



---

Magnetisierungs- und spinsensitive  
Real- und Impulsraummikroskopie  
an dünnen Cobalt-Filmen  
in Laser-Photoemission

---

**Dissertation**

zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

am Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik  
der Johannes Gutenberg-Universität Mainz

vorgelegt von

**Maximilian Staab**

geboren am 10. Mai 1986  
in Alzenau

Mainz, 10. Oktober 2016

**Maximilian Staab**

*Magnetisierungs- und spinsensitive Real- und Impulsraummikroskopie an  
dünnen Cobalt-Filmen in Laser-Photoemission*

Erster Berichterstatter:

Zweiter Berichterstatter:

Tag der mündlichen Prüfung: 10. März 2017

**Johannes Gutenberg–Universität Mainz**

KOMET 334

Institut für Physik

Staudinger Weg 7

55128 Mainz

**D77** Mainzer Dissertation

---

**Abstract:***Magnetization and Spin Sensitive Real and Momentum Space Microscopy of Thin Cobalt Films in Laser Photoemission*

Spin-orbit torque (SOT) at surfaces of ferromagnetic materials, in particular the spin-Hall effect and the inverse spin-galvanic effect, has recently become a vivid research field because of its potential application in efficient magnetic storage devices. The microscopic origin of SOT is the spin-orbit induced hybridization of electronic states at so-called hot spots in reciprocal space in combination with the interface induced inversion asymmetry. Besides the SOT the all-optical magnetization switching using circularly polarized light, relying on the spin-orbit hybridization of electronic states, too, enables ultrafast magnetization processes. Recently, the discovery of threshold photoemission magnetic circular dichroism (TPMCD) has offered a new laboratory based investigation method of magnetic thin films. In the present work, we investigate the ferromagnetic domain structure of perpendicularly magnetized fcc Co/Pt(111) films (4.5 monolayers) using photoemission electron microscopy (PEEM) and utilizing TPMCD as a contrast mechanism in order to combine a lateral resolution of better than 100 nm with a large magnetic contrast. The perpendicularly magnetized Co/Pt interfaces, investigated here exemplarily, are the most widely used device components.

This work presents a comprehensive study of electronic states near the Fermi level using photoemission spectroscopy. The momentum, energy, and spin-resolved data have led to a deeper understanding of these phenomena and are thereby an important contribution for further development of materials. We have used spin-resolved time-of-flight momentum microscopy as a novel and very efficient method to analyze energy, momentum and spin of photo-excited electrons in an ultimately parallelized detection scheme. This setup enables a complete mapping of the 3D spectral function  $I(E_B, k_x, k_y)$ , in which  $E_B$  is the binding energy, and  $k_x$  and  $k_y$  are the components of the momentum parallel to the surface.

An Ir(001) imaging spin-filter crystal provides mapping of the spin polarization distribution  $P(E_B, k_x, k_y)$ . Electronic states are excited by femtosecond circularly polarized laser pulses ( $h\nu=1.5$  eV and 3.1 eV) enabling multi-photon photoemission processes.

As a main result we are able to discriminate direct from indirect transitions in the photoemission process, which is important information for the interpretation of earlier total electron yield data. Moreover, we find a significant change of the spectral density function induced by a structural phase transition occurring in ultrathin Co films with increasing thickness. Indirect transitions involving the interaction with lattice vibrations substantially contribute to the photoemission intensity. These indirect transitions possess a magnetic circular dichroism as well as a considerable spin polarization, both properties being caused by the large spin-orbit interaction at the Co interface.

Even more, by reducing the work function of the Co/Pt surface by cesiation, we reveal an essential effect that has not been considered in previous work: The existence of an additional resonant two-photon photoemission (2PPE) process. As the origin, we identify an image potential state that possesses a parabolic

---

$k$ -dispersion. The image potential state dominates the 3D spectral function and selects particular initial states for the 2PPE process, depending on the work function.

---

## Kurzfassung:

### *Magnetisierungs- und spinsensitive Real- und Impulsraummikroskopie an dünnen Cobalt-Filmen in Laser-Photoemission*

Das Spin-Bahn-Drehmoment (*spin-orbit torque*) in Oberflächen ferromagnetischer Materialien, im speziellen der Spin-Hall-Effekt und der inverse spin-galvanische Effekt, hat sich in den letzten Jahren zunehmend zu einem wichtigen Forschungsfeld entwickelt, da es potentielle Anwendungen für effiziente magnetische Datenspeicher verspricht. Der mikroskopische Ursprung des SOT ist die spinbahn-induzierte Hybridisierung elektronischer Zustände an *hot spots* im reziproken Raum, in Kombination mit grenzflächeninduzierter, gebrochener Inversions-symmetrie. Ferner ermöglicht das Umschalten der Magnetisierung mit Hilfe von zirkular polarisiertem Laserlicht (*all-optical switching*), aufgrund der Spin-Bahn-Hybridisierung elektronischer Zustände, ultraschnelle Magnetisierungsprozesse. Die Entdeckung des magnetischen Zirkulardichroismus in Schwellenphotoemission (*threshold photoemission magnetic circular dichroism*) ermöglicht eine neue Untersuchungsmethode für dünne, magnetische Filme, die im Labor durchgeführt werden kann.

In der vorliegenden Arbeit wurde die ferromagnetische Domänenstruktur senkrecht magnetisierter

fcc Co/Pt(111)-Filme (4,5 Monolagen) mit Hilfe von Photoemissions-Elektronenmikroskopie (PEEM) untersucht, wobei der TPMCD als Kontrastmechanismus verwendet wurde. Dadurch wird eine räumliche Auflösung von besser als 100 nm in Kombination mit einem guten magnetischen Kontrast erreicht. Die senkrecht magnetisierten Co/Pt-Grenzflächen sind das am weitesten verbreitete System für die Forschung an dieser Art der Speicheranwendung.

Diese Arbeit präsentiert umfassende Studien der elektronischen Zustände nahe der Fermi-Energie mit Hilfe von Photoemissionsspektroskopie. Die impuls-, energie- und spin-aufgelösten Daten haben zu einem besseren Verständnis all dieser Phänomene geführt und sind ein wichtiger Beitrag zu einer fortschreitenden Materialentwicklung. Wir verwenden die spin-aufgelöste Flugzeit-Impulsmikroskopie als eine neue und sehr effiziente Methode, um Energie, Impuls und Spin der angeregten Photoelektronen bei bestmöglicher Parallelisierung zu detektieren. Dieser Aufbau ermöglicht eine komplette Darstellung der spektralen Verteilung  $I(E_B, k_x, k_y)$ , wobei  $E_B$  die Bindungsenergie und  $k_x$  und  $k_y$  die Komponenten des Elektronenimpulses parallel zur Oberfläche bezeichnen.

Ein Ir(001) Spinfilter-Kristall ermöglicht die Messung der spektralen Verteilung der Spinpolarisation  $P(E_B, k_x, k_y)$ . Elektronische Zustände werden von zirkular polarisierten Laserpulsen mit den Parametern  $h\nu=1,5$  eV sowie 3,1 eV und 100 fs angeregt, was Multi-Photonen-Photoemissionsprozesse ermöglicht.

Als wichtiges Resultat dieser Arbeit ermöglichen diese Messungen die Unterscheidung von direkten und indirekten Photoemissionsübergängen, wodurch die Interpretation vorhergehender Messungen des totalen Photostroms um einen signifikanten Aspekt erweitert wird. Ferner registrieren wir eine deutliche Veränderung der spektralen Verteilung mit zunehmender Filmdicke, welche aus einem damit einhergehenden, strukturellen Phasenübergang resultiert. Indirekte Übergänge,

---

die unter Einbeziehung von Gitterschwingungen ablaufen, leisten einen substantiellen Beitrag zur gemessenen Photoemissionsintensität. Diese indirekten Übergänge tragen sowohl einen magnetischen Zirkulardichroismus, als auch eine beträchtliche Spinpolarisation. Beide Eigenschaften werden durch die große Spin-Bahn-Wechselwirkung an der Co-Grenzfläche hervorgerufen.

Ein wesentlicher Effekt, der in allen bisherigen Arbeiten übersehen wurde, konnte mittels Absenkung der Austrittsarbeit durch Deposition von Cs sichtbar gemacht werden. Unter diesen Bedingungen führt ein neuer Zustand zu einer resonanten Erhöhung der Intensität in einem Übergang in Zwei-Photonen-Photoemission (2PPE). Der Zwischenzustand kann aufgrund der parabolischen  $k$ -Dispersion als Bildladungszustand identifiziert werden. Der Zustand dominiert die spektrale Verteilung und wählt spezielle Anfangszustände für den 2PPE-Prozess aus, in Abhängigkeit von der Höhe der Austrittsarbeit.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abstract</b>	<b>i</b>
<b>Kurzfassung</b>	<b>iii</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Theorie</b>	<b>5</b>
2.1 Ferromagnetismus . . . . .	5
2.2 Magnetische Dünnschichtsysteme . . . . .	9
2.3 Ultraschnelle Magnetisierungsdynamik . . . . .	10
2.4 Theorie der Photoemission . . . . .	12
2.4.1 Ein-Photon- und Zwei-Photonen-Photoemission . . . . .	13
2.4.2 Drei-Stufen-Modell . . . . .	14
2.4.3 Ein-Stufen-Modell . . . . .	22
2.5 Low Energy Electron Diffraction (LEED) . . . . .	24
2.6 Bildladungszustände . . . . .	25
2.7 Spinpolarisation und Spin-Bahn-Wechselwirkung . . . . .	27
2.8 Ir(001) Spinfilter . . . . .	29
2.9 Magnetischer Zirkulardichroismus (MCD) in Schwellenphotoemission . . . . .	32
2.10 Winkelabhängiger, nichtmagnetischer Zirkulardichroismus . . . . .	34
<b>3 Experimenteller Aufbau</b>	<b>37</b>
3.1 Probenherstellung . . . . .	37
3.1.1 Pt(111)-Einkristalle . . . . .	37
3.1.2 Cobalt-Deposition . . . . .	37
3.2 Messapparaturen und Aufbau . . . . .	38
3.2.1 Titan:Saphir Laser . . . . .	38
3.2.2 Photoemissions-Elektronenmikroskopie (PEEM) . . . . .	40
3.2.3 Flugzeit-Impulsmikroskopie in Photoemission (k-Mikroskopie) . . . . .	41
3.2.4 Manipulation der Magnetisierung . . . . .	43
<b>4 Photostrommessungen von Co/Au(111)/W(110)</b>	<b>47</b>
4.1 Messaufbau und Probenherstellung . . . . .	47
4.2 Ergebnisse . . . . .	49
4.3 Diskussion . . . . .	51

<b>5 Ortsaufgelöste Untersuchungen von Co/Pt(111)</b>	<b>55</b>
5.1 Messaufbau und Probenherstellung . . . . .	55
5.2 Statische Messungen . . . . .	56
5.2.1 Ergebnisse . . . . .	57
5.2.2 Diskussion . . . . .	61
5.3 Ansatz zur Durchführung zeitaufgelöster Messungen . . . . .	62
5.3.1 Ergebnisse . . . . .	63
5.3.2 Diskussion . . . . .	63
<b>6 Flugzeit-Impulsmikroskopie an Co/Pt(111)-Systemen</b>	<b>65</b>
6.1 Untersuchungen von fcc Co(4,5 ML)/Pt(111) . . . . .	66
6.1.1 Messaufbau und Probenherstellung . . . . .	66
6.1.2 Photoemission mit $h\nu \approx 3,1$ eV . . . . .	68
6.1.3 Photoemission mit $h\nu \approx 3,3$ eV und reduzierter Austritts- arbeit . . . . .	72
6.1.4 Photoemission mit $h\nu \approx 1,65$ eV und reduzierter Austritts- arbeit . . . . .	79
6.1.5 Diskussion . . . . .	82
6.2 Untersuchung von hcp Co/Pt(111)-Schichtsystemen . . . . .	88
6.2.1 Messaufbau . . . . .	88
6.2.2 hcp Co(10 ML)/Pt(111) . . . . .	89
6.2.3 hcp Co(20 ML)/Pt(111) . . . . .	95
6.2.4 Diskussion . . . . .	99
<b>7 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>103</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>107</b>
<b>Publikation</b>	<b>112</b>
<b>Curriculum Vitae</b>	<b>113</b>
<b>Danksagung</b>	<b>115</b>
<b>Erklärung</b>	<b>117</b>



# 1 Einleitung

Stellte man in einer Fußgängerzone Passanten die Frage nach *dem bekanntesten* Physiker, lautete die am häufigsten genannte Antwort wahrscheinlich „Albert Einstein“. Zweifellos zählen seine Arbeiten und Thesen mit zu den wichtigsten Meilensteinen auf dem Weg hin zur Entwicklung der modernen Physik. Die meisten Menschen verbinden Albert Einstein in erster Linie mit der Entwicklung der Relativitätstheorie.

Den Nobelpreis erhielt er allerdings für die Beschreibung des Photoeffekts [1]. Diesem wird zwar in den Populärwissenschaften weitaus weniger Bedeutung beigemessen, jedoch liegt im Photoeffekt die Voraussetzung für das Auftreten von Photoemission, welche eine der wichtigsten Untersuchungsmethoden der physikalischen Eigenschaften von Festkörpern darstellt. Sie ermöglicht den direkten Zugang zur elektronischen Bandstruktur und somit unter anderem zu den magnetischen Eigenschaften eines Festkörpers. Ferromagnete zeichnen sich durch eine ausgeprägte Austauschwechselwirkung aus, welche gemeinsam mit der Spin-Bahn-Wechselwirkung dazu führt, dass ein Wechsel der Lichthelizität bei fester Magnetisierung mit einer veränderten Intensität der Photoemission einhergeht [2]. Dieses Auftreten einer Asymmetrie bezeichnet man als magnetischen Zirkulardichroismus (MCD).

Bei Verwendung von Röntgenstrahlen ergeben sich Asymmetrien von mehr als 30 %, der magnetische Zirkulardichroismus in Röntgenphotoemission (XMCD) ist heute einer der wesentlichen magnetischen Kontrastmechanismen in Photoemissionsexperimenten [3–5]. Über die Röntgenphotonen werden Elektronen aus, durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung aufgespaltenen, inneren Energieniveaus angeregt. Die Bereitstellung zirkular polarisierter Röntgenstrahlung hoher Qualität erfordert jedoch den Bau aufwändiger Beschleuniger (Synchrotrons) und die entsprechende Strahlzeit ist knapp und teuer.

Weitaus weniger bekannt, aber für kleinere Laborexperimente attraktiv, ist der magnetische Zirkulardichroismus in Schwellenphotoemission (TPMCD) [6]. Schwellenphotoemission geschieht bei Photonenenergien von wenigen eV, in der Größenordnung der Austrittsarbeit von Festkörpern. Die Erforschung des TPMCD begann mit der Verfügbarkeit leistungsfähiger, gepulster Femtosekundenlaser, welche im Bereich des sichtbaren Lichts von etwa  $h\nu=1,5\text{ eV}-3,1\text{ eV}$  strahlen und mehr als 1 W Leistung (Fundamentale) bereitstellen. Der TPMCD-Effekt ermöglicht die Untersuchung der elektronischen Struktur im Valenzbereich wenige eV unterhalb der Fermi-Energie. Außerdem werden Effekte sichtbar, welche aus Spin-Bahn-Wechselwirkung und Spinpolarisation resultieren.

Über die erste Entdeckung eines (linearen) magnetischen Zirkulardichroismus in Schwellenphotoemission wurde von Marx et al. im Jahr 2000 berichtet. Hierbei ergab sich eine Asymmetrie von 0,37 % bei der Beleuchtung eines 100 nm dicken, polykristallinen Fe-Films mit einer Quecksilberdampfampe [7]. Unter Verwen-

derung von zirkular polarisiertem Licht im UV- und sichtbaren Bereich fanden Nagakawa und Yokoyama [6, 8] TPMCD-Asymmetrien von mehr als 10 % in einem senkrecht magnetisierten Ni-Film auf Cu(001). Ferner konnte eine Abhängigkeit der Asymmetrie sowohl vom Einfallswinkel des Laserstrahls, als auch von der genutzten Photonenenergie, festgestellt werden.

Die Existenz des TPMCD konnte seitdem in verschiedenen Materialklassen nachgewiesen werden. So ergaben sich beispielsweise in Heusler-Verbindungen [9] kleine Asymmetrien von weniger als 1 % [10]. Dünne, senkrecht magnetisierte Co-Filme auf Pt-Substrat wiesen jedoch einen stark ausgeprägten magnetischen Zirkulardichroismus in Schwellenphotoemission auf. Die Kombination von dünnen Schichten aus Co, aufgrund seiner starken Austauschwechselwirkung, und Pt, aufgrund der großen Spin-Bahn-Wechselwirkung, zu Co/Pt-Multischichtsystemen ist ein aussichtsreicher Kandidat für zukünftige Speichermedien. Diese Tatsache macht die Untersuchung des TPMCD in diesem Material besonders interessant. Untersuchungen des Photoemissionsstroms in Co/Pt ergaben Asymmetrien von bis zu 15 % bei Beleuchtung mit zirkular polarisiertem Licht unterschiedlicher Helizität bei  $h\nu=1,5$  eV. Außerdem wurde eine Abschwächung der Asymmetrie um mehrere Größenordnungen bei Verwendung einer Deckschicht aus Pt festgestellt [11]. Über ab initio Bandstrukturberechnungen [12] wurden mögliche elektronische Übergänge untersucht, welche den TPMCD erzeugen. Es zeigte sich, dass Anregungen entlang der Oberflächennormalen  $\Gamma$ -L nur über virtuelle Zwischenzustände oder evaneszente Endzustände stattfinden können, weshalb die entsprechenden Übergänge quantenmechanisch erschwert sind. Folglich wurden Interbandübergänge entlang anderer Kristallrichtungen als ursächlich für den TPMCD diskutiert.

Wie in [13] geschildert, existieren diskrete Übergänge, so etwa entlang der Kristallrichtungen  $\Gamma$ -K und  $\Gamma$ -M, zwischen Spin-Bahn-aufgespaltenen Anfangszuständen und reellen Zwischen- oder Endzuständen, welche einen Beitrag zur MCD-Asymmetrie leisten könnten. Die notwendige Impulserhaltung in Photoemission benötigt hierbei einen Streuprozess an Phononen (oder Magnonen). Bisher fußen diese Theorien auf den experimentellen Resultaten, welche aus Messungen des totalen Photostroms gewonnen wurden. Über den Einfluss einzelner elektronischer Übergänge oder der Oberfläche konnte daher nur wenig Aussage getroffen werden. Im Gegensatz zu Co/Pt wurden für Ni/Cu- [14] und TbCo-Filme [15] bereits erste orts aufgelöste Messungen durchgeführt.

Der erste Teil dieser Arbeit baut auf den Photostrommessungen von Hild et al. auf und umfasst den Aufbau einer UHV-Kammer zur Fabrikation von Co/Pt-Dünnschichtproben sowie die orts aufgelöste Untersuchung derselbigen mittels Photoemissions-Elektronenmikroskopie. Hierbei findet der TPMCD als magnetischer Kontrastmechanismus Anwendung.

Der zweite Teil der Arbeit widmet sich der Analyse der elektronischen Bandstruktur des Co/Pt-Dünnschicht-Systems. Hierfür wurde ein neuartiges k-Mikroskop mit Flugzeitanalyse (*Time of Flight*) [16] verwendet. Das k-Mikroskop kann die oberflächenprojizierte Bandstruktur (energie- und k-aufgelöst) der Probe in Echtzeit darstellen.

Bei Verwendung eines Femtosekundenlasers ( $h\nu=1,55$  eV und  $h\nu=3,1$  eV) als Lichtquelle entspricht dieser Aufbau einem *Laser-ARPES*-Experiment. Das von einem

---

gepulsten Laser angetriebene Bandstruktur-Mapping ermöglichte in den letzten Jahren unter anderem den Zugang zur Physik von Hochtemperatursupraleitern [17, 18] und topologischen Isolatoren [19].

Das k-Mikroskop ermöglicht die Unterscheidung direkter und indirekter elektronischer Übergänge und das Sichtbarmachen von Oberflächeneffekten. Auf diese Weise lassen sich neue Erkenntnisse über den Ursprung des TPMCD in Co/Pt gewinnen.

Der dritte Teil der Arbeit behandelt die k-Mikroskopie unter Einsatz eines zusätzlichen Spinfilter-Kristalls Ir(001) [20], wodurch ein direkter Zugang zur Spinpolarisation der elektronischen Bänder geschaffen wird. Es handelt sich hierbei um die ersten spinaufgelösten Messungen mittels k-Mikroskopie in Laserphotoemission.



## 2 Theorie

Das folgende Kapitel beschreibt einige theoretische Grundlagen der Festkörperphysik, insbesondere des Magnetismus und der Photoemission. Diese Teilgebiete der Physik sind Bestandteil vieler Lehrbücher, beispielsweise [21–23]. Des Weiteren gehen dieser Dissertation wichtige Arbeiten, etwa im Bereich des Magnetischen Zirkulardichroismus (K. Hild [24]) oder der spingefilterten Photoemission (M. Kolbe [25]), voraus. Der aktuelle Stand der Wissenschaft auf dem Gebiet der Photoemissionsspektroskopie wird ausführlich in [26] erläutert. Die nachfolgenden Erläuterungen sind daher in Teilen den angegebenen Quellen entnommen.

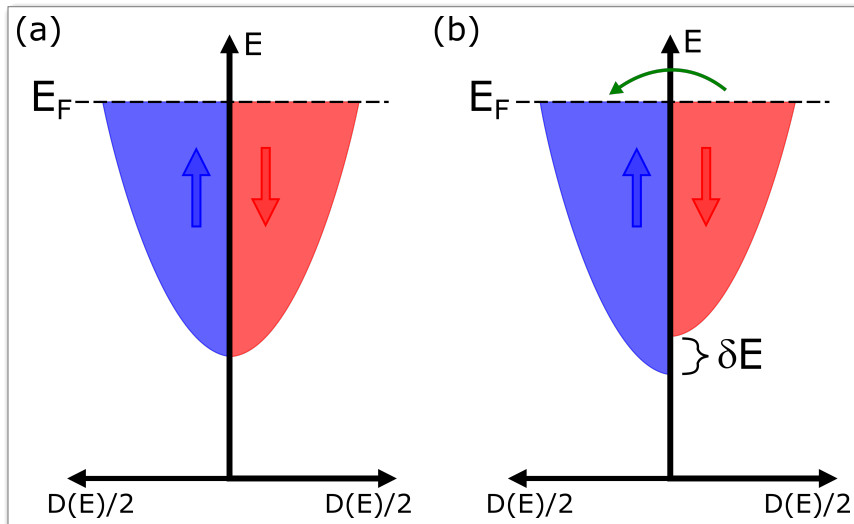
### 2.1 Ferromagnetismus

Die Erklärung des Ferromagnetismus bedarf der Berücksichtigung vieler Einzelchen- und Vielteilchenaspekte. Wie in Abbildung 2.1 dargestellt, hängt die energieabhängige Zustandsdichte  $D(E)$  in diamagnetischen Stoffen nicht von der Spinorientierung ab (a). 3d-Ferromagneten, zu denen auch das in dieser Arbeit untersuchte Cobalt (Co) zählt, zeichnen sich dadurch aus, dass sich unterhalb der *Curie*-Temperatur die Elektronenspins parallel zueinander ausrichten. Unter Betrachtung von  $D(E)$  zeigt sich dies als Überschuss an Zuständen einer Spinorientierung (b). Das entsprechende (*Majoritäts*-)Band senkt sich gegenüber dem (*Minoritäts*-)Band um den Betrag  $\delta E$  ab. Im Gegensatz zu paramagnetischen Stoffen entsteht diese Aufspaltung spontan, ohne angelegtes Magnetfeld.

Die Ursache dieser Spinausrichtung liegt in der Austauschwechselwirkung zwischen freien Elektronen: Betrachtet man zunächst zwei freie Elektronen mit gleichem Spin und gleicher Energie, so ist es quantenmechanisch aufgrund des Pauli-Prinzips unmöglich, dass beide am gleichen Ort sind. In direkter Folge befinden sich in unmittelbarer Nähe eines ausgezeichneten Elektrons weniger Elektronen, wenn diese den gleichen Spin besitzen. Um das ausgezeichnete Elektron herum bildet sich das sogenannte Austauschloch. Bewegt sich das Elektron, muss es das Austauschloch mitbewegen, wodurch sich seine effektive Masse erhöht. Vor allem aber wird das Elektron dadurch weniger vom Kern abgeschirmt und seine Energie senkt sich ab.

Eine mögliche Beschreibung der Bandstruktur von Ferromagneten liefert das *Stoner*-Modell wie folgt [23]:

$$\begin{aligned} E_{\uparrow}(\vec{k}) &= E(\vec{k}) - In_{\uparrow}/N \\ E_{\downarrow}(\vec{k}) &= E(\vec{k}) - In_{\downarrow}/N. \end{aligned} \tag{2.1}$$



**Abbildung 2.1:** (a) Die Zustandsdichte  $D(E)$  ist in diamagnetischen Stoffen spinunabhängig. (b) Ferromagnetische Stoffe zeigen eine spontane Aufspaltung der Energiebänder für up- und down-Spins, im Gegensatz zu paramagnetischen Stoffen auch ohne angelegtes äußeres Feld (aus [27]).

$E(\vec{k})$  entspricht den Energiewerten einer Eielektronenbandstruktur,  $n_\uparrow$  und  $n_\downarrow$  bezeichnen die Anzahl an Elektronen mit jeweiligem Spin und  $N$  ist die Gesamtzahl der Elektronen. Der Stoner-Parameter  $I$  beschreibt die Energieabsenkung durch die Wechselwirkung der Elektronen. Des Weiteren gibt

$$R = \frac{n_\uparrow - n_\downarrow}{N} \quad (2.2)$$

den relativen Überschuss einer Spinsorte an. Mit Hilfe des Faktors  $\mu_B(N/V)$  erhält man aus  $R$  auch die Magnetisierung  $M$ . Aufgrund der symmetrischen Aufspaltung bietet es sich an, von den Einzelelektronenenergien den Wert  $I(n_\uparrow + n_\downarrow)/2N$  abzuziehen. Dann ergibt sich aus Gleichung 2.1:

$$\left. \begin{aligned} E_\uparrow(\vec{k}) &= \tilde{E}(\vec{k}) - IR/2 \\ E_\downarrow(\vec{k}) &= \tilde{E}(\vec{k}) + IR/2 \end{aligned} \right\} \text{ mit } \tilde{E}(\vec{k}) = E(\vec{k}) - I(n_\uparrow + n_\downarrow)/2N. \quad (2.3)$$

Gleichung 2.3 zeigt, dass sich die Energiebänder mit verschiedenen Spins  $k$ -unabhängig gegeneinander verschieben. Diese Näherung ist für manche Bänder gut erfüllt. Die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände werden von der Fermi-Dirac-Statistik bestimmt, daraus folgt für  $R$ :

$$\begin{aligned}
 R &= \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} f_{\uparrow}(\vec{k}) - f_{\downarrow}(\vec{k}) \\
 &= \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \frac{1}{e^{(\tilde{E}(\vec{k}) - IR/2 - E_F)/k_B T} + 1} - \frac{1}{e^{(\tilde{E}(\vec{k}) + IR/2 - E_F)/k_B T} + 1}. \quad (2.4)
 \end{aligned}$$

Besitzt die Gleichung 2.4 eine nicht verschwindende Lösung für  $R$ , so existiert eine nicht verschwindende Magnetisierung ohne angelegtes Feld. Über mathematische Umformung lässt sich die Bedingung für Ferromagnetismus, d.h.  $R > 0$ , angeben. Für kleine  $R$  lässt sich Gleichung 2.4 entwickeln gemäß

$$f(x - a) - f(x + a) = -2af' - \frac{2}{3!}a^3f''', \quad (2.5)$$

mit  $x = (\tilde{E}(\vec{k}) - E_F)/k_B T$  und  $a = (IR/2)/k_B T$ . Für tiefe Temperaturen ist es erlaubt, die Ableitungen am Fermi-Niveau  $\tilde{E}(\vec{k}) = E_F$  zu verwenden, also gilt  $f' < 0$  und  $f''' > 0$ . Es ergibt sich mit

$$R = -2 \frac{IR}{2} \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \left. \frac{\partial f}{\partial \tilde{E}(\vec{k})} \right|_{E_F} - \frac{2}{6} \left( \frac{IR}{2} \right)^3 \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \left. \frac{\partial^3 f}{\partial \tilde{E}^3(\vec{k})} \right|_{E_F} \quad (2.6)$$

eine quadratische Gleichung in  $R$

$$-1 - \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \left. \frac{\partial f}{\partial \tilde{E}(\vec{k})} \right|_{E_F} = \frac{1}{24} I^3 R^2 \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \left. \frac{\partial^3 f}{\partial \tilde{E}^3(\vec{k})} \right|_{E_F}, \quad (2.7)$$

welche eine reelle Lösung hat, sofern

$$-1 - \frac{I}{N} \sum_{\vec{k}} \left. \frac{\partial f(\vec{k})}{\partial \tilde{E}(\vec{k})} \right|_{E_F} = -1 - \frac{1}{2} \frac{V}{N} D(E_F) > 0 \quad (2.8)$$

gilt. Drückt man die Zustandsdichte pro Atom und Spinsorte durch

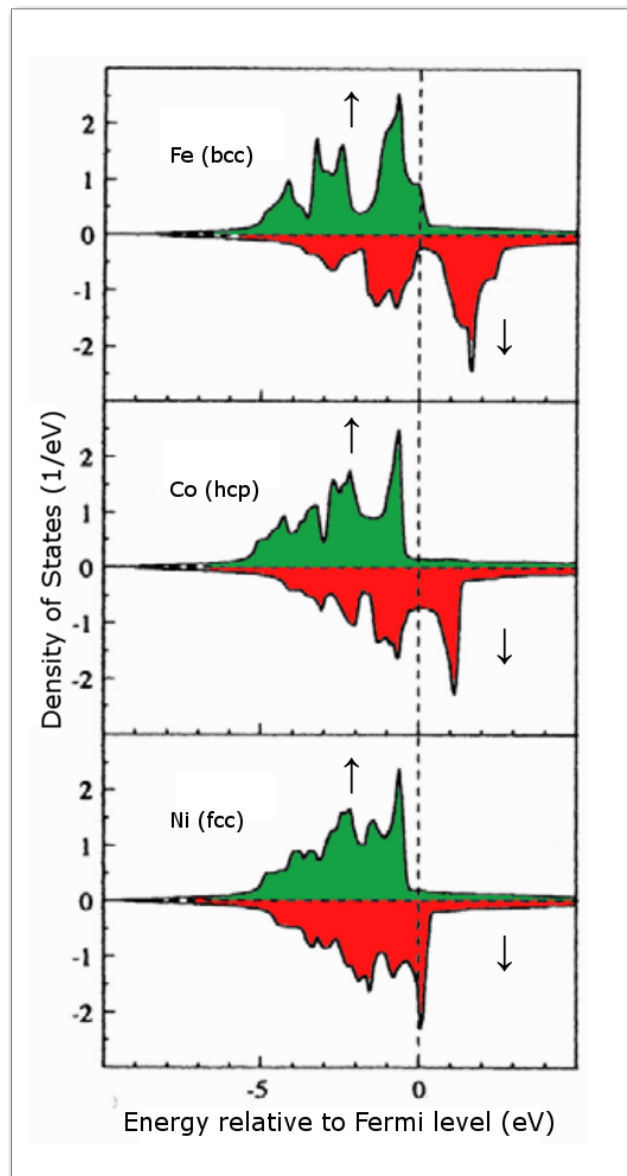
$$\tilde{D}(E_F) = \frac{V}{2N} D(E_F) \quad (2.9)$$

aus, lautet die Bedingung (2.8) für das Auftreten des Ferromagnetismus vereinfacht

$$I \tilde{D}(E_F) > 1. \quad (2.10)$$

Gleichung 2.10 nennt man auch das „Stoner-Kriterium“ für das Auftreten von Ferromagnetismus. Dieses vereinfachte Modell ist in der Lage, das magnetische Verhalten für Co, Ni und Fe vorauszusagen. Man kann daraus außerdem die Curie-Temperatur ableiten. Das Modell versagt allerdings beispielsweise bei Elementen der 4d-Reihe. Abbildung 2.2 stellt die spinabhängigen Zustandsdichten für die 3d-Ferromagnete dar. Deutlich ist zu sehen, dass sich an der Fermi-Kante die

Zustandsdichten für die  $\uparrow$ - und die  $\downarrow$ -Einstellung der Spins deutlich unterscheiden. Betrachtet man die gesamte Dichte an Zuständen unterhalb der Fermi-Kante, so sieht man ein starkes Ungleichgewicht zwischen Spin  $\uparrow$ - und Spin  $\downarrow$ -Zuständen, was eine Nettomagnetisierung bedeutet.



**Abbildung 2.2:** Spinabhängige Zustandsdichten von Fe, Co und Ni. Grün: Majoritäts-Zustandsdichte (Spin  $\uparrow$ ), rot: Minoritäts-Zustandsdichte (Spin  $\downarrow$ ) (aus [28]).



## 2.2 Magnetische Dünnschichtsysteme

Die Kristallstruktur eines magnetischen Materials wie Co besitzt sogenannte *leichte (schwere) Kristallachsen*, welche diejenigen Richtungen bezeichnen, entlang derer eine Magnetisierung mit wenig (viel) Energieaufwand verbunden ist. Die resultierende magnetokristalline Anisotropie lässt sich quantitativ für hcp Co in der Form

$$E_{ma} = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta \quad (2.11)$$

angeben, wobei  $K_1$  und  $K_2$  Anisotropiekonstanten positiver Werte und  $\theta$  den Winkel zwischen der Magnetisierungsrichtung und der (0001)-Richtung der hexagonal dicht gepackten Gitterebenen bezeichnen. Systeme aus dünnen magnetischen Schichten bilden ein spannendes Forschungsgebiet, da sie einzigartige physikalische Eigenschaften aufweisen und dadurch unter anderem für den Einsatz in Datenspeichern prädestiniert sind. Im Wesentlichen beruhen die in dünnen magnetischen Filmen auftretenden, besonderen Effekte auf der Tatsache, dass in ihnen zusätzlich zur magnetokristallinen Anisotropien weitere Anisotropien auftreten.

Bereits ein einfacher, homogener polarisierter, magnetischer Film besitzt eine starke Formanisotropie: Zeigt seine Magnetisierung  $\vec{M}$  senkrecht zur Filmebene, muss ein sogenanntes Depolarisationsfeld  $\vec{H}_d = -\vec{M}$  generiert werden. Liegt die Magnetisierungsrichtung hingegen in der Filmebene, existiert  $\vec{H}_d$  nicht und die Energie des Systems ändert sich. Für die Depolarisationsenergie  $E_d$  folgt daher der Zusammenhang

$$E_d = \frac{1}{2} \mu_0 M^2 \cos^2 \theta. \quad (2.12)$$

Hierbei bezeichnet  $\theta$  den Winkel zwischen der Magnetisierungsrichtung und der Schichtsenkrechten. In Co beträgt diese Energie etwa  $1,23 \cdot 10^6 \text{ Jm}^{-3}$  (bei 300 K) und ist etwa doppelt so hoch wie die magnetokristalline Anisotropie-Energie von  $5,1 \cdot 10^5 \text{ Jm}^{-3}$ . Es ergibt sich für Co aufgrund der magnetokristallinen- und Formanisotropie eine Energieminimierung bei einer in-plane Magnetisierung [29]. Um den realen magnetischen Zustand korrekt zu beschreiben, muss man allerdings noch weitere Anisotropie-Terme berücksichtigen: Die elastische Verspannung und vor allem die Grenzflächenanisotropie. Elastische Verspannungen führen oftmals zu Symmetriebrechungen und sollen in dieser Arbeit nicht weiter behandelt werden.

Die Grenzflächenanisotropie ist eine direkte Folge der veränderten Spin-Bahn- und Austausch-Wechselwirkungen an Grenzflächen und die entsprechende Energie hängt nicht vom Volumen der Schicht, sondern deren Fläche ab. Der Grenzflächenanteil ist demnach umgekehrt proportional zur Schichtdicke  $d$  [23], was für Filmdicken von wenigen Monolagen in einer sehr hohen Anisotropie resultiert. Durch das Zusammenspiel der einzelnen Anisotropien kann es vorkommen, dass bei Änderungen der Schichtdicke die Magnetisierung aus der Filmebene hinaus- oder in die Ebene hinein dreht. Dieses Phänomen wird Spin-Reorientierungsübergang genannt und kann für viele magnetische dünne Filme beobachtet werden. So ist Co bei kleinen Schichtdicken von weniger als fünf Atomlagen aufgrund der

Grenzflächenanisotropie senkrecht magnetisiert. Erst bei größeren Schichtdicken dreht die leichte Richtung in die Filmebene.

Im ferromagnetischen Kristall treten auf makroskopischer Skala Symmetriebrechungen auf. Bereiche, in denen lokal die Sättigungsmagnetisierung erreicht wird, bilden magnetische Domänen. An den Grenzflächen zwischen zwei Domänen ändert sich die Orientierung der Magnetisierung, weshalb sich verschiedene Arten von Domänenwänden ausbilden. Die einfachste Abschätzung der Domänenwandbreite  $\delta$  (für kubische Kristalle) ergibt

$$\delta = \pi \sqrt{\frac{A}{K}}, \quad (2.13)$$

worin neben der Anisotropiekonstanten  $K$  der Parameter  $A$  die Stärke der Austauschwechselwirkung beschreibt. In dünnen Co-Filmen können weitere Effekte Einfluss auf die Form von Domänen und Domänenwänden nehmen. Beispielsweise kann aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung eine anisotrope Austauschwechselwirkung, verbunden mit dem weiteren Energieterm

$$E_{\text{DMI}} = - \sum_{i>j} \mathbf{D}_{ij} \cdot [\vec{S}_i \times \vec{S}_j], \quad (2.14)$$

aufzutreten, welcher eine Verkipfung einzelner Spins zueinander begünstigt. Dieses Phänomen wird „Dzyaloshinsky-Moriya-Wechselwirkung“ (DMI) genannt [29].

$\mathbf{D}_{ij}$  bezeichnet den DMI-Tensor.

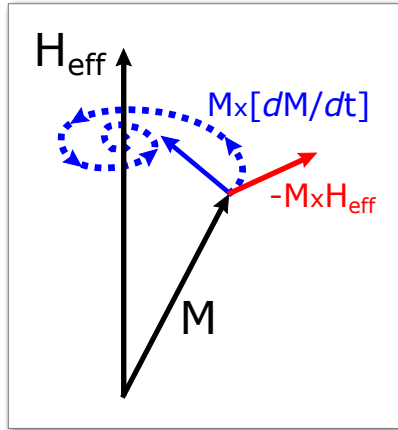
## 2.3 Ultraschnelle Magnetisierungsdynamik

Zur Beschreibung der klassischen Magnetisierungsdynamik verwendet man häufig die Landau-Lifshitz-Gleichung [30] beziehungsweise Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung [31]. Erstere besitzt die Form

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{\text{eff}} - \frac{\lambda}{M_S} \vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}_{\text{eff}}). \quad (2.15)$$

Sie charakterisiert den zeitlichen Verlauf der Magnetisierung  $\vec{M}$ , welcher aus zwei Beiträgen resultiert:  $-\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{\text{eff}}$  beschreibt eine Präzession des magnetischen Moments um ein externes Magnetfeld  $\vec{H}_{\text{eff}}$ . Berücksichtigte man nur diesen Beitrag, ergäbe sich eine unendlich lange Bewegung, ohne dass sich das magnetische Moment dem Magnetfeld anpassen könnte. Daher wurde die Gleichung um den phänomenologischen Beitrag  $-\frac{\lambda}{M_S} \vec{M} \times (\vec{M} \times \vec{H}_{\text{eff}})$ , der eine Dämpfung ausdrückt, erweitert. Dieser Zusatzterm bewirkt, dass sich mit der Zeit das magnetische Moment nach dem Magnetfeld ausrichtet. Der Parameter  $\lambda$  gibt die Stärke der Dämpfung an. Da die Landau-Lifshitz-Gleichung bei hohen Dämpfungen versagt, ersetzte Gilbert den Dämpfungsterm durch  $+\frac{\alpha}{M_S} \vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t}$ , mit dem Parameter  $\alpha > 0$ .

Die Landau-Lifshitz-Gilbert-Dynamik eignet sich ausgezeichnet dazu, das Verhalten der Magnetisierung in dünnen Filmen auf Zeitskalen von bis zu wenigen ps zu beschreiben.



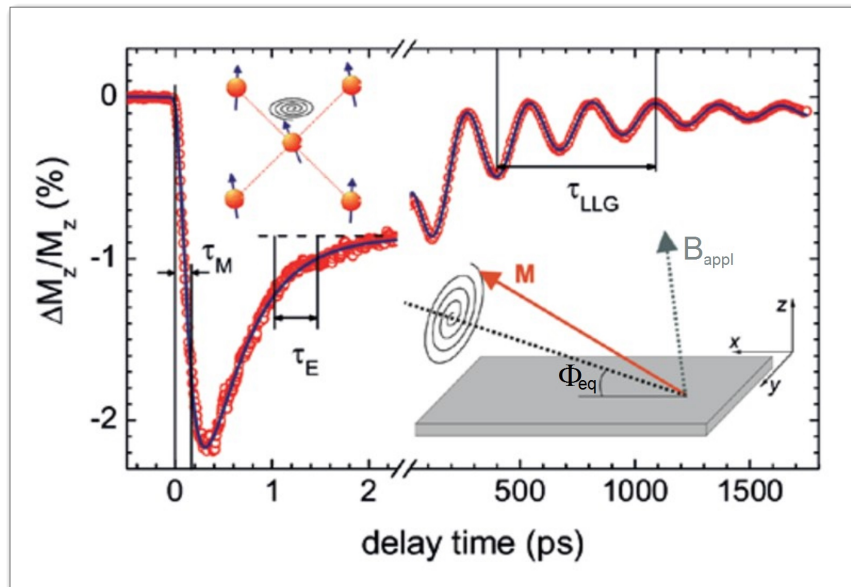
**Abbildung 2.3:** *Magnetisierungsdynamik gemäß der Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung. Im äußeren Magnetfeld  $H_{\text{eff}}$  präzediert ein magnetisches Moment  $M$  um die Richtung des effektiven Magnetfelds. Durch einen phänomenologischen Dämpfungsterm beschrieben, richtet sich das magnetische Moment allmählich in Magnetfeldrichtung aus.*

Erstaunlicherweise entdeckten Beaurepaire et al. [32], dass bereits auf viel kürzeren Zeitskalen im sub-ps-Bereich dynamische Prozesse in magnetischen Materialien stattfinden können. Im Speziellen gelang es, durch einen Laserpuls magnetische Filme auf Zeitskalen von wenigen hundert fs zu demagnetisieren, das heißt, weit bevor die klassische Landau-Lifshitz-Gilbert-Dynamik einsetzen kann. Die, dem Dämpfungsprozess zugrunde liegende, Spin-Gitter-Wechselwirkung läuft auf viel längeren Zeitskalen ab. Die genauen Ursachen dieser neu entdeckten „ultraschnellen Demagnetisierung“ sind zwar noch immer unbekannt, aber es existieren bereits mehrere Theorien. Eine mögliche anschauliche Erklärung ist die folgende [33]:

Das magnetische System besitzt vor dem Eintreffen eines Laserpulses die Temperaturen  $T_e$  der Elektronen sowie  $T_{ph}$  des Gitters. Befindet sich das System im Gleichgewicht, gilt daher  $T_e = T_{ph} = T_1$ . Erhitzt man das Material nun durch den Energieeintrag des Laserpulses, erhöht man die elektronische Temperatur auf  $T_e = T_2$ . Gemäß der klassischen Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung  $\vec{M}(T)$  ergibt sich eine reduzierte Magnetisierung. Zu Lösen bleibt nun die Frage, wie sich die erhöhte Temperatur  $T_e$  auf  $T_{ph}$  überträgt und auf welchen Zeitskalen dieser Prozess ablaufen kann.

Wie kann man sich nun anschaulich erklären, dass sich die vom Laser getroffene, magnetische Schicht demagnetisieren lässt? Durch die vom Laserpuls eingetragene Energie entstehen an der Eintrittsstelle im Material sogenannte heiße Elektronen, welche durch ihre hohe Energie dazu tendieren, in alle Richtungen zu diffundieren. Der Effekt dieses diffusiven Transports hängt vor allem davon ab, wie oft die heißen Elektronen auf ihrem Weg durch das Material gestreut werden [34]. Bei diesen hochenergetischen heißen Elektronen handelt es sich hauptsächlich um Elektronen aus dem s-Band, welche grundsätzlich sehr beweglich sind. Mögliche Streuprozesse bestimmen ihre mittlere freie Weglänge  $l$  und die Streuzeit  $\tau$ . Im Ferromagneten ist hier vor allem die Streuung in mögliche d-Band-Zustände entscheidend, da sie zum einen den Transport behindert und d-Band-Zustände grundsätzlich geringere Beweglichkeiten aufweisen. Berücksichtigt man nun die Tatsache, dass in einem Ferromagneten die d-Bänder aufgrund der Austauschwechselwirkung gegeneinander verschoben und folglich für das Majoritätsband an der Fermikante weniger freie d-Band-Zustände vorhanden sind, ergibt sich, dass

Elektronen mit Majoritäts-Spinorientierung größere freie Weglängen besitzen und demnach weiter transportiert werden können. Diese Elektronen tragen ebenfalls Spin und somit ein magnetisches Moment, weshalb sich an der Eintrittsstelle des Lasers eine effektive Demagnetisierung ereignet.



**Abbildung 2.4:** Ultraschnelle Demagnetisierung. Schon auf Zeitskalen von wenigen hundert fs ereignen sich Demagnetisierungsprozesse, weit bevor die klassische Landau-Lifshitz-Gilbert-Dynamik einsetzt (aus [35]).

## 2.4 Theorie der Photoemission

Emittiert ein Festkörper Elektronen unter Absorption von Photonen, spricht man von Photoemission. Der zugrunde liegende Photoeffekt wurde bereits vor mehr als hundert Jahren von Albert Einstein entdeckt und dieser dafür mit dem Nobel-Preis bedacht [1]. Diese Entdeckung widerspricht der damaligen Theorie der Lichtwelle und zeigte, dass das Licht in seinen Eigenschaften auch Teilchencharakter besitzt. Die Photoemission ist einer der fundamentalen quantenmechanischen Prozesse, bei dem Energie  $h\nu$ , Impuls  $k$  und Spin (Helizität) des Photons vollständig auf das Photoelektron übergehen. Es gilt die Energieerhaltung und es ergibt sich die einfache Beziehung

$$E_{kin} = h\nu - \Phi - E_B. \quad (2.16)$$

Hierin bezeichnen  $E_{kin}$  die kinetische Energie des Photoelektrons,  $E_B$  die Bindungsenergie des Elektrons und  $\Phi$  die Austrittsarbeit des Materials. Heutzutage ist man durch immer bessere Lichtquellen in der Lage, mehrere Photonen einen gemeinsamen Photoemissionsprozess durchführen zu lassen, genannt Multi-Photonen-Photoemission.

### 2.4.1 Ein-Photon- und Zwei-Photonen-Photoemission

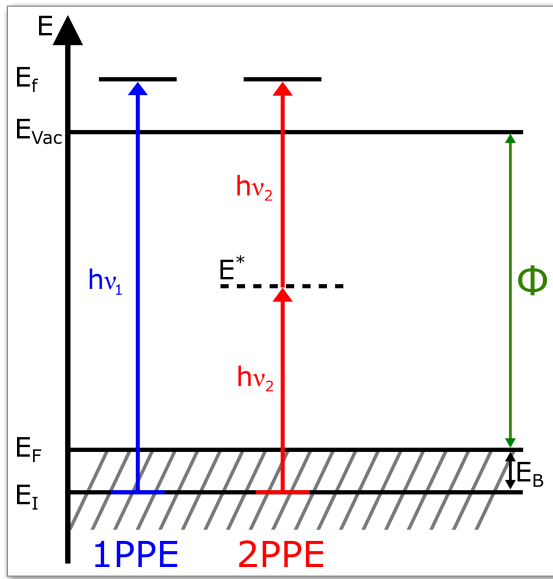
Die Einstein-Gleichung bezieht sich auf die Ein-Photon-Photoemission (1PPE), die den wahrscheinlichsten Photoemissionsprozess (für  $h\nu > \Phi$ ) darstellt. Damit das Elektron den Festkörper verlassen kann, muss  $E_{kin} \geq 0$  gelten, was impliziert, dass die Photonenenergie  $h\nu$  größer als die Austrittsarbeit  $\Phi$  sein muss. Mit modernen Lasern ist es möglich, sehr große Photonendichten zu generieren, um somit Zwei- und Mehr-Photonen-Photoemission (2PPE und nPPE) zu ermöglichen. Hierbei wird die Energie von mehreren Photonen auf ein einziges Elektron übertragen. Für diese Art der Photoemission kann die Energie eines einzelnen Photons kleiner als die Austrittsarbeit sein. Die theoretische Beschreibung eines 2PPE-Prozesses beginnt mit einer Anregung eines Elektrons durch Absorption eines Photons, wobei der mögliche angeregte Zwischenzustand reeller oder virtueller Natur sein kann. Ausgehend von diesem Zwischenzustand wird das zweite Photon absorbiert, das Elektron überwindet die Austrittsarbeit  $\Phi$  und verlässt den Festkörper. Für den Prozess spielt die Lebensdauer  $\tau$  des Zwischenzustands eine wichtige Rolle, welche von der Anregungsenergie des Zwischenzustands  $E^*$  abhängt.  $\tau$  lässt sich zu

$$\tau \propto \frac{1}{(E^* - E_F)^2} \quad (2.17)$$

bestimmen [36, 37], wobei  $E_F$  die Fermi-Energie, d.h. die Energie des höchsten, besetzten Zustandes (für  $T=0$ ) bezeichnet. Die typische Lebensdauer in einem solchen Zwischenzustand bewegt sich zwischen 1-30 fs. Für kleine Anregungsenergien ergeben sich höhere Lebensdauern der Zwischenzustände. Die unterschiedlichen Anregungen in reelle und virtuelle Zwischenzustände haben zur Folge, dass zwei verschiedene Szenarien vorliegen können. Zum einen besteht die Möglichkeit, dass zwei Photonen simultan absorbiert werden und dadurch das Elektron in sehr kurzer Zeit in seinen Endzustand  $E_f$  gehoben wird. Zum anderen kann das Elektron zu einem Zwischenzustand gehoben werden, wo es als heißes Elektron diverse Relaxationsprozesse durchlaufen kann, bevor das zweite Photon absorbiert wird. Diese Relaxationsprozesse, beispielsweise Elektron-Elektron-Streuprozesse, können Sekundärelektronen mit Energien zwischen dem Zwischenzustand und  $E_F$  erzeugen, welche wiederum Anfangszustände für den Absorptionsprozess des zweiten Photons darstellen können (Abbildung 2.5).

Die in dieser Arbeit durchgeführten Photoemissionsexperimente entstanden mit Photonen mit Energien von wenigen eV, welche nur geringe Überschussenergien  $E_{kin}$  im Bereich von 0-3 eV ermöglichen. Die geringe kinetische Energie ist laut Betrachtung der „universellen Kurve“ (Abbildung 2.6) mit einer großen, mittleren freien Weglänge für inelastische Streuung verbunden. Dadurch können auch Elektronen zur Photoemission beitragen, die ursprünglich aus tieferen Atomlagen des Festkörpers stammen.

Während freie Elektronen im Vakuum die Dispersionsrelation  $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$  besitzen, bewegen sich Elektronen im Festkörper im Potential des Kristallgitters. In erster Näherung besitzen diese Elektronen ebenfalls eine quadratische Dispersionsrelation, allerdings mit einer angepassten effektiven Masse  $m^*$ . Diese ist über  $\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{d^2 E}{dk^2}$  bestimmbar. Im folgenden wird für die effektive Masse ebenfalls die



**Abbildung 2.5:** Vergleich der Ein-Photon- und Zwei-Photonen-Photoemission. Der blaue Pfeil beschreibt einen Ein-Photonen-Photoemissionsprozess, bei dem ein Elektron vom Zustand der Energie  $E_i$  auf den Endzustand der Energie  $E_f$  angeregt wird. Die Energie des Photons  $h\nu_1$  reicht aus, um die Austrittsarbeit  $\phi$  zu überwinden. Die roten Pfeile zeigen einen Zwei-Photonen-Photoemissionsprozess für Photonen mit der halben Energie ( $h\nu_2$ ). Die Anregung über das Vakuumniveau  $E_{Vac}$  kann hierbei über einen virtuellen oder reellen Zwischenzustand der Energie  $E^*$  erfolgen.

vereinfachte Bezeichnung  $m$  verwendet.

### 2.4.2 Drei-Stufen-Modell

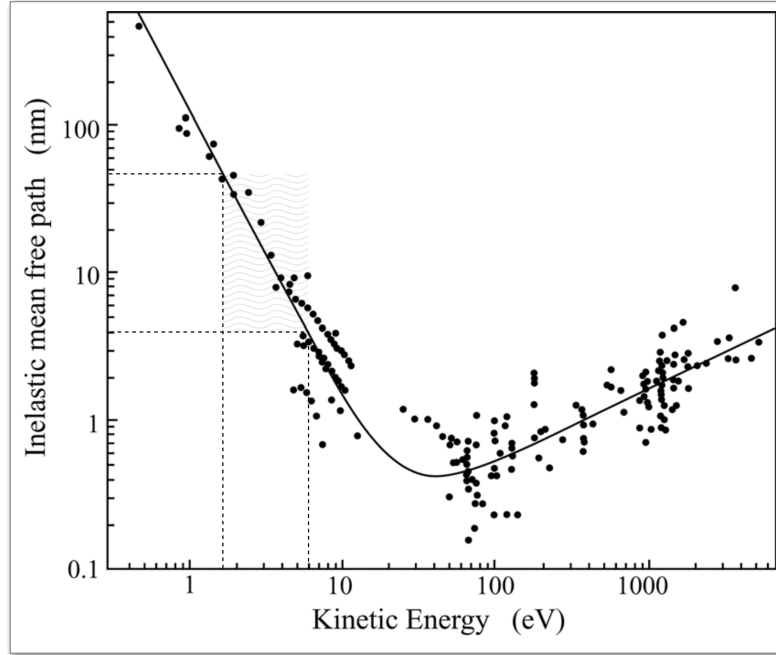
Um den Photoemissionsprozess zu charakterisieren, wurden verschiedene theoretische Konzepte ausgearbeitet, welche in [22] ausführlich beschrieben werden. Die folgenden Erläuterungen sind daraus entnommen und beschränken sich auf die Valenzbandphotoemission.

Eines dieser Konzepte ist das Drei-Stufen-Modell, welches den Photoemissionsprozess in drei inkohärente Schritte unterteilt (Abbildung 2.7): Die Anregung eines Elektrons durch Photonenabsorption, gefolgt vom Elektronentransport zur Oberfläche und schließlich die Transmission durch die Oberfläche und Überwindung der Oberflächenbarriere. Das von Berglund und Spicer [39] entwickelte Modell beschreibt viele Photoemissionsexperimente hinreichend genau.

Löst man durch den Photoeffekt Elektronen aus dem Festkörper heraus, so handelt es sich um einen Vielteilchenprozess, der damit beginnt, dass ein Elektron aus dem Valenzband entfernt und damit ein Loch im Fermi-See erzeugt wird. Physikalisch kommt dieses Photoloch einer positiven Ladung gleich, welche im Fermi-See platziert wird.

Ein wichtiges Konzept fußt auf der „sudden approximation“, welche grob aussagt, dass die Absorption des Photons und die Anregung des Elektrons instantan erfolgen und demzufolge nicht vom umgebenden System beeinflusst werden.

Zunächst erfolgt die optische Anregung eines Elektrons, welches sich innerhalb des Festkörpers in einem Energieband befindet, welches durch die Dispersion  $E(\vec{k})$  beschrieben wird. Demzufolge hat der Anfangszustand des Elektrons sowohl eine definierte Energie  $E$ , als auch einen Wellenvektor  $\vec{k}$  (Blochzustand). Für Pho-



**Abbildung 2.6:** *Universelle Kurve für die inelastische, mittlere freie Weglänge, in Abhängigkeit von der kinetischen Energie (bezogen auf das Fermi-Niveau). Die Punkte repräsentieren Werte, die in real durchgeführten Experimenten an unterschiedlichen Festkörpern ermittelt wurden. Für Photoelektronen im Bereich weniger eV oberhalb der Austrittsarbeitsschwelle ergeben sich große freie Weglängen. Die Werte zwischen 1,6 eV und 6 eV sind gekennzeichnet (aus [38]).*

tonenenergien von weniger als 100 eV ist der Photonenimpuls vernachlässigbar klein. Für die weitere Betrachtung ist es daher eine zulässige Annahme, dass die direkten optischen Interbandübergänge zwischen Anfangszustand  $|\Psi_i\rangle$  und Endzustand  $\langle\Psi_f|$  „senkrecht“ stattfinden, das heißt  $\Delta\vec{k} = 0$ . Dies gilt im reduzierten Zonenschema der Brillouin-Zone; im erweiterten Zonenschema muss der reziproke Gittervektor  $\vec{G}$  berücksichtigt werden.

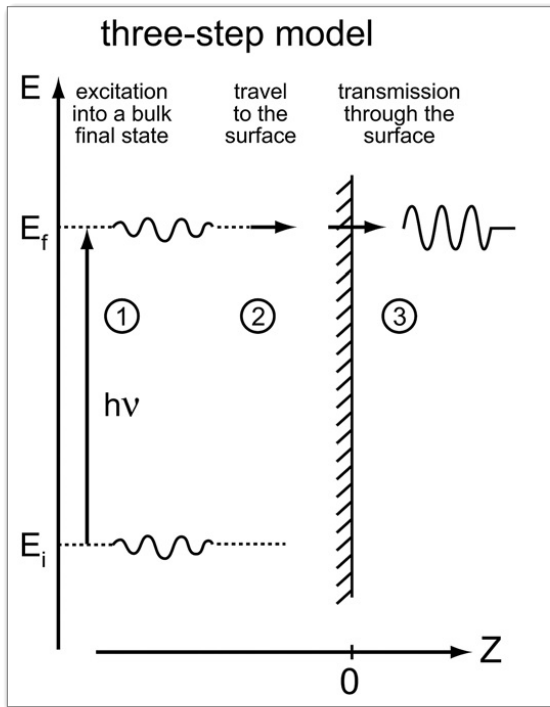
Ob und wie stark ein Übergang stattfinden kann, hängt damit zusammen, ob der entsprechende Übergang vom Anfangs- in den Endzustand quantenmechanisch erlaubt und wie wahrscheinlich er ist. Über Fermis Goldene Regel lässt sich die zu erwartende Intensität der Photoemission darstellen als

$$I \propto |\tilde{M}_{if}|^2 \delta(\vec{k}_i - \vec{k}_f + \vec{G}) \delta(\vec{E}_f - \vec{E}_i + h\nu) \quad (2.18)$$

mit dem Übergangsmatrixelement

$$\tilde{M}_{if} = \langle\Psi_f|H_{if}|\Psi_i\rangle. \quad (2.19)$$

Hierin gewährleistet die erste  $\delta$ -Funktion die Impulserhaltung, welche im Matrixelement nicht explizit berücksichtigt wird, und die zweite die Energieerhaltung.



**Abbildung 2.7:** Veranschaulichung des Drei-Stufen-Modells. Die erste Stufe besteht in der Anregung eines Elektrons im Festkörper. Die zweite Stufe besteht aus dem Transport an die Kristalloberfläche, gefolgt von der Transmission durch die Oberfläche des Festkörpers (dritte Stufe) (aus [22]).

Der störungsfreie Hamilton-Operator eines Elektrons im Festkörper lautet

$$H_0 = \frac{p^2}{2m} + V(\vec{r}), \quad (2.20)$$

$|\Psi_i\rangle$  und  $|\Psi_f\rangle$  sind dessen Eigenzustände. Im Drei-Stufen-Modell beschreiben sie Blochwellen, die durch einen direkten Interbandübergang verbunden sind. Das Photonenfeld kann als Störung angesehen werden, der entsprechende Störungsoperator  $H_{if}$  lautet

$$H_{if} = \frac{e}{2mc} (\vec{A} \cdot \vec{p} + \vec{p} \cdot \vec{A}) - e\phi + \frac{e^2}{2mc^2} \vec{A} \cdot \vec{A}. \quad (2.21)$$

Der Hamilton-Operator beinhaltet das skalare Potential  $\phi$ , das Vektorpotential  $\vec{A}$  und den Impulsoperator  $\vec{p} = -i\hbar\vec{\nabla}$ . Zusätzlich verwenden wir die Eichung  $\phi = 0$ . Da Polarisationsvektor und Wellenvektor der elektromagnetischen Welle senkrecht zueinander stehen, gilt  $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = i\vec{k} \cdot \vec{A} = 0$ . Werden nur lineare Prozesse berücksichtigt, vereinfacht sich der Hamilton-Operator zu

$$H_{if} = \frac{e}{mc} (\vec{A} \cdot \vec{p}). \quad (2.22)$$

$\vec{A}$  kann als konstant angenommen werden, also  $\vec{A} = \vec{A}_0$ , weil die Wellenlänge der Photonen groß im Vergleich zu den Atomabständen ist. Es gilt ferner die Beziehung

$$\langle \Psi_f | \vec{A} \cdot \vec{p} | \Psi_i \rangle \propto \vec{A} \langle \Psi_f | [H_0, \vec{r}] | \Psi_i \rangle \propto \langle \Psi_f | \vec{A} \cdot \vec{r} | \Psi_i \rangle. \quad (2.23)$$



Berücksichtigt man die für diese Arbeit relevanten Anregungsenergien von wenigen eV, so ergeben sich für die angeregten Elektronen große inelastische, mittlere freie Weglängen (Abbildung 2.6).

Wird ein Elektron ausgelöst und somit ein Loch erzeugt, so befindet sich dieses nicht in einem ausgezeichneten Zustand, sondern kann sich in einem beliebigen der  $n$  möglichen Endzustände im Vielteilchensystem befinden. Dies ist eine direkte Folge der Elektron-Elektron-Wechselwirkung. Es bietet sich daher an, die Wellenfunktionen wie folgt umzuschreiben:

$$\Psi_i(N) = \phi_i(\vec{k}_i)\Psi_i(N-1). \quad (2.24)$$

Die Wellenfunktion  $\Psi_i(N)$  des  $N$ -Elektronen-Systems lässt sich demnach als Produkt aus dem Anfangszustand des Elektrons,  $\phi_i(\vec{k}_i)$ , und der Vielteilchenwellenfunktion der übrigen  $(N-1)$  Elektronen,  $\Psi_i(N-1)$ , auffassen. Entsprechend ergibt sich für den Endzustand die Darstellung

$$\Psi_f(N) = \phi_{f,E_{kin}}(\vec{k}_f) \cdot \sum_n \Psi_{f,n}(N-1). \quad (2.25)$$

Hierin findet sich das Produkt aus der Wellenfunktion, die den Endzustand des Photoelektrons beschreibt,  $\phi_{f,E_{kin}}(\vec{k}_f)$ , und der Summe der möglichen Endzustände der übrigen Elektronen,  $\sum_n \Psi_{f,n}(N-1)$ . Für die entsprechenden Energien ergeben sich  $E_n(N-1)$  für diejenigen der finalen Zustände, respektive  $E_0(N)$  für den Anfangszustand. Die angeregten Elektronen bewegen sich im Festkörper gedämpft fort, der Anteil senkrecht zur Oberfläche ist daher komplex:

$$k_{\perp} = k_{\perp}^1 + ik_{\perp}^2. \quad (2.26)$$

Die Dämpfung wird über den Imaginärteil  $k_{\perp}^2$  bestimmt. Dies führt zu einem Aufweichen der Impulserhaltungsbedingung [22]. Insgesamt erhält man folglich:

$$\begin{aligned} I \propto \sum_{n,i} \left| \left\langle \tilde{\phi}_{f,E_{kin}} \left| \vec{r} \right| \tilde{\phi}_i \right\rangle \right|^2 \left| \left\langle \tilde{\Psi}_{f,n}(N-1) \left| \tilde{\Psi}_i(N-1) \right\rangle \right|^2 \frac{1}{\left( k_{i\perp}^1 - k_{f\perp}^1 \right)^2 + \left( k_{f\perp}^2 \right)^2} \\ \times \delta \left( \vec{k}_i - \vec{k}_f + \vec{G} \right) \delta \left( E_{kin} + E_n(N-1) - E_0(N) - h\nu \right). \end{aligned} \quad (2.27)$$

Der in dieser Darstellung aufgeführte Bestandteil

$$A(\vec{k}, E) = \sum_{n,i} \left| \left\langle \tilde{\Psi}_{f,n}(N-1) \left| \tilde{\Psi}_i(N-1) \right\rangle \right|^2 \quad (2.28)$$

beschreibt den Überlapp der Wellenfunktionen der Endzustände und des Grundzustands. Er ist ein direktes Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron aus dem System im Grundzustand entfernt wird.

Nachdem das Elektron aus dem besetzten in das unbesetzte Band übergegangen ist, folgt der nächste Schritt: Der Transport zur Oberfläche des Festkörpers. Hierbei kann das Elektron Streuprozesse durchlaufen, welche es ablenken und/oder

seine Energie verringern. Dadurch reduziert sich die Anzahl der elastisch transportierten Elektronen, welche schließlich die Oberfläche erreichen. Elektron-Elektron-Streuung ist hierbei der vorherrschende inelastische Mechanismus. Als Kenngröße wird die inelastische mittlere freie Weglänge des Photoelektrons angegeben:

$$\lambda(E, k) = \tau \nu_g = \frac{\tau}{\hbar} \frac{dE}{dk}. \quad (2.29)$$

Die Streufrequenz  $\frac{1}{\tau}$  wird als isotrop und nur von der Energie  $E$  abhängig angenommen,  $\nu_g$  ist die Gruppengeschwindigkeit. Wieviele Elektronen an die Oberfläche gelangen, wird durch den Koeffizienten

$$d(E, k) \approx \frac{\alpha \lambda}{1 + \alpha \lambda} \quad (2.30)$$

ausgedrückt.  $\alpha$  ist der Absorptionskoeffizient für das Licht. Betrachtet man diese Formel, ergeben sich zwei Grenzfälle:

$$\alpha \lambda \gg 1 \Rightarrow d(E, k) \rightarrow 1 : \quad \text{Alle Elektronen erreichen die Oberfläche} \quad (2.31)$$

$$\alpha \lambda \ll 1 \Rightarrow d(E, k) \rightarrow \alpha \lambda : \quad \text{Nur der Bruchteil } \alpha \lambda \text{ erreicht die Oberfläche} \quad (2.32)$$

Erreicht das Elektron die Oberfläche des Festkörpers, so muss es im dritten Schritt die Potentialbarriere überwinden, um ins Vakuum zu gelangen: Innerhalb des Festkörpers bewegt sich das Elektron in einem Potential der Höhe  $E_V - E_0$ . Hierbei bezeichnet  $E_V$  die Vakuumenergie und  $E_0 (< 0)$  die minimale Energie im niedrigsten Valenzband. Um die Oberflächenbarriere zu überwinden, muss der senkrecht zur Oberfläche gerichtete Anteil am Gesamtimpuls ausreichen, um die Potentialbarriere zu überwinden, also

$$E_{kin}^{int} = \frac{\hbar^2}{2m} \vec{k}_{f,\perp}^2 \geq E_V - E_0. \quad (2.33)$$

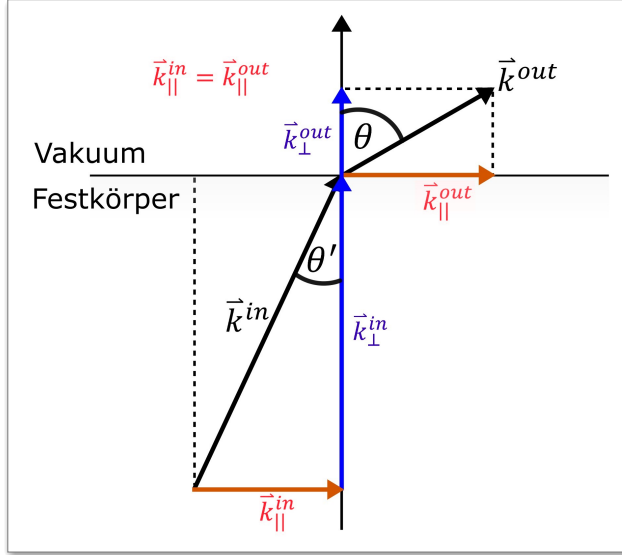
Für den minimal möglichen Wert von  $|\vec{k}_{f,\perp}|$  ergibt sich die Beziehung

$$|\vec{k}_{f,\perp}|_{min} = \frac{\sqrt{2m}}{\hbar} (E_V - E_0)^{1/2}. \quad (2.34)$$

Die Aufspaltung von  $\vec{k}$  in  $\vec{k}_{\parallel}$  und  $\vec{k}_{\perp}$  ist notwendig, weil sich die Symmetrie an der Oberfläche verändert. Parallel zur Oberfläche herrscht im Allgemeinen Translationssymmetrie vor, die unter anderem von der Atomstruktur vorgeben wird. Diese Symmetrie bleibt auch bei Verlassen der Oberfläche erhalten, man spricht von Translationsinvarianz. Folglich bleibt  $\vec{k}_{\parallel}$  erhalten:

$$\vec{k}_{\parallel}^{in} = \vec{k}_{\parallel}^{out}. \quad (2.35)$$

Weil die Potentialbarriere nur  $\vec{k}_{\perp}$  ändert, ist die Physik des Übergangs vom Festkörper zum Vakuum so zu betrachten wie die Lichtbrechung beim Übergang von einem optisch dichten zu einem optisch dünnen Medium, wie in der Abbildung 2.8 illustriert ist.



**Abbildung 2.8:** Durchtritt einer Elektronenwelle durch die Oberfläche ins Vakuum. Das Verhalten ist analog dem Snell'schen Brechungsgesetz (aus [22]).

Analog zu Snells Brechungsgesetz der Lichtoptik lässt sich für die parallele Komponente  $\vec{k}_{\parallel}$  ein Erhaltungsgesetz ableiten:

$$\begin{aligned} |\vec{p}_{\parallel}^{in}| &= |\vec{k}_{f\parallel}^{in} \hbar| = |\sin \theta' \vec{k}_f^{in} \hbar| = \sin \theta' \sqrt{2mE_{kin}^{in}} \\ &= \sin \theta' \sqrt{2m(E_f - E_0)} = |\vec{p}_{\parallel}^{out}| = |\sin \theta \vec{p}| = \sin \theta \sqrt{2mE_{kin}^{out}}, \end{aligned} \quad (2.36)$$

wobei  $\theta'$  und  $\theta$  die Winkel innerhalb und außerhalb des Festkörpers und zwischen  $\vec{k}$  und der Oberflächennormalen bezeichnen. Die möglichen Austrittswinkel  $\theta$  sind beschränkt zwischen  $0^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$ . Für  $\theta > 90^\circ$  wird das Elektron wieder in den Festkörper reflektiert. Für  $\theta = 90^\circ$  folgt  $\sin \theta = 1$  und somit ergibt sich der maximale Winkel innerhalb des Festkörpers zu

$$\sin \theta'_{max} = \sqrt{\frac{E_{kin}^{out}}{E_{kin}^{in}}} = \sqrt{\frac{E_{kin}}{E_f - E_0}} = \sqrt{\frac{h\nu - \Phi}{h\nu - \Phi + V_0}}. \quad (2.37)$$

$E_V - E_0 = V_0$  bezeichnet hierin das innere Potential,  $E_f - E_V = h\nu - \Phi$  gilt für  $E_B = 0$ . Für den minimalen Wert  $k_{f\perp}$  ergibt sich der maximale Austrittswinkel  $\theta'_{max}$ . Alle möglichen Austrittswinkel  $0^\circ \leq \theta' \leq \theta'_{max}$  spannen zusammen den „inneren Austrittskonus“ auf, welcher nach Gleichung 2.37 für in dieser Arbeit gemessene Austrittsenergien der Elektronen von 1-3 eV Werte für  $\theta'_{max}$  von  $14,5^\circ$  bis  $24,1^\circ$  ergibt (hierbei wurde für Co  $V_0=15$  eV angenommen).

Im Drei-Stufen-Modell stellt

$$\Psi_f(\vec{k}) = \sum_{\vec{G}} u_f(\vec{k}, \vec{G}) e^{i(\vec{k} + \vec{G}) \cdot \vec{r}} \quad (2.38)$$

die Wellenfunktion des Endzustands da. Es handelt sich dabei um eine Blochwelle, die aus einer Überlagerung von ebenen Wellen mit den reziproken Gittervektoren  $\vec{G}$  besteht. Beim Verlassen des Festkörpers koppelt diese ebene Wellen an eine sich

ausbreitende Welle im Vakuum. Wenn mehrere Komponenten der Energie  $E_f(\vec{k})$  dieselben Werte für  $\vec{k}_{\parallel} + \vec{G}_{\parallel}$  besitzen, müssen diese als kohärente Superposition betrachtet werden und der totale Transmissionsfaktor lautet

$$\left| T(E_f, \vec{k}_{f\parallel}) \right|^2 = \left| t(E_f, \vec{k}_{f\parallel}) \right|^2 \left| \sum_{(k+G)_{\perp} > 0} u_f(\vec{k}, \vec{G}) \right|^2. \quad (2.39)$$

Zu genaueren Erläuterungen zu  $\left| t(E_f, \vec{k}_{f\parallel}) \right|^2$  sei auf [22] verwiesen. Abschließend wird im Folgenden der komplette Ausdruck für den Photostrom, also die Rate pro Zeit, angegeben. Elektron-Elektron-Wechselwirkung ist darin genauso eingeklammert wie die Dämpfung der Photoelektronenwelle auf dem Weg durch den Festkörper. Die folgende Summe läuft nur über besetzte Anfangszustände. Ferner müssen der Transportkoeffizient  $d(E, k)$  im zweiten Schritt sowie der totale Transmissionsfaktor  $\left| T(E_f, \vec{k}_{f\parallel}) \right|^2$  im dritten Schritt berücksichtigt werden. Insgesamt ergibt sich zusammen mit Energie- und Impulserhaltung der Ausdruck

$$\begin{aligned} I(E, \vec{k}_{f\parallel}, h\nu) &\propto \sum_{f,i} \left| \tilde{M}_{fi}(\vec{k}_i, \vec{k}_f) \right|^2 d(E_f, \vec{k}_f) \left| T(E_f, \vec{k}_{f\parallel}) \right|^2 \\ &\times \delta \left( E_f(\vec{k}_f) - E_i(\vec{k}_i) - h\nu \right) \delta \left( E - E_f(\vec{k}_f) + \Phi \right) \\ &\times \delta \left( \vec{k}_i + \vec{G} - \vec{k}_f \right) \delta \left( \vec{k}_{f\parallel} - \frac{\vec{p}_{\parallel}(\theta, \phi)}{\hbar} \right). \end{aligned} \quad (2.40)$$

In der Gleichung sind zwei zusätzliche  $\delta$ -Terme aufgeführt.

$$\delta \left( E - E_f(\vec{k}_f) + \Phi \right) \quad (2.41)$$

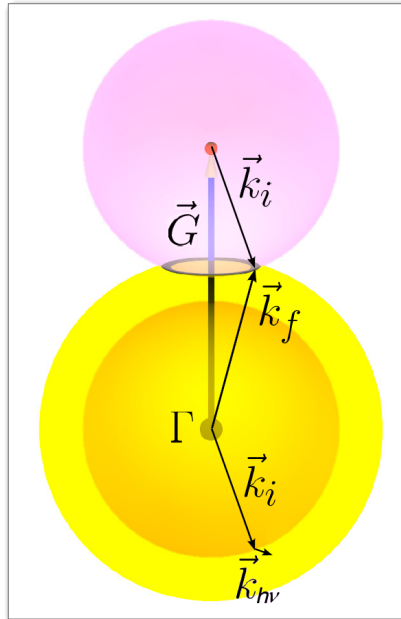
trägt der Tatsache Rechnung, dass die Elektronen überhaupt erst ins Vakuum gelangen müssen, um detektiert werden zu können.

Der Term

$$\delta \left( \vec{k}_{f\parallel} - \frac{\vec{p}_{\parallel}(\theta, \phi)}{\hbar} \right) \quad (2.42)$$

gewährleistet die Erhaltung der Parallel-Komponente des Impulses beim Verlassen des Festkörpers unter dem Winkelpaar  $(\theta, \phi)$ .

Auch wenn sich das Drei-Stufen-Modell gut dazu eignet, den Photoemissionsprozess zu beschreiben und folglich experimentelle Resultate einzuordnen, so besitzt es grundlegende Mängel: Bereits die Annahme  $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$  verliert ihre Gültigkeit an der Oberfläche des Festkörpers. Viele Experimente haben die Bedeutung von  $\vec{\nabla} \cdot \vec{A}$  an Oberflächen bereits bestätigt [40, 41].



**Abbildung 2.9:** Der Mahan-Konus. Weil der Impulsübertrag durch das Photon sehr klein ist ( $|\vec{k}_{h\nu}| \ll |\vec{k}_{i,f}|$ ), kann ein Photoanregungsprozess im Festkörper nur unter Einbeziehung des reziproken Gitters (entsprechend dem Gittervektor  $\vec{G}$ ) stattfinden. Die Bedingung  $\vec{k}_f = \vec{k}_i + \vec{G}$  führt zu erlaubten Endzuständen auf einem Konus um  $\vec{G}$  (aus [42]).

Wie in Abbildung 2.9 skizziert, überträgt das Photon Energie an das Elektron, also  $E_f = E_i + h\nu$ , wobei Anfangs- und Endzustand die Wellenvektoren  $|\vec{k}_{i,f}| = (\frac{2m}{\hbar^2} E_{i,f})^{1/2}$  besitzen. Die Energien  $E_i$  und  $E_f$  entsprechen in Abbildung 2.9 unterschiedlichen Radien der gelben Kugeln.

Nachdem der Photonenimpuls  $|\vec{k}_{h\nu}| \ll |\vec{k}_{i,f}|$  und somit der Impulsübertrag durch das Photon sehr klein ist, kann die Impulserhaltung nicht erfüllt sein [42, 43]. Im Festkörper kann der fehlende Impulsübertrag über einen reziproken Gittervektor  $\vec{G}$  ausgeglichen werden. Es gilt dann  $\vec{k}_f = \vec{k}_i + \vec{G}$ .

Mögliche Übergänge sind in Abbildung 2.9 in der Schnittebene aus der gelben Kugel (entsprechend  $E_f$ ) und der rosa Kugel um den Endpunkt von  $\vec{G}$  dargestellt. Diese bilden den Mahan-Konus aus möglichen Endzuständen  $\vec{k}_f$  um  $\vec{G}$ . Über Gleichung 2.34 lässt sich abschätzen, dass sich bei Exzessenergien von 1-3 eV für die senkrechte Impulskomponente  $k_{\perp}$  Werte von 2,04 bis 2,16  $\text{\AA}^{-1}$  ergeben (hierbei wurde  $V_0=15$  eV angenommen).

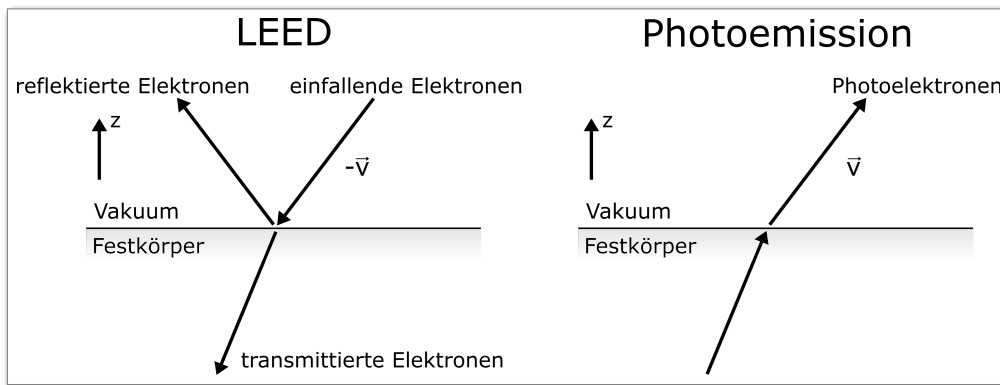
Ferner ist die Annahme, dass die oberflächennahen Endzustände aus Volumen-Blochwellen bestehen, im Allgemeinen nicht erfüllt. Die Bandstruktur verändert sich an der Festkörperoberfläche grundlegend.

Schließlich erklärt das Drei-Stufen-Modell nicht das Auftreten von klaren Fermi-Kanten in UPS-Experimenten, denn direkte Interbandübergänge zwischen zwei Bloch-Zuständen sind bei Photoemission im Bereich weniger eV oberhalb der Austrittsarbeit im Allgemeinen nicht möglich.

### 2.4.3 Ein-Stufen-Modell

Das im Folgenden beschriebene Ein-Stufen-Modell versucht die Mängel des Drei-Stufen-Modells zu beseitigen. Die hier dargestellten Grundlagen entsprechen den Ausführungen von [44]. Die Ausgangslage bildet ein (optisches) Wellenpaket, das einen Elektronenzustand im Festkörper beschreibt. Dieser Zustand koppelt an eine ebene Welle außerhalb des Festkörpers an.

Ein nützlicher Formalismus, um einen geeigneten Endzustand zu finden, ist das *inverse low energy electron diffraction* (LEED). LEED bezeichnet die elastische Reflexion und teilweise Transmission eines aus dem Vakuum auf die Oberfläche treffenden Elektronenstrahls. Über zeitliche Inversion und Vernachlässigung des reflektierten Strahls ergibt sich eine Darstellung des Photoemissionsprozesses. Eine einfache Gegenüberstellung ist in Abbildung 2.10 gezeigt.



**Abbildung 2.10:** Übergang von LEED zur Photoemission durch Zeitumkehr und Wegfallen des reflektierten Strahls (aus [25]).

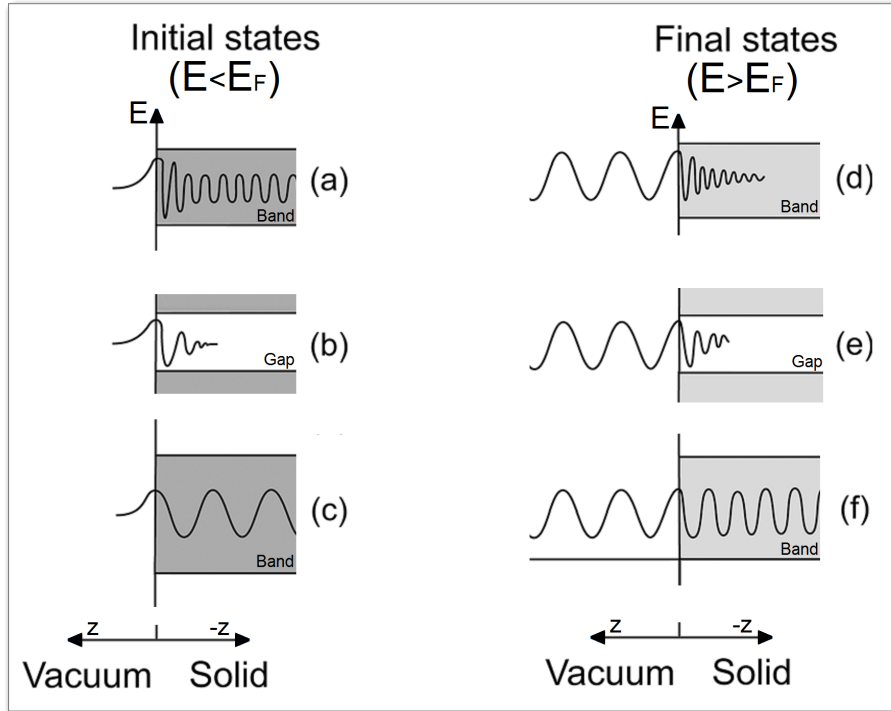
Die Anfangs- und Endzustände entsprechen der Kombination aus propagierenden und gedämpften Blochwellen, welche sich mithilfe der Blochfunktionen  $v_n$  und  $u_m$  als

$$\Psi_i^L \propto \exp(i\vec{k}_{i||} \cdot \vec{\rho}) \sum_n C_n \exp(ik_{\perp n} z) v_n(\vec{r}, \vec{k}_{i||}, E_i) \quad (2.43)$$

und

$$\Psi_f^L \propto \exp(i\vec{k}_{f||} \cdot \vec{\rho}) \sum_m t_m \exp(ik_{\perp m} z) u_m(\vec{r}, \vec{k}_{f||}, E_f) \quad (2.44)$$

darstellen lassen. Der Vektor  $\vec{\rho} = x\hat{e}_x + y\hat{e}_y$  liegt hierbei in der Oberflächenebene,  $\vec{z}$  zeigt senkrecht aus der Oberfläche und  $t_m$  bezeichnet den Transmissionskoeffizienten. Der senkrechte Anteil des Wellenvektors  $k_{\perp n}$  ist analog zu Gleichung 2.26 komplex. Folgende Anfangs- und Endzustände werden unterschieden (Grafik 2.11):



**Abbildung 2.11:** Das Ein-Stufen-Modell der Photoemission. Verschiedene Anfangs- und Endzustände für einen semi-unendlich ausgedehnten Kristall. Als Anfangszustände existieren (a) Oberflächenresonanzen, (b) Oberflächen-(Shockley-)Zustände innerhalb einer Volumenbandlücke; und (c) Volumen-Blochzustände. Für den Endzustand existieren die folgenden Möglichkeiten: (d) Oberflächenresonanzen, (e) evaneszente Zustände in der Bandlücke und (f) Blochzustände (eigene Darstellung nach [45] und [22]).

Mögliche Anfangszustände sind klassifizierbar als (a) Oberflächenresonanzen (2D-Blochwellen entartet mit Volumenzuständen), (b) Oberflächen- (Shockley-)Zustände innerhalb einer Volumenbandlücke und (c) Volumen- (3D)-Blochzustände. Als Endzustände treten (d) Oberflächenresonanzen (e) evaneszente (exponentiell gedämpfte) Zustände in der Bandlücke und (f) Volumen-Blochzustände auf.

Anhand dieser Wellenfunktionen lässt sich analog zum Drei-Stufen-Modell eine Abschätzung für den Photostrom angeben:

$$I(E, h\nu, \vec{R}) \propto \vec{v} \cdot \sum_{\text{besetzt}, i} |\langle \Psi_f^L | A_0 \vec{p} | \Psi_i^L \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - h\nu). \quad (2.45)$$

Elektron-Elektron-Wechselwirkungen wurden hierfür vernachlässigt und die Summe erstreckt sich nur über besetzte Zustände. Der Vektor  $\vec{R} = \vec{v}/|\vec{v}|$  bezeichnet den Einheitsvektor der Driftgeschwindigkeit. Die Gleichung 2.45 lässt sich in weiteren Schritten in eine der Gleichung 2.40 entsprechende Form bringen.

## 2.5 Low Energy Electron Diffraction (LEED)

Die elastische Streuung (Beugung) von Elektronen mit niedriger Energie an Oberflächen, wie sie in Kapitel 2.4.3 bereits eingeführt wurde, ist eine ausgezeichnete Methode, um Kristallstrukturen zu untersuchen. Über einen phosphoreszierenden Schirm werden die gebeugten Elektronen detektiert, und inelastische Elektronen, die nur eine reduzierte kinetische Energie besitzen, über Fanggitter ausgefiltert. Über die De-Broglie Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2mE}} \quad (2.46)$$

ergibt sich die Wellenzahl der Elektronen zu

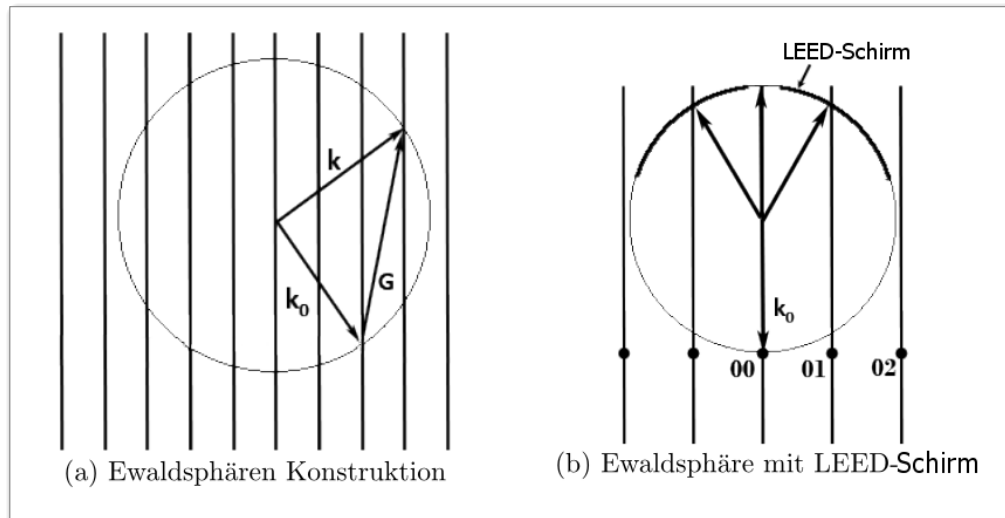
$$k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar}. \quad (2.47)$$

Die Laue-Bedingung

$$\vec{k} - \vec{k}_0 = \vec{G}_{hkl} \quad (2.48)$$

legt fest, dass die Differenz aus  $\vec{k}$  der ausfallenden Welle und  $\vec{k}_0$  der einfallenden Welle genau einem reziproken Gittervektor  $\vec{G}_{hkl}$  entsprechen muss [21], damit konstruktive Interferenz und somit ein LEED-Reflex auf dem Schirm auftritt. Die Ewaldkonstruktion in Grafik 2.12 ist ein geeignetes Hilfsmittel, um die Laue-Bedingung zu visualisieren. Da in LEED Elektronen mit Energien von 20-200 eV verwendet werden, ist deren Eindringtiefe in das Material sehr gering [38]. Die Beugung findet nur in den obersten Atomlagen statt, weshalb sich die erhaltene Information auf die Oberfläche des Materials bezieht. Geht man in der theoretischen Betrachtung im Realraum von einem 3D- auf ein 2D-Gitter über, entfernt sich, von der Atomlage an der Oberfläche aus betrachtet, die nächste Atomlage „unendlich“ weit weg. Im reziproken Raum entspricht das einem Zusammenrücken der Gitterebenen. Anstelle von diskreten Gitterpunkten, ein Punkt pro Atomebene, erscheinen die vielen, unendlich nah aneinander gerückten Gitterpunkte als zusammenhängende „Stäbe“. Aus dem LEED-Bild lassen sich Gitterkonstanten und Kristallsymmetrien ablesen, außerdem enthält es Informationen über Unregelmäßigkeiten des Gitters, Überstrukturen und Kontaminationen. Es bedarf einer hochreinen Vakuumumgebung, um LEED zu betreiben.





**Abbildung 2.12:** (a) Ewaldkonstruktion und (b) angepasste Konstruktion zur Veranschaulichung von LEED (nach [22]).

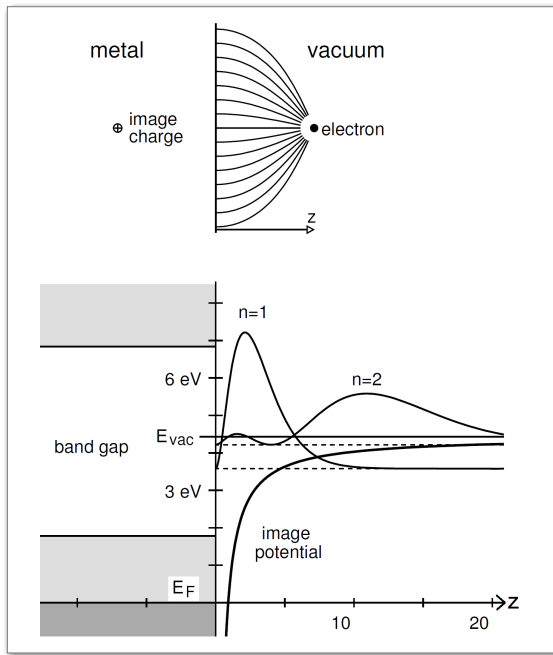
## 2.6 Bildladungszustände

Die in Abbildung 2.6 dargestellte universelle Kurve zeigt die Tiefe, aus der Photoelektronen angeregt werden und an die Oberfläche gelangen können. Neben den entsprechenden Zuständen im Kristallinneren spielt die Kristalloberfläche eine zentrale Rolle für das zu erwartende Photoemissionsspektrum. Es existieren im Bereich der Oberfläche eine ganze Reihe zusätzlicher Zustände, aus denen und in die elektronische Übergänge stattfinden können. Die grundsätzliche Ursache für das Auftreten von Oberflächenzuständen liegt im abrupten Übergang des Potentials, vom periodischen Gitterpotential im Kristall zum Vakuum. Je nach theoretischer Betrachtungsweise können Oberflächenzustände beispielsweise als Shockley- [46] oder Tamm-Zustände [47] klassifiziert werden.

In metallischen Oberflächen wie dem im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Co existieren außerdem sogenannte Bildladungszustände. Aus Abbildung 2.13 lässt sich erklären, dass ein einzelnes Elektron in der Nähe der Kristalloberfläche das gleiche elektrische Feld erzeugt, als existierte an passender Stelle innerhalb des Kristalls eine positive Bildladung. Die entsprechenden Feldlinien treten senkrecht aus der Oberfläche. Die Bildladung im Kristall wird realisiert, indem sich die Elektronen auf der Kristalloberfläche in geeigneter Weise verschieben. Zwischen dem Elektron und der Bildladung entsteht eine attraktive Bildkraft, was in einem Coulomb-Potential der Stärke

$$V(z) = E_{\text{Vac}} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{4z} \quad (2.49)$$

resultiert.



**Abbildung 2.13:** Zur Entstehung und Lage von Bildladungszuständen. Oben: Das Elektron vor der Metalloberfläche erzeugt ein elektrisches Feld, als existierte eine Bildladung im Kristall. Unten: Über das resultierende attraktive Potential entstehen unterhalb der Vakuumenergie zusätzliche (Bildladungs-)zustände (aus [48]).

Elektron und Bildladung befinden sich zueinander im Abstand  $2z$ . Das Elektron kann jedoch entlang bestimmter Richtungen nicht in das Metall eindringen, wenn beispielsweise innerhalb einer partiellen Bandlücke keine unbesetzten Zustände mit  $k$ -Vektoren in dieser Richtung vorhanden sind. Besitzt das Elektron eine niedrigere Energie als  $E_{\text{vac}}$ , ist es daher vor der Metalloberfläche gefangen. Dieses Problem entspricht der Physik des Wasserstoffatoms, jedoch sind die Bindungsenergien aufgrund des im Nenner von Gleichung 2.49 auftretenden Faktors  $2^2$  im Vergleich zum Wasserstoffproblem um den Faktor 16 geringer [48]. Die entsprechenden Eigenwerte lauten näherungsweise

$$E(n) \approx E_{\text{vac}} - 0,85 \text{ eV}/n^2, \quad n = 1, 2, \dots \quad (2.50)$$

Übertragen auf unterschiedliche Metalle ergeben sich im Experiment leicht abweichende, elementspezifische Werte [48]. Wie in Abbildung 2.13 gezeigt, befindet sich die Serie dieser unbesetzten Bildladungszustände unterhalb der Vakuumenergie, die entsprechenden Wellenfunktionen für  $n=1$  und  $2$  sind eingezeichnet (man beachte, dass das Bildladungspotential in  $E(z)$ -, die Wellenfunktion aber in  $\Psi(z)$ -Darstellung gezeigt sind).

Diese Zustände eröffnen einen zusätzlichen Photoemissionskanal für die Anregung über einen 2PPE-Prozess. Über eine Variation der Austrittsarbeit oder der Photonenenergie kann der Bildladungszustand von Oberflächenzuständen unterschieden werden. Weitere Details sind in Kapitel 6.1.3 diskutiert.

## 2.7 Spinpolarisation und Spin-Bahn-Wechselwirkung

Über die Bestimmung von  $E$  und  $\vec{k}$  der durch Photoemission aus dem Festkörper emittierten Elektronen kann dessen Bandstruktur abgebildet werden. Neben diesen beiden Größen ist der Spin des Elektrons, nicht zuletzt in magnetischen Materialien, von großer Bedeutung. Um Zugang zum Spin zu erhalten, liegt der Gedanke eines *Stern-Gerlach*-Experiments für Elektronen nahe. Aufgrund der Ortsunschärfe und der starken Ablenkung der Elektronen durch die Lorentzkraft im Magnetfeld ist das jedoch unmöglich [49]. Ein geeigneter Ansatz zur Spindetektion sind sogenannte Spinfilter, welche die Spin-Bahn-Wechselwirkung ausnutzen und Spinpolarisation messen können.

Quantenmechanisch erfolgt die Definition des Spins durch den Operator

$$\hat{S} = (S_x, S_y, S_z) \quad (2.51)$$

und die Vertauschungsrelationen

$$S_x S_y - S_y S_x = -i\hbar S_z, \quad (\text{und zyklisch}). \quad (2.52)$$

Über die selbstadjungierten und unitären Pauli-Matrizen  $\sigma_i$

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.53)$$

kann der Spin-Operator als

$$\hat{S} = \frac{\hbar}{2} \hat{\sigma} \quad \text{mit} \quad \hat{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z) \quad (2.54)$$

dargestellt werden.

Hat man eine Quantisierungsachse festgelegt, üblicherweise ist dies die  $z$ -Achse, wird die Spinausrichtung mit dem Spinor  $\chi$  beschrieben, einer zweikomponentigen Wellenfunktion. Für den Fall eines entlang der  $z$ -Achse teilweise oder vollständig polarisierten Elektronenstrahls ergibt sich beispielsweise

$$\chi = a_1 |\alpha\rangle + a_2 |\beta\rangle = a_1 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + a_2 \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix}. \quad (2.55)$$

Die Koeffizienten  $a_1$  und  $a_2$  sind komplex,  $|\alpha\rangle$  und  $|\beta\rangle$  sind Eigenfunktionen der Paulimatrix  $\sigma_z$  mit den Eigenwerten  $\pm 1$ .  $|a_1|^2$  und  $|a_2|^2$  bezeichnen die Wahrscheinlichkeiten, entlang der  $z$ -Achse Werte für den Spin von  $\frac{\hbar}{2}$  bzw.  $-\frac{\hbar}{2}$  zu messen.

Schließlich ist die Spinpolarisation der Erwartungswert des Spinoperators

$$\hat{P} = \frac{\langle \chi | \hat{\sigma} | \chi \rangle}{\langle \chi | \chi \rangle}. \quad (2.56)$$

Entlang der  $z$ -Achse ergibt sich für die Spinpolarisation eines Elektronenstrahls

$$\hat{P} = \frac{\langle \chi | \sigma_z | \chi \rangle}{\langle \chi | \chi \rangle} = \frac{|a_1|^2 - |a_2|^2}{|a_1|^2 + |a_2|^2}. \quad (2.57)$$

Eine weit verbreitete Möglichkeit, die Spinpolarisation zu messen, nutzt Asymmetrien in der Streuung des Elektronenstrahls an schweren Kernen aus. Wegen der Spin-Bahn-Wechselwirkung ist die spinabhängige Ablenkung sehr groß. Die Herleitung der Spin-Bahn-Wechselwirkung erfolgt aus der Dirac-Gleichung und sie wird als zusätzlicher Term im Hamilton-Operator

$$H_{SB} = -\frac{e\hbar}{4m^2c^2}\hat{\sigma}[\vec{E} \times \vec{p}] \quad (2.58)$$

dargestellt.  $m$  bezeichnet die Masse des Elektrons,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $e$  die Ladung des Elektrons. In den Klammern steht das Vektorprodukt aus dem Impuls  $\vec{p}$  und dem elektrischen Feld  $\vec{E} = -\frac{1}{e}\frac{dV}{dr}\frac{\vec{r}}{r}$  (unter Annahme eines Zentralpotentials  $V = V(r)$ ). Somit ergibt sich die gebräuchlichere Darstellung

$$H_{SB} = \frac{1}{2m^2c^2r}\frac{dV}{dr}(\hat{S} \cdot \vec{L}), \quad (2.59)$$

woraus sich für ein Coulomb-Potential  $V(r) = -\frac{Ze^2}{r}$  die Beziehung

$$H_{SB} \sim \frac{Z}{r^3}(\hat{S} \cdot \vec{L}) \quad (2.60)$$

ableiten lässt. Die Stärke der Wechselwirkung nimmt mit steigender Kernladungszahl  $Z$ , sowie mit abnehmender Entfernung zum Kern zu. Abbildung 2.14 ist zu entnehmen, dass durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung ein zusätzlicher Beitrag zum effektiven Streupotential generiert wird, wodurch Elektronen mit verschiedenen Spins unterschiedlich vom Kern abgelenkt werden.

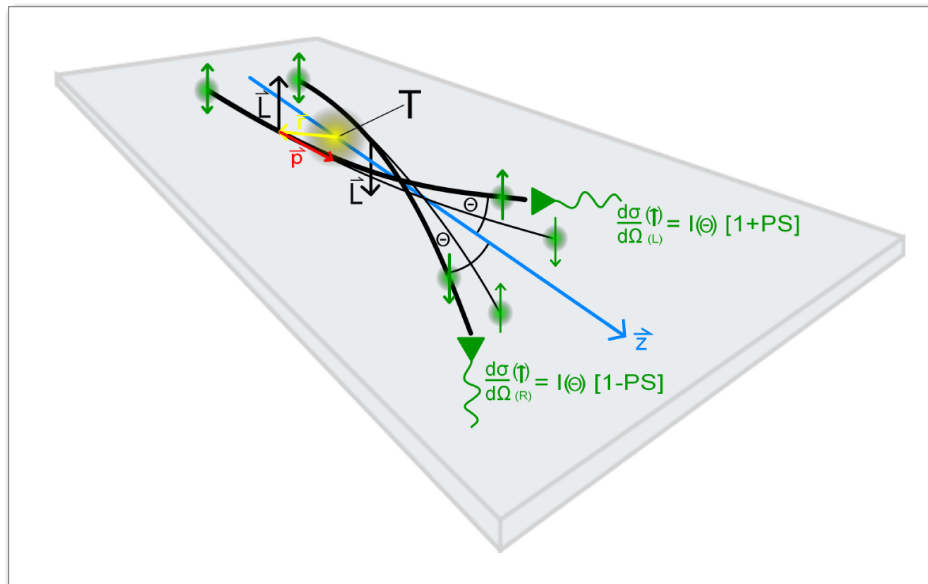
Passiert ein Elektron den Kern, wird es abgelenkt und der entsprechende Drehimpuls wechselwirkt mit dem Elektronenspin. Liegen Spin und Drehimpuls parallel, so wirkt auf das Elektron eine zusätzliche attraktive Kraft, liegen sie antiparallel, so wird das Elektron etwas stärker abgestoßen.

Quantitativ wird der Wirkungsquerschnitt der Streuung folgendermaßen angegeben [49]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = I(\Theta)[1 + S(\Theta)\vec{P} \cdot \hat{n}], \quad (2.61)$$

$\Theta$  bezeichnet den Streuwinkel,  $I$  die Intensität,  $\vec{P}$  die Polarisation,  $S(\Theta)$  die Sherman- oder Asymmetriefunktion und  $\hat{n}$  den Einheitsvektor senkrecht zur Streuebene. Die in Abb. 2.14 gezeigte Darstellung entspricht einem Streuexperiment, in dem ein Elektronenstrahl auf ein Target trifft und die Polarisation des einfallenden Strahls mittels der Asymmetrie in der Streuintensität des auslaufenden Strahls bestimmt wird.

In entsprechenden Ein-Kanal-Messungen der Asymmetrie  $A$  wird in der Regel eine Anordnung aus zwei Detektoren an komplementären Winkeln  $\Theta$  und  $-\Theta$  verwendet.



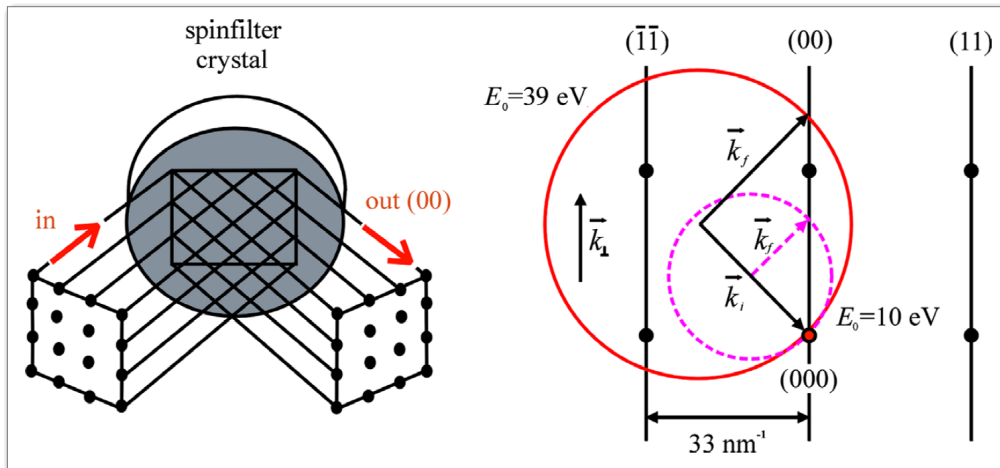
**Abbildung 2.14:** Zur Veranschaulichung der Spin-Bahn-Wechselwirkung im Streuexperiment (hier in Vorwärtsstreuung). Elektronen, die ein Atom  $T$  passieren, besitzen einen Drehimpuls  $\vec{L}$ , der mit dem Spin wechselwirkt und die resultierende Trajektorie dadurch spinabhängig modifiziert. Die Wirkungsquerschnitte  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  der Streuung eines Elektrons mit Spin  $\uparrow$  sind für beide Detektorpositionen (links und rechts) angegeben (aus [25]).

## 2.8 Ir(001) Spinfilter

Im hier verwendeten Aufbau eines Spinfilters lässt man den spinpolarisierten Elektronenstrahl schräg auf einen Streukristall einfallen und misst die Intensität des elastisch gestreuten Strahls. Die Erfassung von mehreren parallelen Strahlen wird dadurch möglich, wie Abbildung 2.15 zeigt.

Als Spinfilter-Kristalle eignen sich schwere Elementekristalle, hauptsächlich fand bisher Wolfram W(001) seine Verwendung [50]. In der vorliegenden Arbeit wurde jedoch ein in der Anwendung noch relativ neuer Iridium Ir(001)-Einkristall eingesetzt [20]. Nach Präparation besitzt dieser eine über längere Zeiträume stabile Shermanfunktion und hat dadurch Vorteile im praktischen Einsatz. Die Spinpolarisation des reflektierten Strahls entsteht durch spinabhängige Mehrfachstreuungsprozesse am Kristallgitter. Die Shermanfunktion hängt von der Energie und dem Einfallswinkel der Elektronen auf den Kristall ab. Die resultierende Spinasymmetriekurve für Ir(001) ist in Abbildung 2.16 dargestellt.

Jeder Spinfilterkristall hat wegen seiner Elementzusammensetzung und Kristallstruktur eine einzigartige Spinasymmetriekurve. Oberflächeneffekte, wie Überstrukturen, Rekonstruktionen oder Verunreinigung beeinflussen die energie- und winkelabhängige Shermanfunktion. Der Einbauwinkel in den Strahlengang des k-Mikroskops wird für dieses Element fest auf  $45^\circ$  eingestellt, weil für diesen Wert die Streueffizienz hoch ist und dadurch außerdem die praktische Umsetzung ei-



**Abbildung 2.15:** Links: Schematischer Strahlengang des Ir(001) Spinfilters. Der einfallende Elektronenstrahl wird am Kristall spinabhängig gestreut. Der (0,0)-LEED-Reflex weist eine hohe Güte auf (siehe Gleichung 2.64). Der Streuwinkel beträgt  $45^\circ$ . Rechts: Ewaldkonstruktion für Streuenergien von 10 eV und 39 eV (aus [20]).

nes Mikroskops vereinfacht wird. Die bei  $45^\circ$  gemessenen Asymmetrien zeigen im Bereich von Streuenergien um 39 eV hohe Werte in einem mehrere eV breiten Bereich. Somit kann die Probe über die komplette messbare Energietiefe von bis zu 3 eV effektiv auf Spinpolarisation untersucht werden.

Zur Asymmetriebestimmung in Mehrkanal-Experimenten, beziehungsweise der hier durchgeführten k-Mikroskopie wird nur ein einziger Detektor eingesetzt, und zwei Messungen bei unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen der Probe  $M\uparrow$  und  $M\downarrow$  durchgeführt. Die Spinasymmetrie  $A$  errechnet sich über

$$A_{spin} = \frac{I_{M\uparrow} - I_{M\downarrow}}{I_{M\uparrow} + I_{M\downarrow}}, \quad (2.62)$$

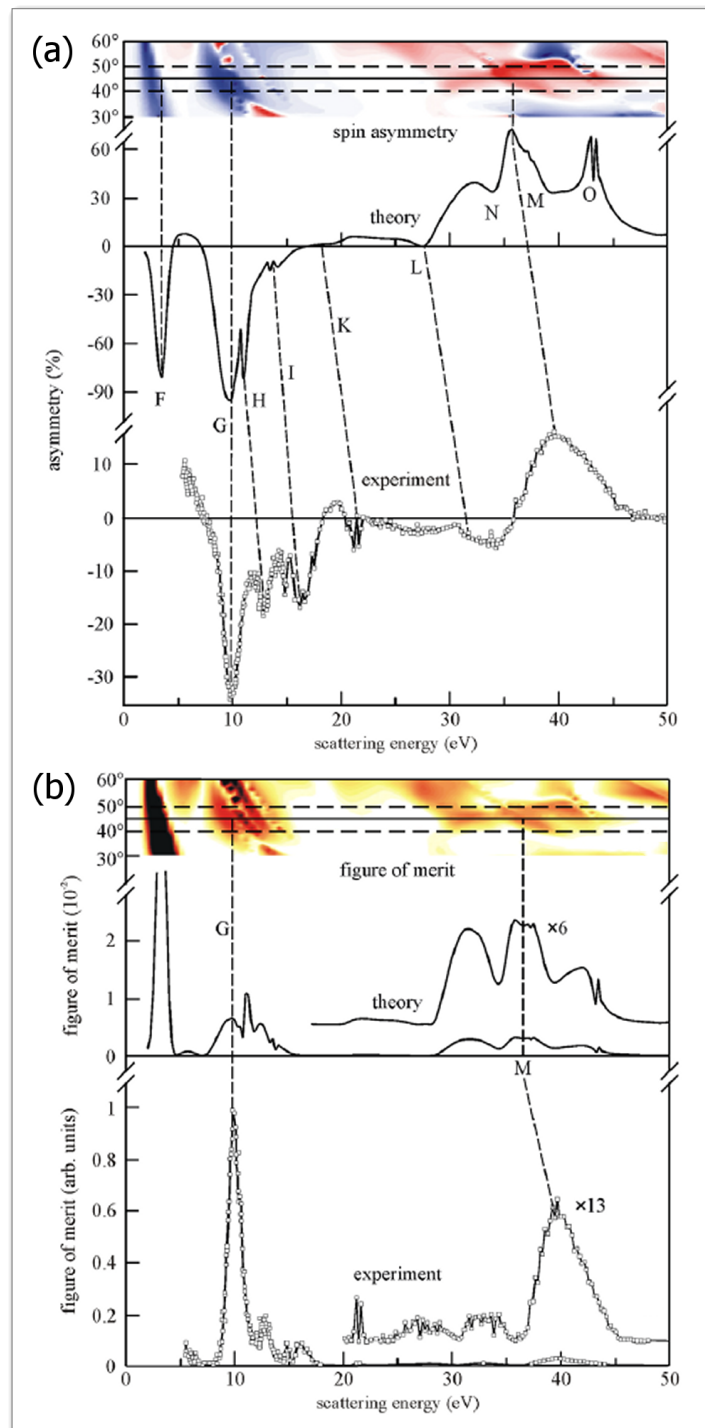
mit den am Detektor jeweils gemessenen Intensitäten  $I_{M\uparrow}$  und  $I_{M\downarrow}$ . Die Shermanfunktion enthält die spinabhängigen Streuamplituden [49] und hängt vom Streuwinkel, dem Material und der Energie ab.

Die Spinpolarisation errechnet sich damit zu

$$P = \frac{A_{spin}}{S(\Theta)}. \quad (2.63)$$

Es ist ebenfalls möglich, die Asymmetrie  $A_{spin}$  für nichtmagnetische Proben zu bestimmen. Dazu werden zwei Messungen der Intensität bei unterschiedlichen Streuenergien durchgeführt und verglichen. Hierbei wird die Energieabhängigkeit der Shermanfunktion ausgenutzt.

Für einen guten Spinfilter ist neben einer hohen Spinsensitivität ebenfalls entscheidend, ob der reflektierte Strahl hinreichend hohe Intensität besitzt. Daher wird hier der (0,0)-LEED-Reflex des am Einkristall gebeugten Strahls ausgenutzt.



**Abbildung 2.16:** Experimentell und theoretisch ermittelte Werte für (a) Spinasymmetrie und (b) Gütefunktion (figure of merit). Um etwa 39 eV Streuenergie existiert ein mehrere eV breites Band mit hoher Asymmetrie (aus [20]).

Die Gütefunktion (figure of merit, FoM) eines Spinfilters wird aus seiner Shermanfunktion  $S$  und dem Verhältnis der gestreuten Intensität  $I$  und der einfallenden Intensität  $I_0$  errechnet:

$$FoM = S^2 \frac{I}{I_0}. \quad (2.64)$$

## 2.9 Magnetischer Zirkulardichroismus (MCD) in Schwellenphotoemission

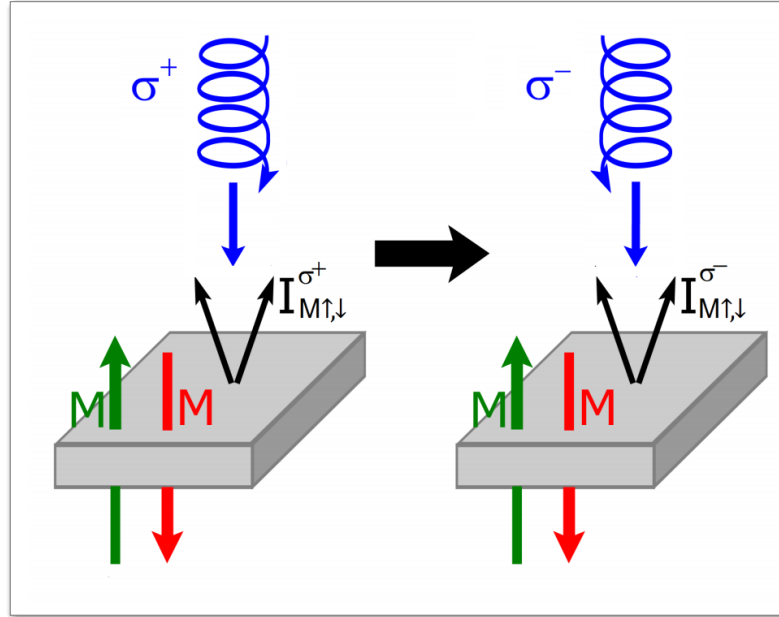
Als „Dichroismus“ wird die selektive Absorption von einer der zwei orthogonalen Polarisationsrichtungen eines einfallenden Photonenstrahls beschrieben [51]. Magnetische Dichroismen sind eine geeignete Methode um in Photoemissionsexperimenten Zugang zu den magnetischen Eigenschaften von Festkörpern zu erhalten. Der Einsatz eines Femtosekundenlasers ( $h\nu=1,55$  eV beziehungsweise  $h\nu=3,1$  eV) prädestiniert hierfür die Ausnutzung des magnetischen Zirkulardichroismus in Schwellenphotoemission (*threshold photoemission magnetic circular dichroism*, TPMCD). Dieses Phänomen tritt für magnetische Materialien in Valenzbandphotoemission auf. Der TPMCD-Effekt äußert sich darin, dass bei geeigneter Magnetisierung des Materials, die Stärke der Photoabsorption von der Helizität  $\sigma$  des einfallenden Lichts abhängt (Abbildung 2.17). Verwendet man links-zirkular polarisiertes Licht  $\sigma^+$  zur Erzeugung der Photoemission und misst den Absorptionskoeffizienten  $\mu^+$  des Materials, und vergleicht ihn mit dem für rechts-zirkular polarisiertes Licht  $\sigma^-$  ermittelten Wert  $\mu^-$ , so registriert man die makroskopische Differenz

$$\Delta\mu = \mu^+ - \mu^-, \quad (2.65)$$

wobei die Koeffizienten von der Photonenenergie abhängen. Die Ursache des Effekts liegt in einem gleichzeitigen Vorhandensein der Spin-Bahn-Wechselwirkung und der in magnetischen Materialien auftretenden Austausch-Wechselwirkung. Erstere bewirkt eine Aufhebung der Entartung gewisser elektronischer Bänder, was dazu führt, dass bei definierter Zirkularpolarisation, respektive definiertem Spin der einfallenden Photonen, und festgelegter Photonenenergie bestimmte elektronische Übergänge bevorzugt stattfinden. Folglich ist der Photoemissionsstrom spinpolarisiert. In magnetischen Materialien findet durch die Austauschwechselwirkung eine spinabhängige Aufspaltung der Energiebänder statt (siehe Abbildung 2.1). Daher ist zusätzlich die Dichte möglicher Anfangszustände für Photoemissionsübergänge spinabhängig, was letztlich auch die Intensitäten des gemessenen, spinpolarisierten Photostroms spinabhängig modifiziert. Diese Arbeit beschränkt sich auf schwelennahe Photoemission, weshalb im folgenden die Begriffe „MCD“ und „TPMCD“ austauschbar sind.

Der MCD-Effekt bietet daher für magnetische Materialien die Möglichkeit, Zugang zur Magnetisierung und somit zum Spin zu erhalten, ohne auf Spinfilter-Techniken zurückgreifen zu müssen. In Analogie zur Spinpolarisation wird die MCD-Asymmetrie  $A_{\text{MCD}}$  angegeben als





**Abbildung 2.17:** Zur Veranschaulichung des magnetischen Zirkulardichroismus in der Schwellenphotoemission: Die gemessene Intensität der Photoemission  $I_{M\uparrow,\downarrow}^{\sigma^\pm}$  hängt von der relativen Orientierung der Magnetisierung  $M$  im Material und der Helizität  $\sigma$  des eingestrahlten Lichts ab.

$$A_{\text{MCD}} = \frac{I^{\sigma^+} - I^{\sigma^-}}{I^{\sigma^+} + I^{\sigma^-}}, \quad (2.66)$$

unter der Voraussetzung, dass die Magnetisierung der Probe zwischen den Messungen nicht verändert wurde. Wie aus Abbildung 2.17 ersichtlich, kann alternativ die Lichthelizität konstant gehalten und stattdessen die Magnetisierungsrichtung gedreht werden:

$$A_{\text{MCD}} = \frac{I^{M\uparrow} - I^{M\downarrow}}{I^{M\uparrow} + I^{M\downarrow}}. \quad (2.67)$$

Um die MCD-Asymmetrie zu berechnen, starten wir mit Gleichung 2.66. Die Intensität der Photoelektronen  $I^{\sigma^\pm}$  sei hierbei proportional zur Intensität des vom Material absorbierten Lichts, das heißt unter Verwendung des Lambert-Beerschen Gesetzes  $I = I_0 \cdot \exp(-\mu d)$  [52]

$$I^{\sigma^\pm}(d) \propto I_{\text{abs}}^{\sigma^\pm} = I_0(1 - \exp(-\mu^\pm d)). \quad (2.68)$$

Neben der eingestrahlten Intensität  $I_0$  bezeichnet  $d$  die Eindringtiefe des Lichts und  $\mu^\pm$  sind die Absorptionskoeffizienten für Licht der unterschiedlichen Helizitäten.

Setzt man 2.68 in 2.66 ein, ergibt sich für die MCD-Asymmetrie

$$\begin{aligned}
 A_{\text{MCD}} &= \frac{(1 - e^{(-\mu^+d)}) - (1 - e^{(-\mu^-d)})}{(1 - e^{(\mu^+d)}) + (1 - e^{(-\mu^-d)})} = \frac{e^{(-\mu^-d)} - e^{(-\mu^+d)}}{2 - e^{(-\mu^+d)} - e^{(-\mu^-d)}} \\
 &\approx \frac{1 - \mu^-d - 1 + \mu^+d}{2 - (1 - \mu^+d) - (1 - \mu^-d)} = \frac{\mu^+ - \mu^-}{\mu^+ + \mu^-}, \tag{2.69}
 \end{aligned}$$

wobei die Exponentialfunktion mit Hilfe der Taylor-Reihe entwickelt wurde. Aufgrund dieser Näherung verschwindet die Abhängigkeit von  $d$  in Gleichung 2.68, welche in den korrekten Simulationen aber berücksichtigt werden muss. Gleichung 2.69 bestätigt den Zusammenhang zwischen der MCD-Asymmetrie  $A_{\text{MCD}}$  und den unterschiedlichen Absorptionskoeffizienten  $\mu^\pm$ .

## 2.10 Winkelabhängiger, nichtmagnetischer Zirkulardichroismus

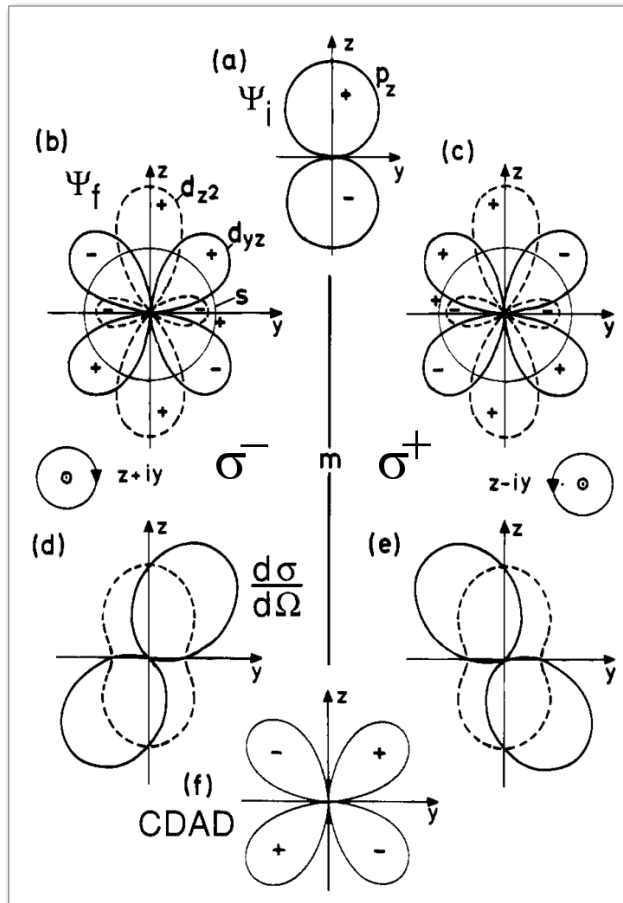
Neben dem magnetischen Zirkulardichroismus spielt für diese Arbeit der „Zirkulardichroismus in der Winkelverteilung“ (*circular dichroism in angular distribution*, CDAD) eine Rolle. Dieser Effekt entsteht bei schrägem Einfall des Laserlichts auf die Probenoberfläche. Für die Erklärung des CDAD, welcher schon in reinen elektronischen Dipolübergängen auftritt, ist die Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung nicht erforderlich.

Die in [51] beschriebene Theorie wird nachfolgend für den Fall der Anregung eines  $p_z$ -Orbitals ausgeführt (Abbildung 2.18), sie eignet sich ebenfalls zum Verständnis des Effekts im Festkörper.

Ausgehend von den elektrischen Dipoloperatoren  $z + iy$  für rechts-zirkular polarisiertes ( $\sigma^-$ ) und  $z - iy$  für links-zirkular polarisiertes Licht ( $\sigma^+$ ) (bei Einfall in  $x$ -Richtung), werden die Übergangsmatrixelemente zwischen Anfangs- und Endzuständen betrachtet. Für die meisten Kombinationen aus Anfangs- und Endorbital ergibt sich ein Unterschied für die Übergangsmatrixelemente bei Bestrahlung mit  $\sigma^-$  und  $\sigma^+$ -Licht. Beim Übergang vom  $p_z$  Orbital in das  $d_{yz}$ -Orbital geht der Wechsel von  $\sigma^-$  zu  $\sigma^+$  mit einem Vorzeichenwechsel in der d-Partialwelle  $d_{yz}$  einher. Der entsprechende relative Phasenunterschied um den Faktor  $\pi$  dieser interferierenden Partialwellen des Endzustands bei Umkehr der Lichthelizität erzeugt den beobachtbaren CDAD-Effekt. Da der Lichteinfall im verwendeten k-Mikroskop schräg ist, ist der CDAD-Effekt in den Messergebnissen präsent und muss bei Bestimmung des MCD herausgerechnet werden. Die Eliminierung des CDAD Beitrags im gesamten zirkularen Dichroismus erfolgt über die Anpassung der Asymmetriefformel zu:

$$A_{\text{MCD(ohne CDAD)}} = \frac{\sqrt{I_{M\uparrow}^{\sigma^+} I_{M\downarrow}^{\sigma^-}} - \sqrt{I_{M\downarrow}^{\sigma^+} I_{M\uparrow}^{\sigma^-}}}{\sqrt{I_{M\uparrow}^{\sigma^+} I_{M\downarrow}^{\sigma^-}} + \sqrt{I_{M\downarrow}^{\sigma^+} I_{M\uparrow}^{\sigma^-}}}. \tag{2.70}$$

Es müssen dementsprechend vier Messungen durchgeführt werden, jeweils zwei bei unterschiedlicher Lichthelizität und zwei bei unterschiedlicher Magnetisierungsrichtung. Gleichung 2.70 verknüpft somit die Gleichungen 2.66 und 2.67.



**Abbildung 2.18:** Zur Veranschaulichung des winkelabhängigen, nichtmagnetischen Zirkulardichroismus (CDAD). Der Lichteinfall erfolgt hier in  $x$ -Richtung, die relativen Phasen der Orbitale sind mit „+“ und „-“ gekennzeichnet. Beim Wechsel von  $\sigma^-$  (b) zu  $\sigma^+$ -Licht (c) ergibt sich ein Wechsel der relativen Phasen, dies entspricht einer Spiegelung an der mit  $m$  gekennzeichneten Ebene. Es ergeben sich unterschiedliche, winkelabhängige Wirkungsquerschnitte (d,e). Deren Differenz wird als CDAD messbar (f) (aus [51]).



# 3 Experimenteller Aufbau

## 3.1 Probenherstellung

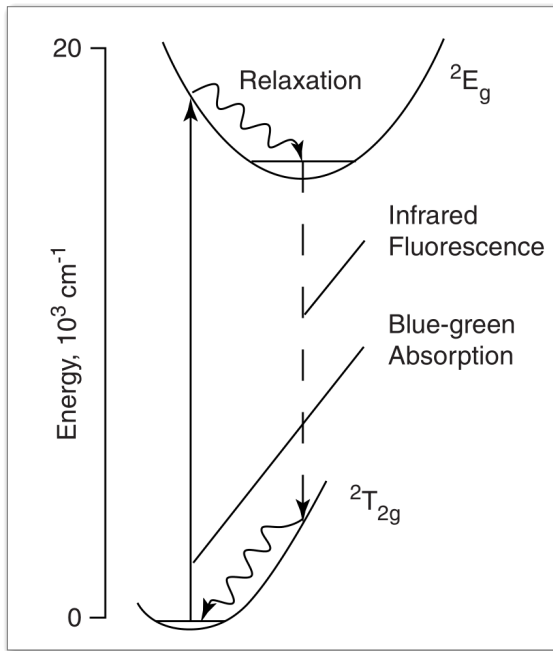
### 3.1.1 Pt(111)-Einkristalle

Als Substrat für die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Proben wurde ein Pt(111)-Einkristall verwendet. Unmittelbar nach dessen Wachstum und Politur ist die Oberfläche auf der  $\mu\text{m}$ -Skala sehr rau, außerdem sind die obersten Atom-schichten durch die Politur nicht mehr einkristallin. Ferner sind Verunreinigungen in Form von Fremdatomen im Kristall vorhanden, die in einer aufwändigen Prozedur entfernt werden müssen: Zuerst werden die amorphisierten Schichten abgetragen. Hierzu wird eine Sputter-Gun verwendet, welche Argon-Atome ionisiert, auf hohe Geschwindigkeit beschleunigt und auf die Kristalloberfläche lenkt. Hierbei werden Atome von der Oberfläche abgetragen. Durch diesen Prozess wird die Oberfläche aufgeraut. Im folgenden Schritt wird der Einkristall *getempert*, also durch Elektronenstoß soweit erhitzt, bis einzelne Atome an der Oberfläche genug thermische Energie besitzen, um sich neu anzuordnen. Die Segregation erfolgt in Anpassung an das Kristallgitter, wodurch der Pt-Kristall zunehmend in den einkristallinen Zustand zurückkehrt und ausheilt.

Durch das Tempern wandern aber auch die Fremdatome und Verunreinigungen an die Oberfläche. Um diese Atome, hauptsächlich Kohlenstoff, wieder zu entfernen, wird der Temper-Prozess innerhalb einer Sauerstoffumgebung durchgeführt, damit Kohlenstoff zu CO oxidiert wird, welches bei der erhöhten Temperatur desorbiert. Verbleibende Verunreinigungen müssen durch erneutes Sputtern wieder entfernt werden. Da all diese Effekte nicht unabhängig voneinander auftreten, muss die Prozessierung des Sputterns und Annealens in sehr vielen Zyklen erfolgen, solange bis der Kristall ausreichend „verarmt“ wurde, d.h. in oberflächennahen Regionen nur noch wenige Fremdatome vorhanden sind. Um diesen Zustand zu erreichen, ist es wichtig, ein relativ enges Fenster für die optimale Ausheil-Temperatur einzuhalten. Da im Ultrahochvakuum die Kristalloberfläche nur kurzzeitig atomar sauber ist, muss vor dem Aufbringen eines Co-Films die Oberfläche vorbereitet werden. Hierzu werden dieselben Techniken wie bei der Kristallverarmung angewandt. Um eine saubere Pt(111)-Oberfläche zu erhalten, wird der Kristall 30 Minuten lang in einer Sauerstoffumgebung ( $1 \times 10^{-5}$  mbar) auf 1000 K erhitzt. Dadurch wird Kohlenstoff zu CO umgewandelt. Nun vorhandener Sauerstoff wird durch sehr kurzes Erhitzen auf 1300 K entfernt. Diese Werte lehnen sich an [53] an.

### 3.1.2 Cobalt-Deposition

Um dünne Co-Schichten herzustellen, wird ein Molekularstrahlverdampfer verwendet. Das Rohmaterial befindet sich in Stabform innerhalb des Verdampfers



**Abbildung 3.1:** *Absorptions- und Emissionsspektren des Ti:Saphirs (aus [54]).*

und wird gegen ein stromdurchflossenes Filament auf Spannung von etwa 1000 V gelegt, wodurch aus dem glühenden Filament austretende Elektronen in Richtung des Stabs beschleunigt werden und dort durch Elektronenstoß Hitze erzeugen. Dadurch treten einzelne Co-Atome aus dem Stab aus und verlassen den Verdampfer in Richtung der Probenoberfläche. Der an der Austrittsöffnung des Verdampfers gemessene Fluss ist ein Maß für die Verdampfungsrate. Um die Aufdampftrate an der Probe zu bestimmen, wird an deren Position ein Quarz-Kristall installiert, der mit einer charakteristischen Frequenz von 6 MHz schwingt. Je höher die Aufdampftrate, desto mehr Atome adsorbieren pro Zeit auf dem Quarz, wodurch sich die schwingende Masse und somit die Resonanzfrequenz verringert. Diese Änderung wird durch ein Schichtdickenmessgerät (Firma Inficon) direkt gemessen.

## 3.2 Messapparaturen und Aufbau

### 3.2.1 Titan:Saphir Laser

Um lasergetriebene Schwellenphotoemission zu betreiben, wird hier ein diodengepumpter, moden-gelockter *Titan:Saphir*-Laser (Firma SpectraPhysics, Typ „Mai-Tai“) verwendet.

Für die Funktionsweise eines Lasers sind zwei Dinge essentiell: Besetzungsinversion und eine positive Verstärkung der durch spontane Emission erzeugten Strahlung durch stimulierte Emission. Im Ti:Saphir-Laser besteht das optisch aktive Medium aus einem Saphir-Kristall ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), in dessen Kristallgitter  $\text{Ti}^{3+}$ -Ionen zu einem kleinen Anteil  $\text{Al}^{3+}$ -Ionen substituieren. Der Grundzustand der  $\text{Ti}^{3+}$ -Ionen ist in zwei vibrationsverbreiterte Zustände  ${}^2T_{2g}$  und  ${}^2E_g$  aufgespalten (Abbildung 3.1).

In der Praxis werden Elektronen aus dem energetisch niedrigeren Zustand  ${}^2T_{2g}$

in den höheren Zustand  ${}^2E_g$  angehoben, indem sie mit grünem Laserlicht „gepumpt“ werden. Hierzu wird ein Nd:YAG-Laser mit 5 W Pumpleistung verwendet, auf dessen Funktionsweise nicht weiter eingegangen werden soll. Nach Anregung in den Zustand  ${}^2E_g$  relaxieren die Elektronen soweit, bis sie über einen Infrarot-Fluoreszenzprozess wieder in den Grundzustand fallen. Hierbei emittieren sie Photonen niedrigerer Energie, mit einem Emissionsmaximum bei etwa 800 nm. Durch die Entvölkerung des Grundzustands  ${}^2T_{2g}$  und die hohe Lebensdauer im angeregten Zustand  ${}^2E_g$  entsteht die benötigte Besetzungsinversion. Der zweite maßgebliche Grundbestandteil des Lasers ist der optische Resonator, der vereinfacht aus zwei Spiegeln besteht, welche das Licht immer wieder in das optische Medium zurück reflektieren. Einer der beiden Spiegel besitzt einen geringen Anteil an Transmission, was ermöglicht, Licht auszukoppeln, um es als Laserstrahlung nutzbar zu machen. Über die Länge des Resonators kann festgelegt werden, welche longitudinale Mode begünstigt wird. Über ein eingebautes Prisma und einen kleinen Spalt wird bestimmt, welche Wellenlänge verstärkt werden soll. Ein akusto-optischer Modulator (AOM) innerhalb des Resonators ermöglicht das Mode-Locking und somit den gepulsten Betrieb des Lasers. Der AOM besteht aus einem für den Laserstrahl durchsichtigen Kristall sowie einem Piezoelement, das durch Aussendung von Schallwellen Dichteschwankungen und dadurch ein optisches Gitter in diesem Kristall erzeugt. Die resultierende periodische Modulation des Brechungsindex lässt sich gezielt zur Ablenkung des Laserstrahls nutzen. Tabelle 3.2 zeigt die Leistungsdaten, die sich für den verwendeten Laser ergeben. Neben den charakteristischen 100 fs Pulsdauer bei 80 MHz Wiederholrate besitzt er eine Durchstimmbarkeit von 750 nm bis 850 nm und eine Ausgangsleistung von etwa 1 W.

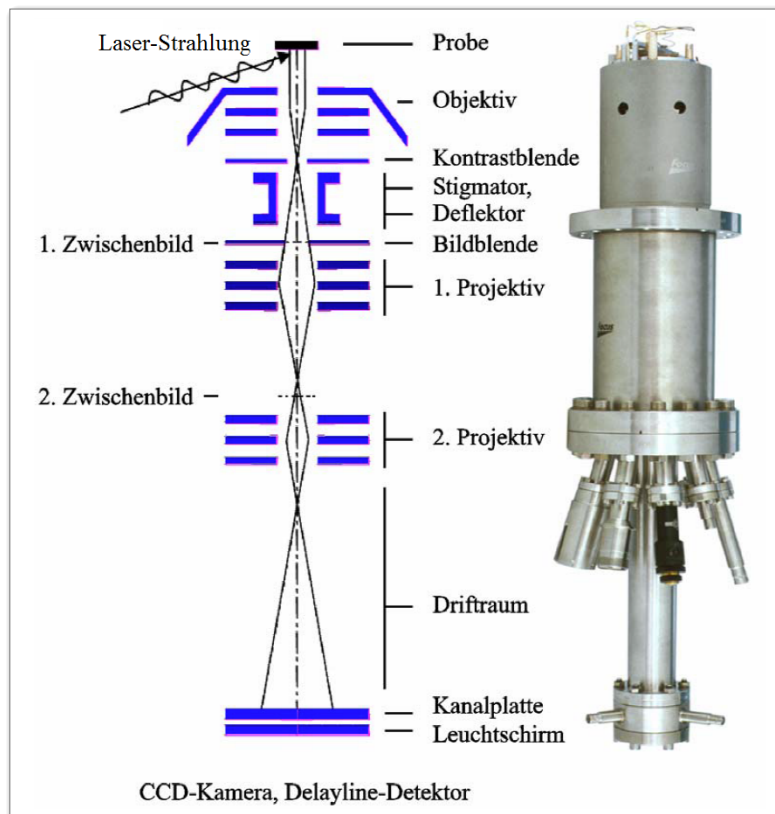
Output Characteristics	800 nm
Average Power	> 700 mW
Peak Power	> 88 kW
Pulse Width	< 100 fs
Tuning Range	750–850 nm
Repetition Rate	80 MHz
Noise	< 0.2%
Stability	< 2%
Spatial Mode	TEM <sub>00</sub>
Beam Diameter at 1/e <sup>2</sup> points	< 2 mm
Beam Divergence, full angle	< 1 mrad
Polarization	> 500:1 horizontal

**Abbildung 3.2:** Auflistung der Leistungsdaten des verwendeten Ti:Saphir-Lasers (aus [54]).

Über einen optionalen Frequenzverdoppler, welcher auf einem Beta-Barium-Borat-Kristall (BBO) basiert, ist es möglich, die Wellenlänge des Laserlichts zu verdoppeln. Hierbei ergibt sich eine Verdopplung der Photonenenergie von 1,55 eV auf 3,1 eV. Limitiert durch die Effizienz des Verdopplerkristalls, ergibt sich eine maximal zu erreichende Leistung des frequenzverdoppelten Laserlichts von et-

wa 100 mW. Für Schwellenphotoemission ist dieser Tausch von Vorteil, da zwar die absolute Leistung geringer ist, aber unter Umständen statt Zwei-Photonen-Photoemission auch Ein-Photon-Photoemission ermöglicht wird. Letztere ist weit aus wahrscheinlicher, was in einem um mehrere Größenordnungen stärkeren Photoemissionssignal resultiert.

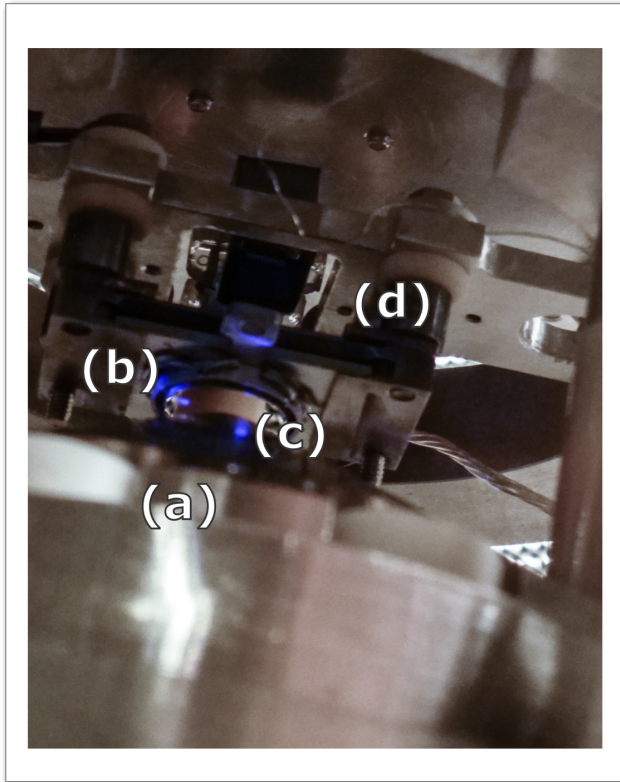
### 3.2.2 Photoemissions-Elektronenmikroskopie (PEEM)



**Abbildung 3.3:** Grundkonfiguration des verwendeten elektrostatischen Photoemissions-Elektronenmikroskops (aus [55]).

Es wurde ein kommerzielles *Photoemissions-Elektronenmikroskop* (PEEM), (FOCUS GmbH) verwendet, dessen verschiedene Anwendungsmöglichkeiten in [56] beschrieben werden. Der schematische Aufbau ist in Grafik 3.3 dargestellt. Das PEEM bildet die Emissionsverteilung von Elektronen ab, die durch eine Photonenquelle aus einer Probe ausgelöst wurden. Die elektrostatische Objektivlinse liegt sehr nahe an der Probe und ihr Extraktor zieht ausgetretene Elektronen ab und beschleunigt sie. Durch weitere elektrostatische Linsen innerhalb der PEEM-Säule werden die Elektronen auf einen Detektor fokussiert. In Messungen dieser Arbeit besteht dieser aus einem Elektronenvervielfacher (*channel plate*) und einem dahinter liegenden Leuchtschirm. Das Bild wird durch eine CCD-Kamera registriert und digitalisiert. Der Bildkontrast und die Auflösung





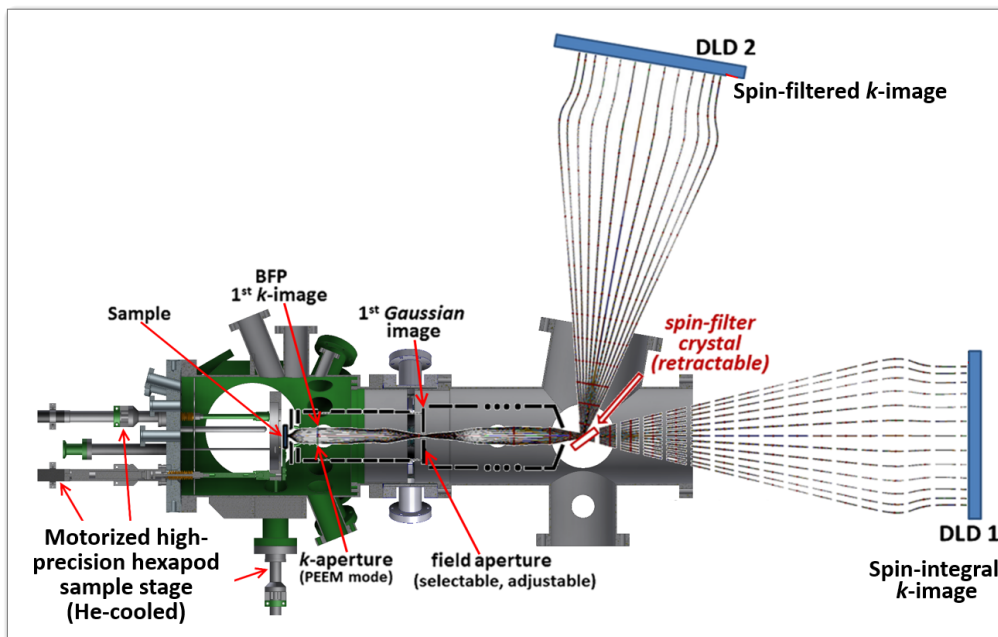
**Abbildung 3.4:** Blick auf den Probenhalter vor der PEEM-Optik. Die Probe (b) ist über Piezomotoren (d) in  $x$ - und  $y$ -Richtung verfahrbar. Da der Extraktor (a) des PEEM sehr nah vor der Probe liegt, trifft der Laserstrahl (c) unter einem flachen Winkel von  $68^\circ$  (in Bezug auf die Oberflächennormale) auf die Probe.

werden durch den Einsatz einer variablen Kontrastblende eingestellt. Des Weiteren besitzt das Mikroskop einen Oktupol-Stigmator/Deflektor, um Bildfehler zu korrigieren. Die Probenposition kann sehr genau über Piezomotoren eingestellt werden. Das PEEM ist magnetisch abgeschirmt und wurde in dieser Arbeit bei einem Druck von etwa  $1 \cdot 10^{-10}$  mbar eingesetzt. Abbildung 3.4 zeigt die Probe vor dem PEEM-Extraktor.

### 3.2.3 Flugzeit-Impulsmikroskopie in Photoemission (k-Mikroskopie)

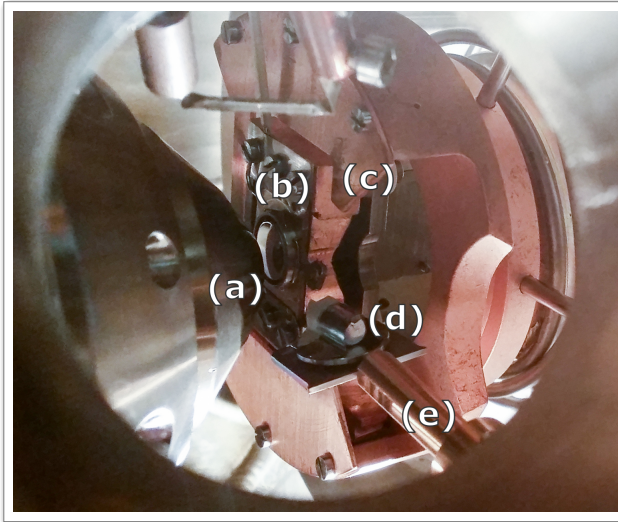
Im Gegensatz zu einem gewöhnlichen Photoemissions-Elektronenmikroskop, welches den Ortsraum abbildet, ist ein Impulsmikroskop daraufhin optimiert, den Impulsraum abzubilden. Das Mikroskop wurde an der Universität Mainz in Kooperation mit dem Max Planck-Institut in Halle entwickelt [42,57–59]. Es ermöglicht winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie mit maximaler Parallelisierung in der Datenerfassung. Um die Funktionsweise zu verstehen, müssen die Grundlagen der Mikroskopie betrachtet werden: In einem System zur optischen Abbildung stellt das *reziproke Bild* die Verteilung der transversalen Impulskomponenten  $k_{\parallel}$  dar, es wird mathematisch oft als *Fourier-Bild* bezeichnet. In der Elektronenoptik dient die Kathode als Teil der Linse [60,61], in deren hinterer Brennebene, aufgrund der Erhaltungsregel für  $k_{\parallel}$  bei Photoemission, die Oberflächenprojektion der Bandstruktur der Probe abgebildet wird. Die Leistung bei der Entwicklung des k-Mikroskops besteht in der Optimierung der  $k$ -Auflösung. Das Gerät ist in der Lage, den kompletten Halbraum über der Probe und bei entsprechender Photonenenergie die komplette Brillouin-Zone einer Probe darzustellen. Über

einen abbildenden Flugzeit-Analysator ist es möglich, mehrere 100 Zeitintervalle getrennt zu detektieren und somit direkt auch ihre kinetische Energie zu bestimmen. Hierzu werden die Photoelektronen über eine Driftstrecke geschickt, wobei diese umso schneller durchlaufen wird, je höher die Energie der Elektronen ist. Jedes Elektron benötigt zum Durchlaufen der Driftstrecke eine bestimmte Flugzeit (*Time of Flight*) (ToF). Am Ende der Driftstrecke ist ein Delayline-Detektor eingebaut, welcher im Gegensatz zu einer CCD-Kamera in der Lage ist, jedes Zählereignis, und somit jedes Eintreffen eines Elektrons, zeitlich und räumlich zu registrieren. Durch die Kombination aus k-Mikroskop und Flugzeit-Analysator wird für jedes Photoelektron das komplette Voxel  $I(E, k_x, k_y)$  bestimmt, was eine parallele Erfassung der 3D-Bandstruktur ermöglicht. Abbildung 3.5 zeigt schematisch den Aufbau des elektronischen Linsensystems des k-Mikroskops.



**Abbildung 3.5:** Querschnitt durch das k-Mikroskop. Über die Feldblende wird der Probenbereich selektiert, über die Kontrastblende werden Kontrast und Auflösung im PEEM-Modus optimiert. Zusätzlich kann hinter dem elektronenoptischen Linsensystem ein Spinfilter-Kristall (siehe Abschnitt 2.8) in den Strahlengang geschoben werden. Die Bilderfassung erfolgt mittels zweier Delayline-Detektoren im spin-integralen und spin-gefilterten Zweig (aus [62]).

Die kinetische Energie der Elektronen ist näherungsweise durch die Beziehung  $E_{kin} \propto \text{ToF}^{-2}$  bestimmt. Der Energiebereich, der gleichzeitig erfasst werden kann, ist etwa in der vorliegenden Arbeit bis zu 3 eV breit, er wird durch die chromatische Aberration des Mikroskops begrenzt. Unter Annahme einer Zeitauflösung des Delayline-Detektors von 150 ps und einer Driftstrecke von 900 mm Länge ergibt sich die Energiedispersion zu  $\Delta E/\text{meV} = 0,255(E_{\text{drift}}/\text{eV})^{3/2}$  [63] in Abhängigkeit von der Driftenergie  $E_{\text{drift}}$ . Die aktive Fläche des Delayline-Detektors besitzt einen Durchmesser von 40 mm und eine räumliche Auflösung von 80  $\mu\text{m}$ , wodurch



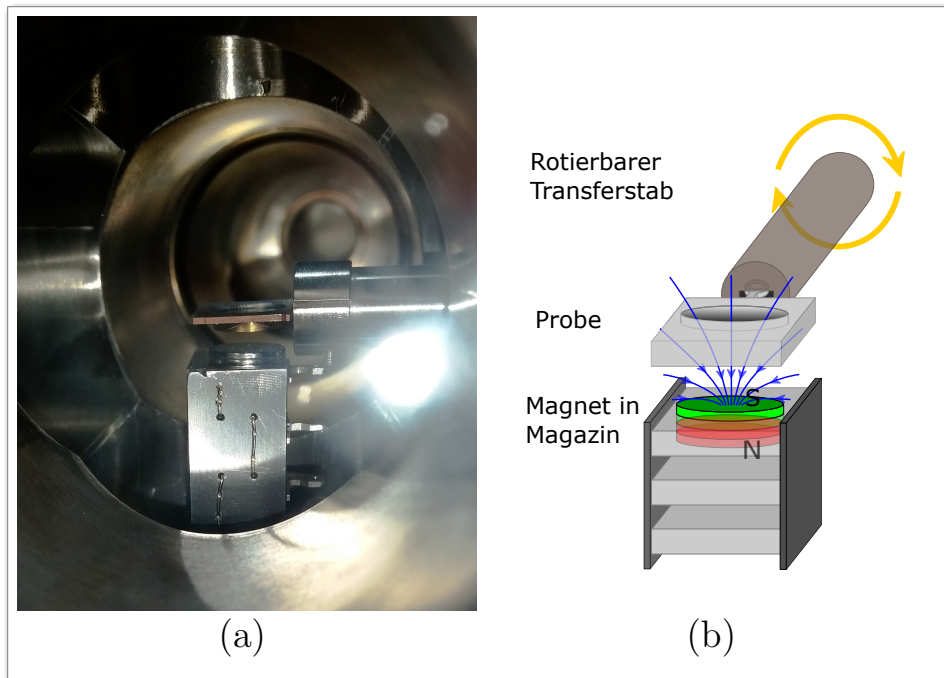
**Abbildung 3.6:** Blick auf den Probenhalter vor der  $k$ -Mikroskop-Optik. Die Probe (b) befindet sich vor einem kühlbaren Kryostatkopf (c) und wird an den Extraktor (a) angenähert. Zu sehen ist ebenfalls ein spezieller Magnet (d) zur Remagnetisierung der Probe (siehe Abbildung 3.8), welcher über den Transferstab (e) an die Probe angenähert wird.

sich eine Auflösung von 200.000 Bildpunkten ergibt. Eine Folge des Aufbaus dieses Mikroskops ist die geringe Verzerrung isochroner Flächen. In der Folge sind  $k$  und  $E$  voneinander unabhängig. Der Flugzeitnachweis des  $k$ -Mikroskops erfordert eine gepulste Lichtquelle, um ein definiertes Startsignal für die Flugzeitmessung zu generieren. Daher eignet sich der für diese Arbeit verwendete, gepulste Ti:Saphir-Laser sehr gut als Lichtquelle.

Abbildung 3.6 zeigt die Probe vor dem Extraktor des  $k$ -Mikroskops. Zusätzlich ist der Transferstab zu sehen, mit dem zum einen die Probe in die Präparationskammer transferiert und zum anderen die Probe ummagnetisiert werden kann (Details folgen im Abschnitt 3.2.4).

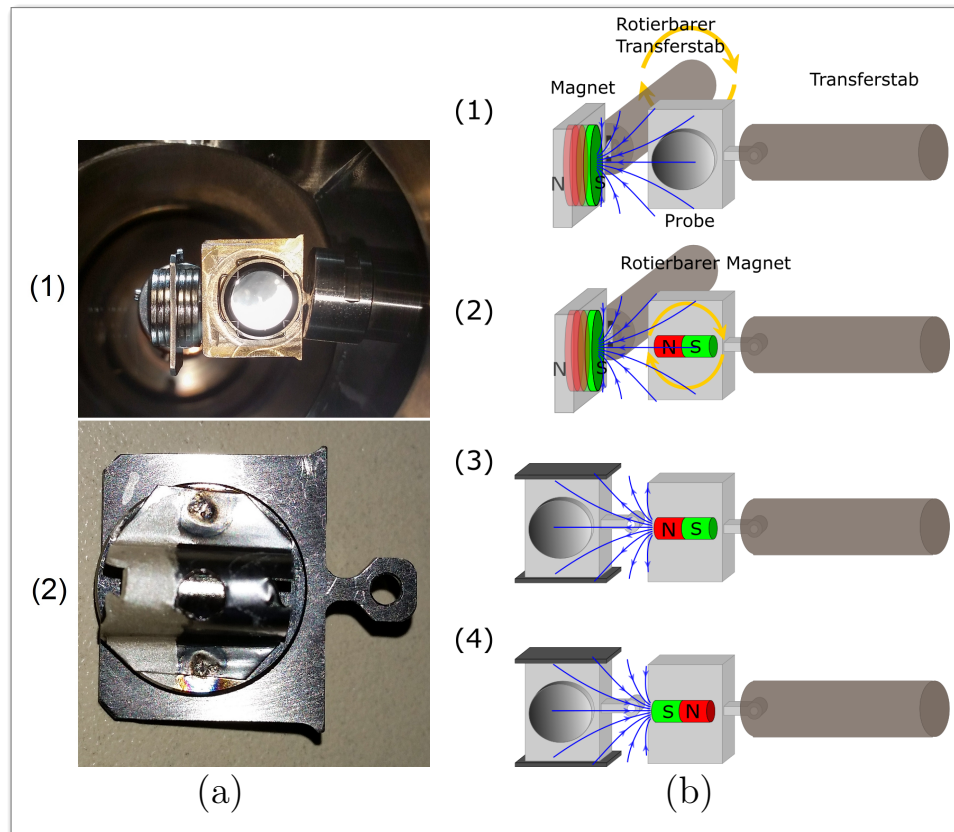
### 3.2.4 Manipulation der Magnetisierung

Um mit dem  $k$ -Mikroskop die Bandstrukturen in Abhängigkeit der Magnetisierung messen zu können und dadurch auch Zugang sowohl zum magnetischen Zirkulardichroismus, als auch zur Spinpolarisation zu bekommen, muss die Probe über das komplette Gesichtsfeld des Mikroskops homogen magnetisiert sein. Hierzu ist es vonnöten, die Probe in situ ummagnetisieren zu können. Es wird die Magnetisierungsmanipulation über die Annäherung eines Permanentmagneten erreicht. Hierzu wurden vakuumtaugliche, starke Magneten aus Neodymlegierung eingesetzt (1 T an der Oberfläche). Der Mechanismus zur Aufmagnetisierung von Proben mit out-of-plane-Magnetisierung ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Der Vorgang ist außerdem schematisch skizziert. Ein sich im Probenmagazin befindender Permanentmagnet wird so an die Probe angenähert, dass die Probenoberfläche und ein magnetischer Pol (entspricht der Stirnfläche des flachen zylindrischen Magneten) sich gerade gegenüberliegen (a). Die Probenoberfläche kann über den Transferstab um  $180^\circ$  gedreht werden, um die Magnetisierung umzukehren.



**Abbildung 3.7:** Die Vorrichtung zur out-of-plane-Remagnetisierung der Probe, dargestellt als Foto (a) und schematisch (b). In der gezeigten Transferkammer befindet sich ein Probenmagazin, an dessen Ende ein starker Permanentmagnet (NdFeB) angebracht ist. Die Feldlinien zeigen in vertikale Richtung. Die zu magnetisierende Probe wird über einen Transferstab an den Magnet angenähert. Die Remagnetisierung wird durch vorheriges Drehen des Transferstabs um  $180^\circ$  erreicht.

Für Proben mit in-plane-Magnetisierung (Abbildung 3.8) hingegen wird ein zweiter Probenhalter mit weiteren Neodym-Magneten bestückt und so an die Probe angenähert, dass dessen Pol zu einer Seitenfläche der Probe zeigt (a1),(b1). Durch die Notwendigkeit, die sensible Probe aus dem k-Mikroskop-Halter kurzzeitig zu entfernen, wurde später eine verbesserte Technik angewandt: Auf einem Probenhalter (Typ Omicron) wird ein rotierbarer „Teller“ angebracht, auf welchen wiederum ein kleiner Neodym-Stabmagnet befestigt ist (a2). Wie in Abbildung 3.8 zu sehen, wird nun zuerst der Stabmagnet umgedreht und dieser danach an die im k-Mikroskop-Halter befindliche Probe herangeführt (b2-4).



**Abbildung 3.8:** Zwei Vorrichtungen zur in-plane-Remagnetisierung der Probe, dargestellt als Fotos (a) und schematisch (b). (a1) bzw. (b1) zeigen die direkte Remagnetisierung in der Transferkammer. Ein Permanentmagnet (NdFeB) und die Probe werden über zwei Transferstäbe einander angenähert. Zur direkten Remagnetisierung der Probe im  $k$ -Mikroskop wurde ein neuer Mechanismus entwickelt, welcher einen auf einem Probenhalter montierten, rotierbaren Magneten (a2) verwendet. Die Orientierung des rotierbaren Magneten wird über die Annäherung an einen Permanentmagneten geeigneter Polarität festgelegt (b2). Im nächsten Schritt wird der Transferstab an die Probe mit passender Polarität angenähert (b3,b4). In Abbildung 3.5 ist der sich der Probe nähernde Magnet abgebildet.

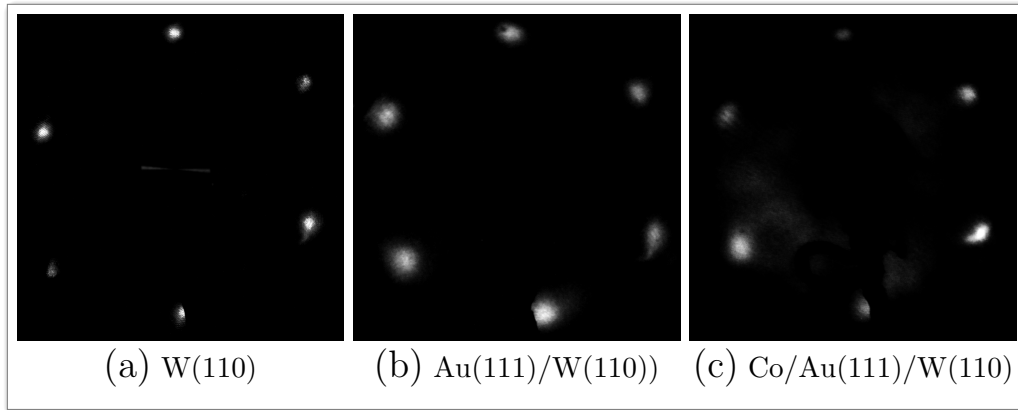


## 4 Photostrommessungen von Co/Au(111)/W(110)

In früheren Arbeiten auf dem Gebiet der Schwellenphotoemission [24] konnte ein starker magnetischer Zirkulardichroismus an Co/Pt(111)-Schichtsystemen nachgewiesen werden. Der im Rahmen dieser Arbeit als wahrscheinlich angenommene Erklärungsansatz geht davon aus, dass der magnetische Zirkulardichroismus direkt aus bevorzugten elektronischen Übergängen innerhalb der magnetischen Co-Schicht hervorgeht. Damit einhergehend hat das schwere Pt ( $Z=78$ ) als Substrat für den Co-Film zwar zur Folge, dass in der Nähe des Interfaces eine Drehung der leichten Magnetisierungsachse im Co aus der Ebene erfolgt, allerdings nimmt es keinen direkten Einfluss auf die zu erwartende MCD-Asymmetrie. Der Einfluss des Co/Pt Interfaces auf den MCD-Effekt ist jedoch unbekannt. Damit einhergehend stellt sich die Frage, ob sich ein Wechsel des Substrats von Pt zu Au auf den MCD-Effekt auswirkt. Daher wurden analog zu [24] Photostrommessungen an Co-Filmen durchgeführt, wobei der Pt-Kristall durch ein Au/W(110)-Substrat substituiert wird.

### 4.1 Messaufbau und Probenherstellung

Zur Untersuchung des MCD-Effekts in einem Co/Au(111)-System wird ein etwa 20 Monolagen dicker Au-Film auf einen W(110)-Einkristall aufgedampft. Die Reinigung des W(110)-Kristalls erfolgt in ähnlicher Prozedur wie in Abschnitt 3.1.1 für Pt(111) beschrieben. Allerdings kann W aufgrund seines hohen Siedepunkts stark erhitzt werden, weshalb man anstelle einer Sputter-Behandlung durch Ar-Ionen einen „Hot Flash“, also ein kurzzeitiges Erhitzen auf mehr als 2000 K durchführen kann. Über einen im UHV stattfindenden Aufdampfprozess entsteht eine regelmäßige Oberfläche des Au(20 ML)(111)/W(110)-Systems. Für die praktische Anwendung hat das Au/W-System den Vorteil, dass durch den hohen Siedepunkt von W (auch im Vergleich zu Au und Co) das Entfernen und erneute Aufbringen von Co-Schichten sehr effektiv durchgeführt werden kann. Der gesamte Fabrikationsprozess wurde in LEED dokumentiert (Abbildung 4.1). Deutlich zu sehen sind jeweils sechs LEED-Reflexe. Im Gegensatz zur Oberfläche des fcc-Au(111)-Kristalls besitzt die des bcc-W(110)-Kristalls keine dreizählige Symmetrie. Die resultierenden Gitterfehlpassungen führen im Vergleich zur frisch präparierten W(110)-Oberfläche (a) zu weniger scharfen Reflexen im LEED-Bild von Au(20 ML)(111)/W(110) (b). Auch nach Aufbringen des dünnen Co-Films sind die beschriebenen LEED-Reflexe sichtbar (c). Die Wachstumsraten der Au- und Co-Schicht wurden per Quarz-Kristall kontrolliert, das genaue Vorgehen entspricht den Abschnitten 3.1.1 und 3.1.2. Um das Verhalten für verschiedene Schichtdicken von Co bestimmen zu können, wird statt eines Films homogener

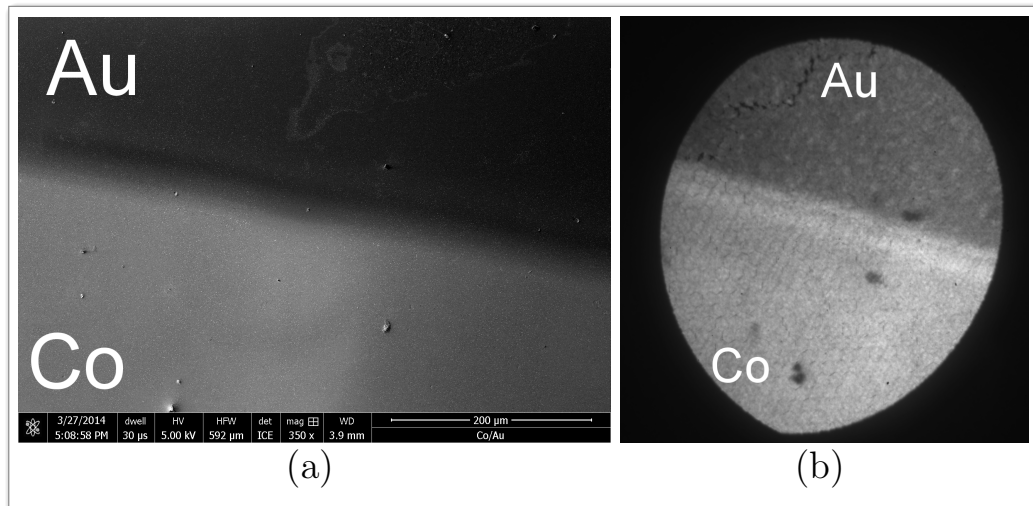


**Abbildung 4.1:** LEED-Bilder der Probenoberfläche, aufgenommen nach den verschiedenen Fabrikationsschritten.  $E_{kin}=72\text{ eV}$ . (a) W(110), (b) Au(20 ML)(111)/W(110), (c) Co(4,5 ML)/Au(20 ML)(111)/W(110). Bei einer Dicke von 4,5 Monolagen liegt Co in der fcc Struktur vor (Details siehe Kapitel 4.3).

Dicke ein Keil aufgedampft, wodurch Schichtdicken von null bis zu zehn Atomlagen auf einer Probe untersucht werden können. Der in Abbildung 4.2 gezeigte Ausschnitt zeigt die Kante des Co-Keils auf dem Au-Substrat. Der Keil besteht aus 500  $\mu\text{m}$  breiten Stufen einer Höhe von jeweils einer nominellen Atomlage, weshalb die mittlere Co-Schichtdicke in der dargestellten Größenordnung als konstant anzunehmen ist.

Der Messaufbau für die Messungen des Photoemissionsstroms wird im Folgenden beschrieben: Der rote Laserstrahl ( $\lambda=800\text{ nm}$ ) wird nach Frequenzverdopplung auf  $\lambda=400\text{ nm}$  über einen Linearpolarisator und ein drehbares  $\lambda/4$ -Plättchen zirkular polarisiert und tritt dann durch ein Quarzglasfenster in die Vakuumkammer ein, wo er durch eine Linse fokussiert, senkrecht auf die Probenoberfläche trifft. Eine Spule, welche direkt vor der Probe liegt, kann über einen Strompuls kurzzeitig magnetische Flussdichten von über 200 mT am Ort der Probenoberfläche erzeugen und dadurch die Orientierung der senkrechten Magnetisierung im Co-Film umkehren. Das Gehäuse der Magnetspule wird gegenüber der Probe so auf ein Potential gelegt, dass die Photoelektronen in Richtung der Spule beschleunigt und somit „eingesammelt“ werden. Der entsprechende Photostrom wird über ein pA-Meter (Firma Keithley) gemessen. Der MCD-Effekt hängt direkt von der Magnetisierung des Co-Films ab, welche wiederum über Anlegen eines externen Magnetfeldes manipuliert werden kann. Über diesen Zusammenhang ist es möglich, mittels Variation des angelegten Magnetfeldes und gleichzeitige Messung des Photostroms, die Hysteresekurve des Co-Films über den MCD-Effekt zu messen. Als Referenzmessung wird der Messaufbau um einen Kerr-Effekt-Aufbau [64] erweitert: Der Strahl eines Diodenlasers wird hierin linear polarisiert und auf die Probenoberfläche geleitet und die resultierende Drehung der Polarisation über einen drehbaren Polarisator und eine Photodiode registriert. Aufgrund der geringen Größe des Effekts wird eine Lock-In-Methode verwendet.



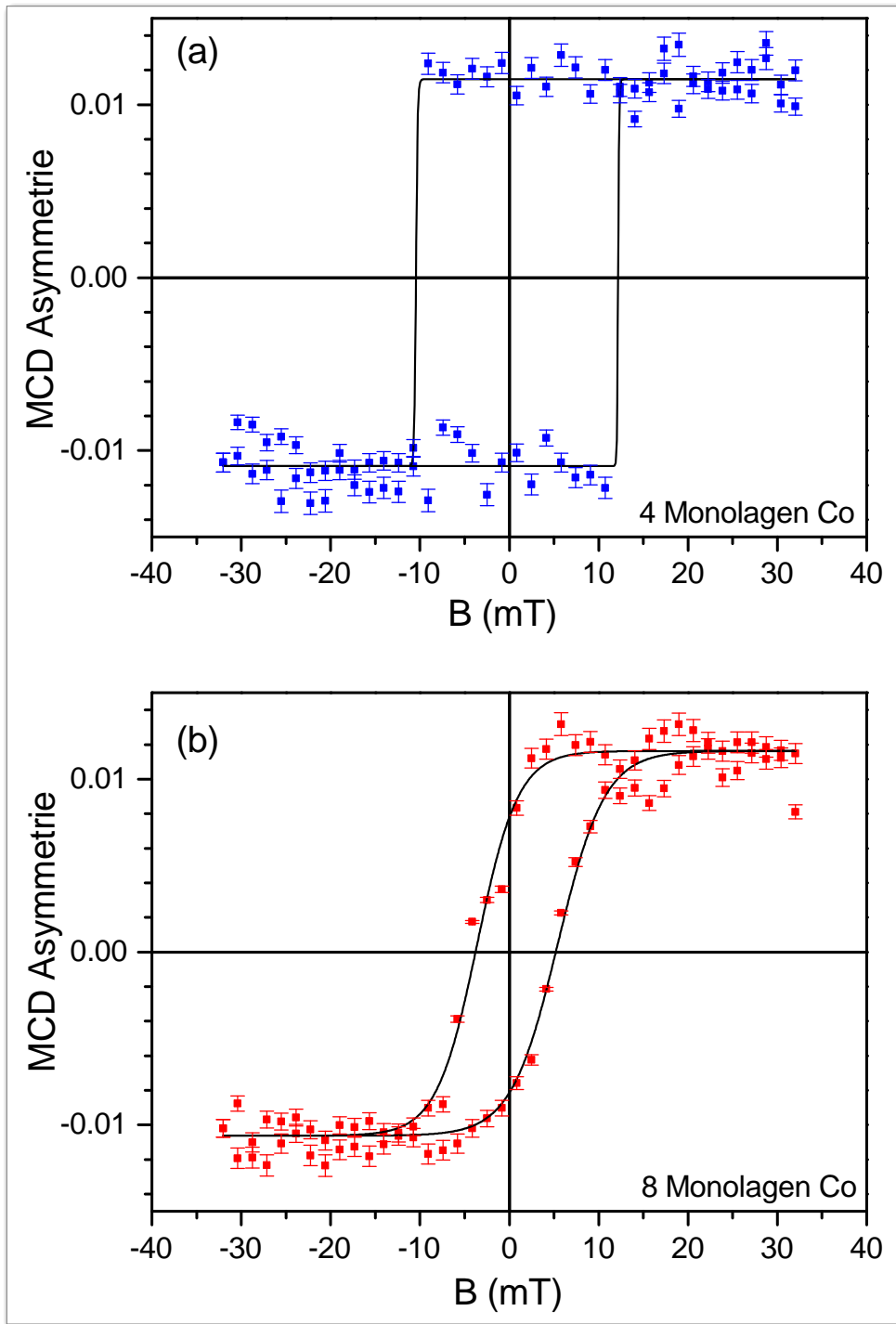


**Abbildung 4.2:** Bilder der Probenoberfläche, bestehend aus einem Co-Keil, aufgedampft auf ein Au(20 ML)(111)/W(110)-Substrat. (a) Aufnahme mittels Rasterelektronenmikroskopie. Zu sehen ist die Kante zwischen Co/Au(111)/W(110) und Au(111)/W(110). (b) Aufnahme mittels PEEM bei Anregung mit  $h\nu=3,1$  eV. Co (unten) erscheint im PEEM-Bild heller als die reine Au(111)-Oberfläche (das Gesichtsfeld hat einen Durchmesser von etwa  $200\ \mu\text{m}$ ).

## 4.2 Ergebnisse

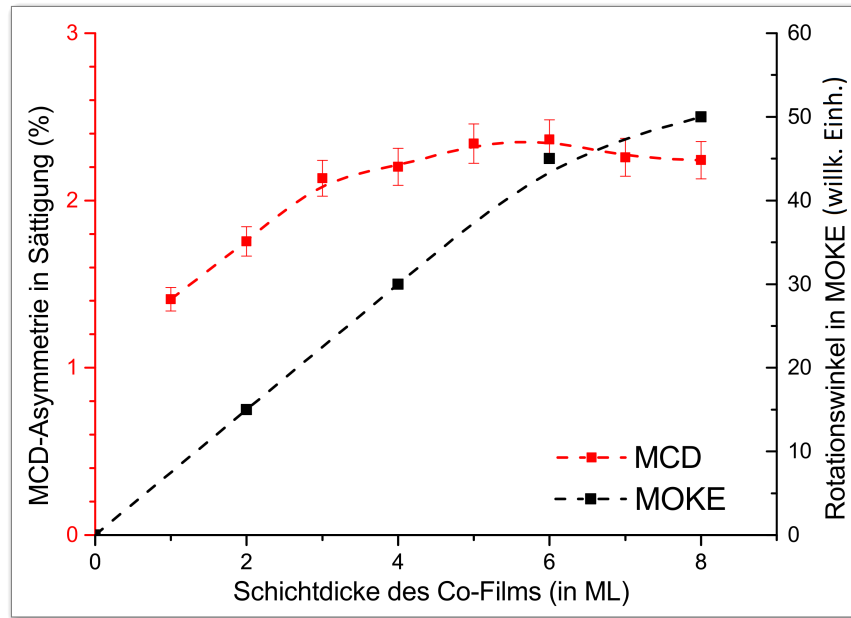
Grafik 4.3 zeigt zwei Magnetisierungskurven, aufgenommen an Co-Filmen unterschiedlicher Dicke, welche auf ein Au(111)(20 ML)/W(110)-Substrat aufgedampft worden sind. Aufgetragen ist die MCD-Asymmetrie als Maß für die Magnetisierung des Films, gegen das senkrecht zum Film angelegte magnetische Feld. Der gemessene Photostrom liegt in der Größenordnung von etwa  $50\ \text{pA}$ . Daher werden die Magnetisierungskurven mehrfach aufgenommen und gemittelt, bis ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis erreicht wird. Die Sättigungsmagnetisierung entspricht für beide Schichtdicken etwa  $2,2\%$  MCD-Asymmetrie (Berechnung gemäß der Formel 2.67). Für die geringe Schichtdicke von 4 Monolagen (a) ergibt sich eine ausgeprägte Rechteck-Hysteresekurve, die einer Messung entlang der leichten Magnetisierungsrichtung entspricht: Bei Erreichen der Koerzitivmagnetfeldstärke von etwa  $12\ \text{mT}$  schaltet der Film in den entgegengesetzten Magnetisierungszustand um.

Messungen der Magnetisierungskurven an dickeren Filmen zeichnen ein anderes Bild (b): Die dargestellte Hysteresekurve, aufgenommen für einen Film der Dicke von 8 Monolagen, zeigt schräge Flanken und Verrundungen, charakteristisch für eine Hysterese entlang einer schweren Achse. Die Koerzitivfeldstärke beträgt etwa  $5\ \text{mT}$  und die Remanenz sinkt im Vergleich zur Messung am 4 Monolagen dicken Film um  $30\%$ .



**Abbildung 4.3:** Magnetisierungskurven, aufgenommen an Co-Filmen von 4 (a) und 8 Monolagen (b), welche auf ein Au(111)(20 ML)/W(110)-Substrat aufgedampft worden sind. Aufgetragen ist die MCD-Asymmetrie, als Maß für die Magnetisierung des Films, gegen ein senkrecht zum Film angelegtes magnetisches Feld. Die Sättigungsmagnetisierung entspricht in beiden Fällen etwa 2,2 % MCD-Asymmetrie.

In Abbildung 4.4 ist die Abhängigkeit der Sättigungs-MCD-Asymmetrie von der Schichtdicke aufgetragen. Für eine nominelle Schichtdicke von einer Monolage ergibt sich eine Asymmetrie von etwa 1,4 %, welche für zunehmende Schichtdicken leicht bis zu einem Maximum von etwa 2,2 % für eine Dicke von vier Monolagen ansteigt. Weitere Erhöhung der Schichtdicken resultiert nicht in höheren Werten der MCD-Asymmetrie. Ebenfalls in Abbildung 4.4 dargestellt sind Vergleichsmessungen mit MOKE an derselben Probe. Hier beobachtet man eine lineare Abhängigkeit des Kerr-Drehwinkels von der Schichtdicke.



**Abbildung 4.4:** Abhängigkeit der Sättigungs-MCD-Asymmetrie und des Kerr-Drehwinkels von der Dicke des Co-Films. Die MCD-Asymmetrie zeigt ein Sättigungsverhalten ab ca. 4,5 Monolagen. Die MOKE-Messung zeigt jedoch einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen Schichtdicke und Kerr-Drehwinkel.

### 4.3 Diskussion

Der MCD-Effekt tritt unabhängig von der Wahl des Substrats, Au oder Pt, auf. Diese Tatsache bestätigt die Annahme, dass die elektronischen Zustände, aus denen die Photoelektronen angeregt werden und welche den MCD-Effekt erzeugen, aus der Volumenbandstruktur des Co stammen. Der maximal gemessene Wert der Asymmetrie von etwa 2,2 % liegt in der zu erwartenden Größenordnung [6, 24]. Anhand der Messungen der Magnetisierungskurven für unterschiedliche Co-Schichtdicken lassen sich folgende Aussagen, zum einen über den magnetischen Zustand des Co-Films, zum anderen über die Abhängigkeit der MCD-Asymmetrie von der Schichtdicke, treffen: Der deutliche Unterschied der Hysteresekurven für dünne und dicke Schichten entspricht unterschiedlichen magnetischen Anisotropien. Für dünne Co-Filme zeigt die Magnetisierungskurve

einen für die leichte Magnetisierungsachse senkrecht zum Film typischen Verlauf. Die senkrechte Anisotropie tritt aufgrund der Grenzflächenanisotropie (Abschnitt 2.2) auf. Erhöht man die Co-Schichtdicke, findet ein Reorientierungsübergang statt: Die Grenzflächenanisotropie reicht nicht mehr aus, um die Formanisotropie auszugleichen, weshalb sich die leichte Magnetisierungsachse mit zunehmender Schichtdicke in die Filmebene dreht. In der Nähe der kritischen Schichtdicke für den Reorientierungsübergang beobachtet man einen Wechsel der Kristallstruktur. Die ersten fünf Co-Atomlagen wachsen in einer fcc Struktur auf dem Au(111)-Substrat. Mit zunehmender Schichtdicke wechselt jedoch das Co-Gitter in die hcp Kristallstruktur, welche für Volumen-Co die natürliche Kristallstruktur darstellt. Der Reorientierungsübergang wurde für Co/Pt(111)-Filme [24] bei Schichtdicken von 5-6 Monolagen beobachtet, was mit hier durchgeführten Messungen an Co/Au(111) übereinstimmt.

Da in diesen nicht orts aufgelösten Messungen keine Aussagen über die Oberflächenbeschaffenheit der Probe gemacht werden können, ist es möglich, dass die gemessene Sättigungsmagnetisierung nicht derjenigen für eine komplett senkrechte Magnetisierung entspricht. Stattdessen ist durchaus denkbar, dass bei geeigneter Wachstumsmorphologie die leichte Achse der Magnetisierung schwach gekippt ist, und somit die messbare MCD-Asymmetrie nicht exakt dem theoretisch zu erreichenden Maximum entspricht. Das Wachstum des Co-Films auf der Au-Oberfläche vollzieht sich nicht Lage für Lage. Stattdessen veranschaulichen STM-Messungen [65], dass für nominelle Schichtdicken bis 4 Monolagen keine vollständigen Atomlagen entstehen, sondern Co vornehmlich in Inseln wächst. Diese Inseln haben tatsächlich bereits eine Höhe von etwa 4 Monolagen, die laterale Ausdehnung vergrößert sich hingegen mit dem Eintrag weiterer Co-Atome. Erst für größere nominelle Dicken schließt sich die Schicht. Innerhalb der Co-Inseln existiert eine regelmäßige Gitterstruktur, was das LEED-Bild erklärt (Abbildung 4.1).

Mit der Kenntnis über das Wachstumsverhalten von Co auf der Au(111)-Oberfläche ist es möglich, die Abhängigkeit der gemessenen MCD-Asymmetrie von der Schichtdicke zu erklären: Wie in Darstellung 4.4 zu sehen, ist die gemessene MCD-Asymmetrie für Filme von 4 bis 8 Monolagen Dicke im Rahmen der Fehler konstant. Für niedrigere Schichtdicken sinkt die integral gemessene MCD-Asymmetrie hingegen. Dies lässt sich dadurch erklären, dass mit abnehmender nomineller Schichtdicke die durchschnittliche Bedeckung der Au-Oberfläche durch Co-Inseln abnimmt. Somit kann der gesamte gemessene Photostrom als Superposition aus der Photoemission aus der Au-Oberfläche und den Co-Inseln aufgefasst werden. Je weniger Oberflächenanteil von den Co-Inseln bedeckt ist, desto mehr Laserlicht trifft direkt auf die Au-Oberfläche. Da aus Au-Atomen stammende Photoelektronen keinen magnetischen Zirkulardichroismus aufweisen, schwächt deren Beitrag die integral gemessene Asymmetrie. Dieses Ergebnis unterscheidet sich von den Messungen, welche im Rahmen von [11] an Pt/Co/Pt(111)/W(110) durchgeführt wurden und welche eine lineare Abhängigkeit der MCD-Asymmetrie von der Schichtdicke (bis zu Dicken von 8 Monolagen) aufwiesen. Hier kann ein unterschiedliches Co-Wachstum auf Pt die Ursache sein, zusätzlich unterschieden sich die darin untersuchten Proben durch eine Deckschicht von Pt. Es ist darauf hinzuweisen, dass die MCD-Asymmetrien der Messungen in Ref. [11] um eine

Größenordnung kleiner ausfielen.

Zu Vergleichszwecken wurde die Probe in einem MOKE-Aufbau untersucht. Die von der Schichtdicke abhängenden, magnetooptischen Kerr-Drehungen sind in Abbildung 4.4 aufgetragen. In der MOKE-Messung ergibt sich für die ersten 6 Monolagen eine direkte Proportionalität zwischen Polarisationsdrehung und Schichtdicke. Hier bestimmt die Menge aufgebrauchten magnetischen Materials direkt die Drehung der Lichtpolarisation. MOKE- und MCD-Messung sind komplementär und zeigen unterschiedliche qualitative Verläufe.



# 5 Ortsaufgelöste Untersuchungen von Co/Pt(111)

Die durchgeführten Messungen des integralen Photostroms ergeben eine MCD-Asymmetrie von mehreren Prozent für die untersuchten Co/Au-Dünnschichtproben. Vorhergehende Photostrommessungen an Co/Pt-Dünnschichtproben zeigen Werte der MCD-Asymmetrie der gleichen Größenordnung [12]. Somit erscheint der magnetische Zirkulardichroismus ausreichend hoch, um ihn als kontrastgebenden Mechanismus in der bildgebenden Photoemissions-Elektronenmikroskopie einzusetzen. Das folgende Kapitel erläutert die Schritte, welche zur erfolgreichen, hochaufgelösten TPMCD-PEEM notwendig sind. Ferner wird eine mögliche Nutzung des Pump-Probe-Verfahrens zur zeit- und ortsaufgelösten Messung an Co/Pt-Dünnschichten untersucht.

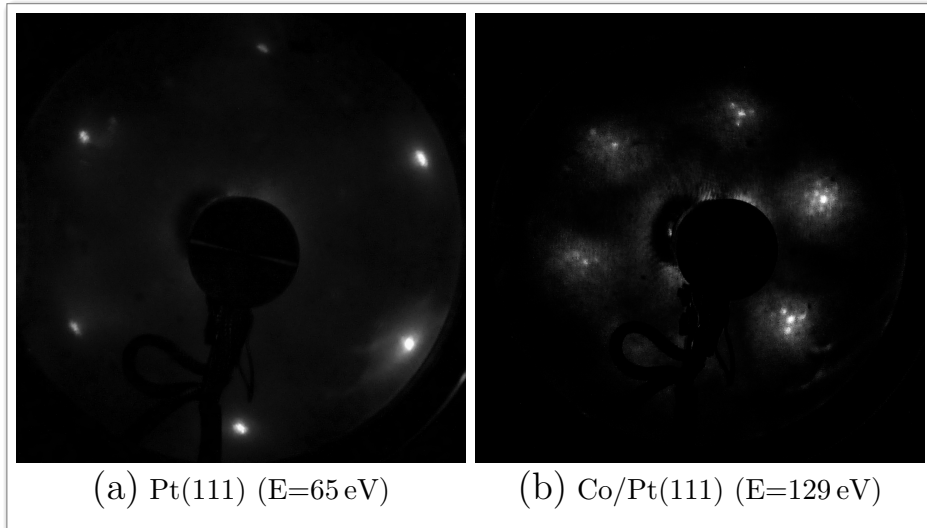
## 5.1 Messaufbau und Probenherstellung

Ein nach dem in Abschnitt 3.1.1 beschriebenen Verfahren präparierter Pt(111)-Kristall bildet das Substrat für die deponierten Schichten. Mittels eines EFM-Verdampfers wird über den nächsten Fabrikationsschritt mittels Molekularstrahlepitaxie ein wenige Atomlagen dicker Co-Film aufgetragen. Die nominelle Schichtdicke wird über eine Quarz-Waage bestimmt, welche die Aufdampfzeiten während des Bedampfungsprozesses aufzeichnet.

Über epitaktisches Lagenwachstum passt sich die Gitterstruktur der Co-Atome an das darunterliegende Substrat an, weshalb der entstehende Co(4,5 ML)/Pt(111)-Kristall im LEED-Bild dieselbe dreizählige, für die fcc(111) Oberfläche charakteristische Symmetrie aufweist, wie die reine Pt(111)-Oberfläche. Unterschiedliche Gitterkonstanten ( $a_{Pt}=0,392$  nm,  $a_{Co}=0,355$  nm) bewirken allerdings, dass die einzelnen Co-Atome nicht alle exakt an den entsprechenden Positionen im Pt(111) sitzen.

Es ist bekannt, dass bei niedrigen Schichtdicken von Co keine atomar flachen Filme wachsen, sondern bevorzugt kleinere Co-Inseln auf dem Pt(111)-Substrat entstehen. Aus den unterschiedlichen Gitterkonstanten resultiert auch eine Moiré-Struktur auf dem LEED-Bild, weshalb in diesem statt großer, einzelner Reflexe, nun viele, regelmäßige Reflexe unterschiedlicher Intensität erscheinen (Abbildung 5.1). Nach der Kontrolle mittels LEED wird die Probe über einen in situ Transfermechanismus in die PEEM-Kammer eingeschleust. Um einzelne Domänen sichtbar zu machen, wurde die Probe nicht aufmagnetisiert, sondern im „virgin state“ belassen, was bedeutet, dass diejenige Domänenkonfiguration vorliegt, welche unmittelbar beim Aufdampfen der magnetischen Schicht energetisch am günstigsten ist.

Um Photoemission zu betreiben, wird der vom Ti:Saphir-Laser erzeugte Strahl



**Abbildung 5.1:** LEED-Bilder des Pt(111) Einkristalls vor und nach Bedampfen mit 4,5 Monolagen Co. (a) Zu sehen ist die dreizählige LEED-Struktur der sauberen Pt(111)-Oberfläche. Es sind keinerlei Überstrukturen zu erkennen. (b) Das LEED-Bild der Co(4,5 ML)/Pt(111)-Oberfläche zeigt dieselbe dreizählige Symmetrie der fcc (111)-Oberfläche.

durch einen Linearpolarisator geleitet und darauffolgend, durch Passage eines  $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchens, zirkular polarisiert. Die Orientierung des Plättchens im Bezug auf die lineare Polarisationsrichtung des Laserstrahls, bestimmt die resultierende Helizität des Laserlichts. Um diese zügig, aber mit hoher Genauigkeit einstellen zu können, ist das  $\lambda/4$ -Plättchen über einen Schrittmotor elektrisch drehbar. Nach Durchlaufen einer Strahlaufweitung tritt der Laserstrahl in die Vakuumkammer durch ein Quarzfenster ein. Dort wird er durch eine weitere Linse, welche kurz vor der Probe sitzt, fokussiert und trifft unter einem Einfallswinkel von  $65^\circ$  auf die Oberfläche. Die optimalen Einstellungen für die PEEM-Optik erfolgen über eine elektronische Steuereinheit, für die Bilderfassung wird ein Computer mit speziell angefertigter Software in LabView verwendet. Für die durchgeführten Messungen wurde die Probenoberfläche mit Caesium-Atomen bedampft, welche adsorbieren und ein Elektron an die Probe abgeben. Ein auf diese Weise entstehender elektrischer Dipol wirkt absenkend auf die Austrittsarbeit, was die Nutzung von PEEM in der Ein-Photon-Photoemission ermöglicht und so die messbare Intensität stark erhöht. Gleichzeitig werden nichtlineare Prozesse relativ zur 1PPE unterdrückt.

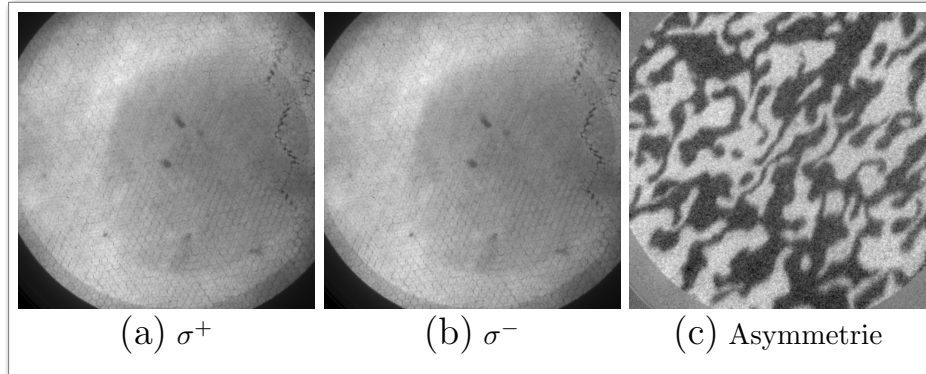
## 5.2 Statische Messungen

Um statische Messungen durchzuführen, wurde jeweils ein PEEM-Bild für beide Helizitäten des anregenden Laserlichts aufgenommen und das Asymmetriebild über die Formel 2.66 bestimmt. Für die Photoemission wurde sowohl die Fun-



fundamentale des Lasers ( $\lambda=800$  nm,  $h\nu=1,55$  eV), als auch die zweite Harmonische ( $\lambda=400$  nm,  $h\nu=3,1$  eV) genutzt.

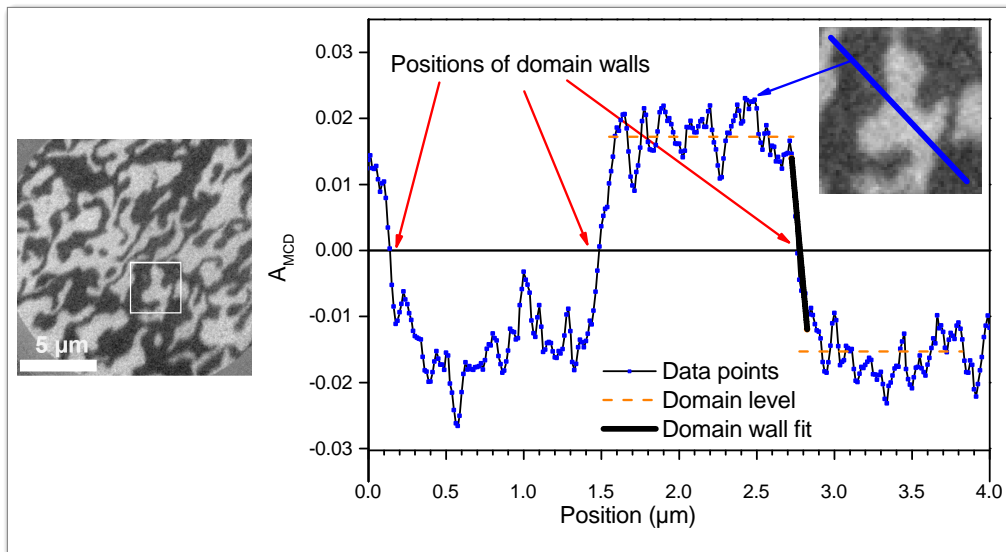
### 5.2.1 Ergebnisse



**Abbildung 5.2:** Erstellung des Asymmetriebilds anhand von zwei Belichtungen unterschiedlicher Polarisation. (a, b): Äquivalente Belichtungen mit Laserlicht unterschiedlicher Helizität  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  zeigen nur sehr schwachen topografischen Kontrast. Sichtbare Strukturen sind die Folge von Abnutzungserscheinungen des Elektronen-Vervielfachers in der Bildgebung. Sie existieren unabhängig von der Position der Probe. (c) Nach Berechnung der Asymmetrie gemäß Gleichung 2.66 ergibt sich ein magnetischer Kontrast aufgrund des magnetischen Zirkulardichroismus ( $h\nu=3,1$  eV, 1PPE). Der Durchmesser des Gesichtsfelds beträgt etwa  $15\ \mu\text{m}$ .

Die Abbildung 5.2 zeigt eine statische Messung des magnetischen Kontrasts mittels zweier Einzelbelichtungen für Laserlicht unterschiedlicher Helizität. Die Bilder wurden bei  $h\nu=3,1$  eV aufgenommen und die Austrittsarbeit der Probe über Cäsierung abgesenkt, um 1PPE erzeugen zu können. Im Einzelbild treten mögliche Defekte im Elektronen-Vervielfacher deutlich zu Tage. Im Vergleich hierzu ist der (nichtmagnetische) Kontrast, welcher von der Probenoberfläche herrührt, sehr gering. Zu sehen ist ein angedeuteter, dunklerer Kreis, welcher einer lokalen Abnutzung des Elektronen-Vervielfachers entspricht und unabhängig von der Probenposition auftritt. Aufgrund fehlender Merkmale der Probenoberfläche ist die optimale Einstellung der Fokusspannung aufwändig. Bei korrekter Fokusspannung wird die Oberfläche jedoch scharf abgebildet. Es ergibt sich eine schwach sichtbare Struktur von kleinen helleren und dunkleren Bereichen. Aufgrund der geringen Größenordnung des magnetischen Zirkulardichroismus von wenigen Prozent ist zwischen beiden Bildern mit dem bloßen Auge kein Unterschied in der Struktur auszumachen. Berechnet man aus beiden Einzelbildern das Asymmetriebild gemäß Gleichung 2.66, heben sich die Artefakte, welche vom Elektronen-Vervielfacher, jedoch nicht von der Probe abhängen, vollständig auf und es ergibt sich ein deutlicher hell-dunkel-Kontrast, für den sich der magnetische Zirkulardichroismus ursächlich zeigt. Der MCD äußert sich in Form von

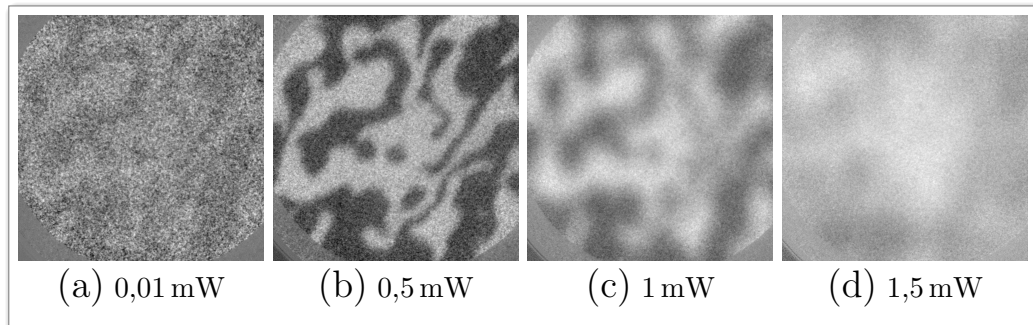
Intensitätsunterschieden zwischen hellen und dunklen Bereichen und beträgt etwa 4 %, was den Photoströmmessungen in [24] ermittelten Werten entspricht. Eine genauere Analyse der Domänenstruktur, wie in Abbildung 5.3 gezeigt, ergibt eine sehr unregelmäßige Anordnung von Domänen unterschiedlicher Größe und Gestalt. Im Mittel gibt es eine gleiche Anzahl von dunklen und hellen Flächen, von denen einige mehrere  $\mu\text{m}$  Länge besitzen, andere wenige hundert nm breit sind. Teilweise zeigt sich eine wurmartige Domänenstruktur. Über die Auswertung von Linienprofilen ergeben sich die geringsten Domänenwandbreiten zu weniger als 100 nm. Diese Tatsache liefert einen Indikator für das Auflösungsvermögen des TPMCD-PEEM. Der Übergang von dunklen zu hellen Domänen vollzieht sich auf sehr kurzen Längenskalen, es gibt nahezu keine ausgedehnten Bereiche, welche nicht maximale oder minimale Intensität aufweisen.



**Abbildung 5.3:** (a) Ausschnitt der Domänenstruktur von  $\text{Co}(4,5 \text{ ML})/\text{Pt}(111)$ , erstellt mittels der Aufnahme zweier Bilder bei unterschiedlicher Lichthelizität  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  und anschließender Berechnung der MCD-Asymmetrie.  $h\nu=3,1 \text{ eV}$ ,  $1\text{PPE}$ . Die Austrittsarbeit wurde durch Cäsierung abgesenkt. Die in (a) markierte Region wurde in (b) über ein Linienprofil analysiert. Die gemessenen Domänenwandbreiten sind geringer als 100 nm.

Die Qualität des magnetischen Kontrastbilds zeigt sich stark von der Laserleistung abhängig: Für verschiedene Laserleistungen durchgeführte Messungen (Abbildung 5.4) ergeben ein schmales Band von Laserleistungen, das für räumliche Bildgebung geeignet ist. Die angegebenen Werte entsprechen der gemessenen Laserleistung vor dem letzten Teil des optischen Wegs. Der Laserstrahl passiert zwischen dieser Messposition im Strahlengang und Probe drei weitere Fokussierlinsen und ein Quarzglas, was die Leistung des transmittierten Strahls jeweils um etwa 10 % verringert. Über den schrägen Einfall auf die Probe und die hohe Reflektivität der metallischen Oberfläche ist der Eintrag an Laserleistung auf die Probe ferner um mehr als eine Größenordnung geringer. Ist der Photonen-

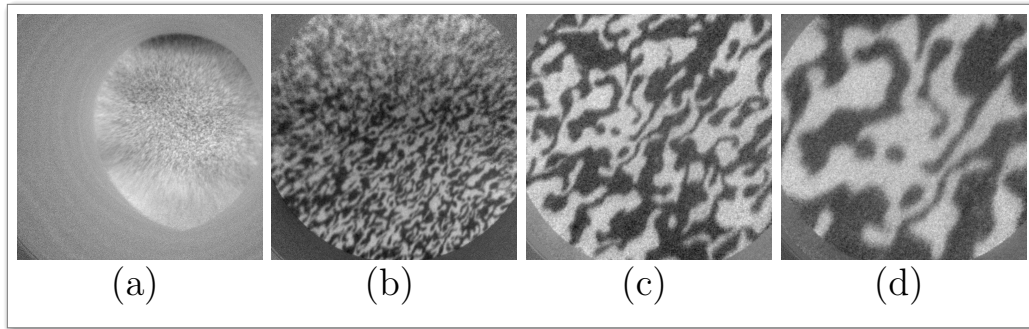
eintrag auf die Probe zu gering, wie beispielsweise für 0,01 mW Laserleistung, erlaubt die geringe Intensität kein praktikables Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Die Messzeit steigt sehr stark an. Für Leistungen von 0,5 mW verbessert sich das Signal-zu-Rausch-Verhältnis dramatisch und der magnetische Kontrast wird gut sichtbar. Ebenfalls sind die Ränder der Domänen in hoher Auflösung darstellbar. Erhöht man die Laserleistung und somit die Intensität durch Photoemission weiter, beginnen die Konturen der Domänen sich zu verbreitern, der Maximalkontrast sinkt. Bereits für wenige mW Laserleistung verschwindet die sichtbare Struktur, es ist kein lokaler magnetischer Kontrast mehr zu verzeichnen (dieser Effekt wird in Kapitel 5.2.2 erläutert).



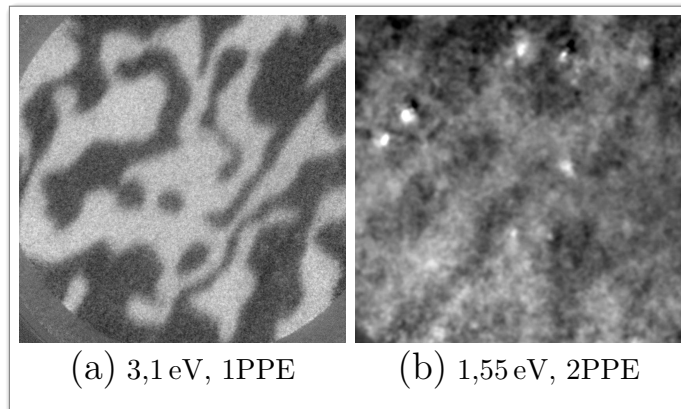
**Abbildung 5.4:** Bestimmung der optimalen Laserleistung: (a) Eine zu geringe Laserleistung resultiert in einem schlechten Signal-Rausch-Verhältnis. (b) Die optimale Laserleistung erzeugt ein Bild bei gutem Signal-Rausch-Verhältnis und mit hohem magnetischen Kontrast. (c,d) Bei zu hohen Leistungen wird das Bild unscharf und der Kontrast verringert sich. Die Akkumulationszeit beträgt für (b,c,d) fünf Minuten pro Helizität. Für (a) musste die Zeit auf 15 Minuten pro Helizität erhöht und die Empfindlichkeit des Detektor angehoben werden.

Wie in Abbildung 5.5 dargestellt, kann ein großer Bereich von Vergrößerungen genutzt werden. Das kleinstmögliche Gesichtsfeld besitzt einen Durchmesser von etwa  $7\ \mu\text{m}$ , und eignet sich damit hervorragend zur Studie einzelner Domänen. Die Ausleuchtung des Gesichtsfelds erscheint sehr homogen. Für geringere Vergrößerungen sind Gesichtsfelder von mehr als  $200\ \mu\text{m}$  Durchmessern erreichbar, was es ermöglicht, größere Bereiche der Probe zu untersuchen. Es ist darin ebenfalls die magnetische Domänenstruktur erkennbar. Allerdings fällt bei größerem Gesichtsfeld das inhomogene Profil des Laserspots auf der Probe auf, was die quantitative Auswertung der MCD-Asymmetrie erschwert. So ist beispielsweise im Asymmetriebild 5.5(a) zu sehen, dass sich der obere und untere Rand des Bildausschnitts in ihren Helligkeiten stark unterscheiden, was jedoch keine physikalische Eigenschaft der Probe widerspiegelt, sondern einer leichten relativen Verschiebung des Laserspots beim Umpolarisieren des Laserstrahls geschuldet ist.

Die bisher gezeigten PEEM-Bilder wurden unter Verwendung des frequenzverdoppelten Laserstrahls erstellt. Der fundamentale Laserstrahl ( $\lambda=800\ \text{nm}$ , bzw.  $h\nu=1,55\ \text{eV}$ ) lässt sich ebenfalls zur Erzeugung eines orts aufgelösten PEEM-Bilds mit magnetischem Kontrast nutzen (Abbildung 5.6). Allerdings besitzen ein-



**Abbildung 5.5:** (a-d) Verschiedene, mit dem PEEM erreichbare Vergrößerungen. Die Bilder erfassen jeweils ein Gesichtsfeld von etwa  $200\ \mu\text{m}$  (a),  $50\ \mu\text{m}$  (b),  $15\ \mu\text{m}$  (c) und  $7\ \mu\text{m}$  (d). Verwendet man Einstellungen für geringe Vergrößerungen, wird das inhomogene Profil des Lasertrahls sichtbar, außerdem wird nicht mehr die komplette Fläche des Detektorschirms ausgeleuchtet.



**Abbildung 5.6:** Einfluss der Wellenlänge auf den TPMCD. (a) Optimale Domänenabbildung einer leicht cäsierter Probe mit  $h\nu=3,1\ \text{eV}$ ,  $1\ \text{mW}$  und  $1\text{PPE}$ . (b) Aufnahme ader cäsierter Probe bei  $h\nu=1,55\ \text{eV}$  und  $100\ \text{mW}$ . Es zeigen sich Hotspots und topografischer Kontrast.

zelne Photonen dann mit  $h\nu=1,55\ \text{eV}$  trotz cäsierter Probe nicht genug Energie, um Elektronen aus dem Festkörper auszulösen. Die über Multiphotonen-Photoemission erreichte Intensität ist im Vergleich zu jener, durch  $1\text{PPE}$  bei gleicher Laserleistung, um Größenordnungen geringer, weshalb sich über Multi-PPE ein schlechteres Signal-zu-Rausch-Verhältnis ergibt. Der Fehler in der quantitativen Messung der MCD-Asymmetrie ist entsprechend groß, der ermittelte Wert der Asymmetrie liegt jedoch über 7%. Die relativ hohe Asymmetrie bei Beleuchtung mit  $h\nu=1,55\ \text{eV}$  zeigte sich bereits in Photostrommessungen von [13]. Um die Akkumulationszeit zu reduzieren, wurde die Leistung des roten Laserstrahls auf  $100\ \text{mW}$  erhöht.

Wie in Abbildung 5.6(b) zu sehen, zeigt das bei  $h\nu=1,55$  eV erzeugte Domänenbild zusätzlichen topografischen Kontrast. Auffällig sind außerdem helle Flecke. Diese *hot spots* wurden bereits von [66] beschrieben und treten infolge erhöhter Photoemission an Stufenkanten und Partikeln auf der Probenoberfläche auf.

### 5.2.2 Diskussion

Die in Photostrommessungen ermittelte MCD-Asymmetrie ist groß genug, um sie in der PEEM-Bildgebung als magnetischen Kontrastmechanismus zu nutzen. Ein entsprechendes TPMCD-PEEM besitzt jedoch für die praktische Anwendung einige Einschränkungen. So erschweren die Anforderungen an einen hochreinen, dünnen magnetischen Film und die daraus resultierende, homogene Oberfläche die exakte Fokussierung auf die Probenoberfläche. Eine weitere Problematik liegt im Raumladungseffekt: Bei einer Repetitionsrate des Ti:Saphir-Lasers von 80 MHz werden auch bei kleinen nominellen Leistungen von unter 1 mW bereits hunderte Photoelektronen pro Laserpuls erzeugt. Die Trajektorie eines Photoelektrons wird durch die gemittelte Ladung der anderen Photoelektronen modifiziert und somit die Schärfe der räumlichen Abbildung reduziert. Um Domänenbilder hoher Auflösung zu erhalten, ist die Reduktion der vorhandenen Laserleistung auf etwa 1 mW unabdingbar. Im Gegensatz dazu wird in nicht ortsauflösenden und somit integral messenden Photostromexperimenten ein möglichst hoher Photonenfluss angestrebt, um das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu verbessern. Hier spielt Raumladung entsprechend keine Rolle. Ein weiterer Aspekt liegt in der Homogenität des Laserstrahls. Ein ungleichmäßiges Strahlprofil behindert eine aussagekräftige simultane Messung über größere Bildbereiche. Unter Beachtung all dieser Aspekte eignet sich das TPMCD-PEEM als bildgebendes Verfahren für magnetische Strukturen. Die hierfür am besten geeigneten Parameter bestehen für den verwendeten Aufbau in einer Laserleistung von etwa 0,5 mW bei  $h\nu=3,1$  eV für ein Gesichtsfeld von 7-30  $\mu\text{m}$ , die erreichte Auflösung von besser als 100 nm ist derjenigen moderner Kerr-Mikroskope überlegen. Magnetischer Kontrast lässt sich sowohl für den Einsatz der Fundamentalen ( $\lambda=800$  nm), als auch für die zweite Harmonische ( $\lambda=400$  nm) des Ti:Saphir-Lasers erreichen. Dieses Resultat bestätigt die Tatsache, dass in Photostrommessungen an Co/Pt ein magnetischer Zirkulardichroismus bei Anregung mit beiden Wellenlängen auftrat [12, 13].

Es zeigt sich des Weiteren ein Vorteil in der Bildgebung für 1PPE-Prozesse gegenüber Multi-Photonen-Photoemissionsprozessen. Letztere erzeugen im TPMCD-PEEM ein Domänenbild, welches eine Superposition von magnetischem und topografischem Kontrast aufweist. Die Verstärkung von Photoemission an Stufenkanten oder einzelnen Partikeln ist ein bekanntes Phänomen, welches im physikalischen Fachgebiet der Plasmonik untersucht wird [66–68]. Diese Verstärkung der Photoemission kann ferner eine deutliche Abhängigkeit von der Polarisation des anregenden Laserlichts besitzen. Die Folge sind Artefakte im MCD-Asymmetriebild, wie beispielsweise die Hot Spots in Abbildung 5.6(c). Ein 1PPE-Prozess ist für die Anregung bei  $h\nu=1,55$  eV mit Cäsierung schwer umzusetzen, da die Austrittsarbeit nicht stabil auf so niedrigen Werten  $\Phi \leq 1,5$  eV gehalten werden kann. Bei Verwendung der zweiten Harmonischen ( $h\nu=3,1$  eV) ist die nötige

Absenkung der Austrittsarbeit jedoch recht gering. Der hergestellte 4,5 Monolagen dicke Co-Film besitzt auf dem Pt(111)-Substrat eine out-of-plane Magnetisierung, welche eine unregelmäßige Domänenstruktur aufweist. Wahrscheinlich ist das die Folge der Minimierung der Streufeldenergie. Bei senkrechter Magnetisierung werden gerade Domänenwände nur schwach bevorzugt, was die unregelmäßige Struktur erklärt. Lokale Variationen der Morphologie des Co-Films verursachen die tatsächliche Anordnung. Bereits geringe Defekte der Gitterstruktur können die lokale Magnetisierung stark beeinflussen und somit als „pinning site“ Einfluss auf die Gestalt der magnetischen Domänen nehmen. Die gezeigte, grundsätzliche Gestalt der Domänenlandschaft liegt auf der gesamten Probe vor, welche einen Durchmesser von 0,8 mm besitzt. Daher sind lokale Unregelmäßigkeiten beim Co-Aufdampfungsprozess auszuschließen. Das Verhalten des Films unter einem Magnetfeld ist eine interessante Fragestellung; eine nachträgliche Aufmagnetisierung des Films ist mit der eingesetzten Messapparatur allerdings nicht möglich. Schließlich sei erwähnt, dass die Probe in der Ultrahochvakuumatmosphäre sehr stabil ist und auch nach Wochen noch magnetischer Kontrast messbar ist. Die Absenkung der Austrittsarbeit über die Aufbringung von Caesium muss dann jedoch wiederholt werden.

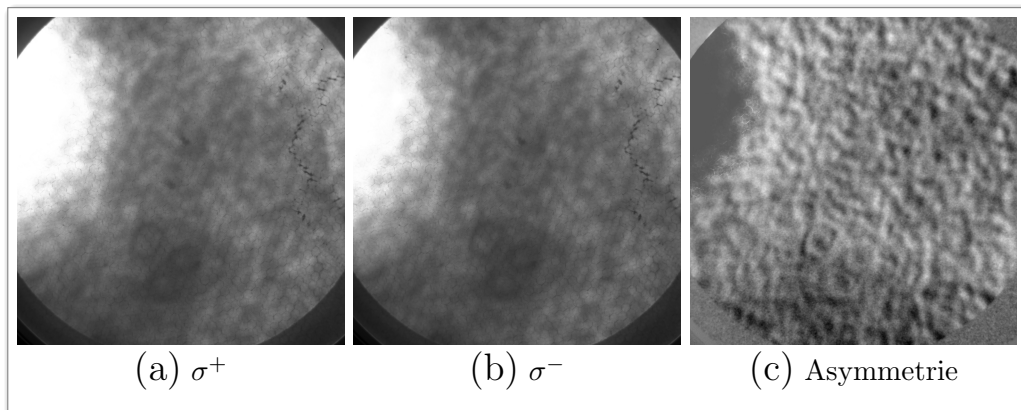
### 5.3 Ansatz zur Durchführung zeitaufgelöster Messungen

Um Zeitauflösung in die Messungen zu integrieren, wurde ein Pump-Probe-Setup aufgebaut. Hierin werden zwei Laserpulse auf die Probenoberfläche geschickt, welche sich zeitlich durch ein genau festgelegtes Intervall unterscheiden. Der erste „Pump“-Laserpuls besitzt eine hohe Leistung sowie eine niedrige Photonenenergie. Über den hohen absoluten Energieeintrag kann die Magnetisierungsstruktur der Probe transient beeinflusst werden. Der nach zeitlicher Verzögerung auftretende, zweite Laserpuls („Probe“) soll darauffolgend ein Bild der Probe erzeugen. Er besitzt eine Photonenenergie, die ausreichend hoch ist, um Photoemission zu betreiben. Über eine Variation des zeitlichen Abstandes zwischen Pump und Probe erhält man eine stroboskopische Abbildung mit definierter Verzögerung. Damit kann das zeitliche Verhalten der Domänenstruktur studiert werden.

In dieser Arbeit wurde darauf abgezielt, das Co/Pt-Filmsystem durch den Pump-Puls zu entmagnetisieren, also lokal das magnetische Moment zu reduzieren. Um diesen Effekt hervorzurufen, bedarf es hoher Laserleistungen, weshalb der optische Tisch so verändert wurde, dass über einen optischen Strahlteiler ein großer Teil des roten Laserstrahls direkt auf die Probe trifft. Somit stehen an der Kammeringangsoptik hohe Pump-Leistungen von mehr als 500 mW zur Verfügung. Über den Unterschied der Photonenenergien des Pump-Pulses von 1,55 eV und des Probe-Pulses von 3,1 eV sollte gewährleistet sein, dass lediglich letzterer effektiv Photoemission erzeugt. Die Pump-Laserleistung von 500 mW entspricht unter der Annahme eines kreisförmigen Laserspots von  $r=10\ \mu\text{m}$  etwa  $1,99\ \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  an deponierter Energie pro Puls und Fläche. Der Probe-Puls besitzt im Vergleich etwa  $3,98\ \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$ .

### 5.3.1 Ergebnisse

Wird der rote Pump-Laserstrahl blockiert und der blaue Probe-Laserstrahl passend auf die Probe justiert, entspricht das resultierende Bild der Darstellung aus Abbildung 5.2. Lenkt man bei identischer Einstellung zusätzlich den Pump-Strahl auf die Probe, geht die Bilderfassung in Sättigung und die Struktur im Bild wird überstrahlt. Wie in den Abbildungen 5.7(a) und (b) gezeigt, wird zur Veranschaulichung des Effekts der rote Laserstrahl leicht versetzt, so dass er im Bild nur in der linken oberen Ecke zu sehen ist. Im Asymmetriebild (c) geht als Resultat jegliche magnetische Bildinformation verloren. In den Bereichen, welche nicht in Sättigung liegen, ist eine grobe Struktur zu erkennen. Hierbei handelt es sich um topografischen Kontrast der Probenoberfläche.



**Abbildung 5.7:** Grenzen des verwendeten Pump-Probe-Setups. (a)(b) Aufnahmen der Oberfläche bei gleichzeitiger Verwendung von  $h\nu=1,55\text{ eV}$ ,  $500\text{ mW}$  und  $h\nu=3,1\text{ eV}$ ,  $1\text{ mW}$ . (c) Resultierendes Asymmetriebild. Durch die benötigte hohe Leistung des roten Lasers trägt dieser bereits zur Bildgebung bei. Das direkte Zentrum des roten Laserspots befindet sich links außerhalb des Bildausschnitts. Dennoch reicht die Leistung aus, um den Detektor zu sättigen (linker Kreisabschnitt) und im Randbereich des Laserspots topografischen Kontrast zu erzeugen. Das dargestellte Bild ist nicht um eine mögliche Drift korrigiert und kann daher artefaktbehaftet sein.

### 5.3.2 Diskussion

Bei den für Magnetisierungsänderungen erforderlichen Leistungen erzeugt der rote Pump-Laserpuls mehr Photoelektronen, als der blaue Probe-Laserpuls. Der Detektor geht in Sättigung, sobald der rote Puls die abgebildete Region trifft. Bereits die Leistung des roten Lasers am Rand des eigentlichen Spots genügt, um zur Bildgebung beizutragen. Da für die entsprechenden, geringen Photonenenergien Multi-Photonen-Photoemissionsprozesse dominieren, ist das Bild stark von der Topographie der Probe abhängig. Unregelmäßigkeiten des Lagenwachstums werden sichtbar und überlagern die magnetische Domänenstruktur. Mit dem vorhandenen Pump-Probe-Aufbau ist es nicht möglich, zeitaufgelöste Messungen zu

realisieren. Zwar kann ein statisches Bild mit magnetischem Kontrast aufgenommen werden, wenn nur einer der beiden Laserstrahlen verwendet wird, doch bei gleichzeitiger Verwendung beider Laserstrahlen ergibt sich folgende Problematik: Einerseits muss der Pump-Puls eine möglichst hohe Leistung besitzen, um die Magnetisierung der Probe effektiv zu manipulieren. Andererseits wurde im Rahmen dieser Arbeit (siehe Abbildung 5.4) gezeigt, dass der Probe-Puls der Raumladungsproblematik unterliegt, und demnach in seiner Leistung nicht stärker als etwa 1 mW sein sollte. Diese beiden Voraussetzungen ergeben im Rahmen der PEEM-Technik einen unüberbrückbaren Gegensatz. Ein hinreichend brauchbarer Pump-Puls erzeugt ein helleres Bild, als der designierte Probe-Puls. In direkter Folge wird außerdem die Oberflächenstruktur der Probe bei Verwendung des Pump-Pulses sichtbar (Abbildung 5.7): Die hohe Laserintensität bewirkt, dass trotz niedriger Photonenenergie von  $h\nu=1,55$  eV Photoemission in großem Maße stattfindet, jedoch ausschließlich über Multi-Photonen-Photoemissionsprozesse. Deren Effektivität variiert stark mit lokalen Unterschieden in Austrittsarbeit und Struktur, weshalb diese als topografischer Kontrast in den nicht übersättigten Randbereichen des roten Laserspots in Erscheinung treten. Besonders deutlich wird diese Abhängigkeit an lokalen Verunreinigungen und Partikeln der Oberfläche. Hier koppelt das Laserlicht über plasmonische Effekte [68] ein, was die Effektivität der Photoemission dort noch stärker erhöht: Lokal wird eine sehr hohe Intensität gemessen.

Ein Lösungsansatz für das existierende Problem könnte in der Verwendung eines geänderten Laser-Setups liegen. Über eine Frequenzvervierfachung des roten Laserstrahls ergäbe sich für den Probe-Puls eine höhere Photonenenergie von  $h\nu=6$  eV. Dadurch wäre ohne Absenkung der Austrittsarbeit die Bildgebung mittels 1PPE möglich. Gleichzeitig ergäbe sich dadurch eine stark verringerte Photoemissionseffizienz für die Photonen des Pump-Lasers mit  $h\nu=1,55$  eV. Aktuelle Femtosekundenlaser besitzen weitaus höhere Laserleistungen von teilweise 4 W und mehr (bei einer Repetitionsrate von 80 MHz). Sie bieten dadurch sowohl höhere Reserven für die Frequenzkonversion, als auch für die Pump-Leistung.

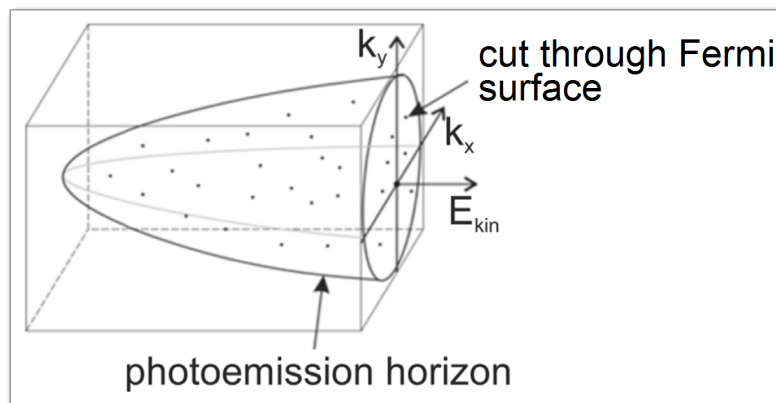
In der Zusammenfassung dieser Arbeit (Kapitel 7) wird dieser Lösungsansatz näher diskutiert und ein Ausblick auf zukünftige Experimente gegeben.



## 6 Flugzeit-Impulsmikroskopie an Co/Pt(111)-Systemen

Mit fortschreitender Entwicklung physikalischer Messapparaturen und damit einhergehender Erhöhung des zu erreichenden Informationsumfangs, lassen sich immer umfassendere Kenntnisse über Effekte wie den magnetischen Zirkulardichroismus sammeln. Über die Bestimmung der MCD-Asymmetrie in *Photostrommessungen* an unterschiedlichen Proben konnten erste Erkenntnisse über die zugrundeliegende Physik gewonnen werden.

Die durchgeführten *ortausgelösten* Messungen konnten die grundsätzliche Eignung der MCD-Asymmetrie als magnetischer Kontrastmechanismus bestätigen. Um noch tiefer gehende Kenntnisse über die Ursache der MCD-Asymmetrie zu erlangen, wurde in dieser Arbeit eine Analyse der Bandstruktur durchgeführt. Sie gibt Aufschluss darüber, aus welchen Zuständen des Festkörpers die Photoelektronen stammen, welche für die MCD-Asymmetrie verantwortlich sind. Das Flugzeit-Impulsmikroskop (Abschnitt 3.2.3, siehe auch [16]) gewährt diesen „Blick“ in die Bandstruktur. Der gemessene Energie-Impuls-Paraboloid (Abbildung 6.1) ist ein dreidimensionaler Körper, der durch den Photoemissionshorizont sowie durch die Fermi-Kante begrenzt wird, bestehend aus den Voxeln  $I(E_B, k_x, k_y)$ .

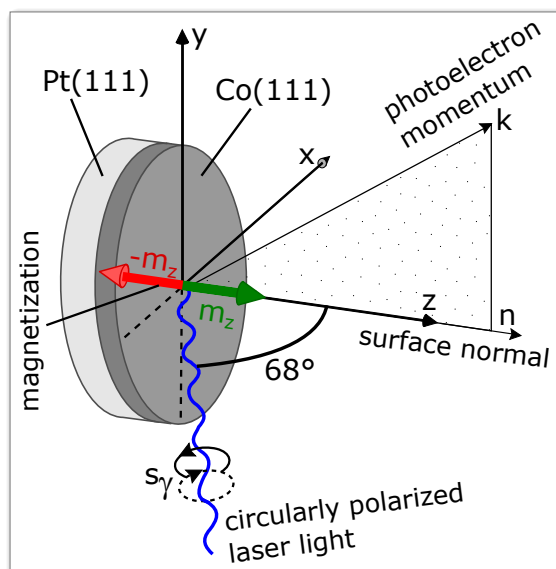


**Abbildung 6.1:** Die 3D-Datenmatrix und die Voxel  $I(E_B, k_x, k_y)$  werden durch den Photoemissionshorizont (in Form eines Paraboloiden) und einen Schnitt durch die Fermi-Oberfläche begrenzt (nach [69]).

## 6.1 Untersuchungen von fcc Co(4,5 ML)/Pt(111)

### 6.1.1 Messaufbau und Probenherstellung

Es wurde eine eigene Präparationskammer aufgebaut und an das k-Mikroskop angeflanscht. Darin wurde eine Probe analog zu den ort aufgelösten Messungen (Kapitel 5) hergestellt. Entsprechend wurde der Pt(111)-Kristall, wie in Abschnitt 3.1.1 beschrieben, präpariert und anschließend über einen EFM-Verdampfer mittels Molekularstrahlepitaxie ein wenige Atomlagen dicker Co-Film aufgetragen. Die Schichtdickenbestimmung erfolgte über eine Quarz-Waage. Über ein integriertes LEED-System wurde die Qualität der Probe fortlaufend kontrolliert. Über einen in situ Transfer wurde die Probe aus der Präparationskammer in ein Zwischenmagazin überführt. Hierbei besteht die Möglichkeit, die Probe umzumagnetisieren (siehe Abschnitt 3.2.4). Über einen weiteren in situ Transfer wurde die Probe vor das Impulsmikroskop gefahren. Für die Messungen wurde die Probe nicht im „virgin state“ belassen: Nach Aufmagnetisierung der Probe wurde das Impulsbild erfasst. Der Bereich der Probenoberfläche, aus dem die austretenden Photoelektronen detektiert werden, wird durch ein Gesichtsfeld von mehr als  $10\ \mu\text{m}$  begrenzt.



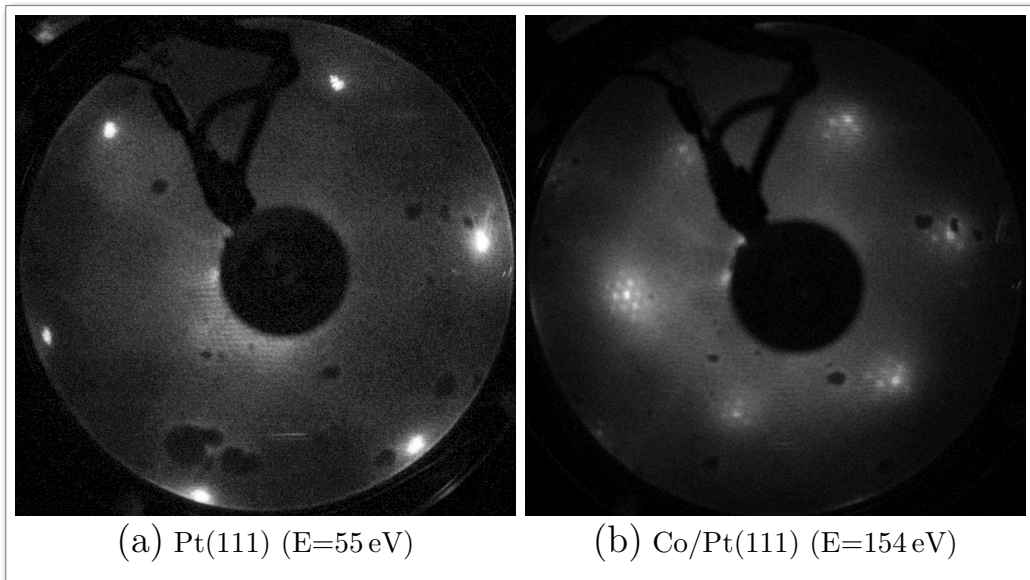
**Abbildung 6.2:** Messanordnung für ToF k-Mikroskopie an senkrecht magnetisierten ( $m_z$  und  $-m_z$ ) fcc Co(111)(4,5 ML)/Pt(111)-Proben.

Der Einfallswinkel des zirkular polarisierten Laserstrahls beträgt  $68^\circ$ , bezogen auf die Oberflächennormale  $\vec{n}$ .

Der Strahl des Ti:Saphir-Lasers passiert ein  $\lambda/2$ -Verzögerungsplättchen und einen Polarisator, der p-Polarisation im Bezug auf die Probenoberfläche transmittiert. Die Zirkularpolarisation wird anschließend über ein manuell einstellbares  $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen erreicht. Der zirkular polarisierte Laserstrahl passiert eine Linse und tritt durch ein Quarzfenster in die Vakuumkammer ein. Dort wird er durch eine weitere Linse auf die Probe fokussiert. Der Eintrittswinkel beträgt  $68^\circ$  (Abbildung 6.2). Die Bilderfassung erfolgt über einen Delayline-Detektor, der über ein Graphical User Interface über einen PC ausgelesen wird. Es wurden Messungen sowohl an der sauberen Probenoberfläche, als auch bei durch Cs-Deposition verringerter Austrittsarbeit, durchgeführt.

Alle Messungen erfolgten bei Raumtemperatur, bei der eine thermische Energieverbreiterung der Fermi-Kante von 100 meV zu erwarten ist.

Die PEEM-Messungen (Kapitel 5) wurden an Proben mit Schichtdicken von etwa 4,5 Monolagen Co durchgeführt, die eine senkrechte Magnetisierung aufweisen und eine hohe MCD-Asymmetrie hervorrufen. Die Magnetisierungsrichtung der Probe wird im Folgenden als  $m_z$  und  $-m_z$  bezeichnet. Die Untersuchung der Bandstruktur eines Co(4,5 ML)/Pt(111)-Systems mit Hilfe des k-Mikroskops ist daher naheliegend. Das LEED-Bild (Abbildung 6.3) stimmt gut mit derjenigen Probe, an der zuvor die orts aufgelösten Messungen durchgeführt werden (Abbildung 5.1), überein. Es zeigt sich die saubere Oberfläche mit ihrer dreizähligen Symmetrie und Moiré-Struktur.



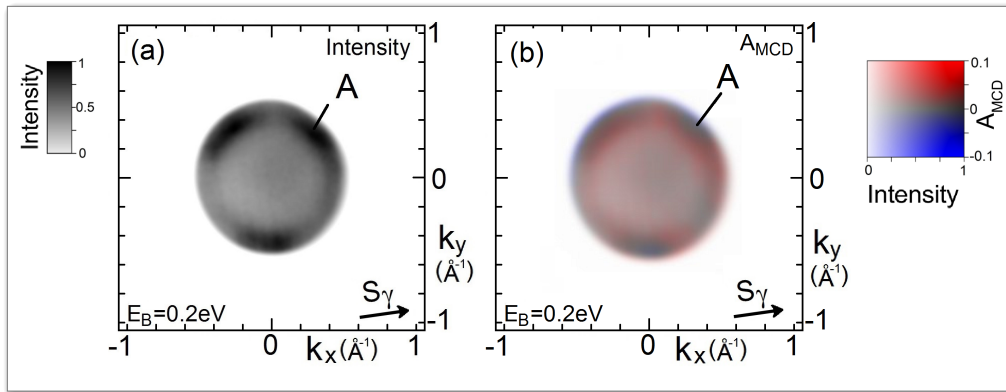
**Abbildung 6.3:** LEED-Bilder des Pt(111) Einkristalls (a) vor und (b) nach Bedampfen mit 4,5 Monolagen Co. Nach Aufdampfen des Co-Films zeigt das LEED-Bild der Co(4,5 ML)/Pt(111)-Oberfläche dieselbe Struktur wie für die Probe (Abbildung 5.1), die für die orts aufgelösten PEEM-Messungen genutzt wurde.

### 6.1.2 Photoemission mit $h\nu \approx 3,1 \text{ eV}$

Die ersten Messungen wurden an der frisch präparierten und magnetisierten Probenoberfläche bei  $h\nu = 3,1 \text{ eV}$  durchgeführt. Im Folgenden werden Schnittflächen durch den Paraboloid (Abbildung 6.1) dargestellt und diskutiert. Die MCD-Asymmetrie wird bestimmt, indem mehrere Bilder bei unterschiedlicher Helizität der Photonen sowie unterschiedlicher Magnetisierung aufgenommen (siehe Kapitel 2.10) und entsprechend (Voxel für Voxel) miteinander gemäß Gleichung 2.70 verrechnet werden:

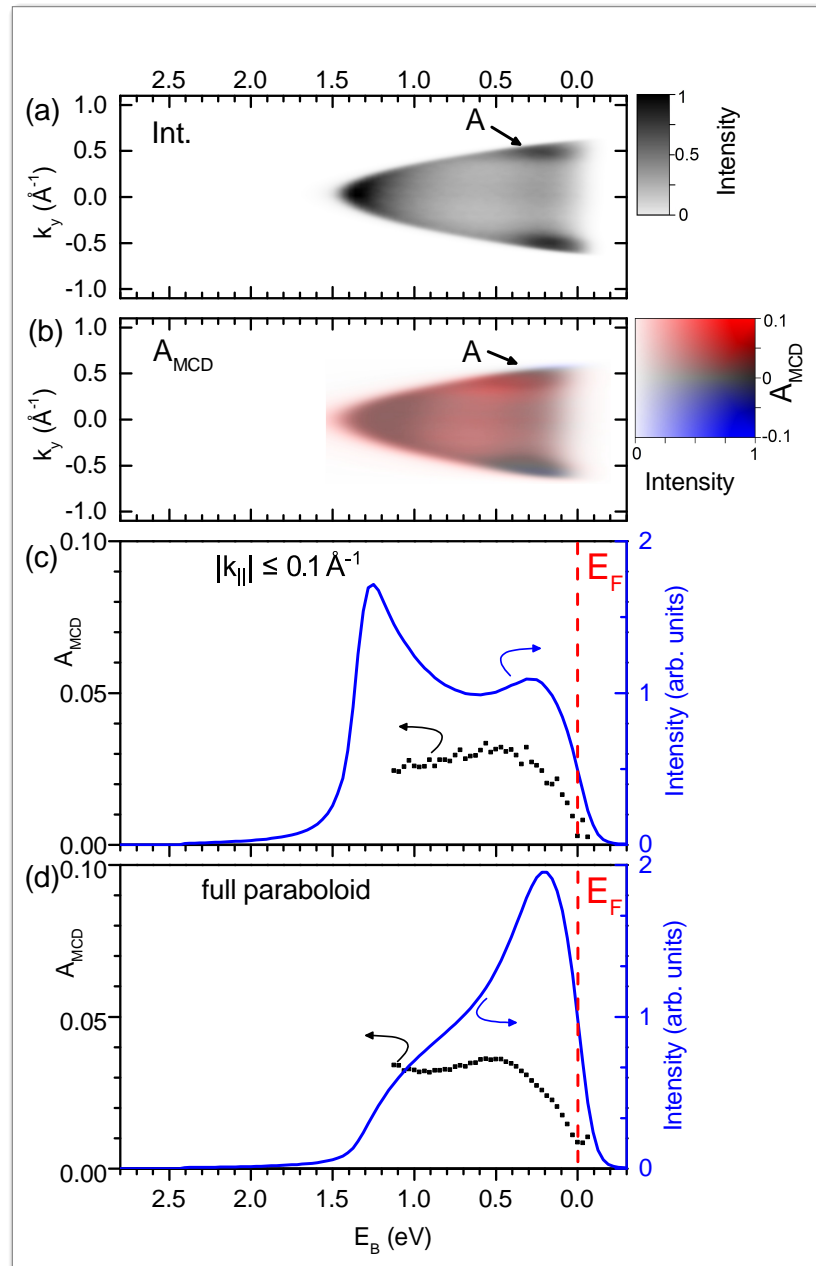
$$\begin{aligned}
 A_{\text{MCD}} &= \\
 &= \frac{\sqrt{I_{M\uparrow}^{\sigma^+}(E_B, k_x, k_y)I_{M\downarrow}^{\sigma^-}(E_B, k_x, k_y)} - \sqrt{I_{M\downarrow}^{\sigma^+}(E_B, k_x, k_y)I_{M\uparrow}^{\sigma^-}(E_B, k_x, k_y)}}{\sqrt{I_{M\uparrow}^{\sigma^+}(E_B, k_x, k_y)I_{M\downarrow}^{\sigma^-}(E_B, k_x, k_y)} + \sqrt{I_{M\downarrow}^{\sigma^+}(E_B, k_x, k_y)I_{M\uparrow}^{\sigma^-}(E_B, k_x, k_y)}}
 \end{aligned}
 \quad (6.1)$$

Hierdurch kann der Anteil des nichtmagnetischen Dichroismus eliminiert werden. Abbildung 6.4 zeigt einen Schnitt in der  $k_x$ - $k_y$ -Ebene bei konstanter Bindungsenergie von  $E_B = 0,2 \text{ eV}$ . Zu sehen sind (a) das reine Intensitätsbild sowie (b) eine Darstellung der MCD-Asymmetrie.



**Abbildung 6.4:**  $k_x$ - $k_y$ -Schnitt der Intensität (a) und MCD-Asymmetrie (b) für die saubere Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $2h\nu = 6,2 \text{ eV}$ . Die  $k_x$ - $k_y$ -Schnitte durch den  $E$ - $k$ -Paraboloid korrespondieren zu einer Bindungsenergie von  $E_B = 0,2 \text{ eV}$ .  $A_{\text{MCD}}$  wurde nach Gleichung 6.1 berechnet.  $S_\gamma$  kennzeichnet die in-plane-Komponente des Photonenhelizitätsvektors.

Ein  $E$ - $k$ -Querschnitt durch den Impuls-Energie Paraboloid ( $k_x=0$ ) ist in Abbildung 6.5 dargestellt. Zu sehen sind (a) die Intensitätsverteilung und (b) eine Darstellung der MCD-Asymmetrie. Darunter abgebildet ist die quantitative Auswertung der Messung.



**Abbildung 6.5:**  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die saubere Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe mit  $\Phi = 4,8 \text{ eV}$  in 2PPE bei  $2\hbar\nu = 6,2 \text{ eV}$ . (a) Intensität und (b) MCD-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{\AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid.

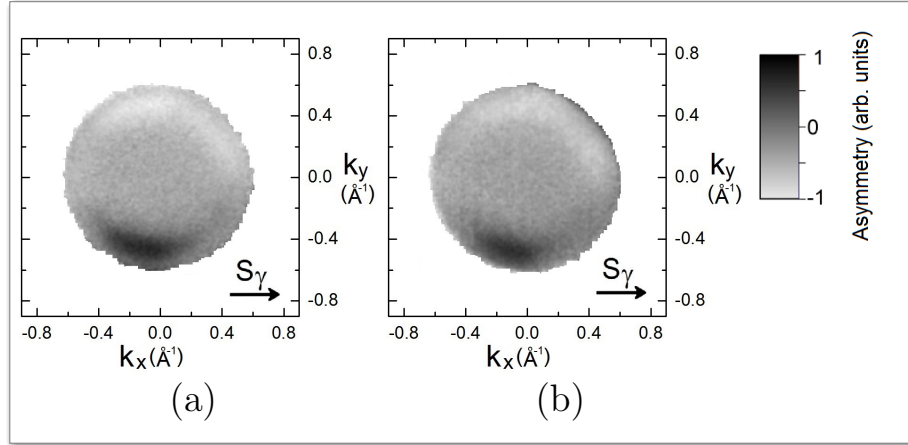
Die Profile von Intensität und Dichroismus wurden jeweils (c) integral über den kompletten Paraboloid (etwa  $\pm 0,58 \text{ \AA}^{-1}$  an der Fermi-Energie) sowie (d) um den  $\bar{\Gamma}$ -Punkt, in einem Bereich von  $\pm 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ , ausgewertet. Die gemessene Tiefe des Paraboloids in Abbildung 6.5 beträgt  $1,4 \text{ eV}$ , darunter nimmt die gemessene Intensität sehr stark ab. Die Austrittsarbeit der Co-Oberfläche beträgt demnach  $2 \cdot 3,1 \text{ eV} - 1,4 \text{ eV} = 4,8 \text{ eV}$ , da aufgrund der hohen Austrittsarbeit der Oberfläche mindestens zwei Photonen benötigt werden, um ein Elektron auszulösen. Der Literaturwert der Austrittsarbeit liegt bei  $\Phi_{Co} = 5,0 \text{ eV}$ . Die größten Impuls-  
werte betragen gemäß Gleichung 2.47  $k_x = k_y = 0,58 \text{ \AA}^{-1}$ . Es zeigt sich ein Band nahe an der Fermi-Energie, Merkmal A, überlagert von einer relativ homogenen Hintergrundintensität.

Das Merkmal tritt in einem Bereich von  $0 < E_B < 0,5 \text{ eV}$  (Maximum bei  $0,2 \text{ eV}$ ) am Rand des Paraboloids respektive für  $k_{\parallel} = 0,5 \text{ \AA}^{-1}$  auf. Betrachtet man diese Bereiche im  $k_x$ - $k_y$ -Schnitt (Abbildung 6.4), so lässt sich ein Ring mit erhöhter Intensität erkennen. Der Ring hat drei Intensitätsmaxima, die die dreizählige Symmetrie des Systems widerspiegeln. Die untersuchte Oberfläche besitzt eine dreizählige Symmetrieachse  $\Gamma$ -L senkrecht zur Oberfläche. Die Einfallsrichtung des Laserlichts, gekennzeichnet mit dem Helizitätsvektor  $S_{\gamma}$ , bricht hierbei die Symmetrie.

Die MCD-Asymmetrie beträgt an der Fermi-Energie nur circa  $1 \%$ , steigt im Bandmaximum bis zu etwa  $3,5 \%$  bei  $E_B = 0,5 \text{ eV}$  und fällt dann bis zu  $E_B = 1,2 \text{ eV}$  wieder leicht auf einen Wert von etwas mehr als  $3 \%$ . Da sich aufgrund der Austrittsarbeitsvariationen während der Messung der Boden des Paraboloids leicht verschieben kann, wurden Energien in der Nähe der linken Abschneidekante bei der Asymmetriebildung ausgespart.

Die Bereiche hoher Intensität nahe der Fermi-Energie zeigen eine nichttriviale Asymmetrieverteilung. Die ringartige Struktur wechselt von einer positiven zu einer negativen Asymmetrie, an den Positionen der drei Intensitätsmaxima (blauer Farbton in Abbildung 6.4(b) und Abbildung 6.5(b)). Aufgrund dieses Vorzeichenwechsels erscheint in der Kurve eine schwächere, integral gemessene Asymmetrie im Bereich der Fermi-Energie.

Wie in Kapitel 2.10 erläutert wurde, ist dem magnetischen Zirkulardichroismus ein ausgeprägter, nichtmagnetischer CDAD überlagert. Die in Abbildung 6.4(a) dargestellte Intensitätsverteilung entstand aus zwei Messungen bei unterschiedlicher Lichthelizität, welche anschließend gemittelt wurden. Aufgrund des CDAD unterscheiden sich die Intensitätsverteilungen dieser beiden Einzelmessungen voneinander sehr stark.



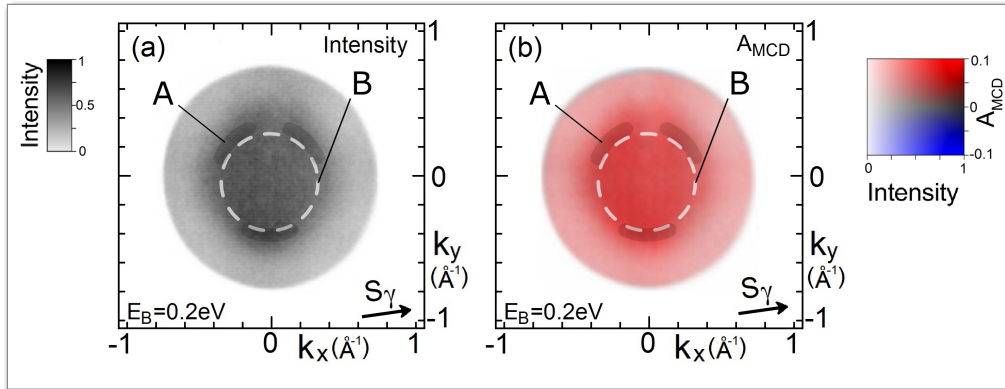
**Abbildung 6.6:** Beitrag des nichtmagnetischen CDAD in Band A mit dreizähliger Symmetrie. (a,b)  $E=\text{const.}$ -Schnitte der Asymmetrie (CDAD+MCD) bei  $E_B=0,2\text{ eV}$  (zwischen  $I^{\sigma^+}$  und  $I^{\sigma^-}$ , bei konstanter Magnetisierungsrichtung), berechnet nach Gleichung 2.66. Zwischen den Messungen (a) und (b) wurde die Magnetisierung umgepolt.

Deutlich wird dies in der Asymmetrieverteilung (Abbildung 6.6), welche unter Verwendung der Formel 2.66 berechnet wurde. Sie zeigt Schnitte für  $E_B=0,2\text{ eV}$  und basiert auf der gleichen Messung wie 6.4(a). Das Asymmetriebild 6.6(a) resultiert aus dem Unterschied von  $I^{\sigma^+}$  und  $I^{\sigma^-}$ , bei konstanter Magnetisierungsrichtung. Der Wechsel der Lichthelizität führt innerhalb der Ringstruktur zu einer deutlich sichtbaren oben-unten-Asymmetrie. Polt man die Magnetisierungsrichtung um und wiederholt die Messung, ändert sich das Vorzeichen der Asymmetrie jedoch nicht. Dies ist die typische Signatur des CDAD bei der vorgegebenen Richtung des Helizitätsvektors  $S_\gamma$ , vergleiche [51]. Es ist deutlich zu sehen, dass der CDAD ausschließlich innerhalb dieser Ringstruktur A sichtbar wird. Wie in Kapitel 2.10 erläutert, wurde zur Berechnung von Abbildung 6.4(b) und Abbildung 6.5(b) daher die angepasste Formel 6.1 verwendet.

Nach Cäsierung der Probe (Ausführung folgt in Kapitel 6.1.3) und für dickere Co-Filme (folgt in Kapitel 6.2) tritt diese oben-unten-Asymmetrie nicht mehr in Erscheinung.

### 6.1.3 Photoemission mit $h\nu \approx 3,3\text{ eV}$ und reduzierter Austrittsarbeit

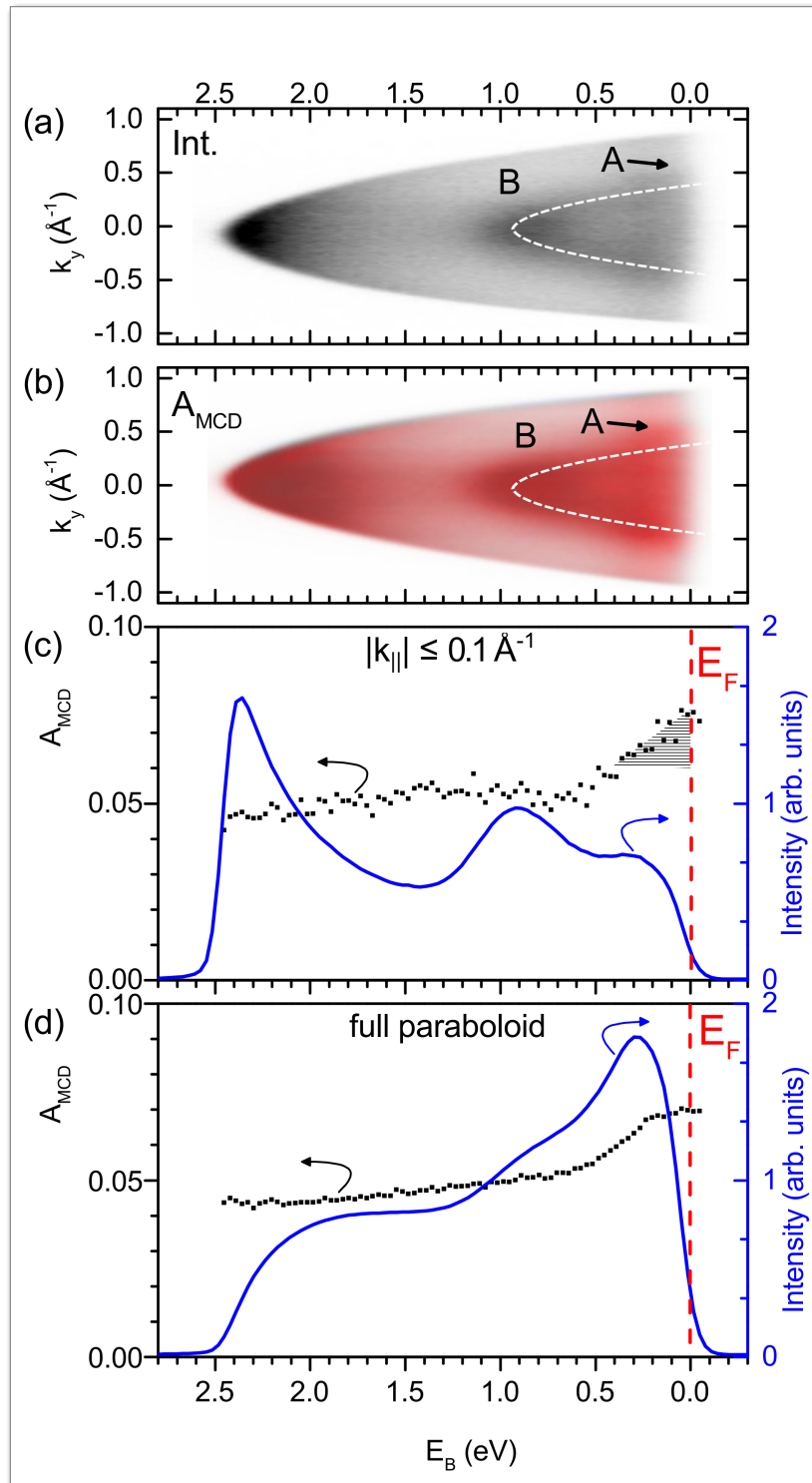
In Photoemissions-Experimenten im schwelennahen Bereich kann die Austrittsarbeit durch Deposition von Cs-Atomen in einem großen Bereich von mehreren eV abgesenkt werden.



**Abbildung 6.7:**  $k_x$ - $k_y$ -Schnitt der Intensität (a) und MCD-Asymmetrie (b) der Zwei-Photonen-Photoemission für die cäsiierte Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe bei  $\Phi = 4,1\text{ eV}$  bei  $2h\nu = 6,6\text{ eV}$ . Die  $k_x$ - $k_y$ -Schnitte durch den  $E$ - $k$ -Paraboloid korrespondieren zu einer Bindungsenergie von  $E_B = 0,2\text{ eV}$ .  $S_\gamma$  kennzeichnet die in-plane-Komponente des Photonenhelizitätsvektors.

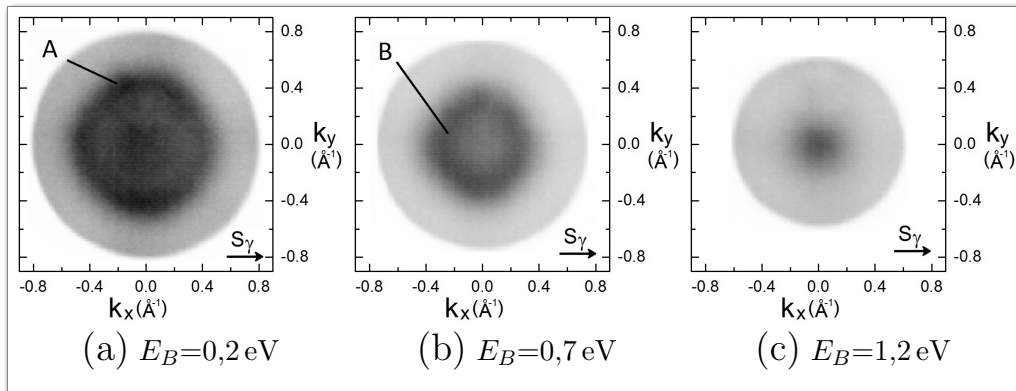
Betrachtet man die Schnitte durch den  $E$ - $k$ -Paraboloid (Abbildungen 6.7 und 6.8), so fällt zunächst im Vergleich zur uncäsiierten Probe (Abbildungen 6.4 und 6.5) ein vergrößerter Paraboloid auf, da bei geringerer Austrittsarbeit auch Elektronen aus tiefer liegenden Zuständen über das Vakuumniveau angeregt werden können. Die gemessene Tiefe des Paraboloids beträgt etwa  $2,5\text{ eV}$ . In der Folge ist auch der Radius der  $k$ -Scheiben deutlich erhöht. Die Photonenenergie wurde für diese Untersuchung auf den maximal möglichen Wert erhöht, um einen maximalen Bereich der Bandstruktur untersuchen zu können. Ausgehend von einer Photonenenergie von  $h\nu = 3,3\text{ eV}$  und Anregung in 2PPE ergibt sich für die Austrittsarbeit  $4,1\text{ eV}$  und somit eine Absenkung im Vergleich zur sauberen Oberfläche um etwa  $0,7\text{ eV}$ . Die Zustände nahe der Fermi-Energie, die sich durch eine hohe Intensität und einen hohen CDAD-Effekt auszeichneten (Abbildung 6.6), erscheinen nun in Relation zu den neuen Strukturen viel schwächer. Dominant erscheint vor dem homogenen Hintergrund ein Zustand mit parabelförmiger Dispersion, Merkmal B, mit einem Parabelboden bei  $E_B = 1,2\text{ eV}$  für  $k_{\parallel} = 0$ .





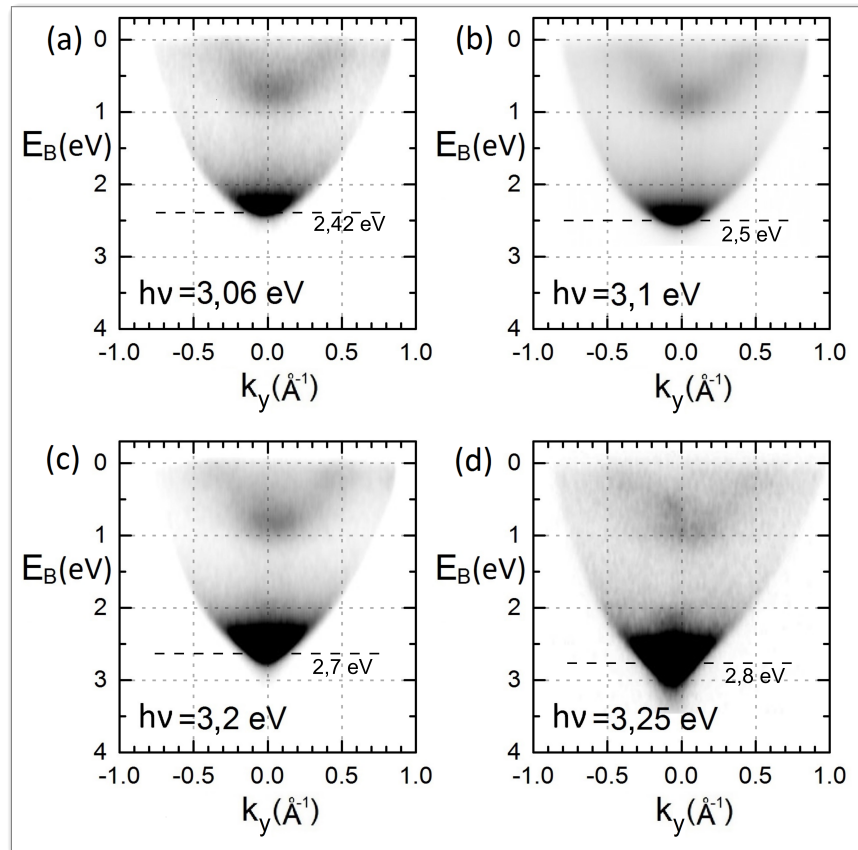
**Abbildung 6.8:**  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die cäsierte Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $\Phi = 4,1 \text{ eV}$  und  $2h\nu = 6,6 \text{ eV}$ . (a) Intensität und (b) MCD-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid. Die Farbskalen der Intensitäts- und Asymmetriemessung entsprechen denjenigen in Abbildung 6.5(a) und (b).

Der Zustand B ist radialsymmetrisch, wie in den entsprechenden  $k_x$ - $k_y$ -Schnitten (Abbildung 6.9) zu sehen ist. Er überlagert die dreizählige Struktur nahe der Fermi-Energie, die für die uncäsierete Oberfläche das Impulsbild stark dominiert.



**Abbildung 6.9:**  $k_x$ - $k_y$ -Schnitte für  $E_B=0,2\text{ eV}$  (a),  $E_B=0,7\text{ eV}$  (b) und  $E_B=1,2\text{ eV}$  (c), 2PPE bei  $2h\nu = 6,6\text{ eV}$ ,  $\Phi=4,1\text{ eV}$ . Der Durchmesser des Ringes B verringert sich entsprechend von (a) über (b) nach (c), der Boden der Parabolischen Zustands B liegt bei etwa  $E_B = 1,2\text{ eV}$  (c). Nahe der Fermi-Energie (a) wird der Zustand von der dreizähligen Struktur A überlagert, welche bereits an der uncäsiereten Oberfläche auftritt.

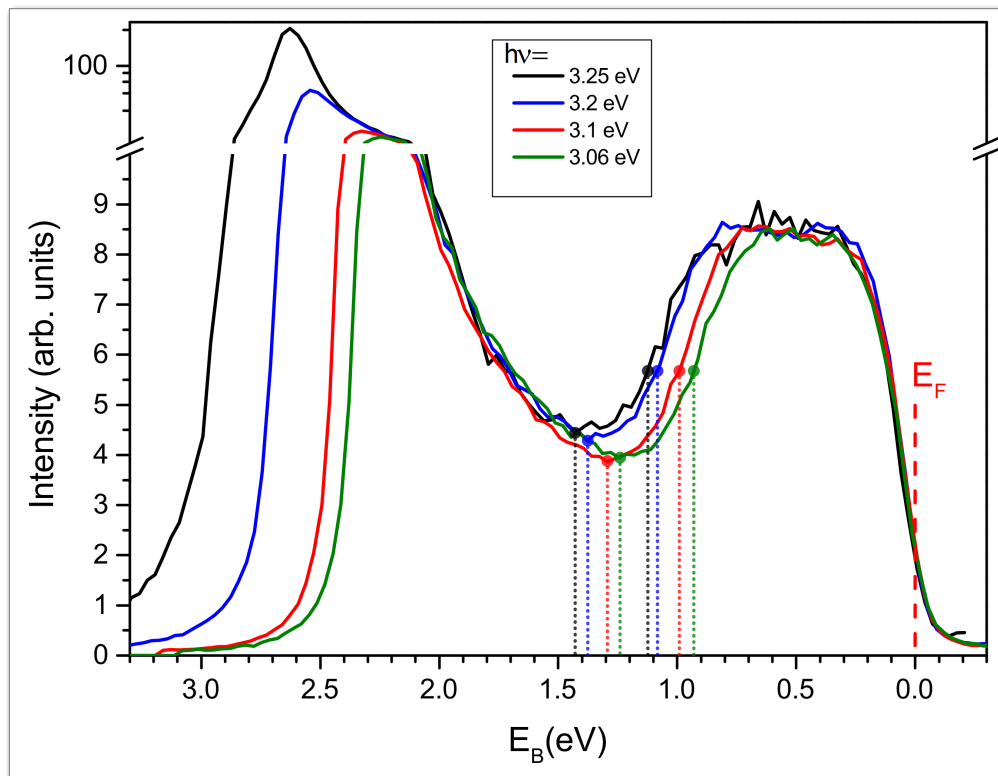
Abbildung 6.10 zeigt  $E$ - $k_y$ -Schnitte durch den Paraboloid, gemessen an der leicht cäsiereten Probe Co(4,5 ML)/Pt(111) ( $\Phi=3,7\text{ eV}$ ) für vier verschiedene Photonenenergien. Mit zunehmender Photonenenergie verschiebt sich der Boden des Paraboloiden deutlich nach unten, quantitativ um den doppelten Betrag der Zunahme der Photonenenergie. Zusätzlich verschiebt sich auch das Band B nach unten (zu höheren  $E_B$ ), jedoch um einen geringeren Betrag. Ab  $h\nu=3,2\text{ eV}$  wird (für den angewandten Grad der Cäsierung) der  $E$ - $k_y$ -Paraboloid ( $k_x=0$ ) durch die einsetzende 1PPE überlagert; er erscheint dadurch verzerrt. Die Lage des Bands B auf der Energieskala, in Abhängigkeit von der verwendeten Photonenenergie, ist nicht konstant. Dies spricht für einen Bildladungszustand. Die quantitative Analyse erfolgt in Abbildung 6.11. Der theoretische Hintergrund von Bildladungszuständen ist in Kapitel 2.6 dargestellt, das Energieschema zur genauen Lage des Bildladungszustands folgt in Abbildung 6.19. Um den Elektronen-Vervielfacher nicht zu beschädigen, muss mit zunehmender 1PPE-Intensität die Laserleistung verringert werden. Dadurch ergeben sich Unterschiede in der Helligkeit am unteren Ende des Paraboloids.



**Abbildung 6.10:** (a-d)  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) durch den Paraboloid für die cäsierte Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe ( $\Phi = 3,7$  eV) in 2PPE, jeweils bei verschiedenen Photonenenergien von 3,06 eV (a), 3,1 eV (b), 3,2 eV (c) und 3,25 eV (d). Das parabolische Band B verschiebt mit zunehmender Photonenenergie nach unten.

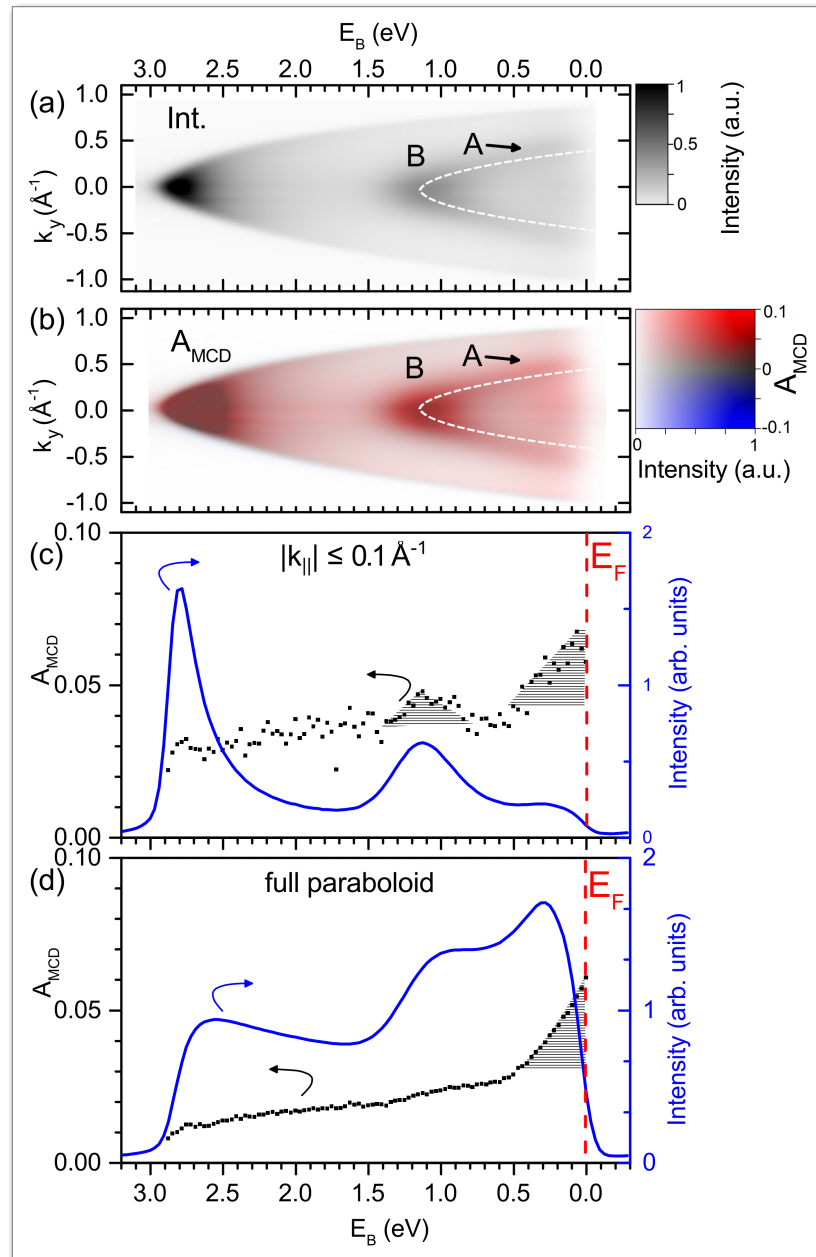
In Abbildung 6.11 sind die entsprechenden Intensitätsprofile im Vergleich aufgetragen. Die Kurven sind so normiert und verschoben, dass die Lage der Fermi-Energie identisch ist und die Höhe der Resonanz durch den Oberflächenzustand bei circa 0,6 eV übereinstimmt.

Wird die Photonenenergie über  $h\nu=3,2$  eV erhöht, so wird das 1PPE-Regime erreicht, welches das 2PPE-Intensitätsprofil überlagert. Dieses Phänomen äußert sich in der überhöhten Intensität am Boden des Paraboloids für die Messung bei  $h\nu=3,25$  eV. Die gestrichelten Linien geben die für einen 2PPE-Prozess erwarteten Positionen an. In (c) und (d) führt der einsetzende 1PPE-Kanal zu einer Änderung der Form des Parabelbodens. Die grafische Analyse der gemessenen Daten (6.10) ergibt, dass der Boden der Parabel des Oberflächenzustands etwa mit der abfallenden Flanke bei etwa 0,9-1,1 eV im Intensitätsprofil zusammenfällt. Eine quantitative Erhöhung der Photonenenergie um etwa 0,2 eV (von 3,06 eV auf 3,25 eV) bewirkt eine Verschiebung des Minimums um 0,2 eV, also etwa denselben Wert. Eben diese Verschiebung lässt sich auch zwischen den Minima bei



**Abbildung 6.11:** Intensitätsprofile der leicht cäsiierten Probe  $\text{Co}(4,5 \text{ ML})/\text{Pt}(111)$ , aufgenommen bei unterschiedlichen Photonenergien ( $\Phi = 3,7 \text{ eV}$ ). Höhere Energien resultieren in tiefer liegenden Böden des Photoemissionsparaboloiden (linke Abschneidekante). Im Intensitätsprofil zeigt sich Band B in einem Intensitätsplateau mit einem Maximum zwischen  $0,6$  und  $0,8 \text{ eV}$ . Der Parabelboden entspricht der abfallenden Flanke der Intensität bei etwa  $0,9$ - $1,1 \text{ eV}$ . Der exakte Wert des Parabelbodens verschiebt sich mit zunehmender Photonenergie, ein Indiz für das Vorliegen eines Bildladungszustands.

bei  $E_B = 1,25 \text{ eV}$  bis  $1,45 \text{ eV}$  feststellen. Die integrale MCD-Asymmetriemessung an der leicht cäsiierten Probe (Abbildung 6.8) zeigt folgende Resultate: An der Fermi-Energie ist die Asymmetrie bereits relativ hoch und liegt bei über  $7\%$ . Mit höheren Bindungsenergien fällt die Asymmetrie wieder auf  $5\%$ . Um den  $\bar{\Gamma}$ -Punkt sinkt die Asymmetrie im Bereich von  $E_B = 0,15 \text{ eV}$  bis  $0,8 \text{ eV}$ , um dann bis zu  $1,2 \text{ eV}$  wieder leicht anzusteigen. Da hier der Bildladungszustand zu finden ist, trägt dieser offenbar deutlich zum MCD bei. Von  $E_B = 1,2 \text{ eV}$  bis zum Boden des Paraboloids bei  $E_B = 2,5 \text{ eV}$  sinkt die Asymmetrie weiter minimal. Es lässt sich ferner keine ausgeprägte  $k$ -Abhängigkeit der MCD-Asymmetrie feststellen. Mit weiterer Absenkung der Austrittsarbeit verändern sich die Asymmetrieprofile (Abbildung 6.12) nur wenig. Das lokale Maximum in der Asymmetrie am Boden des Bildladungszustands B wird jedoch ausgeprägter (schraffiert in Abbildung 6.12(c)). In Abbildung 6.8(c) war das Maximum sehr flach.



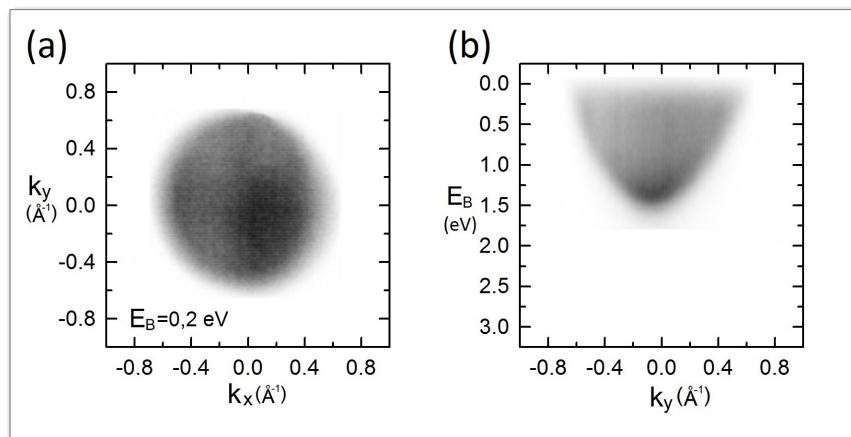
**Abbildung 6.12:**  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die stark cäsiierte Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $\Phi=3,7$  eV und  $2h\nu = 6,6$  eV. (a) Intensität und (b) MCD-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{\AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid.

Ausgehend von einer Photonenenergie von  $h\nu=3,3\text{ eV}$  und einer Anregung in 2PPE ergibt sich in Abbildung 6.12 für die Austrittsarbeit  $3,7\text{ eV}$ , also eine weitere Absenkung um  $0,4\text{ eV}$  im Vergleich zu Abbildung 6.8. Dadurch ist die Austrittsarbeit bereits in einem Bereich, für den 1PPE einsetzt. Dies ist an der starken Intensität am Paraboloidboden zu sehen.

Die integral gemessene MCD-Asymmetrie ist im Bereich von Band A besonders groß (an der Fermi-Energie knapp über 7%) und sinkt bis zum Parabelboden auf einen Wert von knapp über 1%. Das kleine Maximum in (c) zeigt, dass der Zustand B folglich mehr MCD-Asymmetrie trägt als der Untergrund.

Im Vergleich von Abbildung 6.8 und Abbildung 6.12 zeigt sich insgesamt ein zunehmender Anteil an Photoemission des Bildladungszustands.

Eine weitere Absenkung der Austrittsarbeit  $\Phi$  führt dazu, dass ein Großteil der Intensität ausschließlich auf 1PPE zurückzuführen ist. Das entsprechende Resultat ist in Abbildung 6.13 dargestellt. Der Paraboloid besitzt eine Tiefe von  $E=1,5\text{ eV}$ , entsprechend einer Austrittsarbeit von  $\Phi=1,8\text{ eV}$ . Der Paraboloid bildet den gleichen Horizont ab, wie die Messung an der uncäsierten Probe und 2PPE (Abbildung 6.5). Es zeigt sich, dass die Bereiche hoher Intensität nahe der Fermi-Energie, dominant in Abbildung 6.5 und Abbildung 6.6, nicht auftreten. Außerdem ist festzustellen, dass die Bildschärfe sowie das k-Mikroskop unter zu hoher Cäsierung leidet (Intensitätsfluktuationen). Es zeigt sich eine homogene Intensitätsverteilung mit einem leichten Maximum am Boden des Paraboloids. Im Vergleich zur uncäsierten Probe sind die Zustände unterhalb der Fermi-Energie verschwunden. Der in (a) sichtbare Bereich geringer Intensität erscheint wegen eines Defekts des Elektronen-Vervielfachers, der aus einer lokalen Überlastung durch zu hohe Photoemission auftritt. Vor diesem Hintergrund wurde auf weiterführende Messungen und eine Auswertung der MCD-Asymmetrie für diese Probe verzichtet.

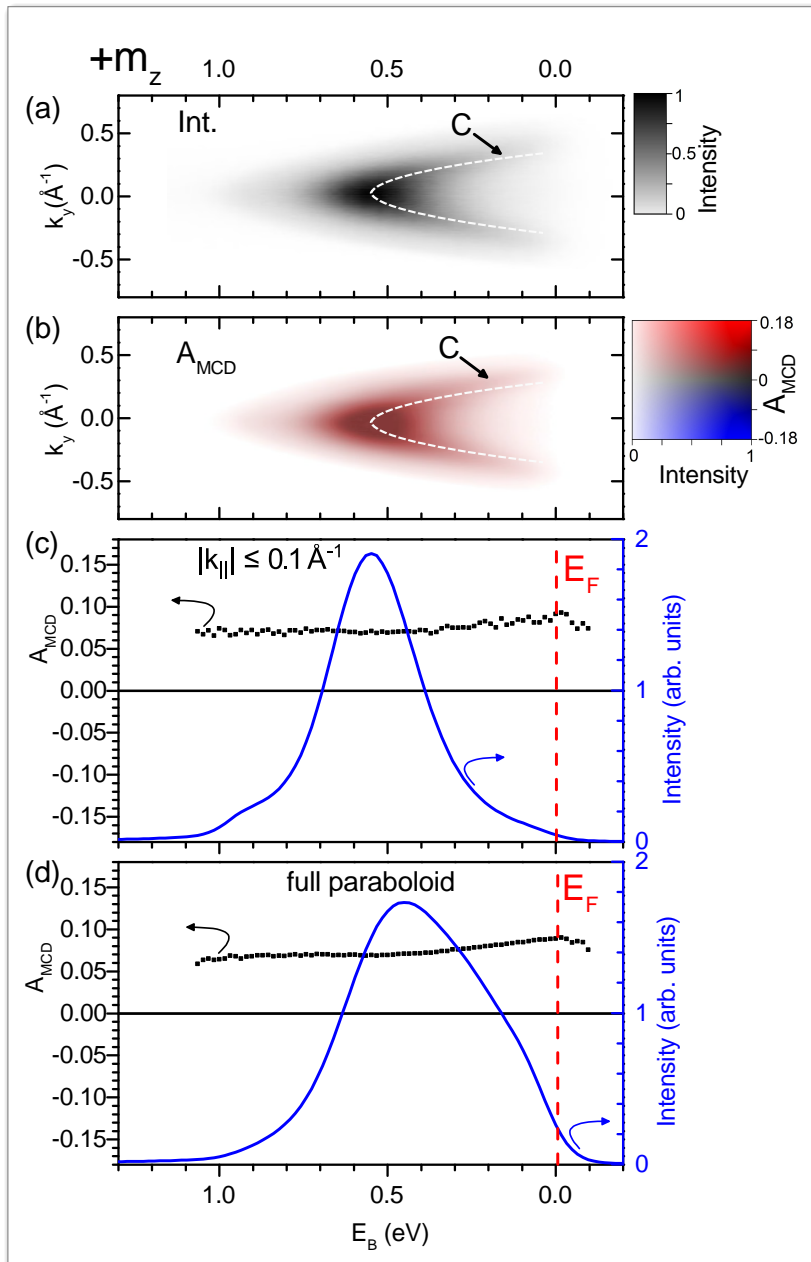


**Abbildung 6.13:**  $E=\text{const.}$ - (a) und  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) (b) im Bereich von Ein-Photon-Photoemission für Co(4,5 ML)/Pt(111), für hohe Cäsierung und sehr stark abgesenkte Austrittsarbeit von  $\Phi=1,8\text{ eV}$  bei  $h\nu = 3,3\text{ eV}$  und 1PPE.

### 6.1.4 Photoemission mit $h\nu \approx 1,65 \text{ eV}$ und reduzierter Austrittsarbeit

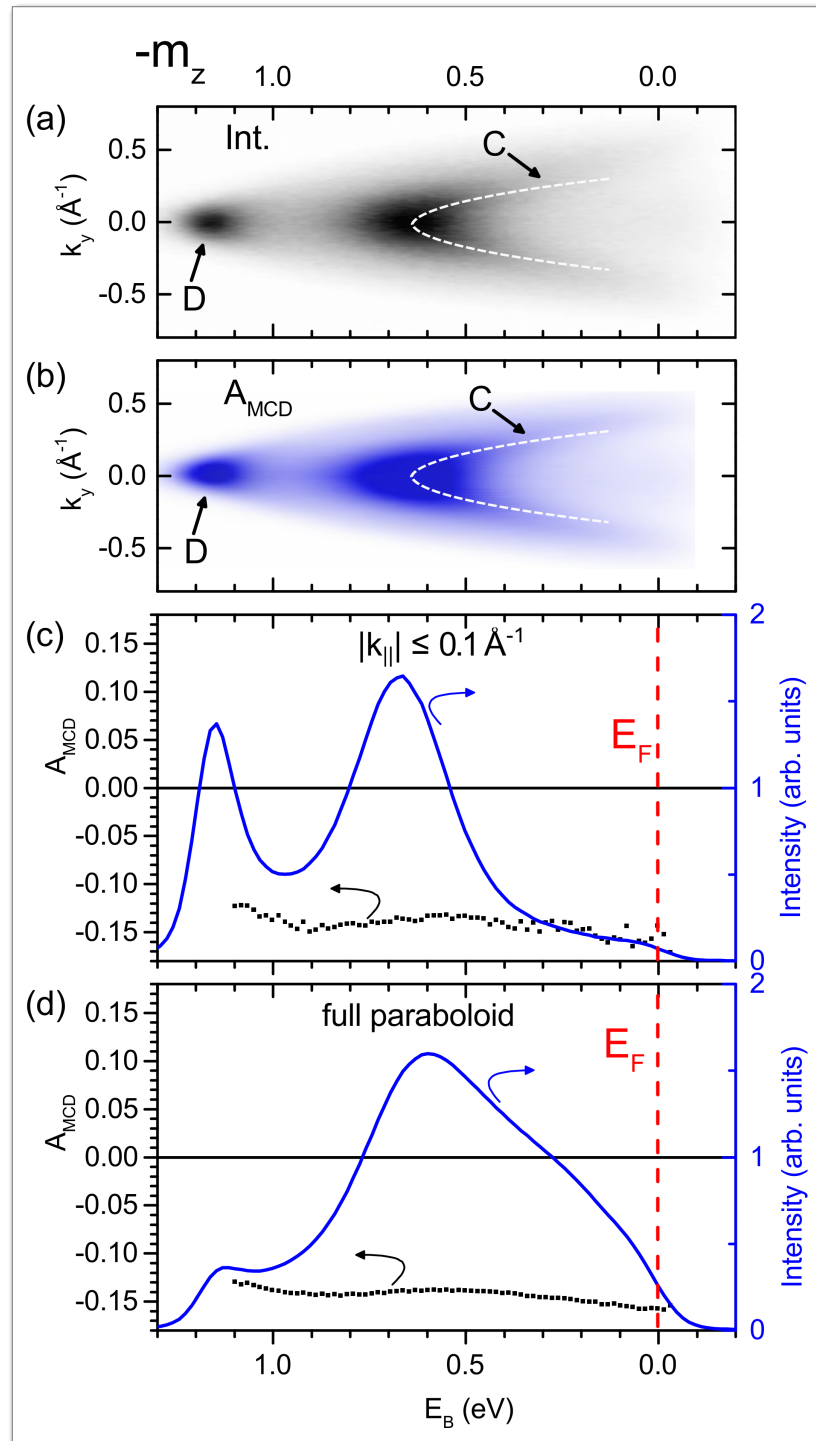
Durch die weitere Cäsierung des Co(4,5 ML)/Pt(111)-Films und die damit verbundene Absenkung der Austrittsarbeit auf bis zu 1,6 eV ergibt sich die Möglichkeit, 2PPE mit der Fundamentalen des Ti:Saphir-Lasers zu betreiben. Die nachfolgenden Messungen wurden für zwei verschiedene Magnetisierungsrichtungen  $m_z$  und  $-m_z$  der Probe durchgeführt. Es ist im Experiment nicht möglich, den Grad der Cs-Bedeckung konstant zu halten; während des Betriebs des Cs-Bedampfers setzen sich Cs-Atome überall in der Kammer ab, was im Bereich der Elektronenoptik und des Elektronen-Vervielfachers Probleme verursachen kann. Daher hat die Probe in den beiden Messreihen, Abbildung 6.14 und Abbildung 6.15, leicht unterschiedliche Austrittsarbeiten. Messung 6.14 zeigt den Paraboloid einer Tiefe von knapp 1 eV. In 2PPE mit einem roten Laser ergibt sich für die Austrittsarbeit  $\Phi=2,3 \text{ eV}$ . Der maximale  $k_{||}$ -Wert beträgt  $k_{||}=0,51 \text{ \AA}^{-1}$ . Der Bildladungszustand, hier Merkmal C, ist sehr dominant und trägt einen Großteil der Intensität. Die MCD-Asymmetrie in der Nähe der Fermi-Energie beträgt etwa 9 % und sinkt für höhere Bindungsenergien auf etwa 7 % für  $E_B=0,5 \text{ eV}$ . Bis zum Erreichen des Parabelbodens bleibt die Asymmetrie konstant bei diesem Wert. Es gibt keinen qualitativen Unterschied zwischen der am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt gemessenen und der integral ausgewerteten Kurve.

Die Messung für dieselbe, aber ummagnetisierte Probe, Abbildung 6.15, zeigt einen ähnlichen Paraboloid, der allerdings etwas größer ist. Die Tiefe lässt sich auf 1,3 eV beziffern, woraus sich  $\Phi=2 \text{ eV}$  ergibt. Die am Boden des Paraboloids bereits stark ansteigende Intensität, Merkmal D, signalisiert die Annäherung an das 1PPE-Regime. Unabhängig von der Magnetisierungsrichtung tritt wieder Band C mit einem Maximum bei  $E_B=0,65 \text{ eV}$  auf. Die Analyse der MCD-Asymmetrie zeigt, dass sich im Zuge der Ummagnetisierung der Probe auch das Vorzeichen der MCD-Asymmetrie umkehrt. Der Absolutbetrag der Asymmetrie ist etwa 17 % an der Fermi-Energie und fällt bis auf 14 % bei  $E_B=0,5 \text{ eV}$ , um dann wieder auf einen Wert von 15 % bei  $E_B=0,9 \text{ eV}$  zu steigen. Am Parabelboden sinkt der Absolutbetrag der Asymmetrie nochmal um etwa 2 %. Im Vergleich ergibt sich für unterschiedliche Magnetisierungsrichtungen dasselbe qualitative Verhalten, allerdings mit einem Offset. Es zeigt sich der erwartete Vorzeichenwechsel als Folge des MCD-Effekts (Erläuterungen folgen in Kapitel 6.1.5).



**Abbildung 6.14:**  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die cäsierete Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $\Phi=2,3$  eV und  $2h\nu=3,3$  eV. (a) Intensität und (b) MCD-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid. Die Magnetisierungsrichtung ist  $+m_z$ .



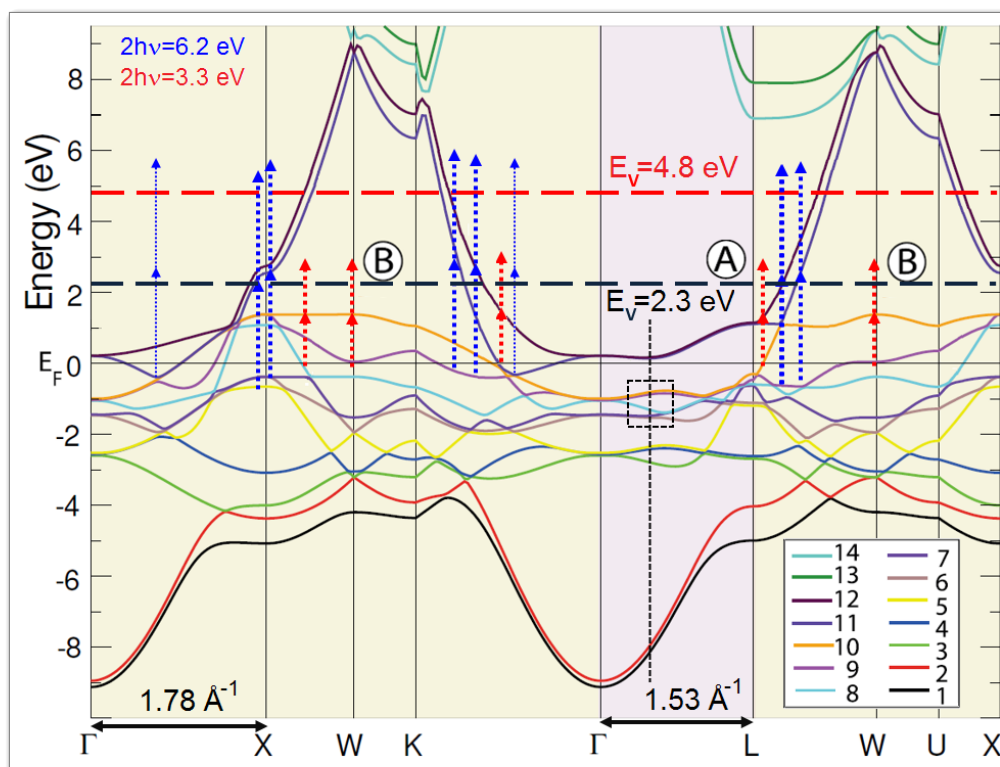


**Abbildung 6.15:**  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die c-äsierte Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $\Phi=2,0$  eV und  $2h\nu=3,3$  eV. (a) Intensität und (b) MCD-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{\AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid. Die Magnetisierungsrichtung ist  $-m_z$  Farbskalen: Abbildung 6.14(a) und (b).

### 6.1.5 Diskussion

#### Messung bei hoher Austrittsarbeit und hoher Photonenergie

Die energie- und  $k$ -aufgelösten ToF-Messungen erlauben eine Unterscheidung zwischen direkten und indirekten elektronischen Übergängen. Es treten Bänder aus direkten Übergängen von Volumenzuständen sowie ein Bildladungszustand auf. An dieser Stelle bietet sich der Bezug auf die zentralen Ergebnisse vorhergehender Messungen [12, 13] an. Die Grafik 6.16 zeigt die Bandstruktur von fcc Co. Der Co-Film weist aufgrund der geringen Dicke von 4,5 Monolagen auf dem Pt(111)-Substrat eine fcc Kristallstruktur auf. Die gezeigte Darstellung wurde außerdem um Parameter der hier durchgeführten ToF-Messungen erweitert (Vakuumlevel, Höhe der Anregungsenergie).



**Abbildung 6.16:** Theoretische Bandstruktur für das Volumengitter von fcc Co. Korrelationseffekte sind nicht berücksichtigt, weshalb diskrete, scharfe Bänder angezeigt werden. Der Rechnung liegt eine Gitterkonstante von  $a_{Co} = 3,5457 \text{ \AA}^{-1}$  zu Grunde. Markiert sind mögliche Übergänge, die in besonderem Maße zum MCD-Effekt beitragen können (gestrichelte Pfeile). Die senkrechte, schraffierte Linie in  $\Gamma$ -L-Richtung zeigt den  $k_z$ -Wert von  $\frac{1}{3}\Gamma L$ . Die spinaufgelösten (ohne Kennzeichnung) Bänder sind aufsteigend nummeriert, beginnend mit 1 für das am niedrigsten liegende Band (aus [12, 13]).

Der Nachweis einer direkten Abhängigkeit des TPMCD-Effekts von der Filmdicke durch [11] rechtfertigte die Betrachtung einer Volumenbandstruktur. Die

$\Gamma$ -L-Richtung entspricht der (111)-Richtung senkrecht zur Oberfläche. Ein Photoanregungsprozess kann nur dann zur MCD-Asymmetrie beitragen, wenn er über einen reellen Zwischenzustand, für 2PPE-Prozesse, beziehungsweise einen reellen Endzustand, für 1PPE-Prozesse, ablaufen kann [13].

Wie in Kapitel 2.4.2 beschrieben, entspricht die Emission der Photoelektronen in den kompletten Halbraum über der Probenoberfläche in dieser Arbeit den Emissionswinkeln von  $14,5^\circ$  bis  $24,1^\circ$  innerhalb des Festkörpers. Hierdurch liegen mögliche Richtungen, entlang derer elektronische Übergänge stattfinden, in der Nähe der Oberflächennormalen  $\Gamma$ -L. In der Bandstruktur 6.16 finden sich in diesem Bereich jedoch keine erreichbare Endzustände für schwelennahe Photoemission.

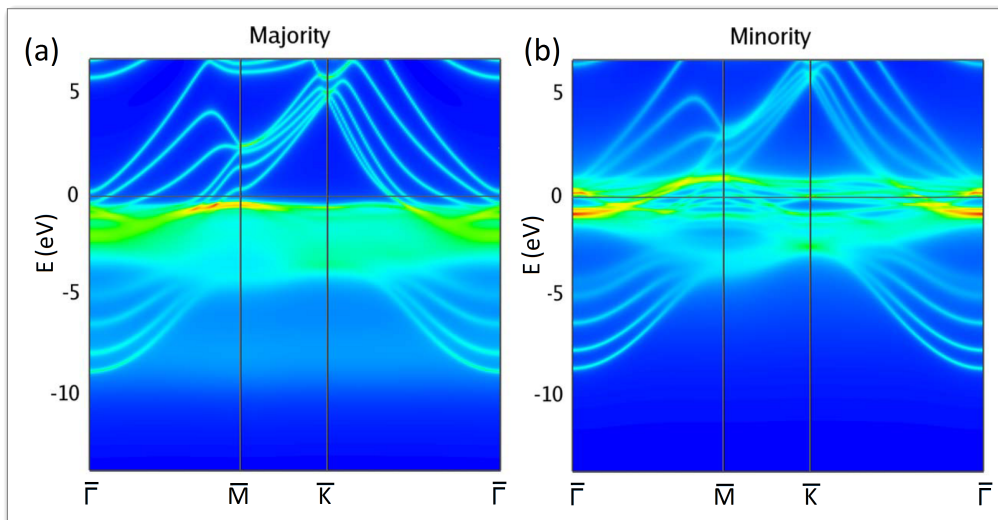
Unter Berücksichtigung der Energie- und Impulserhaltung bei der elektronischen Anregung (siehe Abschnitt 2.9) ergibt sich für Elektronen vom Bereich nahe der Fermi-Kante und einen entlang der Oberflächennormalen ausgerichteten Impuls

$$k_{\perp} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(nh\nu - \Phi + V_0)}, \quad (6.2)$$

wobei  $n$  Photonen im Prozess beteiligt sind. So erhält man bei Überschussenergien im Bereich von 1-3 eV Werte für  $k_{\perp}$  von  $1,33 G_{111}$  bis  $1,41 G_{111}$  ( $G_{111}=1,53 \text{ \AA}^{-1}$ ), die außerhalb der ersten Brillouin-Zone liegen. In der Bandstruktur zeigen sich an den entsprechen Positionen entlang der  $\Gamma$ -L-Richtung keine realen Endzustände. Daher wird angenommen [12,13], dass die Anwesenheit von elektronischen Anregungen entlang anderer Kristallrichtungen als  $\Gamma$ -L in die Betrachtungen einbezogen werden müssen. Entsprechend wurde diesen Übergängen für das Auftreten des TPMCD-Effekts eine große Rolle zugesprochen. Sie existieren beispielsweise entlang der Richtungen  $\Gamma$ -K, L-W und  $\Gamma$ -X. Letztere eignet sich gut für einen hochasymmetrischen Übergang, der zu einem großen MCD-Signal beitragen kann. Theoretische Berechnungen [12] möglicher 2PPE-Übergänge zwischen den Anfangszuständen in Band 6 und 7 und den Endzuständen 11 und 12 zeigen eine Verringerung des MCD-Effekts mit zunehmender Photonenenergie von 12 %, für  $2h\nu=5 \text{ eV}$  und auf 8 %, für  $2h\nu=5,9 \text{ eV}$ . In dieser Arbeit werden Photonenenergien von  $2h\nu=6,2 \text{ eV}$  bis  $6,6 \text{ eV}$  eingesetzt, weshalb die gemessenen Asymmetrien etwas geringer sind.

Während Photostrommessungen die totale Ausbeute an Photoelektronen messen und eine integrale MCD-Asymmetrie angeben, ist das k-Mikroskop fähig, Impuls und Energie der Photoelektronen zu messen. Wie beispielsweise in Abbildung 6.5 zu sehen ist, werden auch in Bereichen niedriger Intensität teils große MCD-Asymmetrien gemessen.

In der MCD-Messung aus Abbildung 6.5 zeigt sich ab  $E_B=0,5 \text{ eV}$  eine leicht abnehmende Asymmetrie mit zunehmender Bindungsenergie. Dieses Resultat bestätigt die Photostrommessung [12], wenn man berücksichtigt, dass für niedrigere Photonenenergien die Elektronen mit höheren Bindungsenergien nicht mehr zum integral gemessenen Photostrom beitragen. Zwei weitere Informationen lassen sich aus Abbildung 6.5 ablesen: Zum einen existiert im Bereich nahe der Fermi-Energie der Bandzustand A mit einer dreizähligen Symmetrie im  $k_x$ - $k_y$ -Schnitt. Diese Tatsache spricht für Übergänge entlang der  $\Gamma$ -X- oder  $\Gamma$ -K-Richtung.

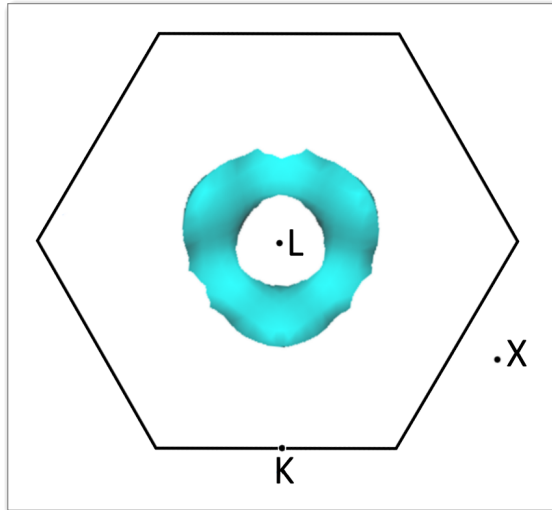


**Abbildung 6.17:** Bandstruktur von fcc Co, projiziert auf die (111)-Oberfläche, für Majoritäts- (a) und Minoritätselektronen (b), berechnet mithilfe von LDA+DMFT. Alle angegebenen Symmetrieachsen liegen in der Oberfläche. Der Unterschied in der Schärfe zwischen den Majoritäts- und Minoritätsbändern ist deutlich. Die starke Korrelation der Majoritätselektronen führt zu einem Ausschmieren der Zustände, weshalb im Bereich der Bindungsenergie von  $4 \text{ eV} > E_B > 0 \text{ eV}$  eine hohe Hintergrundzustandsdichte vorhanden ist. In diesem Bereich gibt es für Majoritätselektronen keine scharfen Bänder (aus [70]).

Unter Berücksichtigung des sichtbaren Photoemissionshorizonts erscheint das Minoritätsband 11 in Abbildung 6.16 als denkbarer Ursprung von Merkmal A. Der entsprechende Übergang ist als dünner gestrichelter Pfeil in Abbildung 6.16 eingezeichnet und muss laut dieser Rechnung über einen virtuellen Zwischenzustand stattfinden. In [13] wurde diskutiert, dass Übergänge in evaneszente Endzustände und über virtuelle Zwischenzustände nicht zur MCD-Asymmetrie beitragen können, weil es für sie keine, von der Magnetisierungsrichtung abhängigen Übergangswahrscheinlichkeiten gibt. Es zeigt sich jedoch deutlich an der bipolaren Signatur im Bereich der ringartigen Struktur A in Abbildung 6.5, dass dieser Übergang ein Beitrag zur MCD-Asymmetrie leistet.

Außerdem besitzt das Spektrum eine nahezu homogene Hintergrundintensität, die einen signifikanten Beitrag elektronischer Übergänge entlang unterschiedlicher Kristallachsen (außer  $\Gamma$ -L) indiziert. Für ein Verlassen des Festkörpers ist hierfür der Einfluss von Elektron-Phonon- beziehungsweise Elektron-Magnon-Streuprozessen anzunehmen. Über derlei Streuung geht die ursprüngliche  $k$ -Information verloren.

Aktuellere Berechnungen der Bandstruktur (Abbildung 6.17) verdeutlichen auch, dass die Annahme diskreter Energiebänder für Metalle mit stark korrelierten Elektronen strenggenommen nicht gültig ist. Durch die ausgeprägte Elektron-Elektron-Wechselwirkung innerhalb von 3d-Ferromagneten verschmieren die Energiebänder im Bereich von wenigen eV unterhalb der Fermi-Energie. Es gilt zu be-

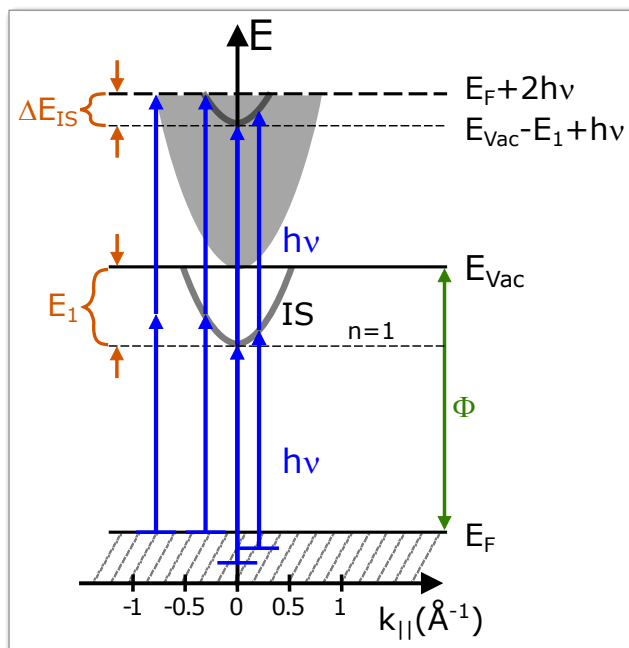


**Abbildung 6.18:** Projektion eines Schnitts von  $\Gamma$  bis zu  $\frac{1}{3}\Gamma L$  der fcc Fermi-Oberfläche für Minoritätselektronen in Co.  $L$ ,  $K$  und  $X$  beschreiben Punkte hoher Symmetrie. Die türkise Struktur (Ausschnitt der Fermi-Fläche) entspricht dem Minoritätsband 11 in Abbildung 6.16 und besitzt eine dreizählige Symmetrie (aus [71]).

achten, dass es sich bei 6.17 um eine Filmrechnung einer Dicke von fünf Atomlagen Co handelt. In der Bandstruktur 6.17 entspricht  $\bar{\Gamma}-\bar{M}$  der Oberflächenprojektion von  $\Gamma-X$ ,  $\bar{\Gamma}-\bar{K}$  entspricht der Oberflächenprojektion von  $\Gamma-K$ . Die beschriebenen Übergänge entlang der  $\Gamma-X$ - und  $\Gamma-K$ -Richtung sind in Abbildung 6.16 als dünne, blaue Pfeile dargestellt und beginnen etwa am Minimum des Minoritätsbands 11. Beim Übergang hin zu der Oberflächenprojektion der Bandstruktur befinden sich die Minima des Minoritätsband bei  $k_{||}=0,53 \text{ \AA}^{-1}$  für  $\Gamma-X$  und  $k_{||}=0,54 \text{ \AA}^{-1}$  für  $\Gamma-K$ . Berücksichtigt man die Photonenenergie von  $2h\nu=6,2 \text{ eV}$ , erhält man  $k_z = k_{\perp} = \frac{1}{3}\Gamma L$ . Ein Schnitt durch die Fermi-Oberfläche von fcc Co(111), Abbildung 6.18, zeigt ein dreizähliges Merkmal auf, welches in seiner Position mit dem Minoritätsband 11 in Abbildung 6.16 zusammenfällt. Wie die Messung an der sauberen Probe (Abbildungen 6.5 und 6.4) veranschaulicht, besitzt das Band A eine umgekehrte MCD-Asymmetrie im Vergleich zum Hintergrund. Im integralen Asymmetrie-Profil bewirkt dies eine Abnahme der Asymmetrie im Bereich von  $E_F$ . Aufgrund der Identifikation des Bands A als Minoritätsband liegt der Gedanke nahe, dass die homogene Hintergrundintensität hauptsächlich aus elektronischen Übergängen aus (verschmierten) Majoritätsbändern hervorgeht. Dies spricht für eine direkte Abhängigkeit der MCD-Asymmetrie von der relativen Orientierung von Photonenspin und Elektronenspin der angeregten Elektronen.

**Messung bei reduzierter Austrittsarbeit**

Wie die Messungen der Probe nach Cäsierung in den Abbildungen 6.8 und 6.12 zeigen, macht die Deposition von Cs-Atomen einen neuen Zustand sichtbar. In allen 2PPE-Messungen cäsierter Proben trat ein deutliches parabelförmiges Band B in Erscheinung, welches das Photoemissionsspektrum dominiert. In 1PPE-Messungen tauchte dieser Zustand nicht auf. Die Abhängigkeit der Lage des Parabelbodens von der Photonenenergie und das Auftreten in 2PPE lässt auf einen Bildladungszustand schließen. Oberflächenzustände hingegen verschieben sich bei Variation der Photonenenergie nicht bezüglich  $E_F$ . Dem besseren Verständnis dieser Verschiebung dient Abbildung 6.19. Sie zeigt das Energieschema eines resonanten 2PPE-Übergangs, der über einen Bildladungszustand (IS) ( $n=1$ ) als Zwischenzustand stattfindet. Wie bereits in Kapitel 2.6 erläutert worden ist, liegt der  $n=1$ -Zustand etwa 0,85 eV unterhalb des Vakuumniveaus. Die Dispersion mit  $k_{||}$  ist parabolisch.



**Abbildung 6.19:** Energieschema eines resonanten 2PPE-Übergangs über einen Bildladungszustand (IS). Der Parabelboden des IS ( $n=1$ ) ist energetisch vom Vakuumlevel  $E_{Vac}$  um den Betrag  $E_1$  entfernt. Er erscheint im Photoemissionsspektrum an der Position  $\Delta E_{IS}$  unterhalb der Abschneidekante des Photoemissionsspektrums bei  $E_F + 2h\nu$ .  $E_1$  und  $\Delta E_{IS}$  hängen über die Photonenenergie  $h\nu$  und die Austrittsarbeit  $\Phi$  zusammen (siehe Text).

Der Parabelboden des unbesetzten IS besitzt zum Vakuumlevel  $E_{Vac}$  den festen Abstand  $E_1$ . Die Photonenenergie  $h\nu$  bestimmt, wo der Parabelboden von IS im Photoemissionsspektrum auftaucht. Im Energieschema befindet sich diese Position  $\Delta E_{IS}$  unterhalb der Abschneidekante des Photoemissionsspektrums bei  $E_F + 2h\nu$ . Es ergibt sich die Beziehung

$$\Delta E_{IS} = E_F + 2h\nu - E_{Vac} + E_1 - h\nu \Rightarrow E_1 = \Delta E_{IS} + \Phi - h\nu. \quad (6.3)$$

Der feste Abstand des unbesetzten Bildladungszustands zum Vakuumlevel bewirkt, dass mit unterschiedlicher Austrittsarbeit auch die Anfangszustände variieren, die als Ausgang für den entsprechenden 2PPE-Prozess dienen können [48, 72]. Der Boden der Parabel B ist durch ein Maximum der MCD-Asymmetrie gekennzeichnet, dessen Ausprägung vom Grad der Cäsierung abhängt (Abbildung

gen 6.8 und 6.12). Eine Besonderheit ist die höhere MCD-Asymmetrie direkt an der Fermi-Energie im Vergleich zur uncäsiierten Probe (vergleiche Abbildungen 6.8(c),(d) und 6.12(c),(d) mit Abbildung 6.5(c),(d)). Über den Bildladungszustand tragen solche Übergänge zum Signal bei, die energetisch zur Lage des durch Cäsierung verschobenen Bildladungszustands passen. Dieser zusätzliche Anregungskanal für resonante Anregung genügt, um die negative MCD-Asymmetrie von Band A, Abbildung 6.5, zu überkompensieren.

Die  $k$ -aufgelösten Spektren zeigen, dass der Bildladungszustand direkte Übergänge entlang der  $\Gamma$ -L-Richtung sichtbar macht. Die beobachtete Intensität ist eine Faltung des parabolischen Bildladungszustands mit den möglichen Anfangszuständen. In Bereich von  $k_z = \frac{1}{3}\Gamma L$  befinden sich flach verlaufende Bänder, gekennzeichnet als Quadrat in Abbildung 6.16, was dort eine entsprechend hohe Zustandsdichte vermuten lässt. Das führt zu einer verstärkten Intensität für  $E_B=0,65$  eV in den Abbildungen 6.15 und 6.14. Dieselben oberen flachen Bänder könnten die verstärkte Intensität bei  $E_B=1$  eV in Abbildung 6.12 verursachen. Die hohe Intensität in Abbildung 6.8 bei  $E_B=2,3$  eV hingegen könnte aus dem niedriger liegenden Band in dem markierten Quadrat in der Nähe von  $k_z = \frac{1}{3}\Gamma L$  stammen. Erst durch die  $E_B$ - und  $k$ -sensitive Messung ist es möglich, die Existenz des Bildladungszustands sowie dessen besondere Bedeutung für die Photoemissionsintensität festzustellen. Durch die ähnliche MCD-Asymmetrie der durch den Bildladungszustand erzeugten Photoemission im Vergleich zu der des Hintergrunds kann dieser in  $k$ -integrierten Photostrommessungen nicht erkannt werden.

Der TPMCD-Effekt in Co(4,5 ML)/Pt(111) in Photoemission bei niedriger Photonenenergie und entsprechend stark abgesenkter Austrittsarbeit wurde ebenfalls in Photostromexperimenten [13] untersucht. Es wurden Asymmetrien von bis zu 17% mit einer nahezu nicht vorhandenen Abhängigkeit von der Photonenenergie gemessen. Entsprechende Übergänge für die Beleuchtung mit Photonen von  $h\nu=1,65$  eV und für eine stark verringerte Austrittsarbeit sind ebenfalls in Abbildung 6.16 eingezeichnet. Die roten Pfeile zeigen ausgewählte, mögliche 2PPE-Übergänge, welche durch  $2h\nu=3,3$  eV angeregt werden und die Austrittsarbeit von  $\Phi=2.3$  eV überwinden können. Mögliche Übergänge finden zwischen Band 8 und 10, entlang X-W, zwischen Band 9 und 10, direkt am W-Punkt, zwischen Band 11 und 12, entlang  $\Gamma$ -K, und zwischen Band 10 und 12 entlang L-W statt. Die  $k$ -aufgelösten Messungen in den Abbildungen 6.14 und 6.15 zeigen ebenfalls ein relativ konstantes Asymmetriespektrum in derselben Größenordnung wie bei [13]. Der Bildladungszustand dominiert die Verteilung massiv (siehe Intensitätskurven in Abbildungen 6.15 und 6.14 (c) und (d)). Trotzdem ist das MCD-Spektrum nahezu strukturlos. Im Bereich des Signals D am Fuß des Paraboloiden in Abbildung 6.14 scheint die Asymmetrie leicht abzufallen, was jedoch durch die Nähe der Abschneidekante nicht zu quantifizieren ist. Zwischen den Messungen 6.14 und 6.15 liegt ein konstanter Offset in der Asymmetrie-Kurve vor. Mehrere Ursachen können dafür verantwortlich sein: bereits kleine Veränderungen innerhalb der Messungen, beispielsweise durch das Ummagnetisieren oder Umpolarisieren des Laserstrahls können die Messgeometrie leicht beeinflussen.

## 6.2 Untersuchung von hcp Co/Pt(111)-Schichtsystemen

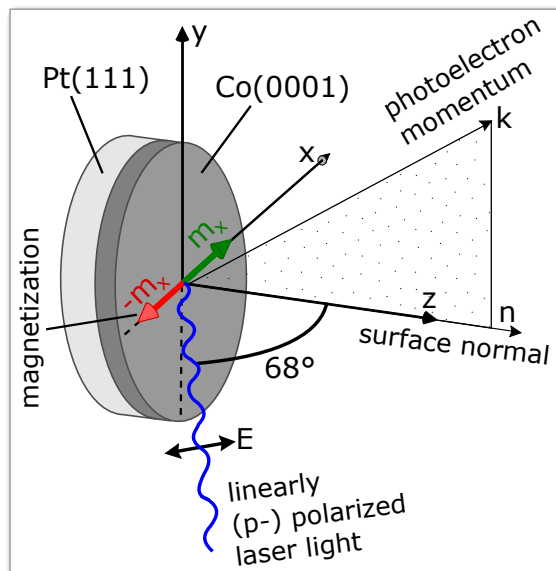
Die Schichtdicke des aus wenigen Atomlagen bestehenden Co-Films hat großen Einfluss auf dessen physikalische Eigenschaften. Der Reorientierungsübergang bei etwa 5 bis 6 Monolagen von einer fcc- in die hcp-Volumen-Struktur wurde in Kapitel 4.3 bereits erläutert. Für Co-Filme mit entsprechend großer Schichtdicke - im Rahmen dieser Arbeit wurden jeweils Filme von 10 Monolagen sowie 20 Monolagen Dicke untersucht - liegt eine hcp-Struktur vor. Das Time-of-Flight Impulsmikroskop wurde zur Untersuchung der hcp-Bandstruktur genutzt.

Mit zunehmender Schichtdicke vollzieht sich ein Wechsel von einer out-of-plane- in eine in-plane-Magnetisierungsrichtung. Die Sensitivität des Spinfilters für eine in-plane Komponente der Magnetisierungsrichtung (siehe Kapitel 2.8) prädestiniert die Proben mit hcp Co-Filmen für die spinaufgelösten Messungen.

Im Rahmen der hier durchgeführten Messungen wurde der MCD-Effekt an in-plane magnetisierten, dicken Co-Filmen überprüft und ein Zusammenhang zwischen MCD und Spinpolarisation hergestellt.

### 6.2.1 Messaufbau

Die Probenherstellung erfolgte nach demselben Schema, das bereits in Abschnitt 6.1.1 beschrieben wurde. Die Messanordnung für MCD-Messungen entspricht der Darstellung 6.2. Für die Spin-Messungen wurde das Setup wie folgt verändert: Es wurde ein Ir(001) Spinfilter-Kristall (2.8) eingebaut ( $E_{scatt}=39$  eV) und die Probe in in-plane-Richtung magnetisiert, siehe hierzu Abschnitt 3.2.4. Der Laserstrahl wird durch Entfernung des  $\lambda/4$ -Plättchens auf p-Polarisation umgestellt. Die Messgeometrie ist Abbildung 6.20 zu entnehmen. Die in-plane Magnetisierungsrichtungen werden jeweils mit  $m_x$  und  $-m_x$  gekennzeichnet.

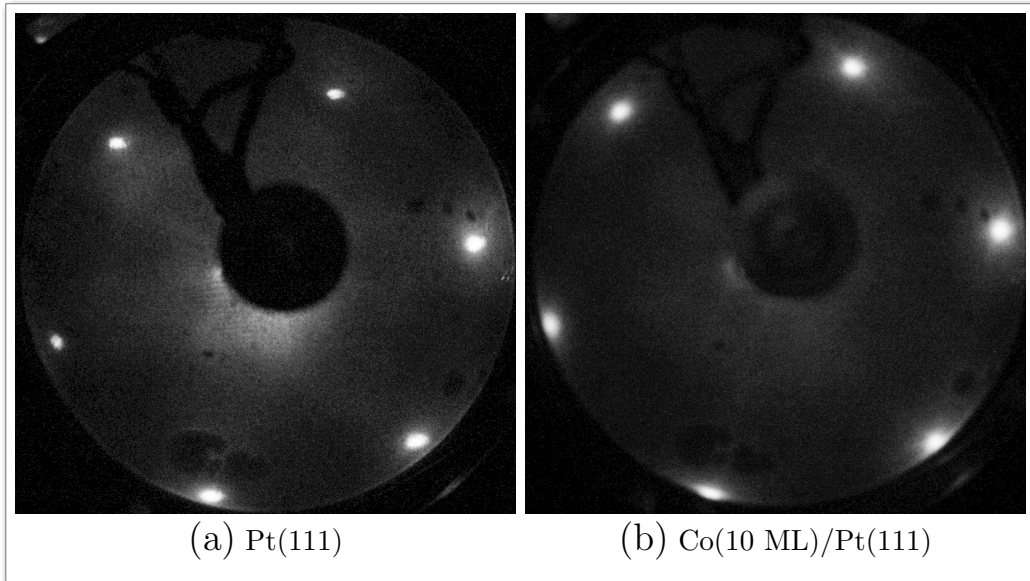


**Abbildung 6.20:** Messanordnung für spin-sensitive ToF k-Mikroskopie an in-plane magnetisierten ( $m_x$  und  $-m_x$ ) hcp Co(0001)(4,5 ML)/Pt(111)-Proben. Der Einfallswinkel des linear (p-) polarisierten Laserstrahls beträgt  $68^\circ$ , bezogen auf die Oberflächennormale  $\vec{n}$ .



### 6.2.2 hcp Co(10 ML)/Pt(111)

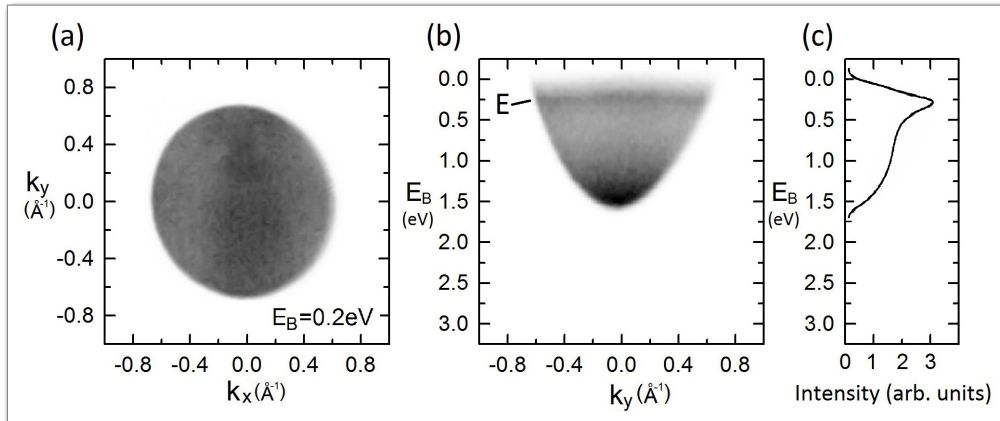
Während die ersten Atomlagen von Co in fcc-Struktur auf der (111)-Oberfläche von Pt wachsen, wechseln die zusätzlichen Co-Atome mit zunehmender Schichtdicke in die hcp-Struktur eines Co-Volumengitters. Im Vergleich der LEED-Bilder zeigen sich statt der scharfen sechs Reflexe der Pt(111)-Oberfläche in (a) verbreiterte, unschärfere Reflexe im LEED-Bild von Co(10 ML)/Pt(111) (b). Der Abstand der einzelnen Reflexe in (b) erscheint im Vergleich zu (a) vergrößert. Dies lässt sich mit einem kleineren Abstand der Co-Gitteratome zueinander erklären (Gitterkonstanten  $a_{Pt}=0,392$  nm,  $a_{Co}=0,355$  nm).



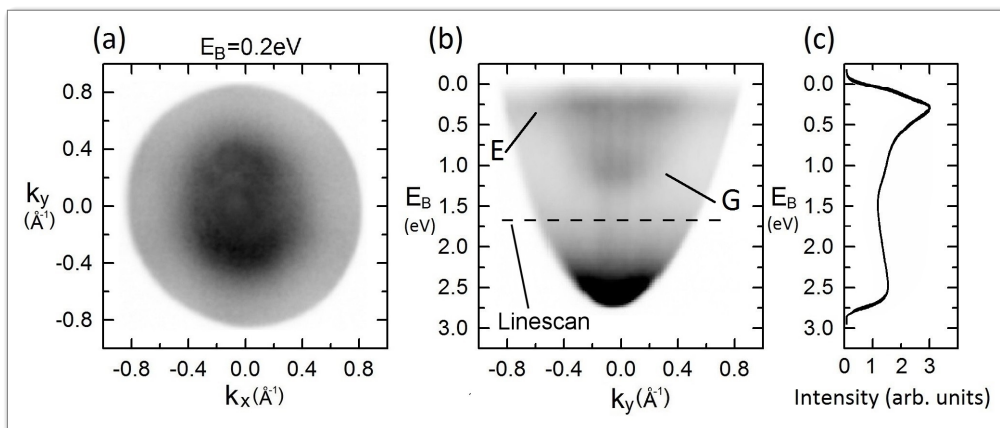
**Abbildung 6.21:** LEED-Bilder ( $E=55$  eV) (a) des Pt(111)-Einkristalls und (b) von Co(10 ML)/Pt(111). Die Symmetrie der Pt(111)-Oberfläche ist dreizählig. Nach dem Aufdampfen des Co-Films (b) nimmt die Schärfe der Reflexe ab, da bei zunehmender Schichtdicke das Co in seine sechszählige hcp Struktur relaxiert. Der Abstand der einzelnen Reflexe in (b) erscheint im Vergleich zu (a) vergrößert.

Die Messung mithilfe des  $k$ -Mikroskops an der sauberen hcp Co(10 ML)/Pt(111)-Probe (Abbildung 6.22) zeigt das im Vergleich zu dünnen fcc Co-Filmen veränderte Photoemissionsspektrum. Dargestellt sind der  $E$ - $k_y$ -Schnitt für  $k_x=0$  (a) sowie der  $k_x$ - $k_y$ -Schnitt für  $E_B=0,2$  eV (b). Die Anregungsenergie beträgt  $h\nu=3,3$  eV, die gemessene Tiefe des Paraboloids 1,75 eV. Es ergibt sich  $\Phi=4,85$  eV, womit sich die Austrittsarbeiten der 4,5 ML- und 10 ML-dicken Filme nicht wesentlich unterscheiden. Es zeigt sich deutlich ein Bereich erhöhter Intensität (Band E) für Bindungsenergien von etwa 0,1 eV bis 0,4 eV, mit kleiner, aber signifikanter  $k$ -Dispersion. Das Band fällt mit zunehmenden  $k$ -Werten leicht ab zu höherem  $E_B$ . Es scheint sich hierbei um ein flaches Volumenband zu handeln.

Die Intensitätskurve besitzt eine relativ homogene Hintergrundintensität. Die zunehmende Intensität am Parabelboden bei etwa  $E_B=1,7$  eV weist auf die Präsenz eines weiteren Bands hin.

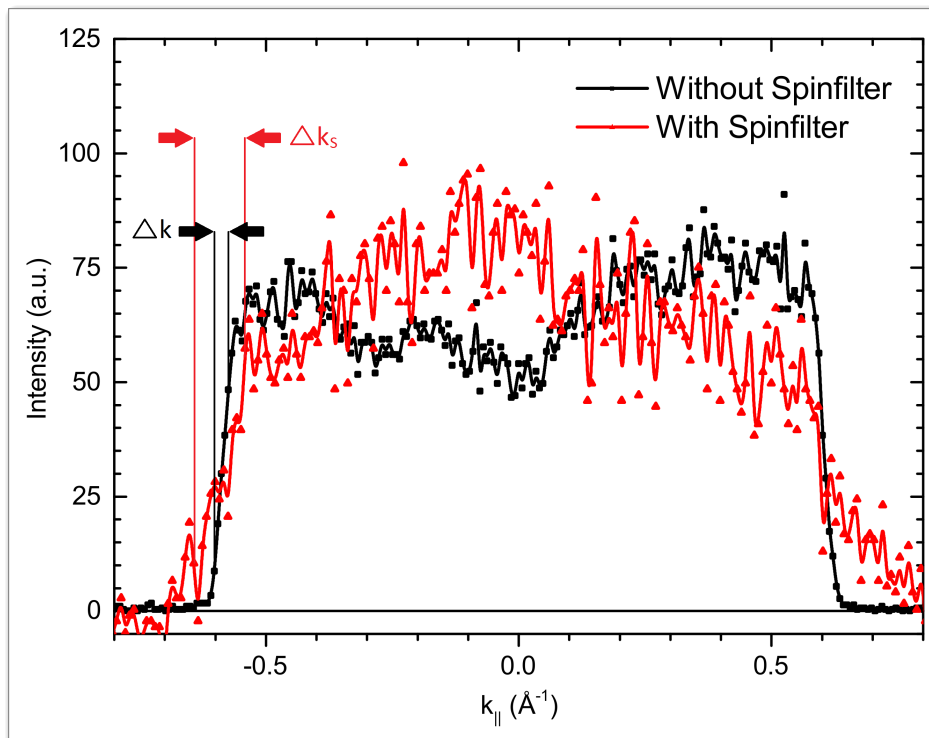


**Abbildung 6.22:**  $E_B=0,2$  eV Schnitt (a) und  $E$ - $k_y$ -Schnitt für  $k_x=0$  (b) der reinen Co(10 ML)/Pt(111)-Probe bei  $2h\nu=6,6$  eV und 2PPE. In einem Bereich von etwa 0,1 eV bis 0,4 eV zeigt sich ein flaches Band  $E$  hoher Intensität, das von  $k_{||}=0$  ausgehend mit zunehmenden  $k_{||}$ -Werten leicht fällt. Im Intensitätsprofil (c) zeigt sich das deutliche Maximum von  $E$  auf einer relativ hohen Untergrundintensität.



**Abbildung 6.23:**  $E_B=0,2$  eV Schnitt (a) und  $E$ - $k_y$ -Schnitt für  $k_x=0$  (b) der cäsierten Co(10 ML)/Pt(111)-Probe bei  $2h\nu=6,6$  eV,  $\Phi=3,7$  eV und 2PPE. Das flache Band  $E$  wird vom Bildladungszustand  $G$  überlagert. Im Intensitätsprofil (c) zeigen sich das Maximum von Band  $E$  und der Boden vom parabolischen Bildladungszustand  $G$  als schwaches lokales Maximum, auf einem im Vergleich zu Abbildung 6.22 geringeren Untergrund. Die Auswertung des Linescans in (b) erfolgt in Abbildung 6.24.

Die Abbildung 6.23 zeigt das entsprechende Ergebnis bei abgesenkter Austrittsarbeit. Die Tiefe des Paraboloids vergrößert sich auf knapp 2,9 eV, d.h.  $\Phi=3,7$  eV. Im Bereich von  $E_B=0,1$  eV bis 0,4 eV ist das Band E noch zu sehen. Deutlich ist der parabelförmige Bildladungszustand G sichtbar, sein Boden liegt bei etwa  $E_B=1,5$  eV. Der Boden des Paraboloids zeigt wieder eine hohe Intensität. Die nachfolgenden Ergebnisse beziehen sich auf Messungen der Co(10 ML)/Pt(111)-Probe bei zusätzlich verwendetem Spin-Filter. Die Spin-Asymmetrie  $A_{spin}$  wurde Voxel für Voxel gemäß der Gleichung 2.62 berechnet. Die Reflektivität des Spin-Filters von wenigen % verschlechtert trotz hoher Laserintensität das Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Um trotzdem hinreichend hohe Intensitäten am Detektor zu messen, wird die Laserleistung erhöht. Damit einhergehend kann die Raumladung in der Elektronenoptik Probleme verursachen.



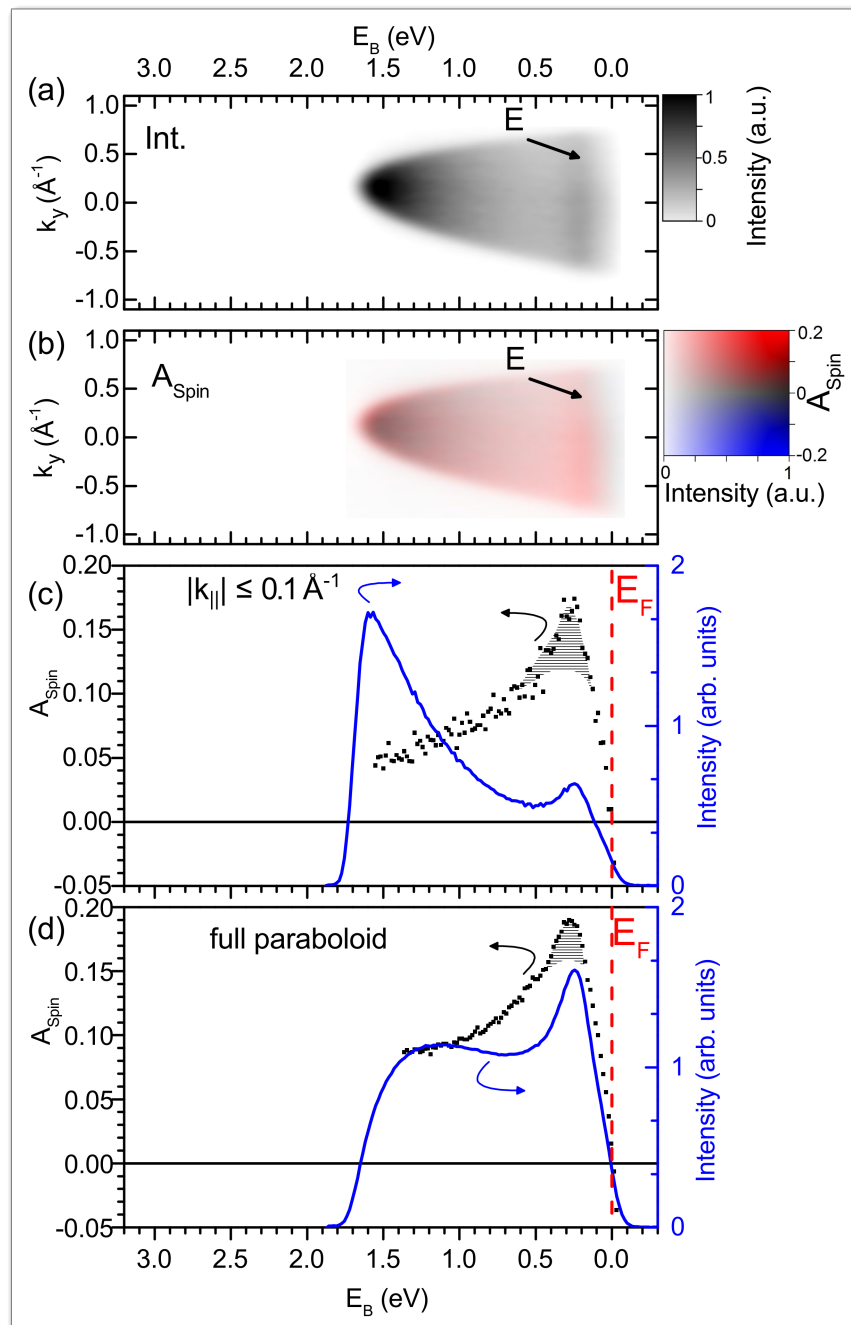
**Abbildung 6.24:** Zum  $k$ -Auflösungsvermögen des Mikroskops bei eingebautem Spinfilter. Im Vergleich zur ungefilterten Messung ( $\Delta k$ , Linescan in Abbildung 6.23) vergrößert sich das auflösbare  $\Delta k_s$  (Linescan in Abbildung 6.26) für die spinfilterte Messung um etwa einen Faktor 4.

Die Kohärenzlänge der Beugung am Ir(001)-Kristall limitiert die Bildschärfe des spin-gelerten Bildes. Abbildung 6.24 zeigt eine Abschätzung für die  $k$ -Auflösung der durchgeführten Messungen. Dargestellt sind die in den Abbildungen 6.23 (ungefilterte Messung) und 6.26 (spingefilterte Messung) eingezeichneten Linescans. Ohne Spinfilter ergibt sich für die äußere Begrenzung des Paraboloids ein  $\Delta k$  von etwa  $0,025 \text{ \AA}^{-1}$ . Bei eingebautem Spinfilter verschlechtert sich die Auflösung auf

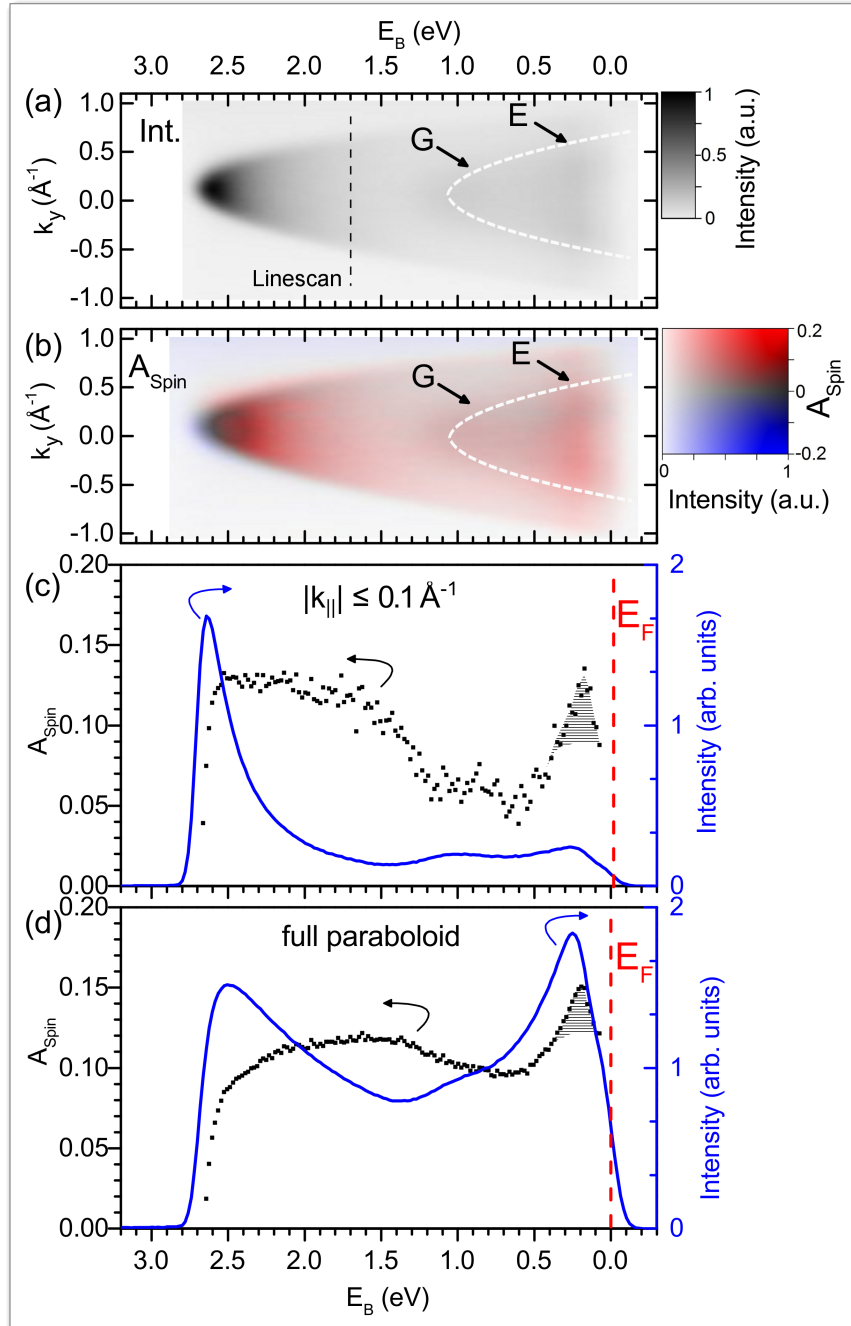
etwa  $\Delta k_s = 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ . Die  $k$ -Auflösung des gefilterten Bildes variiert außerdem leicht von der linken zur rechten Grenze. Da alle Messungen bei Raumtemperatur durchgeführt wurden, ist die Schärfe der Fermi-Kante durch  $4k_B T (300 \text{ K}) = 100 \text{ meV}$  limitiert. Die tatsächliche Energieauflösung (entsprechend  $\Delta E$ ) begrenzt das minimal messbare  $\Delta k$ .

Im Vergleich zur ungefilterten Messung ist die Bildschärfe reduziert, dennoch bleibt das Band E dicht unterhalb der Fermi-Energie weiterhin deutlich sichtbar. Die Spin-Asymmetriemessung in Abbildung 6.25 zeigt eine hohe Spin-Asymmetrie von, integral gemessen, bis zu 17%. Diese beträgt an der Fermi-Energie praktisch 0%, zeigt im Bereich des flachen Bands E einen Anstieg mit einem Maximum von über 17% für  $E_B = 0,3 \text{ eV}$  (schraffierter Bereich). Die Asymmetrie ist integral gemessen (d) sowie am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (c) jeweils ähnlich hoch. Eine Absenkung der Austrittsarbeit wirkt sich auch auf die Spinasymmetrie-Verteilung aus: Die in Abbildung 6.26 dargestellten Ergebnisse zeigen eine Messung des Photoemissionsspektrums der Co(10 ML)/Pt(111)-Probe bei verringerter Austrittsarbeit durch Cäsierung.

Die Spin-Asymmetriemessung in Abbildung 6.26 verzeichnet integral gemessen eine durchgehend hohe Asymmetrie. Im Bereich des flachen Bands E beträgt sie 15%. Im Bereich des Bildladungszustands G beträgt die Asymmetrie zwischen 10% und 12% (integral gemessen). Betrachtet man nur den Bereich um den  $\bar{\Gamma}$ -Punkt, ist ein Abfall auf fast 5% zwischen  $E_B = 0,5 \text{ eV}$  und  $1,2 \text{ eV}$  festzustellen.



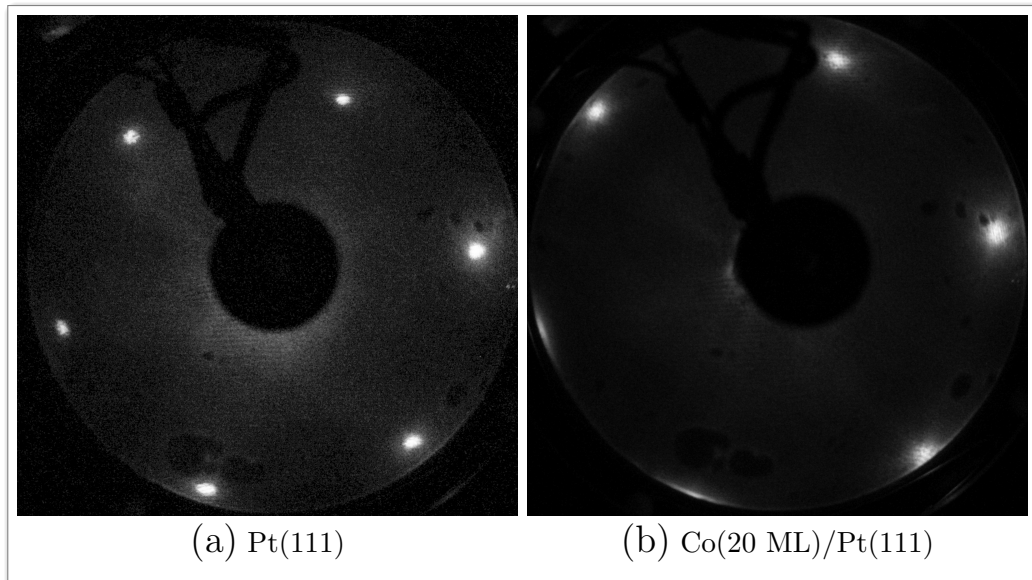
**Abbildung 6.25:** Spin-aufgelöste  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die saubere hcp Co(10 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $2h\nu = 6,6$  eV. (a) Intensität und (b) Spin-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid.



**Abbildung 6.26:** Spin-aufgelöste  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die cäsierte hcp Co(10 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $2h\nu = 6,6 \text{ eV}$  und  $\Phi=3,75 \text{ eV}$ . (a) Intensität und (b) Spin-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid. Die Auswertung des Linescans in (a) findet sich in Abbildung 6.24.

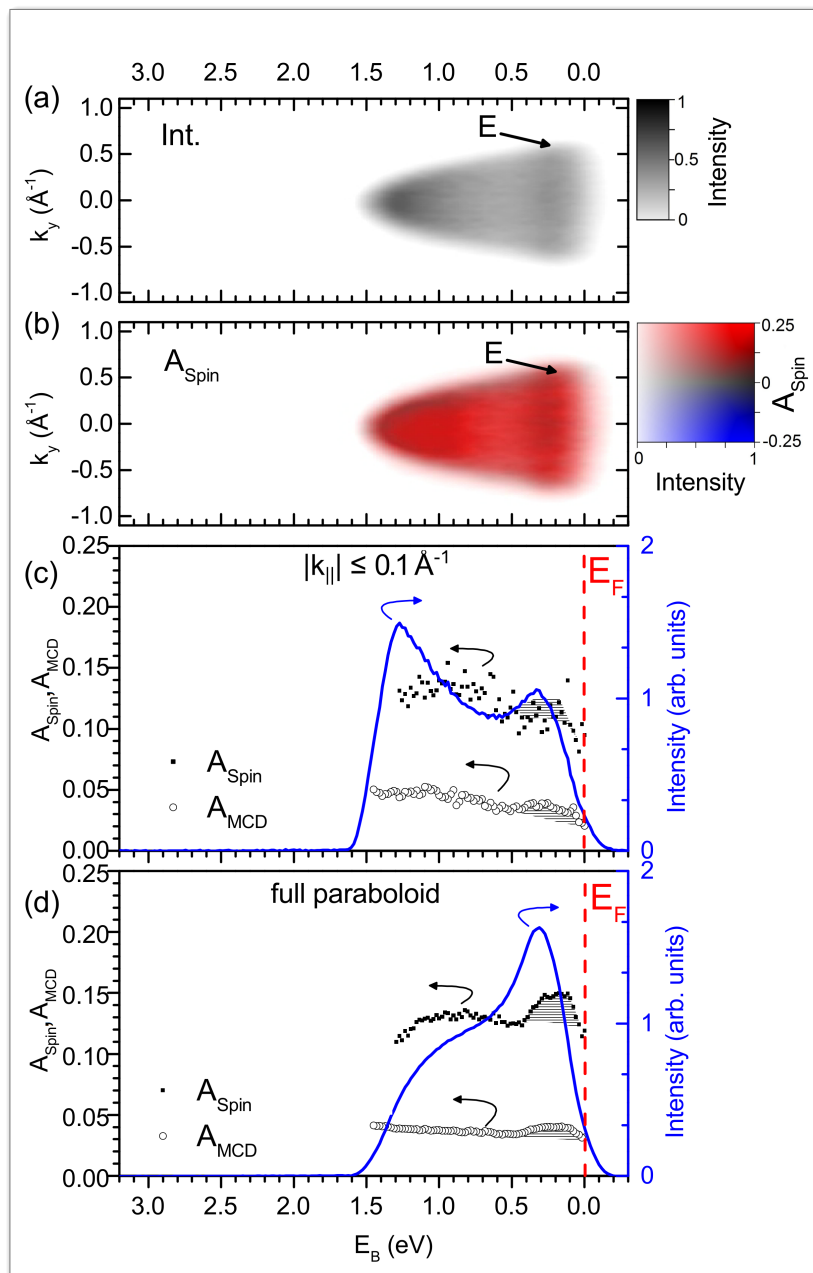
### 6.2.3 hcp Co(20 ML)/Pt(111)

Im Folgenden werden die Ergebnisse präsentiert, die an einer Probe mit einer 20 Monolagen dicken Co-Schicht gewonnen werden. Das LEED-Bild in Abbildung 6.27 zeigt für die Pt(111)-Oberfläche sechs scharfe Reflexe mit dreizähliger Symmetrie (a) und verbreiterte, unschärfere Reflexe mit sechszähliger Symmetrie für Co(20 ML)/Pt(111) (b). Der Abstand der Reflexe in (b) zueinander erscheint im Vergleich zu (a) aufgrund einer geringeren Gitterkonstante von Co vergrößert, wie bereits für die Probe mit 10 Monolagen Co zu sehen war (Abbildung 6.21).



**Abbildung 6.27:** LEED-Bilder ( $E=55\text{ eV}$ ) (a) des Pt(111)-Einkristalls und (b) von Co(20 ML)/Pt(111). Die Symmetrie der Pt(111)-Oberfläche (a) ist dreizählig. Nach dem Aufdampfen des Co-Films (b) nimmt die Schärfe der Reflexe ab, da bei zunehmender Schichtdicke das Co in seine sechszählige hcp Struktur relaxiert.

Grafik 6.28 zeigt die spin-gefilterten Messungen (2PPE mit  $2h\nu=6,6\text{ eV}$ ) der Co(20 ML)/Pt(111)-Probe unter Verwendung von p-polarisiertem Licht. Dargestellt sind  $E-k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) (a) in der Intensität und (b) der Spin-Asymmetrie. Letztere wurde Voxel für Voxel gemäß Gleichung 2.62 berechnet. Die entsprechenden Intensitäts- und Spin-Asymmetrieprofile wurden jeweils im Bereich um den  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (c) und über den kompletten Paraboloid (d) gemessen. Zusätzlich wurden an dieser Probe Messungen der MCD-Asymmetrie durchgeführt (offene Kreise in Abbildung 6.28(c),(d)). Hierzu wurde ohne Spin-Filter und bei zirkular polarisiertem Laserlicht in der in Abbildung 6.2 gezeigten Geometrie gemessen, und die MCD-Asymmetrie Voxel für Voxel gemäß der Formel 2.67 bestimmt.



**Abbildung 6.28:** Spin-aufgelöste  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die saubere hcp Co(20 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $2h\nu = 6,6$  eV und  $\Phi=5,1$  eV. (a) Intensität und (b) Spin-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{\AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid. In (c) und (d) sind zusätzlich Messkurven der MCD-Asymmetrie eingezeichnet (offene Kreise).



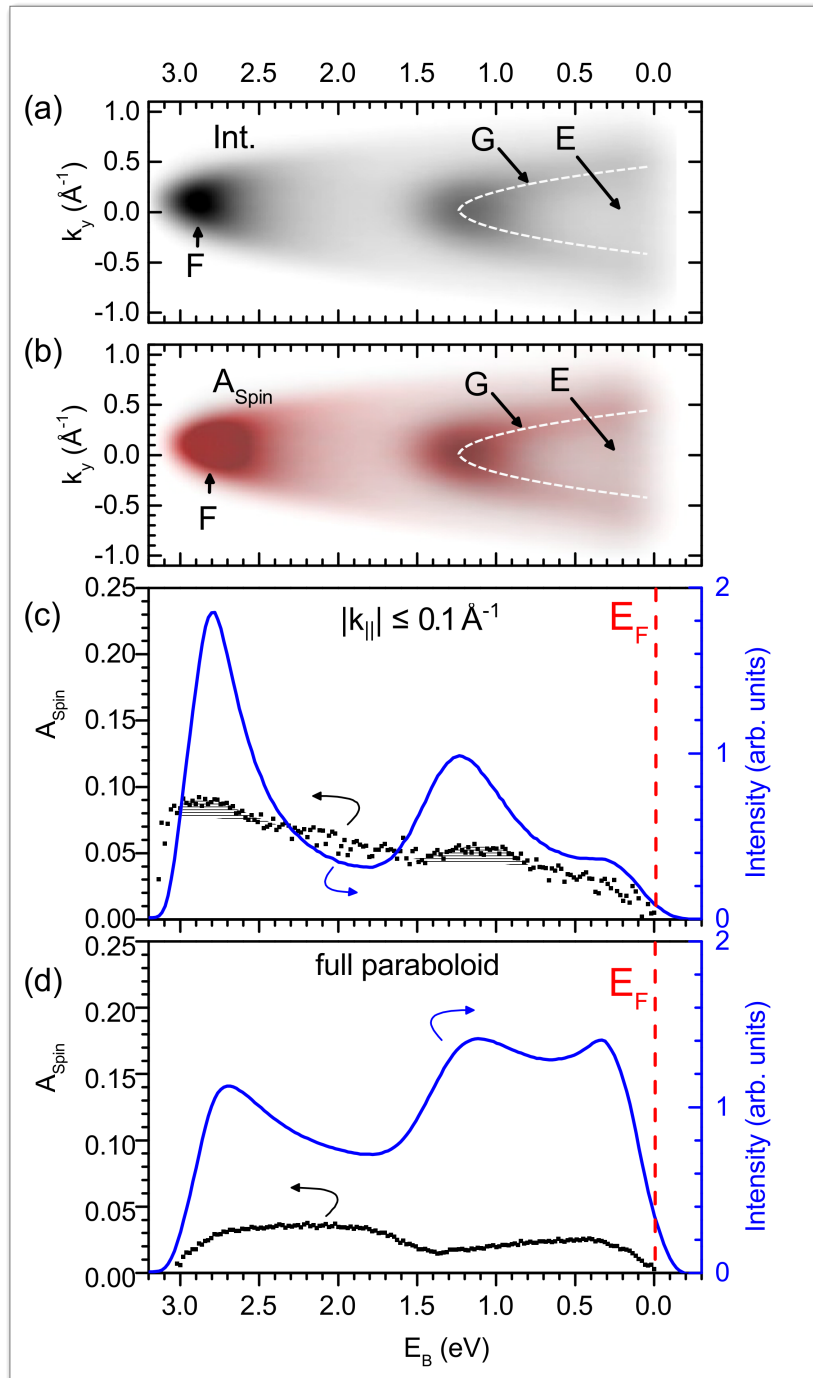
Der 20 Monolagen dicke Co-Film weist eine ähnliche Intensitätsverteilung, wie derjenige mit 10 Monolagen Dicke auf, da beide die hcp Struktur besitzen.

Stark unterscheidet sich die Co(20 ML)/Pt(111)-Probe hingegen von der Co(4,5 ML)/Pt(111)-Probe mit fcc-Struktur.

Wie in Abbildung 6.28 deutlich zu sehen ist, erscheint das Intensitätsmaximum von Band E bei  $E_B=0,15$  eV. Band E zeigt ein deutliches Maximum von 15% Spin-Asymmetrie und auch ein Maximum von knapp 5% MCD-Asymmetrie (schraffierte Bereiche). Außerhalb von Band E variieren sowohl Spin-, als auch MCD-Asymmetrie nur geringfügig mit  $E_B$ .

Mit der Absenkung der Austrittsarbeit durch Cäsierung vergrößert sich der  $E$ - $k$ -Paraboloid, Abbildung 6.29, auf eine Tiefe von 3,1 eV ( $\Phi=3,5$  eV). Der Paraboloid erscheint verzerrt, doch im Intensitätsprofil sind das Band E knapp unterhalb der Fermi-Energie, der Bildladungszustand G mit einem Parabelboden bei etwa  $E_B=1,3$  eV sowie eine zunehmende Intensität F bei höheren Bindungsenergien ( $E_B=2,9$  eV) sichtbar.

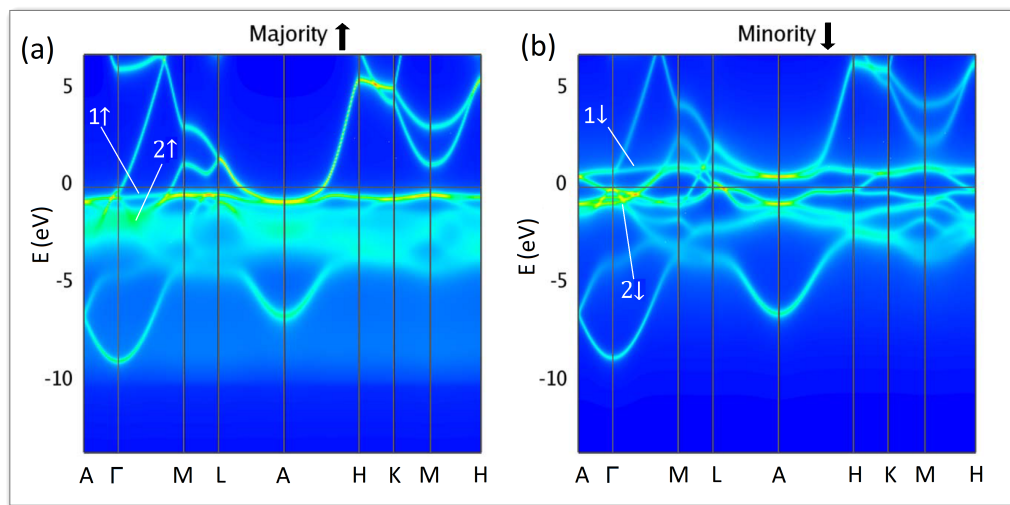
Der Bildladungszustand besitzt an seinem Boden eine erhöhte Intensität sowie eine erhöhte Spin-Asymmetrie. Diese zeigt sich in einem Maximum in Abbildung 6.29(c) um 1,1 eV (schraffiert). Band E ist nur schwach sichtbar. Es erscheint nicht als lokales Maximum in der Spin-Asymmetriekurve. Die Kurven für den gesamten Paraboloiden und den Bereich um den  $\bar{\Gamma}$ -Punkt besitzen unterschiedliche Verläufe: Schraffiert ist das lokale Maximum bei  $E_B=1,2$  eV, entsprechend dem intensitätsüberhöhten Boden des parabolischen Bands G. Zusätzlich ist am Boden des  $E$ - $k$ -Paraboloids die Intensität stark erhöht (F), einhergehend mit einem Maximum der Spin-Asymmetrie um 2,9 eV (schraffiert). Im Vergleich zur Messung an der sauberen Probenoberfläche ist die Spin-Asymmetrie um den Faktor zwei bis drei kleiner. Eine Spin-Messung dauert etwa eine Stunde pro Magnetisierungsrichtung, und eine zwischenzeitliche, partielle Desorption der Cs-Atome von der Oberfläche ist anzunehmen. Da eine konstante Cs-Bedeckung respektive Austrittsarbeit zwischen zwei Messungen, jeweils ein Zyklus für Spin-Asymmetrie und MCD-Asymmetrie, nicht zu gewährleisten ist, findet sich in Abbildung 6.29 keine MCD-Asymmetriekurve.



**Abbildung 6.29:** Spin-aufgelöste  $E$ - $k_y$ -Schnitte (für  $k_x=0$ ) für die cäsierte hcp Co(20 ML)/Pt(111)-Probe in 2PPE bei  $2h\nu = 6,6 \text{ eV}$  und  $\Phi=3,5 \text{ eV}$ . (a) Intensität und (b) Spin-Asymmetrie. Entsprechende Intensitäts- und Asymmetrieprofile, (c) gemessen am  $\bar{\Gamma}$ -Punkt (integriert über den Bereich  $\pm 0,1 \text{\AA}^{-1}$ ) sowie (d) integriert über den kompletten Paraboloid. Farbskalen: Abbildung 6.28(a) und (b).

### 6.2.4 Diskussion

Die Verwendung eines abbildenden Spinfilters ist eine hocheffiziente Methode, das k-Mikroskop um Spin-Sensitivität zu erweitern. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen erfolgten mit einem frühen Prototyp dieses spinsensitiven Impulsmikroskops, weshalb die erreichte Auflösung noch nicht voll optimiert war. Mit zunehmender Dicke des Co-Films findet ein struktureller Übergang von fcc auf hcp statt. Die Ergebnisse, die an hcp Co-Filmen gewonnen wurden, sind nicht direkt mit den Resultaten an fcc Co-Filmen (4,5 Monolagen) vergleichbar. Die Ergebnisse der Messungen an den hcp Filmen werden im folgenden mit der Bandstrukturechnung (Abbildung 6.30) für hcp-Co [70] verglichen. Die Schärfe unterscheidet sich zwischen den Majoritäts- und Minoritätsbändern in Abbildung 6.30 deutlich. Die starke Korrelation der Majoritätselektronen führt zu einem Ausschmieren der Zustände, weshalb im Bereich der Bindungsenergie von  $4\text{ eV} > E_B > 0\text{ eV}$  eine hohe Hintergrundzustandsdichte vorhanden ist.



**Abbildung 6.30:** Bandstruktur von hcp-Co für Majoritäts- (a) und Minoritäts- (b) Elektronen, berechnet mithilfe von LDA+DMFT (Volumenrechnung).  $\Gamma$ -A bezeichnet die Richtung im  $k$ -Raum, die der (0001)-Oberflächennormalen entspricht.  $1\uparrow$ ,  $2\uparrow$ ,  $1\downarrow$  und  $2\downarrow$  kennzeichnen Bänder, wobei die Pfeile den Spin-Charakter angeben (nach [70]).

Die Oberflächennormale (0001) des hcp Gitters des Co entspricht in der Darstellung der Hochsymmetrieachse  $\Gamma$ -A. Es zeigt sich etwa  $E_B=0,3\text{ eV}$  unterhalb der Fermi-Energie ein flaches Band E ohne deutliche  $k_{\parallel}$ -Dispersion. Man sieht Band E in den Abbildungen 6.22 und 6.28. In der Bandstrukturechnung (Abbildung 6.30) existiert ein Majoritätsband  $1\uparrow$  dicht unterhalb  $E_F$ . Für Minoritätselektronen liegt dieses Band  $1\downarrow$  oberhalb  $E_F$ . Dieses Band stimmt mit der, über alle Kristallrichtungen gemittelten, erhöhten Zustandsdichte in diesem Energiebereich überein, siehe Abbildung 6.30. Bereits 1979 wurde dieses Band im Bereich von  $E_B=0,3\text{ eV}$  von Himpsel et al. [73] untersucht. Mit verbesserten Berechnungsmethoden konnten Barral et al. [74] Volumenbandübergänge als wahrscheinlichen

Ursprung identifizieren.

Das Maximum der Spin-Asymmetrie liegt an der Position des zuvor diskutierten Bands E. Da dieses Band eine ähnliche Spin-Asymmetrie wie der homogene Hintergrund trägt, lässt sich ableiten, dass es sich dabei um ein Majoritätsband handelt. Die Abschätzung der Spinpolarisation erfolgt über Formel 2.62 aus dem gemessenen Maximum der Spin-Asymmetrie von  $14 \pm 1 \%$  über die Shermanfunktion  $S$  von  $0,20 \pm 0,05$  (für Ir(001),  $E_{scatt}=39$  eV [20]). Es ergibt sich ein absoluter Wert für die Spinpolarisation von  $70 \pm 20 \%$ . Der große Fehler besteht hauptsächlich in der Unsicherheit von  $S$ , d.h. es ist ein Fehler in der Skalierung. Der statistische Fehler in den Spin-Asymmetriekurven ist im Vergleich viel geringer.

Ein systematischer Fehler liegt in einer möglichen Veränderung der Oberflächenreflektivität des Spinfilter-Kristalls während der Akkumulationszeit (bis zu 1 h). Der entsprechende Abfall führt zu einem Versatz und einer Veränderung des Asymmetrieprofiles.

Literaturdaten über spin-aufgelöste Photoemission an hcp Co-Filmen existieren für viel höhere Photonenenergien [75], ferner gibt es Arbeiten zu fcc-Co [36, 72]. Ein Vergleich mit Spektren, die bei hohen Photonenenergien aufgenommen, kann nur als grober Anhaltspunkt dienen, weil dabei die Anregung in höherliegende Zweige des unbesetzten (Endzustands-)Bands stattfindet. Getzlaff et al. [75] ermittelten eine Spinpolarisation von  $60 \%$  bei  $E_B=2,5$  eV in Co(0001) in Normal-emission, die aus einem Majoritätsband stammt.

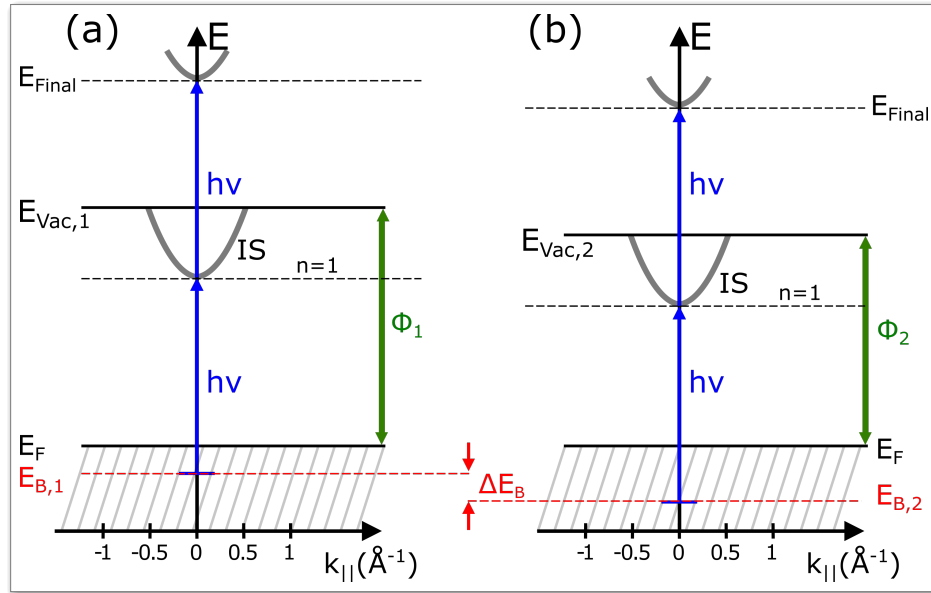
Angebracht ist ein Vergleich mit spin-aufgelösten Messungen bei  $2h\nu=6,2$  eV in 2PPE, für fcc-Co(001) auf Cu(001), die von Andreyev et al. [72] und Aeschlimann et al. [36] durchgeführt wurden. Die Gitterstruktur des Co-Films (fcc, hcp) scheint sich nur geringfügig auf die Größe der Spinpolarisation auszuwirken: so findet sich eine gute Übereinstimmung mit der hier gemessenen Spinpolarisation. Im Fall von cäsiiertem Co(001) wurden maximal  $65 \%$  [36], für die reine Oberfläche  $50 \%$  [72] gemessen.

Die beiden Kurven für Spin- und MCD-Asymmetrie (6.28) zeigen beide ein deutliches Maximum im Bereich des Bands E. Der Zusammenhang zwischen der Spinpolarisation und dem MCD-Effekt ist offensichtlich, hängen doch beide von der spin-abhängigen Bandstruktur ab. Die Entstehung des MCD-Effekts ist darüber hinaus durch das komplexe Zusammenspiel von Auswahlregeln für elektronische Übergänge, Übergangsmatrixelementen und austausch- und spin-bahn- aufgespaltenen Bändern bedingt. Hierdurch unterscheidet sich der Ursprung des MCD-Effekts von der fundamentaleren Spinpolarisation. Untersuchungen an Ni/Cu-Dünnsfilmsystemen [6] ergaben nur schwache MCD-Effekte.

Durch Cäsierung wird das flache Band E zunehmend unterdrückt und folglich die Spin-Asymmetrie reduziert. Gerade der Vergleich der beiden Messungen aus Abbildung 6.26 und Abbildung 6.29, die bei unterschiedlichen Cs-Bedeckungen aufgenommen wurden, illustriert deutlich die zunehmende Dominanz des Bildladungszustands bei verstärkter Cäsierung. Die Spin-Asymmetrie erreicht in Abbildung 6.29 ihr Maximum von  $9 \%$  am Parabelboden (F). Zusammen mit der entsprechend hohen Intensität ergibt sich die Vermutung, dass F aus einem besetzten Anfangsband bei  $E_B=2,8$  eV stammt.

Nahe am  $\Gamma$ -Punkt liegt ein Maximum bei  $E_B=1,2$  eV, über den gesamten Paraboloid gemittelt, jedoch ein Minimum bei  $E_B=1,35$  eV. Dieses gegensätzliche Verhal-

ten zeigt den dominanten Einfluss des Bildladungszustands als Zwischenzustand für den elektronischen Übergang. Die resonante Anregung über den Bildladungszustand entspricht einem zusätzlichen Kanal für ausgewählte Anfangszustände. Hierbei bleibt die Spinpolarisation erhalten.



**Abbildung 6.31:** Zum Einfluss der Austrittsarbeit auf die 2PPE-Anregung über einen Bildladungszustand. Für unterschiedliche Austrittsarbeiten  $\Phi_1$  (a) und  $\Phi_2$  (b) werden unterschiedliche Anfangszustände  $E_{B,1}$  (a) und  $E_{B,2}$  (b) vom Bildladungszustand „abgetastet“, welche sich um den Energiebetrag  $\Delta E_B$  unterscheiden.

Abbildung 6.31 zeigt die 2PPE-Anregung über einen Bildladungszustand. (a) und (b) unterscheiden sich hierbei hinsichtlich der Austrittsarbeiten. Die Lage des Bildladungszustands IS wird auf der Energieskala durch das Vakuumlevel  $E_{Vac}$  festgelegt (wie in Abbildung 6.19 erörtert wurde). Entsprechend resultiert eine Änderung von  $\Phi$  in einer Verschiebung der Lage des IS.

Bei gleich bleibender Anregungsenergie ( $h\nu=3,3\text{ eV}$ ) kommen daher Zustände verschiedener Bindungsenergien  $E_{B,1}$  (a) und  $E_{B,2}$  (b) für den ersten Anregungsschritt des 2PPE-Prozesses in Frage. Diese sind um den Betrag  $\Delta E_B$  verschieden. Es gilt  $\Delta E_B = \Phi_1 - \Phi_2$ . Die Abhängigkeit des Spin-Asymmetrieprofiles von der Austrittsarbeit (siehe Abbildungen 6.26 und 6.29) ist groß, sofern bei Veränderung von  $\Phi$  Majoritäts- statt Minoritätsbänder angeregt werden.

Deutlich zu sehen beispielsweise ist ein Unterschied zwischen den Asymmetrieprofilen von Abbildung 6.26 und Abbildung 6.29. Zwar unterscheiden sich die Proben in der Schichtdicke des Co-Films, für das Asymmetrieprofil maßgeblich ist jedoch die Austrittsarbeit, respektive die Lage des Bildladungszustands G. In Abbildung 6.26 ist die gemessene Spin-Asymmetrie am Boden von G gering, es werden augenscheinlich Elektronen aus einem Minoritätsband angeregt. Wie in Abbildung 6.30 zu sehen ist, markiert das Minoritätsband  $2\downarrow$  (entlang  $\Gamma$ -M) geeignete An-

fangszustände. In Abbildung 6.29 ist die Austrittsarbeit jedoch geringer und G erreicht Zustände höherer Bindungsenergie. Das Maximum der Spin-Asymmetrie am Boden von G lässt hier auf Majoritätselektronen schließen. Ein korrelationsverschmiertes, im Vergleich zu  $2\downarrow$  tiefer liegendes Majoritätsband ist in Abbildung 6.30 als  $2\uparrow$  (entlang  $\Gamma$ -M) zu finden. Die hier durchgeführten spinaufgelösten Messungen der Photoemission in 2PPE an der reinen hcp Co-Oberfläche verdeutlichen eine hohe Spinpolarisation. Die Absenkung der Austrittsarbeit führt zu einem Auftreten eines dominanten Bildladungszustands. Dessen mögliche Auswahl bestimmter Anfangszustände erweitert die Interpretation des Photoemissionspektrums um einen zusätzlichen, wesentlichen Aspekt.

## 7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde die magnetische Domänenstruktur in dünnen Co/Pt(111)-Filmen und deren Bandstruktur mit Hilfe eines Time-of-Flight Impulsmikroskops untersucht.

In senkrecht magnetisierten 4,5 Monolagen dicken Co/Pt(111)-Filmen wurde die magnetische Domänenstruktur mittels Photoemissions-Elektronenmikroskopie (PEEM) abgebildet. Dabei wurde der magnetische Zirkulardichroismus in Schwellenphotoemission (TPMCD) als magnetischer Kontrastmechanismus ausgenutzt. Die beobachtete Domänenkonfiguration besteht aus unregelmäßigen, wurmartigen Domänen. Die Domänenstruktur ist typisch für einen senkrecht magnetisierten Film und wird durch die Minimierung der Streufeldenergie stabilisiert. Die Domänenwandbreite ergibt sich aus dem Zusammenspiel von magnetischer Anisotropie, Streufeld und Austauschwechselwirkung. Die geringsten gemessenen Domänenwandbreiten betragen 100 nm. Dieser Wert stellt die obere Grenze für die Auflösung des verwendeten Mikroskops dar. Es wurde beobachtet, dass die gepulste Laserstrahlung mit den Parametern 80 MHz und 100 fs mit zunehmender Intensität zu einer Abnahme der Bildschärfe führt. Als kritische Schwelle für den verwendeten Aufbau wurden 50 pJ an deponierter Energie pro Laserpuls gefunden. Dies entspricht etwa  $10^3$ - $10^5$  Elektronen pro Puls. Der Einsatz von Zwei-Photonen-Photoemission führt zu einem erhöhten topografischen Kontrast. Um *ausschließlich* magnetischen Bildkontrast zu erhalten, wurden die Domänenbilder an Proben gemessen, deren Austrittsarbeit durch Cäsierung abgesenkt wurde, und die mit  $h\nu=3,1$  eV (1PPE) beleuchtet wurden.

Der TPMCD stellte sich als vielversprechendes Werkzeug heraus, um ein, der optischen Mikroskopie an Auflösung überlegenes, magnetisches Bildgebungsverfahren zu etablieren.

Im zweiten Teil der Arbeit wurde die spektrale Verteilung  $I(E_B, k_x, k_y)$  der aus Co(4,5 ML)/Pt(111)-Filmen emittierten Elektronen gemessen. Hierbei wurden sowohl die Fundamentale,  $h\nu=1,55$  eV bis 1,65 eV, als auch die zweite Harmonische,  $h\nu=3,1$  eV bis 3,3 eV, eines Ti:Saphir-Femtosekundenlasers als Lichtquelle verwendet. Die Messungen an der unbehandelten Co-Oberfläche bei  $h\nu=3,1$  eV zeigen ein Band mit dreizähliger Symmetrie (entsprechend der fcc(111)-Oberfläche) mit bipolarer MCD-Asymmetrie, was ein Minoritätsband vermuten lässt.

Mit Hilfe einer Bandstrukturrechnung (Abbildung 6.16) wurde ein Band (Minimum bei  $k_{\parallel}=0,53 \text{ \AA}^{-1}$  entlang  $\Gamma$ -K) als möglicher Anfangszustand des entsprechenden Photoemissionsprozesses identifiziert. Dieses Band ist außerdem als Schnitt durch die Fermi-Fläche senkrecht zur  $k_z$ -Richtung bei  $k_z=(1/3)\Gamma$  dargestellt, siehe Abbildung 6.18.

Ein wesentlicher Effekt, der in allen bisherigen Arbeiten übersehen wurde, konnte mittels Absenkung der Austrittsarbeit sichtbar gemacht werden. Die durch Cs-Deposition erreichte Reduktion der Austrittsarbeit bewirkt eine deutlich verstärk-

te Photoemission über einen resonanten 2PPE-Übergang (siehe Abbildung 6.8). Dieser zusätzliche Photoemissionskanal trat in allen 2PPE-Messungen, bei entsprechend niedriger Austrittsarbeit, deutlich in Erscheinung.

Der Zwischenzustand kann aufgrund der Dispersion als Bildladungszustand identifiziert werden. Die feste Lage des Bildladungszustands IS im Bezug auf das Vakuumlevel  $E_{Vac}$  bedeutet, dass sich die Höhe der Austrittsarbeit  $\Phi$  maßgeblich auf die Wahl der, durch den Bildladungszustand resonant angeregten, Anfangszustände auswirkt. Wie sich beispielsweise am Unterschied zwischen den Asymmetrieprofilen von Abbildung 6.26 und Abbildung 6.29 zeigt, kann der Bildladungszustand Majoritäts- und Minoritätsbänder gleichermaßen erreichen. Die Folge ist ein dominanter Einfluss des Bildladungszustands, sowohl auf Photoemissionsintensität, MCD-Asymmetrie und gemessene Spinpolarisation. Aufgrund der fehlenden  $k$ - und Energie-Information in Photostrommessungen war dieses Phänomen bisher nicht bekannt.

Eine weitere Cäsierung ermöglicht die Photoemission unter Verwendung der Fundamentalen des Lasers,  $h\nu=1,65$  eV. Es ergibt sich eine MCD-Asymmetrie von mehr als 15% (Abbildungen 6.14 und 6.15), was mit früheren Photostrommessungen [13] übereinstimmt.

Bei der Untersuchung dicker hcp Co-Filme von 10 und 20 Monolagen auf Pt(111) lag der Fokus auf der Spin-Information. Die Spinpolarisation in Schwellen-1PPE und -2PPE ist für ferromagnetische Materialien bis heute wenig verstanden. Die inelastische Elektronenkaskade, die Sekundärelektronen bildet, weist eine große Spinpolarisation auf [77]: Beim Transport durch den Festkörper erhalten Elektronen eine Transportpolarisation entlang der Richtung der Majoritäts-Spins. Nach einem Modell für 3d-Ferromagnete bestimmt sich die Transportpolarisation durch die Anzahl an Minoritäts-d-Löchern [78]. Schließlich ist auch über den Einfluss von evaneszenten Zuständen und anderen Oberflächenzuständen auf die Spinpolarisation nahe der Emissionsschwelle wenig bekannt. In Experimenten über resonante 2PPE mit Spin-Auflösung [79–81] wurde bereits gezeigt, dass Bildladungszustände abhängig von Anregungsgeometrie und Symmetrie-/Dipol-Auswahlregeln in der Lage sind, eine ausgezeichnete Spinrichtung zu verstärken. Im Rahmen dieser Arbeit wurden energie-, impuls- und spin-aufgelöste Photoelektronenverteilungen bis zu einer Bindungsenergie von  $E_B=3,1$  eV und einem Photoemissionshorizont von bis zu  $0,86 \text{ \AA}^{-1}$  an der Fermi-Energie durchgeführt. Die dreidimensionale spektrale Verteilung  $I(E_B, k_x, k_y)$  und die Spin-Textur entlang der leichten Achse  $P(E_B, k_x, k_y)$  wurden für in-plane magnetisierte hcp Co-Filme, 10 und 20 ML, auf Pt(111) bestimmt. Die Untersuchungen der reinen Co-Oberflächen enthüllen für beide Schichtdicken ein nahezu dispersionsloses Band knapp unterhalb der Fermi-Energie,  $E_B=0,15$  eV, das aus einem relativ homogenen Hintergrund hervorsticht. Der Hintergrund besitzt eine hohe, aber im Vergleich zu diesem ausgezeichneten Band etwas geringere Spin-Asymmetrie.

Eine Absenkung der Austrittsarbeit durch Cäsierung initiiert ein parabolisches Band, das einen resonanten 2PPE-Übergang über einen Bildladungszustand [79] widerspiegelt (siehe Abbildung 6.29). Dieser Zwischenzustand verstärkt die Emission aus geeigneten (das heißt von Bindungsenergie und Impuls passenden) Anfangszuständen des Valenzbands. Eine erhöhte Intensität am Boden des parabolischen Bildladungszustands lässt auf ein Majoritäts-Anfangsband bei  $E_B=1,2$  eV



---

schließen. Ein weiterer sichtbarer Bandübergang ist am Boden des Photoemissions-Paraboloids,  $E_B=2,9\text{ eV}$ , sichtbar. Beide Merkmale resultieren aus einer Faltung des Bildladungszustand und der Dichte möglicher Anfangszustände. Diese Zustände weisen eine hohe Spinpolarisation von 70 % auf und tragen einen Großteil der gesamten gemessenen Intensität. Aufgrund der großen Austrittsarbeit sind diese beiden Strukturen an der reinen Co-Oberfläche nicht beobachtbar.

Die Rolle der Transportpolarisation für die hohe Hintergrundpolarisation bleibt zu diesem Zeitpunkt noch unklar. Experimente mit der vierten Harmonischen des Ti:Saphir-Lasers und  $h\nu=6\text{ eV}$  werden vorbereitet und können dazu beitragen, einige der offenen Fragen zu beantworten.

Der Zwei-Photonen-Prozess erfordert immer einen Zwischenzustand, dessen Eigenschaften außer für den in dieser Arbeit diskutierten Bildladungszustand wenig bekannt sind. Die für einfache Photoemission notwendige Cäsierung kann ebenfalls zu Streuprozessen führen. Genau diese unbekanntenen Einflussfaktoren können mit der direkten Photoemission aus der unbedeckten Co Oberfläche mit Hilfe von  $h\nu=6\text{ eV}$  ausgeschlossen werden.

Darüber hinaus löst die Anregung mit  $h\nu=6\text{ eV}$  als Probe-Puls auch ein wesentliches Problem der zeitaufgelösten Messungen. Die in dieser Arbeit gemessene hohe Intensität der Elektronen, die durch den Pump Puls mittels Zwei-Photonen-Photoemission ausgelöst werden, kann so vermieden werden. Um die Austrittsarbeit von Co ( $5\text{ eV}$ ) zu überwinden, ist ein Vier-Photonen-Photoemissionsprozess notwendig, der eine um viele Größenordnungen kleinere Quanteneffizienz besitzt. Durch die sehr niedrige Anzahl von Elektronen, die durch den Pump-Puls ausgelöst werden, ist auch nicht zu erwarten, dass deren Raumladung zu einer Verschmierung der Impuls- und Energieinformation führen, wie sie hier für hohe Intensität beobachtet wurden.



# Literaturverzeichnis

- [1] A. Einstein, *Ann. Phys.* 17, 132 (1905)
- [2] G. Schütz, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm und G. Materlik, *Phys. Rev. Lett.* 58, 737 (1987)
- [3] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette und G. van der Laan, *Phys. Rev. Lett.* 68, 1943 (1992)
- [4] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli und X. Wang, *Phys. Rev. Lett.* 70, 694 (1993)
- [5] J. Stöhr, *J. Magn. Magn. Mater.* 200, 470 (1999)
- [6] T. Nakagawa und T. Yokoyama, *Phys. Rev. Lett.* 96, 237402 (2006)
- [7] G.-K.-L. Marx, H.J. Elmers und G. Schönhense, *Phys. Rev. Lett.* 84, 5888 (2000)
- [8] T. Nakagawa, I. Yamamoto, Y. Takagi, K. Watanabe, Y. Matsumoto und T. Yokoyama, *Phys. Rev. B* 79, 172404 (2009)
- [9] M. Jourdan, J. Minár, J. Braun, A. Kronenberg, S. Chadov, B. Balke, A. Gloskovskii, M. Kolbe, H.J. Elmers, G. Schönhense, H. Ebert, C. Felser und M. Kläui, *Nat. Commun.* 5, 3974 (2014)
- [10] K. Hild, J. Maul, G. Schönhense, H.J. Elmers, M. Amft und P. M. Oppeneer, *Phys. Rev. Lett* 102, 057207 (2009)
- [11] K. Hild, J. Emmel, G. Schönhense und H.J. Elmers, *Phys. Rev. B* 80, 224426 (2009)
- [12] K. Hild, G. Schönhense, H.J. Elmers, T. Nakagawa, T. Yokoyama, K. Tarafder und P. M. Oppeneer, *Phys. Rev. B* 82, 195430 (2010)
- [13] K. Hild, G. Schönhense, H.J. Elmers, T. Nakagawa, T. Yokoyama, K. Tarafder und P.M. Oppeneer, *Phys. Rev. B* 85, 014426 (2012)
- [14] M. Kronseder, J. Minar, J. Braun, S. Günther, G. Woltersdorf, H. Ebert und C.H. Back, *Phys. Rev. B* 83, 132404 (2011)
- [15] P. Melchior, M. Rollinger, P. Thielen, S. Alebrund, U. Bierbrauer, C. Schneider, M. Gottwald, M. Hehn, S. Mangin, M. Cinchetti und M. Aeschlimann, *Phys. Rev. B* 88, 104415 (2013)
- [16] G. Schönhense, K. Medjanik und H.J. Elmers, *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* 200, 94 (2015)

- [17] J.D. Koralek, J.F. Douglas, N.C. Plumb, Z. Sun, A. Fedorov, M. Murnane, H. Kapteyn, S. Cundiff, Y. Aiura, K. Oka, H. Eisaki und D.S. Dessau, *Phys. Rev. Lett.* 96, 017005 (2006)
- [18] M. H. Berntsen, O. Götberg und O. Tjernberg, *Rev. Sci. Instrum.* 82, 095113 (2011)
- [19] M. Neupane, N. Alidoust, S-Y. Xu, T. Kondo, Y. Ishida, D. J. Kim, Chang Liu, I. Belopolski, Y. J. Jo, T-R. Chang, H-T. Jeng, T. Durakiewicz, L. Balicas, H. Lin, A. Bansil, S. Shin, Z. Fisk und M. Z. Hasan, *Nat. Commun.* 4, 2991 (2013)
- [20] D. Kutnyakhov, P. Lushchyk, A. Fognini, D. Perriard, M. Kolbe, K. Medjanik, E. Fedchenko, S.A. Nepijko, H.J. Elmers, G. Salvatella, C. Stieger, R. Gort, T. Bähler, T. Michlmayer, Y. Acremann, A. Vaterlaus, F. Giebels, H. Gollisch, R. Feder, C. Tusche, A. Krasnyuk, J. Kirschner und G. Schönhense, *Ultramicroscopy* 130, 63 (2013)
- [21] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, (Oldenbourg Wissenschaftsverlag, München) (2013)
- [22] S. Hüfner, *Photoelectron Spectroscopy*, (Springer, Berlin) (1995)
- [23] H. Ibach und H. Lüth, *Festkörperphysik: Einführung in die Grundlagen; mit 17 Tafeln und 100 Übungen(6. Aufl.)*, (Springer, Berlin) (2002)
- [24] K. Hild, *Dissertation*, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Deutschland (2011)
- [25] M. Kolbe, *Dissertation*, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Deutschland (2012)
- [26] S. Suga und A. Sekiyama, *Photoelectron Spectroscopy*, (Springer, Berlin) (2014)
- [27] <http://www.wmi.badw.de/teaching/Lecturenotes/magnetismus/Kapitel-6.pdf> (2015), Download am 21.09.2016
- [28] Ziese/Thornton (Hrsg.), *Spin Electronics*, (Springer, Berlin/Heidelberg) (2001)
- [29] S. Blundell, *Magnetism in Condensed Matter*, 12. Ausgabe (Oxford University Press, Oxford) (2012)
- [30] L.D. Landau und R.M. Lifshitz, *Physik. Z. Sowjetunion* 8, 153 (1935)
- [31] T.L. Gilbert, *Phys. Rev.* 100, 1243 (1955)
- [32] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois und J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* 76, 4250 (1996)
- [33] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti M. Aeschlimann, *Nature Mat.* 9, 259 (2010)

- [34] P. Drude, Ann. Phys. 306, 566 (1900)
- [35] B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. Dalla Longa und W. J. M. de Jonge, Phys. Rev. Lett. 95, 267207 (2005)
- [36] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, W. Weber, R. Burgermeister, D. Oberli und H. C. Siegmann, Phys. Rev. Lett. 79, 5158 (1997)
- [37] M. Bauer und M. Aeschlimann, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 124, 225 (2002)
- [38] M. P. Seah und W. A. Dench, Surf. Interf. Anal. 1, 2 (1979)
- [39] C. N. Berglund und W. E. Spicer, Phys. Rev. Lett. 136, 1030A und 1044A (1964)
- [40] T. Miller, W. E. Mc Mahon und T. C. Chiang, Phys. Rev. Lett. 77, 1167 (1996)
- [41] D. Claesson, S. A. Lundgren, L. Wallden und T. C. Chiang, Phys. Rev. Lett. 82, 1740 (1999)
- [42] A. Winkelmann, A. A. Ünal, C. Tusche, M. Ellguth, C.-T. Chiang und J. Kirschner, New. J. Phys. 14, 083027 (2012)
- [43] G. D. Mahan, Phys. Rev. B 2, 4334 (1970)
- [44] P. J. Feibelmann und D. E. Eastman, Phys. Rev. B 10, 4932 (1974)
- [45] M. B. J. Meinders, *Ph.D. Thesis*, University of Groningen, Niederlande (1994)
- [46] W. Shockley, Phys. Rev. 56, 317 (1939)
- [47] I. Tamm, Phys. Z. Soviet Union. 1, 733 (1932)
- [48] T. Fauster, W. Steinmann und P. Halevi (Ed.), *Electromagnetic Waves: Recent Developments in Research*, (Elsevier, Amsterdam) (1994)
- [49] J. Kessler, *Polarized Electrons*, (Springer, Berlin) (1985)
- [50] J. Kirschner und R. Feder, Phys. Rev. Lett. 42, 1008 (1179)
- [51] G. Schönhense, Physica Scripta 31, 255 (1990)
- [52] D. Meschede, *Gerthsen Physik*, 24. Auflage (Springer, Berlin) (2010)
- [53] R.G. Musket, W. McLean, C.A. Colmenares, D.M. Makowiecki und W.J. Siekhaus, Appl. Surf. Sci. 10, 143 (1982)
- [54] *Mai Tai User's Manual*, Part Number 0000-315A, Rev. A, (Spectra-Physics) (2003)
- [55] A. Krasnyuk, *Dissertation*, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Deutschland (2003)

- [56] C. Ziethen, *Dissertation*, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Deutschland (1999)
- [57] A. Winkelmann, M. Ellguth, C. Tusche, A. A. Ünal, J. Henk und J. Kirschner, *Phys. Rev. B* 86, 085427 (2012)
- [58] A. Oelsner, O. Schmidt, M. Schicketanz, M. Klais, G. Schönhense, V. Mergel, O. Jagutzki und H. Schmidt-Böcking, *Rev. Sci. Instrum.* 72, 3968 (2001)
- [59] A. Oelsner, M. Rohmer, C. Schneider, Daniela Bayer, G. Schönhense und M. Aeschlimann, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* 178, 317 (2010)
- [60] E. Bauer, *Ultramicroscopy* 17, 51 (1985)
- [61] E. Bauer, *Rep. Prog. Phys.* 57, 895 (1994)
- [62] G. Schönhense, private Mitteilung
- [63] H. Spiecker, O. Schmidt, Ch. Ziethen, D. Menke, U. Kleineberg, R.C. Ahuja, M.Merkel, U. Heinzmann und G. Schönhense, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* 406, 499 (1998)
- [64] Z. Q. Qiu und S. D. Bader, *Rev. Sci. Instrum.* 71, 1243 (2000)
- [65] B. Voigtländer, G. Meyer und N. M. Amer, *Phys. Rev. B* 44, 18 (1991)
- [66] O. Schmidt, G.H. Fecher, Y. Hwu und G. Schönhense, *Surf. Sci.* 482, 687 (2001)
- [67] M.W. Knight, H. Sobhani, P. Nordlander und N.J. Halas, *Science* 322, 702 (2011)
- [68] F. Schertz, M. Schmelzeisen, R. Mohammadi, M. Kreiter, H.J. Elmers und G. Schönhense, *Nano Lett.* 12, 1885 (2012)
- [69] S.V. Chernov, K. Medjanik, C. Tusche, D. Kutnyakhov, S.A. Nepijko, A. Oelsner, J. Braun, J. Minar, S. Borek, H. Ebert, H.J. Elmers, J. Kirschner und G. Schönhense, *Ultramicroscopy* 159, 453 (2015)
- [70] A. Grechnev, I. Di Marco, M.I. Katsnelson, A.I. Lichtenstein, J. Wills und O. Eriksson, *Phys. Rev.* 76, 035107 (2007)
- [71] T.-S. Choy, J. Naset, J. Chen, S. Hershfield und C. Stanton. *A database of fermi surface in virtual reality modeling language (vrml)*, *Bulletin of The American Physical Society* 45, L36 42 (2000)
- [72] O. Andreyev, Y. Koroteev, M. Sánchez-Albaneda, M. Cinchetti, G. Bihlmayer, E. V. Chulkov, J. Lange, F. Steeb, M. Bauer, P. M. Echenique, S. Blügel und M. Aeschlimann, *Phys. Rev. B* 74, 195416 (2006)
- [73] F. J. Himpsel und D. E. Eastman, *Phys. Rev. B* 20, 8 (1979)
- [74] M. A. Barral, M. Weissmann und A. M. Llois, *Phys. Rev. B* 72, 125433 (2005)

- [75] M. Getzlaff, J. Basmann, J. Braun und G. Schönhense, *J. Magn. Mat.* 161, 70 (1996)
- [76] W. Kuch und C.M. Schneider, *Rep. Prog. Phys.* 64, 147 (2000)
- [77] O. Paul, M. Taborelli und M. Landolt, *Surf. Sci.* 211, 724 (1989)
- [78] G. Schönhense und H.C. Siegmann, *Ann. Phys.* 2, 465 (1993)
- [79] A. B. Schmidt, M. Pickel, M. Wiemhöfer, M. Donath und M. Weinelt, *Phys. Rev. Lett.* 95, 107402 (2005)
- [80] A. Goris, K. M. Döbrich, I. Panzer, A. B. Schmidt, M. Donath und M. Weinelt, *Phys. Rev. Lett.* 107, 026601 (2011)
- [81] A. B. Schmidt, M. Pickel, M. Donath, P. Buczek, A. Ernst, V. P. Zhukov, P. M. Echenique, L. M. Sandratskii, E. V. Chulkov und M. Weinelt, *Phys. Rev. Lett.* 105, 197401 (2010)

# Publikation

Teile dieser Arbeit wurden als

*Discrimination between direct and indirect transitions in near-threshold photoemission from Co films on Pt(111)*

M. Staab, D. Kutnyakhov, R. Wallauer, S. Chernov, K. Medjanik, H.J. Elmers, M. Kläui und G. Schönhense

zur Veröffentlichung in *New Journal of Physics* eingereicht.



Aus Datenschutzgründen entfernt.



Aus Datenschutzgründen entfernt.



# Erklärung

Diese Arbeit wurde am Institut für Physik der Johannes Gutenberg-Universität Mainz angefertigt.

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Von der Ordnung zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis in Forschung und Lehre und zum Verfahren zum Umgang mit wissenschaftlichem Fehlverhalten habe ich Kenntnis genommen.

Mainz, den 10. Oktober 2016

Maximilian Staab