetfeld. Dieses Magnetfeld wird mit einem Elektromagneten und einem offenen Eisenkern erzeugt und erreicht zwischen den Polschuhen, wo sich die Probe parallel zu den Feldlinien (*in plane*) befindet, die Feldstärke B = 130 mT. Die automatisierte Messung der Magnetisierungsdynamik mit dem Programm +/-Dynamik erfolgt erst bei konstantem externen Magnetfeld und in einer zweiten Messung bei entgegengesetzt angelegtem konstanten Magnetfeld. Durch Subtraktion beider Datensätze

$$\Theta_k = \frac{1}{2} \left(S_+ - S_- \right)$$

wird der Anteil des Signals heraussubtrahiert, der aus der Reflektivität der Probe resultiert, da die Reflektivität unabhängig von der angelegten Feldrichtung ist, das Magnetisierungssignal jedoch sein Vorzeichen wechselt.

Diese Messung der Magnetisierungsdynamik wird für verschiedene Fluenzen zwischen 20 und $50 \,{\rm mJ/cm^2}$ des Pump-Strahls durchgeführt (vgl. Tabelle 3.1). Dabei ändert sich die Fluenz des Tast-Strahls im, durch den Strahlteiler festgelegten, Ver-

⁸Das Programm +/-Dynamik wurde von Dipl. Phys. Benjamin Lenk aus der AG Münzenberg in LabVIEW geschrieben und dient zur automatisierten Messung der Magnetisierungsdynamik bei angelegtem externen Magnetfeld. Dabei wird nacheinander eine Messung für eine (+) und schließlich die entgegengesetzte (-) Feldrichtung durchgeführt.



Abb. 3.6: Schematischer Aufbau für die zeitabhängige Messung der Magnetisierungsänderung (TRMOKE) in Folge optischer Anregung. Abbildung nach [12, Kap. 2.4].

hältnis von 90/10. Die Fluenz ergibt sich aus der mittleren Leistung $\langle P\rangle$ des Pump-Strahls

$$F \left[{^{\rm mJ/cm^2}} \right] = \frac{16 \cdot 10^2 \cdot \langle P \rangle \left[{\rm mW} \right]}{\pi \cdot w^2 \left[\mu {\rm m^2} \right]}$$
(3.3)

mit dem Strahldurchmesser w. Die Messung der Leistung erfolgt mit einem hinter dem Chopper plazierten Powermeter ("Fieldmaster", Coherent).

Eine detaillierte Abfolge aller für die Messung der Magnetisierungsdynamik notwendigen Schritte ist in Anhang A.1 aufgelistet.

3.7 Messung der Reflektivitätsdynamik

Anhand der Reflektivität lässt sich eine Aussage über die im Elektronensystem deponierte thermische Energie treffen. Dies lässt sich mit Hilfe eines Energieschemas nachvollziehen: Werden Elektronen mit einer Energie $h\nu$ angeregt, so sinkt die zuge-

| $\begin{array}{c} Pumpfluenz \\ \left[{^{mJ}\!/\!{cm^2}} \right] \end{array}$ | Intensität [mW] |
|--|--------------------|
| 20 | 110 |
| 25 | 138 |
| 30 | 165 |
| 40 | 221 |
| 50 | 276 |

Tab. 3.1: Verwendete Fluenzen des Pump-Pulses bei einem Strahldurchmesser $w = 53 \,\mu\text{m}$.

hörige Zustandsdichte. Es sind also weniger mit dieser Wellenlänge anregbare Elektronen vorhanden, was bedeutet, dass die Reflektivität verringert ist. Die Lebenszeiten dieser angeregten Zustände befinden sich auf der Femtosekundenzeitskala und die Untersuchung ihres Einflusses auf die Magnetisierungsdynamik ist Gegenstand dieser Arbeit.

Die Reflektivität wird in Abhängigkeit des zeitlichen Abstandes zum Pump-Puls für verschiedene Fluenzen gemessen. Die Fluenzen sind dabei dieselben, wie bei der Messung der Magnetisierungsdynamik im vorherigen Kapitel. Darüber hinaus wird kein Magnetfeld angelegt, wodurch das Modulationsverfahren mit Hilfe des PEM nicht benötigt wird. Im ausgeschalteten Zustand erzeugt der PEM aus zirkular polarisiertem linear polarisiertes Licht, und PEM und $\lambda/4$ -Plättchen können im Strahlgang stehen bleiben. Der Analysator wird im Gegensatz zu den Magnetisierungsmessungen parallel zur linearen Polarisation des Tast-Strahls eingestellt, sodass das Signal an der Fotodiode maximiert wird. Um das Signal zu kalibrieren, wird der Polarisator vor der Referenzfotodiode so eingestellt, dass die dort messbare Fotospannung bei geblocktem Pump-Strahl die gleiche ist, wie bei der Fotodiode hinter dem Analysator. Als Eingangssignal am LockIn-Verstärker wird die Differenz der Signale beider Fotodioden so gewählt, dass die Messung nicht durch Schwankungen der Intensität des Tast-Strahls beeinflusst wird. Zur Rauschunterdrückung mit Hilfe des LockIn-Verstärkers wird der Pump-Strahl auch hier mit einer Frequenz von 800 Hz gechoppt.

3 Experimentelle Vorgehensweise

4 Auswertung und Ergebnisse

4.1 Zeitliche Streckung des Pump-Pulses

4.1.1 mit zwei Dispersionsprismen

Die Pulsstreckung mit zwei Dispersionsprismen gelang nur mäßig. Bei einem Abstand $\Delta l_1 \approx 2 \,\mathrm{m}$ wurde der Puls von $\tau_{ini.} = 60 \,\mathrm{fs}$ auf $\tau_{fin.} = (135 \pm 10) \,\mathrm{fs}$ gestreckt. Da sich die Pulsstreckung linear zum Abstand Δl_1 verhält, wäre für eine finale Pulsdauer von einer Pikosekunde ein Abstand $\Delta l_1 = 3,5 \,\mathrm{m}$ notwendig. Damit der Tast-Puls die Probe zur gleichen Zeit trifft, müsste dieser zudem über einen zusätzlichen Weg $s \geq 7 \,\mathrm{m}$ verlaufen. Daher wurde diese Methode zur Pulsstreckung nicht weiter verfolgt.

4.1.2 mit zwei Reflexionsgittern

Mit zwei Reflexionsgittern wurde bei einem Abstand $\Delta l \approx 5 \,\mathrm{cm}$ der beiden Gitter eine Pulsstreckung von $\tau_{ini.} = 60 \,\mathrm{fs}$ auf $\tau_{fin.} \approx (9 \pm 2) \,\mathrm{ps}$ erzielt. Auf Grund der Beugung in die verschiedenen Beugungsordnungen ergab sich jedoch ein Leistungsverlust von 99,5 %. Die verbleibende Leistung war viel zu gering für die angestrebten Fluenzen. Daher wurde diese Methode zur Pulsstreckung nicht weiter verfolgt.

4.1.3 mit SF6-Glas

Mit dem 20 cm langen SF6-Glasstab wurde eine Pulsstreckung von $\tau_{ini.} = (60\pm 20)$ fs auf $\tau_{fin.} = (3700\pm 500)$ fs erzielt. Es gab keine nennenswerten Leistungsverluste und die angestrebten Pumpfluenzen bis zu 50 mJ/cm^2 konnten erreicht werden. In Abb. 4.1 sind die Messergebnisse der Autokorrelation aufgetragen.

Die schwarzen Datenpunkte entsprechen dabei dem Aufbau mit einem Bandpassfilter zwischen SHG-Kristall und Fotodiode bei den blauen Datenpunkten wurde ein BG39-Filter verwendet. Dabei fällt auf, dass sich ein signifikanten Unterschied der



Abb. 4.1: Messergebnisse der Autokorrelation. Links (a) ist das Messergebnis und der Gauß-Fit für einen kurzen Puls, direkt hinter dem Kompressor, dargestellt. Rechts (b) ist der Puls nach der Streckung mittels eines 20 cm langen SF6-Glasstabs und der Gauß-Fit dargestellt. Beide Pulse wurden zunächst mit einem Bandpass und später mit einem BG39-Filter zwischen SHK-Kristall und Fotodiode gemessen.

ermittelten Pulsdauer in Abhängigkeit des verwendeten Filters ergibt. Außerdem ist die transmittierte Leistung des BG39 geringer, wobei kein Spektrum des transmittierten Lichts aufgenommen wurde und daher keine belastbare Aussage über den transmittierten Anteil der Zweiten Harmonischen gemacht werden kann.

4.2 Pump-Strahldurchmesser

In Abb. 4.2 ist die reflektierte Leistung in Abhängigkeit der Position der GaAs-Kante im Laserspot dargestellt.

Ein Fit der Fehlerfunktion

$$f(x) \propto \operatorname{erf}\left(\frac{x-x_c}{w}\right) + y_0$$



Abb. 4.2: Reflektierte Leistung (schwarz) des gaußförmigen Laserstrahls mit angefitteter Fehlerfunktion (rot) ergibt einen Strahldurchmesser $w = (53 \pm 1) \, \mu \text{m}$.

an die Daten ergibt einen Strahldurchmesser von $w = (53 \pm 1) \,\mu\text{m}$.

4.3 Magnetisierung

Die aufgezeichneten Daten aus der TRMOKE-Messung beschreiben zunächst nur die relative KERR-Drehung der linearen Polarisation des Tast-Strahls. Um daraus einen Rückschluss auf die Änderung der Magnetisierung im Bezug auf die nicht angeregte Probe ziehen zu können, wird für jede Fluenz, bei der die Magnetisierungsdynamik gemessen werden soll, eine Eichung benötigt. Diese Eichung besteht in der Ermittlung der Sättigungsmagnetisierung zunächst ohne optische Anregung und dann mit Anregung durch den Pump-Puls. Bei letzterer steht der Pump-Puls in genau dem zeitlichen Versatz $\Delta \tau$ zum Tast-Puls, sodass die Magnetisierungsänderung maximal ist.



Abb. 4.3: Normierte relative Magnetisierung der Probe Ni 15 nm in Abhängigkeit des externen Magnetfeldes unter Variation der eingestrahlten Pumpfluenz von 0 bis 50 mJ/cm². Die gestrichelten Linien stellen den Mittelwert der Sättigungsmagnetisierung bei der jeweiligen Pumpfluenz dar.

Aus diesen Messungen der *Hysterese* wird durch Mittelung über alle Daten im Sättigungsbereich die relative Entmagnetisierung der angeregten Probe bzgl. der nicht angeregten Probe für verschiedene Fluenzen ermittelt. Die in Abb. 4.3 farbig dargestellten Daten bilden die relative Magnetisierung der jeweiligen Pumpfluenz als Funktion des angelegten externen Magnetfeldes ab und die schwarzen Linien die jeweils zugehörigen Magnetisierungsdaten ohne Anregung. Dabei fällt auf, dass sich die Sättigungsmagnetisierung nicht linear als Funktion der Pumpfluenz, sondern unterproportional dazu verhält, wie es anhand der blauen Messwerte in Abb. 4.4 zu erkennen ist. Darüber hinaus ergibt sich für 3700 fs lange Pump-Pulse eine wesentlich höhere Entmagnetisierung bei der jeweiligen Pumpfluenz verglichen mit 80 fs langen Pump-Pulsen, wie es in Abb. 4.4 zu erkennen ist. Die Vergleichsdaten für $\tau_{Pump} =$ 80 fs entstammen Messungen im Zusammenhang mit der Veröffentlichung von U. Atxitia et al. [4]¹. Im Anhang B.2 ist ein vergrößerter Abschnitt der Hysteresekurven zum Vergleich der Messdaten bei beiden Pulslängen des Pump-Pulses in Abb. B.1 darstellt.



Abb. 4.4: Entmagnetisierung auf Grund optischer Anregung bei verschiedenen Pumpfluenzen verglichen mit kurzen (80 fs langen¹) Pump-Pulsen. Die durchgezogenen Linien dienen ausschließlich der optischen Führung.

¹Die zitierten Hysteresedaten sind nicht explizit im Paper veröffentlicht, da sie vorrangig für die Normierung der dort publizierten Entmagnetisierungskurven genutzt wurden.

4.4 Magnetisierungsdynamik

Die Magnetisierungsdynamik wurde mittels des in Abschnitt 3.6 beschriebenen TRMOKE-Pump-Tast-Verfahrens für fünf verschiedene Fluenzen der Pump-Pulse zwischen 20 und 50 $^{mJ/cm^2}$ gemessen. Der Einfluss des Pump-Pulses auf eine 15 nm dicke Nickel-Schicht auf einem Siliziumsubstrat wurde über einen Zeitraum von 20 ps vor seinem Eintreffen bis 120 ps danach ermittelt.

Die Daten sind in Abb. 4.5 als Funktion der Zeit aufgetragen. Zum Vergleich ist der gaußförmige Pump-Puls rot eingezeichnet, wobei lediglich die zeitliche Ausdehnung physikalisch korrekt dargestellt wird². In der unteren Abbildung ist der schmale Bereich der abfallenden Magnetisierung vergrößert dargestellt.

Die farbigen Kurven stellen die verschiedenen Fluenzen des Pump-Pulses dar. Die mit TRMOKE gemessene KERR-Rotation Θ_k ist kalibriert auf die KERR-Rotation bei Zimmertemperatur $\Theta_{k,300 \text{ K}}$ bei der Sättigungsmagnetisierung ohne optische Anregung. Die auf der Abszisse aufgetragene Zeit $\Delta \tau$ stellt den Zeitunterschied zwischen Pump- und Tast-Puls dar und wird in einem Bereich zwischen -10 und +100 ps dargestellt. Eine Messung bis zu +1000 ps war aufgrund des Platzmangels nicht möglich, wie es in der Zeichnung des Messaufbaus (Abb. 3.6) zu sehen ist, denn der hintere Teil der dafür notwendigen Verfahrstrecke des Verzögerungsschlittens wurde durch den Glasstab versperrt.

Zur Analyse werden die Daten bezüglich der in Abschnitt 4.3 bestimmten relativen Entmagnetisierung für jede Fluenz normiert. Anschließend wird der zeitliche Nullpunkt $\Delta \tau = 0$ so verschoben, dass die Änderung der Magnetisierung bei $\Delta \tau = 0$ beginnt³. Mit diesem Verfahren wird von der bisher in der Arbeitsgruppe üblichen Kalibrierung des Zeitunterschieds zwischen Pump- und Tast-Strahl abgewichen, nach der der Zeitunterschied mit der stärksten Anregung durch den Pump-Puls als zeitliche Nullstelle definiert wurde. Da in dieser Arbeit die Pump-Pulse jedoch nicht 80 fs sondern 3700 fs lang sind, erzielen sie, verglichen mit den Tast-Pulsen ($\tau_{Tast} \approx 80$ fs), effektiv auch keine instantane – also delta-förmige – Anregung.

In den Abbildungen 4.5 ist deutlich die unterproportional steigende Entmagneti-

 $^{^2 \}mathrm{Die}$ Amplitude des Gauß-Pulses wurde in der Abbildung frei gewählt, sodass er gut zu erkennen ist.

³Der Messaufbau ist so justiert, dass die Delay-Stage ihre Nullposition (und damit auch die Nullstelle von $\Delta \tau$) an der Stelle der maximalen Magnetisierungsänderung hat, da bei diesem Zeitunterschied zwischen Pump- und Tast-Strahl die angeregten Hysteresedaten aufgenommen werden. Aus diesem Grund ist diese Stelle keine physikalisch sinnvolle Nullstelle im Bezug auf die Magnetisierungsmessung und wird später in der Datenanalyse neu gesetzt.

sierung erkennbar, die bereits in Abschnitt 4.3 bei den Hysteresemessungen festgestellt werden konnten. Die Messdaten bei $F = 25 \text{ mJ/cm}^2$ sind auch hier sehr nah an den Daten der Messung bei $F = 20 \text{ mJ/cm}^2$, wie es ebenfalls bereits bei den Hysteresemessungen bereits auftrat.

Bei allen Pumpfluenzen beginnen die Messwerte bei einer relativen Magnetisierung von $\theta_k/\theta_{k,300\,\mathrm{K}} = 1$. Hier ist die Probe bei eingeschaltetem Magnetfeld gesättigt. Zur Zeit $\Delta \tau = 0$ trifft der rot angedeutete gaußförmige Pump-Puls auf und regt die Probe an, was zu einer starken Entmagnetisierung führt. Da die exakte Ermittlung des Zeitpunktes $\Delta \tau$, an dem der Pump-Puls eintrifft, für die in dieser Arbeit behandelten Fragen mehr Aufwand als Nutzen hervorrufen würde, wurde das Extremum des gaußförmigen Pump-Pulses an die Stelle $\Delta \tau'$ gelegt, wo die Änderung der Elektronendynamik ihr Maximum hat. Dies ist physikalisch gerechtfertigt, da der schnellste Prozess in der Anregung der Elektronen auf ein höheres Energieniveau besteht.

Betrachtet man die Messung bei $F = 20 \text{ mJ/cm}^2$ (blau), so erkennt man kurz nach der maximalen Entmagnetisierung und damit nach "Abschluss" der Anregung einen rapiden Anstieg der Magnetisierung im Bereich von 5 bis 10 ps. Man nennt dieses Verhalten erste *Relaxation*. Bei höheren Zeiten $\Delta \tau > 10$ ps steigt die Magnetisierung nur noch verhältnismäßig langsam. Man spricht von der zweiten Relaxation. Dieses Verhalten wird später in Form der Lösung des 2-Temperatur-Modells noch genauer betrachtet.

Vergleicht man die Magnetisierungsdynamik bei hohen Fluenzen (40 und $50 \,{\rm mJ/cm^2}$), stellt man fest, dass kein Unterschied mehr zwischen zwei verschiedenen Zeitskalen der Relaxation zu erkennen ist.



Abb. 4.5: Normierte Magnetisierungsdynamik aus TRMOKE-Messungen bei optischer Anregung mit den Fluenzen $F = 20, 25, 30, 40, 50 \text{ mJ/cm}^2$ mit der Pump-Pulsdauer $\tau_{Pump} \approx 3700 \text{ fs.}$

Im direkten Vergleich zu den Experimenten mit 80 fs langen Pump-Pulsen (dargestellt in Abb. 4.6 rechts) ist zu erkennen, dass die Magnetisierung bei kurzen Anregungen sehr viel schneller ihren Gleichgewichtszustand erreicht. Dieser liegt für beide Anregungspulsdauern bei derselben Magnetisierung $\Theta'_k/\Theta_{k,300 \text{ K}}$, da die Pulse verschiedener Pulslänge jeweils die gleiche Fluenz und damit die gleiche Energie aufweisen. Die Relaxation für Pump-Pulse mit $\tau = 3700 \text{ fs}$ ist also sehr viel langsamer als mit 80 fs langen Pulsen.



Abb. 4.6: Vergleich der Magnetisierungsdynamik der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Daten für die Pump-Pulsdauer $\tau_{Pump} \approx 3700$ fs mit der Magnetisierungsdynamik für die Pump-Pulsdauer $\tau_{Pump} \approx 80$ fs aus [4].

Die in den Grundlagen zum 2-Temperatur-Modell (Abschnitt 2.5) angesprochenen verschiedenen Prozesse bei der Entmagnetisierung, welche auf verschiedenen Zeitskalen auftreten, sollen nun qualitativ erfasst werden. Dabei ist es mit den im Rahmen dieser Arbeit gemachten Messungen nicht möglich, eine präzise quantitative Auswertung der Zeitskalen vorzunehmen; dafür ist beispielsweise die ermittelte Dauer des Pump-Pulses nicht genau genug.

Die hier verwendete Modellierung der aufgezeichneten Daten erfolgt mittels einer von F. Dalla Longa [?] aufgestellten Lösung des 2-Temperatur-Modells und beschreibt die Magnetisierungsdynamik mit Hilfe der Entmagnetisierungszeit t_m und der zwei Relaxationszeiten t_e und $t_{m,re}$. Weitere Parameter sind die Pump-Pulsdauer τ_{Pump}

4 Auswertung und Ergebnisse

und die Koeffizienten A_1, A_2, A_3 für die jeweiligen Amplituden, die Verschiebung t_0 und der Offset C.

$$\begin{split} f(x) &= \frac{A_1}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}}{\tau_{Pump}} \right) \right] \\ &- \frac{A_2 t_e - A_1 t_m}{2(t_e - t_m)} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2} \tau_{Pump}}{4t_m} \right) \right] \exp \left(-\frac{x - x_0}{t_m} + \frac{\tau_{Pump}^2}{8t_m^2} \right) \\ &- \frac{(A_1 - A_2) t_e}{2(t_e - t_m)} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}}{\tau_{Pump}} - \frac{\sqrt{2} \tau_{Pump}}{4t_e} \right) \right] \exp \left(-\frac{x - x_0}{t_e} + \frac{\tau_{Pump}^2}{8t_e^2} \right) \\ &- \frac{A_3}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}}{\tau_{Pump}} - \frac{\sqrt{2} \tau_{Pump}}{4t_{m,re}} \right) \right] \exp \left(-\frac{x - x_0}{t_{m,re}} + \frac{\tau_{Pump}}{8t_{m,re}^2} \right) + C \end{split}$$

$$(4.1)$$

Zur Übersichtlichkeit ist die Notation in der Fitfunktion bzgl. der Plots zu Dynamikmessungen insofern geändert, dass der Zeitunterschied zwischen Pump- und Tast-Puls nicht $\Delta \tau$, sondern x genannt wird (die Verschiebung x_0 analog).

Bei der Anpassung ist C = 1 fest vorgegeben und τ_{Pump} wird einmal als fest angenommen (mit dem Wert aus der Autokorrelationsmessung in Abschnitt ??) und einmal als Fitparameter mit angepasst. Dabei fällt auf, dass die Anpassungen bei allen Fluenzen (vgl. Abb. 4.7)⁴ eine Pump-Pulsdauer von $\tau = (2,5 \pm 0,1)$ ps ergeben und die damit entstehenden Fits ein viel geringeres χ^2 erzielen. Die bessere Anpassung bei nicht festgehaltener Pump-Pulsdauer τ_{Pump} ist in der Vergrößerung des Bereichs der Anregung in Abb. 4.7 rechts gut zu erkennen.

Plottet man die resultierenden Entmagnetisierungszeiten τ_m aus den Fits mit und ohne festgehaltener Pump-Pulsdauer, so ergibt sich Abb. 4.8. In beiden Fällen zeigt sich ein abfallender Trend.

⁴Die Graphen für die restlichen Fluenzen befinden sich im Anhang B.2: Abb. B.4 und B.5.



Abb. 4.7: Magnetisierungsdynamik bei einer Pumpfluenz von 50 mJ/cm^2 . Farbig dargestellt sind zwei Verläufe der gefitteten Funktion. Die Grüne wurde mit fester Pulsdauer τ angepasst, bei der Roten ist auch τ ein freier Fitparameter. Der im rechten Bereich dargestellte Ausschnitt zeigt den Bereich der Abweichung beider Fits vergrößert.



Abb. 4.8: Entmagnetisierungszeit t_m als Parameter der gefitteten Gleichung 4.1 in Abhängigkeit der Pumpfluenz. Für die roten Datenpunkte wurde beim Fit die Dauer des Pumppulses fest mit $\tau_{Pump} = 3700 \,\mathrm{fs}$ angenommen; für die schwarzen Datenpunkte wurde die Dauer des Pumppulses angepasst. Der Fit für $F = 25 \,\mathrm{mJ/cm^2}$ konvergierte nicht, sodass der dabei erhaltene Wert für t_m hier nicht dargestellt wird. Die durchgezogenen Linien dienen ausschließlich der optischen Führung.

Aus der Fitfunktion 4.1 lassen sich auch die zwei Relaxationszeiten t_e und $t_{m,re}$ ermitteln. Die Fits sind auch hier einmal mit fester Pump-Pulsdauer τ_{Pump} (cyan und orange) und einmal mit anzupassender Pulsdauer (blau und grün) angepasst worden. Die Ergebnisse für die verschiedenen Fluenzen sind in Abb. 4.9 dargestellt. Hier lässt sich für hohe Fluenzen ($F \geq 30 \,\mathrm{mJ/cm^2}$) ein Aufwärtstrend der zweiten Relaxation $t_{m,re}$ erkennen. Lediglich das ermittelte $t_{m,re}$ für $F = 20 \,\mathrm{mJ/cm^2}$ weicht von diesem Trend ab, was aber für beide Fitvarianten gilt.

Die erste Relaxationszeit bleibt beim Fit mit anzupassendem τ_{Pump} für kleine Fluenzen nahezu konstant (schwarz gestrichelt) und steigt erst bei der höchsten Pumpfluenz, wobei der zugehörige Fehlerbalken auch den Bereich eines mit der Fluenz konstanten τ_e mit abdeckt. Die Fitvariante mit festem τ_{Pump} schwankt in einem größeren Bereich, aber ohne erkennbaren Trend, um die angedeutete Konstante.



Abb. 4.9: Erste und zweite Relaxationszeit t_e und $t_{m,re}$ als Parameter der an die Daten der Magnetisierungsdynamik in Abhängigkeit der Pumpfluenz gefitteten Gleichung 4.1. Für die orangen und blauen Datenpunkte wurde beim Fit die Dauer des Pumppulses fest mit $\tau_{Pump} = 3700$ fs angenommen; für die grünen und cyan-farbigen Datenpunkte wurde die Dauer des Pumppulses angepasst. Die durchgezogenen Linien dienen ausschließlich der optischen Führung.

4.5 Elektronendynamik und -temperatur

Die Dynamik der Elektronentemperatur lässt sich, wie in Abschnitt 2.5 beschrieben, von der Reflektivitätsdynamik $R(\Delta \tau)$ ableiten. Um die Dynamik der Reflektivität in eine Temperatur der Elektronen umrechnen zu können, ermittelt wir die mittlere Magnetisierung $\theta_k(\Delta \tau')/\theta_{k,300\,\mathrm{K}}$ zu einer Zeit $\Delta t'$, bei der wir annehmen, dass sich alle Elektronen im thermischen Gleichgewicht befinden, jedoch das Gittersystem noch keine (oder nur sehr wenig) Energie aufgenommen hat. Anhand der so ermittelten Magnetisierung wird über dem Zusammenhang von relativer Magnetisierung $M/M_{S,300\,\mathrm{K}}$ und Temperatur T nach dem CURIE-WEISS-Gesetz (siehe Abb. 4.10) die zugehörige Temperatur $T(\Delta \tau')$ bestimmt. Die hier illustrierte Kurve zum CURIE-WEISS-Gesetz bezieht sich auf eine 15 nm dicke Nickelschicht⁵.



Abb. 4.10: Magnetisierung einer 15 nm dicken Nickelschicht in Abhängigkeit von der Temperatur ohne externes Magnetfeld.

Die im Paper von U. Atxitia et al. [4] dargestellte Reflektivitätsdynamik wurde mit aus klassischem Spin hergeleitetem CURIE-WEISS-Gesetz kalibriert. Ein neuer Ansatz besteht in der quantenmechanischen Spin-¹/₂-Beschreibung. Mit dieser Beschreibung ergeben sich andere Werte für das CURIE-WEISS-Gesetz. Auf den auf

⁵Die Kurve wurde von Jakob Walowski für ein Spin-¹/2-System anhand der Brillouin-Funktion berechnet.

4 Auswertung und Ergebnisse

diese Weise abgeleiteten Wert $T(\Delta \tau')$ wird der Messwert der Reflektivität $R(\Delta \tau')$ skaliert und es ergibt sich so die Dynamik der Elektronentemperatur in Abb. 4.12. Für Pump-Pulsdauern von 80 fs wird die Zeit $\Delta \tau' = 20$ ps gewählt [4], welche für die in dieser Arbeit erzeugten 3700 fs langen Pump-Pulse als Orientierung dient. Die Dauer des Pump-Pulses hat jedoch einen Einfluss auf die Zeit bis zum Erreichen des thermischen Gleichgewichts der Elektronen. Bei längeren Pulsen sollte sich auch diese Zeit erhöhen. Da man mit unserer Messung jedoch direkt keine Aussage über diesen Zeitpunkt treffen kann, ist als Überblick die maximal erreichte Elektronentemperatur $T_{e,max}$ in Abhängigkeit der Pumpfluenz F für verschiedene Zeiten $\Delta \tau'$ in Abb. 4.11 aufgetragen.



Abb. 4.11: Maximale Temperatur der Elektronendynamik in Abhängigkeit der Pumpfluenz. Die verschiedenen Messreihen stellen die zu verschiedenen Zeiten $\Delta \tau'$ kalibrierten Elektronentemperaturen dar. Mit der gepunkteten Linie verbunden sind die in Paper [4] veröffentlichten Daten zum Vergleich dargestellt; dabei wurde $\Delta \tau' = 20$ ps gewählt. Die vollständigen und verschieden kalibrierten Messungen der Elektronentemperatur sind im Anhang B.3 in den Abb. B.6a und B.6b illustriert. Die durchgezogenen Linien dienen ausschließlich der optischen Führung.

Wie bei der Magnetisierungsdynamik ergibt sich auch bei der Elektronendynamik die stärkste Änderung zur Zeit des eintreffenden Pump-Pulses, der die Elektronen sehr schnell und sehr stark aufheizt (vgl. Abb. 4.12). Bei den Fluenzen F = 50und $40 \,{\rm mJ/cm^2}$ steigt die Elektronentemperatur sogar kurzzeitig über die CURIE-Temperatur T_C , die für Nickel bei 631 K liegt [4]. Im weiteren Verlauf ist ein expo-



Abb. 4.12: Dynamik der Elektronentemperatur nach optischer Anregung durch einen 3700 fs langen Pump-Puls. Farbig dargestellt sind die Messungen für verschiedene Fluenzen des Pump-Pulses. Die Daten wurden kalibriert auf die Magnetisierung nach 20 ps.

nenzieller Abfall zu erkennen, dem eine Schwingung mit der Frequenz $f \approx 70 \,\text{GHz}$ überlagert ist. Diese Schwingungen sind vermutlich Schockwellen, die sich im Siliziumsubstrat ausbreiten und dadurch eine Gitterverzerrung in der Nickelschicht verursachen, die wiederum die Energiezustände der Elektronen und somit die Reflektivität beeinflusst. Die Elektronentemperatur steigt, wie die Entmagnetisierung im vorherigen Abschnitt, unterproportional mit steigender Pumpfluenz: Es deutet sich eine Sättigung an. Lediglich die Messung für $F = 25 \,\text{mJ/cm}^2$ weicht davon ab. 4 Auswertung und Ergebnisse

5 Diskussion

5.1 Streckung des Pump-Pulses

Zur Untersuchung des Einflusses der Pulsdauer auf die Entmagnetisierung von ferromagnetischem Nickel wurde der Pump-Puls in einem Pump-Tast-Experiment in den Bereich einer Pikosekunde gestreckt. Diese Streckung des Pulses wurde mit Hilfe der Gruppengeschwindigkeitsdispersion, die ein SF6-Glasstab auf Licht ausübt, erzielt. Die mit dem Autokorrelationsaufbau ermittelte Pulsdauer von (3700 ± 20) fs konnte bei der Auswertung der Magnetisierungsdynamik mit der Lösung des 3-Temperatur-Modells (Beaurepaire [6]) von Dalla Longa [9] nicht bestätigt werden. Aus allen Fits (siehe Abb. 4.7, B.4 und B.5) geht die Pulsdauer von (2400 ± 100) fs hervor. Dieser Trend zu kürzeren Pulsen lässt sich damit begründen, dass die Pulse zur Vermessung direkt hinter dem Kompressor gestreckt wurden. Für die Magnetisierungsuntersuchungen befindet sich der Stab jedoch an einer anderen Stelle und der Pump-Puls durchläuft diverse optische Elemente, die die Pulsdauer beeinflussen. Eine weitere Fehlerquelle besteht in dem verwendeten Filter bei der Autokorrelationsmessung (vgl. Kap. 4.1).

5.2 Magnetisierungsuntersuchungen

In Abb. 4.4 zeigt sich für längere Pulse eine höhere Entmagnetisierung. Dies widerspricht den Erwartungen, wonach eine stärkere Entmagnetisierung durch eine höhere Elektronentemperatur bewirkt wird. Eine kürzere Pulsdauer führt zu einer höheren Elektronentemperatur, da die Elektronen weniger Zeit haben, die aufgenommene Energie abzugeben. Die derzeit von Oksana Chubykalo-Fesenko (Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid) durchgeführten Simulationen bekräftigen jedoch die experimentellen Ergebnisse. Eine mögliche Erklärung für dieses unerwartete Verhalten besteht darin, dass nur allmählich Energie vom Elektronensystem aufgenommen wird, sodass zwar keine hohe Elektronentemperatur erreicht werden kann, aber das Spinsystem genügend Zeit hat, Energie vom Elektronensystem zu erhalten. Dies würde außerdem für eine höhere spezifische Wärmekapazität des Spinsystems verglichen mit der des Elektronensystems sprechen.

Ob tatsächlich mit den längeren Pulsen nur eine geringere Elektronentemperatur erreicht wurde, ist jedoch nicht eindeutig belegbar. Dies ergibt sich zwar aus der gängigen Datenauswertung zur Bestimmung der Elektronentemperatur über die relative Magnetisierung bei $\Delta \tau = 20$ ps und das CURIE-WEISS-Gesetz, jedoch ist nicht zweifelsfrei klar, dass die Annahme über das eingetretene thermische Gleichgewicht bei $\Delta \tau = 20$ ps auch für lange Pump-Pulse erfüllt ist. In Abb. 4.11 ist diese Problematik illustriert. Demnach erhält man, bei der Annahme über die doppelte Zeit bis zum thermischen Gleichgewicht, Elektronentemperaturen, die wesentlich näher an denen für kurze Pump-Pulse liegen. Anhand von Simulationen im Rahmen des 3-Temperatur-Modells ließe sich möglicherweise eine Aussage über den Zeitpunkt treffen, wann ein thermisches Gleichgewicht erreicht ist.

Die in Abb. 4.6 erkennbar höhere Relaxationszeit bei längeren Pump-Pulsen steht ebenfalls im Widerspruch zur geringeren Elektronentemperatur und damit im Widerspruch zum 2-Temperatur-Modell. Ein möglicher Ansatz ist auch hier ein weiteres System (Spinsystem), welches Energie vom Elektronensystem aufnehmen und eine Entmagnetisierung erzielen kann. Das Spinsystem würde mit einer zeitlich länger aufrecht erhaltenen Elektronentemperatur eine stärkere Anregung erfahren als bei kurzen Pulsen was sowohl die erhöhte Entmagnetisierung, als auch die langsamere Relaxation erklären könnte. Daher wäre die Erweiterung des 2-Temperatur-Modells auf ein 3-Temperatur-Modell sinnvoll.

Wie in Abschnitt 4.4 bereits thematisiert wurde, ergibt sich bei der Auswertung der Entmagnetisierungszeit t_m je nach Fitvariante ein unterschiedliches Verhalten. Wird für die Pump-Pulsdauer der über die Autokorrelation gemessene Wert vorgegeben, lässt sich kein Trend erkennen. Bei angepasster Pulsdauer ergibt sich der erwartete Abwärtstrend.

Die zweite Relaxationszeit $t_{m,re}$ steigt für hohe Fluenzen $F \ge 30 \text{ mJ/cm}^2$ wie erwartet an, da eine größere Menge an Energie in das System eingebracht wird. Der erhöhte Messwert für $F = 20 \text{ mJ/cm}^2$ widerspricht dieser Begründung. Da diese Kurve in Abb. 4.5 (oben) über den gesamten zu fittenden Bereich nahezu linear verläuft, kann kein belastbares Ergebnis eines exponentiellen Fits erwartet werden. Die Messdaten der Magnetisierungsdynamik für F = 20 und $25 \,\mathrm{^{mJ/cm^2}}$ liegen sehr nahe beieinander. Dies liegt möglicherweise an einer ungenauen Einstellung der Laserleistung.

Ein weiteres Indiz, welches gegen die Gültigkeit des 2-Temperatur-Modells spricht, ist der systematisch auftretende zeitliche Unterschied zwischen der Reaktion der Reflektivität und der Magnetisierungsänderung auf die Anregung; dargestellt in Abb. 5.1 (und für die weiteren Fluenzen Abb. B.2 und Abb. B.3).



Abb. 5.1: Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Elektronentemperatur (orange) und der Magnetisierungsdynamik (schwarz) aufgrund optischer Anregung durch einen gaußförmigen Laserpuls (rot) bei einer Pumpfluenz $F = 50 \text{ mJ/cm}^2$.

5 Diskussion

6 Zusammenfassung

In dieser Arbeit sollten 60 fs lange Ti:Saphir-Pulse auf verschiedene Dauern bis hin zu einer Pikosekunde gestreckt werden. Es konnte nur eine Pulslänge im Pikosekundenbereich erzeugt werden. Die Pulsdauer wurde mit Hilfe eines Autokorrelationsaufbaus auf $(3,7 \pm 0,5)$ ps bestimmt. Die Fitfunktion für das 3-Temperatur-Modell ergibt jedoch für alle Datensätze dieselbe Pulsdauer von $(2,4 \pm 0,1)$ ps.

Im zweiten Teil des Projekts wurden die Magnetisierungs- und die Reflektivitätsdynamik einer 15 nm dicken Nickelschicht auf einem Siliziumsubstrat gemessen. Dazu wurde das Verfahren des zeitaufgelösten magnetooptischen KERR-Effekts (engl.: TRMOKE) in einem Pump-Tast-Experiment angewendet.

Im Vergleich zu kurzen 80 fs Pulsen führen längere ps-Pulse zu einer höheren Entmagnetisierung von maximal 50 % bei einer Pumpfluenz von 50 $^{\text{mJ/cm}^2}$. Die maximale Elektronentemperatur ist vermutlich geringer, höchstens ebenso groß, wie bei kurzen Pulsen. Die Entmagnetisierungszeit t_m nimmt mit steigender Pumpfluenz ab, und liegt in der Größenordnung von 140 fs. Über die erste Relaxationszeit t_e lässt sich nur schwer eine klare Aussage treffen, da die Werte stark um 2 ps schwanken. Wie erwartet steigt die zweite Relaxationszeit $t_{m,re}$ mit zunehmender Pumpfluenz und liegt oberhalb von 50 ps. Anhand dieser Ergebnisse und der Tatsache, dass die Reflektivitätsdynamik der Magnetisierungsdynamik vorauseilt, lässt sich schließen, dass das 2-Temperatur-Modell die Messergebnisse nicht hinreichend beschreibt.

Um eine fundiertere Aussage über die maximale Elektronentemperatur in Abhängigkeit der Pumpfluenz treffen zu können, wären Messungen der Reflektivitätsdynamik mit Pulsdauern zwischen 80 fs und 3 ps nötig. Darüber hinaus würde die Simulation des quantenmechanischen Spins im 3-Temperatur-Modell mit ps-Pulsen Aufschluss über die Zeit $\Delta \tau$ des Gleichgewichts zur Kalibrierung der Elektronentemperatur geben.

6 Zusammenfassung

A Vorgehensweisen bei den Experimenten

A.1 +/-Dynamik

- 1. PEM, Chopper und Spulenkühlwasser an.
- 2. Diode (Tast) in LockIn1 (A), PEM in LockIn1 (REF IN, SINE), Referenz (SINE OUT) auf Oszi, Signal (MONITOR OUT) auf Oszi
- 3. CH1 Output in LockIn2 (A), Chopper in LockIn2 (REF IN, NEG EDGE)
- 4. LabView Programm "TRMOKE" Reiter "adjustment" mit $B = -130 \,\mathrm{mT}$ anlegen, LockIn1 Zeitkonstante auf 100 ms setzen. Signal auf LockIn1 mit Analysator minimieren (500 μ V-Bereich). Reverse field und drücke "autophase" auf LockIn1.
- 5. Zeitkonstante auf LockIn1 auf Minimum $(10 \,\mu s)$ und Sensitivität hochsetzen $(10-100 \,\mathrm{mV})$. LockIn2 ebenso, Zeitkonstante 100 ms. Signal mittels Pumpstrahlüberlappoptimierung maximieren. "autophase" auf LockIn2 drücken. Ist Signal bei Feldumkehr einigermaßen symmetrisch um Null? Wenn nicht $\rightarrow \lambda/4$ -Plättchen justieren.
- LabView "TRMOKE" Reiter "+/-Dynamik" Experimentator und Dateiname (e.g. M_Ni15nmRu3nm_0deg_441mW_SF6-20cm-3700fs) angeben. Long- und Shortrange definieren (e.g. long: delta = 50, short: delta = 20). Anzulegendes Feld definieren (e.g. 150 mT).

ACHTUNG: *time between runs* großzügig wählen (e.g. 600, 1200 s)! Spule wird sonst zu heiß. Außerdem Spannung an Spule <u>niemals</u> über 15 V!

A.2 Reflektivität

- 1. PEM, Magnet aus. Chopper an. Pump- und Probestrahl trifft Probe.
- 2. Analysator auf maximales Signal (zu Messen mit Multimeter) stellen. Referenzdiode mit entsprechendem Polarisator auf gleiches Signal einstellen.
- 3. Diode in LockIn2 (A) und Referenzdiode in LockIn2 (B). Input auf A B stellen. "autophase". Longrange: -20 +100 ps à 50 fs, Shortrange: -10 +50 ps à 20 fs.

A.3 Hysterese (pump)

- 1. PEM, Chopper und Spulenkühlwasser an.
- 2. LabView Programm "TRMOKE" Reiter "adjustment" mit $B = -130 \,\mathrm{mT}$ anlegen, LockIn1 Zeitkonstante auf 100 ms setzen. Signal auf LockIn1 mit Analysator minimieren (Sensitivity $\leq 500 \,\mu\mathrm{V}$ -Bereich). Reverse field und drücke "autophase" auf LockIn1.
- 3. Zeitkonstante auf LockIn1 auf Minimum (10 µs) und Sensitivität hochsetzen (10 − 100 mV). Sensitivität auf LockIn2 ebenso, Zeitkonstante 100 ms. Signal mittels Pumpstrahlüberlappoptimierung maximieren. "autophase" auf LockIn2 drücken. Ist Signal bei Feldumkehr einigermaßen symmetrisch um Null? Wenn nicht → ¼-Plättchen justieren.
- 4. Chopper aus und auf Durchlass stellen.
- 5. LabView Reiter "Hysterese (LockIn1)". Big: 30 à 4 mT, small: 15 à 0,5 mT. Anzahl der Wiederholungen einstellen (e.g. 10).

A.4 Hysterese (nopump)

- 1. PEM, Chopper und Spulenkühlwasser an.
- 2. Pumpstrahl blocken.
- 3. LabView Programm "TRMOKE" Reiter "adjustment" mit $B = -130 \,\mathrm{mT}$ anlegen, LockIn1 Zeitkonstante auf 100 ms setzen. Signal auf LockIn1 mit Analysator minimieren (Sensitivity $\leq 500 \,\mu\mathrm{V}$ -Bereich). Reverse field und drücke "autophase" auf LockIn1.
- 4. LabView Reiter "Hysterese (LockIn1)". Big: 30 à 4 mT, small: 15 à 0,5 mT.

Anzahl der Wiederholungen einstellen (e.g. 10).

A Vorgehensweisen bei den Experimenten

B zweiter Anhang

B.1 Auswertung Magnetisierungsdynamik

- 1. Bestimme relative Entmagnetisierung anhand Hysteresen ohne und mit Pumpstrahl.
 - a) Plotte Hysteresen (centered) mit und ohne Pumpstrahl zusammen.
 - b) Fitte Geraden an Sättigungsbereich.
- 2. Rechne Magnetisierungsdynamiksignal um, sodass normiert auf $\Delta \Theta_k / \Delta \Theta_{k,0} (M_x/M_{x,0})$.

Eine Lösung des 3-T-Modells genügt der folgenden Gleichung.

$$\frac{A_1}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}}{\omega} \right) \right] - \frac{A_2 t_e - A_1 t_m}{2(t_e - t_m)} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}\omega}{4t_m} \right) \right] \exp \left(-\frac{x - x_0}{t_m} + \frac{\omega^2}{8t_m^2} \right) - \frac{(A_1 - A_2) t_e}{2(t_e - t_m)} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}}{\omega} - \frac{\sqrt{2}\omega}{4t_e} \right) \right] \exp \left(-\frac{x - x_0}{t_e} + \frac{\omega^2}{8t_e^2} \right) - \frac{A_3}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left((x - x_0) \frac{\sqrt{2}}{\omega} - \frac{\sqrt{2}\omega}{4t_{m,re}} \right) \right] \exp \left(-\frac{x - x_0}{t_{m,re}} + \frac{\omega}{8t_{m,re}^2} \right) + C$$
(B.1)

Anzupassende Parameter sind dabei: $C, A_1, A_2, A_3, t_m, t_e, t_{m,re}, \omega, x_0$. Dabei sind C, ω , fest und x_0 ist unabhängig vom Rest ermittelbar. Es bleiben also 6 "freie" Fitparameter.

B.2 Ergänzungen zur Auswertung der Magnetisierungsdynamik



Abb. B.1: Ausschnitt aus Abb. 4.3 zur vergrößerten Darstellung der erreichten Sättigungsmagnetisierung als Funktion der Pumpfluenz verglichen mit Messungen der Sättigungsmagnetisierung mit kürzeren Pump-Pulsen ($\tau_{Pump} \approx 80 \text{ fs}$).



Abb. B.2: Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Elektronentemperatur (orange) und der Magnetisierungsdynamik (schwarz) aufgrund optischer Anregung durch einen gaußförmigen Laserpuls (rot) bei einer Pumpfluenz F = 40 bzw. 30 mJ/cm².



Abb. B.3: Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Elektronentemperatur (orange) und der Magnetisierungsdynamik (schwarz) aufgrund optischer Anregung durch einen gaußförmigen Laserpuls (rot) bei F = 25 bzw. 20 mJ/cm².



Abb. B.4: Magnetisierungsdynamik bei einer Pumpfluenz von 40 und 30 mJ/cm^2 . Farbig dargestellt sind zwei Verläufe der gefitteten Funktion. Die Grüne wurde mit fester Pulsdauer τ angepasst, bei der Roten ist auch τ ein freier Fitparameter. Der im rechten Bereich dargestellte Ausschnitt zeigt den Bereich der Abweichung beider Fits vergrößert.



Abb. B.5: Magnetisierungsdynamik bei einer Pumpfluenz von 25 und $20 \,\mathrm{mJ/cm^2}$. Farbig dargestellt sind zwei Verläufe der gefitteten Funktion. Die Grüne wurde mit fester Pulsdauer τ angepasst, bei der Roten ist auch τ ein freier Fitparameter. Der im rechten Bereich dargestellte Ausschnitt zeigt den Bereich der Abweichung beider Fits vergrößert.

B.3 Ergänzungen zur Auswertung der Elektronendynamik



Abb. B.6: Ermittelte Elektronentemperatur als zeitliche Entwicklung bei verschiedenen Fluenzen. Dabei wurden die Elektronentemperaturen pro Fluenz anhand der Magnetisierung nach 20, 40, bzw. 100 ps nach Eintreffen des Pump-Pulses mit Hilfe des CURIE-WEISS-Gesetzes ermittelt.

B zweiter Anhang

Abbildungsverzeichnis

| 2.1 | Spektrale Aufspaltung am Prisma | 4 |
|------|---|----|
| 2.2 | Reflexion am Echelette-Gitter | 5 |
| 2.3 | Verlauf von Absorptionskoeffizient α und Brechzahl n | 8 |
| 2.4 | Pulsstreckung mit BK7-Glas | 10 |
| 2.5 | Lösung des 2-Temperatur-Modells | 12 |
| 3.1 | Aufbau Lasersystem | 14 |
| 3.2 | Chirped Pulse Amplification | 15 |
| 3.3 | Aufbau zur Pulsstreckung mit Dispersionsprismen | 16 |
| 3.4 | Aufbau zur Pulsstreckung mit Echelette-Gittern | 17 |
| 3.5 | Aufbau zur Autokorrelationsmessung | 19 |
| 3.6 | TRMOKE-Aufbau | 22 |
| 4.1 | Messung der Pulsdauer eines kurzer und eines mittels SF6-Stab ge- | |
| | streckten Pulses | 26 |
| 4.2 | Messung des Strahldurchmesser w | 27 |
| 4.3 | Hysterese der Magnetisierung von Ni $$ 15 $\rm nm$ bei verschiedenen Pump- | |
| | fluenzen | 28 |
| 4.4 | Entmagnetisierungskurven in Abhängigkeit der Pumpfluenz | 29 |
| 4.5 | Normierte Magnetisierungsdynamik mit $\tau_{Pump} \approx 3700 \mathrm{fs} \ldots \ldots \ldots$ | 32 |
| 4.6 | Vergleich Magnetisierungsdyn. mit $\tau_{Pump} \approx 3700 \mathrm{fs}$ und $\tau_{Pump} \approx 80 \mathrm{fs}$ | 33 |
| 4.7 | Magnetisierungsdynamik bei $F = 50 \mathrm{^{mJ}/cm^2}$ mit Fit | 35 |
| 4.8 | Entmagnetisierungszeit in Abhängigkeit der Pumpfluenz | 35 |
| 4.9 | Erste und zweite Relaxationszeit in Abhängigkeit der Pumpfluenz | 36 |
| 4.10 | CURIE-WEISS-Gesetz für 15 nm Nickelschicht und Dynamik der Elek- | |
| | tronentemperatur | 37 |
| 4.11 | Maximale Elektronentemperatur in Abhängigkeit der Pumpfluenz für | |
| | verschiedene Zeitpunkte $\Delta \tau'$ der Temperaturkalibrierung $\ . \ . \ . \ .$ | 38 |
| 4.12 | Dynamik der Elektronentemperatur nach optischer Anregung | 39 |

| 5.1 | Zeitliche Entwicklung von Elektronentemperatur und Magnetisier- | |
|-----|--|----|
| | ungsdynamik bei $F=50~{\rm ^{mJ}/cm^2}$ | 43 |
| B.1 | Vergrößerter Ausschnitt der Hysterese von Ni 15nm | 52 |
| B.2 | Zeitliche Entwicklung von Elektronentemperatur und Magnetisier- | |
| | ungsdynamik bei $F = 40$ bzw. 30 ^{mJ} / _{cm²} | 53 |
| B.3 | Zeitliche Entwicklung von Elektronentemperatur und Magnetisier- | |
| | ungsdynamik bei $F=25$ bzw. 20 $^{\rm mJ/cm^2}$ | 54 |
| B.4 | Magnetisierungsdynamik bei $F = 40$ und $30 {\rm mJ/cm^2}$ mit Fit $\ldots \ldots$ | 55 |
| B.5 | Magnetisierungsdynamik bei $F=25$ und $20{\rm ^{mJ}\!/cm^2}$ mit Fit $~$ | 56 |
| B.6 | Zeitliche Entwicklung der Elektronentemperatur nach opt. Anregung | 57 |

Literaturverzeichnis

- [1] SF6 805254.518. Datenblatt, SCHOTT, Stand: 18.10.2006. http: //www.schott.com/advanced_optics/german/our_products/materials/ data_tools/index.html.
- [2] N-BK7. Datenblatt, SCHOTT, Stand: 19.09.2007. http://www.schott.com/ advanced_optics/german/our_products/materials/data_tools/index. html.
- [3] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Sov. Phys.-JETP*, 39 (2):375–377, 1975.
- [4] U. Atxitia, O. Chubykalo-Fesenko, J. Walowski, A. Mann, and M. Münzenberg. Evidence for thermal mechanisms in laser-induced femtosecond spin dynamics. *Phys. Rev. B*, 81(17):174401, May 2010.
- [5] R.M.A. Azzam. *Ellipsometry and polarized light*. North-Holland, Amsterdam, 1977.
- [6] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Phys. Rev. Lett.*, 76:4250–4253, Mai 1996.
- [7] Robert W. Boyd. Nonlinear Optics. Elsevier Inc., 2008. 3rd edition.
- [8] Uwe Conrad. Statische und dynamische Untersuchungen ultradünner Metallfilme mit optischer Frequenzverdopplung und nichtlineare Mikroskopie. Dissertation, Freie Universität Berlin, 2000.
- [9] Francesco Dalla Longa. Laser-induced magnetization dynamics. Dissertation, Technische Universität Eindhoven, 2008.
- [10] G. Eckold. Vorlesungszyklus Experimentelle Methoden der Festkörper- und Materialphysik – Optische Spektroskopie, 24.11.2010. Vorlesungsmaterialien.

- [11] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon. Negative dispersion using pairs of prisms. *Optics Letters*, 9(5):150–152, 1984.
- [12] Benjamin Lenk. Beobachtung von Damon-Eshbach-Moden mittels Femtosekundenspektroskopie. Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2008.
- [13] Dieter Meschede. Optik, Licht und Laser. Teubner, 2005. 3. Auflage.
- [14] Peter Moschkau. Zeitaufgelöste Reflektivitätsmessungen an ferromagnetischen dünnen Filmen. Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2004.
- [15] Georg Müller. Laser-induzierte Magnetisierungsdynamik in Halbmetallen und ferromagnetischen Nanostrukturen. Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2007.
- [16] Markus Münzenberg. Untersuchungen zur Zwischenschichtkopplung bei [La/Fe]-Vielfachschichten und am Reorientierungsübergang von [CeH₂/Fe]-Vielfachschichten mit dem Magnetooptischen Kerreffekt. Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 1997.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich zunächst bei Prof. Dr. Markus Münzenberg für Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und für die Betreuung meiner Bachelorarbeit bedanken.

Großer Dank richtet sich außerdem an Prof. Dr. Michael Seibt, der das Korreferat übernommen hat und insbesondere bei früheren Projekten große Diskussionsbereitschaft zeigte.

Für die intensive Betreuung möchte ich mich bei Jakob Walowski bedanken. Ob es um Hilfe im Labor, Probleme bei der Datenanalyse oder um die Interpretation der Ergebnisse ging, Jakob konnte ich stets zur Unterstützung gewinnen.

Gleiches gilt natürlich auch für Benjamin Lenk und Fabian Garbs, die sich stets die Zeit nahmen um die ich bat.

Abschließend möchte ich mich bei Christian Eggeling vom MPI für Biophysikalische Chemie für die Bereitstellung des verwendeten SF6-Glasstabs bedanken – ohne diesen wären die Messungen nicht durchführbar gewesen.

Erklärung nach §13(8) der Prüfungsordnung für den Bachelor-Studiengang Physik und den Master-Studiengang Physik an der Universität Göttingen:

Hiermit erkläre ich, dass ich diese Abschlussarbeit selbständig verfasst habe, keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe und alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten Schriften entnommen wurden, als solche kenntlich gemacht habe.

Darüberhinaus erkläre ich, dass diese Abschlussarbeit nicht, auch nicht auszugsweise, im Rahmen einer nichtbestandenen Prüfung an dieser oder einer anderen Hochschule eingereicht wurde.

Göttingen, den 24. Oktober 2011

(Martin Lüttich)