

Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften

**Phononkopplung an Spins und
Ladungen auf der ultraschnellen
Zeitskala im antiferromagnetischen
Halbleiter MnTe**

Marc Terschanski
geboren in Velbert

2022

Lehrstuhl für Experimentelle Physik VI
Fakultät Physik
Technische Universität Dortmund

Erstgutachter: Prof. Dr. Mirko Cinchetti
Zweitgutachter: apl. Prof. Dr. Ilya Akimov
Abgabedatum: 29. Juni 2022

Abstrakt

Im ersten Teil dieser Arbeit wird ein neu installierter Aufbau beschrieben, der die gleichzeitige Durchführung optischer und magneto-optischer Pump-Probe Experimente als Funktion der Temperatur, eines Magnetfeldes oder eines angelegten elektrischen Feldes ermöglicht. Im zweiten Teil dieser Arbeit wird mit optischen Anregungen untersucht, ob eine Kopplung zwischen dem Spinsystem und dem elektronischen System in dem magnetischen Halbleiter α -MnTe existiert. Dazu wird eine 200 nm dicke Schicht α -MnTe mit verschiedenen experimentellen Methoden vermessen. Die Bandlücke von α -MnTe ist um einen zusätzlichen Beitrag in der antiferromagnetischen Phase blauverschoben, welcher proportional mit der Untergittermagnetisierung skaliert. Diese statische Kopplung zwischen der Bandlücke und dem Spinsystem wird erfolgreich in unserer Probe reproduziert. Darauf aufbauend wird die Dynamik der Bandlücke unter Verwendung des Pump-Probe Verfahrens untersucht. Die transiente Reflektivität zeigt, dass die Bandlücke durch das optisch aktive E_{2g} -Phonon kohärent moduliert wird. Im finalen Schritt wird die Bandlücke kohärent angeregt und die Antwort des Spinsystems, die Rotation der Polarisation, detektiert. Diese ist ebenfalls durch das E_{2g} -Phonon kohärent moduliert und zeigt einen zusätzlichen inkohärenten Beitrag in der antiferromagnetischen Phase, welcher eindeutig auf die magnetische Ordnung zurückzuführen ist. Die Zerfallszeit dieses Beitrags entspricht der der Zeitskala der Untergitterdemagnetisierung. Somit konnte in dieser Arbeit eine phonongestützte Kopplung zwischen dem elektronischen System und dem Spinsystem in α -MnTe gezeigt werden.

In the first part of this thesis, a newly constructed set-up is described that allows simultaneous optical and magneto-optical pump-probe experiments to be performed as a function of temperature, magnetic field or an applied electric field. In the second part of this work, optical methods are used to investigate whether a coupling exists between the spin system and the electronic system in the magnetic semiconductor α -MnTe. For this purpose, a 200 nm thick layer of α -MnTe is measured with different experimental methods. The band gap of α -MnTe experiences an additional blue shift in the antiferromagnetic phase, which scales proportionally with the sublattice magnetisation. This static coupling between the band gap and the spin system is successfully reproduced in our sample. Based on this, the dynamics of the band

gap is investigated using the pump-probe method. The transient reflectivity shows that the band gap is coherently modulated by optical active E_{2g} -phonons. In the final step, the band gap is coherently excited and the response of the spin system, the rotation of the polarisation, is detected. Again the rotation of polarisation is coherently modulated by the E_{2g} -phonon and shows an additional incoherent contribution in the antiferromagnetic phase, which is ascribed to the magnetic order. The decay time of this contribution corresponds to the time scale of the sublattice demagnetisation. Thus, a phonon-assisted coupling between the electronic system and the spin system on the femtosecond timescale in α -MnTe has been demonstrated in this work.

Inhaltsverzeichnis

1 Einführung	1
1.1 Spintronik als Zukunft der Datenverarbeitung	1
1.2 Kooperativer Magnetismus in Festkörpern	3
1.3 Magnetische Anisotropie	5
1.3.1 Spinwellen in antiferromagnetischen Materialien	7
1.4 Über diese Arbeit	12
2 Experimentelle Aufbauten und Messtechniken	15
2.1 Das CARY 6000i Spektrometer	15
2.2 Pump-Probe Technik	17
2.3 Optischer Aufbau für Pump-Probe Experimente mit fs-Auflösung	19
2.3.1 Supercontinuum als Probepuls	23
2.3.2 Magneto-optische Pump-Probe Experimente	23
2.4 Entwicklung eines Pump-Probe Aufbaus für Magneto-optische Experimente an der TU Dortmund	27
2.4.1 Lasersystem	28
2.4.2 Strahlpropagation	29
2.4.3 Detektion	30
3 Magnetische Blauverschiebung in α-MnTe	34
3.1 Probencharakterisierung	34
3.2 Temperaturabhängige Absorptionmessungen	36
3.3 Bestimmung der Bandlücke aus Absorptionsspektren	38
3.4 Blauverschiebung in indirekten Halbleitern	43
3.5 Magnetische Blauverschiebung in α -MnTe	44
4 Zeitaufgelöste Messungen mit Supercontinuum	49
4.1 Charakterisierung des experimentellen Aufbaus	49
4.2 Zeit- und spektral-aufgelöste Messungen der transienten Reflektivität	50
4.3 Kohärente Modulation der Bandlücke in α -MnTe	53
5 Kapitel 5: Zeitaufgelöste Magneto-optische Messungen in α-MnTe	59
5.1 Charakterisierung des experimentellen Aufbaus	59
5.2 Magnetischer Lineardichroismus in α -MnTe	60

Inhaltsverzeichnis

5.3	Temperaturabhängige magneto-optische Messungen	63
5.3.1	Transiente Transmission	63
5.3.2	Rotation der Polarisierung	67
5.3.3	Model zur phononischen Erzeugung von Magnonen	69
6	Zusammenfassung der Ergebnisse	72
A	Anhang	74
	Literatur	75

1 Einführung

In diesem Kapitel wird zunächst das Thema dieser Arbeit in den Kontext spintronischer Anwendungen gebracht. Die Vorteile dieser neuen Technologien gegenüber konventioneller Elektronik werden anschließend gezeigt. Darauf aufbauend werden magnetische Grundordnungen in Festkörpern diskutiert und der Vorteil antiferromagnetischer Materialien gegenüber Ferromagneten für spintronische Anwendungen aufgezeigt. Dieser Vorteil zeigt sich in der Geschwindigkeit, mit der sich magnetische Anregungen in Festkörpern manifestieren. Die Dispersionsrelation wird für einen allgemeinen antiferromagnetischen Festkörper hergeleitet und für den speziellen Fall der hier verwendeten Probe berechnet. Abschließend wird das Ziel dieser Arbeit definiert. Die Vorgehensweise zur Erreichung dieses Ziels wird in den Ausarbeitungen der folgenden Kapitel gezeigt.

1.1 Spintronik als Zukunft der Datenverarbeitung

Als Startpunkt des Zeitalters der digitalen Datenverarbeitung kann die Erfindung des ersten funktionierenden Bipolartransistors 1947 durch William Shockley, John Bardeen und Walter H. Brattain gesehen werden [1]. In den folgenden Jahrzehnten lösten diese die Elektronenröhre als aktiven Bestandteil elektronischer Schaltung weitgehend ab. Heute bilden deren Nachfolger die Feldeffekttransistoren, als "Ein/Aus-Schalter", das Rückgrat integrierter Schaltkreise. In einem Transistor ermöglicht das Anlegen einer Spannung am Gatekanal den elektrischen Widerstand, und damit den Stromfluss, zwischen Drain und Source zu steuern (siehe Abbildung 1.1a), wodurch ein elektrisch gesteuerter Schalter realisiert wird [2]. Zu Beginn wurden Transistoren aus dem Halbleiter Germanium gefertigt. Aufgrund einer höheren Stabilität und einfacherer Produktionsprozesse wurde Germanium in den 1960er und 70er Jahren schrittweise durch Silizium ersetzt. Die Anzahl an Transistoren in einem einzelnen integrierten Schaltkreis gilt als Kenngröße zur Beschreibung des technologischen Standes dieser mikroelektronischen Bauteile. 1965 beobachtete Gordon Moore eine Gesetzmäßigkeit, basierend auf phänomenologischen Beobachtungen, welche besagt, dass sich die Anzahl der Transistoren pro Schaltkreis alle 18 Monate verdoppelt [3]. Die Gültigkeit von *Moore's law* hat bis heute (2022) Bestand, wie in Abbildung 1.1b verdeutlicht ist. Der Ansatz zur Erhöhung der Transistordichte pro Schaltkreis beruht

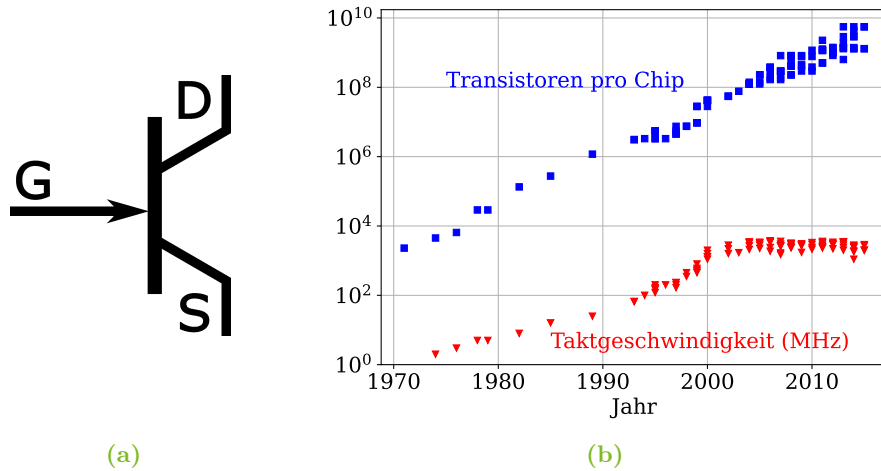


Abbildung 1.1: Rechts: Funktionsprinzip eines Transistors. Der Widerstand zwischen Drain (D) - und Source (S) - Kontakten ist durch eine anlegbare Spannung zwischen Gate (G) und Source regelbar. Links: Entwicklung der Transistoranzahl auf einem einzelnen integrierten Schaltkreis.

maßgeblich auf der Minituarisierung des Transistorelementes. Zunächst erwies sich diese Herangehensweise als vorteilhaft, weil der Energieverbrauch sank, da weniger Energie benötigt wurde, um die Elektronen von Drain zur Source zu bewegen. Durch die fortschreitende Minituarisierung der Elektronik mussten sich die Elektronen bei einer Größe von ~ 90 nm so schnell durch das Silizium bewegen, dass sich der Chip bei jeder einzelnen Operation merklich erhitzte. Deshalb wurde im Jahr 2004, ohne auf eine physikalische Grenze gestoßen zu sein, die Taktrate gedeckelt, um eine Überhitzung der Schaltkreise bei zwei aufeinanderfolgenden Operationen zu verhindern [4]. Um dennoch die Geschwindigkeit der Datenverarbeitung zu erhöhen, sind andere Herangehensweisen nötig. Eine davon basiert auf der Nutzung eines weiteren Freiheitsgrades: dem Elektronenspin.

Spintronik

Technologie, die auf dem Konzept der Integration des Elektronenspins in heutige Elektronik basiert, wird *Spintronik* (Spin-Elektronik) genannt. 1988 wurde der Startschuss für Spin-basierte Elektronik durch die Entdeckung des Riesenmagnetowiderstandes (GMR) gesetzt, für welchen Albert Fert und Peter Grünberg 2007 den Nobelpreis erhalten haben [5]. Dieses Phänomen wird bei mehrschichtigen Dünnschichtmaterialien beobachtet, bei denen sich ferromagnetische und nichtmagnetische Schichten abwechseln. Die Ausrichtung der magnetischen Momente der ferromagne-

tischen Schichten ist für eine Änderung des elektrischen Widerstands verantwortlich. Er ist höher, wenn die Momente parallel ausgerichtet sind, und er ist niedriger, wenn sie anti-parallel ausgerichtet sind, was sich in eine logische Eins (hoher Widerstand) oder eine Null (niedriger Widerstand) übersetzen lässt. Dieser Effekt wird bereits in technischen Anwendungen verwendet, welche im Bereich der Datenverarbeitung und -speicherung arbeiten, z. B.: Leseköpfe für Festplatten oder *magnetoresistive random access memory* (MRAM) und damit als Speichermedium verwendet werden [6]. Die Anwendung dieser Spintronikelemente basiert auf der Reorientierung der Magnetisierung der ferromagnetischen Schicht, wodurch die Geschwindigkeit der Datenverarbeitung maßgeblich durch die Zeitskala der Neuausrichtung der magnetischen Momente charakterisiert ist. 2004 hat die Gruppe um Kimel et al. gezeigt, dass in antiferromagnetischem TmFeO_3 mit einem einzelnen 40 ps langen Laserpuls die Spins in einem Zeitfenster von 20 ps reorientiert werden können. Dieser Effekt ist deterministisch und kann also wie ein An/Aus-Schalter benutzt werden. Er bietet einen Zugang die Datenspeicherung durch rein optische Laserpulse zu steuern [7]. Für weitere alltägliche Anwendungen ist die Implementierung des Spin-Freiheitsgrades in die derzeit verwendete Halbleitertechnologie eine vielversprechende Idee. Zunächst müssen noch einige technische Schlüsselfragen wie effiziente Injektion, Transport, Kontrolle, Manipulation und Detektion von Spinpolarisation und spinpolarisierten Strömen geklärt werden. Idealerweise sollte die Manipulation von Spins in Halbleitern ultraschnell, frei von Erwärmung und in ein elektrisches Signal umwandelbar sein. Diese Bedingungen können die Integration dieses neuartigen Konzepts in die heutigen ladungsbasierten Halbleitertechnologien gewährleisten. Obwohl eine Vielzahl von spintronischen Effekten in paramagnetischen und ferromagnetischen Halbleitern gezeigt wurde, wird eine andere Klasse von magnetischen Materialien als vielversprechendster Kandidat für zukünftige spintronische Anwendungen diskutiert: Antiferromagnete. Im folgenden Unterkapitel werden allgemeine Eigenschaften magnetischer Materialien vorgestellt und anschließend ein entscheidender Vorteil von Antiferromagneten gegenüber Ferromagneten präsentiert.

1.2 Kooperativer Magnetismus in Festkörpern

Magnetische Materialien werden durch die kollektive Ausrichtung ihrer magnetischen Momente klassifiziert. In Abbildung 1.2 ist schematisch die Spinorientierung für ferromagnetische (FM) und antiferromagnetische (AFM) Materialien gezeigt. In FMen führt die Austauschwechselwirkung zwischen permanenten magnetischen Momenten zu einer makroskopischen räumlichen Parallelordnung der Spins. Die

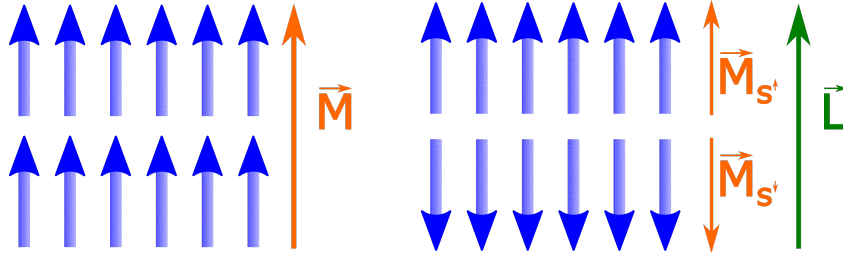


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der Spins in einem ferromagnetischen (links) und antiferromagnetischen Material (rechts). In Ferromagneten sind alle Spins entlang einer Richtung orientiert und der Gesamtspin wird durch \vec{M} beschrieben. Antiferromagnetische Materialien hingegen weisen zwei Untergitter auf, in denen die Spins ferromagnetisch gekoppelt sind. Die Gesamtspins der Untergitter $\vec{M}_{S^{\uparrow, \downarrow}}$ sind antiparallel gekoppelt und ergeben eine makroskopische Gesamtmagnetisierung von $\vec{M} = 0$. Zur Beschreibung der magnetischen Ordnung in Antiferromagneten wird der Néelvektor $\vec{L} = \vec{M}_{S^{\uparrow}} - \vec{M}_{S^{\downarrow}}$ eingeführt.

Gesamtmagnetisierung \vec{M} in einem FM ist durch den Magnetisierungsvektor

$$\vec{M} = \sum_i^N s_i \quad (1.1)$$

gegeben, welcher der Summe aller Spins s_i des Materials entspricht. Für paramagnetische Materialien liefert Gleichung [1.1](#) den Wert 0 aufgrund der zufälligen Orientierung der Spins, die sich über das gesamte Kristallvolumen kompensiert. Antiferromagnetische Materialien bestehen aus zwei antiferromagnetisch gekoppelten Untergittern innerhalb derer die magnetischen Momente ferromagnetisch ausgerichtet sind, wodurch sich nach Gleichung [1.1](#) ebenfalls eine Gesamtmagnetisierung $\vec{M}_{AFM} = 0$ für den gesamten Kristall ergibt (siehe Abbildung [1.2b](#)). Zur Beschreibung der magnetischen Ordnung in AFMen wird der Néelvektor

$$\vec{L} = \vec{M}_{S^{\uparrow}} - \vec{M}_{S^{\downarrow}} \quad (1.2)$$

eingeführt, welcher der Differenz der Untergittermagnetisierung \vec{M}_{S^i} entspricht. Die magnetische Grundordnung kann über Umklappprozesse einzelner Spins (Spin-Flip) oder Spinwellen (Magnonen) angeregt werden. Für das Umklappen eines einzelnen Spins wird eine Anregungsenergie benötigt, die durch die Austauschwechselwirkung J_A mit den Nachbarmomenten bestimmt ist, welche die Spins miteinander koppelt. Bei der Anregung einer Spinwelle wird ein Spin über mehrere teilnehmende Spins N umgeklappt. Jeder Spin ist dabei um den Winkel $180 \text{ deg}/N$ gegenüber seinen benachbarten Spins gekippt. Schlussendlich ist der N -te Spin vollständig umgeklappt. Ferromagnetische und antiferromagnetische Materialien unterscheiden sich

gravierend in der Größenordnung der Zeitskala, auf der sich die angeregte Dynamik manifestiert. Um die Magnetisierung eines Ferromagneten aus dem Gleichgewicht zu bringen, ist ein kritisches Feld H_{krit}^{FM} vonnöten, das mindestens der Stärke des effektiven Anisotropiefeldes

$$H_{krit}^{FM} \geq H_A \quad (1.3)$$

entspricht. Im Gegensatz dazu muss zur Anregung eines Antiferromagneten ein um das Austauschfeld H_{ex} verstärktes Feld

$$H_{krit}^{AFM} \geq \sqrt{H_{ex} H_A} \quad (1.4)$$

überwunden werden. Die Stärke des Austauschfeldes ist typischerweise deutlich größer als die des Anisotropiefeldes ($H_A < 1$ T, $H_{ex} \sim 100$ T). Die Abhängigkeit der Stärke des anregenden Feldes zeigt sich ebenfalls in der Frequenz der magnetischen Resonanz ab welcher Spinanregungen induziert werden:

$$\omega_{FM} \sim \gamma H_A \quad (1.5)$$

$$\omega_{AFM} \sim \gamma \sqrt{H_{ext} H_A} \quad (1.6)$$

Hier beschreibt γ das gyromagnetische Verhältnis. Dieser Unterschied in der Stärke des kritischen Feldes H_{krit} wird der Tatsache zugeschrieben, dass in AFMen den magnetischen Momenten kein Drehimpuls zugeschrieben wird. Die Robustheit der Spins eines Antiferromagneten gegenüber einem externen magnetischen Feld spiegelt sich in den Resonanzfrequenzen der Spinanregungen ω_{FM} und ω_{AFM} wider, die sich um zwei Größenordnungen unterscheiden können. Aufgrund dieser Tatsache besitzen Antiferromagneten das Potential, die Geschwindigkeit der Datenverarbeitung in der Spintronik erheblich zu erhöhen [7, 8].

1.3 Magnetische Anisotropie

Im Allgemeinen wird beobachtet, dass sich die Magnetisierung \vec{M} entlang einer klar definierten Richtung orientiert während andere Ausrichtungen gemieden werden. Die bevorzugte Richtung der Magnetisierung wird als *magnetisch leichte Achse* bezeichnet wohingegen eine andere ungünstige Richtung als *magnetisch schwere Achse* definiert ist. Die Energie, die vonnöten ist um \vec{M} von der leichten zur schweren Achse zu drehen, wird als magnetische Anisotropie E_{ani} bezeichnet und ist von physikalisch grundlegender Bedeutung [9]: Bleiben wir im Bild des binären Datenspeichers aus dem ersten Paragraphen bei dem eine Magnetisierungsrichtung eine logische "0" und die entgegengesetzte Ausrichtung eine "1" darstellt. Eine verschwindende magnetische Anisotropie bedeutet, dass ohne Energieaufwand zwischen den

beiden Zuständen gewechselt werden kann, wodurch die Speicherung der Zustände, und damit von Daten, nicht möglich ist. Die magnetische Anisotropie setzt sich maßgeblich aus drei Hauptkomponenten zusammen:

- **Magnetokristalline Anisotropie**
Die magnetokristalline Anisotropie E_{MCA} ist eine intrinsische Materialeigenschaft, welche über das Kristallfeld erzeugt wird. Dieses führt über die Spin-Bahn-Kopplung zu einer Vorzugsrichtung des Bahndrehimpulses und damit zu einer Vorzugsrichtung der Spins;
- **Formanisotropie**
Die Formanisotropie E_{form} ergibt sich aus der charakteristischen Form des Festkörpers;
- **Induzierte Anisotropie**
Mechanischer Druck, Gitterfehler oder unterschiedliche Gitterkonstanten zwischen Substrat und der darauf gewachsenen Probe können zu elastischen Verspannungen führen, die sich durch die induzierte Anisotropie E_{ind} äußert.

Neben diesen intrinsischen Materialeigenschaften kann sich, zum Beispiel durch das Anlegen eines äußeren Magnetfeldes H_{ext} , ebenfalls die Stärke der Anisotropie ändern, da zusätzlich die Zeeman-Energie E_{zee} betrachtet werden muss, welche zu einer bevorzugten Ausrichtung entlang der Orientierung des externen Magnetfeldes führt. Die magnetische Anisotropie ist somit die Summe

$$E_{ani} = E_{MCA} + E_{form} + E_{ind} + E_{zee} + \dots \quad (1.7)$$

dieser Komponenten, wenngleich weitere Beiträge zu E_{ani} existieren, die nicht weiter diskutiert werden. Die magnetisch leichte und schwere Achse wird von dem Wert von E_{ani} definiert, welcher wiederum auf die Orientierung der Magnetisierung des Materials zurückzuführen ist [9]. Im Folgenden soll ein näherer Fokus auf die magnetokristalline Anisotropie E_{MCA} und deren Ursprung gelegt werden, da diese für diese Arbeit von besonderer Bedeutung ist.

Magnetokristalline Anisotropie

Von spezieller Bedeutung für diese Arbeit ist die magnetokristalline Anisotropie E_{MCA} , auf die im Folgenden etwas genauer eingegangen werden soll. Ist die magnetokristalline Anisotropie die dominierende Komponente der magnetischen Anisotropie, so richtet sich die Magnetisierung entlang einer bestimmten kristallographischen Achse des Materials aus.

Zur phänomenologischen Beschreibung des Ursprung der MCA wird zunächst das

Kristallfeld der nächsten Nachbarn betrachtet, welches auf ein magnetisches Ion wirkt. Dieses sieht die Elektronen benachbarter Atome als negative Punktladungen. Das Elektron, welches das magnetische Moment trägt, erfährt dadurch eine Coulombabstoßung, wodurch sich die Bahn des Elektrons ändert. Somit beeinflusst die Gitterstruktur die Orbitalbewegung \mathbf{L} des Elektrons [10]. Des Weiteren muss die relativistische Spin-Orbit Kopplung betrachtet werden: Die Orbitalbewegung \mathbf{L} eines Elektrons erzeugt ein magnetisches Feld, das an den Spin \mathbf{S} des Elektrons koppelt [10, 11]. Somit koppelt die Spinorientierung des magnetischen Elektrons durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung an seine Orbitalbewegung, welche durch die Gitterstruktur des Kristalls beeinflusst wird. Dadurch entsteht schlussendlich eine Wechselwirkung zwischen dem magnetischen Moment und dem Kristallgitter sofern im Material eine Spin-Orbit-Kopplung präsent ist.

Die magnetokristalline Anisotropie beeinflusst in nicht-kubischen Kristallstrukturen so genannte Spinwellen - Anregungen der magnetischen Ordnung. Diese werden im folgenden Abschnitt hergeleitet und die Dispersionsrelation wird für die hier verwendete Probe exemplarisch berechnet.

1.3.1 Spinwellen in antiferromagnetischen Materialien

Wie bereits in Kapitel 1.2 erläutert, wird ein Antiferromagnet durch zwei Untergitter mit entgegengesetzter Magnetisierung beschrieben, welche sich kompensieren, somit also keine Nettomagnetisierung \vec{M} existiert. Im Folgenden wird die Dispersionsrelation magnetischer Anregungen in einem Antiferromagneten mit einer *leichten Achse* hergeleitet. Die Spins sind in dieser Betrachtung so angeordnet, dass die Magnetisierung der Untergitter entlang der z-Achse orientiert ist. Als Ausgangspunkt wird ein Hamiltonoperator aus dem Heisenbergbild der Form

$$H = \sum_{i \neq j} J_{ij} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+ + 2S_i^z S_j^z) + D \sum_{i,j} (S_{i,j}^z)^2 \quad (1.8)$$

betrachtet wobei J_{ij} dem Austauschintegral zwischen Spins S_j und S_i entsprechen welche sich wiederum in den beiden Untergittern 1 und 2 befinden. Die Anisotropie wird durch die Konstante D ausgedrückt [12]. Zur Überführung von Gleichung 1.8 in eine Form, in der die Komponenten des Spinoperators durch Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren beschrieben werden, wird eine Holstein-Primakoff-Transformation (HPT) für beide Untergitter durchgeführt. Für das Spin-Up Unter-

gitter ergeben sich folgende Transformationvorschriften:

$$\begin{aligned}
 S_{\uparrow i}^+ &= \sqrt{(2S - a_i^\dagger a_i)} a_i \\
 S_{\uparrow i}^- &= a_i^\dagger \sqrt{(2S - a_i^\dagger a_i)} \\
 S_{\uparrow i}^z &= S - a_i^\dagger a_i \quad ,
 \end{aligned} \tag{1.9}$$

und in Analogie für das Spin-Down Untergitter

$$\begin{aligned}
 S_{\downarrow j}^+ &= b_j^\dagger \sqrt{(2S - b_j^\dagger b_j)} \\
 S_{\downarrow j}^- &= \sqrt{(2S - b_j^\dagger b_j)} b_j \\
 S_{\downarrow j}^z &= -S + b_j^\dagger b_j \quad .
 \end{aligned} \tag{1.10}$$

In Gleichungen [1.9](#) und [1.10](#) beschreiben a_i^\dagger und b_j^\dagger Spinerzeugungsoperatoren der Spins i und j , in den jeweiligen Untergittern, gekennzeichnet durch die Magnetisierungsorientierung \uparrow und \downarrow . a_i und b_j markieren die dazu gehörigen Vernichtungsoperatoren, welche die bosonischen Kommutatorrelationen $[a_i, a_{i'}^\dagger] = \delta_{ii'}$, $[a_i, a_{i'}] = 0$, $[b_j, b_{j'}^\dagger] = \delta_{jj'}$ und $[b_j, b_{j'}] = 0$ erfüllen [12](#). Einsetzen der HPT in Gleichung [1.8](#) liefert

$$\begin{aligned}
 H &= \sum_{i \neq j} J_{ij} \sqrt{(2S - a_i^\dagger a_i)} a_i \sqrt{(2S - b_j^\dagger b_j)} b_j \\
 &\quad + a_i^\dagger \sqrt{(2S - a_i^\dagger a_i)} b_j^\dagger \sqrt{(2S - b_j^\dagger b_j)} \\
 &\quad + 2((S - a_i^\dagger a_i) \cdot (-S + b_j^\dagger b_j)) \\
 &\quad + D \sum_{i,j} ((S - a_i^\dagger a_i) - (-S + b_j^\dagger b_j)) \quad .
 \end{aligned} \tag{1.11}$$

Unter Betrachtung kleiner Spinfuktuationen im Verhältnis zur Gesamtmagnetisierung $a_i^\dagger a_i \ll 2S$ kann die Wurzel, nachdem der Faktor $2S$ herausgezogen wurde, durch

$$\begin{aligned}
 \frac{a_i^\dagger a_i}{2S} \ll 1 &\rightarrow \sqrt{1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}} \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{a_i^\dagger a_i}{2S} \quad , \\
 \frac{b_j^\dagger b_j}{2S} \ll 1 &\rightarrow \sqrt{1 - \frac{b_j^\dagger b_j}{2S}} \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{b_j^\dagger b_j}{2S}
 \end{aligned} \tag{1.12}$$

genähert werden. Unter Verwendung der Entwicklung der Wurzel aus Gleichung [1.12](#) und der harmonischen Näherung, wodurch Terme mit mehr als zwei Operatoren

nicht berücksichtigt werden, ergibt sich

$$\begin{aligned}
 H \approx & -2SJzN + 2S \sum_{i \neq j} J_{ij} (a_i b_j + a_i^\dagger b_j^\dagger + b_j^\dagger b_j + a_i^\dagger a_i) \\
 & - DS^2N + DS \left(\sum_j b_j^\dagger b_j + \sum_i a_i^\dagger a_i \right) \quad , \quad (1.13)
 \end{aligned}$$

wobei $2N$ der Gesamtzahl an Spins des Systems entspricht, sodass sich bei Ausführung der Summe über ein komplettes Untergitter der Faktor N ergibt. Der Faktor z beschreibt die Anzahl der nächsten Nachbarn im Kristall und ist somit materialabhängig. Im nächsten Schritt wird der quadratische Teil des Hamiltonoperators aus Gleichung 1.13 in den reziproken Raum mittels folgender bosonischer Operatoren transformiert 12:

$$\begin{aligned}
 a_i &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k \exp(i\vec{k}\vec{r}_i) a_k \\
 b_j &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k \exp(i\vec{k}\vec{r}_j) b_k \quad . \quad (1.14)
 \end{aligned}$$

Hier entspricht \vec{k} einem Wellenvektor und i der imaginären Einheit. Unter Verwendung der Orthogonalitätsbeziehung

$$\frac{1}{N} \sum_i \exp(i(\vec{k} - \vec{k}')\vec{r}_i) = \delta_{\vec{k}, \vec{k}'} \quad (1.15)$$

wird der Hamiltonian aus Gleichung 1.13 zu

$$\begin{aligned}
 H \approx & 2SJz \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} \left(\delta_{\vec{k}, \vec{k}'} a_{\vec{k}}^\dagger a_{\vec{k}'} + \delta_{\vec{k}, \vec{k}'} b_{\vec{k}}^\dagger b_{\vec{k}'} \right. \\
 & \left. + \sum_{\kappa} \delta_{\vec{k}, -\vec{k}'} a_{\vec{k}} b_{\vec{k}'} e^{i\kappa} + \sum_{\kappa} \delta_{\vec{k}, -\vec{k}'} a_{\vec{k}}^\dagger b_{\vec{k}'}^\dagger e^{-i\kappa} \right) \\
 & + DS \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} (a_{\vec{k}}^\dagger a_{\vec{k}'} + b_{\vec{k}}^\dagger b_{\vec{k}'}) \delta_{\vec{k}, \vec{k}'} \quad (1.16)
 \end{aligned}$$

vereinfacht. Dabei wird der Abstand zwischen Atomen im Untergitter 1 und deren nächsten Nachbarn im anderen Untergitter 2 durch κ beschrieben. Somit ergibt sich für ein Atom i mit relativer Position r_i im ersten Untergitter ein nächster Nachbar im anderen Untergitter an der Position $r_i + \kappa$. Diese Eigenschaft wird in dem Strukturfaktor

$$\gamma_{\vec{k}} \equiv \frac{1}{z} \sum_{\kappa} e^{i\kappa} \quad (1.17)$$

zusammengefasst und Gleichung [1.16](#) vereinfacht sich zu

$$H \approx 2SJz \sum_k a_k^\dagger a_k + b_k^\dagger b_k + \gamma_k a_k b_{-k} + \gamma^* a_k^\dagger b_{-k}^\dagger + DS \sum_k (a_k^\dagger a_k + b_k^\dagger b_k) \quad . \quad (1.18)$$

Im nächsten Schritt wird eine Bogoliubovtransformation verwendet, um von den bosonischen Operatoren a_k, a_k^\dagger sowie b_k, b_k^\dagger den Hamiltonoperator hin zu magnonischen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $\alpha_k, \alpha_k^\dagger$ und β_k, β_k^\dagger zu transformieren. Die kanonischen Transformationsrelationen haben folgende Form [12](#):

$$\begin{aligned} a_k &= u_k \alpha_k - v_k \beta_{-k}^\dagger & a_{-k}^\dagger &= u_k \alpha_{-k}^\dagger - v_k \beta_k \\ b_k &= -v_k \alpha_{-k}^\dagger + u_k \beta_k & b_{-k}^\dagger &= -v_k \alpha_k + u_k \beta_{-k}^\dagger \quad . \end{aligned} \quad (1.19)$$

Da Gleichungen [1.19](#) die Orthogonalitätsbedingungen erfüllen müssen, ergeben sich für die reellen Vorfaktoren u_k und v_k folgende Bedingungen

$$u_k^2 - v_k^2 = 1 \quad u_k v_{-k} = u_{-k} v_k \quad , \quad (1.20)$$

woraus sich folgende Eigenschaft erschließt

$$u_{-k} = u_k, \quad v_{-k} = v_k \quad . \quad (1.21)$$

Ebenfalls gilt die Kommutatorrelation

$$\alpha_k \alpha_k^\dagger = \alpha_k^\dagger \alpha_k + 1 \quad , \quad (1.22)$$

welche analog für die Operatoren β_k und β_k^\dagger aufgestellt wird. Es ist wichtig zu beachten, dass die Operatoren α und β kommutieren, da sie die Erzeugung und Vernichtung von Magnonen in den beiden unterschiedlichen Untergittern beschreiben. Die Anwendung der Bogoliubovtransformation auf den Hamiltonoperator aus Gleichung [1.18](#) ergibt

$$\begin{aligned} H \approx S \sum_k & \left(\alpha_k^\dagger \alpha_k [(u_k^2 + v_k^2 - 2\gamma u_k v_k) 2Jz + (u_k^2 + v_k^2) D] \right. \\ & + \beta_k^\dagger \beta_k [(u_k^2 + v_k^2 - 2\gamma u_k v_k) 2Jz + (u_k^2 + v_k^2) D] \\ & + \alpha_k \beta_{-k} [(\gamma(u_k^2 + v_k^2) - 2u_k v_k) 2Jz - 2u_k v_k D] \\ & \left. + \alpha_k^\dagger \beta_{-k}^\dagger [(\gamma(u_k^2 + v_k^2) - 2u_k v_k) 2Jz - 2u_k v_k D] \right) \quad . \end{aligned} \quad (1.23)$$

Um den Hamiltonian aus Gleichung [1.23](#) zu diagonalisieren, wird die Bedingungen

$$[(\gamma(u_k^2 + v_k^2) - 2u_k v_k) 2Jz - 2u_k v_k D] \stackrel{!}{=} 0 \quad (1.24)$$

aufgestellt, welche die Nicht-Diagonalelemente $\alpha\beta$ und $\alpha^\dagger\beta^\dagger$ gleich Null setzt und die Beziehung

$$\frac{2Jz\gamma}{2Jz + D} = \frac{2u_k v_k}{u_k^2 + v_k^2} \quad (1.25)$$

folgt [13]. Eine mögliche Lösung für die Wahl von v_k und u_k , welche die Identität aus Gleichung [1.20] erfüllt, sind die hyperbolischen Funktionen

$$u_k = \sinh(\Theta_k) \quad v_k = \cosh(\Theta_k) \quad (1.26)$$

womit sich Gleichung [1.25] zu

$$\frac{2Jz\gamma}{2Jz + D} = \frac{2 \sinh(\Theta_k) \cosh(\Theta_k)}{\sinh^2(\Theta_k) + \cosh^2(\Theta_k)} = \frac{\sinh(2\Theta_k)}{\cosh(2\Theta_k)} = \tanh(2\Theta_k) \quad (1.27)$$

aufföst. Somit lässt sich der Hamiltonian in seiner diagonalisierten Form

$$H = \sum_k \omega_k (\alpha_k^\dagger \alpha_k + \beta_k^\dagger \beta_k) \quad (1.28)$$

schreiben in der ω_k Frequenzen beschreiben, die durch

$$\omega_k = (u_k^2 + v_k^2) \left(2Jz + D - \frac{(2Jz\gamma_k)^2}{D + 2Jz} \right) \quad (1.29)$$

definiert sind. Abschließend werden die Parameter $\omega_\alpha = 2Jz$ und $\omega_\beta = D$ eingeführt. Dadurch und durch die Äquivalenz von $u_k^2 + v_k^2 = \cosh(2\Theta_k) = D + 2Jz$ ergibt sich die Dispersionsrelation zu

$$\omega_k = \sqrt{(\omega_{\alpha_k} + \omega_\beta)^2 - \gamma_k^2 \omega_\alpha^2} \quad (1.30)$$

Gleichung [1.30] beschreibt die Dispersionsrelation eines allgemeinen Antiferromagneten mit den Magnonmoden ω_α und ω_β . Für den speziellen Fall des in dieser Arbeit vorliegenden hexagonalen Kristallgitters hat jedes Mn-Atom zwei nächste Nachbarn an den Positionen $(0,0,\pm c/2)$, einen direkt oberhalb und einen direkt unterhalb, welche antiferromagnetisch gekoppelt sind. Dadurch ergibt sich der Strukturfaktor γ_k nach Formel [1.17] zu

$$\gamma_k \equiv \frac{1}{z} \sum_\kappa e^{ik\kappa} = \frac{1}{2} \left[\exp\left(\frac{iq_z c}{2}\right) + \exp\left(\frac{-iq_z c}{2}\right) \right] \quad (1.31)$$

$$= \cos\left(\frac{q_z c}{2}\right) \quad (1.32)$$

Zur Berechnung der Magnondispersion wird die Brillouinzone des hexagonalen Gitters betrachtet, welche wiederum einem hexagonalem Gitter entspricht, dessen

Zentrum Γ bei $(0,0,0)$ liegt. Der Symmetriepunkt M bei $(\pi/2,0,0)$ beschreibt den Mittelpunkt eines Vierecks der Oberfläche der Brillouinzone. In Abbildung 1.3 ist die Dispersionsrelation der in dieser Arbeit verwendeten Probe α -MnTe vom Zentrum der Brillouinzone zum Rand entlang der $\overline{\Gamma M}$ Richtung dargestellt. Diese wird nach Formel 1.30 mit dem für das hexagonale Gitter passenden Strukturfaktor γ_k aus Gleichung 1.32 berechnet. Die Werte für ω_α und ω_β sind aus Quelle [14] entnommen. Qualitativ entsprechen Form und die Magnonfrequenzen im Zentrum der Brillouin-

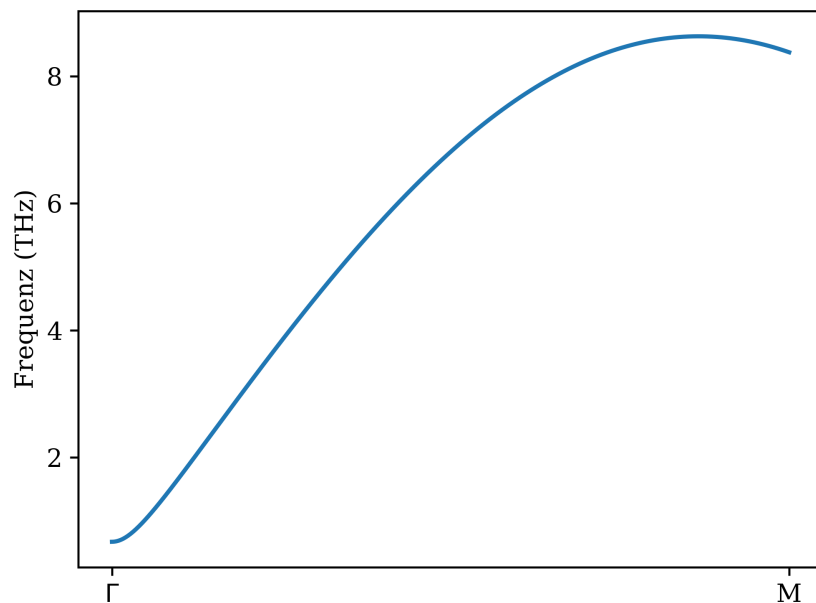


Abbildung 1.3: Magnon-Dispersionsrelation in hexagonalem α -MnTe. Qualitativ entspricht die Form der Dispersionsrelation der theoretischen Beschreibung aus der Literatur [14, 15, 16].

zone Γ sowie am Rand M dieser stark vereinfachten Betrachtung einer Spinanregung den Werten der Literatur [14, 15, 16], in welcher Dichtefunktionaltheoriesimulationen zur Berechnung der Magnondispersion durchgeführt wurden, die ebenfalls nächste Nachbarn und übernächste Nachbarn in der Analyse berücksichtigen.

1.4 Über diese Arbeit

Diese Arbeit ist Teil des Projektes B8 des Sonderforschungsbereichs *ICRC TRR 160* mit dem Titel *Femtosecond manipulation of charge-magnetism coupling in an antiferromagnetic semiconductor*. Das Ziel des Projektes ist es, das in Kapitel

[1.1] angesprochene Problem der Integrabilität neuartiger spinbasierter Technologie in bereits existierende ladungsträgerbasierte Elektronik anzugehen. Um dieses ambitionierte Ziel zu erreichen, wird mit optischen Anregungen, welche auf der Femtosekunden-Zeitskala stattfinden, eine mögliche Kopplung zwischen Spinsystem und dem elektronischen System untersucht (siehe Abbildung [1.4]). Die Verwendung

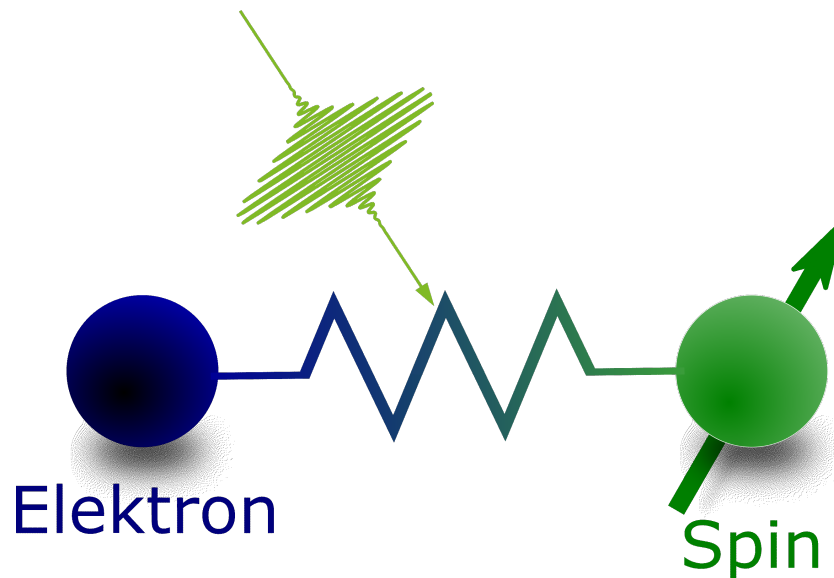


Abbildung 1.4: Ziel dieser Arbeit ist es, eine mögliche Kopplung zwischen dem Spinsystem und dem elektronischem System auf der Femtosekunden-Zeitskala mit optischen Methoden zu untersuchen.

von Femtosekunden-Lasern ist dabei von essentieller Bedeutung, da es sich bei dem zu untersuchenden Material um einen antiferromagnetischen Halbleiter handelt, in welchem magnetische Anregungen im Femtosekundenbereich stattfinden (siehe dazu Kapitel [1.2] und Abbildung [1.3]). Als sehr interessantes System hat sich MnTe in der hexagonalen Phase (α -MnTe) nicht nur aus experimenteller, sondern auch aus technologischer Sicht aus den folgenden Gründen herauskristallisiert:

- In statischen Experimenten wurde eine Kopplung zwischen Spinsystem und elektronischem System in Form eines temperaturabhängigen Energiebeitrages zur Bandlücke E_g , welcher proportional zur Untergittermagnetisierung ist, nachgewiesen [17];
- Die Néeltemperatur, unterhalb welcher sich die langreichweitige antiferromagnetische Ordnung bildet, liegt mit $T_N \sim 310$ K oberhalb der Raumtemperatur, wodurch eine starke Kühlung im laufenden Betrieb der Datenverarbeitung nicht nötig ist [18];

- α -MnTe mit einer Schichtdicke von wenigen nm bis hin zu einigen μm kann bereits in hoher Qualität produziert werden [18];
- Die elementaren Bestandteile von α -MnTe sind kostengünstig in der Beschaffung und kommen ohne die deutlich knapperen seltenen Erden aus.

Der erste Punkt ist aus experimenteller Sicht von großer Bedeutung während die Punkte 2-4 die Vorteile von α -MnTe aus technologischer Sicht als möglicher Hauptbestandteil antiferromagnetischer Halbleiter in zukünftiger Spintronik aufzeigen. In Kapitel 3.1 sind die physikalischen Eigenschaften der Probe detailliert beschrieben. Das experimentelle Vorgehen zur Erforschung der Natur einer möglichen Wechselwirkung auf der ultraschnellen Zeitskala zwischen Elektronen und Spins gliedert sich in drei aufeinander aufbauende Schritte. Wie in Punkt 1 beschrieben, wurde bereits von Ferrer-Roca et al. [17] gezeigt, dass in Proben mit α -MnTe Schichtdicken von einigen μm in statischen Absorptionmessungen ein Einfluss des Spinsystems, proportional zur Untergittermagnetisierung, zur Energie der Bandlücke gemessen wird. Der erste experimentelle Schritt dieser Arbeit ist detailliert in Kapitel 3 beschrieben und gilt der Reproduktion dieser Ergebnisse in unserer α -MnTe Probe mit einer Dicke von lediglich 200 nm. Aufbauend auf den Ergebnissen der statischen Absorptionsspektroskopie wird in Kapitel 4 die Dynamik des elektronischen Systems, in unserem Fall der Bandlücke, durch Messungen der transienten Reflektivität unter Verwendung des Pump-Probe Verfahrens untersucht. Als abschließender Schritt wird in Kapitel 5 mit dem Pump-Probe Verfahren das elektronische System auf der ultraschnellen Zeitskala kohärent angeregt und mittels Messung der Rotation der Polarisation untersucht, ob auf eine Anregung der Bandlücke eine Antwort des Spinsystems auf derselben Zeitskala erfolgt.

2 Experimentelle Aufbauten und Messtechniken

In diesem Kapitel sind die experimentellen Aufbauten beschrieben, die im Verlaufe dieser Arbeit verwendet werden. Zuerst wird das kommerzielle CARY System vorgestellt, das in Kapitel 3 benutzt wird, um die statische Absorption über einen großen spektralen Bereich als Funktion der Temperatur zu bestimmen. Darüber hinaus wird das Konzept der Pump-Probe Technik vorgestellt, welche zur Messung von Gitter- und Spindynamik auf der Femtosekundentzeitskala benutzt wird. Basierend auf diesem Konzept wird ein optischer Pump-Probe Aufbau in zwei verschiedenen Konfigurationen beschrieben: Zum einen wird die Dynamik der Bandlücke mit einem breitbandigem Supercontinuumimpuls (Kapitel 4) in Reflektionsgeometrie vermessen, zum anderen wird in einer zweiten Konfiguration die Rotation der Polarisation mittels magneto-optischer Effekte in Transmissionsgeometrie gemessen. Abschließend wird der an der TU Dortmund neu installierte Pump-Probe Aufbau für optische und magneto-optische Experimente vorgestellt, der unter anderem in dieser Arbeit entwickelt wurde.

2.1 Das CARY 6000i Spektrometer

Die in Kapitel 3 präsentierten Absorptionsmessungen werden mit dem kommerziell erhältlichen *CARY 6000i UV-Vis-NIR* System von *Agilent Technologies* durchgeführt [19]. Dieses Spektrometer ist speziell dafür konstruiert, Absorptionsmessungen verschiedener Materialklassen wie Halbleiter [20], Isolatoren [21] und Dielektrika [22] in einem großem spektralen Bereich durchzuführen. Eine schematische Darstellung des Spektrometers ist in Abbildung 2.1 zu sehen. Das CARY-System nutzt das Licht einer Wolframlampe, welche elektromagnetische Strahlung in einem spektralem Bereich von 175 nm bis 1800 nm emittiert. Eine Out-Of-Plane-Doppel-Littrow Monochromator Anordnung monochromatisiert das breitbandige Licht der Wolframlampe, sodass eine spektrale Auflösung von 1 nm erreicht wird [19]. Ein dreiblättriger Chopper moduliert das monochromatische Licht mit einer Frequenz von 30 Hz so, dass das Licht abwechselnd in drei Strahlengänge eingekoppelt wird:

1. Referenzstrahlengang

An dieser Position des Choppers ist kein Blatt vorhanden, sodass das Licht den Chopper passiert und in den Referenzstrahlengang eingekoppelt wird;

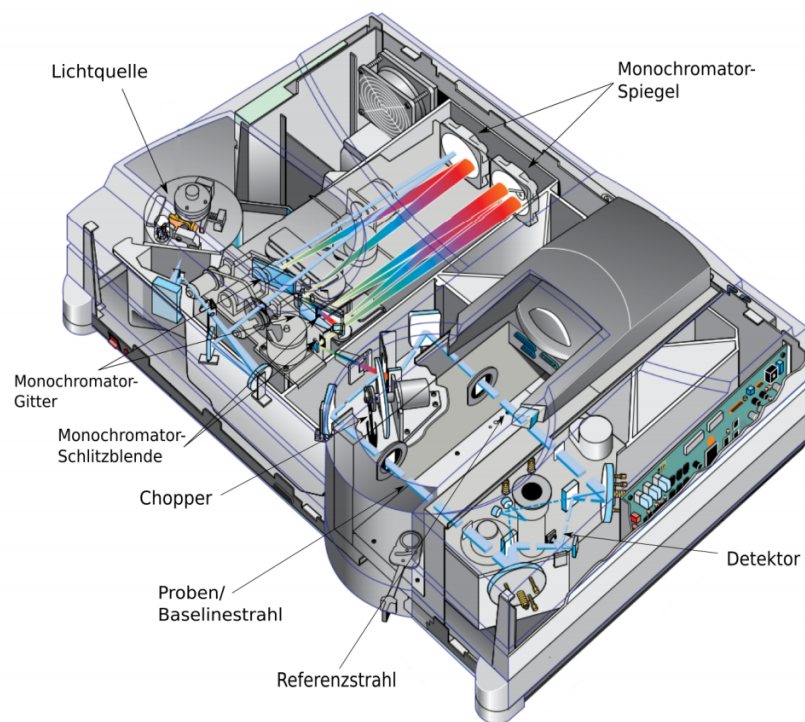


Abbildung 2.1: Darstellung des CARY Spektrometers, welches für die statischen Absorptionsmessungen genutzt wird, die in Kapitel 3 beschrieben sind. Das Ausgangssignal einer Wolframlampe wird nach Durchqueren eines Monochromators abwechselnd in zwei baugleiche Strahlengänge eingekoppelt. In einem Strahlengang befindet sich die zu vermessende Probe. Das Signal wird detektiert und mittels Software die Extinktion berechnet. Darstellung entnommen aus [19]

2. Probenstrahlengang

Ein Blatt des Choppers ist mit einem Spiegel versehen, durch den das Licht in den Probenstrahlengang reflektiert wird;

3. Geblockter Strahlengang

Für den dritten Strahlengang wird das Licht vollständig geblockt, um eine Dunkelstrommessung zu ermöglichen.

Proben- und Referenzstrahlengang sind identisch und unterscheiden sich dadurch, dass die zu vermessende Probe im Probenstrahlengang platziert wird wohingegen der Referenzstrahlengang unverändert bleibt [19]. Die Probe befindet sich in Verlauf der Messungen in einem Durchflusskryostaten, der mit flüssigem Helium gekühlt wird. In Kombination mit einem Heizelement lassen sich Temperaturen zwischen 4 K und 400 K einstellen. Auf Grund des großen spektralen Bereichs der Wolframquelle

stehen CARY zwei verschiedene Detektoren zur Verfügung: Eine Photokathode für den Bereich zwischen 175 nm und 800 nm sowie eine InGaAs-Photodiode für den Infrarotbereich von 800 nm bis 1800 nm. Der am besten geeignete Detektor im Bezug auf die Signalstärke wird durch eine mitgelieferte Software selbstständig ausgewählt [19]. Ein Datenpunkt setzt sich aus drei Einzelmessungen zusammen, indem aus der Intensität des durch die Probe transmittierten Lichtes I_{Probe} , des Referenzstrahls I_{Ref} und einer Dunkelstrommessung I_{Dunkel} die Extinktion zu

$$E = -\log_{10} \left(\frac{I_{Probe} - I_{Dunkel}}{I_{Ref}} \right) \quad (2.1)$$

berechnet wird. Ein Motor verändert die Littrow Monochromator Anordnung so, dass monochromatisches Licht mit einer Bandbreite von 1 nm beginnend bei 175 nm bis 1800 nm mit einer Aufnahmedauer von 1 s die Probe illuminiert und Spektren der statischen Extinktion E als Funktion der Wellenlänge gemessen werden. Um das Signal der Probe zu isolieren und etwaige Einflüsse, wie zum Beispiel Verunreinigungen oder Vibrationen, von einzelnen Optiken sowie deren Probenhaltern in den Teilstrahlen herauszufiltern, wird von jedem Spektrum eine Messung ohne Probe mit ansonsten identischen Parametern abgezogen. Aus der gemessenen Extinktion E wird mittels Formel [2.2] der Absorptionskoeffizient

$$\alpha = -\ln \left(\frac{10^{-E}}{d} \right) \quad (2.2)$$

für den gesamten spektralen Bereich bestimmt, wobei d die Probendicke beschreibt.

2.2 Pump-Probe Technik

Das in Kapitel [2.1] beschriebene Setup trägt neben einer Vielzahl verschiedener Techniken (z.B.: Raman- oder Neutronenstreuung, Absorptionsmessungen) dazu bei mittels der Wechselwirkung von Licht und Materie die elektronischen-, magnetischen- und Gittereigenschaften von Festkörpern zu untersuchen. Aus den Ergebnissen dieser statischen Experimente lassen sich die Frequenz und die Lebensdauer von Fundamentalanregungen wie Exzitonen, Magnonen oder Phononen ableiten, welche darauf hinweisen, dass eine Vielzahl interessanter physikalischer Prozesse eine charakteristische Zeitskala aufweisen, die im Piko- oder Femtosekundenbereich liegt. Die Entwicklung von Laserquellen mit einer Pulsdauer von wenigen hundert Femtosekunden ermöglicht den direkten Zugang zu den Dynamiken dieser Prozesse mit einer Auflösung von ~ 100 fs. Durch die Verwendung dieser ultrakurzen Laserpulse wird ein untersuchtes System in einen Nichtgleichgewichtszustand angeregt, welcher eine

Beschreibung durch thermodynamische Theorien nicht zulässt, da diese auf dem Prinzip des Gleichgewichts basieren. Um dennoch ein Verständnis der Vorgänge in diesem Nichtgleichgewichtszustand zu erlangen, bieten Pump-Probe Experimente ein umfangreiches Werkzeug um Relaxationsprozesse, die der Anregung folgen, zu untersuchen. Sie basieren auf der Verwendung zweier Laserstrahlen, bei denen einer als Anregepuls (eng.: *Pump*) dient, der die Probe aus ihrer Gleichgewichtslage in einen angeregten Zustand versetzt. Der Zustand der Probe nach der Anregung wird durch einen zweiten Laserstrahl, den Abfragepuls (eng.: *Probe*), aufgezeichnet. Die Änderung, die der Probe-Puls durch den angeregten Zustand der zu untersuchenden Probe erfährt, wird detektiert und die zeitliche Entwicklung durch Variation des relativen Zeitunterschieds Δt zwischen Pump- und Probe-Pulsen verfolgt. Dies ist schematisch in Abbildung 2.2 dargestellt. Pump-Probe Experimente müssen zwei

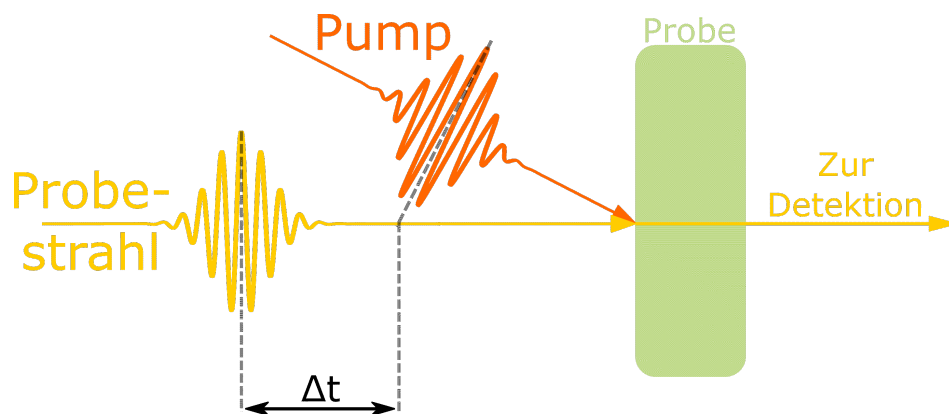


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Pump-Probe Technik. Ein starker Anregungspuls - der Pump - erzeugt einen Nichtgleichgewichtszustand in der Probe. Ein zweiter schwächerer Puls - der Probe - zeichnet den Zustand des angeregten Materials auf. Durch Variation des zeitlichen Abstandes zwischen Pump und Probe wird die Dynamik der Relaxation der Probe vollständig verfolgt.

Eigenschaften erfüllen, um eine zuverlässige Messung des angeregten Zustandes der Probe zu gewährleisten:

- Die Intensität des Pump-Strahls sollte ein Vielfaches höher sein als die des Probe-Strahls, welcher keine Anregungen in der Probe erzeugen sollte. Absolute Werte beider Intensitäten sind materialabhängig.
- Die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Pulsen muss so gewählt sein, dass das System genügend Zeit hat, um zurück zum Gleichgewichtszustand vor der Anregung zu relaxieren. Der in dieser Arbeit verwendete Laser pulst mit einer Frequenz von 2 kHz was bedeutet, dass die Probe nach spätestens 500 μ s wieder in ihrem Gleichgewichtszustand vorliegen muss.

Messungen der Dynamik werden in dieser Arbeit mit einem experimentellem Aufbau durchgeführt, welcher auf der Pump-Probe Technik basiert und detailliert im folgenden Unterkapitel [2.3](#) beschrieben ist. Zwei unterschiedliche Detektionsschemata, die auf die Eigenschaften des Probe-Strahls sowie der zu untersuchenden Materialeigenschaften speziell zugeschnitten sind, werden vorgestellt und im Detail erläutert.

2.3 Optischer Aufbau für Pump-Probe Experimente mit fs-Auflösung

Um die in dieser Arbeit präsentierten Messungen durchzuführen, werden an das Setup bestimmte Anforderungen gestellt, wie zum Beispiel eine Kühlmöglichkeit der Probe oder das Umstellen der Probenanregung von Reflektions- in Transmissionsgeometrie. Eine besondere Anforderung an den optischen Aufbau, um Dynamik auf der fs-Zeitskala zu untersuchen, ist eine Pulsdauer im unterem zweistelligem Femtosekundenbereich ($T_{Puls} \approx 20$ fs), sodass sich eine Abtastrate ergibt, die es ermöglicht, Dynamiken mit einer Periodendauer von einigen hundert Femtosekunden aufzulösen. Diese Anforderungen erfüllt das Setup der CUSBO Einrichtung (Laserlab-Europe Netzwerk) der italienischen Universität "Politecnico di Milano" unter Leitung von Prof. Dr. Giulio Cerullo. Der Aufbau bis zur Probe, welcher für die in den Kapiteln [4](#) und [5](#) beschriebenen Messungen verwendet wird, ist in [Abbildung 2.3](#) dargestellt. Die Detektionsschemata der Transmissionsmessungen in [Kapitel 4](#) und der Messungen der Rotation der Polarisation in [Kapitel 5](#) unterscheiden sich und sind in den folgenden Unterkapiteln [2.3.1](#) und [2.3.2](#) im Detail beschrieben.

Experimenteller Aufbau bis zur Probe

Die in dieser Arbeit verwendete Laserquelle ist ein regenerativ verstärkter modengekoppelter Ti:Saphir-Laser der Firma *Clark-MXR, Inc* (Modell: CPA-1), welcher Pulse mit 2 kHz Wiederholrate, 150 fs Pulsdauer und einer Pulsenergie von 500 μ J bei einer zentralen Wellenlänge von 780 nm emittiert [23](#). Anschließend Propagation durch einen 1 mm dicken Lithiumtriborat-Kristall (LBO, Summenformel: LiB_3O_5) erzeugt mit einer Effizienz von 30 % die zweite Harmonische der Grundfrequenz des Lasers. Ein Strahlteiler speist sowohl im Pump- als auch im Probestrahlangang einen selbstgebauten nicht-kollinearen-optischen-parametrischen-Verstärker (engl. NOPA) mit einem Teil der zweiten Harmonischen.

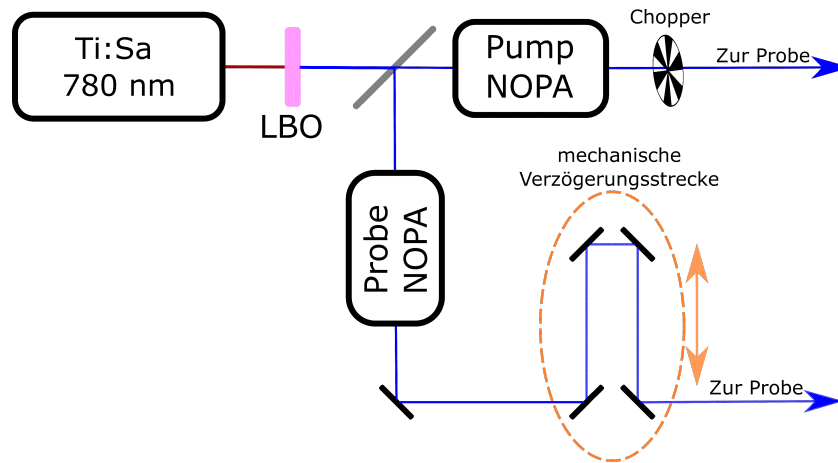


Abbildung 2.3: Schematischer Aufbau des in dieser Arbeit verwendeten Pump-Probe Setups. Zuerst wird die zweite Harmonische einer gepulsten Ti:Sa Laserquelle ($f_{rep} = 2 \text{ kHz}$) mittels eines LBO-Kristalls erzeugt und schließlich durch einen Strahlteiler in den Pump- und Probestrahl geteilt. Beide Teilstrahlen durchlaufen einen nicht-kollinearen-optisch-parametrischen Oszillator (engl.: NOPA) in welchem die Wellenlänge des Lichts in einem großen spektralen Bereich variabel einstellbar ist, sodass sie unseren Anforderungen entspricht. Der Pumpstrahl wird anschließend von einem mechanischem Chopper mit einer Frequenz von 1 kHz moduliert. Der Probestrahl durchläuft nach dem NOPA eine mechanische Verzögerungsstrecke, wodurch der relative Zeitunterschied Δt zwischen Pump- und Probepulsen einstellbar ist. Beide Strahlen werden abschließend zur Probe geleitet.

Funktionsweise eines NOPAs

Im Allgemeinen bieten optisch-parametrische-Verstärker (engl.: OPA) die Möglichkeit, die Wellenlänge des eingespeisten Strahls in einem großen spektralen Bereich beliebig zu ändern, um somit die gesuchte Resonanz anzuregen oder abzufragen. Die OPAs der CUSBO-Einrichtung sind in einer nicht kollinearen Konfiguration (NOPA) konstruiert. Der Aufbau ist in [Abbildung 2.4](#) dargestellt. Eingangs zu jedem NOPA befindet sich ein Strahlteiler, der den Laserstrahl in zwei Teile aufteilt: Einen schwächeren, der die zu verstärkende Wellenlänge, den *Signal*-Strahl, erzeugt und einen stärkeren Anteil, den *Pump*, welcher die Signalwellenlänge parametrisch verstärkt. Aufgrund der Energieerhaltung muss ein dritter Strahl, der *Idler*, an der parametrischen Verstärkung beteiligt sein, wenn sich die Wellenlängen von Pump und Signal unterscheiden, sodass gilt:

$$\omega_P = \omega_S + \omega_I \quad . \quad (2.3)$$

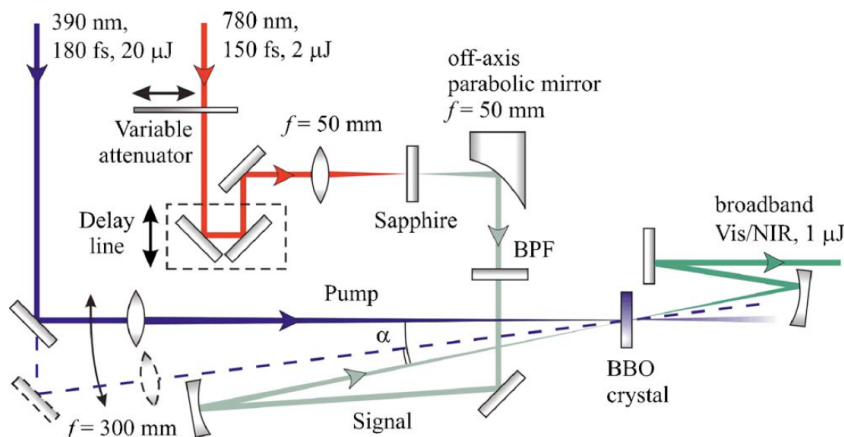


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung des Aufbaus der verwendeten NOPAs. Ein Strahlteiler reflektiert einen kleineren Anteil ($\sim 5\%$) des Strahl in den Weißlichterzeugungsarm (rot) während der intensivere Teil des Strahls als Pump (blau) verwendet wird. Der NOPA kann in zwei Konfigurationen benutzt werden, welche sich durch einen veränderten Inzidenzwinkel α des Pumps auf dem Beta-Barium-Borat-Kristall (BBO) unterscheiden. Graphik entnommen aus [23]

Neben der Energieerhaltung muss ebenfalls die Impulserhaltung

$$k_P = k_S + k_I \quad (2.4)$$

für alle beteiligten Strahlen gelten. Die Einhaltung von Gleichung [2.4] wird als *Phase matching* (Phasen Anpassung) bezeichnet und ist zwingend notwendig für parametrische Verstärkung.

In diesem Setup wird zur Erzeugung der Signalwellenlänge der Laserstrahl auf einen Saphirkristall fokussiert und breitbandiges weißes Licht erzeugt. Aufgrund der Dispersion im Saphirkristall sind die Wellenlängen in den entstehenden Weißlichtpulsen zeitlich getrennt. Dies bedeutet, dass niedrigere Wellenlängen zeitlich vor den höheren Wellenlängen des Pulses propagieren. Pump- und Signalstrahl werden auf einem Betabariumboratkristall (BBO) räumlich und zeitlich überlagert. Auf Grund der Dispersion bei der Erzeugung der Signalepulse sind diese zeitlich länger als die Pumppulse wodurch nur ein Teil des Weißlichtes verstärkt wird. Mittels der Verzögerungsstrecke im Signal kann der zeitliche Überlapp so gewählt werden, dass lediglich die gewünschte Wellenlänge des weißen Lichts vom Pump verstärkt wird [24]. Aufgrund der nichtkollinearen Bauweise der NOPAs, die sich durch einen Einfallswinkel α zwischen Pump und Signal auf dem BBO ausdrückt, lässt sich durch Wahl des Einfallswinkels die verstärkte Bandbreite auswählen. Für einen Winkel $\alpha_{opt} = 3,82 \text{ deg}$ ergibt sich gleichzeitiges *phase matching* über einen spektralen Bereich von 500 nm bis 750 nm. Parametrische Verstärkung in einem

kleinerem spektralem Bereich kann durch Änderung des Winkels α realisiert werden. Abweichungen vom optimalen Winkel α_{opt} erlauben es einen schmaleren spektralen Bereich der Signalpulse parametrisch zu verstärken was zum Beispiel zur gezielten Untersuchung bekannter Übergänge von Vorteil ist.

Strahlprogagation nach den NOPAs

Auf Grund der Progagation durch verschiedene Medien (z.B.: LBO, BBO, Linsen) dispergieren Pump- und Probepulse, wodurch niedrige Wellenlängen zeitlich vor höheren Wellenlängen im Puls progagieren. Diese Eigenschaft wird als *Chirp* bezeichnet und ist besonders bei breitbandigen Pulsen von Bedeutung (Die wird in Kapitel 4.2 näher erläutert). Um Pulse mit möglichst wenig Chirp (und damit möglichst kurze Pulse) zu erhalten, passieren im Anschluß an die NOPAs Pump- und Probestrahl jeweils zwei *Chirped mirrors*. *Chirped mirrors* sind so konstruiert, dass sie den - in der Regel - positiven Chirp der Pulse kompensieren. Die hier verwendeten *chirped mirrors* bestehen aus 30 SiO₂/TiO₂ $\lambda/4$ -Lagen, in welchen die Bragg-Wellenlänge von Lage zu Lage so variiert wird, dass kürzere Wellenlängen bis in tiefere Lagen eindringen, bevor sie reflektiert werden, wodurch der breitbandige Puls bei jedem Auftreffen, um einen festen Faktor gestaucht und somit kürzer wird. Um das Transformlimit - die kürzeste mögliche Pulsdauer - zu erreichen, wird der Strahl 10 mal an den *chirped mirrors* reflektiert [23]. Nach der Kompressionsstufe unterscheidet sich der optische Pfad insofern, dass der Probestrahl eine mechanische Verzögerungsstrecke durchläuft, welche mit einer Auflösung von 5 fs die Wegstrecke die die Probepulse durchlaufen um bis zu 2 ns verlängern kann. Der Pumpstrahl hingegen wird von einem mechanischem Chopper (Thorlabs MC1000) mit einer Frequenz $f_{mod} = 1$ kHz moduliert. Die Modulationsfrequenz entspricht exakt der Hälfte der Laserrepetitionsrate $f_{rep} = 2$ kHz. Somit wird jeder zweite Pumpimpuls durch ein Blatt des mechanischen Choppers geblockt. Dies bedeutet, dass auf der Probe nur jeder zweite Probepuls einen durch den Pump angeregten Zustand misst. Der Einfluss des Pumpstrahls auf die Probe kann somit durch Isolation der 1 kHz-Komponente des Probestrahls, zum Beispiel durch einen Lock-In Verstärker, bestimmt werden. Die Sensitivität der Detektion liegt dadurch in einer Größenordnung von $\sim 10^{-4}$ bei einer Integrationszeit von 2 s [23, 25]. Pump- und Probestrahl werden schließlich auf die Probe fokussiert, welche in einem Kryostaten platziert ist, der es erlaubt, die Temperatur der Probe in einem Bereich von 77 K bis 300 K einzustellen. Dazu ist die Probe thermisch sowohl an ein Reservoir flüssigen Stickstoffs sowie ein Heizelement gekoppelt, welche Kontrolle über die Probentemperatur ermöglichen. Eine genaue Charakterisierung der Pump- und Probepulse wird an der Position der Probe durchgeführt, indem Form, Ausdehnung und Leistung bestimmt werden. Die Ausdehnung A_{Puls} ist für die Bestimmung der Strahlintensität wichtig und wird mittels eines

Strahlprofilmessers mit μm -Genauigkeit ermittelt. Die Lichtintensität wird in dieser Arbeit durch die Fluenz F beschrieben, welche sich wie folgt berechnet:

$$\text{Fluenz} = \frac{\text{Energie pro Puls}}{\text{Pulsquerschnitt}} = \frac{P}{f_{\text{Rep}} \cdot A_{\text{Puls}}} \quad . \quad (2.5)$$

Eine Messung der Leistung P vor jedem Experiment garantiert Kontrolle über die auf die Probe einwirkende Lichtintensität.

2.3.1 Supercontinuum als Probepuls

Bei den in Kapitel 4 beschriebenen Messungen wird ein breitbandiger Probepuls verwendet, um den angeregten Zustand der Probe in einem großen spektralen Bereich zu untersuchen. Dafür wird der in Abbildung 2.4 beschriebene NOPA in der Konfiguration mit $\alpha_{\text{opt}} = 3,82 \text{ deg}$ verwendet, um breitbandige parametrische Verstärkung in einem großen spektralem Bereich (500 nm - 750 nm) der Signalpulse zu erreichen, welche im Folgenden als Supercontinuum bezeichnet werden.

In dieser Arbeit werden Supercontinuumprobepulse verwendet, um das elektronische System der Probe, genauer gesagt den spektralen Bereich um die Bandlücke, zu untersuchen. Für Photonenergien oberhalb der Energie der Bandlücke nimmt die Absorption des Probenmaterials stark zu, sodass die Probe für diese Energien intransparent wird. Um den angeregten Zustand der Probe in einem größtmöglichem spektralem Bereich zu untersuchen, wird der reflektierte Teil des Probestrahls an der Probe detektiert. Die experimentelle Geometrie ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Ein Blazegitter spaltet die reflektierten breitbandigen Probepulse räumlich in die einzelnen spektralen Komponenten auf und leitet diese auf den Si-Chip einer CCD Kamera. Diese misst die Lichtintensität als Funktion der Pixelnummer und wird über eine USB Schnittstelle von einem Computer ausgelesen. Um von der Pixelnummer auf die Wellenlänge zurückzuschließen, wird nach der Justage des Setups eine Kalibration der Detektion durchgeführt. Zwischen Probe und Detektion werden nacheinander verschiedene Bandpassfilter mit einer Bandbreite von $\pm 5 \text{ nm}$ im Strahlengang platziert, welche das komplette Spektrum des Supercontinums abdecken. Die Pixelnummer des Maximums des Signals auf der CCD-Kamera wird mit der zentralen Wellenlänge des Bandpassfilters assoziiert. Eine polynomielle Interpolation der Pixelnummer/Wellenlänge-Wertepaare definiert somit die Umrechnung von Pixelnummer in Wellenlänge für den gesamten Siliziumchip der CCD-Kamera.

2.3.2 Magneto-optische Pump-Probe Experimente

Für die in Kapitel 5 beschriebenen Experimente wird die Konfiguration des NOPAs (siehe Abbildung 2.4) des Abfragestrahls geändert. Anstelle einer Verstärkung

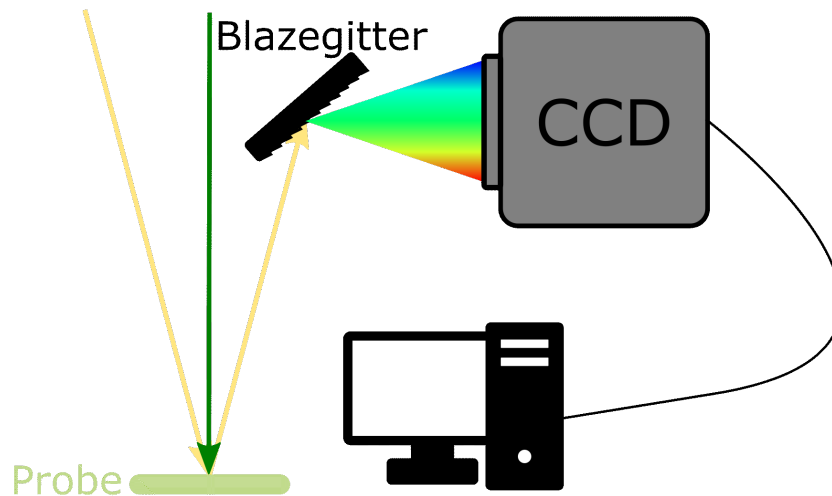


Abbildung 2.5: Experimentelle Geometrie der Messungen aus Kapitel 4. Ein intensiver Pumpstrahl (grün) regt die Probe an. Die Reflektion des breitbandigen Probepulses (gelb) wird über ein Blazegitter spektral aufgespalten, mit einer CCD Kamera detektiert und einem angeschlossenen Computer digitalisiert.

des kompletten breitbandigen weißen Lichtes wird ein schmaler spektraler Bereich verstärkt. Dazu wird die Position des fokussierenden Spiegels im *Pump*-Strahl auf die durchgezogene Linie geändert, wodurch die *phase matching* Bedingung parametrische Verstärkung nur für einen kleinen spektralen Bereich erlaubt. Der Aufbau des Pumpstrahls bleibt in beiden Messgeometrien unverändert. Die experimentelle Geometrie an der Probe hingegen wird von Messungen des reflektierten Lichtes hin zu Messungen des transmittierten Anteils der Probepulse umgebaut. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 2.6 dargestellt. In den in dieser Konfiguration durchgeführten Experimenten wird das Spinsystem über magneto-optische Effekte untersucht. Diese äußern sich dadurch, dass sie die Rotation oder die Elliptizität der Polarisation elektromagnetischer Wellen - in diesem Fall dem Probestrahl - ändern. Eine Möglichkeit der Detektion dieser Polarisationsänderung bietet die balancierte Photodetektion. Diese ist in Abbildung 2.6 dargestellt und besteht in der einfachsten Version aus zwei Komponenten: Zum einem aus einem Wollastonprisma, welches den ankommenden Strahl räumlich in zwei Komponenten mit orthogonaler Polarisation aufspaltet, und zum anderem aus einem Photodetektor mit zwei Dioden A und B , welche jeweils eine der Polarisationskomponenten messen. Der Detektor besitzt vier Ausgangssignale: Zwei für die einzelnen Dioden, eines für die Differenz ($A-B$) und ein Viertes für das Summensignal $A+B$ [13]. Das Summen- und Differenzsignal der Dioden A und B wird über zwei verschiedene elektronische Schaltungen gebildet, die im Detail in der Literatur (siehe Quelle [26]) beschrieben sind. Für eine Messung der

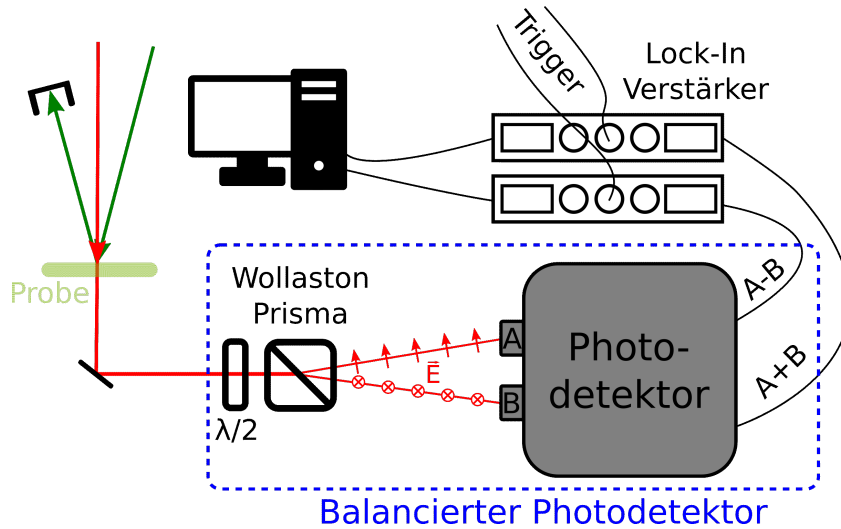


Abbildung 2.6: Experimentelle Geometrie der Messungen aus Kapitel 5. Der transmittierte Probestrahl propagiert zunächst durch eine $\lambda/2$ -Platte, anschließend durch ein Wollastonprisma, welches einfallendes Licht in senkrecht zueinander polarisierte s- und p-Komponenten räumlich aufspaltet. Beide Teilstrahlen werden auf jeweils eine Diode eines balancierten Photodetektors fokussiert. Dieser bildet mittels Operationsverstärkerschaltkreisen die Summe und Differenz der Dioden A und B . Diese werden jeweils in einen, durch den mechanischen Chopper des Anregestrahls getriggerten, Lock-In Verstärker eingespeist, welche die 1 kHz-Komponente des Probesignals isolieren. Das Ausgangssignal der Lock-In Verstärker wird schließlich digitalisiert.

Rotation der Polarisation des Probestrahls wird der Differenzkanal verwendet. Um die Funktionsweise des Differenzkanals zu verstehen, betrachten wir zunächst einen linear polarisiertem Lichtstrahl mit elektrischem Feld \vec{E} . Bei Propagation durch das Wollastonprisma wird dieser in zwei vertikal zueinander polarisierte Strahlen $E_{A,B}$ räumlich aufgespalten. Die elektrischen Felder der aufgespaltenen Strahlen ergeben sich zu

$$\begin{aligned} E_A &= E \cos(\alpha) \\ E_B &= E \sin(\alpha) \end{aligned} \quad (2.6)$$

wobei α dem Winkel zwischen der Polarisationsachse des eingehenden Strahls und der optischen Achse des Wollastonprismas entspricht. Das von den Dioden gemessene Signal entspricht der Intensität $I_{A,B}$ der elektrischen Felder und somit dem Quadrat $|E_{A,B}|^2$. Wird $\alpha = 45 \text{ deg}$ gewählt, sind die beiden gemessenen Signale $I_{A,B}$ gleich und der Differenzkanal liefert den Wert $Sig_{Dif} = I_A - I_B = 0$. Dieser Zustand wird als balancierte Position bezeichnet, da die Signale beider Dioden sich ausbalancieren

und Null ergeben. Betrachten wir nun eine Rotation der Polarisation des eingehenden Strahls, um den Winkel β . Gleichungen [2.6](#) ändern sich somit zu

$$\begin{aligned} E_A &= E \cos(\alpha + \beta) \\ E_B &= E \sin(\alpha + \beta) \end{aligned} \quad (2.7)$$

und dadurch das von Differenzkanal gemessene Signal zu

$$\begin{aligned} Sig_{Dif} &\approx E^2 \sin^2(\alpha + \beta) - E^2 \cos^2(\alpha + \beta) \\ &= E^2 \frac{1}{2} (1 - \cos(2\alpha + 2\beta) - 1 - \cos(2\alpha + 2\beta)) \\ &= -E^2 \cos(2\alpha + 2\beta) \\ &\stackrel{\alpha=45^\circ}{=} -E^2 \sin(2\beta) \\ &\approx -E^2 2\beta \quad . \end{aligned} \quad (2.8)$$

Im letzten Schritt von Gleichung [2.8](#) wird die Kleinwinkelnäherung angewandt nach der $\sin(\beta) \approx \beta$ für kleine Winkel β gilt. Dementsprechend ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen dem gemessenen Signal des Differenzkanals und der Rotation der Polarisationsachse des Probestrahls induziert durch den angeregten Zustand der Probe [\[13\]](#). Dieser Detektionsaufbau heißt balancierte Photodetektion, da vor jeder Messung die Detektion balanciert wird. Das heißt, dass zuerst die mechanische Verzögerungsstrecke so eingestellt wird, dass die Probepulse vor den Pumpimpulsen auf die Probe treffen (negatives Delay) und anschließend der balancierte Photodetektor in eine Position gedreht wird, in welcher der Differenzkanal ein Nullsignal ausgibt. Durch diese Prozedur werden auf die Probe wirkende Einflüsse, wie Streulicht oder der Einfluss des Probestrahls selber "gleich Null gesetzt". Wird nun während einer Messung die Verzögerungsstrecke zu positiven Delays verfahren, erfährt der Probestrahl eine Änderung seines Polarisationszustandes durch einen magneto-optischen Effekt. Dieser wird durch den Pumpstrahl induziert, und schlussendlich weitestgehend isoliert von anderen Einflüssen gemessen.

Signalverarbeitung

Das Summen- und das Differenzsignal des balancierten Photodetektors werden über einen *Boxcar*-Schaltkreis in einem Zeitintervall τ_{int} detektiert und verstärkt. Die Synchronisation des Zeitintervalls mit der steigenden Flanke des Lasertriggersignal ermöglicht es, das pumpinduzierte Signal zu verstärken, wohingehend Rauschen zwischen zwei aufeinanderfolgenden Laserpulsen unterdrückt wird. Das verstärkte Signal wird zu jeweils einem Lock-In Verstärker des Typs *Stanford Research SR830m* geleitet, welche empfindlich auf Signalkomponenten reagieren, die dieselbe Frequenz

aufweisen wie ein zusätzlich eingespeistes Triggersignal. Hier wird die Frequenz des mechanischen Choppers als Triggersignal der Lock-In Verstärker verwendet, wodurch sich pumpinduzierte Signalkomponenten der Probepulse isolieren lassen [27]. Das letztendlich von einem PC digitalisierte Signal entspricht der Signalkomponente des Probestrahls, welche dieselbe Frequenz wie der mechanische Chopper aufweist. Um einen Rückschluß auf eine Änderung der Rotation der Polarisation des Probestrahls durch die angeregte Probe ziehen zu können, muss das vom Computer digitalisierte Differenzsignal von Volt in Grad umgerechnet werden. Ausgehend von Gleichung 2.7 betrachten wir zunächst das digitalisierte Summensignal

$$Sig_{Sum} \propto E^2 \sin^2(\alpha + \beta) + E^2 \cos^2(\alpha + \beta) = E^2 = \frac{Sig_{Box}}{V_S} \quad (2.9)$$

Sig_{Box} entspricht dem Ausgangssignal des *Boxcar*-Schaltkreises und V_S seinem zugehörigem Verstärkungsfaktor. Der Differenzkanal wird mit einem Faktor 10 vorverstärkt und erfährt durch den *Boxcar*-Schaltkreis einen weiteren Verstärkungsfaktor V_D . Betrachten wir zunächst die gesamte transmittierte Intensität der Probepulse bei voller Repetitionsrate des Lasers (2 kHz) ergibt sich das Differenzsignal zu

$$Sig_{Dif} = \frac{2\sqrt{2} Sig_{Lock-In}}{10 V_D} \quad (2.10)$$

Der Faktor $2\sqrt{2}$ ergibt sich aus dem quadratischem Mittel, welches der Lock-In Verstärker bildet [27]. Das Einsetzen von Gleichungen 2.9 und 2.10 in Gleichung 2.8 ergibt mit

$$\sin(2\beta) = \frac{2\sqrt{2} Sig_{Lock-In}}{10 V_D} \frac{V_S}{Sig_{Box}} \quad (2.11)$$

$$\rightarrow \beta = \frac{1}{2} \arcsin \left(\frac{2\sqrt{2} Sig_{Lock-In}}{10 V_D} \frac{V_S}{Sig_{Box}} \right) \quad (2.12)$$

die Umrechnungsformel von gemessener Spannung in Rotation der Polarisation des Probestrahls in Grad [13].

2.4 Entwicklung eines Pump-Probe Aufbaus für Magneto-optische Experimente an der TU Dortmund

Die Cinchetti Arbeitsgruppe der Fakultät Physik wurde 2016 an der Technischen Universität Dortmund ins Leben gerufen. Die Forschung zentriert sich auf die Untersuchung kollektiver Spinphänomene in Festkörpern indem magnetische und

elektronische Eigenschaften der untersuchten Materialien auf der ultraschnellen Zeitskala (im Bereich von einigen hundert Femtosekunden) adressiert, kontrolliert und schlussendlich zielgerichtet manipuliert werden. Zu den wichtigsten experimentellen Methoden gehören Spin- und zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie sowie zeitaufgelöste optische und magneto-optische Spektroskopie [28]. Die Entwicklung und Charakterisierung eines Pump-Probe-Aufbaus für optische und magneto-optische Messungen ist unter anderem Teil dieser Arbeit, schematisch in Abbildung [2.7] dargestellt, und wird im Folgenden detailliert beschrieben.

2.4.1 Lasersystem

Ausgangspunkt des optischen Aufbaus ist das auf Ytterbium basierte, verstärkende Lasersystem *Pharos* der Firma *Light Conversion*, welches Pulse mit einer Repetitionsrate von bis zu 1 MHz mit einer Pulsdauer von ~ 300 fs und einer Wellenlänge von 1028 nm bei einer Gesamtleistung von 20 W emittiert. Der Ausgangsstrahl wird durch einen Strahlteiler für Pump-Probe Experimente in zwei Teilstrahlen aufgespalten, wobei der Pumpstrahl eine Leistung von 13 W und der Probestrahl die verbleibende Leistung von 7 W aufweist. Wie bereits in Kapitel [2.2] beschrieben wird der leistungsstarke Pumpstrahl benutzt, um die Probe in einen Nichtgleichgewichtszustand anzuregen. Demgegenüber beobachten die Probepulse durch Variation des zeitlichen Abstand zu der Probenanregung die Entwicklung des angeregten Zustandes des Materials. Beide Teilstrahlen durchqueren jeweils einen optisch-parametrischen Verstärker des Typs *Orpheus-F/HP* der Firma *Light Conversion*, welche es ermöglichen, die Photonenenergie unabhängig voneinander kontinuierlich in einem Bereich von 0,5 eV bis 3,5 eV einzustellen. Um das von den Pumpimpulsen induzierte Signal zu isolieren, wird, wie bereits in vorherigem Unterkapitel erläutert, der Pumpstrahl moduliert. Aufgrund der hohen Repetitionsrate des Lasers ist eine mechanische Modulation, z.B. durch einen mechanischen Chopper, unzureichend. In diesem Fall wird ein elektro-optischer Modulator (EOM) als Pulse-Picker in den Pumpstrahl integriert, welcher es ermöglicht - unabhängig von der Laserrepetitionsrate - jeden zweiten Puls zu blocken. Somit findet jeder zweite Probepuls den angeregten Zustand der Probe vor, während die anderen Probepulse den Grundzustand des Systems messen. Mittels Datenanalyse lässt sich das durch den Pumpstrahl induzierte Signal Sig_{ind} isolieren, indem die Differenz zwischen geblockten und ungeblockten Pumpimpulsen

$$Sig_{ind} = \sum_i^N (Sig_{i,ungeblockt} - Sig_{i,geblockt}) \quad (2.13)$$

gebildet wird. Eine detaillierte Beschreibung der Detektion und Datenanalyse folgt in Kapitel [2.4.3].

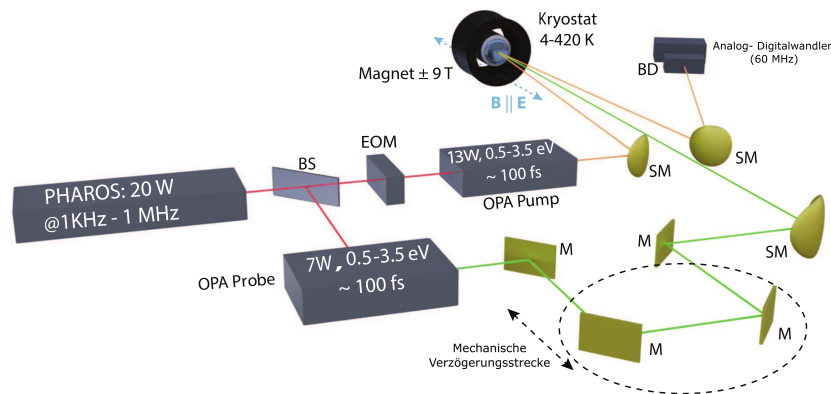


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des magneto-optischen Pump-Probe-Aufbaus. Ein Strahlteiler spaltet das Ausgangssignal des Pharos Lasersystems in Pump- und Probestrahl auf. Die Photonenergie der Pump- und Probestrahle kann durch zwei OPAs unabhängig voneinander in einem großen spektralen Bereich eingestellt werden. Ein elektro-optischer Modulator moduliert den Pumpstrahl mit einer Frequenz die der Hälfte der Laserwiederholrate entspricht. Die zeitliche Differenz zwischen Pump und Probestrahlpulsen ist über eine mechanische Verzögerungsstrecke im Probestrahlangang einstellbar. Beide Strahlen werden mit sphärischen Spiegeln auf eine sich in einem Kryostaten befindliche Probe fokussiert, an dessen Position ein solenoidförmiger supraleitender Magnet ein starkes homogenes Magnetfeld erzeugt. Der reflektierte oder transmittierte Anteil der Probestrahlpulse wird über ein balanciertes Detektungsverfahren mit einem Analog-Digitalwandler digitalisiert. Graphik entnommen aus [29].

2.4.2 Strahlpropagation

Nach Durchqueren der OPAs werden sowohl Pump- als auch Probestrahl über Spiegel zur Probe geleitet. Die zeitliche Verzögerung zwischen anregenden und abfragenden Pulsen kann durch eine im Probestrahl befindliche mechanische Verzögerungsstrecke *DL325* der Firma *Newport* in einem Bereich bis 4,3 ns mit einer minimalen Schrittweite von 10 fs variiert werden. Intensität und Polarisation beider Teilstrahlen können jeweils durch eine Kombination aus $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und einem Polarisator gewählt werden. Aufgrund des großen spektralen Bereiches verfügbarer Photonenenergien von Pump- und Probestrahl werden diese mit sphärischen Spiegeln auf die Probe fokussiert, welche gegenüber Linsen den Vorteil bieten, dass chromatische Abberationen, bei Änderung der Photonenenergie, vermieden werden. Somit ändern sich der Fokuspunkt und der Strahldurchmesser an der Probe in Abhängigkeit der Wellenlänge nicht signifikant und zeitaufgelöste Messungen als Funktion der Photonenenergie können systematisch ohne exzessiven Zeitaufwand durchgeführt werden. Über einen piezogesteuerten Spiegel im Pumpstrahl kann die

räumliche Überlappung mit einer Schrittweite im μm -Bereich eingestellt werden. Vor jeder Messung wird, analog wie in Kapitel 2.3 beschrieben, der Strahldurchmesser mit einem Beamprofiler bestimmt und über eine Messung der Leistung die Fluenz über Gleichung 2.5 bestimmt [29]. Der Interaktionspunkt von Pump- und Probestrahl befindet sich innerhalb einer kreisförmigen Aussparung des solenoidförmigen Magneten der Firma *CryoVac*. Der supraleitende Magnet ist ein geschlossenes System, das kontinuierlich mit Helium gekühlt wird, wodurch dauerhafter Betrieb gewährleistet ist. Auf der gesamten Länge der kreisförmigen Aussparung kann ein homogenes Magnetfeld bis zu einer Stärke von $\pm 9\text{ T}$ angelegt werden. Die Probe ist in einem Durchflusskryostaten platziert, welcher kontaktfrei in die Aussparung des Magneten geschoben werden kann, infolgedessen keine mechanischen Vibrationen auf das Probensystem übertragen werden. Der Kryostat wird über einen Transferarm kontinuierlich mit flüssigem Helium gekühlt, wodurch im Verbund mit im Kryostaten angebrachten Heizelementen die Probertemperatur zwischen 4 K und 420 K eingestellt werden kann. Der Heliumfluss und die Heizleistung können dabei über ein selbstgeschriebenes Computerprogramm gesteuert und die Probertemperatur ausgelesen werden. Zusätzlich kann über BNC-Anschlüsse ein externes elektrisches DC-Feld bis zu einer Feldstärke von 1 kV an der Probe angelegt werden. Die große Vielfalt an frei wählbaren Parametern dieses Aufbaus (Photonenenergie, externes Magnetfeld, Temperatur und elektrisches Feld) bietet die Möglichkeit nicht nur magnetische, sondern auch multiferroide Materialien über den gesamten sichtbaren Spektralbereich zu untersuchen [29].

2.4.3 Detektion

Zur Detektion optischer und magneto-optischer Eigenschaften wird, wie in Kapitel 2.3.2 bereits vorgestellt, die balancierte Photodetektion verwendet: Ein Wollastonprisma spaltet das von der Probe reflektierte (oder transmittierte) Signal räumlich in zwei orthogonal zueinander polarisierte Komponenten auf, welche auf jeweils eine Photodiode eines balancierten Photodetektors des Typs *PDB450A* der Firma *Thorlabs* fokussiert werden. Dieser Detektor besitzt drei Ausgangskanäle: jeweils einen, der eine Spannung proportional zur von den beiden Dioden *A* und *B* gemessenen Lichtintensität $I_{A,B}$ ausgibt, und einen, der eine Spannung proportional zur Differenz der $I_A - I_B$ beider Dioden ausgibt. Vor jeder Messung wird bei negativem Delay durch Drehung einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte vor dem Wollastonprisma das Differenzsignal "gleich Null gesetzt", wodurch beide Polarisationsanteile gleich stark sind [29]. Im Vergleich zu dem im Kapitel 2.3.2 beschriebenen Aufbau wird für die Digitalisierung der Signale in diesem Fall auf Lock-In Verstärker verzichtet. Die Ausgänge des Photodetektors sowie die Triggersignale des Lasers und elektro-optischen Modulators sind an einen im Computer eingebauten Analog-Digitalwandler

(engl.: *Data acquisition card* - DAC) angeschlossen. Eine schematische Darstellung der Verkabelung sowie der einzelnen Signale ist in Abbildung 2.8 dargestellt [29]. Mit dem Triggersignal des Lasers f_{rep} werden der Analog-Digitalwandler und der

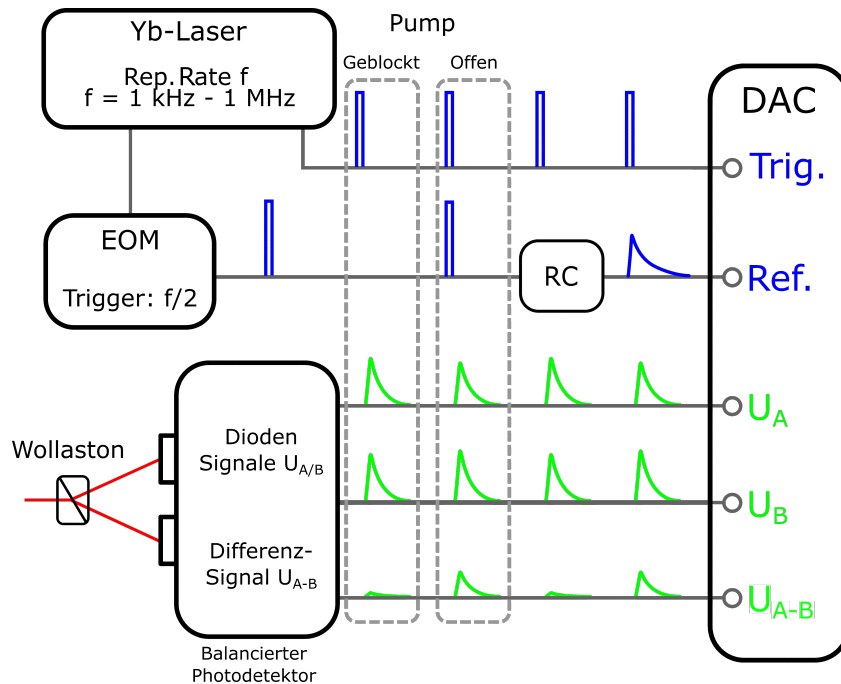


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung der Verkabelung der Detektion. Das Triggersignal des Lasers startet die Datenaufnahme des Analog-Digitalwandlers (DAC) und speist den Elektro-Optischen Modulator, welcher ein Signal mit der Hälfte der Laserrepetitionsrate in einen Eingang des DAC speist. Dieses Signal wird zuvor von einem RC-Schaltkreis zeitlich gestreckt, um in das Detektionsfenster zu fallen. Die Ausgangssignale U_A , U_B und U_{A-B} des balancierten Photodetektors sind ebenfalls mit jeweils einem Eingang des DAC verbunden. Entnommen aus [29]

elektro-optische Modulator getriggert. Der EOM blockt jeden zweiten Puls und gibt ein zusätzliches Triggersignal analog zur Hälfte der Eingangsfrequenz $f_{rep}/2$ aus, welches an einen Eingang der DAC angelegt ist. Damit das EOM-Triggersignal in das Detektionsfenster des DACs fällt, wird es zusätzlich durch einen selbstgebauten RC-Schaltkreis¹ zeitlich gestreckt. Die Signale der einzelnen Dioden und des Differenzkanals des balancierten Photodetektors werden ebenfalls mit der DAC verbunden. Mit dem EOM-Triggersignal als Referenz wird eine selbstgeschriebene Software in der Programmiersprache *python* verwendet, um das vom Pumpstrahl

¹Der RC-Schaltkreis besteht aus einer Kombination von Widerstand, Kondensator und einer Diode, um Stromrückflüsse durch Entladung des Kondensators zu vermeiden

induzierte Signal zu isolieren, indem zwischen Pulsen unterschieden wird, bei denen der Pumpstrahl geblockt ist und solchen, bei denen die Pumppulse die Probe anregen. Dadurch lässt sich je nach experimenteller Geometrie die Änderung des Reflektions- oder der Transmissionskoeffizienten zu

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{[U_{A,On} + U_{B,On}] - [U_{A,Off} + U_{B,Off}]}{U_{A,Off} + U_{B,Off}} \quad (2.14)$$

bestimmen und die Rotation der Polarisation $\Delta\Theta$ der Probepulse zu

$$\Delta\Theta = \frac{U_{A-B,On} - U_{A-B,Off}}{U_{A,Off} + U_{B,Off}} \cdot a \quad (2.15)$$

berechnen, wobei a den Kalibrationsfaktor beschreibt. Für die Umrechnung der gemessenen Spannung in Grad wird eine Kalibration durchgeführt, indem eine $\lambda/2$ Verzögerungsplatte in einem Bereich von ± 1 deg mit einer Schrittweite von $100 \mu\text{deg}$ rotiert wird. Eine Beschränkung auf diesen Bereich ist sinnvoll, da aus der Literatur erkenntlich ist, dass die zu erwartende Rotation der Polarisation in derselben Größenordnung liegt [30]. Die Kalibrationskurve ist in Abbildung 2.9 dargestellt [29]. Der Verlauf des auf das Summensignal normierten Differenzsignales liegt im linearen Bereich, sodass ein Fit der Form

$$\Theta = a \cdot \frac{U_{A-B}}{U_A + U_B} + c \quad (2.16)$$

durchgeführt wird. Wobei a dem Kalibrationsfaktor und c der balancierten Position der $\lambda/2$ -Platte entspricht. Jeder Datenpunkt der Messung spiegelt dabei den Mittelwert von 16.000 Pulspaaren wider. Somit wird jedem Datenpunkt ebenfalls eine Standardabweichung zugeordnet, welche als minimale Rotation der Polarisation definiert wird, die mit diesem Setup gemessen werden kann. Diese minimale Auslenkung beträgt $70 \mu\text{deg}$ und weist somit eine vergleichbare Genauigkeit zu balancierten Detektoren vom neuesten Stand der Technik auf [31]. Die eingebettete Grafik (a) in Abbildung 2.9 zeigt die Abhängigkeit der minimalen Auflösung von der Fluenz. Die minimale Auflösung hängt stark von der Fluenz ab und erreicht bei einem moderaten Wert von etwa $10 \mu\text{J}$ das Minimum von $70 \mu\text{deg}$. Zur Anregung magneto-optischer Effekte werden in der Regel Fluenzen von einigen mJ/cm^2 genutzt, sodass bei einer Messung der Rotation der Polarisation von einer minimalen Auflösung von $70 \mu\text{deg}$ ausgegangen werden kann. In der eingebetteten Grafik (b) aus Abbildung 2.9 ist die Abhängigkeit der Auflösung des Setups von der Wellenlänge des Probestrahls bei einer konstanten Fluenz von $3,5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ dargestellt, welche für alle Messpunkte in derselben Größenordnung liegt [29].

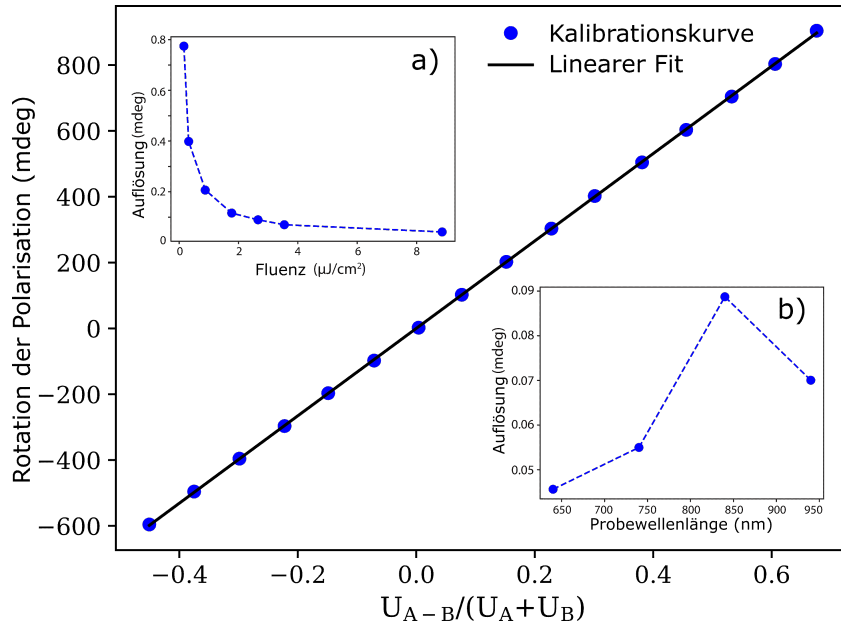


Abbildung 2.9: Die Kalibrationskurve der balancierten Photodetektion zeigt einen linearen Zusammenhang zwischen dem gemessenen Signal und der Rotation der Polarisation. Die eingebettete Abbildung (a) zeigt die Abhängigkeit der Auflösung als Funktion der Fluenz. Diese reduziert sich bei steigender Fluenz und erreicht ihren minimalen Wert von $70 \mu\text{deg}$ bei einer Fluenz von $10 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Abbildung (b) zeigt, dass die minimale Auflösung für verschiedene Probewellenlängen in derselben Größenordnung liegt. Abbildung entnommen aus [29].

Der zeitaufgelöste magneto-optische Aufbau der Cinchetti Arbeitsgruppe an der TU Dortmund bietet die Möglichkeit, Messungen der transienten Reflektivität oder Transmission parallel zur Messung magneto-optischer Effekte als Funktion der Temperatur, eines externen Magnetfeldes und einer angelegten DC-Spannung auf der ultraschnellen Zeitskala durchzuführen [29]. Eine sich in Arbeit befindliche Erweiterung des Probestrahlangangs bietet die Möglichkeit, breitbandige Supercontinuum Probepulse zu benutzen, welche mit einem selbstgebauten Detektorsystem analysiert werden [32].

3 Magnetische Blauverschiebung in α -MnTe

In diesem Kapitel wird zunächst die in dieser Arbeit verwendete Probe α -MnTe vorgestellt. Im Anschluss wird eine Prozedur zur Extraktion der Energie der Bandlücke aus statischen Absorptionsspektren aufgezeigt. Messungen der statischen Absorption als Funktion der Temperatur, mit dem in Kapitel [2.1](#) vorgestellten Spektrometer CARY 6000i, sowohl in der para- als auch in der antiferromagnetischen Phase, liefern die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke. Diese wird in indirekten Halbleitern durch die phenomenologische Varshni-Funktion beschrieben. Die Beschreibung in der paramagnetischen Phase stimmt mit der Varshni-Funktion überein. In der antiferromagnetischen Phase hingegen offenbart sich eine zusätzliche Blauverschiebung der Bandlücke, welche der Temperaturabhängigkeit der Untergittermagnetisierung eines Antiferromagneten folgt. Eine physikalische Interpretation dieser magnetischen Blauverschiebung wird im Anschluss diskutiert. Die Ergebnisse sind zum Teil in [20](#) publiziert.

3.1 Probencharakterisierung

MnTe ist ein indirekter Halbleiter mit antiferromagnetischer Spinausrichtung, der in den letzten Jahren in den wissenschaftlichen Fokus gerückt ist [\[18, 20, 33, 34\]](#). α -MnTe kristallisiert in einer Nickel-Arsenit Struktur mit hexagonaler Symmetrie (D_{6h}^4). [Abbildung 3.1](#) zeigt schematisch den Aufbau von α -MnTe. Jedes Te-Atom (grün) ist von sechs Mn-Atomen (blau) umgeben, welche die Ecken eines Dreiecksprismas beschreiben, während das Te-Atom in der Mitte platziert ist. Jedes Mn-Atom besitzt acht Nachbarn: 2 Mn-Atome, welche direkt oberhalb und unterhalb liegen, und 6 Te-Atome. Die magnetische Struktur von hexagonalem MnTe wird durch die $3d$ -Spins der Mn-Atome bestimmt, welche ferromagnetisch in der a-b-Ebene und antiferromagnetisch entlang der c-Achse koppeln [\[18, 35\]](#). Die antiferromagnetische Ordnung von α -MnTe zeigt sich unterhalb der Néel-Temperatur von $T_N = 310$ K. Es liegen zwei mögliche stabile kollektive Magnetisierungszustände vor: Entlang der c-Achse und senkrecht zur c-Achse. Der Polarisationszustand der magnetischen Momente senkrecht zur c-Achse beschreibt den Grundzustand während die Spinorientierung entlang der c-Achse dem „Hard-Axis“ Zustand entspricht. Die energetische Differenz der beiden Zustände entspricht 135 meV pro Einheitszelle, wodurch die

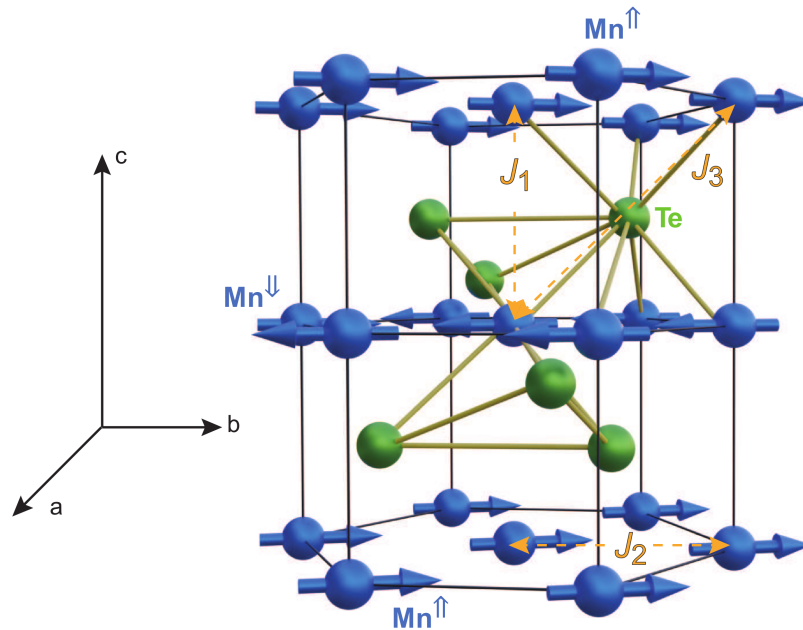


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der atomaren und magnetischen Struktur von antiferromagnetischen α -MnTe. Telluriumatome sind in grün und Manganatome in blau dargestellt. Die Orientierung der Spins der Mn-Atome ist durch blaue Pfeile abgebildet, welche ferromagnetisch in der a-b-Ebene und antiferromagnetisch entlang der c-Achse koppeln. Die J_i beschreiben die Austauschkonstanten zwischen benachbarten Manganionen, wobei J_1 die stärkste Kopplung antiferromagnetischer Natur mit den nächsten Nachbarn entlang der c-Achse beschreibt, J_2 die ferromagnetische Kopplung mit den übernächsten Nachbarn in der ab-Ebene kennzeichnet und J_3 die antiferromagnetische Kopplung, welche am schwächsten ausgeprägt ist, mit den über-über-nächsten Nachbarn charakterisiert.

Orientierung senkrecht zu c-Achse bevorzugt wird [34]. Auf Grund der hexagonalen Struktur liegen im Grundzustand drei verschiedene Orientierungen des Néel-Vektors vor, welche durch farbige Pfeile in Abbildung 3.2 dargestellt sind, und antiferromagnetische Domänen ausbilden [18, 36]. In der antiferromagnetischen Phase liegen Domänen in allen drei verschiedenen Polarisationszuständen vor und die Vermutung liegt nahe, dass ein magneto-optisches Signal im Mittel über alle Domänen Null ergibt. Dies ist in einem Multidomänenantiferromagneten nicht der Fall, da die Stärke des magneto-optischen Signals durch den Winkel zwischen Spinorientierung und Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts gegeben ist, wodurch sich die Intensität des magneto-optischen Signals der unterschiedlichen Domänen unterscheidet. Aktuelle theoretische und experimentelle Veröffentlichungen, durchgeführt an

Multidomainantiferromagneten, stützen diese Behauptung, welche in der Dominanz einer bestimmten Domäne resultiert und schlussendlich in einem magneto-optischem Gesamtsignal der Probe gemessen werden kann [21, 37].

α -MnTe ist ein korrelierter magnetischer Halbleiter, dessen elektronische Halbleitereigenschaften durch die $5p$ Orbitale der Te-Atome und die $4s$ Orbitale der Manganatome bestimmt sind, welche in einer moderaten indirekten Bandlücke von 1,27 eV - 1,46 eV, je nach MnTe-Schichtdicke, resultieren. In dieser Arbeit wird eine α -MnTe Probe mit 200 nm Dicke untersucht, welche mittels „molecular beam epitaxy“ unter Verwendung von elementaren Mn und Te-Quellen auf einem SrF_2 (111) Substrat bei 370 deg-450 deg Substrattemperatur aufgewachsen wurde. Mittels „streaked reflection high energy electron

diffraction“ (RHEED) Mustern wurde in beiden Fällen, während des Herstellungsprozesses, gewährleistet, dass zweidimensionales Wachstum vorliegt. Um Oxidation der Probe zu verhindern ist auf der MnTe-Schicht eine 10 nm dicke Al_2O_3 -Schicht (engl: *capping layer*) aufgebracht. Die Probe liegt im magnetischen Grundzustand vor, sodass die Spins in der a-b-Ebene orientiert sind.

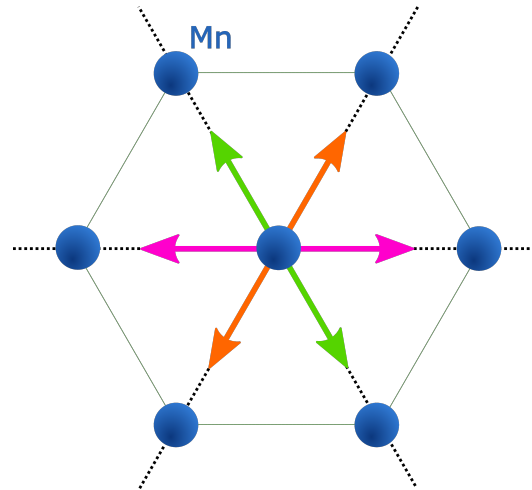


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der magnetischen leichten Achsen in der a-b-Ebene in hexagonalem α -MnTe in Bezug auf die Lage der magnetischen Mn-Atome (blau).

3.2 Temperaturabhängige Absorptionsmessungen

Hexagonales α -MnTe ist nicht nur ein vielversprechender Kandidat für technologische Anwendungen in Anbetracht der über Raumtemperatur liegenden Néeltemperatur, sondern auch aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Energie der Bandlücke. Zusätzlich zur allgemeinen Blauverschiebung der Energie bei gleichzeitiger Reduktion der Temperatur weist α -MnTe eine weitere Blauverschiebung der Bandlücke in der antiferromagnetischen Phase auf: die sogenannte magnetische Blauverschiebung. Diese wurde bereits von der Gruppe Ferrer-Roca et al. an α -MnTe Proben mit mehreren hundert μm Dicke gezeigt [17]. Die in dieser Arbeit verwendete Probe weist eine um 4 Größenordnungen reduzierte α -MnTe Schichtdicke von lediglich 200 nm auf. Der erste Schritt dieser Arbeit besteht darin, die magnetische Blauverschiebung

der Bandlücke in unserer Probe zu reproduzieren.

Um den Einfluss der zusätzlichen magnetischen Blauverschiebung zu zeigen, muss die Energie der Bandlücke sowohl in der antiferromagnetischen sowie in der paramagnetischen Phase bestimmt werden. Zu diesem Zweck werden statische Absorptionsmessungen als Funktion der Temperatur im Bereich von 25 K bis 400 K durchgeführt. Bei einer derart großen Variation der Probertemperatur wird die Ausdehnung der Probe stark beeinflusst, da sich diese bei Reduktion der Temperatur verkürzt. Um zu gewährleisten, dass bei allen Messungen möglichst dieselbe Stelle der Probe beleuchtet wird, wird eine absorbierende Maske mit einer kreisrunden Aussparung angebracht, sodass nur Photonen, die durch diese Aussparung (und schließlich die Probe) propagieren, detektiert werden. Im Referenzstrahlengang wird eine Maske ohne Probe mit einer Aussparung der gleichen Größe installiert. Ausgewählte Absorptionsspektren sind in [Abbildung 3.3](#) im Bereich von 1 eV bis 3 eV für selektierte Temperaturen dargestellt, welche klar die Temperaturabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten offenbart. Diese zeigt sich deutlich für Photonenenergien

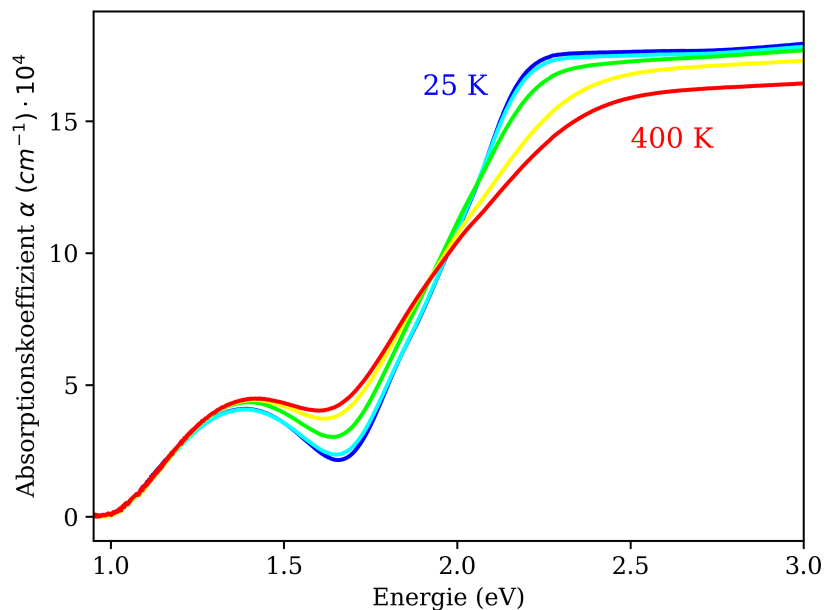


Abbildung 3.3: Ausgewählte Absorptionsspektren als Funktion der Photonenenergie für selektierte Temperaturen zwischen 25 K und 400 K. Der Beginn der starken Absorption ist klar ab Photonenenergien über $\sim 1,7$ eV zu erkennen. Diese Absorptionskante wird mit der Bandlücke assoziiert und ist deutlich von der Temperatur beeinflusst. Die Stärke der Absorption nimmt mit zunehmender Temperatur ab.

oberhalb von 1,4 eV. Das erste markante Merkmal ist ein lokales Minimum bei 1,65 eV, welches sich für niedrige Temperaturen zu höheren Photonenenergien verla-

gert und stärker ausgeprägt ist. Auf dieses lokale Minimum folgend ist der starke Anstieg des Absorptionskoeffizienten ab 1,7 eV deutlich zu erkennen. Ab dieser Energie besitzen eintreffende Photonen genug Energie, um Elektronen aus dem Valenz- in das Leitungsband anzuheben und werden vom Material absorbiert, wodurch der Absorptionskoeffizient steigt. Dieser abrupte Anstieg wird daher im Folgenden mit der Bandlücke E_g assoziiert. Die Proben temperatur beeinflusst diesen Verlauf gravierend: Eine stärkere Ausprägung der Absorptionskante sowie ein Erreichen des Plateaus bei niedrigeren Energien zeigt sich bei tiefen Temperaturen (Abbildung 3.3 blauer Graph). Bei Erhöhung der Temperatur ist der Anstieg weniger stark ausgeprägt, das Plateau weist einen geringen absoluten Absorptionskoeffizienten auf und wird erst bei höheren Photonenenergien erreicht (Abbildung 3.3 roter Graph). Es ist wichtig herauszustellen, dass sich alle Spektren bei einer Photonenenergie von circa 1,9 eV schneiden. Oberhalb dieses Schnittpunktes kehrt sich der Trend um, dass bei einer Erhöhung der Temperatur ebenfalls der Absorptionskoeffizient ansteigt.

Aus einem Absorptionsspektrum kann die Energie der Bandlücke bestimmt werden. Dazu wird in indirekten Halbleitern die starke Absorption durch zwei lineare Fits beschrieben. Aus den Fitparametern kann im Anschluss die Bandlücke bestimmt werden. Diese Prozedur ist im folgenden Unterkapitel detailliert beschrieben.

3.3 Bestimmung der Bandlücke aus Absorptionsspektren

α -MnTe ist ein indirekter Halbleiter mit einer Bandlücke von $E_g = (1,27 - 1,46)$ eV [18]. In indirekten Halbleitern ist das Maximum des Valenzbandes um einen Wellenvektor Δq gegenüber dem Minimum des Leitungsbandes verschoben. Für optische Anregungen über die Bandlücke E_g muss somit nicht nur genug Energie aufgebracht werden, um diese zu überwinden, sondern auch ein zusätzlicher Quasimpuls beteiligt sein, um die Distanz Δq zu überwinden. Aufgrund des geringen Impulses des Photons ist ein solcher Prozess (verdeutlicht in Abbildung 3.4a) nur durch die gleichzeitige Absorption oder Emission eines Phonons möglich. Eine phonongestützte Anregung besteht in hier dem vorliegendem Fall aus zwei Schritten: zum einen aus einer Photon-Elektron Wechselwirkung $H_{\omega,e}$, die das Elektron aus dem Valenz- in das Leitungsband anhebt, zum anderen aus einer Phonon-Elektron Wechselwirkung $H_{ph,e}$, die den zusätzlichen Impuls des Elektrons aufnimmt. Hierbei ist zu beachten, dass diese Beschreibung lediglich der Verdeutlichung der physikalischen Prozesse dient, und beide Schritte virtuelle Übergänge darstellen, da der Impuls aufgrund der Translationssymmetrie des Kristalls erhalten sein muss [38]. Wird ein Elektron durch ein Photon angeregt, so wird zunächst das Elektron vom Valenz- in das Leitungsband durch einen virtuellen Übergang aus dem Anfangszustand $|0\rangle$

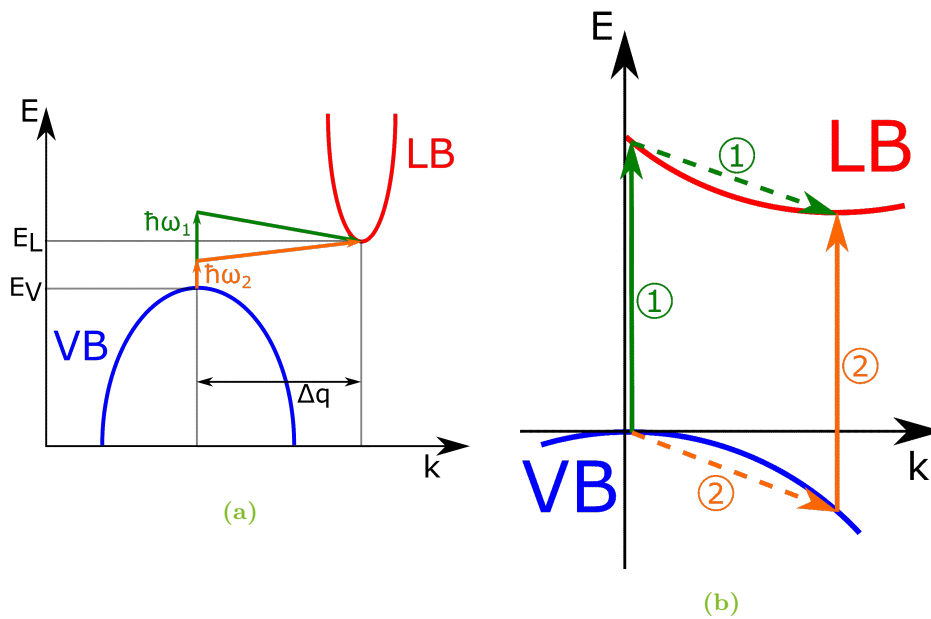


Abbildung 3.4: a) Schematische Darstellung einer optischen Anregung eines Photons mit der Energie $\hbar\omega_i$ aus dem Valenzband (VB) in das Leitungsband (LB) in einem indirekten Halbleiter entweder durch Absorption (orange) oder Emission (grün) eines Phonons, welches den benötigten Impuls Δq trägt. b) Schematische Darstellung der in a) beschriebenen Anregung bestehend aus zwei virtuellen Übergängen: Ein Elektron wird vom Valenz- in das Leitungsband gehoben (durchgezogene Pfeile); Durch Absorption oder Emission eines Phonons erhält das Elektron den benötigten Impuls (gestrichelte Pfeile). Die Reihenfolge der virtuellen Übergänge kann vertauscht werden: Möglichkeit 1 (grün) und 2 (orange).

in den Übergangszustand $|i\rangle$ gehoben. Dieser Prozess ist in Abbildung 3.4b durch die durchgezogenen vertikalen Pfeile dargestellt. Ein zweiter virtueller Übergang nimmt, entweder durch Absorption oder Emission eines Phonons, einen Teil des Elektronimpulses auf, wodurch das Elektron aus dem Übergangszustand $|i\rangle$ in seinen Endzustand $|f\rangle$ am Minimum des Leitungsbandes gebracht wird. Gestrichelte Pfeile stellen dies in Abbildung 3.4b dar. Da die Übergänge lediglich virtueller Natur sind, kann die Reihenfolge der beiden Schritte beliebig vertauscht werden ohne das Ergebnis zu ändern. Einzig und allein die Übergangszustände unterscheiden sich (siehe Abbildung 3.4b durch grüne und orange Pfeile dargestellte Verläufe). Prozesse, an denen mehrere Phononen beteiligt sind, sind theoretisch möglich, treten jedoch mit einer deutlich geringeren Wahrscheinlichkeit auf und werden hier nicht betrachtet [38].

Unter der Annahme, dass die Wechselwirkungen $H_{\omega,e}$ und $H_{ph,e}$ schwach genug

sind, kann die Übergangswahrscheinlichkeit $P_{\ddot{U}ber}$ mittels Störungstheorie bestimmt werden. Wir nutzen eine Erweiterung der Goldenen Regel Fermis zur zweiten Ordnung Störungstheorie und erhalten die Beiträge der erwähnten Übergänge zur Übergangswahrscheinlichkeit $P_{\ddot{U}ber}$,

$$P_{\ddot{U}ber} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{k_V, k_L} \left| \sum_i \frac{\langle f | H_{ph,e} | i \rangle \langle i | H_{\omega,e} | 0 \rangle}{E_{i0} - \hbar\omega} \right|^2 \delta(E_L(K_L) - E_V(k_V) - \hbar\omega \pm E_p) \quad (3.1)$$

wobei $|0\rangle$ den Anfangszustand des System beschreibt, bei dem sich das Elektron im Valenzband befindet, das Leitungsband leer ist und die Phononbesetzungszahl durch N_p gegeben ist. Im Endzustand $|f\rangle$ nach der optischen Anregung hat sich ein Loch im Valenzband gebildet, da ein Elektron in das Leitungsband angehoben wurde, und die Phononbesetzungszahl hat sich um eins verändert. Zur Berechnung

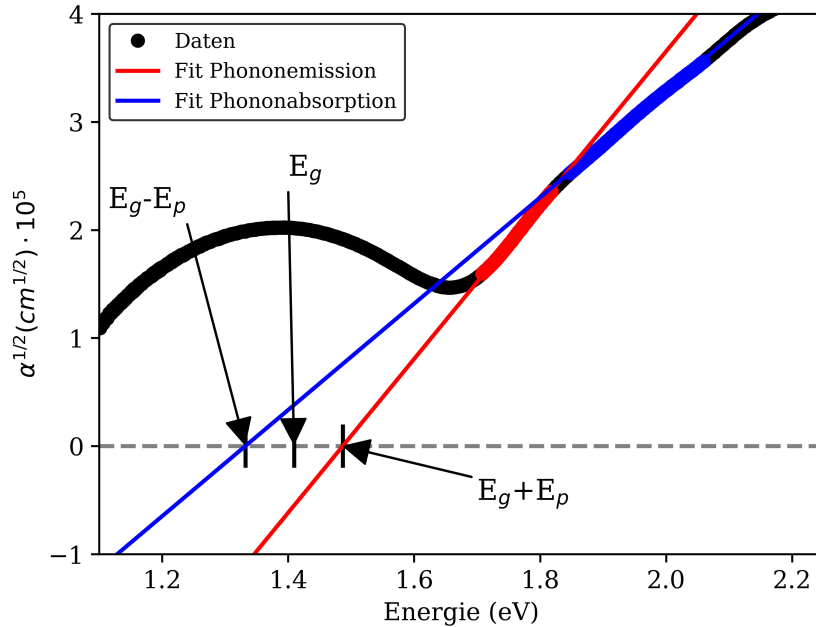


Abbildung 3.5: Graphische Darstellung der Bestimmung der Bandlückenenergie: Zwei lineare Fits - einer für Phononabsorption (rot) und einer für -emission (blau) - werden im Bereich der Absorptionskante durchgeführt. Das Ergebnis wird bis zu dem Punkt extrapoliert, an dem Absorption einsetzt $\alpha(\omega) \geq 0$. Die Bandlücke ist als der Mittelwert beider Schnittpunkte mit der x-Achse definiert.

der Übergangswahrscheinlichkeit $P_{\ddot{U}ber}$ werden drei Annahmen getroffen, die im Detail in dem Buch *Fundamentals of Semiconductors* von Manuel Cardona und Peter Yu ab Seite 271 und 395 beschrieben sind [\[38\]](#):

1. Die Matrixelemente aus [3.1](#) sind in der Nähe der Bandlücke konstant;
2. Die dominierenden Prozesse sind die beiden durch 1 und 2 in Abbildung [3.4b](#) beschrieben;
3. Leitungs- und Valenzband sind parabolisch und dreidimensional.

Die erste Annahme führt dazu, dass die Übergangswahrscheinlichkeit durch Summation über die Deltafunktion in Gleichung [3.1](#) bestimmt werden kann. Durch Umformen der Summen in Gleichung [3.1](#) über k_L und k_V in eine Integration des Leitungs- und Valenzbandes mit den zugehörigen Zustandsdichten D_L und D_V liefert

$$P_{\ddot{u}ber} \propto \iint D_V(E_V)D_L(E_L)\delta(E_L(k_L) - E_V(k_V) - \hbar\omega \pm E_p)dE_LdE_V \quad . \quad (3.2)$$

Durch Annahme drei können wir die Zustandsdichten zu

$$D_V \propto (-E)^{1/2} \quad \text{für } E_V < 0 \quad (3.3)$$

$$D_L \propto (E_L - E_{ig})^{1/2} \quad \text{für } E_L > 0 \quad (3.4)$$

bestimmen. Einsetzen der Zustandsdichten in [3.2](#) und Substitution der Integrationsvariablen ergibt sich der Ausdruck

$$P_{\ddot{u}ber} \propto (\hbar\omega \mp E_p - E_g)^2 \int_0^1 x^{1/2}(1-x)^{1/2}dx \quad . \quad (3.5)$$

Bei Ausführung des Integrals ergibt sich, dass die Übergangswahrscheinlichkeit $P_{\ddot{u}ber}$, welche dem Absorptionkoeffizienten ϵ entspricht, quadratisch von der den Übergang anregenden Photonenergie $\hbar\omega$ abhängt [38](#):

$$\epsilon(\omega) \propto (\hbar\omega \mp E_p - E_g)^2 \quad \text{für } \hbar\omega \geq E_g \pm E_p \quad . \quad (3.6)$$

Sowohl Phononabsorption ($E_g - E_p$) als auch Emission ($E_g + E_p$) tragen zur Absorption bei, unterscheiden sich jedoch in ihrer Temperaturabhängigkeit. Besitzt das anregende Photon genug Energie, um ein Phonon zu emittieren, treten Übergänge mit Phononemission unabhängig von der Kristalltemperatur auf. Wohingegen Phononabsorption nur bei hohen Temperaturen auftritt, da das anregende Photon nicht genug Energie besitzt, um ein Elektron in das Leitungsband zu heben, und sich keine thermischen Phononen im Kristall befinden, welche die fehlende Energie beisteuern können. Dies spiegelt sich in der Temperaturabhängigkeit der Phononbesetzungszahl wider, welche bei Annäherung an den absoluten Nullpunkt gegen Null geht, wodurch Übergänge mit Phononabsorption erst bei höheren Temperaturen vermehrt auftreten [9](#), [38](#). Anhand Gleichung [3.6](#) ist zu erkennen, dass sowohl Phononabsorption als

auch Emission als linearer Anteil im Spektrum der Quadratwurzel des Absorptionskoeffizienten enthalten sind. Somit wird mithilfe von zweier linearer Fits der Form,

$$f_{a,e}(\omega) = m_{a,e} \cdot \omega + b_{a,e} \quad , \quad (3.7)$$

bei der $m_{a,e}$ und $b_{a,e}$ die Fitparameter beschreiben, aus den gemessenen Absorptionsspektren die Bandlücke bestimmt. Das Verfahren ist schematisch in Abbildung 3.5 dargestellt. Aus dem Schnittpunkt der resultierenden Fits mit der x-Achse wird die Photonenergie bestimmt, ab welcher Absorption auftritt $\alpha(\omega) \geq 0$. Der energetisch höher liegende Schnittpunkt (rot) wird mit dem Übergang, welcher ein Phonon emittiert, assoziiert, wohingegen der niederenergetische Schnittpunkt mit der Absorption eines Phonons einhergeht. Der Mittelwert dieser beiden Energien ist als Bandlücke E_g definiert:

$$E_g = -\frac{1}{2} \left(\frac{b_a}{m_a} + \frac{b_e}{m_e} \right) \quad . \quad (3.8)$$

Diese Prozedur wird für alle Spektren angewandt, um die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke zu bestimmen, welche in Abbildung 3.6 dargestellt ist. Die Energie

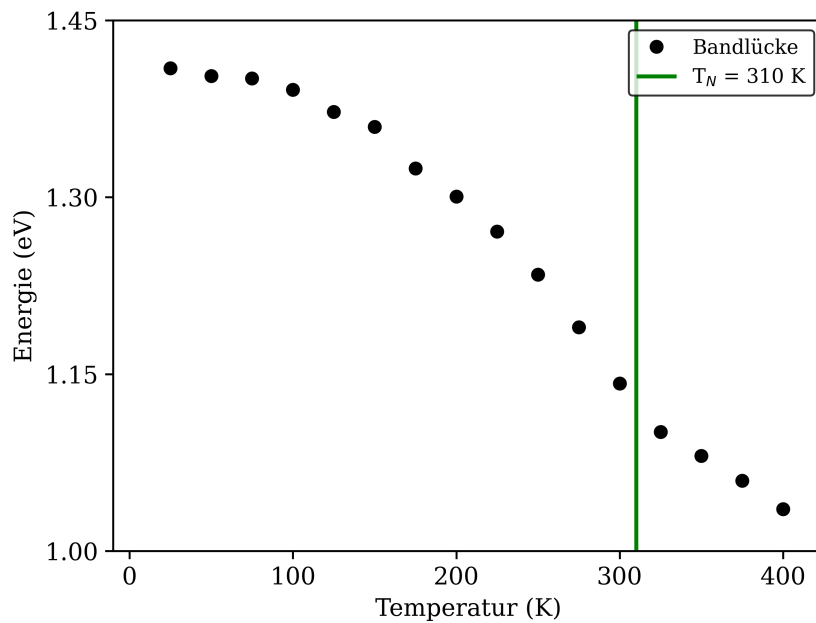


Abbildung 3.6: Energie der Bandlücke in α -MnTe als Funktion der Temperatur, extrahiert aus statischen Absorptionsspektren.

der Bandlücke verschiebt sich für niedrige Temperaturen hin zu höheren Energien.

Diese in indirekten Halbleitern allgemeine Eigenschaft der Bandlücke ist als Blauverschiebung der Bandlücke bekannt und wird im folgenden Abschnitt genauer diskutiert.

3.4 Blauverschiebung in indirekten Halbleitern

Eine Blauverschiebung der Energie der Bandlücke bei Reduktion der Proben temperatur ist ein allgemeiner Effekt in Halbleitern, welcher durch die Varshni-Funktion

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{aT^2}{T + \Theta} \quad (3.9)$$

charakterisiert ist. Hier beschreibt $E_g(0)$ die Energie der Bandlücke am absoluten Nullpunkt bei 0 K und die Parameter a sowie Θ beschreiben Konstanten. Die Varshni-Funktion ist eine phenomenologisch hergeleitete Funktion, welche zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Bandlücke nicht magnetischer Halbleiter entwickelt wurde [39]. Da α -MnTe unterhalb der Néeltemperatur von $T_N = 310$ K eine antiferromagnetische Ordnung der Mn-Spins aufweist, werden für die Beschreibung der Temperaturhängigkeit der Bandlücke mit der Varshni-Funktion ausschließlich Datenpunkte in der paramagnetischen Phase ($T > 310$ K) verwendet. Eine Fitprozedur wird dabei gemäß Formel [3.9] durchgeführt, wobei, wie bereits in der Literatur etabliert, $\Theta = 60$ K gesetzt wird und $E_g(0)$ sowie a als freie Fitparameter verwendet werden [17]. Die daraus resultierende Funktionsvorschrift wird für Temperaturen bis zum absoluten Nullpunkt ($T_{min} = 0$ K) extrapoliert und ist in Abbildung [3.7] dargestellt. Die standardmäßig zu erwartende Verschiebung der optischen Bandlücke hin zu höheren Energien bei einer Reduktion der Proben temperatur ist deutlich erkennbar. Eine Beschreibung dieser Abhängigkeit in der paramagnetischen Phase durch die Varshni-Funktion spiegelt den Trend der gemessenen Werte der Energie der Bandlücke wider. Unterschreitet die Temperatur der Probe die Néeltemperatur T_N , sind die Datenpunkte im Bezug auf die Beschreibung durch die Varshni-Funktion blau verschoben. Diese zusätzliche Verschiebung zu höheren Energien wird als magnetische Blauverschiebung bezeichnet, da sie lediglich in der antiferromagnetischen Phase existiert. Im folgenden Unterkapitel wird detailliert auf die magnetische Blauverschiebung in α -MnTe eingegangen.

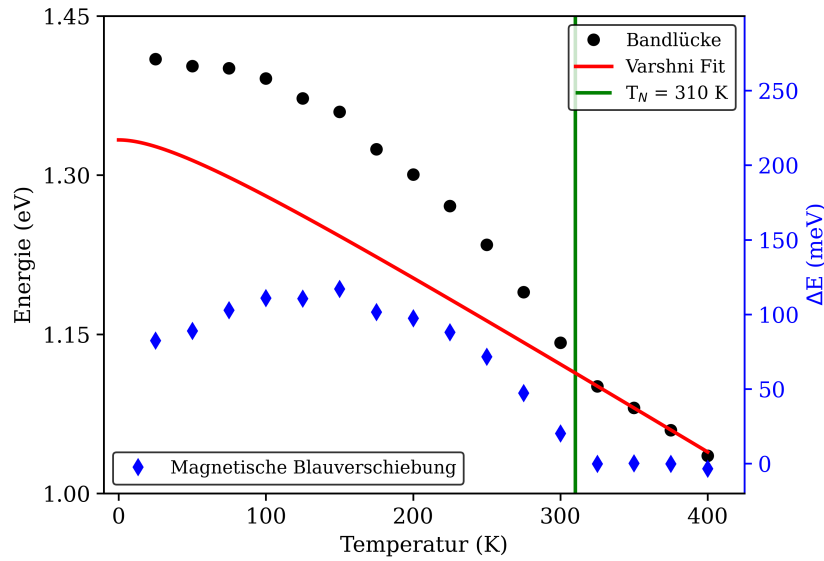


Abbildung 3.7: Erweiterung von Abbildung 3.6 durch Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Energie der Bandlücke durch die Varshni-Funktion (rot). In der antiferromagnetischen Phase weicht die Beschreibung durch die Varshni-Funktion von den experimentell bestimmten Daten ab. Diese Abweichung zu höheren Energien wird als magnetische Blauverschiebung bezeichnet (blaue Punkte).

3.5 Magnetische Blauverschiebung in α -MnTe

Eine Beschreibung der gemessenen Temperaturabhängigkeit der Bandlücke in α -MnTe durch die Varshni-Funktion stimmt in der paramagnetischen Phase mit den Datenpunkten überein. Unterhalb der Néeltemperatur weist die Probe eine antiferromagnetische Ordnung auf und die Datenpunkte sind in Bezug auf den Fit blauverschoben. Die Stärke dieser Blauverschiebung wird durch Subtraktion der Varshni-Funktion von den Messdaten gebildet. Bei niedrigeren Temperaturen nimmt der absolute Wert der Blauverschiebung zu und erreicht bei $T = 150$ K mit $E_{blau_{max}} \sim 120$ meV sein Maximum. Bei der niedrigsten gemessenen Temperatur $T_{min} = 25$ K beträgt die Blauverschiebung $E_{T_{min}} \sim 80$ meV. Normiert auf den maximalen Wert der zusätzlichen Blauverschiebung ist diese gegen die normierte Proben­temperatur in Abbildung 3.8 dargestellt. In der paramagnetischen Phase ($T/T_N > 1$) ist die gebildete Differenz ~ 0 . Erst bei einem Übergang in die antiferromagnetische Phase ($T/T_N < 1$) ist die zusätzliche Blauverschiebung sichtbar. Die Gesamtmagnetisierung in einem Ferromagneten und die Untergittermagnetisierung in einem Antiferromagneten sind temperaturabhängig und lassen sich durch

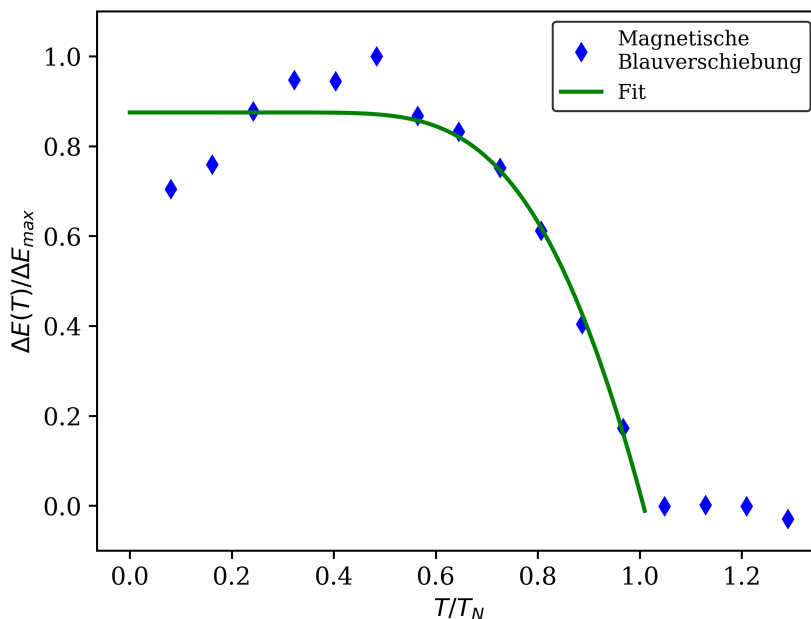


Abbildung 3.8: Normierte Magnetische Blauverschiebung in α -MnTe in Abhängigkeit der normierten Probestemperatur. Die Temperaturabhängigkeit der Untergittermagnetisierung eines 1D Heisenberg Ferromagneten folgt dem Trend der normierten magnetischen Blauverschiebung.

die transiente Funktion

$$m = \tanh\left(\frac{m}{t}\right) \quad (3.10)$$

beschreiben. Die Parameter m und t beschreiben die auf die maximale Magnetisierung ΔM_{max} und die kritische Temperatur T_{krit} normierte Magnetisierung bzw. Temperatur. In dem hier vorliegenden Fall entspricht die maximale Magnetisierung der größten Blauverschiebung und die kritische Temperatur der Néel-Temperatur. Abbildung [3.8] zeigt, dass die Temperaturabhängigkeit der Blauverschiebung diesem Trend folgt. Daher liegt es nahe, dass diese zusätzliche Blauverschiebung mit der Untergittermagnetisierung und damit dem magnetischem System in α -MnTe gekoppelt ist und als magnetische Blauverschiebung bezeichnet wird [20].

Theoretische Beschreibung der magnetischen Blauverschiebung

Im letzten Abschnitt wird kurz auf ein neues theoretisches Modell eingegangen, welches aufbauend auf den experimentellen Ergebnissen, die in diesem Kapitel

vorgestellt wurden, entwickelt wurde. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in [20]. Theoretische Beschreibungen in der Literatur betrachten hauptsächlich die Austauschwechselwirkung zwischen einem Leitungselektron und den lokalisierten Elektronen der Manganatome als Ursache der zusätzlichen Blauverschiebung in α -MnTe [17, 40]. Obwohl dieser Ansatz theoretische Ergebnisse liefert, die die experimentellen Daten mit hoher Genauigkeit reproduzieren, werden grundlegende Ursachen für die Bildung magnetischer Momente sowie Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern wie Hubbardabstoßung und Hund'sche Kopplung nicht betrachtet.

Aufbauend auf den experimentellen Ergebnissen wurde ein neues theoretisches Modell entwickelt, das in der Lage ist den zusätzlichen magnetischen Beitrag zur Energie der Bandlücke qualitativ und quantitativ, mit hervorragender Übereinstimmung zu den gemessenen Daten, zu reproduzieren. Ausgangspunkt des neuen Modells sind zwei Manganione Mn^{2+} , die entlang der kristallographischen c-Achse von α -MnTe liegen, und somit die beiden magnetischen Untergitter repräsentieren. Jedes Ion besitzt fünf Elektronen von denen eines \vec{s}_i zwischen beiden Ionen hin und her hüpfen kann, während die anderen vier als lokalisierte Elektronen \vec{S}_i betrachtet werden. Das neue Modell betrachtet sowohl die Formierung magnetischer Momente, Hubbard-Abstoßung, als auch die Hund'sche Kopplung, und basiert auf einem Hubbard-Kondo Hamiltonian der Form

$$\begin{aligned}
 H = & -2J_H \sum_{i=1}^2 \vec{s}_i \cdot \vec{S}_i + J_1 (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 + \vec{S}_1 \cdot \vec{s}_2 + \vec{s}_1 \cdot \vec{S}_2) \\
 & - h (S_1^z + s_1^z - S_2^z - s_2^z) \\
 & - t \sum_{\sigma \in \{\uparrow, \downarrow\}} (c_{1,\sigma}^\dagger c_{2,\sigma} + c_{2,\sigma}^\dagger c_{1,\sigma}) + U \sum_{i=1}^2 n_{i,\downarrow} n_{i,\uparrow} .
 \end{aligned} \tag{3.11}$$

Hier beschreibt $n_{i,\sigma}$ den Besetzungszahloperator der Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $c_{1,\sigma}^\dagger$ und $c_{1,\sigma}$. Betrachten wir die Terme in der Reihenfolge ihres Auftretens in Gleichung [3.11]: Der erste Term beschreibt die ferromagnetische Kopplung des Leitungselektrons mit den lokalisierten Elektronen über die Hund'sche Kopplung J_H . Die beiden Manganione sind antiferromagnetisch über die Austauschwechselwirkung J_1 gekoppelt. Ein effektives Wechselfeld h repräsentiert die Austauschwechselwirkung der beiden Mn^{2+} -Spins mit benachbarten Manganionen, wobei zwei nächste Nachbarn, sechs übernächste Nachbarn in der xy-Ebene und 12 über-über-nächste Nachbarn betrachtet werden, welche respektiv mit J_1 , J_2 und J_3 an das Zentralion koppeln. Das fünfte Elektron kann zwischen beiden Ionen mit Amplitude t hin und her hüpfen. Der letzte Term beschreibt die Hubbardabstoßung $U \gg 0$ welche auftritt, wenn sich Elektronen mit entgegengesetztem Spin bei einem der beiden Mn-Atome befinden. Dadurch wird Doppelbesetzung unterdrückt und die Ausbildung von lokalen magnetischen Momenten bevorzugt.

Zur Beschreibung der experimentellen Ergebnisse aus Abbildung 3.7 wird die Abhängigkeit der Bandlücke E_g von dem effektiven Feld h und der Untergittermagnetisierung

$$m = \frac{1}{2} \langle S_1^z + s_1^z - S_2^z - s_2^z \rangle \quad (3.12)$$

berechnet. Hierbei kann m Werte zwischen $-5/2$ und $5/2$ in Einheiten von \hbar annehmen. In der paramagnetischen Phase liegt die Magnetisierung bei $m = 0$ und somit ebenfalls das auf das Manganion wirkende Feld der Nachbarspins $h = 0$. Beim Übergang in die antiferromagnetische Phase ändert sich dies drastisch durch die langreichweitige magnetische Ordnung. Diese resultiert in einer maximalen Magnetisierung pro Ion von $m_{max} = 5/2$ und einem maximalen Feld $h_{max} = 35$ meV, welche den durchgeführten Messungen bei der tiefsten Temperatur ($T_{min} = 25$ K) entsprechen und in einer magnetischen Blauverschiebung von

$$\Delta E_{theo} = 84 \text{ meV} \quad (3.13)$$

resultieren. Dieser Wert stimmt bemerkenswert gut mit den gemessenen 80 meV überein.

Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

In diesem Kapitel wurde aus statischen Absorptionsmessungen die Energie der Bandlücke als Funktion der Temperatur in antiferromagnetischem α -MnTe bestimmt. Eine Beschreibung der Temperaturabhängigkeit durch die Varshnifunktion offenbart eine zusätzliche Blauverschiebung der Bandlücke in der antiferromagnetischen Phase. Diese magnetische Blauverschiebung ist proportional zur Untergittermagnetisierung, was auf eine intrinsische Kopplung zwischen magnetischem und elektronischem System hindeutet. Somit konnten im ersten Schritt dieser Arbeit die Ergebnisse aus [17] in unserer Probe mit einer um drei Größenordnungen kleineren Schichtdicke reproduziert werden, wengleich die absoluten Werte qualitativ nicht übereinstimmen. Dies kann auf die Genauigkeit der Extrapolation der Varshni-Funktion und damit der Werte der magnetischen Blauverschiebung zurückgeführt werden, welche bei ~ 10 meV liegt. Eine Abweichung in dieser Größenordnung findet sich auch zwischen verschiedenen Datensätzen unterschiedlicher Probendicke in der Literatur wieder [17]. Dies legt die Vermutung nahe, dass es sich bei der magnetischen Blauverschiebung in α -MnTe um eine von der Probendicke unabhängige intrinsische Eigenschaft handelt, die des Weiteren nicht von der Existenz eines Substrates oder eines *capping layers* beeinflusst wird [20]. Dieser Zusammenhang zwischen der magnetischen Ordnung und der dadurch verursachten Blauverschiebung der Energie der Bandlücke stellt

den Ausgangspunkt für die Untersuchung neuer Dynamik dar, bei welcher auf einer Modulation des einen Systems eine Antwort des jeweils anderen folgt. Jüngste experimentelle Arbeiten zeigen, dass kohärente Anregungen der Untergittermagnetisierung, angestoßen durch photo-induzierte Magnonen, auf einer Zeitskala von einigen THz erfolgen [31, 41, 42]. In den folgenden Kapiteln wird die Wechselwirkung zwischen magnetischem und elektronischem System auf der ultraschnellen Zeitskala systematisch beleuchtet, indem zunächst (siehe Kapitel 4) die Bandlücke angeregt und abschließend (siehe Kapitel 5) die Antwort des Spinsystems auf eine kohärente Modulation der Bandlücke untersucht wird.

4 Zeitaufgelöste Messungen mit Supercontinuum

In diesem Kapitel wird mittels der in Kapitel [2.2](#) vorgestellten Pump-Probe Technik die Dynamik der transienten Reflektivität auf der ultraschnellen Zeitskala in α -MnTe untersucht. Dazu wird der Messaufbau aus Kapitel [2.3](#) in Reflektionsgeometrie (siehe Kapitel [2.3.1](#)) genutzt, welcher am Anfang dieses Kapitels charakterisiert wird. Anhand der gemessenen zweidimensionalen Datenmatrizen wird zunächst die Aufbereitung der Daten gezeigt, die den Hintergrund und den intrinsischen Chirp der Probepulse korrigiert. Eine Fourieranalyse der Spektren zeigt, dass die Bandlücke mit einer Frequenz von 5,3 THz moduliert ist, welche in α -MnTe dem optisch aktiven E_{2g} Phonon entspricht. Eine phenomenologische Betrachtung der Bandlücke als ein, durch das optisch aktive Phonon modulierter Lorentzoszillator, bestätigt, dass in α -MnTe die Bandlücke auf der ultraschnellen Zeitskala kohärent moduliert ist. Die Ergebnisse sind zum Teil in [\[25\]](#) publiziert.

4.1 Charakterisierung des experimentellen Aufbaus

Der erste Schritt der Untersuchung der Dynamik der Wechselwirkung der Bandlücke E_g und des magnetischen Systems in α -MnTe auf der ultraschnellen Zeitskala besteht aus einer kohärenten Anregung der Bandlücke. Dazu wird der in Kapitel [2.3](#) beschriebene Pump-Probe Aufbau der CUSBO-Einrichtung der politechnischen Universität Mailand genutzt. Für die in diesem Kapitel präsentierten Experimente sollen die Pumppulse eine Photonenergie aufweisen, die deutlich größer ist als die Energie der Bandlücke von $E_g = 1,4$ eV um diese effizient anregen zu können. Dazu wird der NOPA, gemäß der Beschreibung aus Kapitel [2.3](#), so eingestellt, dass ein schmalbandiger Puls mit einer zentralen Photonenergie von $\sim 2,3$ eV die Probe anregt. Das resultierende Spektrum ist in [Abbildung 4.1a](#) dargestellt. Ein besonderes Merkmal dieses Aufbaus ist breitbandige Pulse mit einer Pulsdauer von ~ 15 fs zu erzeugen können [\[23\]](#). Da die genaue Kenntnis der spektralen Lage einer möglichen resonanten Anregung der Bandlücke nicht bekannt ist, wird ein Supercontinuumimpuls als Probepuls gewählt, dessen Spektrum den gesamten spektralen Bereich der starken Absorption $\hbar\omega > 1,7$ eV abdeckt. Eine sorgfältige Einstellung des NOPAs ergibt das in [Abbildung 4.1b](#) dargestellte Spektrum der Probepulse. Es erstreckt sich von

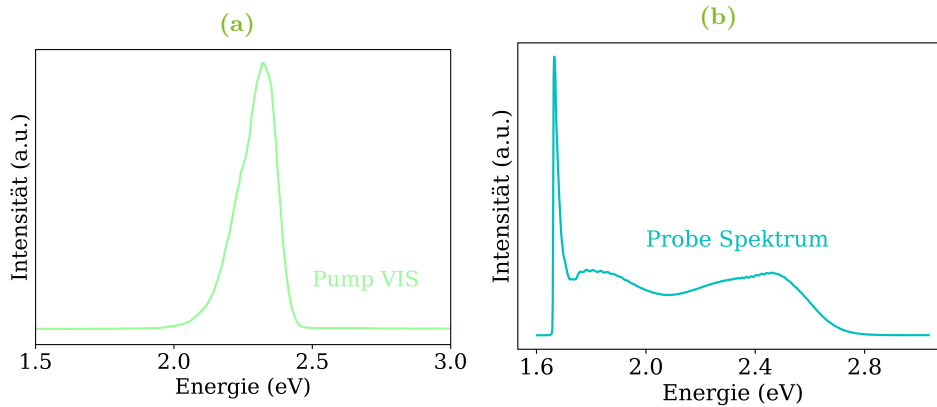


Abbildung 4.1: Rechts: Spektrum der anregenden Pump-Pulse im sichtbaren Bereich. Links: Spektrum des verwendeten breitbandigen Probepulses, welches den Bereich von $\sim 1,65$ eV bis $2,7$ eV abdeckt. Das starke absolute Maximum bei $\sim 1,65$ eV ist der Fundamentalwellenlänge des weißlichterzeugenden Pulses zuzuordnen.

1,75 eV bis $2,7$ eV. Das intensive Maximum bei $\sim 1,65$ eV wird der weißlichterzeugenden Fundamentalwellenlänge zugeordnet, die nicht vollständig herausgefiltert werden konnte. Die Polarisation von Pump- und Probestrahl wird über spezielle Polarisatoren eingestellt, die möglichst dünn sind, um einen minimalen Einfluss auf die Pulsdauer zu gewährleisten. Beide Strahlen treffen mit linearer Polarisation auf der Probe auf. Diese befindet sich in einem Kryostaten, welcher mit flüssigem Stickstoff gekühlt ist und die Probentemperatur auf 77 K reduziert, wodurch sich die α -MnTe-Probe in der antiferromagnetischen Phase befindet. Die Probe ist so orientiert, dass die Ausbreitungsrichtung des eintreffenden Lichts senkrecht zum Néelvektor steht. Dies wird als Voigt-Geometrie bezeichnet [43]. Vor dem Start jeder Messreihe wird eine Kalibration der CCD-Kamera gemäß des in Kapitel 2.3.1 beschriebenen Vorgehens durchgeführt sowie das Strahlprofil des Probestrahls aufgenommen. Über eine der Datenaufnahme vorangehende Messung der Lichtintensität wird über Formel 2.5 die Fluenz bestimmt.

4.2 Zeit- und spektral-aufgelöste Messungen der transienten Reflektivität

Die in diesem Kapitel gezeigten zeit- und spektralaufgelösten Messungen sind mit dem optischen Aufbau, beschrieben in Kapitel 2.3, aufgenommen worden. Die hier

verwendete Probengeometrie ist die in Kapitel [2.3.1](#) beschriebene Reflektionsgeometrie, welche eine Messung der transienten Reflektivität $\Delta R/R$ über einen großen spektralen Bereich ermöglicht. Der Zeitpunkt der Interaktion zwischen Pump- und Probestrahl wird mittels einer mechanischen Verzögerungsstrecke kontinuierlich in einem Bereich von -200 fs bis $3,8$ ps mit einer Schrittweite von 20 fs variiert, wobei $t_0 = 0$ fs als "Zero-Delay" - der Zeitpunkt des maximalen Überlapps zwischen Pump- und Probepulse - definiert ist. Dieser wird vor jeder Messung über eine Funktion der selbstgeschriebenen *Lab View* Software festgesetzt. In [Abbildung 4.2](#) sind die Rohdaten der bei maximaler Fluenz gemessene zweidimensionale Matrix dargestellt. Das

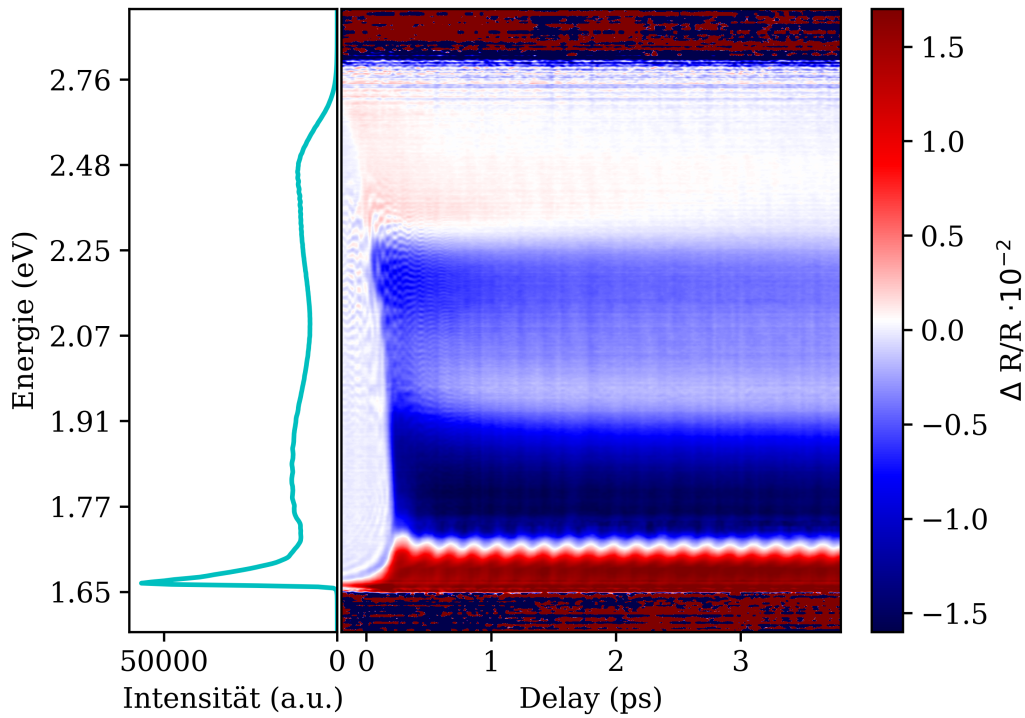


Abbildung 4.2: Rohdaten einer spektral- und zeitaufgelösten Messung der Reflektivität in α -MnTe. Das Spektrum der Probepulse ist rechts dargestellt und dient der Interpretation des zweidimensionalen Spektrums. Da das Probespektrum sich über den Bereich von $1,65$ eV bis $2,7$ eV erstreckt und somit genügend Photonen aufweist, die von dem angeregten Zustand der Probe beeinflusst werden können, ist dieser spektrale Bereich der 2D-Matrix von physikalischem Interesse. Oszillationen mit einer Frequenz von $5,3$ THz und einer spektralen Breite von 50 meV sind bei einer Photonenenergie von $E = 1,71$ eV sichtbar.

Spektrum der Probepulse, welches parallel zu jeder Messung aufgenommen wird, ist an der y-Achse der 2D-Matrix dargestellt und dient der Einordnung der spektralen

Komponenten. Im Bereich zwischen 1,65 eV und 2,7 eV enthält ein Probepuls ausreichend Photonen, die den Zustand der Probe verfolgen können, sodass das Signal spektraler Komponenten außerhalb dieses Bereiches keinen Rückschluss auf den Probenzustand zulässt und im Folgenden nicht weiter darauf eingegangen wird. Das markanteste Merkmal der in Abbildung 4.2 gezeigten Messung sind die um 1,71 eV zentrierten Oszillationen der Lichtintensität mit einer Frequenz $\nu_{Osz} = 5,3$ THz und einer spektralen Breite von 50 meV. Die Oszillationen unterteilen die zweidimensionale Matrix in zwei spektrale Bereiche: einen mit positiven Signal $\Delta R/R$ bei niedrigeren Photonenenergie und einen mit negativer transients Reflektivität für höhere Photonenenergien. Vor einer sorgfältigen Analyse der Daten werden zwei Schritte der Datenaufbereitung durchgeführt, welche den Einfluss systematischer Fehler reduzieren und die Qualität der physikalischen Interpretation der gemessenen Effekte erhöhen.

Datenaufbereitung

In Abbildung 4.2 sind die Rohdaten einer gemessenen 2D-Matrix dargestellt. Ein zeitlicher Ausschnitt der ersten Pikosekunde dieser Daten ist in Abbildung 4.3 dargestellt, welcher den Einfluss der Datenaufbereitung vor der eigentlichen Datenanalyse verdeutlicht. Um eine sinnvolle physikalische Interpretation der Daten zu gewährleisten, werden die Datensätze von Hintergrundeffekten und von systematischen Einflüssen des Messaufbaus bereinigt. Zunächst wird jede spektrale Komponente um einen möglichen konstanten Hintergrund korrigiert, indem der Mittelwert des Signals vor der zeitlichen Überlappung von Pump- und Probestrahl auf der Probe von dem gesamten zeitaufgelösten Signal abgezogen wird. Das Signal bei negativer Verzögerung entspricht dabei der Interaktion zwischen Probepulsen und der Probe, welche nicht von Interesse sind, da im Folgenden vom Pumpstrahl induzierte Effekte analysiert werden.

Wie in Kapitel 2.3 beschrieben sind breitbandige Pulse intrinsisch gechirped, wodurch kürzere Wellenlängen zeitlich vor längeren mit der Probe interagieren. Dieser Effekt spiegelt sich in der in Abbildung 4.3a gezeigten zweidimensionalen Datenmatrix wider. Es ist deutlich zu erkennen, dass Probepulsbestandteile mit niedriger Energie ($\sim 1,8$ eV) zeitlich später (bei ~ 200 fs) im Vergleich zu höheren Energien ($2,5$ eV $\hat{=}$ 0 fs) mit der Probe interagieren. Die Interaktion mit der Probe ist durch einen Anstieg (rot) oder Abfall (blau) der Signalstärke zu erkennen. Ein, in der Programmiersprache *Python*, selbstgeschriebener Algorithmus korrigiert in den 2D-Matrizen den Chirp, indem zunächst für jede spektrale Komponente i die Ableitung des Signals Sig' für alle zeitlichen Verzögerungen d gebildet wird:

$$Sig'_{i,d} = Sig_{i,d+1} - Sig_{i,d} \quad . \quad (4.1)$$

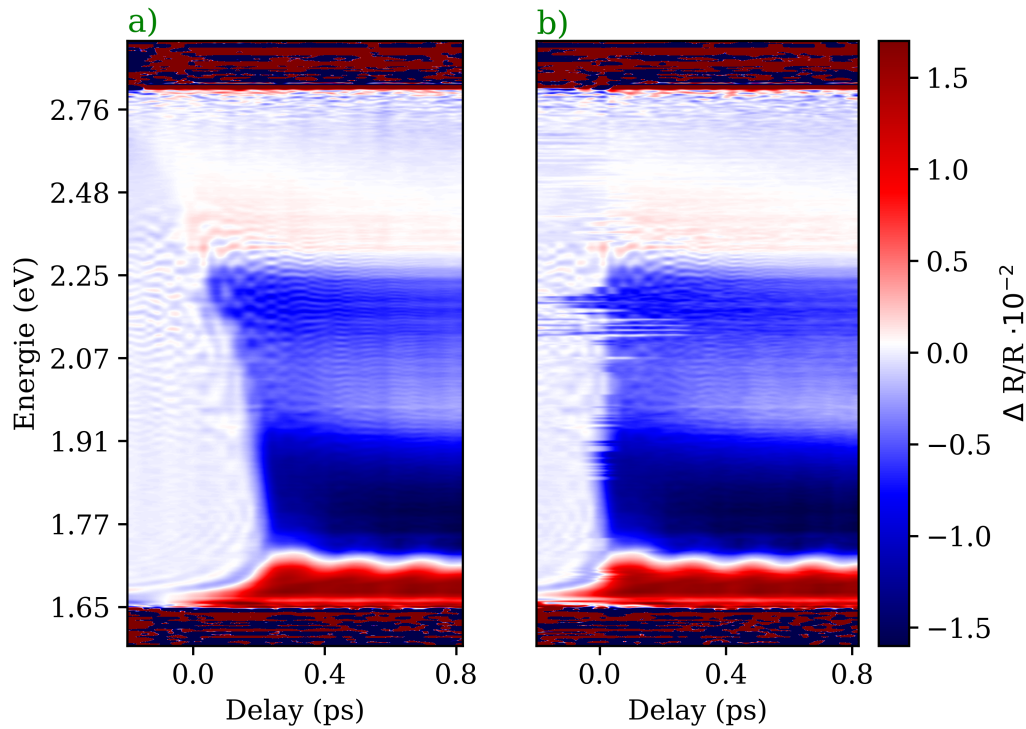


Abbildung 4.3: a) Rohdaten der zeitlichen Entwicklung der gemessenen zweidimensionalen Datenmatrizen von -200 fs bis 800 fs. Spektrale Komponenten des Probepulses interagieren aufgrund des Chirps zu verschiedenen Zeitpunkten mit der Probe (erkennbar durch einen Anstieg (rot) oder Abfall (blau) der Signalstärke). b) Daten nach Bereinigung systematischer Einflüsse. Ein möglicher konstanter Offset wurde von jeder zeitaufgelösten Signalspur abgezogen. Der Interaktionszeitpunkt mit der Probe ist für alle spektralen Komponenten gleich und entspricht dem "Zero-Delay".

Die größte Änderung der Ableitung $\max|Sig'_i|$ wird als Zeitpunkt der maximalen Überlappung von Pump- und Probestrahl auf der Probe definiert und markiert somit das Zero-Delay t_0 . Die um den Chirp korrigierte 2D-Matrix aus Abbildung 4.3a ist in Abbildung 4.3b dargestellt.

4.3 Koherente Modulation der Bandlücke in α -MnTe

Die hier vorgestellte Datenanalyse ist mit der Programmiersprache *Python*, Version 3.1, erstellt worden und nutzt die Vorteile einiger bereits implementierter Bibliotheken.

ken, die zu gegebener Zeit erwähnt werden. Aus der um den Hintergrund und den Chirp bereinigten 2D-Datenmatrix, dargestellt in Abbildung 4.3b, ist ersichtlich, dass der spektrale Bereich von höchstem Interesse um den oszillierenden Anteil zentriert bei 1,71 eV liegt. Dieser Ausschnitt ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Unmittelbar

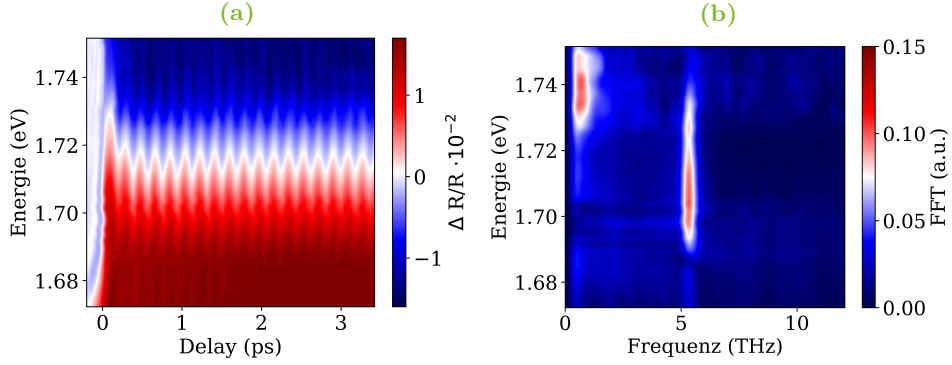


Abbildung 4.4: Links: Ausschnitt des spektralen Bereichs welcher die markanten Oszillationen zentriert um 1,71 eV enthält. Rechts: Fouriertransformierte der einzelnen spektralen Zeitspuren aus Abbildung 4.4a. Im spektralen Bereich von 1,69 eV bis 1,74 eV sind Oszillationen mit einer Frequenz von $\sim 5,3$ THz deutlich zu erkennen.

ins Auge fallend ist die Tatsache, dass die Oszillationen eine Grenze im Spektrum darstellen, welche die 2D-Datenmatrix in zwei Bereiche unterschiedlichen Vorzeichens unterteilt: positive transiente Reflektivität für spektrale Komponenten mit niedrigerer Energie als 1,71 eV und ein negatives Signal $\Delta R/R$ für Photonenenergien überhalb von 1,71 eV. Ein Vergleich mit dem statischen Absorptionsspektrum von α -MnTe aus Abbildung 3.3 zeigt, dass die Oszillationen im spektralen Bereich der starken Absorption liegen, welche mit dem elektronischen Übergang der Bandlücke assoziiert wird.

Um die Frequenz der Oszillationen zu bestimmen, wird eine Fourieranalyse für Datenpunkte ab dem Zeitpunkt des Zero-Delays für jedes zeitaufgelöste Signal durchgeführt. Dazu wird zunächst der inkohärente Anteil, der exponentielle Hintergrund des Signals, mit einer Exponentialfunktion der Form

$$f(x) = a \cdot \exp(-b \cdot x) + c \quad (4.2)$$

gefitet und anschließend von den Messdaten abgezogen. Hier entsprechen a , b und c den verwendeten Fitparametern. Unter Verwendung der Fourieranalysefunktion `fftpack` der Pythonbibliothek `scipy` wird vom kohärenten Anteil des Signals für den gesamten spektralen Bereich eine schnelle Fourier-Transformation (FFT) durchgeführt. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.4b dargestellt. Eine Resonanz bei 5,3 THz,

die sich über einen spektralen Bereich mit einer Breite von 50 meV erstreckt, ist deutlich zu erkennen. Dieser Wert stimmt mit der Frequenz zweier entarteter E_{2g} -Phononenmoden überein, die im Ramanspektrum von α -MnTe beobachtet wurden [35, 44]. Ein Vergleich mit MgB_2 zeigt, dass Schwingungen der Telluriumatome durch die E_{2g} -Phononmoden ausgelöst werden. Eine schematische Darstellung der beiden möglichen Schwingungsmoden ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Betrachten wir

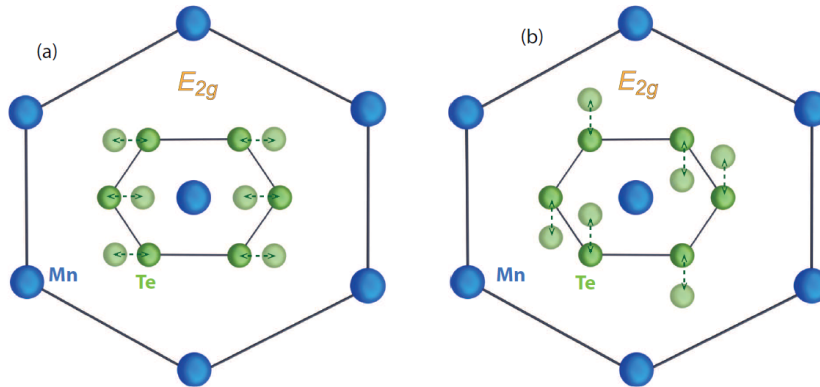


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung der Schwingungsmoden des zweifach entarteten E_{2g} -Phonons in α -MnTe [25]. Die nächsten Telluriumnachbarn eines zentralen Te-Atoms führen dem entgegengesetzte Bewegungen aus, was einem Phasenunterschied von π entspricht.

zwei zeitaufgelöste Spuren mit unterschiedlichen Vorzeichen: eine oberhalb und eine unterhalb der zentralen Photonenergie bei 1,71 eV. So ist bei einem Delay von 800 fs ein Phasenunterschied der Oszillationen von π zu beobachten (schwarze vertikale Linie in Abbildung 4.6). Um die Ursache dieses Phasenunterschiedes zu verstehen, betrachten wir einen Lorentzoszillator - dargestellt in Abbildung 4.7 - als stark vereinfachtes Modell zur Beschreibung der Bandlücke. Dieser wird von einem optisch-aktivem Phonon moduliert. Hier wird zwischen zwei verschiedenen Modulationen unterschieden: Amplitudenmodulation (Abbildung 4.7a) und Frequenzmodulation (Abbildung 4.7b). Bei einer Modulation der Amplitude schwingen sämtliche spektrale Komponenten im Bezug auf die zentrale Frequenz ω_0 in Phase. Ist hingegen die Frequenz moduliert, so steigt die Intensität spektraler Komponenten rechts der zentralen Frequenz ω_0 , während die Intensität des Spektrums links von ω_0 abnimmt und umgekehrt. Dieses gegenphasige Verhalten stimmt mit dem in Abbildung 4.4 gezeigten Vorzeichenwechsel überein. Somit liegt es nahe, dass die Bandlücke in α -MnTe kohärent mit einer Frequenz von 5,3 THz durch das E_{2g} -Phonon moduliert ist. Gestützt wird diese Annahme durch die optische Natur der E_{2g} -Phononmode, welche Oszillationen der Te-Atome hervorrufen, die in Abbildung 4.5 dargestellt sind. Aufgrund der Ladung der Telluriumatome wird bei einer Auslenkung aus ihrer

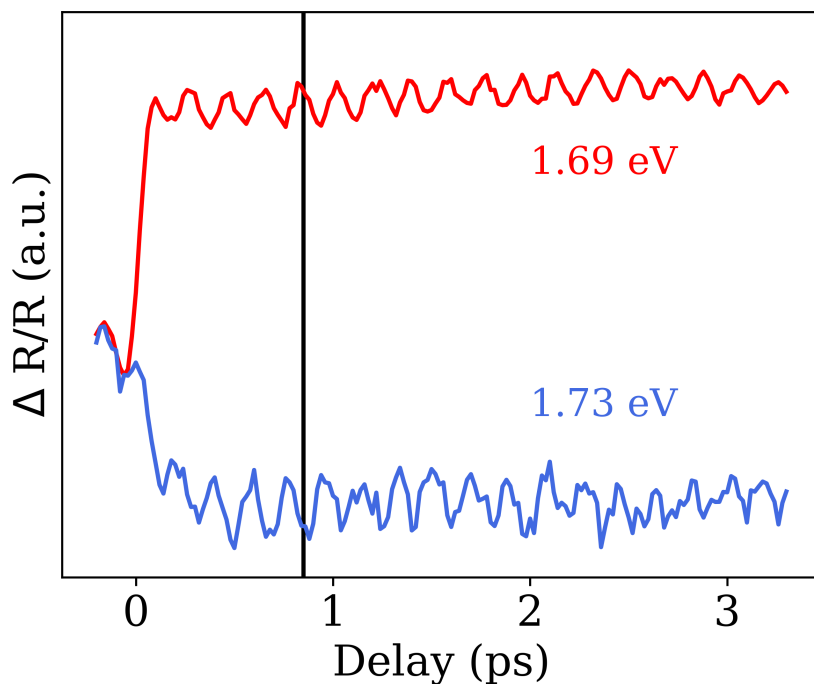


Abbildung 4.6: Zwei zeitaufgelöste Signale aus Abbildung 4.4a bei einer spektralen Position unter- und oberhalb der zentralen Oszillationsfrequenz. Ein Vergleich der zeitlichen Position der Maxima offenbart einen Phasenunterschied von π .

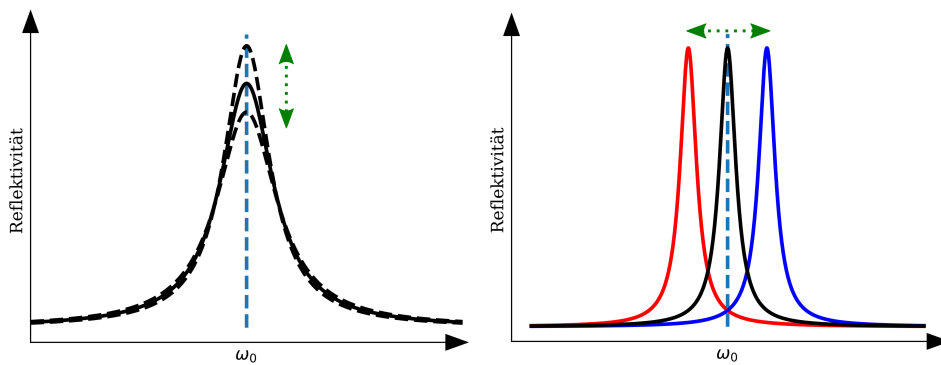


Abbildung 4.7: Links: Amplitudenmodulation (gestrichelte Linie) eines Lorentz-oszillators. Alle Komponenten des Spektrums oszillieren in Phase im Bezug auf die Resonanzfrequenz ω_0 . Rechts: Frequenzmodulation (rote und blaue Linie) eines Lorentz-oszillators. Komponenten auf der blauen und roten Seite im Bezug auf die Resonanzfrequenz ω_0 oszillieren gegenphasig.

Ruhelage ein transientes elektrisches Feld erzeugt, welches die Spektrallinien durch einen Stark-artigen Einfluss verschieben kann. Dieser Effekt wurde bereits sowohl in direkten (GaAs) als auch in indirekten (Si) Halbleitern gezeigt [25, 45]. Zur Bestimmung der Stärke der Modulation der Bandlücke werden zwei Spektren miteinander verglichen, wobei ein Spektrum dem Minimum ($t = 760$ fs) einer Phonoszillation und das andere Spektrum dem darauf folgenden Maximum ($t = 860$ fs) entspricht (siehe Abbildung 4.8). Zur Abschätzung der Modulationsstärke wird die

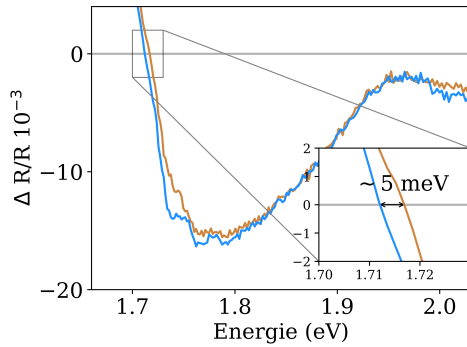


Abbildung 4.8: Spektren für zwei verschiedene Delays bei 860 fs und 760 fs. Die Differenz der x-Werte bei denen die Spektren die Nulllinie schneiden, dient zur Abschätzung der Modulationsstärke der Bandlücke.

Probe	Fluenz	$\Delta R/R$
Si	$300 \mu\text{J}/\text{cm}^2$	10^{-5}
GaAs	$170 \mu\text{J}/\text{cm}^2$	10^{-4}
α -MnTe	$60 \mu\text{J}/\text{cm}^2$	10^{-2}

Tabelle 4.1: Vergleich der Stärke der Modulation der Bandlücke mit Werten aus der Literatur [45]. Die in dieser Arbeit verwendete Fluenz liegt eine Größenordnung niedriger, wohingegen $\Delta R/R$ zwei Größenordnungen stärker ist.

Differenz der Energien bestimmt, bei welcher die Spektren die x-Achse schneiden, da der Nulldurchgang einer verschwundenen transienten Reflektivität entspricht. Die Modulationsstärke wird somit zu ~ 5 meV bestimmt, was einer relativen Änderung der Bandlückenenergie von $4 \cdot 10^{-3}$ im Vergleich zu ihrem Wert bei 77 K entspricht. Unter Berücksichtigung der hier verwendeten niedrigen Fluenz von lediglich $60 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ zeigt sich, dass die Kopplung des E_{2g} -Phonons an die Bandlücke um zwei Größenordnungen stärker ist ($\Delta R/R \approx 10^{-2}$), verglichen mit denen in der Literatur vorgestellten Modulationsstärken (siehe Tabelle 4.1).

Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde mit der Pump-Probe Technik die Dynamik der Bandlücke in antiferromagnetischem α -MnTe auf der ultraschnellen Zeitskala untersucht. Um einen großen spektralen Bereich um die Bandlücke zu untersuchen, wurden breitbandige Probepulse verwendet. Die transiente Reflektivität $\Delta R/R$ zeigt, dass die Bandlücke

mit einer Frequenz von 5,3 THz moduliert ist. Ein Vergleich mit Ramanspektren aus der Literatur zeigt, dass diese Frequenz der des zweifach entarteten optisch aktiven E_{2g} -Phonons entspricht. Um die Art der Modulation der Bandlücke zu verstehen, wird diese als Lorentzoszillator betrachtet, welcher durch ein Phonon frequenzmoduliert wird. Diese Betrachtung entspricht den gemessenen Daten, was darauf schließen lässt, dass die Bandlücke in α -MnTe kohärent auf der ultraschnellen Zeitskala durch das E_{2g} -Phonon moduliert wird. Die Modulationsfrequenz liegt in einer Größenordnung, in welcher ebenfalls antiferromagnetische Spinanregungen in α -MnTe stattfinden (siehe Kapitel [1.3.1](#)). Aufbauend auf dieser Tatsache werden im nächsten Schritt der Untersuchung der Wechselwirkung zwischen magnetischem und elektronischem System in α -MnTe Messungen der Dynamik des magnetischen Systems nach kohärenter Anregung der Bandlücke durchgeführt.

5 Kapitel 5: Zeitaufgelöste Magneto-optische Messungen in α -MnTe

In diesem Kapitel werden zeitaufgelöste magneto-optische Messungen in α -MnTe präsentiert, die mit dem in Kapitel 2.3 beschriebenen Setup durchgeführt wurden. Dazu wird zunächst eine Analyse der Probenstruktur durchgeführt, um den in der Probe messbaren magneto-optischen Effekt zu identifizieren: Magnetischer Linear-dichroismus resultiert in einer Drehung der Polarisationsrichtung der Probepulse, welche mittels des in Kapitel 2.3.2 beschriebenen Detektionsschemata vermessen wird. Sowohl Messungen der transienten Transmission $\Delta T/T$ als auch der Rotation der Polarisation $\Delta\theta$ zeigen Oszillationen mit einer Frequenz von 5,3 THz, welche mit dem E_{2g} -Phonon identifiziert werden. Ein Vergleich der transienten Transmission und der Rotation der Polarisation zeigt, dass in der antiferromagnetischen Phase ein inkohärenter Beitrag zu $\Delta\theta$ gemessen wird, der auf Spindynamik zurückzuführen ist. Abschließend wird ein theoretisches Modell vorgestellt, welches phonongetriebene Dynamik des antiferromagnetischen Ordnungsparameters beschreibt.

5.1 Charakterisierung des experimentellen Aufbaus

Die in diesem Kapitel präsentierten Messungen werden mit dem in Kapitel 2.3 beschriebenen Pump-Probe Aufbau durchgeführt. Dazu wird der, die Probe anregende, Pumpstrahl unverändert bei einer Photonenenergie von 2,4 eV belassen, um die Bandlücke kohärent anzuregen. Für die Probepulse hingegen wird anstelle eines breitbandigen Supercontinuums ein spektral schmaler Puls mit einer Photonenenergie von 1,72 eV verwendet. Die Wahl der Photonenenergie ist dabei nicht willkürlich, sondern auf die spektrale Region zurückzuführen, welche in den Messungen aus Kapitel 4 am stärksten durch das optische aktive E_{2g} -Phonon moduliert wird (siehe Abbildung 4.4a). Mittels eines Strahlprofilmessers werden die Ausdehnungen von Pump- und Probestrahl am Interaktionspunkt mit der Probe zu $80\ \mu\text{m} \times 70\ \mu\text{m}$ für den Probestrahl und zu $120\ \mu\text{m} \times 170\ \mu\text{m}$ für den anregenden Pumpstrahl bestimmt. Eine Messung der Leistung des Pumpstrahls an der Probe ergibt $37\ \mu\text{W}$, welches in Kombination mit der Laserwiederholrate von 2 kHz nach Gleichung 2.5 einer Fluenz

von

$$F = \frac{37 \mu\text{W} \cdot 2}{2 \text{ kHz}} \cdot \frac{120 \mu\text{m}}{2} \cdot \frac{170 \mu\text{m}}{2} \pi \simeq 230 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2} \quad (5.1)$$

entspricht.

5.2 Magnetischer Lineardichroismus in α -MnTe

Im Allgemeinen wird Dichroismus als Materialeigenschaft definiert, bei der elektromagnetische Strahlung abhängig von der Polarisationsrichtung unterschiedlich stark im Material absorbiert wird. Die unterschiedliche Stärke des Absorptionskoeffizienten ist im Fall von antiferromagnetischem α -MnTe auf den Einfluss der magneto-kristallinen Anisotropie zurückzuführen. Es wird zwischen zirkularem und linearem Dichroismus unterschieden:

- **Zirkulardichroismus**
ist die magnetische Ordnung oder ein angelegtes Feld parallel zu der Propagationsrichtung der elektromagnetischen Strahlung orientiert liegt die Faraday Geometrie vor. Zirkulardichroismus beschreibt die Differenz in der Absorption zirkular polarisierter Lichtkomponenten ($k_+ - k_-$).
- **Lineardichroismus**
ist ein angelegtes magnetisches Feld oder die magnetische Ordnung des Materials senkrecht zur Propagationsrichtung orientiert liegt die Voigt-Geometrie vor. Lineardichroismus wird durch die Differenz parallel und senkrecht orientierter Lichtkomponenten ($k_{\parallel} - k_{\perp}$) beschrieben.

Die α -MnTe Probe und der Probestrahl sind so orientiert, dass das Licht entlang der c -Achse der Probe propagiert. Die Spins der Mn-Atome sind senkrecht zur c -Achse orientiert, wodurch die Voigt-Geometrie vorliegt und Lineardichroismus gemessen werden kann. In dieser Geometrie wird der dielektrische Tensor, welcher die Wechselwirkung zwischen der Probe und der elektromagnetischen Strahlung beschreibt, durch

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.2)$$

definiert. In einem antiferromagnetischen Material können die symmetrischen Komponenten ϵ_{ii} aus Gleichung 5.2 wie folgt entwickelt werden [21]

$$\epsilon_{ii} = \epsilon_{ii}^0 + \chi_{kl} L_k L_l + \eta_{klmn} L_k L_l L_m L_n + \dots \quad (5.3)$$

Hier beschreiben L_i die Komponenten des Néelvektors. Der erste Term auf der rechten Seite in Gleichung 5.3 ist spinunabhängig und beschreibt Brechung (Realanteil) und Absorption (Imaginärteil) elektromagnetischer Strahlung im Medium. Auf Grund der Symmetrie der Probe enthalten alle weiteren Terme der Entwicklung einen geraden Exponenten des Spins, welcher mit den materialspezifischen Tensoren (χ_{kl} , η_{klmn}) multipliziert wird. Somit beschreibt der zweite Term in Gleichung 5.3 magneto-optische Effekte quadratischer Ordnung und der letzte Term Effekte vierter Ordnung, welche im Folgenden nicht diskutiert werden. Um zu verstehen, ob in der vorliegenden Geometrie Lineardichroismus gemessen werden kann, betrachten wir zunächst die Struktur von α -MnTe: Dieser Halbleiter gehört zur $6/mmm$ Punktgruppe, wodurch die Licht-Materie Wechselwirkung, welche quadratische magneto-optische Effekte verursacht, folgenden Beitrag zum thermodynamischen Potential Φ hat:

$$\Phi = \chi_{ijkl} E_i E_j L_k L_l \quad . \quad (5.4)$$

In Gleichung 5.4 beschreibt χ_{ijkl} einen polaren Tensor vierten Ranges mit den kartesischen Koordinaten i, j, k, l . $E_{i,j}$ beschreiben die Komponenten des elektrischen Feldes der Pumppulse und $L_{k,l}$ wiederum die Komponenten des Néelvektors. In den hier vorgestellten Experimenten ist der Probestrahl linear polarisiert, sodass er, in Bezug auf die Probengeometrie entlang der z-Achse propagiert und entlang der x-Achse polarisiert ist. Die Polarisation des Pumpstrahls ist ebenfalls linear, wodurch sich die Komponenten des elektrischen Feldes der Pumppulse in Gleichung 5.4 zu $E_x E_x$ ergeben. In Abbildung 5.1 ist eine schematische Darstellung der x-y-Ebene von hexagonalem α -MnTe dargestellt. In dieser Beschreibung befindet sich ein Manganatom in jeder Ecke des in grün eingefärbten Sechsecks. Wie bereits in Kapitel 3.1 beschrieben, liegen in der x-y-Ebene drei verschiedene Ausrichtungen der Untergittermagnetisierung vor: Eine mögliche Orientierung ist durch blaue Pfeile dargestellt. Diese weist Komponenten des Néelvektors entlang der x- und der y-Achse auf. Magnetischer Lineardichroismus ist ein Effekt zweiter Ordnung, weshalb der quadratische Anteil des Néelvektors betrachtet werden muss und sich aus Gleichung 5.4

$$\Phi = \chi_{iijj} E_i E_i L_j L_j \quad (5.5)$$

$$= \chi_{xxxx} E_x E_x L_x L_x + \chi_{xxyy} E_x E_x L_y L_y \quad (5.6)$$

ergibt. Die Komponenten von χ erfüllen die Symmetrieeigenschaften

$$\chi_{xxxx} = \frac{1}{3} \chi_{xxyy} \neq 0 \quad (5.7)$$

der $6/mmm$ Punktgruppe, wodurch gezeigt ist, dass Lineardichroismus auf Grund der hexagonalen Struktur der Probe erlaubt ist, da sowohl die x- als auch die

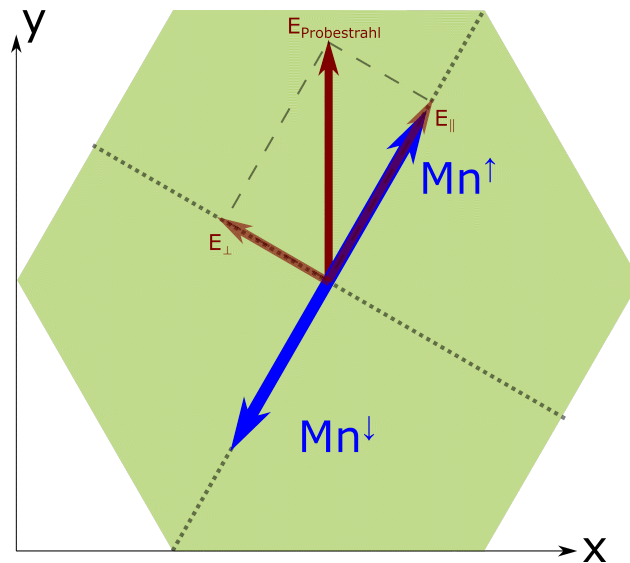


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der x-y-Ebene von α -MnTe (siehe Abbildung [3.1]). Die Orientierung der Untergittermagnetisierung ist für eine der drei möglichen antiferromagnetischen Domänen dargestellt. Ein mit der Probe wechselwirkendes, entlang der x-Achse polarisiertes und in z-Richtung propagierendes, elektrisches Feld, weist nicht-verschwundene Komponenten unterschiedlicher Stärke parallel und senkrecht zum Néelvektor auf. Entnommen aus [25]

y-Komponente von Null verschieden sind.

In Bezug auf die Orientierung des Néelvektors besitzt das elektrische Feld der Probe nicht-verschwundene Komponenten, welche parallel und senkrecht zum antiferromagnetischen Vektor in α -MnTe orientiert sind. Die Komponenten erfahren den dieser Orientierung entsprechenden Absorptionskoeffizienten, welcher sich aufgrund der magneto-kristallinen Anisotropie unterscheidet. Der Einfluss auf die Polarisierung des elektrischen Feldes äußert sich durch Lineardichroismus, welcher in diesem Falle magnetisch ist, da die Terme in Gleichung [5.3] spinabhängig sind. Der magnetische Lineardichroismus (MLD) rotiert somit die Polarisationsorientierung um einen Wert der quadratisch proportional zum Spin des Systems ist. Der Einfluss des MLD auf ein elektrisches Feld ist schematisch in Abbildung [5.2] dargestellt. Ein mit der Probe wechselwirkendes elektrisches Feld weist vor Interaktion mit der Probe Polarisationskomponenten E_{\parallel} und E_{\perp} auf. Diese werden aufgrund der Anisotropie des Absorptionskoeffizienten unterschiedlich stark beeinflusst, wodurch sich das Verhältniss E_{\parallel}/E_{\perp} ändert, welches in einer Rotation der Polarisation resultiert.

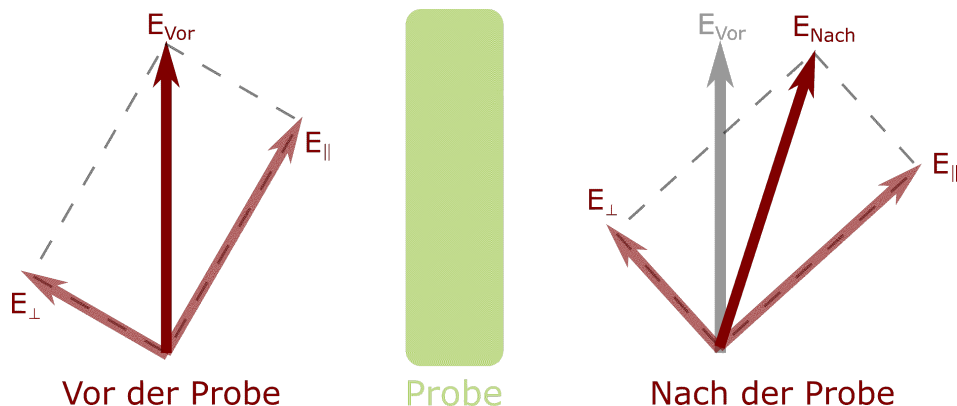


Abbildung 5.2: Polarisationsorientierung des einfallenden elektrischen Feldes der Probepulse (links) und Änderung des Polarisationszustandes durch magnetischen Lineardichroismus bei Interaktion mit der α -MnTe Probe (rechts). Entnommen aus [25]

5.3 Temperaturabhängige magneto-optische Messungen

Im folgenden Teil der Arbeit wird der in Kapitel [2.3] dargestellte Aufbau in der Transmissionsgeometrie, wie in Abschnitt [2.3.2] beschrieben, genutzt, um die ultraschnelle Spindynamik in hexagonalem α -MnTe zu untersuchen. Die Messmethode der balancierten Photodetektion bietet dabei die Möglichkeit, die transiente Transmission $\Delta T/T$ und die Rotation der Polarisation $\Delta\theta$ gleichzeitig zu messen und somit die Dynamik des optischen Systems mit der des Spinsystems in Verbindung zu bringen. Temperaturabhängige Messungen liefern Informationen über die Dynamik, die in den unterschiedlichen magnetischen Phasen von α -MnTe präsent ist. Sowohl das optische als auch das Spinsystem werden auf der ultraschnellen Zeitskala durch das optisch aktive E_{2g} -Phonon moduliert. Im Folgenden wird gezeigt, dass die der Anregung folgenden Relaxationsprozesse sich stark voneinander in ihrer Temperaturabhängigkeit unterscheiden. Durch einen Vergleich der Dynamik bei 77 K in der antiferromagnetischen Phase mit der nichtmagnetischen Phase bei $T = 320$ K wird in Abschnitt [5.3.2] der Einfluss der langreichweitigen Magnetischen Ordnung dargelegt.

5.3.1 Transiente Transmission

Die transiente Transmission $\Delta T/T$ ergibt sich aus der Summe $A + B$ der Signale der beiden Photodioden A und B des Photodetektors und gibt Aufschluss über

die Dynamik der Änderung des Absorptionskoeffizienten durch den die Probe anregenden Pumpstrahl. In Abbildung 5.3a ist die Dynamik von $\Delta T/T$ in einem Zeitfenster von -400 fs vor der zeitlichen Überlappung von Pump- und Probepulsen bis ~ 200 ps nach der Interaktion dargestellt. Die Schrittweite der Verzögerungsstrecke unterteilt sich in zwei Bereiche: Zunächst liegt bis 9 ps die Schrittweite bei 20 fs, um ultraschnelle Dynamik aufzulösen. Darüber hinaus beträgt die Schrittweite 2 ps, um Relaxationsprozesse auf längeren Zeitskalen zu untersuchen. Zur

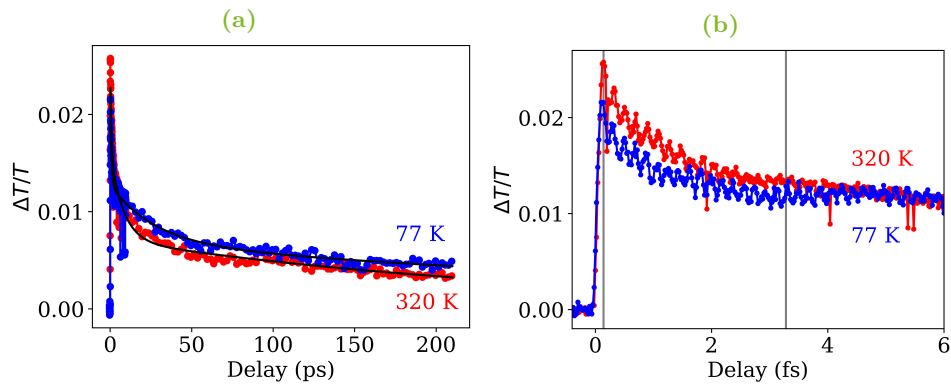


Abbildung 5.3: Links: Transiente Transmission als Funktion der Temperatur in α -MnTe in einem Zeitfenster von -400 fs vor der zeitlichen Überlappung von Pump- und Probepulsen bis ~ 200 ps. Der inkohärente Teil des Signals ist mit einer Summe aus Exponentialfunktionen gefittet. Rechts: Ausschnitt der Dynamik der ersten 6 ps. Oszillationen mit einer Frequenz von 5,3 THz sind bei beiden Temperaturen sichtbar. Entnommen aus [25]

Charakterisierung der Relaxationsprozesse wird das Signal mit einer Summe aus drei Exponentialfunktionen der Form

$$f(x) = \sum_{i=1}^3 C_i \exp\left(-\frac{x}{\tau_i}\right) \quad (5.8)$$

gefittet, wobei die C_i und τ_i den freien Fitparametern entsprechen. Die τ_i geben die charakteristische Zerfallskonstante des Relaxationsprozesses an. Auf einen zusätzlichen konstanten Offset y wird in Gleichung 5.8 unter der Annahme verzichtet, dass das System nach hinreichend langer Zeit in seinen Anfangszustand vor der Anregung relaxiert. Für den Fit wird die `curve_fit` Funktion des `scipy` Paketes der Programmiersprache `Python` genutzt, welche einen *non-linear least squares* Algorithmus verwendet, um die optimalen Fitparameter zur Beschreibung der gegebenen Datenpunkte zu bestimmen. Die Zerfallskonstanten sind in Tabelle 5.1 angegeben

und eine vollständige Beschreibung der Fitparameter befindet sich im Anhang in Tabelle [A.1](#).

Temperatur (K)	τ_1 (ps)	τ_2 (ps)	τ_3 (ps)
77	0.75 ± 0.06	27.1 ± 4.7	470.6 ± 134.0
320	0.75 ± 0.07	8.0 ± 0.5	266.6 ± 18.8

Tabelle 5.1: Zerfallskonstanten der Relaxationsprozesse der transienten Transmission von α -MnTe in der paramagnetischen (320 K) und der antiferromagnetischen Phase (77 K).

Die drei verschiedenen Zerfallskonstanten τ_i weisen unterschiedliche Größenordnungen auf und werden somit unterschiedlichen Relaxationskanälen zugeordnet. Der schnellste Relaxationsprozess τ_1 spielt sich auf einer Zeitskala unterhalb von 1 ps ab und ist temperaturunabhängig. Da die Photonenenergie der Pumppulse mit 2,4 eV überhalb der Bandlücke von $E_g = 1,4$ eV liegt, weisen Elektronen, die vom Valenz- in das Leitungsband gehoben werden, zusätzliche Energie auf. Diese Energie der Ladungsträger wird über Elektron-Phonon Streuung abgegeben und die Zeitskala durch τ_1 beschrieben [\[25\]](#). Die längste Zerfallsdauer τ_3 wird Wärmediffusionsprozessen zugeschrieben und kann in dem Zeitfenster bis 200 ps nicht vollständig beschrieben werden daher werden sie im Folgendem nicht weiter betrachtet. Dadurch erklärt sich der große Fehler der τ_3 . Die Zeitkonstante τ_2 erhöht sich um einen Faktor ~ 3 , wenn die Probe von der para- in die antiferromagnetische Phase übergeht. Dies entspricht quantitativ der in der Literatur bestimmten Änderung der thermischen Leitfähigkeit des Gitters von 2 WK/m bei 300 K auf 7,5 WK/m bei 100 K [\[15\]](#). *Density functional theory* (DFT) Simulationen von Tong et al. zeigen, dass die phononische Wärmeleitfähigkeit sowohl von Phonon-Phonon als auch von Phonon-Elektron-Streuprozessen beeinflusst wird [\[46\]](#). Daher wird τ_2 die Phonon-Phonon-Streuung als zugrunde liegendem Prozess zugeordnet [\[25\]](#).

Die initiale Phase der Oszillationen in [Abbildung 5.3b](#) kann durch einen Kosinusterm beschrieben werden, was darauf schließen lässt, dass der Anregungsprozess durch einen Dispositionsmechanismus (engl: *displacive mechanism*) angetrieben wird. Bei dieser Art der Anregung wird, durch das Anheben des Elektrons in einen unbesetzten Zustand, das ionische Potential der Atome verändert. Der Gleichgewichtszustand des neuen ionischen Potentials unterscheidet sich von dem vorherigen, sodass die Ionen sich zu dem neuem Minimum bewegen. Die Frequenz der Bewegung wird dabei durch die Dispersionsrelation des angeregten Phonons bestimmt [\[47\]](#). In den

in Kapitel 4 und 5 gezeigten Messungen liegt die Photonenergie des Pumpstrahls überhalb der Bandlücke, wodurch Elektronen aus dem Leitungs- in das Valenzband gehoben werden und den Dispositionsmechanismus antreiben [25]. Bei genauer Betrachtung der Oszillationen in Abbildung 5.3b fällt auf, dass die Schwingungen in der para- und antiferromagnetischen Phase kurz nach der Anregung in Phase sind. Zu einem späteren Zeitpunkt, in Bezug auf das Zero-Delay, unterscheiden sich die Phasen der Zeitspuren bei $t = 3$ ps. Dies deutet auf eine unterschiedliche Eigenfrequenz des E_{2g} -Phonons in para- und antiferromagnetischer Phase hin. Zur Überprüfung dieser Vermutung wird eine Fourieranalyse der zeitaufgelösten transienten Transmissionssignale durchgeführt. Dazu wird zunächst der inkohärente Hintergrund, welcher durch die Exponentialfunktionen beschrieben wird, von den Messdaten subtrahiert. Das resultierende Signal, in Abbildung 5.4a dargestellt, zeigt die isolierten Oszillationen. Die Fourieranalyse wird in diesem Fall mit einem selbst-

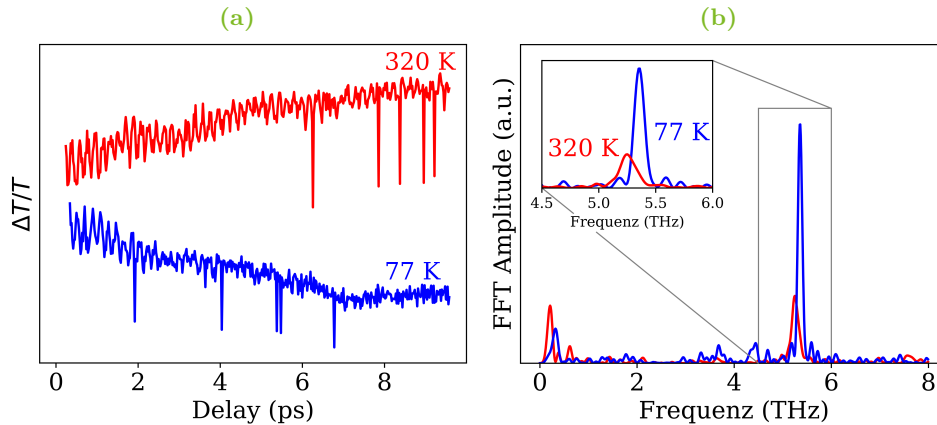


Abbildung 5.4: Links: Um den inkohärenten Hintergrund bereinigte Zeitspuren der transienten Transmission. Rechts: Fourier-Transformation der Signale aus Abbildung 5.4a. Eine Resonanz bei $\sim 5,3$ THz ist deutlich erkennbar. Der eingebettete Plot zeigt die Temperaturabhängigkeit der Amplitude, der Frequenz und der Halbwertsbreite des E_{2g} -Phonons.

geschriebenen *Python*-Algorithmus durchgeführt, welcher die Möglichkeit bietet eine beliebige Schrittweite im Frequenzraum zu wählen. Dadurch erhöht sich einerseits die Auflösung andererseits ergeben sich aber auch Artefakte, wie falsche Resonanzen. Die Fouriertransformation des zeitaufgelösten Signals aus Abbildung 5.4a ist in Abbildung 5.4b dargestellt. Es ist deutlich die aus Kapitel 4 bekannte Oszillation mit einer Frequenz von 5,3 THz erkennbar, welche durch das optisch aktive E_{2g} -Phonon ausgelöst wird. Eine Vergrößerung der Region um die 5,3 THz Oszillation ist in dem in Abbildung 5.4b eingebetteten Plot dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass

die von dem E_{2g} -Phonon induzierten Oszillationen temperaturabhängig sind. Beim Übergang der Probe von der paramagnetischen in die antiferromagnetische Phase erhöht sich die Oszillationsfrequenz von $\nu_{para} = 5,27$ THz auf $\nu_{AFM} = 5,35$ THz und die Halbwertsbreite reduziert sich um 60 GHz auf $\Delta\nu_{AFM} = 0,11$ THz. Die Temperaturabhängigkeit phononischer Schwingungsmoden in Festkörpern ist kein unbekannter Effekt: Zhang et al, haben Ramanspektroskopie als Funktion der Temperatur an hexagonalem α -MnTe-Proben durchgeführt und gezeigt, dass sich bei einer Vielzahl phononischer Moden bei Reduktion der Proben temperatur die Frequenz erhöht und die Halbwertsbreite reduziert. In derselben Veröffentlichung zeigen sie jedoch auch, dass das E_{2g} -Phonon von diesem Verhalten in der antiferromagnetischen Phase abweicht. Im Vergleich zu den anderen Moden ist die Erhöhung der Frequenz ausgeprägter und die Halbwertsbreite zeigt eine Diskontinuität beim Übergang in die antiferromagnetische Phase. Dieses Verhalten der Temperaturabhängigkeit des E_{2g} -Phonons lässt auf eine Spin-Phonon-Kopplung schließen, welche zu $\lambda = -0,16$ 1/cm² bestimmt wird. Diese ist in α -MnTe, im Vergleich zu anderen Materialien wie NiO oder NaOsO₃, relativ schwach ausgeprägt [44].

Somit konnte durch Messung der transienten Transmission gezeigt werden, dass in α -MnTe optisch aktive Phononen über einen Dispositionsmechanismus kohärent angeregt werden. Ein Vergleich der Eigenfrequenzen der E_{2g} -Phononen in der magnetisch geordneten und ungeordneten Phase offenbart eine Spin-Phonon-Kopplung. Die im nächsten Teil der Arbeit vorgestellten Daten zeigen Messungen der Rotation der Polarisation, welche Aufschluss über Spindynamik in α -MnTe gibt.

5.3.2 Rotation der Polarisation

Mittels der balancierten Detektion ist eine Messung der Rotation der Polarisation $\Delta\theta$ des Probestrahls möglich. Dazu wird die Differenz $A - B$ der Diodensignale A und B gebildet und gemäß Formel [2.12] von einer Spannung in Grad umgerechnet. Der optische Aufbau ermöglicht es die Rotation der Polarisation $\Delta\theta$ in denselben experimentellen Bedingungen wie die transiente Transmission $\Delta T/T$ zu messen, wodurch ein direkter Vergleich der so gewonnenen Datensätze möglich ist. In Abbildung [5.3a] ist die Rotation der Polarisation $\Delta\theta$ in einem Zeitfenster bis 200 ps in der paramagnetischen (320 K) und in der antiferromagnetischen (77 K) Phase von hexagonalem α -MnTe dargestellt. Im Vergleich zur transienten Transmission unterscheidet sich $\Delta\theta$ in den beiden Phasen, deutlich voneinander: In der ungeordneten Phase liegt die maximale Rotation der Polarisation bei ~ 10 mdeg wohingegen die größte Auslenkung aus dem Gleichgewichtszustand in der antiferromagnetischen Phase bei 35 mdeg liegt. In der Messung von $\Delta T/T$ ist ein solcher Unterschied der Signalamplituden nicht erkennbar. Wie in Kapitel [5.2] gezeigt, erlaubt die Symmetrie von hexagonalem α -MnTe quadratische magneto-optische Effekte, wie zum

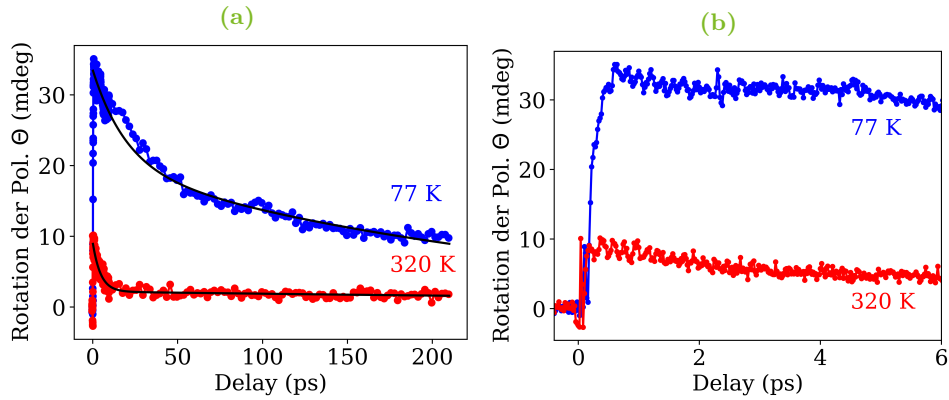


Abbildung 5.5: Links: Rotation der Polarisation als Funktion der Temperatur in α -MnTe. Zwischen para- und antiferromagnetischer Phase ist ein deutlicher Unterschied in der Stärke der Rotation der Polarisation sichtbar. Der inkohärente Teil des Signals ist mit einer Summe aus Exponentialfunktionen gefittet. Rechts: Oszillationen mit einer Frequenz von 5,3 THz sind bei beiden Temperaturen sichtbar.

Beispiel magnetischen Lineardichroismus, welcher sich durch eine Rotation der Polarisationsrichtung der Probepulse äußert. Die Rotation ist proportional zum antiferromagnetischen Ordnungsparameter $L\Delta L$, was longitudinalen und transversalen Schwingungsmoden des Néelvektors entspricht [21, 48, 49]. Somit wird der zusätzliche Beitrag zu Θ in der AFM-Phase dem vorliegenden Antiferromagnetismus zugeschrieben. Eine Analyse des gesamten inkohärenten Anteils wird wie schon bei $\Delta T/T$ durch einen Fit mit einer Summe aus abfallenden Exponentialfunktionen durchgeführt. Da eine Relaxation auf der sub-Pikosekunderskala, in den Daten aus Abbildung 5.5a nicht ersichtlich ist, welche Elektron-Phonon Streuung beschreibt, ist eine Summe bestehend aus zwei Exponentialfunktionen gemäß Gleichung 5.8 ausreichend. Die sich durch den Fit ergebenden Zerfallskonstanten sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst. Eine komplette Beschreibung der Fitparameter befindet sich im Anhang in Tabelle A.2. Das Beobachtungsfenster ist - wie schon bei Messung der transienten Transmission - nicht ausreichend groß, um Relaxationsdynamik auf einer Zeitskala von mehreren hundert Pikosekunden bis Nanosekunden zu beobachten. Dies erklärt die großen Fehler der Werte für τ_5 , welche nicht weiter diskutiert werden. τ_4 erhöht sich bei einem Übergang in die magnetisch geordnete Phase von $(4,6 \pm 0,2)$ ps auf $(19,6 \pm 1,1)$ ps. Eine physikalische Interpretation dieser Relaxationskonstanten wird im folgenden Unterkapitel unter Berücksichtigung eines neuen theoretischen Modells diskutiert.

Temperatur (K)	τ_4 (ps)	τ_5 (ps)
77	19.6 ± 1.1	261.1 ± 15.2
320	4.6 ± 0.2	665.6 ± 234.8

Tabelle 5.2: Zerfallskonstanten der Relaxationsprozesse der Rotation der Polarisation von α -MnTe in der paramagnetischen (320 K) und der antiferromagnetischen Phase (77 K).

Zu Beginn des Kapitels (siehe Abschnitt 5.2) wurde gezeigt, dass über die Messung der Rotation der Polarisation Rückschlüsse auf das Spinsystem mittels magnetischem Lineardichroismus gezogen werden können. Eine genauere Betrachtung der zeitlichen Entwicklung in den ersten 6 ps der Rotation der Polarisation nach der Anregung (dargestellt in 5.5b) offenbart, dass Oszillationen mit einer Frequenz von 5,3 THz, induziert durch das E_{2g} -Phonon, sowohl oberhalb als auch unterhalb der Néeltemperatur sichtbar sind. Eine Zuordnung der 5,3 THz Oszillationen als rein magnetischer Effekt in $\Delta\theta$ ist nicht zulässig, da die ultraschnellen Oszillationen sowohl oberhalb der Néeltemperatur als auch in der transienten Transmission sichtbar sind. Daher ist ein nicht magnetischer kohärenter Beitrag zur Rotation der Polarisation nicht auszuschließen.

Analog zur Analyse des Signals der transienten Transmission wird der inkohärente Anteil subtrahiert (siehe Abbildung 5.6a) und anschließend mit einer selbstgeschriebenen Fouriertransformationsroutine in den Frequenzraum transformiert (siehe Abbildung 5.6b). Das temperaturabhängige Verhalten der 5,3 THz Oszillationen aus der Messung von $\Delta T/T$ ist ebenfalls in der Rotation der Polarisation präsent: Die Frequenz erhöht sich um 160 GHz auf 5,36 THz und die Halbwertsbreite $\Delta\nu$ reduziert sich von 130 GHz auf 100 GHz. Im folgenden Unterkapitel wird ein neues Modell zur Beschreibung phononischer Erzeugung von Spinwellen präsentiert, welches bei einer physikalischen Interpretation der Zerfallszeiten hilft.

5.3.3 Modell zur phononischen Erzeugung von Magnonen

Ein Modell zur Beschreibung phonon-getriebener Dynamik in hexagonalem α -MnTe basierend auf einem Gleichgewichts-Hamiltonian der Form

$$H = \sum_{\langle i,j \rangle_z} J_1 \vec{S}_i \vec{S}_j + \sum_{\langle i,j \rangle_{xy}} J_2 \vec{S}_i \vec{S}_j + \sum_{\langle\langle i,j \rangle\rangle} J_3 \vec{S}_i \vec{S}_j \quad (5.9)$$

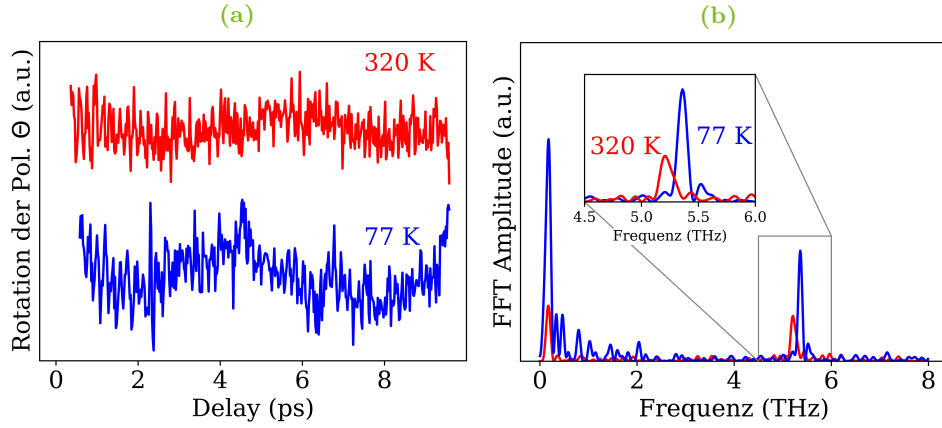


Abbildung 5.6: Links: Um den inkohärenten Hintergrund bereinigte Zeitspuren der Rotation der Polarisation. Rechts: Fourier-Transformation der Signale aus Abbildung 5.4a. Eine Resonanz bei $\sim 5,3$ THz ist deutlich erkennbar. Der eingebettete Plot zeigt die Temperaturabhängigkeit der Amplitude, Frequenz und Halbwertsbreite des E_{2g} -Phonons.

wird zu Beschreibung der hier vorliegenden Anregung herangezogen. Eine ausführliche Erläuterung des Modells und eine detaillierte Beschreibung der darauf basierenden Simulationen ist in [16] zu finden. In Gleichung 5.9 wird die Wechselwirkung der Spins S_i und S_j durch die Heisenbergkopplungskonstanten J_i beschrieben, wobei J_1 der Kopplung nächster Nachbarn entlang der z -Achse entspricht, J_2 der Kopplung zwischen nächsten Nachbarn in der xy -Ebene und J_3 die Kopplungsstärke zwischen drittnächsten Nachbarn beschreibt. Im Bild der Einheitszelle entspricht J_3 der Kopplung zweier Mn-Atome, vermittelt durch ein Telluratom, welche maßgeblich durch den Winkel zwischen Mn- und Te-Atom bestimmt werden [21]. In Kapitel 4.3 wurde bereits gezeigt, dass durch eine Anregung des zweifach entarteten E_{2g} -Phonons die Te-Atome in der Einheitszelle in Schwingung versetzt werden, was wiederum in einer Änderung des Winkels einer Mn-Te-Mn-Verbindung und somit einer Änderung von J_3 entspricht. Dementsprechend wird eine durch den Pumpstrahl induzierte Anregung des E_{2g} -Phonons als zeitabhängige Änderung der Austauschwechselwirkung

$$\frac{\delta J_3(t)}{J_1 S} = a(t) = a_0 \exp(-\gamma t) \cos(\omega_0 t) \quad (5.10)$$

betrachtet und Gleichung 5.9 hinzugefügt. Hier beschreibt a_0 die maximale Amplitude der Änderung von J_3 , ω_0 , die Frequenz der Phononmode und γ deren Dämpfung.

Unter Verwendung der Heisenberg'schen Bewegungsgleichung,

$$\frac{d\hat{A}}{dt} = i\langle[H(t), \hat{A}]\rangle \quad , \quad (5.11)$$

bei der \hat{A} einen allgemeinen Operator beschreibt, wird die zeitliche Entwicklung der Untergittermagnetisierung δL bestimmt:

$$\delta L = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} \left(\frac{A_{\vec{k}}}{\omega_{\vec{k}}} \langle b_{\vec{k}}^\dagger b_{\vec{k}} \rangle - \frac{B_{\vec{k}}}{\omega_{\vec{k}}} \text{Re} \langle b_{\vec{k}}^\dagger b_{-\vec{k}} \rangle \right) \quad . \quad (5.12)$$

In Gleichung 5.12 beschreibt $\omega_{\vec{k}}$ die Frequenz der durch die Operatoren $b_{\vec{k}}^\dagger$ erzeugten oder durch $b_{\vec{k}}$ vernichteten Magnonen in den beiden Untergittern A und B . Ein Ergebnis der Simulationen ist die Vorhersage, dass die Halbwertszeit des E_{2g} -Phonons die Zeitskala der Untergitterdemagnetisierung beschreibt, welche in α -MnTe durch magnetischen Lineardichroismus gemessen werden kann. Aus der Halbwertsbreite $\Delta\nu$ der, im vorherigem Unterkapitel gemessenen, Oszillationen lässt sich über

$$t_{1/2} = \frac{1}{\Delta\nu} = 10 \text{ ps} \quad (5.13)$$

die Halbwertszeit $t_{1/2}$ berechnen. Da τ_4 und die Halbwertszeit $t_{1/2}$ der 5,3 THz Mode in derselben Größenordnung liegen, wird τ_4 mit der Untergitterdemagnetisierung assoziiert 16, 21.

Zusammenfassung

Zur Untersuchung der Wechselwirkung zwischen elektronischem und magnetischem System in α -MnTe wurde mittels der Pump-Probe Technik mit einem monochromatischem Probestrahl die Dynamik der Rotation der Polarisation gemessen. Dazu wurde die Bandlücke der Probe zunächst gemäß der in Kapitel 4 gefundenen Parameter kohärent moduliert. Die Rotation der Polarisation offenbart in der antiferromagnetischen Phase kohärente und nichtkohärente Anteile. Sowohl ober- als auch unterhalb der kritischen Néeltemperatur zeigt die Rotation der Polarisation eine kohärente Modulation mit einer Frequenz von 5,3 THz, welche wiederum dem optisch aktiven E_{2g} -Phonon zuzuordnen ist. Da sich die maximale Rotation der Polarisation in der antiferromagnetischen Phase deutlich von der in der paramagnetischen Phase unterscheidet, kann dieser inkohärente Anteil des Signals eindeutig dem magnetischen System der Probe zugeschrieben werden. Somit konnte, aufbauend auf der in Kapitel 4 gezeigten Kopplung der E_{2g} -Phonon an die Ladungsträger, gezeigt werden, dass diese optisch aktiven Phononen ebenfalls dynamisch an das Spinsystem koppeln.

6 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die, auf dem Konzept der Integration des Elektronspins in bereits existierende Elektronik genannte Spintronik, gilt als nächster Schritt der Datenverarbeitung bezogen auf Geschwindigkeitserhöhung und Reduktion des Energieverbrauchs. Technische Schlüsselfragen wie effektive Spinkontrolle, -injektion und -detektion wurden bereits in paramagnetischen und ferromagnetischen Materialien gezeigt. Antiferromagnetische Materialien weisen Eigenschaften auf, die von essentiellen Vorteilen für ihre Verwendung in spintronischen Anwendungen sind, wie die intrinsische Eigenschaft, keine magnetischen Streufelder zu erzeugen oder der höheren Magnonfrequenzen im Bereich von einigen THz. Um Spintronikelementen den Einzug in unsere alltägliche Elektronik zu ermöglichen, müssen jedoch noch einige fundamentale Fragen geklärt werden. Eine betrifft die Integrabilität der neuen spinbasierten Bauteile in bereits existierende elektronische Technologie.

In dieser Arbeit wird die Kopplung zwischen Spin- und Elektronensystem in dem antiferromagnetischen Halbleiter α -MnTe mit ultrakurzen optischen Pulsen untersucht. Thematisch gliedert sich diese Aufgabe in zwei Bereiche: den Aufbau eines optischen Experiments für zeitaufgelöste magneto-optische Messungen an der Technischen Universität Dortmund und die Untersuchung einer Kopplung zwischen elektronischem und magnetischem Freiheitsgrad auf der ultraschnellen Zeitskala in dem antiferromagnetischen Halbleiter α -MnTe.

Ein optischer Aufbau zur Messung zeitaufgelöster magneto-optischer und optischer Effekte wurde an der TU Dortmund entwickelt. Das Setup zeichnet sich durch eine Vielzahl freier Parameter aus, die es erlauben, ein breites Spektrum an Proben mit unterschiedlichen Eigenschaften (Halbleitern, Isolatoren, Dünnschichtproben, Flakes) mit höchster Präzision zu vermessen: Zwei unabhängig voneinander steuerbare OPAs erzeugen Wellenlängen für den Pump- und den Probestrahl in einem großen spektralen Bereich (350 nm - 2000 nm). Die Probe wird in einem Durchflusskryostaten platziert, welcher Probertemperaturen von 4 K bis 420 K und das Anlegen eines DC-elektrischen Feldes bis 1 kV erlaubt. Homogene Magnetfelder bis zu einer Stärke von ± 9 T können durch einen supraleitenden Magneten an der Position der Probe erzeugt werden. Zusätzlich kann durch eine Erweiterung des Probestrahls ein breitbandiger Supercontinuumimpuls generiert werden.

Statische Messungen des Absorptionsverhaltens an einer 200 nm dicken hexagonalen MnTe-Probe als Funktion der Temperatur zeigen, dass die Energie der Bandlücke in der magnetischen Phase einen zusätzlichen Energiebeitrag enthält, welcher sich

proportional zur Untergittermagnetisierung verhält. Aufgrund dieser intrinsischen Wechselwirkung zwischen elektronischem und magnetischen System wurden zeit-aufgelöste Messungen durchgeführt, in denen zuerst der eine Parameter angeregt und die Antwort des jeweils anderen untersucht wird. Messungen der transienten Reflektivität mit einem breitbandigem Supercontinuum Probepulse zeigen, dass die Bandlücke in α -MnTe mit einer Frequenz von 5,3 THz kohärent moduliert ist. Die Modulationsfrequenz entspricht einer Anregung des optisch aktiven zweifach entarteten E_{2g} -Phonons. Um die Wechselwirkung zwischen Spins und Bandlücke zu untersuchen, wurde letztere angeregt und die Rotation der Polarisation sowie die transiente Transmission in α -MnTe gemessen. Aufgrund der Geometrie der Probe und des experimentellen Aufbaus kann magnetischer Lineardichoisimus durch eine Messung der Rotation der Polarisation gemessen und das Spinsystem untersucht werden. Die transiente Transmission hingegen gibt eine Antwort des optischen Systems. Zeitaufgelöste Messungen zeigen, dass sowohl die Rotation der Polarisation als auch die transiente Transmission auf der ultraschnellen Zeitskala mit der Frequenz des E_{2g} -Phonons kohärent moduliert sind. Die Rotation der Polarisation zeigt in der antiferromagnetischen Phase einen inkohärenten Beitrag, welcher eindeutig auf den vorliegenden Magnetismus zurückzuführen ist. Die Zerfallszeit dieses Beitrags wird der Demagnetisierung der Untergitter zugeschrieben.

In dieser Arbeit konnte der fundamentalen Frage einer Kopplung auf der ultraschnellen Zeitskala zwischen dem Spin und Elektronensystem eine Antwort gegeben werden. In α -MnTe sind sowohl die Bandlücke als auch die Rotation der Polarisation auf der ultraschnellen Zeitskala kohärent moduliert. Diese Modulation wird durch das optisch aktive E_{2g} -Phonon vermittelt, wodurch eine dynamische Kopplung zwischen Spins und Elektronen im THz-Bereich vorliegt. Dieses Ergebnis ist von essentieller Bedeutung für die Implementation neuartiger Spintronikbauteile in bereits existierende Elektronik, da sowohl Spins als auch Ladungsträger in α -MnTe auf der Femtosekundenzeitskala angesprochen werden können. Eine Möglichkeit zur Nutzung dieses Effektes stellt dabei die resonante Anregung der korrekten Phononmode dar.

A Anhang

Temperatur (K)	C_1	τ_1 (ps)	C_2
77	0.0087 ± 0.0005	0.75 ± 0.06	0.0059 ± 0.0006
320	0.0090 ± 0.0005	0.75 ± 0.07	0.0090 ± 0.0003

Temperatur (K)	τ_2 (ps)	C_3	τ_3 (ps)
77	27.1 ± 4.7	0.0068 ± 0.0006	470.6 ± 134.0
320	8.0 ± 0.5	0.0071 ± 0.0002	266.6 ± 18.8

Tabelle A.1: Fitparameter des inkohärenten Hintergrunds der transienten Transmission aus Kapitel [5.3.1](#) mit einer Summe aus drei exponential Funktionen.

Temperatur (K)	C_1	τ_1 (ps)	C_2	τ_2 (ps)
77	13.6 ± 0.6	19.6 ± 1.1	20.0 ± 0.6	261.1 ± 15.2
320	7.0 ± 0.1	4.6 ± 0.2	2.2 ± 0.1	665.6 ± 234.8

Tabelle A.2: Fitparameter des inkohärenten Hintergrunds der Rotation der Polarisation aus Kapitel [5.3.2](#) mit einer Summe aus zwei exponential Funktionen.

Literatur

- [1] J. Bardeen und W. H. Brattain. „The Transistor, A Semi-Conductor Triode“. en. In: *Physical Review* 74.2 (Juli 1948), S. 230–231. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.74.230](https://doi.org/10.1103/PhysRev.74.230). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.74.230> (besucht am 19.11.2021).
- [2] Reinhold Paul. *Feldeffekttransistoren*. Stuttgart: Verl. Berliner Union, 1972. ISBN: 3-408-53050-5.
- [3] Gordon E Moore. „Cramming more components onto integrated circuits“. en. In: 38.8 (1965), S. 6.
- [4] M. Mitchell Waldrop. „More than Moore“. In: 530 (Feb. 2016), S. 145–147.
- [5] *Der Nobelpreis für Physik*. 2007. URL: www.kva.se.
- [6] S. A. Wolf et al. „Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future“. en. In: *Science* 294.5546 (Nov. 2001), S. 1488–1495. ISSN: 0036-8075, 1095-9203. DOI: [10.1126/science.1065389](https://doi.org/10.1126/science.1065389). URL: <https://www.science.org/doi/10.1126/science.1065389> (besucht am 19.11.2021).
- [7] A. V. Kimel et al. „Laser-induced ultrafast spin reorientation in the antiferromagnet TmFeO₃“. en. In: *Nature* 429.6994 (Juni 2004), S. 850–853. ISSN: 0028-0836, 1476-4687. DOI: [10.1038/nature02659](https://doi.org/10.1038/nature02659). URL: <http://www.nature.com/articles/nature02659> (besucht am 18.10.2021).
- [8] C. Kittel. „Theory of Antiferromagnetic Resonance“. en. In: *Physical Review* 82.4 (Mai 1951), S. 565–565. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.82.565](https://doi.org/10.1103/PhysRev.82.565). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.82.565> (besucht am 18.10.2021).
- [9] Rudolf Gross und Achim Marx. *Festkörperphysik*. de. München: Oldenbourg, 2012. ISBN: 978-3-486-71294-0.
- [10] J. M. D. Coey und Stuart S.P. Parkin, Hrsg. *Handbook of Magnetism and Magnetic Materials*. en. Cham: Springer International Publishing, 2021. ISBN: 978-3-030-63208-3 978-3-030-63210-6. DOI: [10.1007/978-3-030-63210-6](https://doi.org/10.1007/978-3-030-63210-6). URL: <https://link.springer.com/10.1007/978-3-030-63210-6> (besucht am 05.02.2022).

- [11] F. Bloch und G. Gentile. „Zur Anisotropie der Magnetisierung ferromagnetischer Einkristalle“. de. In: *Zeitschrift für Physik* 70.5-6 (Mai 1931), S. 395–408. ISSN: 1434-6001, 1434-601X. DOI: [10.1007/BF01339586](https://doi.org/10.1007/BF01339586). URL: <http://link.springer.com/10.1007/BF01339586> (besucht am 22.03.2022).
- [12] Sergio M. Rezende. *Fundamentals of Magnonics*. en. Bd. 969. Lecture Notes in Physics. Cham: Springer International Publishing, 2020. ISBN: 978-3-030-41316-3 978-3-030-41317-0. DOI: [10.1007/978-3-030-41317-0](https://doi.org/10.1007/978-3-030-41317-0). URL: <http://link.springer.com/10.1007/978-3-030-41317-0> (besucht am 21.12.2021).
- [13] Davide Bossini. *Femtosecond optical excitation of spins in antiferromagnetic fluorides: an opto-magnetic journey from the center to the edges of the Brillouin zone*. en. OCLC: 906784578. 2015. ISBN: 978-94-6259-601-6. URL: <http://hdl.handle.net/2066/139478> (besucht am 30.09.2021).
- [14] W. Szuszkiewicz et al. „Spin-wave measurements on hexagonal MnTe of NiAs-type structure by inelastic neutron scattering“. en. In: *Physical Review B* 73.10 (März 2006), S. 104403. ISSN: 1098-0121, 1550-235X. DOI: [10.1103/PhysRevB.73.104403](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.73.104403). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.73.104403> (besucht am 03.04.2020).
- [15] Sai Mu et al. „Phonons, magnons, and lattice thermal transport in antiferromagnetic semiconductor MnTe“. en. In: *Physical Review Materials* 3.2 (Feb. 2019), S. 025403. ISSN: 2475-9953. DOI: [10.1103/PhysRevMaterials.3.025403](https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.3.025403). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevMaterials.3.025403> (besucht am 31.07.2019).
- [16] Kira Deltenre et al. „Lattice-driven femtosecond magnon dynamics in α -MnTe“. en. In: *arXiv:2108.07079 [cond-mat]* (Aug. 2021). arXiv: 2108.07079. URL: <http://arxiv.org/abs/2108.07079> (besucht am 09.11.2021).
- [17] Ch. Ferrer-Roca et al. „Temperature and pressure dependence of the optical absorption in hexagonal MnTe“. en. In: *Physical Review B* 61.20 (Mai 2000), S. 13679–13686. ISSN: 0163-1829, 1095-3795. DOI: [10.1103/PhysRevB.61.13679](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.13679). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.61.13679> (besucht am 17.07.2019).
- [18] D. Kriegner et al. „Multiple-stable anisotropic magnetoresistance memory in antiferromagnetic MnTe“. en. In: *Nature Communications* 7.1 (Sep. 2016), S. 11623. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/ncomms11623](https://doi.org/10.1038/ncomms11623). URL: <http://www.nature.com/articles/ncomms11623> (besucht am 16.09.2020).
- [19] Inc 2020 Agilent Technologies. *Cary-4000-5000-6000i-UV-Vis-NIR Brochure*. Mai 2020. (Besucht am 26.10.2021).

- [20] D Bossini et al. „Exchange-mediated magnetic blue-shift of the band-gap energy in the antiferromagnetic semiconductor MnTe“. en. In: *New Journal of Physics* 22.8 (Aug. 2020), S. 083029. ISSN: 1367-2630. DOI: [10.1088/1367-2630/aba0e7](https://doi.org/10.1088/1367-2630/aba0e7). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/aba0e7> (besucht am 09.09.2020).
- [21] D. Bossini et al. „Ultrafast Amplification and Nonlinear Magnetoelastic Coupling of Coherent Magnon Modes in an Antiferromagnet“. en. In: *Physical Review Letters* 127.7 (Aug. 2021), S. 077202. ISSN: 0031-9007, 1079-7114. DOI: [10.1103/PhysRevLett.127.077202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.127.077202). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.127.077202> (besucht am 26.10.2021).
- [22] Fabian Mertens. „Optical and magneto-optical investigation of magneto-electrical Cr₂O₃“. Diss. TU Dortmund, Okt. 2018.
- [23] Cristian Manzoni, Dario Polli und Giulio Cerullo. „Two-color pump-probe system broadly tunable over the visible and the near infrared with sub-30fs temporal resolution“. en. In: *Review of Scientific Instruments* 77.2 (Feb. 2006), S. 023103. ISSN: 0034-6748, 1089-7623. DOI: [10.1063/1.2167128](https://doi.org/10.1063/1.2167128). URL: <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.2167128> (besucht am 14.09.2021).
- [24] Cristian Manzoni und G. Cerullo. „Design criteria for ultrafast optical parametric amplifiers“. In: *Journal of Optics* 18 (Okt. 2016). DOI: [10.1088/2040-8978/18/10/103501](https://doi.org/10.1088/2040-8978/18/10/103501).
- [25] D. Bossini et al. „Femtosecond phononic coupling to both spins and charges in a room temperature antiferromagnetic semiconductor“. en. In: *arXiv:2110.15173 [physics]* (Okt. 2021). arXiv: 2110.15173. URL: <http://arxiv.org/abs/2110.15173> (besucht am 08.12.2021).
- [26] Hermann Hinsch. *Elektronik*. 1. Aufl. Springer Berlin, Sep. 1996. ISBN: 978-3-540-61360-2.
- [27] Stanford Research System. *Model SR830 DSP Lock-In Amplifier*. 2011.
- [28] *Home - AG Cinchetti*. en. URL: <https://e6.physik.tu-dortmund.de/> (besucht am 26.10.2021).
- [29] F Mertens et al. „Wide spectral range ultrafast pump-probe magneto-optical spectrometer at low temperature, high-magnetic and electric fields“. en. In: *Rev. Sci. Instrum.* (2020), S. 9.
- [30] Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel und Theo Rasing. „Ultrafast optical manipulation of magnetic order“. In: *Reviews of Modern Physics* 82.3 (Sep. 2010), S. 2731–2784. DOI: [10.1103/RevModPhys.82.2731](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.82.2731). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.82.2731> (besucht am 09.08.2019).

- [31] D. Bossini et al. „Macrospin dynamics in antiferromagnets triggered by sub-20 femtosecond injection of nanomagnons“. en. In: *Nature Communications* 7 (Feb. 2016), S. 10645. ISSN: 2041-1723. DOI: [10.1038/ncomms10645](https://doi.org/10.1038/ncomms10645). URL: <https://www.nature.com/articles/ncomms10645> (besucht am 21.08.2019).
- [32] Rajdeep Adhikari et al. „Positive Magnetoresistance and Chiral Anomaly in Exfoliated Type-II Weyl Semimetal Td-WTe₂“. en. In: *Nanomaterials* 11.10 (Okt. 2021), S. 2755. ISSN: 2079-4991. DOI: [10.3390/nano11102755](https://doi.org/10.3390/nano11102755). URL: <https://www.mdpi.com/2079-4991/11/10/2755> (besucht am 24.10.2021).
- [33] Xuanting Zhu et al. „Photoluminescence spectra of the Mn²⁺ d-d multiplets transitions of zinc-blende MnTe epitaxial films: laser and deuterium lamp excitation study“. en. In: *Optics Letters* 43.22 (Nov. 2018), S. 5547–5550. ISSN: 0146-9592, 1539-4794. DOI: [10.1364/OL.43.005547](https://doi.org/10.1364/OL.43.005547). URL: <https://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=ol-43-22-5547> (besucht am 02.04.2020).
- [34] D. Kriegner et al. „Magnetic anisotropy in antiferromagnetic hexagonal MnTe“. In: *Physical Review B* 96.21 (Dez. 2017), S. 214418. DOI: [10.1103/PhysRevB.96.214418](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.214418). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.96.214418> (besucht am 12.08.2019).
- [35] Sohrab R. Mobasser und Timothy R. Hart. „Raman Scattering From Phonons And Magnons In Magnetic Semiconductor, MnTe“. In: *Spectroscopic Characterization Techniques for Semiconductor Technology II*. Bd. 0524. International Society for Optics and Photonics, Juni 1985, S. 137–144. DOI: [10.1117/12.946330](https://doi.org/10.1117/12.946330). URL: <https://www.spiedigitallibrary.org/conference-proceedings-of-spie/0524/0000/Raman-Scattering-From-Phonons-And-Magnons-In-Magnetic-Semiconductor-MnTe/10.1117/12.946330.short> (besucht am 17.07.2019).
- [36] Takemi Komatsubara, Miyuki Murakami und Eiji Hirahara. „Magnetic Properties of Manganese Telluride Single Crystals“. In: 18.3 (März 1963), S. 356–364. DOI: [10.1143/JPSJ.18.356](https://doi.org/10.1143/JPSJ.18.356).
- [37] O Gomonay und D Bossini. „Linear and nonlinear spin dynamics in multi-domain magnetoelastic antiferromagnets“. en. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 54.37 (Sep. 2021), S. 374004. ISSN: 0022-3727, 1361-6463. DOI: [10.1088/1361-6463/ac055c](https://doi.org/10.1088/1361-6463/ac055c). URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1361-6463/ac055c> (besucht am 24.02.2022).
- [38] Manuel Cardona und Peter Yu. *Fundamentals of Semiconductors*. 4. Aufl. Springer, 2010.
- [39] Y P Varshni. „TEMPERATURE DEPENDENCE OF THE ENERGY GAP IN SEMICONDUCTORS“. en. In: (1967), S. 6.

- [40] J. Diouri, J. P. Lascaray und M. El Amrani. „Effect of the magnetic order on the optical-absorption edge in Cd $1 - x$ Mn x Te“. en. In: *Physical Review B* 31.12 (Juni 1985), S. 7995–7999. ISSN: 0163-1829. DOI: [10.1103/PhysRevB.31.7995](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.31.7995). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.31.7995> (besucht am 02.04.2020).
- [41] D. Bossini et al. „Laser-driven quantum magnonics and terahertz dynamics of the order parameter in antiferromagnets“. en. In: *Physical Review B* 100.2 (Juli 2019), S. 024428. ISSN: 2469-9950, 2469-9969. DOI: [10.1103/PhysRevB.100.024428](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.024428). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.100.024428> (besucht am 20.12.2019).
- [42] A. Stupakiewicz et al. „Ultrafast nonthermal photo-magnetic recording in a transparent medium“. en. In: *Nature* 542.7639 (Feb. 2017), S. 71–74. ISSN: 0028-0836, 1476-4687. DOI: [10.1038/nature20807](https://doi.org/10.1038/nature20807). URL: <http://www.nature.com/articles/nature20807> (besucht am 21.09.2020).
- [43] A. K. Zvezdin und V. A. Kotov. *Modern magneto-optics and magneto-optical materials*. en. Studies in condensed matter physics. Bristol : Philadelphia, Pa: Institute of Physics Pub, 1997. ISBN: 978-0-7503-0362-0.
- [44] Jiyue Zhang et al. „Spin-phonon coupling and two-magnons scattering behaviors in hexagonal NiAs-type antiferromagnetic MnTe epitaxial films“. en. In: *Journal of Raman Spectroscopy* 51.8 (2020). eprint: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/jrs.5928>, S. 1383–1389. ISSN: 1097-4555. DOI: [10.1002/jrs.5928](https://doi.org/10.1002/jrs.5928). URL: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/jrs.5928> (besucht am 22.09.2020).
- [45] Muneaki Hase et al. „Coherent phonon-induced optical modulation in semiconductors at terahertz frequencies“. en. In: *New Journal of Physics* 15.5 (Mai 2013), S. 055018. ISSN: 1367-2630. DOI: [10.1088/1367-2630/15/5/055018](https://doi.org/10.1088/1367-2630/15/5/055018). URL: <http://stacks.iop.org/1367-2630/15/i=5/a=055018?key=crossref.8c5a9ede25aeebcfe1b4bb5c249559eb> (besucht am 13.09.2019).
- [46] Zhen Tong et al. „Comprehensive first-principles analysis of phonon thermal conductivity and electron-phonon coupling in different metals“. en. In: *Physical Review B* 100.14 (Okt. 2019), S. 144306. ISSN: 2469-9950, 2469-9969. DOI: [10.1103/PhysRevB.100.144306](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.144306). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.100.144306> (besucht am 05.11.2021).
- [47] H. J. Zeiger et al. „Theory for displacive excitation of coherent phonons“. en. In: *Physical Review B* 45.2 (Jan. 1992), S. 768–778. ISSN: 0163-1829, 1095-3795. DOI: [10.1103/PhysRevB.45.768](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.45.768). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.45.768> (besucht am 18.09.2020).

- [48] P. Němec et al. „Antiferromagnetic opto-spintronics“. en. In: *Nature Physics* 14.3 (März 2018), S. 229–241. ISSN: 1745-2473, 1745-2481. DOI: [10.1038/s41567-018-0051-x](https://doi.org/10.1038/s41567-018-0051-x). URL: <http://www.nature.com/articles/s41567-018-0051-x> (besucht am 02.04.2020).
- [49] D. Bossini et al. „Controlling coherent and incoherent spin dynamics by steering the photoinduced energy flow“. en. In: *Physical Review B* 89.6 (Feb. 2014), S. 060405. ISSN: 1098-0121, 1550-235X. DOI: [10.1103/PhysRevB.89.060405](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.060405). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.89.060405> (besucht am 02.04.2020).

Danksagung

Ich möchte an dieser Stelle einigen Menschen meinen Dank aussprechen. Zu Beginn möchte ich meinem Doktorvater Mirko Cinchetti danken, ohne den das ganze Unterfangen Promotion nicht möglich gewesen wäre. Mirko, du hast mir stets vertraut und immer ein offenes Ohr für Fragen, Probleme oder veränderte Lebenssituationen gehabt. Du hast mir die Möglichkeit mehrerer Aufenthalte an der politechnischen Universität in Mailand gegeben, die mich einerseits zurück in die italienische Kultur brachten und andererseits der Forschung enorm geholfen haben. Für all dies möchte ich dir ganz herzlich danken: Grazie mille!

Im Anschluss möchte ich meinem Betreuer Davide Bossini danken, von dem ich eine Menge, nicht nur über Physik, sondern auch über Team- und Projektarbeit im Allgemeinen lernen konnte. Trotz eines Wechsels an die Universität Linz bist du immer ein kompetenter Ansprechpartner für Fragen aller Art gewesen. Vielen Dank! Natürlich dürfen nach dem Professor und dem Betreuer nicht die lieben Kollegen vergessen werden, die aus der Arbeit auch sehr häufig Spaß gemacht haben. Dabei möchte ich mich ganz besonders bei Fabian und dem Mönki bedanken: Mit euch waren die langen Stunden im Labor nie langweilig und ihr wart immer für mich da, wenn ich eure Hilfe gebraucht habe. Dafür kann ich euch gar nicht genug danken! Die Corona-Pandemie, die im zweiten Jahr meiner Promotion ausbrach, zwang uns alle, unsere Kontakte einzuschränken und so weit es ging zu Hause zu bleiben. Für mich war es aber keine einsame, sondern eine wunderschöne, erst zweisame und dann dreisame Zeit, da ich sie mit meiner großen Liebe Vanessa verbringen durfte. Vanessa, du warst und bist meine größte Unterstützerin, hältst in allen Lebenssituationen zu mir und hast mir am Valentinstag das schönste Geschenk der Welt gemacht: unsere Tochter Lynn. Ich möchte dir von Herzen für deine Unterstützung und deine Hilfe danken.

Abschließend möchte ich meinen Eltern und Geschwistern danken, die mich nicht nur in der Promotion, sondern auch schon während des gesamten Studiums begleitet und unterstützt haben. Danke dafür - ihr seid wundervoll!