Optische Detektion der magnetischen Resonanz mit modengekoppelten Femtosekunden-Pulsen

von

Dipl. -Phys. Volker Schmidt

aus Herne

Dem Fachbereich Physik der Universität Dortmund vorgelegte Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften.

Dortmund, Juli 2000

Inhaltsverzeichnis

Einleitung **4**

1 Der Ti:Sa-Pulslaser **8**

1.1 Das Prinzip eines Lasers . . . 8

1.1.1 Einführung . . . 8

1.1.2 Grundlagen . . . 10

1.2 Aufbau des Pulslasers . . . 12

1.3 Titan-Saphir als aktives Medium . . . 14

1.4 Pulserzeugung . . . 17

1.4.1 Gallium-Arsenid als sättigbarer Absorber . . . 18

1.4.2 Passive Modenkopplung . . . 19

1.4.3 Aufbau einer stabilen Pulsfolge . . . 21

1.5 Dispersion und Kompensation . . . 22

1.5.1 Spektrale Amplitude . . . 23

1.5.2 Spektrale Intensität und Bandbreite . . . 25

1.5.3 Pulsverbreiterung durch Phasenverschiebung . . . 26

1.6 Analyse der gepulsten Laserstrahlung . . . 36

1.6.1 Messung der mittleren Leistung . . . 36

1.6.2 Messung des Pulsabstandes . . . 36

1.6.3 Messung der Pulslänge . . . 39

1.7 Zusammenfassung . . . 41

2 Gepulste ODEPR in Transmission **43**

2.1 Rubin . . . 43

2.1.1 Struktur des Kristalls . . . 44

2.1.2 Elektronische Eigenschaften . . . 44

2.1.3 Absorptionsspektrum . . . 46
2.1.4 Grundzustands-Zeeman-Aufspaltung . . . 47
2.2 Theorie . . . 50
2.2.1 Elektronen-Spin-Resonanz . . . 50
2.2.2 Gepulste, kohärente Raman-Streuung . . . 51
2.2.3 Modulierte MCD . . . 55
2.3 Der experimentelle Aufbau . . . 58
2.3.1 Der Signalzweig . . . 58
2.3.2 Der Referenzzweig . . . 60
2.3.3 Die gepulste ODEPR . . . 63
2.4 Ergebnisse zur gepulsten ODEPR . . . 64
2.4.1 Magnetfeldabhängigkeit . . . 64
2.4.2 Leistungsabhängigkeit . . . 66

3 Ferromagnetische Resonanz 68
3.1 Eisen . . . 69
3.2 Magnetische Resonanz an dünnen Filmen . . . 71
3.2.1 Zeeman- und Entmagnetisierungsfeld . . . 71
3.2.2 Kristall- und Oberflächenanisotropie . . . 74
3.2.3 Resonanzbedingung . . . 76
3.3 Ergebnisse zur konventionellen FMR . . . 77

4 Gepulste ODFMR in Reflektion 82
4.1 Der Kerr-Effekt als Detektor der Magnetisierung . . . 82
4.1.1 Das Auftreten des Kerr-Effektes . . . 83
4.2 Untersuchung des linearen Kerr-Effektes . . . 84
4.2.1 Der experimentelle Aufbau . . . 84
4.2.2 Theoretische Beschreibung der Apparatur . . . 86
4.2.3 Die Eichung der Apparatur . . . 92
4.2.4 Ergebnisse zum linearen Kerr-Effekt . . . 94
4.2.5 Zusammenfassung . . . 97
4.3 Die gepulste ODFMR . . . 99
4.4 Ergebnisse zur gepulsten ODFMR . . . 100

5 Gepulste ODFMR in Reflektion - oberflächensensitiv 104
5.1 Frequenzverdopplung an Oberflächen . . . 105
5.1.1 Ergebnisse zur Frequenzverdopplung an der Oberfläche . . . 107
5.2 Untersuchung des quadratischen Kerr-Effektes . . . 110
5.2.1 Der experimentelle Aufbau . . . 110
5.2.2 Ergebnisse zum quadratischen Kerr-Effekt . . . 112
5.2.3 Zusammenfassung . . . 114
5.3 Die oberflächensensitive ODFMR . . . 115
5.4 Ergebnisse zur oberflächensensitiven ODFMR . . . 116

Zusammenfassung 118

A Indexänderung 120

B Prismendispersion 121

C Automatische Frequenzkontrolle (AFC) 124

D Artefakte 126

E Mikrowellenresonator 128

F Transimpedanz 130

G Tabellierte Daten 132

Literaturverzeichnis 134

Einleitung

Wir streben Experimente an, mit denen man Oberflächen und Volumen selektiv und getrennt von einander untersuchen kann. Dabei wird eine Kombination aus optisch gepulster - und magnetischer Resonanzanregung Verwendung finden. Durch die magneto-optische Wechselwirkung zwischen Licht und Materie kann die Magnetisierung des Spinsystems auf die optische Welle übertragen, und daher nachgewiesen werden. Dieser Nachweis soll bei der optisch detektierten Elektronenspin-Resonanz (ODEPR) - in Transmission - durch den magnetisch zirkularen Dichroismus (MCD) realisiert werden. In der optisch detektierten ferromagnetischen Resonanz (ODFMR) - in Reflektion - wird dies durch den Kerr-Effekt möglich, der in der nichtlinearen Optik ($\chi^{(2)}$-Prozess) eine oberflächensensitive Detektion erlaubt. Dabei streben wir auf der Probe eine Tiefenlokalisierung des Spinsystems auf unter ein Nanometer, bei einer gleichzeitigen lateralen Auflösung von etwa tausend Nanometer, an. Im Allgemeinen ist eine Tiefenauflösung, - also senkrecht zur Oberfläche - durch die Eindringtiefe der optischen Welle vorgegeben. Wir möchten diese physikalische Einschränkung umgehen und so die an der Oberfläche gesammelten Informationen von den Bulk-Informationen trennen:

Dies wird möglich, weil die nichtlineare Optik ($\chi^{(2)}$-Prozess) keine Information über ein magnetisches System preisgibt, wenn dieses bezüglich seiner Raumkoordinaten inversionssymmetrisch ist [54]. Bei Frequenzverdopplung (SHG) an einer Probe ist es daher möglich, eine Oberwelle zu erzeugen, die lediglich von den ersten drei bis fünf Monolagen stammt [53]. Durch den niedrigen Wechselwirkungsbereich liegen die Umwandlungseffizienzen allerdings nur im Bereich von 10^{-12} Prozent (bei $\sim$ GW/cm^2 Grundwellenintensität). Der Einsatz von Hochleistungslasern, wie CO_2-Laser oder Nd:Yag-Laser, die dauerhaft eine hohe mittlere Leistung emittieren, kommen für diese Experimente nicht in Frage, da die Proben hiermit zerstört würden. Die zur Detektion mindestens benötigten Oberwellenleistungen lassen sich allerdings mit einem Pulslaser erzeugen. Dieser verbindet hohe Puls-Leistungen, bei einer relativ niedrigen mittleren Leistung, wodurch eine reversible

Untersuchung möglich ist. Allerdings sind solche Lasersysteme nicht besonders preiswert, weshalb auf den Kauf eines kommerziellen Systems verzichtet wurde. Statt dessen konnte mit Hilfe eines Diplomanden - jetzt Diplomphysiker Torsten Kalthoff - ein Titan-Saphir-Puls-Laser an der ETH Zürich besichtigt, gerechnet und nachgebaut werden. Ein Großteil dieser Promotion wurde für den Aufbau und die Optimierung verwendet, weshalb diesem Laser ein eigenes Kapitel zukommen soll.

Ein Prinzip, das in dieser Arbeit Anwendung finden soll, ist die magnetische Resonanz: Bringt man eine zu untersuchende Probe in ein starkes Magnetfeld, so hebt dieses die Entartung der Spinzustände auf. Ein magnetisches Wechselfeld im Mikrowellenbereich, induziert dann Übergänge zwischen den Spinzuständen, wenn die Anregungsfrequenz mit der Larmor-Frequenz übereinstimmt. Aus den Resonanzen, die die Elektronenspin-Resonanz (ESR, EPR) liefert, erhält man Informationen über Lage und Form der Linien. Untersucht werden dabei unter anderem die:

- g-Tensoren, d.h. die Lage der Resonanzlinien in Abhängigkeit der Orientierung der Probe zum Feld: g-Tensoren können im Allgemeinen nur für Einkristalle direkt bestimmt werden. In polykristallinen Materialien und in Pulvern erhält man komplizierte spektrale Abhängigkeiten, sogenannte Pulverspektren, aus denen die Hauptwerte des g-Tensors eventuell durch Linienformanalyse erschlossen werden kann. Die Orientierungsabhängigkeit dieses Tensors kann hiermit nicht gemessen werden. Bei schnell rotierenden oder flüssigen Proben erhält man schließlich nur noch einen räumlich gemittelten Wert für den g-Tensor - einen skalaren g-Faktor also. Die optisch detektierte Elektronenspin-Resonanz bietet dagegen die Möglichkeit zur Bestimmung der Orientierung für nichtkristalline Proben.

- Die Hyperfeinaufspaltung der ESR-Linien: Aus der Multiplizität und Lage der Hyperfeinaufspaltung können Informationen über die beteiligten Kerne und über die Stärke der Hyperfein-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Kernen gewonnen werden. Für genauere Untersuchungen wird hier oft auf Doppelresonanzmethoden wie ENDOR oder die Overhauser-Verschiebungsmethode zurückgegriffen.

- Die Nullfeldaufspaltung: sie tritt in Systemen mit wechselwirkenden Elektronenspins ($S > 1/2$) auf und führt bereits ohne äußeres Magnetfeld zu einer Aufhebung der Entartung.

- Neben der spektralen Lage von ESR-Linien spielt auch ihre Form eine wichtige Rolle: im einfachsten Fall - die sogenannte homogen verbreiterte Linie - ist dies eine Lorentz-Linie, bei Vorliegen einer Verteilung unterschiedlicher Resonanzfrequenzen, deren Linien sich überlagern, treten auch inhomogene Linienformen (z.B. Gauß-Verteilung) auf.

Wichtige Anwendungsbereiche der ESR-Spektroskopie sind Verbindungen, in denen paramagnetische Ionen enthalten sind, biologische Systeme ([68], [70]) (Enzyme mit paramagnetischen Zentren oder Radikale), Störstellen in Kristallen (Farbzentren, Dotieratome in Halbleitern), photochemische und radiochemische Effekte. In den letzten Jahren wurde verstärkt auch das Verhalten von Multi-Layer-Strukturen untersucht, und hat insbesondere die Technologie magnetischer Massenspeicher vorangetrieben.

Verbindet man die Eigenschaften der magnetischen Resonanz mit einer optischen Detektion, so lassen sich weitere Vorteile und neue Untersuchungsmöglichkeiten finden. Einer der wichtigsten Gründe für eine optische Detektion ist sicherlich der mögliche Empfindlichkeitsgewinn. Optische Methoden erlauben es, die magnetische Resonanz, die an ca. 10^{20} Spins durchgeführt wird, an einem einzigen dieser Spins zu beobachten ([43], [72]). Ein weiterer Grund ist die selektive Aufnahme der Spektren an unterschiedlichen Spins. Das Selektionskriterium kann dabei wahlweise räumlicher, temporärer oder auch chemischer Natur sein. Die Verwendung von Femtosekunden-Pulsen ermöglicht es weiterhin, eine Spinpolarisation in sehr kurzer Zeit aufzubauen, und gleichzeitig aufgrund der schmalen Pulsbreite eine hohe Zeitauflösung zu garantieren.

Um dem Spinsystem - auf optischem Weg - Informationen entlocken zu können, benötigt man einen physikalischen Effekt, der die Magnetisierung der Probe in definierter Weise an die optische Welle koppelt. Zu diesem Zweck lassen sich verschieden Effekte ausnutzen, von denen in dieser Arbeit zwei verwendet werden. Während sich in Transmission, der optischen Welle durch das zu untersuchende Medium, der magnetisch zirkulare Dichroismus ([65], [68]) eignet und insbesondere an Rubin Verwendung fand, kann in Reflektion der magneto-optische Kerr-Effekt ausgenutzt werden. In linearer und nichtlinearer Optik ($\chi^{(2)}$) konnte dieser Effekt an einer ultra-dünnen Eisenprobe untersucht und am aufgebauten ODFMR-Experiment verwendet werden. Die Untersuchung der statischen Effekte zeigte, daß die Änderung der Magnetisierung der Probe, im Falle des quadratischen Kerr-Effektes, zwei bis drei Größenordnungen mehr Einfluß auf die Polarisation des Lichtes hat, als es in der linearen Optik der Fall ist. Der Grund hierfür liegt darin, daß der lineare

Kerr-Effekt im optischen Frequenzbereich durch Plasmaschwingungen unterdrückt wird ([52], [54]).

Ziel dieser Arbeit war unter anderem der Aufbau eines Femtosekunden-Puls-Lasers, der in Kapitel 1 vorgestellt wird. Im Anschluß an die Fertigstellung des Lasers, wurde ein ODMR-Spektrometer aufgebaut und an Rubin getestet (Kapitel 2). Da diese Probe schon von anderen Gruppen gut beschrieben wurde, ist sie ein idealer Testkandidat zur Ermittlung und Erhöhung der Empfindlichkeit des Spektrometers. Danach konnte die Apparatur auf eine Reflektion umgestellt und Messungen an einer vielschichtigen Eisenprobe durchgeführt werden. Zur Bestimmung der Linienlage und -form der ferromagnetischen Resonanz sollte die Probe zunächst mittels integraler ESR (Kapitel 3) untersucht werden. Parallel zum Aufbau des Lasers wurden detaillierte Untersuchungen zum statischen linearen und quadratischen Kerr-Effekt an der oben erwähnten Eisen-Probe durchgeführt, die als vorbereitende Messung für die optisch detektierte ferromagnetische Resonanz verstanden werden können (Kapitel 4 bzw. 5).

Kapitel 1

Der Ti:Sa-Pulslaser

1.1 Das Prinzip eines Lasers

1.1.1 Einführung

Laser (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation) sind Strahlungsquellen für kohärente, quasi-monochromatische und scharf gebündelte Strahlung im sichtbaren und den angrenzenden Bereichen des elektromagnetischen Spektrums (Ferninfrarot, Infrarot und Ultraviolett). Im Prinzip besteht jeder Laser aus drei Komponenten:

- erstens einem aktiven Lasermedium z.B. ein Gas, ein Kristall oder eine Diode,
- zweitens einem Pumpmechanismus, der dem Lasermedium Energie zuführt, z.B. eine Blitzlampe oder eine elektrisch betriebene Gasentladung oder ein weiterer Laser,
- und drittens einem Laserresonator - einem System aus Spiegeln und anderen optischen Elementen - der für die Rückkopplung und damit die induzierte Emission der Strahlung sorgt.

Abhängig vom speziellen Aufbau und der Wahl der Komponenten ergeben sich eine ganze Reihe von verschiedenen Lasertypen, die sich vor allem in den erreichbaren Leistungen (zwischen einigen Mikrowatt und vielen Kilowatt) und Frequenzeigenschaften unterscheiden. Seit der Konstruktion des ersten funktionsfähigen Prototyps im Jahr 1960 hat sich der Laser in der Wissenschaft so stark ausgebreitet wie kaum ein anderes Konzept - als eigenständiges Forschungsobjekt in der Laserphysik, sowie als *Werkzeug* in anderen naturwissenschaftlichen Bereichen -, und schon viermal wurden Arbeiten im Bereich der

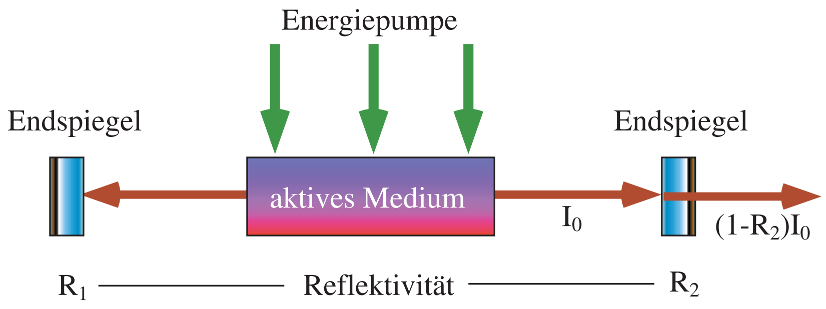

Abbildung 1.1: *Resonator, Pumpe und Gainmedium.*

Laserphysik mit dem Nobelpreis bedacht: 1964 für die theoretischen Vorarbeiten von Ch.H. Townes zusammen mit N.G. Bassow und A.M. Prochorow, 1981 für Entwicklungen von Methoden der Laserspektroskopie von N. Bloembergen und K.M. Siegbahn sowie 1997 für Beiträge zur Laserkühlung von S. Chu, C. Cohen-Tannoudji und W. Phillips. 1999 wurde der Chemie-Nobelpreis an A. Zewail vergeben. Mit Hilfe der Lasertechnik konnte Zewail stroboskopisch chemische Reaktionen in Echtzeit dokumentieren. Aber auch in der Medizin, der Industrie und im Alltag hat der Laser immer mehr an Bedeutung gewonnen. Seit Anfang der neunziger Jahre ist er besonders aus der Informationstechnologie und Unterhaltungselektronik nicht mehr wegzudenken. Der ursprüngliche Antrieb bei der Entwicklung des Lasers war der Bedarf der Physik nach leistungsfähigen kohärenten und monochromatischen Lichtquellen. Die üblichen Lichtquellen wie Quecksilberdampflampen oder Bogenlampen besaßen zwar hohe Intensitäten, aber sie gaben ihre Energie über einen großen Bereich des elektromagnetischen Spektrums verteilt ab, sodaß auf einen bestimmten kleinen Wellenlängen- bzw. Frequenzbereich nur ein geringer Teil der Energie entfiel. In dem Maße, in dem man die Breite der Emissionsfrequenz solcher Lampen durch Filter oder Prismen einengte, verringerte sich somit die zur Verfügung stehende Leistung. Für viele Anwendungen - insbesondere in der Spektroskopie - bedarf es aber einer hohen spektralen Brillanz, d.h. eben einer möglichst hohen Strahlungsintensität in einem sehr kleinen Frequenzbereich. Mit dem Maser, der auf demselben Prinzip wie der Laser beruht, hatte man dieses Problem für elektromagnetische Strahlung im Bereich der Mikrowellen erstmals gelöst. Analog sollte dieses Prinzip dann auf den höherfrequenten Bereich des elektromagnetischen Spektrums, insbesondere auf das sichtbare Licht, angewendet werden.

1.1.2 Grundlagen

Die theoretische Voraussetzung für die Entwicklung des Laserprinzips war die Quantenmechanik, insbesondere ihre Konzepte der Besetzung von (diskreten) Energieniveaus, des Bildes der elektromagnetischen Welle als Teilchen (Photon) und der induzierten Emission, die die Grundlage der notwendigen Lichtverstärkung darstellt.

Bei der spontanen Emission (Abbildung 1.2b) wird ein Photon ohne äußere Einwirkung von einem angeregten Atom oder Molekül ausgesandt, das dabei von einem höheren Energieniveau in ein tieferes übergeht. Hierbei werden die Photonen isotrop, d.h. mit gleicher Wahrscheinlichkeit in alle Raumrichtungen, und mit unterschiedlichen Frequenzen ausgesandt, deren Bandbreite durch die Lebensdauer des angeregten Zustands bestimmt wird. Befindet sich ein angeregtes Atom jedoch in einem geeigneten Strahlungsfeld, dann kann es auch zur induzierten Emission kommen, bei der das emittierte Photon dieselbe Phase, Frequenz und Richtung (Kohärenz) besitzt wie das erste, induzierende Photon (Abbildung 1.2c).

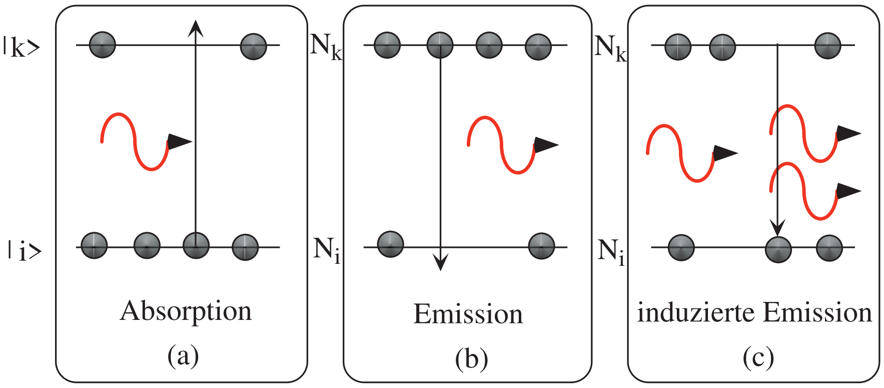

Abbildung 1.2: *Absorption, Emission und induzierte Emission.*

Die Wahrscheinlichkeit für die beiden Emissionsformen bei atomaren Übergängen der Elektronen wird durch die Einstein-Koeffizienten beschrieben. Allgemein gilt, daß ein angeregtes Teilchen umso eher induziert, anstatt spontan emittieren wird, je stärker das Strahlungsfeld ist, d.h. je mehr bereits emittierte Photonen rückgekoppelt werden. Umgekehrt gilt, daß rückgekoppelte Photonen eher absorbiert werden (Abbildung 1.2a), wenn sich mehr Teilchen im unteren der beiden energetischen Zustände befinden (was einer thermischen Verteilung entspricht), während die rückgekoppelten Photonen zur induzierten Emission beitragen, wenn sich mehr Teilchen im höheren Niveau befinden. Diesen letzteren Zustand bezeichnet man als Besetzungsinversion. Darauf aufbauend besteht die Idee des Lasers darin, in einem Lasermedium genügend Teilchen in einen energetisch angeregten Zustand zu versetzen, also eine Besetzungsinversion herzustellen, aus dem sie Photonen im Bereich der gewünschten Wellenlänge emittieren können. Gleichzeitig muß man dafür sorgen, daß diese Energie bei entsprechender Rückkopplung der Photonen überwiegend durch induzierte Emission abgegeben wird, so daß ein möglichst großer Teil der emittierten Strahlung (aufgrund der gleichen Phase, Frequenz und Richtung) kohärent, monochromatisch und gebündelt ist. Wie groß bei einem Lasersystem die notwendige Besetzungsinversion ist, hängt von der Strahlungsverstärkung im Medium, von den Verlusten im Resonator und von der Auskopplung des Laserstrahls ab und wurde 1958 erstmals von Schawlow und Townes mit der Schwellenbedingung beschrieben.

In der Praxis ist die Herstellung und Aufrechterhaltung einer ausreichenden Besetzungsinversion im Lasermedium meist das schwierigste Problem. Teilchen, die in höherenergetische Zustände versetzt worden sind, werden bereits ohne äußeren Einfluß im Allgemeinen nach kürzester Zeit durch Photoemission oder durch atomare Stöße in niedrigere Zustände zerfallen, worauf sich im Medium wieder eine thermische Verteilung einstellen wird, in der Zustände geringerer Energie stärker besetzt sind. Um eine Besetzungsinversion (also die Umkehr der natürlichen Verteilungsverhältnisse) herzustellen und aufrechtzuerhalten, ist somit zuerst ein Pumpmechanismus notwendig, der das Medium außerhalb seines thermischen Gleichgewichts hält, indem er Teilchen durch geeignete Zufuhr von Energie, beispielsweise durch Photoabsorption oder Elektronenstoß, kontinuierlich aus einem unteren Niveau ($| i >$) in ein höheres ($| k >$) anhebt.

Damit es schließlich im Laser tatsächlich zur Lichtverstärkung kommt, muß die durch eine elektromagnetische Welle beim Durchlaufen des Mediums verursachte induzierte Emission die Absorption übersteigen. Die Kleinsignalverstärkung beschreibt diese relative Änderung der Energiedichte des Strahlungsfeldes pro Längeneinheit im Medium und ist direkt proportional zur Besetzungsinversion und der spektralen Linienform des Laserübergangs. Daraus ergibt sich für jedes Medium ein charakteristisches frequenzabhängiges Verstärkungsprofil $\gamma(\nu)$ (Abbildung 1.3), typischerweise mit einem Maximum bei einer Mittenfrequenz ν_0 der Übergangslinie. Eine Laseroszillation ist prinzipiell nur im Bereich dieses Profils möglich.

Die Breite dieses Verstärkungsprofils, also die Breite der Spektrallinie eines Laserübergangs, hängt von den Bedingungen im Medium ab (z.B. von der temperaturabhängigen Dopplerverbreiterung), und liegt typischerweise im Bereich von einigen Gigahertz. Speziell wenn mehrere mögliche Laserübergänge mit verschiedenen Mittenfrequenzen existieren, kann das entstehende Verstärkungsprofil als Überlagerung der einzelnen Profile wesentlich komplizierter und um mehrere Größenordnungen breiter werden (z.B. bei durchstimmbaren Lasern). Hinzu kommt, daß das Verstärkungsprofil des gesamten Lasers nicht nur durch das Verstärkungsprofil des Mediums, sondern auch durch die Eigenschaften des Laserresonators bestimmt wird.

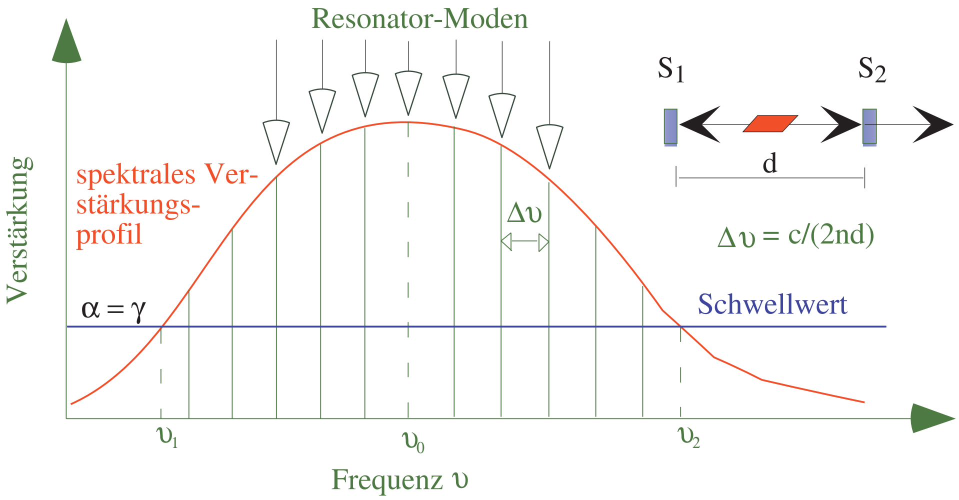

Abbildung 1.3: *Verstärkungsprofil eines Laserübergangs und Eigenfrequenzen der möglichen longitudinalen Lasermoden im Bereich des Profils. γ bezeichnet die Netto-Verstärkung im Medium, α die Verluste im Resonator. Nur, wenn die Verstärkung alle Verluste übersteigt, kann es zur Laseroszillation kommen.*

Für einen Pulslaser, wie er hier aufgebaut wurde, ist dieses Verstärkungsprofil von entscheidender Bedeutung, da es die untere Grenze der erreichbaren Pulsbreite bestimmt, wenn man eine Kompensation der auftretenden Dispersionseffekte zunächst außer Acht läßt. Je breiter das spektrale Profil, desto mehr Resonatormoden können in diesem oberhalb des Schwellwertes angeregt werden, wodurch die erreichbare Breite des Pulses minimiert wird.

1.2 Aufbau des Pulslasers

Abbildung 1.4 zeigt den schematischen Aufbau des konstruierten Lasersystems. Man erkennt die Pumpquelle, die durch einen diodengepumpten frequenzverdoppelten Nd:YVO_4-Laser (Coherent Verdi) repräsentiert wird. Die von diesem Laser ausgesandte Pump-welle wird in den Resonator [17] eingekoppelt und in das aktive Medium fokussiert, wodurch eine hohe Leistungsdichte erreicht wird. Durch stimmulierte Emission breitet sich die im Kristall erzeugte Welle im gesamten Resonator aus, und wird nur durch die beiden Endspiegel eingeschlossen. Der Auskoppler zeigt dabei eine Transparenz von 10 Prozent, während der zweite Endspiegel im Gegensatz zu einem cw-Laser, hier durch einen sogenannten SESAM dargestellt wird. Der Semiconducting Saturable Absorber Mirror dient als sättigbarer Absorber, und ist ein nichtlineares Element, das zusammen mit dem aktiven Medium für das selbstständige Starten der Pulsaktivität dient. Dieser wird in Kapitel 1.4.1 genauer behandelt, und kann bis zu diesem Zeitpunkt zunächst als einfacher Endspiegel angesehen werden.

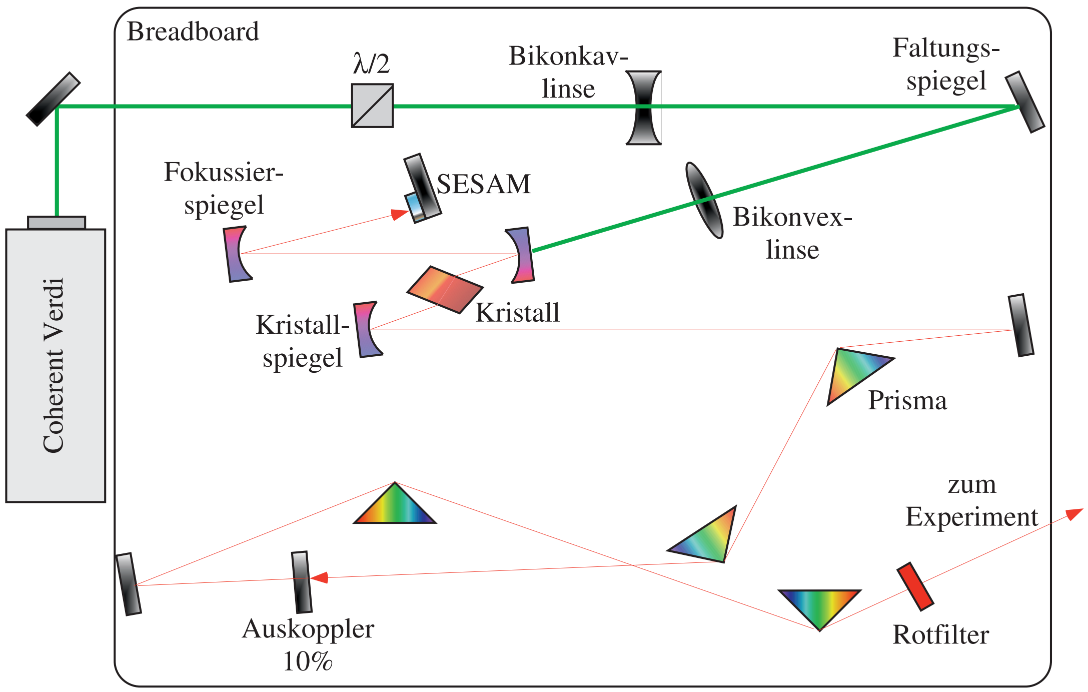

Abbildung 1.4: *Schematischer Aufbau des Puls-Lasers.*

Die vier Prismen, jeweils zwei innerhalb und außerhalb des Resonators, können in der richtigen Konfiguration zu einer Kompensation der Dispersion führen, und so die durch die optischen Elemente vorgegebene Pulsbreite weiter reduzieren. Aus diesem Grund wird diese Anordnung auch als Vier-Prismen-Kompensator bezeichnet. Seine Funktionsweise wird in Kapitel 1.5.3 erörtert.

1.3 Titan-Saphir als aktives Medium

Ein entscheidendes optisches Bauteil bei einem Laser ist das verstärkende Medium. Da es das spektrale Verstärkungsprofil vorgibt, trägt es bei einem Puls-Laser entscheidend zur Pulsbreite bei. Hier bietet sich unter anderem der mit Titan-Ionen dotierte Saphir-Kristall an. Für π-polarisiertes Pump-Licht stellt dieser ein Profil mit einer Halbwertsbreite von ca. 200nm zur Verfügung. Diese doch relativ breite Verteilung läßt eine hohe Anzahl an beteiligten Resonatormoden zu.

Der für diesen Laser verwendete Ti:Sa-Kristall hat, im Vergleich zu einem cw-Laser (continuous wave), mit 4mm eine relativ geringe Länge, und kann daher auch nicht an die entsprechenden Ausgangsleistungen eines cw-Lasers herankommen. Die Länge des Kristalls hat allerdings nicht nur Einfluß auf die Effizienz, sondern auch auf die Pulsbreite, weshalb hier ein Kompromiß zwischen maximaler Leistung und minimaler Pulsbreite gefunden werden muß.

Die Energieniveaus des mit 0.15 bis 0.2 Gewichtsprozent Titan-Ionen dotierten Saphir-Kristalls zeigen sehr starke Phononenverbreiterungen auf. Anders als bei den freien Atomen sind die Energieniveaus im Festkörper nicht mehr diskret, sondern weisen aufgrund verschiedener Wechselwirkungen verbreiterte Energiebänder auf, die durch Energielücken von einander getrennt sind.

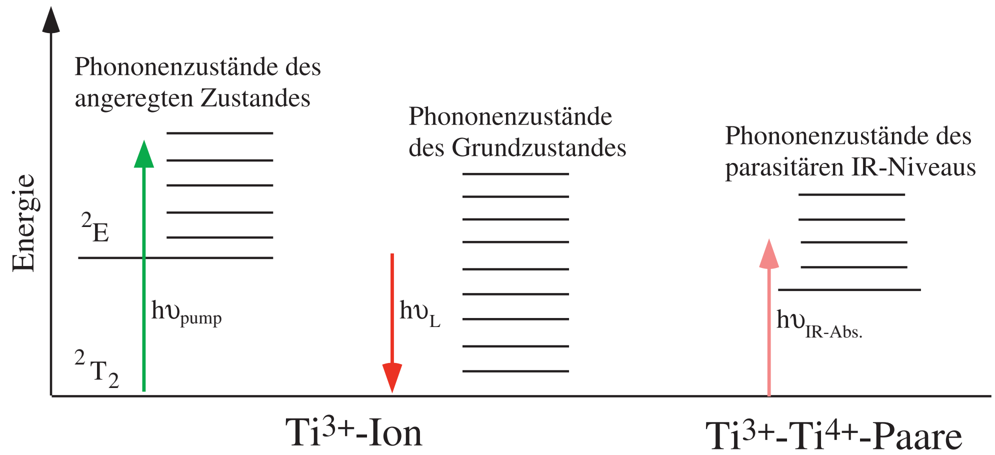

Abbildung 1.5: *Energieniveaus des Titan-Saphir-Kristalls - schematisch.*

Sowohl der Grundzustand $^2T_2$, als auch der angeregte Zustand ^2E des Ti^{3+}-Ions zeigen diese durch Phononen erzeugte Verbreiterung. Dies kann nun ausgenutzt werden, um einen eventuell spektral breiten Laser auf diesem Übergang einzustrahlen, und so das aktive Medium optisch zu pumpen. Dabei regt dieser Pumplaser die Elektronen mit einer Energie $h\nu_{pump}$ an, und befördert sie so aus dem Grundzustand $^2T_2$ in eines der oberen Schwingungsniveaus des angeregten Zustandes ^2E. Nach einer strahlungslosen Relaxation aus den oberen Phononenniveaus besetzen alle Elektronen das angeregte Niveau ^2E. Es kommt zur Inversion der Besetzungsdichte, und der Kristall emittiert spontan und induziert eine Welle mit der Energie $h\nu_L$. Allerdings werden bei hohen Temperaturen auch die Phononenzustände des Grundzustandes besetzt, welche dann an die angeregten Zustände koppeln können. Hierdurch wird die effektive Lebensdauer des angeregten Zustandes wegen strahlungsloser Übergänge reduziert.

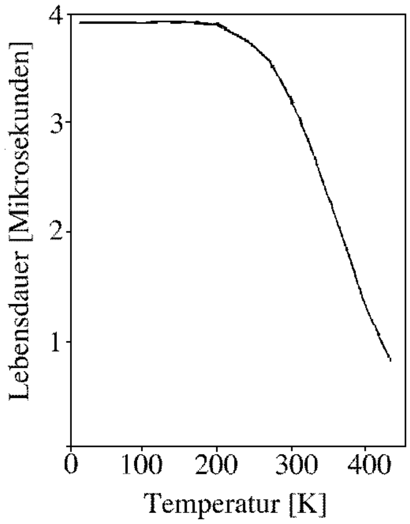

Abbildung 1.6: *Lebensdauer des angeregten Zustandes.*

Abbildung 1.6 zeigt, daß bei Zimmertemperatur die Lebensdauer des oberen Zustandes bereits stark reduziert ist [48]. Da allerdings bei diesem Laser der angeregte Zustand etwa alle 10^{-8} Sekunden entleert wird, sollte sich eine Lebensdauer von ca. $3\mu s$ (300K) kaum auf die Inversion auswirken. Dieser Fall gilt aber nur, wenn der Laser eigentlich nicht in Betrieb ist: Während der Anregung durch den Pumplaser werden ständig zwischen 2 und 8W optischer Leistung in den Kristall fokussiert, von der auch ein Teil in Wärme überführt wird. Diese sollte auf jeden Fall abgeführt werden. Zum Teil geschieht dies durch die umgebende Luft. Effektiver ist allerdings eine zusätzliche Wasserkühlung, die bei diesem Laser realisiert wurde.

In Abbildung 1.7 ist das Fluoreszenzverhalten des Kristall gezeigt [32]. Man erkennt die angesprochene große spektrale Breite, die sich von 660nm bis 1180nm erstreckt. Das

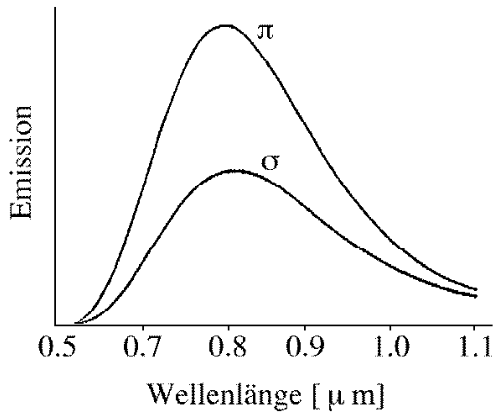

Abbildung 1.7: *Emissionsverhalten des Kristalls.*

Maximum der Emission liegt bei ca. 800nm, auf der die Laseroszillation am wahrscheinlichsten einsetzen wird. Hierbei wird zwischen π- und σ-polarisiertem Licht unterschieden, was bedeutet daß der Laserkristall eine Vorzugsrichtung hat. Die sogenannte optische oder c-Achse.

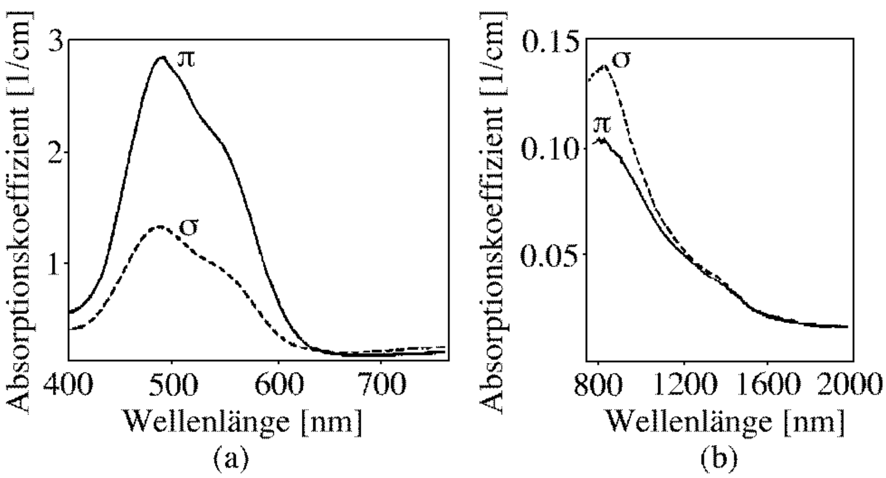

Abbildung 1.8: *Absorptionsverhalten des Kristalls. Dargestellt ist auch die parasitäre Infrarotabsorption (b).*

Die Absorption des Kristalls muß ebenfalls in parallel (π) oder senkrecht (σ) zur optischen Achse polarisiertem Licht unterschieden werden. Im Bereich der Hauptabsorptionsbande bei 490nm dominiert deutlich die Absorption von π-polarisiertem Licht, während sie im Infrarotbereich von σ-polarisiertem Licht bestimmt wird. Ein Problem beim Ti:Sa-Kristall stellt die parasitäre Infrarot-Absorption dar, die durch $Ti^{3+} - Ti^{4+}$-Paare hervorgerufen wird. Sie tritt in einem Bereich von 650nm bis 1600nm auf, kann aber durch genaue Kontrolle der Kristallzuchtbedingungen und anschliessende Ausheilprozesse minimiert werden.

Um eine hohe Effizienz des Lasers zu erreichen, muß also auf das Absorptions- und Emissionsverhalten sowie auf die damit verbundene Orientierung des Kristalls geachtet werden. Um Reflektionsverluste für p-polarisiertes Licht zu minimieren, sind die Endflächen des Kristalls zusätzlich unter dem Brewsterwinkel geschnitten. So kann die Effektivität des Lasers weiter optimiert werden.

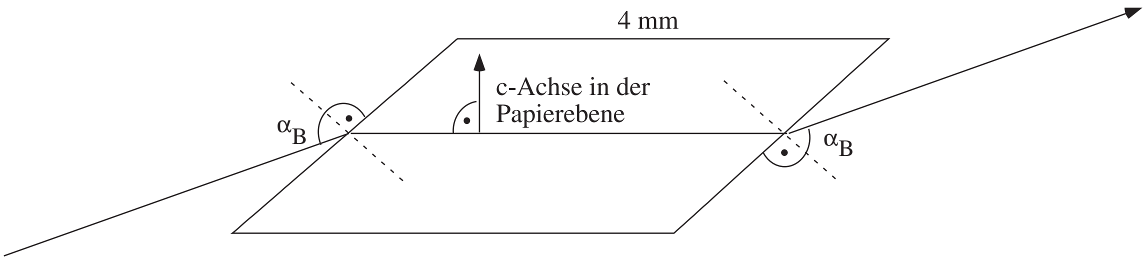

Abbildung 1.9: *Schematische Darstellung des unter dem Brewsterwinkel α_B geschnittenen Kristalls ($\alpha_B(\lambda_0$=800nm)).*

Zeigt die c-Achse des Kristalls senkrecht zur Ausbreitungsrichtung (und liegt in der Papierebene (Abbildung 1.9)), so entspricht eine p-Polarisation des Laserlichtes einer π-Polarisation des Kristalls. Wegen des Brewsterwinkels wird die Oszillation auch mit dieser Polarisation starten, weil die Verluste für s-polarisiertes Licht hoch sein werden.

1.4 Pulserzeugung

Bis zu diesem Zeitpunkt kann sich noch keine Pulsfolge aufbauen. Man spricht also noch immer von einem cw-Laser. Um aus diesem kontinuierlich strahlenden Laser einen Kurzpulslaser zu machen, benötigt man noch einen Startmechanismus der es erlaubt, Pulse zu generieren. Das Starten der Pulserzeugung wird hier durch einen sättigbaren Absorber sicher gestellt.

Die Erzeugung von *ultrakurzen* Pulsen soll bei diesem Laser also durch eine passive Modenkopplung erreicht werden. Durch die Kombination aus Absorber und Modenkopplung ist man bereits in der Lage eine Pulsbreite von ca. 500fs sicher zu stellen. Danach tritt der unerwünschte Effekt der Dispersion 2. Ordnung in den Vordergrund. Dieser kann allerdings durch eine entsprechende Dispersionskompensation, hier mit einem Vier-Prismen-Kompensator, reduziert werden. Die Dispersionen noch höherer Ordnungen könnten durch sogenannte Chirped-Mirrors ([40], [63], [64], [69]) kompensiert werden, die ein breites spektrales Profil mit hoher Reflektivität aufweisen. Sie sind in der Lage, die Dispersion 3. Ordnung in Reflektion durch Laufzeitunterschiede in Abhängigkeit von der Wellenlänge zu kompensieren. Mit diesen Spiegeln ist man in der Lage eine Pulsbreite von bis unter 5fs zu erreichen [39]. Wir streben eine Pulsbreite von 50fs an, die auch ohne diese speziellen Spiegel erzeugt werden kann.

1.4.1 Gallium-Arsenid als sättigbarer Absorber

Ein SESAM (semiconducting saturable absorber mirror) besteht aus einer absorbierenden Schicht die auf der Rückseite verspiegelt ist ([15], [25], [35], [36], [37]). Im vorliegenden Fall besteht diese absorbierende Schicht aus Gallium-Arsenid, das auf einer Silberschicht aufgebracht wurde.

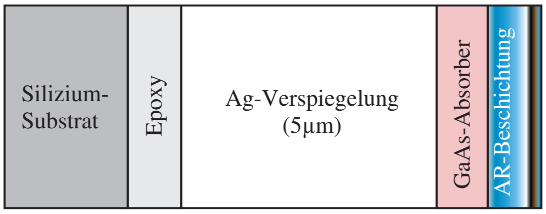

Abbildung 1.10: *SESAM: semiconducting saturable absorber mirror.*

Im Grunde stellt der SESAM daher einen Spiegel dar, der elektromagnetische Wellen definiert absorbieren oder reflektieren kann. Dabei besitzt das absorbierende Medium einen Absorptionskoeffizient, der eine nichtlineare Abhängigkeit von der Intensität zeigt, weshalb niedrige Intensitäten stärker absorbiert werden, als hohe.

Treffen Lichtintensitäten auf diesen Absorber, die höher sind als seine Sättigungsintensität I_S ($\sim 10^6 \mathrm{W/cm^2}$), so läßt dieser den überwiegenden Teil dieser Intensität passieren, weil diese nicht mehr absorbiert werden kann. Der überwiegende Teil der intensiven Strahlung, die ihn durchdrungen hat, kann von der dahinter liegenden Silberschicht reflektiert werden.

Dieses nichtlineare Element wirkt daher wie ein Schalter, der nur hohe Intensitäten

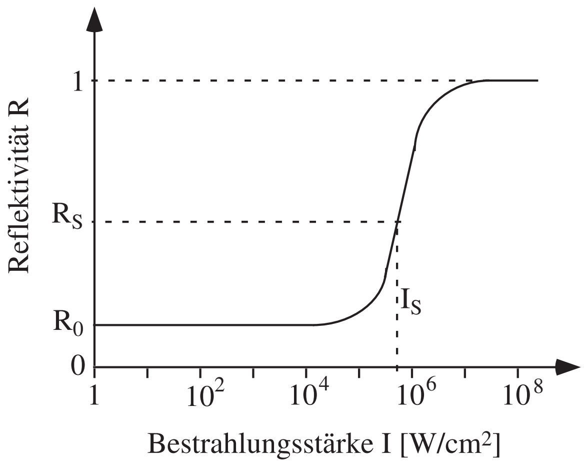

Abbildung 1.11: *Nichtlineares Verhalten der Reflektivität bezüglich der Intensität.*

reflektiert. Jeder Schalter besitzt aber eine Schaltzeit, die hier der Relaxationszeit des Absorbers entspricht. Diese wird im Allgemeinen durch das absorbierende Medium bestimmt. Eine Relaxationszeit von 10^{-10}s ist eine vernünftige Größe, um kurze Pulse zu generieren, wenn man beachtet, daß etwa alle 10^{-8}s ein Puls auf den SESAM trifft.

Möchte man allerdings Pulse im Bereich von einigen Femtosekunden erzeugen, so benötigt man einen schnelleren Schalter. In diesem Zeitbereich bilden sich leicht Doppelpulse, also ein zweiter Puls, der sofort vor oder hinter dem eigentlichen Puls generiert wird. Diese Doppelpulse werden erzeugt, wenn die zeitliche Breite des Pulses nicht ausreicht um eine vollständige Entleerung im aktiven Medium zu erreichen. Um dies zuverlässig unterdrücken zu können, muß der Absorber seine Sättigung schneller abbauen. Dazu wurde dieser SESAM, der uns von der Gruppe um Prof. Dr. U. Keller (Institut für Quanten-Elektronik der ETH-Zürich [41]) zur Verfügung gestellt wurde, mit Beryllium dotiert. Es konnte so eine Relaxationszeit von 10^{-12}s erreicht werden [15].

1.4.2 Passive Modenkopplung

Man kann einzelne Moden auf unterschiedliche Weise miteinander koppeln [21]. Eine sehr erfolgreiche Technik, um kurze Pulse aus kontinuierlichen Farbstoff- und Farbzentrenlasern zu erhalten, ist das synchrone Pumpen. Hierbei kann ein modengekoppelter Argonlaser als Pumpe für den Farbstofflaser verwendet werden. Eine weitere Möglichkeit ist die aktive Modenkopplung, bei der die Intensität der monochromatischen Lichtwelle innerhalb des Laserresonators mit Hilfe einer Pockelszelle, Kerr-Zelle oder stehenden Ultraschallwelle moduliert wird. Durch Phasenkopplung zwischen vielen gleichzeitig oszillierenden Lasermoden lassen sich Lichtpulse im Pikosekundenbereich erzeugen. Eine solche Kopplung kann auch durch die Sättigung von absorbierenden Medien erreicht werden. In diesem Fall spricht man von der passiven Modenkopplung. Sie basiert bei diesem Laser auf dem sogenannten Kerr-Lens-Modelocking ([18], [38], [44], [58], [62], [63]). Grundlage dieser Methode ist der Brechungsindex des Laserkristalls, der nichtlinear von der Intensität der optischen Welle abhängt. Der Brechungsindex wird also nicht mehr allein nur durch die Frequenz bestimmt, sondern auch von der Intensität des Laserstrahls.

Man stelle sich dazu einen gaußförmigen Laserstrahl vor, dessen Maximum der Intensität in der Mitte des Profils liegt. Läuft dieser Strahl durch ein Medium mit einem von der Intensität abhängenden Brechungsindex, dann spürt der Randbereich des gaußverteilten Strahls einen anderen Brechungsindex, als das Zentrum. Wie in Abbildung 1.12 zu sehen, nimmt die Brechung mit der Intensität zu.

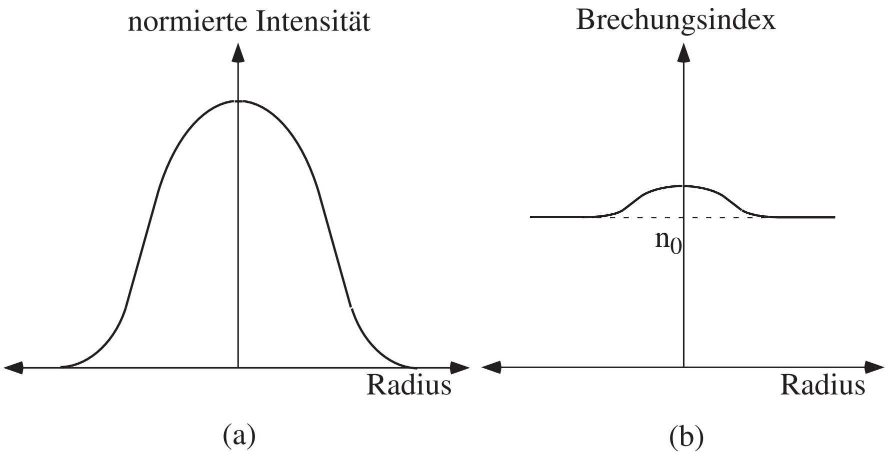

Abbildung 1.12: *Gaußstrahl und Brechungsindex bei hohen Intensitäten.*

Infolge der höheren Intensität in der Strahlmitte ist dort die Brechzahl größer als am Rand. Eine hohe Brechzahl verlangt aber, daß sich das Zentrum des Laserstrahls dann langsamer ausbreitet, als der Randbereich mit niedriger Brechzahl. Der Laserstrahl wird fokussiert (Selbstfokussierung); das Medium mit der inhomogenen Brechzahl wirkt wie eine Sammellinse. Durch die Fokussierung steigt die Feldstärke des Lichtes an, dadurch wird der Brechzahlgradient noch größer, die Fokussierung wird stärker, usw. Eine genaue quantitative Beschreibung dieser Selbstfokussierung ist sehr schwierig, da die Wellengleichung nichtlinear wird. Eine ausführliche Darstellung findet sich bei Akhmanov [2].

Selbstphasenmodulation: Bei einer intensitätsabhängigen Brechzahl führt die transversale, örtliche Struktur des Strahlungsfeldes also zu einer Änderung der örtlichen Amplitudenverteilung. Analog tritt eine Änderung der zeitlichen Amplitudenverteilung ein, wenn das Strahlungsfeld eine zeitliche Struktur besitzt. Die Intensitätsabhängigkeit der Brechzahl bedeutet, daß die Phasengeschwindigkeit des Lichtes im Medium von der Intensität abhängt. Ein kurzer Lichtpuls führt somit zu einer zeitabhängigen Lichtgeschwindigkeit und damit zu einer zeitabhängigen Phase. Der Puls moduliert sich selbst. Da die zeitliche Änderung der Phase zu einer - von der Weglänge im Kristall abhängigen - Frequenz führt, ist die spektrale Breite des Pulses nach Durchlaufen eines Kerr-Mediums größer als vorher. Weil weiterhin zwischen Pulsdauer und spektraler Breite die Beziehung $\Delta\omega \geq 1/\Delta t$ besteht (Fourier-Transformation), könnte der Puls hinter dem Medium prinzipiell kürzer sein. Das Medium ändert jedoch nicht die Pulsbreite, sondern vergrößert die Bandbreite. Das heißt, wenn der Puls vorher bandbreitenbegrenzt war, also $\Delta\omega = 1/\Delta t$ galt, so ist er es hinter dem Medium nicht mehr und es gilt $\Delta\omega > 1/\Delta t$. Dies kann durch geeignete zeitliche Kompression wieder kompensiert werden.

Die beiden beschriebenen Effekte der Fokussierung und der Phasenmodulation treten aber erst bei hohen Intensitäten auf, weshalb man einen Startmechanismus benötigt. Diese Aufgabe wird von dem vorher beschriebenen sättigbaren Absorber übernommen, indem er unter anderem für den ersten Puls sorgt.

1.4.3 Aufbau einer stabilen Pulsfolge

Zunächst ist die Intensität an allen Orten des Resonators gleich verteilt und entspricht der mittleren Leistung eines kontinuierlich laufenden Lasers. Innerhalb des Rauschens allerdings können statistische Schwankungen auftreten, die eine etwas höhere Intensität aufzeigen. Trifft die Rauschverteilung auf den SESAM, so werden die niedrigen Intensitäten durch den sättigbaren Absorber stärker absorbiert, als andere mit einer etwas höheren Intensität. Der Kontrast zwischen dem Rauschen und der durch den nichtlineare Absorptionsindex bevorteilten höheren Intensität wird größer.

Nach 2-3 Umläufen im Resonator kann sich so ein Peak herausbilden, der noch keine definierte Breite oder Höhe hat (Abbildung 1.13 b). Beim anschließenden Durchgang durch das Lasermedium kann sich die Welle, und insbesondere auch der Peak mit höherer Intensität durch stimulierte Emission weiter verstärken, bzw. von der Absorption durch den sättigbaren Absorber erholen.[1]

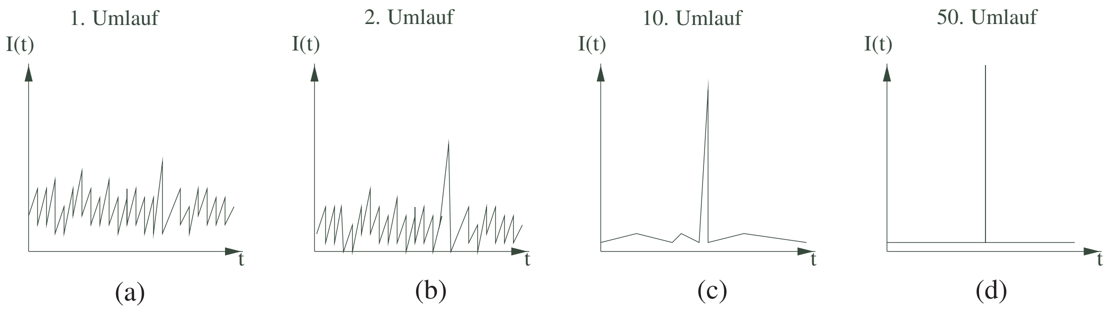

Abbildung 1.13: *Entwicklung eines Pulses in der ersten halben Mikrosekunde.*

Die Intensitätsverteilung der im Resonator umlaufenden Welle zeigt nach ca. hundert Nanosekunden einen Puls, dessen Breite noch sehr groß ist. Dies ist der Zeitpunkt an dem die Selbstfokussierung in Erscheinung tritt. Der Kristall wirkt jetzt nicht nur als Verstärker, sondern auch als Sammellinse. Die Intensität im Puls wird zunehmend erhöht, wodurch der Effekt der Selbstfokussierung noch stärker wird. Nach einer halben Mikrosekunde hat sich dadurch ein dominanter Puls herausgebildet, der vom SESAM komplett reflektiert werden kann, während der Untergrund absorbiert wurde. Die Pulsbreite liegt nun im Bereich von etwa einer Picosekunde. Bei einer Relaxationszeit von 10^{-12} Sekunden wirkt der SESAM jetzt nur noch als einfacher Spiegel. Da er in dieser Zeit gesättigt ist, wird der Puls zu fast hundert Prozent reflektiert.

Würde die Intensität im Puls weiter ansteigen, so käme es schließlich zur Zerstörung des aktiven Mediums oder eines anderen optischen Elementes. Dies wird allerdings durch die Dispersion des Lichtes verhindert.

1.5 Dispersion und Kompensation

Das aktive Lasermedium verfügt zwar über einen Mechanismus, der die zeitliche Breite des Pulses verringert, gleichzeitig gibt es aber auch die Grenze dieser Komprimierung vor. Der Brechungsindex des Kristall

$$n(\omega, I) = n_0(\omega) + n_2(I(\omega)) \tag{1.1}$$

[1]Bemerkung: Es ist klar, daß die Laserschwelle dieses Lasers um einiges höher liegt, als es beim cw-Laser ohne Absorber der Fall ist. Man benötigt daher auch höhere Pumpleistungen, um den Laser zu starten (vgl. Abbildung 1.23).

hängt nicht nur von der Intensität der optischen Welle ab, sondern wird natürlich auch durch deren Frequenz bestimmt. Der lineare Anteil n_0 des Brechungsindexes n bewirkt bei normaler Dispersion ($dn_0/d\lambda < 0$), daß die roten Spektralanteile im Puls eine größere und die blauen eine kleinere Geschwindigkeit haben (chirp). Dies bedeutet, daß der Puls bei der Ausbreitung durch ein Medium wegen des nichtlinearen Anteils n_2 spektral breiter wird und wegen des linearen Anteils n_0 zeitlich auseinander läuft. Die zeitliche Verbreiterung ist proportional zur Länge des Mediums und hängt von der Spektralbreite $\delta\omega$ und auch von der Intensität des Pulses ab.

1.5.1 Spektrale Amplitude

Bei jeder Pumpleistung und zu jedem Zeitpunkt ist - aufgrund des Auskopplers (T = 10%) - im Resonator neun mal mehr Leistung gespeichert, als aus ihm heraustritt. Diese Leistung, ob nun innerhalb oder außerhalb, komprimiert sich auf einen kurzen Puls. Daher spricht man auch von einer Pulsleistung. Sie entspricht der mittleren optischen Energie pro Sekunde, die auf die Anzahl der Pulse pro Sekunde mit der Breite τ_P verteilt wurde. Die Anzahl der Pulse, die pro Sekunde emittiert werden, berechnet sich aus der Resonatorlänge L und der Lichtgeschwindigkeit, wenn man bedenkt, daß im Resonator zu jedem Zeitpunkt nur ein Puls existiert:

$$\nu_R = \frac{c}{2L}. \tag{1.2}$$

Anstelle der Anzahl der Pulse pro Sekunde spricht man normalerweise von der Repetitionsfrequenz ν_R. Bei einer Resonatorlänge von 1.5m entspricht ein Umlauf im Resonator dann 3m, und man erhält eine Repetitionsfrequenz von 100MHz. Die Leistung im Puls ergibt sich dann aus der mittleren Leistung P_m, die in 10^8 Pulsen pro Sekunde mit einer Breite τ_P konzentriert wurde:

$$P_P = \frac{P_m}{\nu_R \cdot \tau_P}. \tag{1.3}$$

Bei einer zeitlichen Breite von 50fs und einer mittleren Leistung von 500mW, sollte sich dann eine Pulsleistung von 100kW ergeben. Dies entspricht dem ursprünglich gesteckten Ziel. Um diese Pulsleistung erreichen zu können, muß die Dispersion, die ein solcher Puls durch die optischen Elemente erfährt, bekannt sein. Für die weiteren Experimente ist es außerdem erforderlich, die spektrale Intensitätsverteilung eines gaußförmigen Pulses zu kennen.

Das elektrische Feld einer periodischen Pulsfolge kann auf folgende Form gebracht werden:

$$E_L(t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} E_0 e^{-(t-m\cdot T_R)^2/\Delta t_P^2} \cdot \frac{1}{2}\left(e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t}\right), \tag{1.4}$$

wobei E_0 die Amplitude, $T_R = 1/\nu_R$ der Pulsabstand, $\tau_P = \Delta t_P \cdot (2\sqrt{\ln 2})$ die volle Pulsbreite, ω_0 die Laserfrequenz und m der Laufindex der Pulse ist. Um das Frequenzspektrum dieser Pulsfolge zu erhalten, kann man eine Fouriertransformation des oszilierenden elektrischen Feldes durchführen. Unter Verwendung des Faltungssatzes erhält man für die spektralen Amplituden:

$$\begin{aligned} E_L(\omega) &= \pi\sqrt{\pi}E_0 \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot e^{-(\omega-\omega_0)^2\Delta t_P^2/4} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_0 - \omega_k) \\ &+ \pi\sqrt{\pi}E_0 \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot e^{-(\omega+\omega_0)^2\Delta t_P^2/4} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega + \omega_0 - \omega_k), \end{aligned} \tag{1.5}$$

mit ω_k = k$\omega_R = 2\pi/T_R$ und k dem Laufindex.

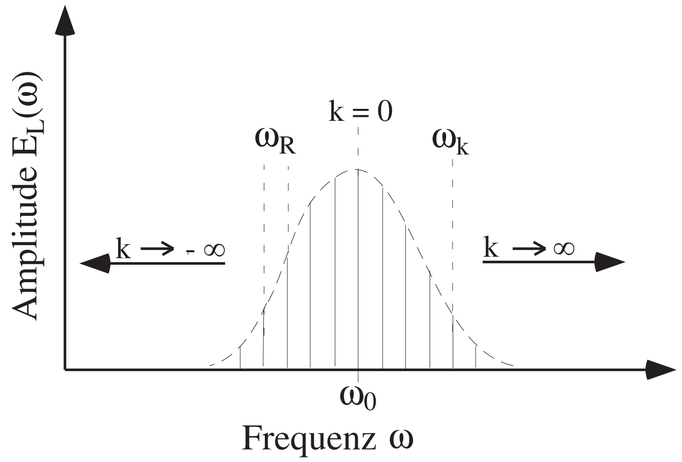

Abbildung 1.14: *Spektrale Amplitudenverteilung einer Pulsfolge - schematisch.*

Das Frequenzspektrum dieser mit ω_0 oszillierenden Pulsfolge stellt sich als diskret heraus, da die Harmonischen k der Repetitionsfrequenz ω_R nur ganzzahlige Werte annehmen können. Die Harmonischen ω_k verteilen sich im Abstand ω_R innerhalb einer einhüllenden Gaußkurve um ω_0. Die Breite dieser Gaußkurve wird durch die Breite der Pulse bestimmt und beträgt:

$$\delta\omega = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\Delta t_P} = \frac{1}{\tau_P}. \tag{1.6}$$

Dies gilt allerdings nur im Falle einer Bandbreitenbegrenzung.

1.5.2 Spektrale Intensität und Bandbreite

Bildet man das Betragsquadrat von $E(\omega)$, so erhält man die spektrale Intensitätsverteilung

$$\begin{aligned} I_L(\omega) &= \frac{1}{2}\epsilon_0 c|E_L(\omega)|^2 \\ &= I_0 \frac{\pi\sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \ e^{-(\omega+2\omega_0)^2 \Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega + 2\omega_0 - \omega_k) \\ &+ I_0 \frac{\pi\sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \ e^{-(\omega-2\omega_0)^2 \Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - 2\omega_0 - \omega_k) \\ &+ 2 \cdot I_0 \frac{\pi\sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \ e^{-\omega^2 \Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_k), \end{aligned} \tag{1.7}$$

wobei $I_0 = \frac{1}{2}\epsilon_0 c|E_0|^2$ ist.

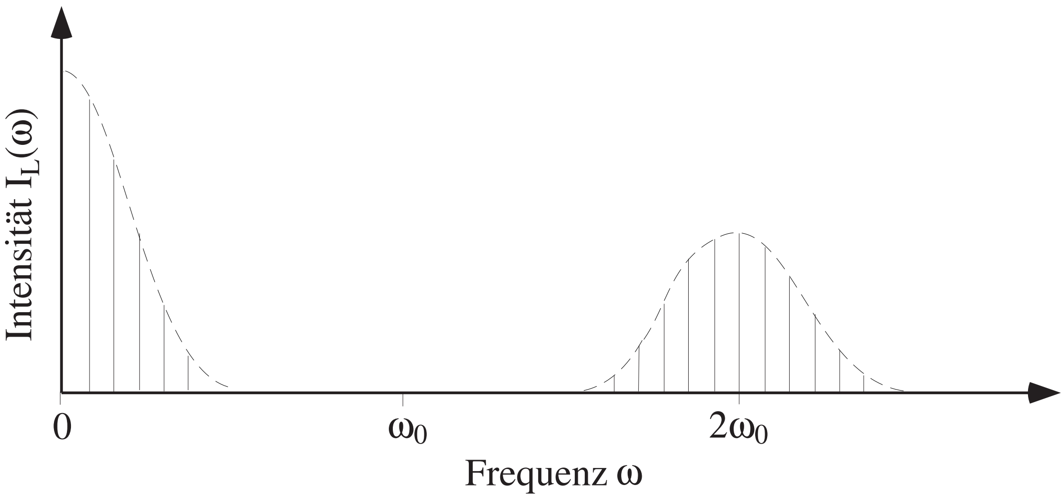

Abbildung 1.15: *Spektrale Intensitätsverteilung einer Pulsfolge - schematisch.*

Aufgrund der hohen optischen Frequenzen bei $2\omega_0$ können nur die Intensitäten in der Nähe der Nullfrequenz (DC) wahrgenommen werden. Die detektierbare spektrale Intensität reduziert sich dann auf:

$$I_L(\omega) = I_0 \frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot e^{-\omega^2 \Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_k). \tag{1.8}$$

Die Amplituden der spektralen Intensitätskomponenten werden wieder durch eine Gaußkurve bestimmt. Durch die Autokorrelation zweier Gaußprofile ist diese allerdings um einen Faktor $\sqrt{2}$ breiter:

$$\delta\omega' = \sqrt{2} \cdot \delta\omega = \frac{2\sqrt{2\ln 2}}{\Delta t_P} = \frac{\sqrt{2}}{\tau_P}. \tag{1.9}$$

Wenn die spektrale Breite über die Pulsbreite berechnet werden kann (Bandbreitenbegrenzung), dann folgt für einen 50fs-Puls, bei einer Zentralwellenlänge von 830nm eine volle Bandbreite von $\delta\omega'_{FWHM} \cong 5.6 \cdot 10^{13} Hz$ bzw. $\delta\lambda'_{FWHM} \cong 20nm$.

Ein aus dem Resonator emittierter 50fs-Puls sollte dann im Idealfall ein Gaußprofil mit einer Bandbreite von 20nm haben. Hier kann man nun davon ausgehen, daß es ohne Dispersionskompensation nicht dazu kommen wird, weil der frequenzabhängige Brechungsindex verschiedener Optiken wellenlängenabhängige Laufzeitunterschiede verursacht. Das heißt, daß die verschiedenen spektralen Anteile des Pulses im Medium auseinander gezogen werden. Die Pulsbreite stellt sich dann auf ein bestimmtes Niveau ein, das von der optischen Weglänge des Mediums und dessen Eigenschaften bestimmt wird.

1.5.3 Pulsverbreiterung durch Phasenverschiebung

Eine Dispersionskompensation ist durch einen Vier-Prismen-Kompensator möglich. Dieser kann zusätzliche Dispersion in entgegengesetzter Polarität hinzufügen. Um diesen geeignet zu dimensionieren, muß man zuvor die Größe der auftretenden Dispersion und dessen Vorzeichen kennen. Die größte und eigentlich entscheidende Dispersion tritt im Laserkristall auf. Man kann diese durch den von der Lichtfrequenz abhängenden Brechungsindex beschreiben, der näherungsweise durch die Sellmeier-Gleichung ([7], [47]) gegeben ist:

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{B_1\lambda^2}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2\lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3\lambda^2}{\lambda^2 - C_3}}. \tag{1.10}$$

Dabei sind die Faktoren B_i und C_i mit i = 1, 2, 3 vom Material abhängige Konstanten.

Sie lassen sich für Saphir und Fused Silica angeben, wobei die Wellenlänge hier in Mikrometer einzusetzten ist.

Koeffizient	Fused Silica	Saphir
B_1	0.696166300	1.023798
B_2	0.4079426	1.058264
B_3	0.8974794	5.280792
$C_1[\mu m^2]$	0.00467914826	0.00377588
$C_2[\mu m^2]$	0.0135120631	0.0122544
$C_3[\mu m^2]$	97.9340025	321.3616

Tabelle 1.1: Koeffizienten zur Berechnung des Brechungsindex [47].

Saphir bzw. Fused Silica sind die für die Dispersion des Kristalls bzw. der Prismen verantwortlichen Elemente. Um diese Dispersionen zu berechnen, soll zunächst angenommen werden, daß der geometrische Weg L nicht frequenzabhängig ist. Später wird diese Einschränkung aufgehoben. Hierdurch soll der Einfluß der frequenzabhängigen Propagationswinkel auf die Dispersion deutlich werden.

Wie vorher schon angesprochen, breiten sich in einem Medium mit frequenzabhängigem Brechungsindex $n(\omega)$ die verschiedenen Frequenzkomponenten auch mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten aus. Nach der optischen Wegstrecke $P(\omega)$, die aus geometrischer Wegstrecke L und Brechungsindex $n(\omega)$ berechnet werden kann, tritt daher eine von der Frequenz abhängige Phasenverschiebung $\phi(\omega)$ auf. Solange die Frequenz hinreichend nahe bei der Zentralfrequenz ω_0 liegt, kann die entstandene Phasenverschiebung in einer Taylorreihe entwickelt werden ([33], [59]). Daher folgt für

$$\phi(\omega) = \frac{\omega}{c} n(\omega) \cdot L = k(\omega) L \text{ oder } = k \cdot P(\omega), \tag{1.11}$$

was zusätzlich als Taylorreihe ausgedrückt werden kann:

$$\phi(\omega) = \phi_0 + (\omega - \omega_0) \frac{d\phi}{d\omega}\bigg|_{\omega_0} + (\omega - \omega_0)^2 \frac{1}{2} \frac{d^2\phi}{d\omega^2}\bigg|_{\omega_0} + ... \tag{1.12}$$

Dabei ist c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und L der Weg, den das Licht im Medium zurückgelegt hat. Der erste Term in Gleichung 1.12 stellt eine konstante Phasenverschiebung ϕ_0 dar, die also für alle Frequenzen konstant ist. Der zweite Term zeigt eine für alle Frequenzen konstante zeitliche Verschiebung, die der mittleren Laufzeit der spektralen Komponenten im Medium entspricht:

$$t_d = \frac{d\phi}{d\omega}. \tag{1.13}$$

Sie ändert die Pulsform nicht. Ob der Puls verbreitert oder komprimiert wird, entscheidet der dritte Term. Man bezeichnet diesen auch als Phasenverschiebung oder Dispersion zweiter Ordnung. Berechnet man also die Dispersion des Mediums über die zweite (totale) Ableitung der frequenzabhängigen Phasenverschiebung $\phi(\omega)$ (Gleichung 1.11) in Abhängigkeit des optischen Weges $P(\omega) = n(\omega)L$, so erhält man zunächst für die erste Ableitung:

$$\frac{d\phi(\omega)}{d\omega} = \frac{n(\omega)}{c}[1 + \frac{\omega}{n(\omega)}\frac{dn(\omega)}{d\omega}] \cdot L = \frac{dk(\omega)}{d\omega} \cdot L = \frac{L}{v_g}, \tag{1.14}$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuumm ist und L der Weg, den das Licht im Medium mit der Gruppengeschwindigkeit v_g zurückgelegt hat. Weiter ergibt sich für die zweite Ableitung

$$\frac{d^2\phi(\omega)}{d\omega^2} = [\frac{2}{c}\frac{dn(\omega)}{d\omega} + \frac{\omega}{c}\frac{d^2n(\omega)}{d\omega^2}] \cdot L = \frac{d^2k(\omega)}{d\omega^2} \cdot L. \tag{1.15}$$

Diese Gleichung läßt sich mit der Näherung $\omega \approx \omega_0$ umschreiben, indem man statt dessen die Indexänderung im Verhältnis zur Wellenlänge angibt (siehe Anhang A):

$$\frac{d^2\phi(\omega)}{d\omega^2} \approx \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\frac{d^2n(\lambda)}{d\lambda^2} \cdot L = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\frac{d^2(n(\lambda) \cdot L)}{d\lambda^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\frac{d^2P(\lambda)}{d\lambda^2}, \tag{1.16}$$

mit $P(\lambda) = n(\lambda) \cdot L$. Hier wurde also angenommen, daß der geometrische Weg L nicht frequenzabhängig ist. Dies ist der Fall, wenn das Licht senkrecht auf das Medium trifft, und dann nicht unter verschiedenen Winkeln abgelenkt wird. Ein typischer Wert bei 830nm für Saphir ist dann 580fs^2/cm, während man für Fused Silica 360fs^2/cm erhält.

Pulsverbreiterung durch das aktive Medium: Im Falle von Prismen, oder einem unter Brewsterwinkel geschnittenen Kristall, muß beachtet werden, daß der geometrische Weg L, aufgrund eines wellenlängeabhängigen Winkels $\beta(\lambda)$, ebenfalls von der Wellenlänge abhängig wird. Dadurch wird noch zusätzlich positive Dispersion hinzugefügt. In Gleichung 1.11 wird daher L durch $L(\omega)$ ersetzt, wobei dann Gleichung 1.16 weiterhin gilt.

Über den Sinussatz kann die optischen Weglänge $P(\lambda) = n(\lambda) \cdot L(\lambda)$ im Kristall berechnet werden.

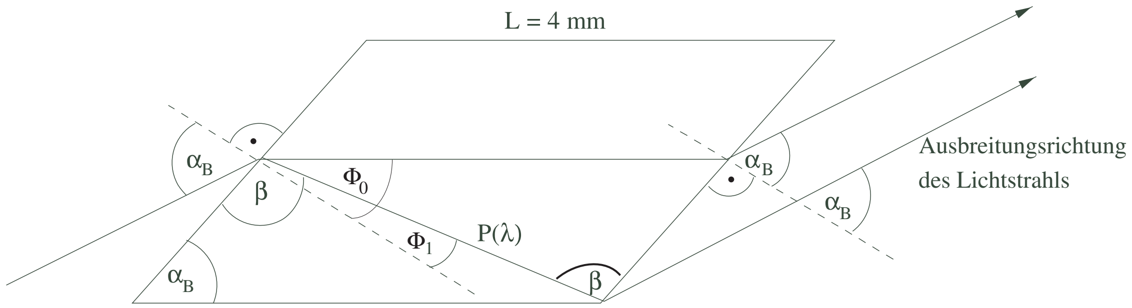

Abbildung 1.16: *Kristall und frequenzabhängige Winkel.*

Es zeigt sich, daß dieser vom Brewsterwinkel α_B, dem Brechungsindex $n(\lambda)$, der Kristallänge L und dem Brechungswinkel $\beta(\lambda)$ abhängt:

$$P(\lambda) = n(\lambda)L\frac{\sin\alpha_B}{\sin\beta(\lambda)}, \tag{1.17}$$

wobei $\alpha_B = \arctan(n(\lambda_0))$ ist. Abbildung 1.16 zeigt den für [2] $\lambda_0 = 800$nm unter Brewsterwinkel geschnittenen Kristall und die entsprechenden frequenzabhängigen Winkel $\beta(\lambda)$, unter dem sich die Welle im Medium ausbreitet. Dieser Winkel läßt sich über $\Phi_0(\lambda_0)$ und $\Phi_1(\lambda)$ berechnen:

$$\begin{aligned} \beta(\lambda) &= \pi - \alpha_B - (\Phi_0(\lambda_0) - \Phi_1(\lambda)) \text{ mit} \\ \Phi_0(\lambda_0) &= \arcsin[\frac{\sin(\alpha_B)}{n(\lambda_0)}] \text{ und} \\ \Phi_1(\lambda) &= \arcsin[\frac{\sin(\alpha_B)}{n(\lambda)}]. \end{aligned} \tag{1.18}$$

Setzt man Gleichung 1.17 - unter Verwendung von $n(\lambda)L \rightarrow n(\lambda)L(\lambda) = P(\lambda)$ - in Gleichung 1.16 ein, so läßt sich die Dispersion zweiter Ordnung für einen unter Brewsterwinkel geschnittenen Kristall errechnen. Abbildung 1.17 zeigt das Ergebnis aus dieser Rechnung.

[2]Bemerkung: Der Kristall wurde ursprünglich unter Brewsterwinkel für eine Wellenlänge von 800nm zugeschnitten. Die emittierte Wellenlänge der Strahlung lag allerdings bei 830nm. Daher rührt die Unstimmigkeit zu Abbildung 1.17

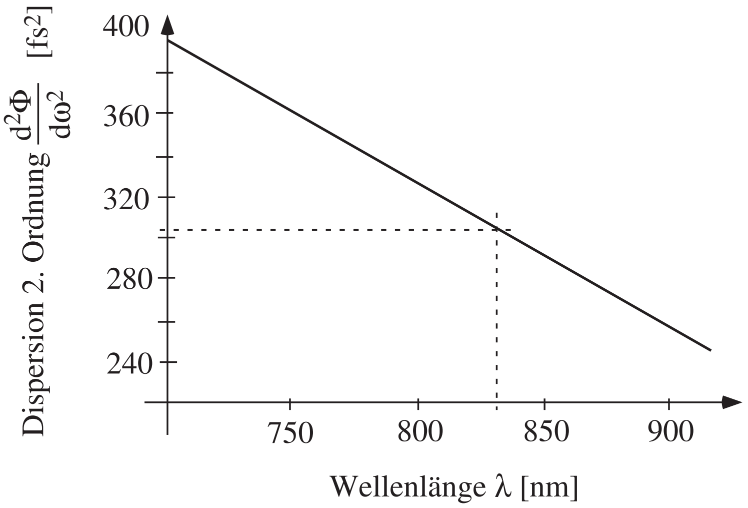

Abbildung 1.17: *Kristalldispersion 2. Ordnung (L = 4mm).*

Anhand dieser Abbildung kann nun eine positive Dispersion von ca. $305 fs^2$ abgelesen werden, die es anschließend zu kompensieren gilt. Dabei wurde angenommen, daß die Mittenwellenlänge bei 830nm liegt und die Länge des Kristalls 4mm beträgt.

Skaliert man den erhaltenen Wert für die Kristalldispersion auf 1cm, so ergibt sich $762 \mathrm{fs}^2/\mathrm{cm}$. Der Vergleich mit der vorher berechneten Dispersion für Saphir ($580 \mathrm{fs}^2/\mathrm{cm}$) - ohne Betrachtung eines frequenzabhängigen Propagationswinkels $\beta(\lambda)$ - zeigt eine Steigerung um fast 25 Prozent. Der Einfluß durch diese Winkeldispersion kann also nicht vernachlässigt werden.

Pulsverkürzung durch Kompensationsprismen: Eine Möglichkeit, die durch optische Elemente hervorgerufene Phasenverschiebung zu eliminieren, ist die Verwendung eines Vier-Prismen-Kompensators. Die Idee ist, daß normal dispersive Prismen zwar ebenfalls eine positive Dispersion machen, daß aber in Abhängigkeit des Abstands zweier Prismen zueinander, eine negative Dispersion erzeugt werden kann.

In Abbildung 1.18 ist die Vorgehensweise aufgezeichnet. Zwei Prismen P1 und P2 werden im Abstand L aufgestellt. Während der rotverschobene Strahl durch ein normal dispersives Prisma P1 unter einem Winkel γ abgelenkt wird, zeigt der blauverschobene Anteil eine größere Brechung. Der Strahl wird also spektral aufgefächert. Tritt dieser divergente Strahl in das zweite Prisma P2 ein, so muß der rotverschobene Anteil dort eine längere Wegstrecke zurücklegen. Dies entspricht aber gerade einer negativen Dispersion,

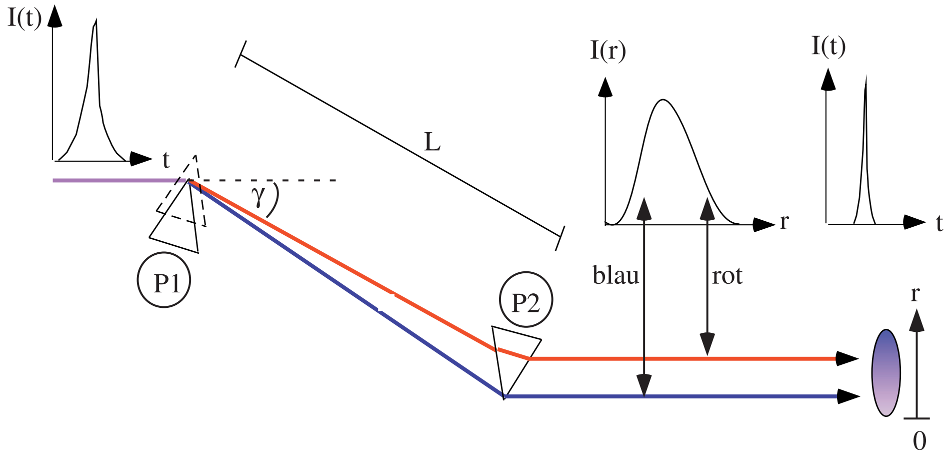

Abbildung 1.18: *Dispersionskompensation durch zwei Prismen - schematisch.*

die um so höher ist, je größer der Abstand zwischen den beiden Prismen ist.

Da es allerdings schon im ersten Prisma zu einem Auffächern des Strahls kommt, werden dort die hochfrequenten Anteile auf eine längere Strecke geschickt. Dieser Effekt kann zwar nicht vernachlässigt werden, ist aber wegen der geringeren optischen Wegstrecke im Vergleich zur Wegstrecke im zweiten Prisma, klein. Man nutzt diesen Effekt sogar zur sogenannten Überkompensation aus. Das heißt, man fügt - durch den entsprechenden Abstand der beiden Prismen zueinander - ein wenig mehr negative Dispersion hinzu, als zur Kompensation notwendig wären. Danach kann das Prisma P1 dosiert in den Strahl geschoben werden. Da die Änderung hierdurch sehr klein ist, erhält man eine genauere Einstellmöglichkeit.

Um dies realisieren zu können, benötigt man prinzipiell nur zwei Prismen. Da der Strahl allerdings hinter dem zweiten Prisma zwar wieder parallel, aber doch spektral verteilt ist, muß auch dies wieder aufgehoben werden. Dazu kann ein weiteres Prismenpaar genutzt werden [26].

Symmetrisch um den Auskoppler wird je ein Paar in gezeigter Konfiguration plaziert (Abbildung 1.19). Der zu zehn Prozent transparente Auskoppler kann nun einerseits den Puls im Resonator auf dem gleichen Weg zurückschicken, oder er entläßt diesen, wobei der Strahl auf einem zum ersten Prismenpaar symmetrischen Weg wieder spektral zusammen geführt wird. Hinter diesen Prismen, also schon außerhalb des Resonators ist der Strahl nun parallel, spektral übereinander gelegt und in seiner Dispersion in zweiter Ordnung kompensiert. Beachten muß man hier allerdings, daß sich durch die Verwendung von zwei

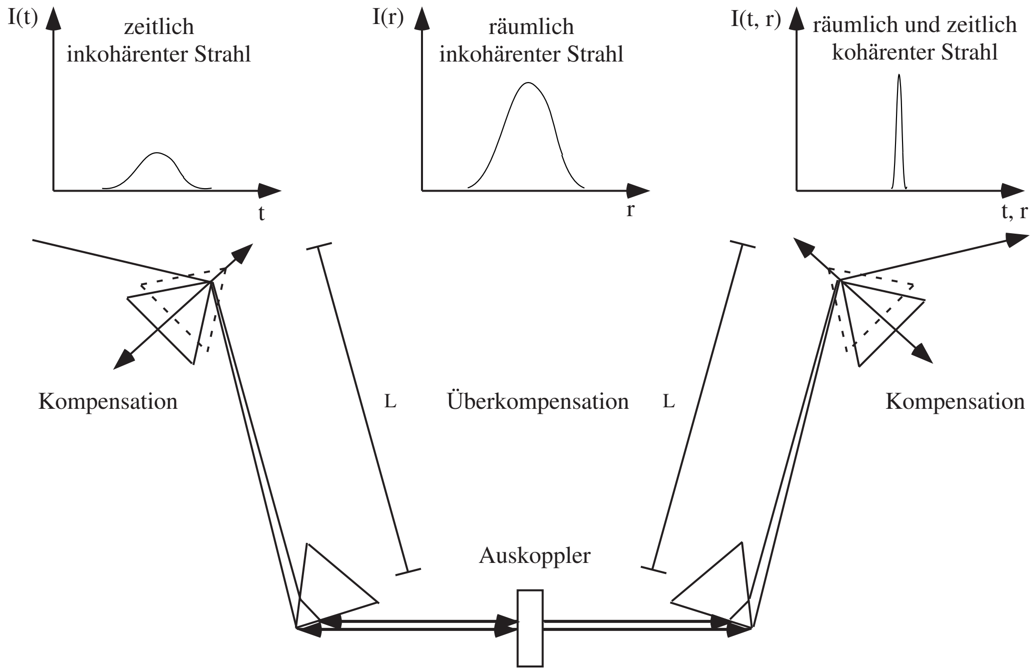

Abbildung 1.19: *Dispersionskompensation durch vier Prismen - schematisch.*

Prismenpaaren die zusätzlich erzeugten negativen und positiven Dispersionen verdoppelt haben. Pro Prismenpaar muß also nur die Hälfte kompensiert werden. Dazu notwendig ist aber vor allem die vom Abstand der Prismen und dem Material abhängende Phasenverschiebung zweiter Ordnung. Diese soll nun hergeleitet werden:

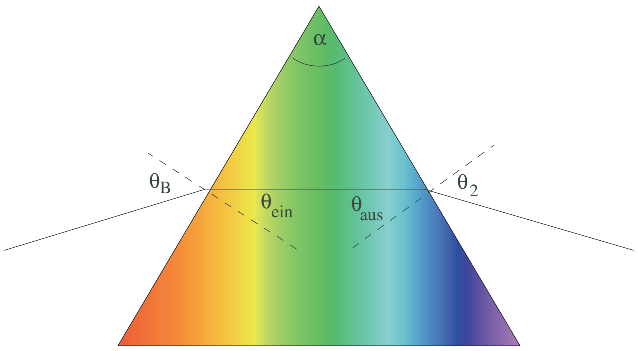

Abbildung 1.20: *Strahlenverlauf im ersten der vier Prismen.*

Trifft der Strahl das erste der vier Prismen, so findet man mit Hilfe des Snellius'schen Brechungsgesetzes schnell einen Zusammenhang zwischen dem Brewsterwinkel Θ_B und dem Winkel Θ_2, unter dem der Strahl aus diesem Prisma austritt. Aus Abbildung 1.20

läßt sich ablesen, daß

$$\begin{aligned}\Theta_{ein}(\lambda) &= \arcsin\left(\frac{\sin\Theta_B}{n(\lambda)}\right) \text{ und}\\ \Theta_{aus}(\lambda) &= \arcsin\left(\frac{\sin\Theta_2}{n(\lambda)}\right)\end{aligned} \tag{1.19}$$

gilt und n der Brechungsindex des Prismenmaterials ist. Unter Verwendung von

$$\begin{aligned}\Theta_{aus}(\lambda) &= \alpha - \Theta_{ein}(\lambda) \text{ mit}\\ \alpha &= \pi - 2\Theta_B,\end{aligned} \tag{1.20}$$

erhält man dann für $\Theta_2(\lambda)$

$$\Theta_2(\lambda) = \arcsin\left[n(\lambda)\sin\left[\pi - 2\Theta_B - \arcsin\left(\frac{\sin\Theta_B}{n(\lambda)}\right)\right]\right]. \tag{1.21}$$

Betrachtet man eine ebene Welle, die durch beide Prismen propagiert, dann ist die Strecke $\overline{CB}$ definiert durch die Lage der beiden Prismen und dient im folgenden als Referenz für den betrachteten Lichtstrahl.

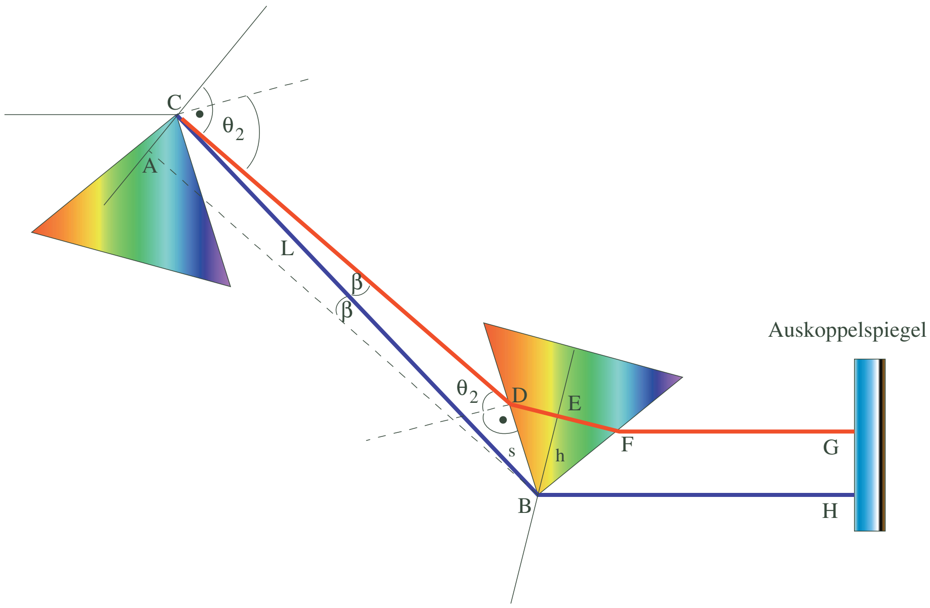

Abbildung 1.21: *Strahlengang innerhalb des Laserresonators.*

Der Lichtstrahl schließt mit $\overline{CB}$ den Winkel β ein. Der optische Weg $\overline{CDE}|_{opt}$ entspricht dem geometrischen Weg $\overline{AB}$, genauso wie der Weg $\overline{BH}$ dem optischen Weg $\overline{EFG}|_{opt}$ entspricht. Um eine Aussage über die wellenlängenabhängige optische Weglänge $P(\lambda)$ machen zu können, muß demnach nur der optische Weg $\overline{CDE}|_{opt}$ betrachtet werden, da nur dieser Weg für verschiedene Wellenlängen variiert. Daher folgt

$$P(\lambda) = 2\overline{CDE}|_{opt} = 2\overline{AB} = 2L\cos\beta, \tag{1.22}$$

wobei $L = \overline{CB}$ ist. Alle spektralen Komponenten verlassen das zweite Prisma wieder unter dem Brewsterwinkel. Die einzelnen Komponenten liegen jetzt jedoch nicht mehr räumlich übereinander. Das Prismenpaar außerhalb des Resonators wird daher benötigt, um wieder einen räumlich kohärenten Strahl zu erhalten. Durch den Faktor 2 wird dies bereits berücksichtigt.

Setzt man Gleichung 1.22 in Gleichung 1.16 ein, so erhält man unter Ausnutzung der Kettenregel

$$P = P(\beta(n(\lambda))) \tag{1.23}$$

folgendes Ergebnis (siehe Anhang B):

$$\begin{aligned}\frac{d^2\phi(\omega)}{d\omega^2} &= \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\cdot\frac{d^2P}{d\lambda^2} = \\ &= \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}4\left[\frac{d^2n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3}\right)\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2\right]\frac{h\cos\Theta_2}{\cos(\alpha/2)} \\ &\quad -8\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2 L\cos\left(\arcsin\left(\frac{h\cos\Theta_2}{L\cos(\alpha/2)}\right)\right).\end{aligned} \tag{1.24}$$

Der erste Term ist für ein Prismenpaar mit normaler Dispersion ($d^2n/d\lambda^2 > 0$) und $n > 1$ auch immer positiv. Diese entsteht dadurch, daß sich der Strahl durch die Strecke $\overline{DE}$ im dispersiven Prismenmaterial ausbreiten muß. Zusammen mit der positiven Dispersion des Kristalls muß diese durch den zweiten Term kompensiert werden. Es wird daher bestätigt, daß die negative Dispersion durch frequenzabhängige Brechung erzeugt wird und nur vom Prismenabstand L, und vom Material selbst abhängt. Der Abstand zum zweiten spiegelsymmetrischen Prismenpaar hat keinen Einfluß auf die Dispersion.

In Abbildung 1.22 ist nun eine graphische Darstellung der durch die Prismen erzeugten Dispersion gezeigt. Man erkennt, daß der Zusammenhang zwischen Dispersion und Prismenabstand den erwarteten linearen Verlauf hat. Liegen die beiden Prismen direkt aneinander, ist der Abstand also Null, so wird nur positive Dispersion erzeugt, und die Prismen wirken, wie ein schiefer Quader. Die Dispersion zweiter Ordnung beträgt dann ca. $400 fs^2$. Mit dem Abstand nimmt dann der Einfluß des zweiten Terms aus Gleichung 1.24 zu. Es wird negative Dispersion zur Gesamtdispersion hinzugefügt. Nach ca. 20cm ist dann die Phasenverschiebung, die durch die Prismen selbst erzeugt wird, kompensiert worden.

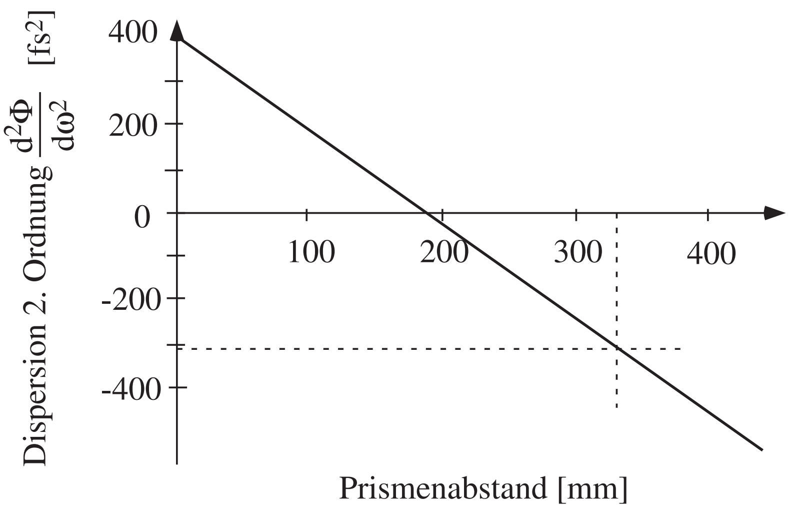

Abbildung 1.22: *Dispersion 2.Ordnung durch einen Vier-Prismen-Kompensator als Funktion des Prismenabstandes L für eine mittlere Wellenlänge von 830nm und h = 4mm.*

Die positive Dispersion, die durch das aktive Medium hervorgerufen wird, betrug bei einer Kristallänge von 4mm ca. $305 fs^2$. Wird also ein Prismenabstand von ca. 32 cm gewählt, so kann die Gesamtdispersion, die durch Kristall und Prismen erzeugt wird, komplett kompensiert werden. Experimentell wird man einen Abstand von mehr als 32cm einstellen, und so das System überkompensieren. Die zum Abgleich notwendige positive Dispersion erhält man dann durch das Verschieben des ersten und letzten der vier Prismen senkrecht zum Strahl. Zweckmäßigerweise benutzt man Brewsterprismen, um Reflektionsverluste klein zu halten und einen symmetrischen Strahlengang zu wahren. Diese sind zusätzlich so geschnitten, daß sie unter Einschuß im Brewsterwinkel, für 830nm Zentralwellenlänge, eine minimale Ablenkung machen.

1.6 Analyse der gepulsten Laserstrahlung

1.6.1 Messung der mittleren Leistung

Die Leistung, die der aufgebaute Titan-Saphir-Puls-Laser im Mittel zur Verfügung stellt, kann gegen die Pumpleistung des Coherent Verdi gemessen und aufgetragen werden. Aufgrund der relativ hohen Laserschwelle im Vergleich zu einem cw-Laser - durch die Verluste am Absorber, etc. - setzt der Betrieb dieses Lasers erst bei relativ hohen Pumpleistungen, ca. 2W ein.

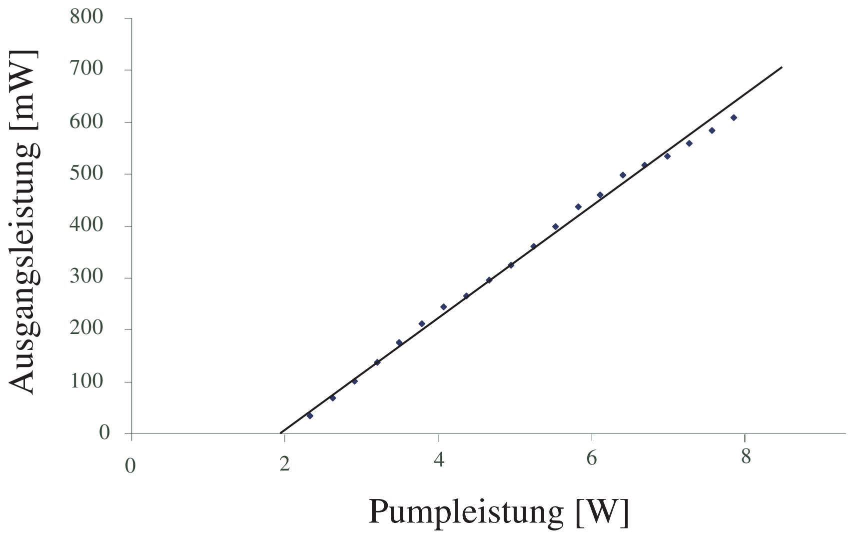

Abbildung 1.23: *Ausgangsleistung gegen Pumpleistung.*

Aus Abbildung 1.23 kann man weiterhin entnehmen, daß die Effizienz der Umwandlung einen linearer Verlauf nimmt. Die Steigung entspricht dabei einem Wirkungsgrad von ca. 11 Prozent. Gemessen wurde die Leistung des Ti:Sa-Lasers bis zu einer Pumpleistung von 8W, was mit der oberen Grenze des verwendeten Verdis übereinstimmt. Hier emittiert der Pulslaser - bei einer Pulsbreite von 500fs - eine mittlere Leistung von ca. 660mW. Reduziert man die Pulsbreite auf 50fs, so wird die maximal erreichbare mittlere Leistung auf ca. 400mW beschränkt.

1.6.2 Messung des Pulsabstandes

Abbildung 1.24 zeigt eine experimentelle Aufnahme der ausgesandten Pulse. Der Pulsabstand ist dabei invers proportional zur Repetitionsfrequenz (125MHz).

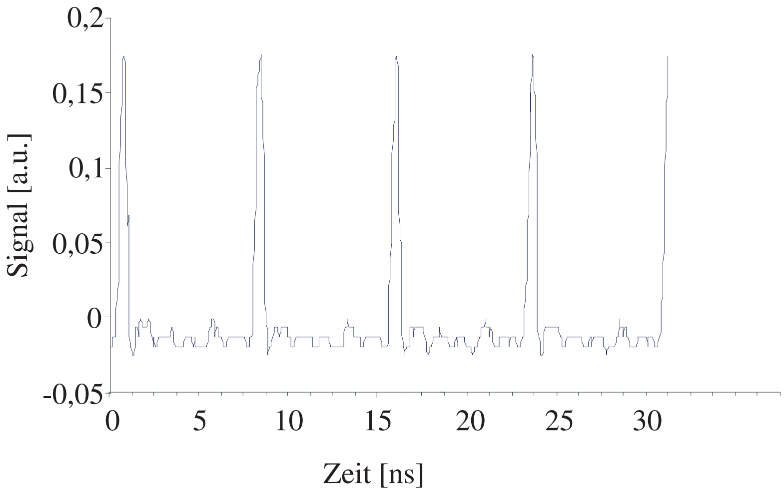

Abbildung 1.24: *Aufnahme der Repetitionsrate.*

Die Messung wurde hier mit einer schnellen Photodiode durchgeführt, deren Bandbreite 1GHz betrug. Die Breite der Pulse, die hier zu sehen ist, stimmt also nicht mit der realen Pulsbreite überein. Sie ist in diesem Fall durch die Bandbreite des Detektors vorgegeben, die durch Kapazität und Impedanz bestimmt wird.

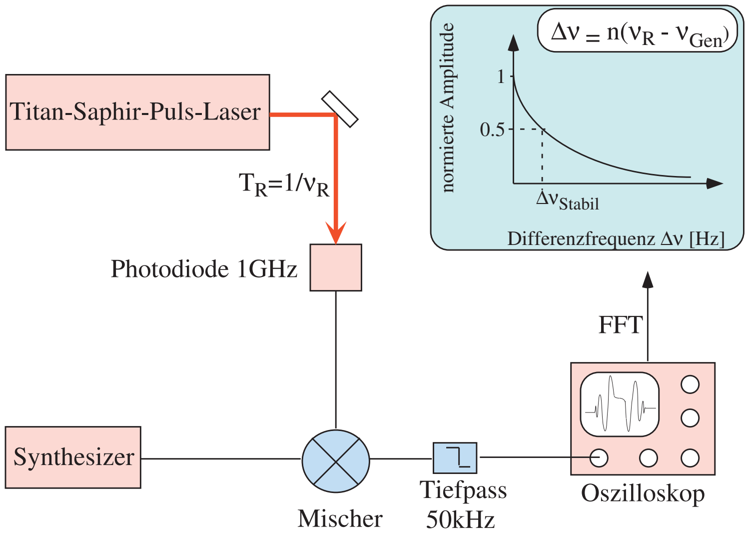

Abbildung 1.25: *Aufbau zur Messung der Pulsstabilität.*

Zur Messung der Repetitionsrate gehört auch die relative Stabilität der Pulsabstände. Dazu wurde der Laserstrahl auf die Photodiode mit 1 GHz Bandbreite fokussiert, und das Signal mit Hilfe einer, von einem rf-Synthesiser (Model: Hameg 8133) ausgegebenen, Referenzfrequenz moduliert (Abbildung 1.25). Diese entsprach dabei dem n-fachen der Repetitionsfrequenz.

Stimmt die Generatorfrequenz mit dem k-fachen der Laserrepetitionsfrequenz exakt überein, so ergibt sich nach der Modulation ein konstantes Signal. Die Summenfrequenz (2ω) kann mit Hilfe eines Tiefpasses herausgefiltert werden. Da allerdings die Repetitionsfrequenz des Lasers und auch die Generatorfrequenz nicht stabil sind, tritt eine Schwebungsfrequenz $\Delta\nu$ auf, die man analysieren kann. Vorraussetzung für die Messung der Stabilität des Lasers ist, daß die Genauigkeit der Generatorfrequenz höher ist. Laut Spezifikation des Herstellers beträgt sie 0.2ppm. Das erhaltene Schwebungssignal wurde anschließend über einen Tiefpass mit 50kHz Grenzfrequenz gegeben und mittels Computer aufgenommen. Das erhaltene Zeitsignal wird dann einer Fourier-Transformation unterworfen, und die Amplitude der Transformierten untersucht. Man erhält eine mit der Frequenz abfallende Amplitude, dessen 3dB-Punkt dann die Stabilität wiedergibt. Stellt man am Synthesizer das n-fache der Repetitionsfrequenz (ν=nν_R) ein, so sollte sich auch die Abweichung um das n-fache erhöhen.

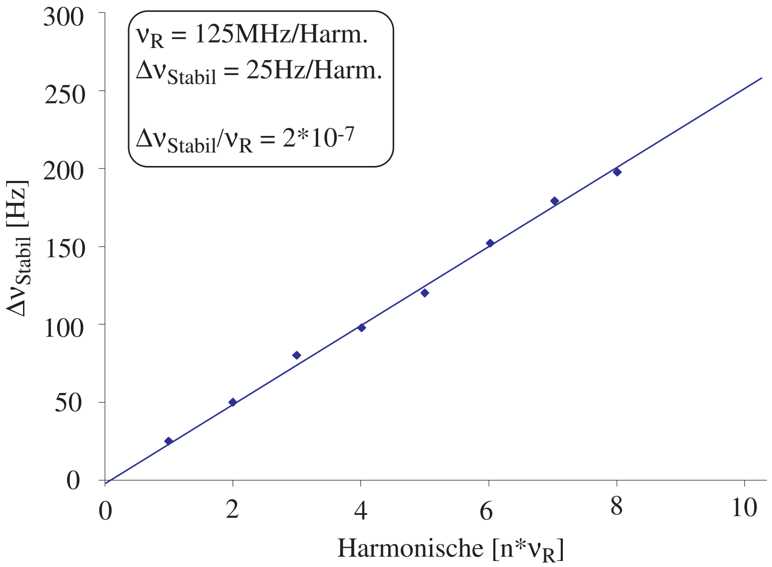

Abbildung 1.26: *Abweichung der Pulsfrequenz pro Harmonischer, gemessen gegen die Stabilität des Synthesisizers.*

Durch lineare Regression läßt sich nun die Stabilität der Repetitionsfrequenz pro Harmonische angeben. Es zeigt sich eine Frequenzabweichung von 25Hz pro Harmonischer, was einer relativen Stabitität von $2{\cdot}10^{-7}$ entspricht. Allerdings ist dies gerade die Stabilität des rf-Generators, was bedeutet, daß der Laser eine höhere Stabilität besitzt.

1.6.3 Messung der Pulslänge

Die Pulslänge kann nicht so einfach bestimmt werden, wie der Abstand. Hierzu muß man ein Verfahren benutzen, das nicht von der Bandbreite des Meßsystems beeinflußt wird. Von der Gruppe um Frau Prof. Woggon (Universität Dortmund) konnte ein Autokorrelator ausgeliehen, und jetzt auch für uns nachgebaut werden. Mit diesem war eine Messung der Pulslänge möglich. Das Prinzip des Autokorrelators basiert auf der Erzeugung der Summenfrequenz durch Einstrahlung zweier gekreuzter Laserpulse innerhalb eines Verdopplungskristalls. Neben einem transversalen Überlapp, benötigt man auch einen longitudinalen, der periodisch durch die Verschiebung eines Retroreflektor erzeugt wird. Abbildung 1.27 verdeutlicht dies.

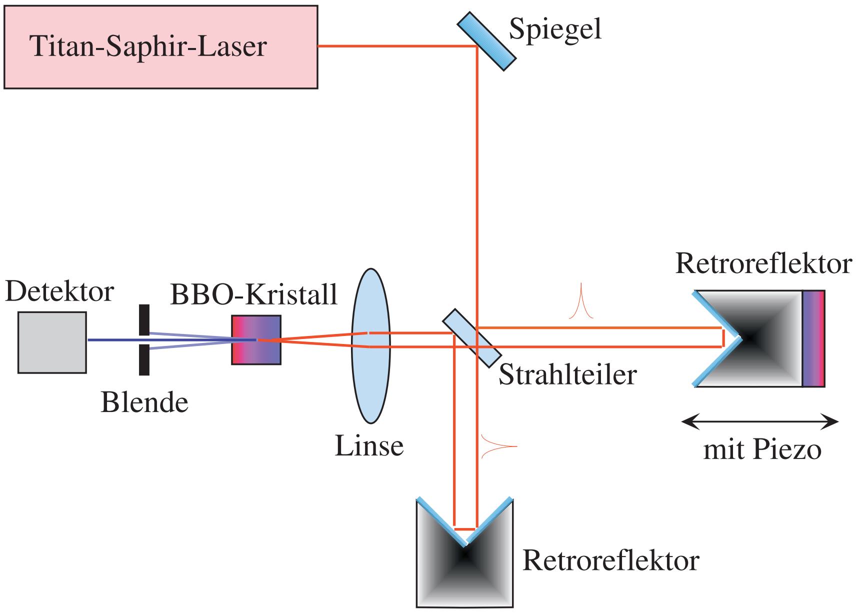

Abbildung 1.27: *Aufbau zur Korrelation von Laserpulsen [45].*

Teilt man den durch den Laser erzeugten Strahl in zwei gleiche Teile und schickt diese auf unterschiedliche Wege, indem eine Strecke periodisch verändert wird, so kann damit die relative Lage der beiden Pulse zueinander variiert werden. Den longitudinalen Überlapp erzeugt man also, indem der eine Puls über den anderen hinweg geschoben wird.

Im nichtlinearen Medium werden nun die Pulse unter einem kleinen Winkel gekreuzt. Haben die beiden Pulse den gleichen optischen Weg genommen, entsteht also zu einem gewissen Zeitpunkt eine Kohärenz, so führt dies im Verdopplungskristall zur Bildung der Summenfrequenz. Die Intensität dieser entstandenen Oberwelle ist dann proportional zum Überlapp der beiden Einzelpulse. Allerdings ist die Richtung, in der diese Oberwelle abgestrahlt wird, durch die Impulserhaltung vorgegeben. Wenn beide Pulse unter dem gleichen Winkel zur Normalen des Kristalls eingestrahlt werden, ist die Richtung daher durch die Normale selbst gegeben. Die mit der Summe der Einzelfrequenzen gebildete Welle breitet sich also senkrecht zur Kristalloberfläche aus. Natürlich entstehen neben der Summenfrequenz auch immer zwei frequenzverdoppelte Oberwellen aus den Einzelpulsen, deren Ausbreitungsrichtung sich allerdings nicht ändert. Sie werden nicht benötigt und können durch eine Blende eliminiert werden.

Die Summenwelle kann mit einem Detektor nachgewiesen werden. Dabei ist diese bei konstantem transversalen Überlapp nur noch von der Weglängenänderung des Retroreflektors abhängig. Man kann also davon sprechen, daß ein Puls den anderen auf seine zeitliche Breite untersucht. Der Weglängenunterschied des Retroreflektors ist über die Lichtgeschwindigkeit direkt proportional zum zeitlichen Abstand der beiden Pulse, und damit auch proportional zur Pulsbreite. Beachten muß man hier lediglich noch den durch das Gauß-Profil der Pulse erhaltenen Korrelationsfaktor [45]. Das gemessene Signal wird durch die Faltung zweier Gaußprofile bestimmt und ist daher um den Faktor $\sqrt{2}$ breiter, als das Einzelprofil mit der realen Pulsbreite (vergleiche Gleichung 1.6 mit Gleichung 1.9).

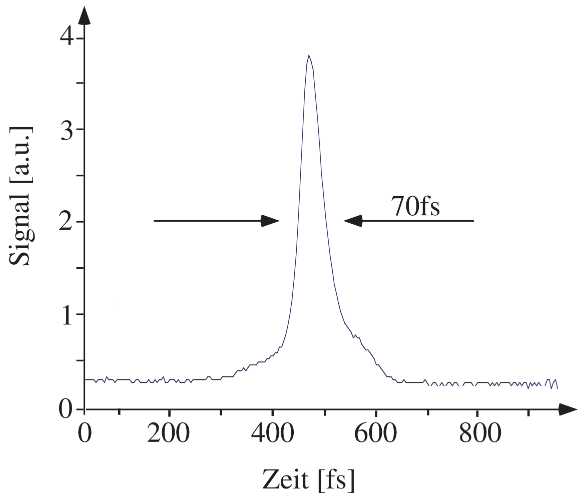

Abbildung 1.28: *Autokorrelationsmessung zur Bestimmung der Pulsbreite.*

Abbildung 1.28 zeigt eine solche Autokorrelationsmessung. Die Höhe ist proportional zur Intensität der Oberwelle, und damit zum Überlapp der beiden Einzelpulse. Die sich daraus ergebende Pulsbreite konnte zu 50fs bestimmt werden, wobei hier der Autokorrelationsfaktor bereits berücksichtigt wurde.

1.7 Zusammenfassung

In Abbildung 1.29 ist das komplette System dargestellt. Aufgebaut wurde es auf einem schwingungsgedämpften Breadboard. Der Strahl des Pumplasers wird über verschiedene hochreflektierende Spiegel in den Resonator bzw. den Kristall fokussiert.

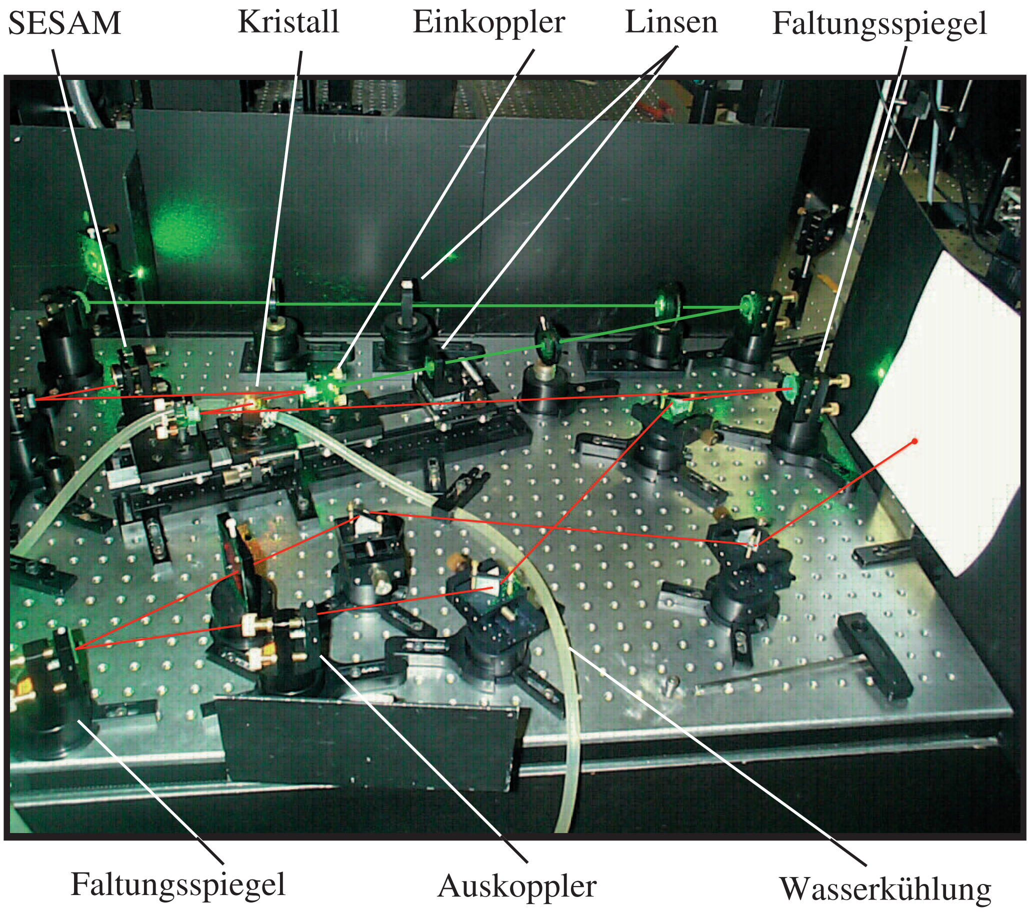

Abbildung 1.29: *Photographie des Titan-Saphir-Pulslasers. Der Strahlengang des Lasers ist angedeutet.*

Dazu sind die Kristallspiegel im Bereich von 488-532nm transparent, und von 710-890nm hochreflektierend. Zu erkennen sind im Pumpstrahl auch die beiden Linsen, die den Fokus im Kristall verbessern sollen. Wenn der Kristall Laserlicht im Bereich von 830nm emittiert, wird dies zunächst über die Faltungsspiegel und zwei der vier Prismen zum Auskoppler geführt. Dort werden 10 Prozent der Laserstrahlung ausgekoppelt. Der überwiegende Teil wird allerdings im geschlossenen Resonator wieder zurückreflektiert, und gelangt vom Kristall über den Einkoppler zu einem weiteren Spiegel, der die Strahlung auf den SESAM fokussiert. Ist der Absorber gesättigt, wird der komplette Puls zum Kristall zurückreflektiert. Um die Effizienz zu erhöhen, wird nicht nur der Pumpstrahl, sondern auch der Puls in den Kristall fokussiert. Dies geschieht mit den sphärischen Kristallspiegeln. Auf dem Weg zum Auskoppler propagiert die optische Welle durch die zwei im Resonator befindlichen Prismen. Dort wird die Dispersion 2.Ordnung zur Hälfte kompensiert, während die andere Hälfte auf dem Rückweg, bzw. durch die äußeren Prismen ausgeglichen wird. Diese stehen dazu symmetrisch zum inneren Prismenpaar, wobei der Auskoppler die Symmetrieachse bildet.

Um den Kristall nicht zu beschädigen und um maximale Effizienz zu erhalten, wird dieser von Wasser gekühlt. Eine optimale Effizienz erhält man außerdem, wenn der Pumpstrahl und der gepulste Laserstrahl genau übereinander liegen. Dazu können nicht nur die Resonatorspiegel, sondern auch der Kristall und die Linsen um alle Achsen verschoben und rotiert werden. Insbesondere wurde dazu eine Verschiebe- und Rotationseinheit aufgebaut, mit der speziell zweite Linse, Einkoppler, Kristall und zweiter Kristallspiegel optimal justiert werden können.

Auch für die Justage der vier Prismen wurde ein Rotations- und Translationstisch auf einem höhenverstellbaren Sockel konstruiert. Hiermit kann der Brewsterwinkel, unter dem die minimale Ablenkung stattfindet, leicht gefunden werden, während durch die variable Translation auch eine Abstandsänderung möglich wird.

Insgesamt bietet das aufgebaute System die Möglichkeit zur Erzeugung ultrakurzer Pulse im Bereich von 50fs (siehe Anhang G). Bei einer Repetitionsfrequenz von 125MHz und einer mittleren Leistung von ca. 400mW (bei 50fs) erreichen wir jetzt eine Pulsleistung von ca. 64kW, was etwa den zuvor verlangten Anforderung entspricht. Die Frequenzabweichung der Repetitionsfrequenz liegt bei weniger als 25Hz, was einer relativen Stabilität von $2 \cdot 10^{-7}$ entspricht. Die emittierte Wellenlänge konnte zu 830nm gemessen werden.

Kapitel 2

Gepulste ODEPR in Transmission

In diesem Experiment soll die optische Bestrahlung eines Systems durch ein gepulstes Laserfeld mit der paramagnetischen Resonanzspektroskopie kombiniert und anschließend optisch detektiert werden. Während die Probe durch ein Mikrowellenfeld magnetisch angeregt wird, soll der magnetisch zirkulare Dichroismus die EPR-Signale auf die optische Welle übertragen. Senkrecht zum Mikrowellenfeld hebt ein statisches Magnetfeld zuvor die Zeeman-Entartung auf. Die Kombination aus den genannten Prinzipien führt so auf die gepulste, optisch detektierte Elektronen-Spin-Resonanz.

Im ersten Teil dieses Kapitels wird der Testkandidat Rubin vorgestellt werden. Die Eigenschaften des Kristalls werden die experimentellen Voraussetzungen mitbestimmen. Danach wird die Wirkung eines gepulsten Laserfeldes auf ein magnetisch angeregtes System theoretisch abgeleitet. Im letzten Teil wird auf das Spektrometer eingegangen, und die Ergebnisse vorgestellt.

2.1 Rubin

Rubin ist ein, bezüglich der MCD [12] und der EPR ([9], [10]), ausreichend bekanntes System ([31], [66]), sodaß sich dieser Kristall hervorragend als Testkanditat der gepulsten ODEPR eignet.

Rubin besteht aus einem Aluminiumoxid-Kristall, der mit Chrom-Ionen dotiert ist. Da Chrom für die Farbe des Kristall verantwortlich ist, erscheint dieser mit zunehmender Konzentration in rötlicher Färbung. Die Konzentration von Cr^{3+} im Al_2O_3-Gitter lag in diesen Messungen bei $5\cdot 10^{-4}$ pro Aluminiumatom.

2.1.1 Struktur des Kristalls

Al_2O_3 oder Korund hat eine trigonale verzerrte oktaedrische Symmetrie. Dabei ist die trigonale oder c-Achse dadurch ausgezeichnet, daß sie senkrecht zu den Ebenen der Sauerstoffatome zeigt. Die Symmetrie-Punkt-Gruppe von Cr^{3+} in Rubin ist C_3 ([31]), eine dreizählige Symmetrieachse. Dabei nehmen die Sauerstoffatome die Konfiguration des hexagonal dichtest gepackten Gitters ein. Zwischen den Sauerstoffebenen platzieren sich die Aluminium-Ionen. Die Einheitszelle stellt sich als Rhomboeder dar und beinhalten dabei 18 Anionen und 12 Kationen.

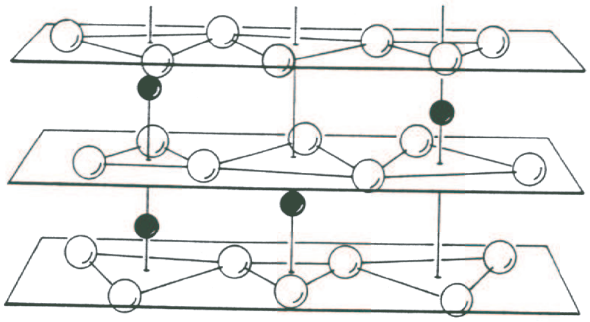

Abbildung 2.1: *Struktur von Korund.*

Die Gitterkonstanten sind a = 4.763Å und c = 13.003Å [27]. Neben der C_3-Symmetrie existieren noch vier weitere Beiträge mit niedrigerer Symmetrie [31], die nicht vernachlässigt werden können. Zunächst eine trigonale Verzerrung des Korund-Gitters entlang der C_3-Achse. Weiterhin verringert der Versatz der Chrom-Ionen, ebenfalls entlang der C_3-Achse, die Symmetrie. Die Dreiecke, die aus dem Sauerstoff gebildet werden, zeigen unterschiedliche Größen, was eine Inversionssymmetrie verhindert. Der vierte Grund für eine Reduktion der Symmetrie liegt im Versatz zwischen den Sauerstoffdreiecken. Schaut man auf die Ebenen, entlang der c-Achse, so erkennt man einen leichten Winkelunterschied von 4.3^0 zwischen den Dreiecken zwei aufeinander folgender Ebenen. Gitterschwingungen können natürlich auch die Symmetrie erniedrigen.

2.1.2 Elektronische Eigenschaften

Die Elektronenkonfiguration von Cr^{3+} lautet [Ar]$3d_3$ [42], und besitzt daher 21 Elektronen, von denen 18 in inneren abgeschlossenen Schalen untergebracht sind. Die drei auf der äußeren Schale plazierten Elektronen bilden mit einem maximalen Gesamtspin von S

= 3/2 eine Multiplizität von 4. Der Gesamtdrehimpuls L des Multi-Elektronen-Systems ergibt sich aus der Summe der Einzeldrehimpulse zu L = 3 und stellt damit einen ^{4}F-Grundzustand eines freien Ions dar.

Nun muß für Rubin auch das Kristallfeld in Betracht gezogen werden, das hauptsächlich vom Sauerstoff bestimmt wird. Sugano und Tanabe haben den Einfluß von Korund auf das freie Chrom-Ion berechnet [66]. Die Energie-Niveaus des $3d_3$-Ions in einem oktaedrischen Kristallfeld zeigt Abbildung 2.2, das Sugano-Tanabe-Diagramm.

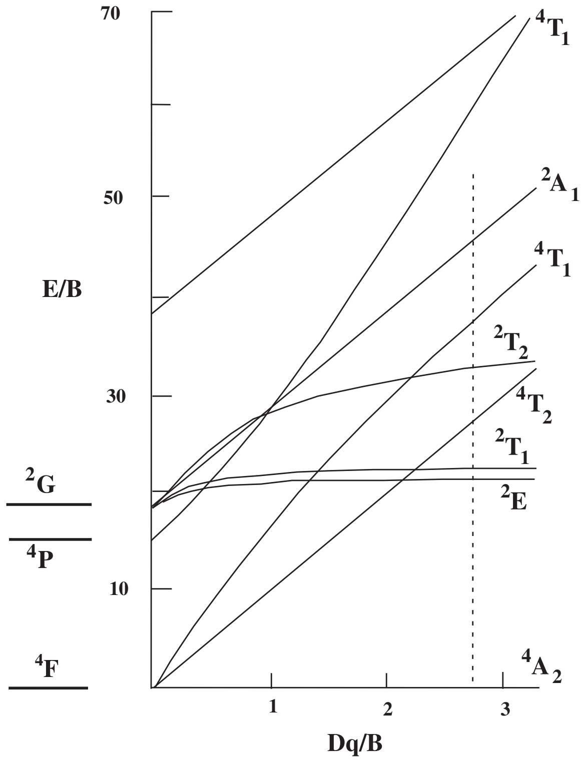

Abbildung 2.2: *Sugano-Tanabe-Diagramm: Einfluß des Kristallfeldes auf das freie Chrom-Ion.*

Auf der linken Seite des Diagramms sind die Energieniveaus eines freien Cr-Ions dargestellt, die man erhält, wenn man den Einfluß des Kristallfeldes Dq vernachlässigt. Das Diagramm zeigt also in Abhängigkeit der Größe des Kristallfeldes - in Einheiten von B der Wechselwirkung der Elektronen untereinander - die Energieniveaus, die sich aus der Wechselwirkung mit den Chrom-Ionen ergibt. Dabei stellen A, E und T die ein, zwei, und drei-zählige Entartung der Orbitale dar. Für Rubin ist der Einfluß des Kristallfeldes auf Chrom mit Dq = 2.8B angegeben, was durch die vertikal gestrichelte Linie verdeutlicht wird. Die Auswahlregeln für den Spin erlauben eigentlich keine Absorption oder Emission von $^4A_2$ nach ^2E oder $^2T_1$. Allerdings mischt das Kristallfeld Komponeneten mit ungerader Parität mit, den in der Parität, geraden d-Wellenfunktionen [28]. Die Spin-Orbit-Kopplung vereint also Wellenfunktionen mit unterschiedlicher Spin-Multiplizität, sodaß solche Übergänge möglich werden. In Rubin kommen diese Beiträge mit ungerader Parität vom Versatz der Chrom-Ionen zwischen den Sauerstoff-Dreiecken, und der oben beschriebenen Winkelverschiebung der Dreiecke untereinander.

Es soll noch erwähnt werden, daß die Übergänge von $^4A_2$ nach $^4T_2$ oder $^4T_1$ vibronisch verbreitert sind, weshalb eine breite optische Anregung möglich ist. Ihre Energie-Niveaus hängen sehr stark von der Größe des Kristallfeldes Dq ab. Das Absorptionsspektrum in Abschnitt 2.1.3 wird dies und den verwendeten optischen Übergang von $^4A_2$ nach $^4T_1$ zeigen.

2.1.3 Absorptionsspektrum

Um zu testen bei welchen Wellenlängen eine optische Anregung durch den Pulslaser möglich ist, wurden Absorptionsspektren - bei Prof. Weber, Institut für Physik, Universität Dortmund - von Rubin mit einer Länge von 2mm und einer Konzentration $5 \cdot 10^{-4}$ Chrom-Ionen pro Aluminiumatom aufgenommen.

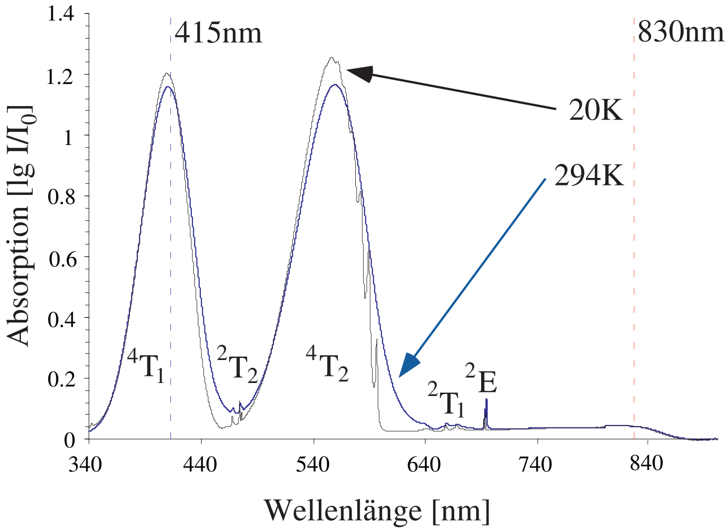

Abbildung 2.3: *Absorptionsspektrum von 340nm bis 900nm für zwei verschiedene Temperaturen.*

Der spektral aufgenommene Bereich reichte von 340nm bis 900nm. Deutlich zu erkennen ist die völlige Transparenz bei 830nm, was keine optische Anregung zuläßt. Allerdings zeigt sich bei 400nm und 550nm ein breites Absorptionsband mit einer Breite von mehr als 50nm. Dies sind die Übergänge vom Grundzustand nach $^4T_1$ und $^4T_2$.

Das $^4T_2$-Band kann mit dem Ti:Sa-Pulslaser leider nicht erreicht werden, allerdings ist es durch Frequenzverdopplung möglich, das $^4T_1$-Band optisch zu pumpen. Mit diesem Verfahren erreichen wir eine Zentralwellenlänge von 415nm mit einer spektralen Breite von ±2.5nm. Aus Abbildung 2.3 kann man ablesen, daß bei dieser Wellenlänge und 20K die Absorption etwa 95 Prozent beträgt.

2.1.4 Grundzustands-Zeeman-Aufspaltung

Wie in der Einleitung für diese Arbeit erwähnt, interessiert bei der Elektronen-Spin-Resonanz auch die Lage der Resonanzlinien in Abhängigkeit der Orientierung der Probe zum Feld, da diese Aufschluß über die g-Tensoren geben können. Daher ist es sinnvoll eine theoretische Abschätzung für die Lage der Resonanzlinien zu geben, um sie anschließend mit den experimentellen Ergebnissen vergleichen zu können.

Die Aufhebung der Zeeman-Entartung des Grundzustandes eines isotropen Mediums durch ein äußeres Magnetfeld läßt sich angeben. Sie lautet:

$$\mathbf{H} = g\mu_B \mathbf{B_0} \cdot \mathbf{S}. \tag{2.1}$$

Dabei stellt $\mathbf{H}$ den Hamilton-Operator für die Zeeman-Wechselwirkung dar, der die EPR-Resonanz-Bedingung wiedergibt, wenn man $\mathbf{B_0}$ in z-Richtung definiert. Die Wechselwirkung hängt allerdings vom Winkel ab, den das Feld mit den Kristallfeldachsen einnimmt. Für ein anisotropes Medium muß dies also berücksichtigt werden, und der g-Faktor wird zu einem Tensor. Mit der entsprechenden Wahl für die Hauptachsen x, y und z ergibt sich für den Hamilton-Operator:

$$\mathbf{H} = \mu_B(g_{xx} B_x S_x + g_{yy} B_y S_y + g_{zz} B_z S_z). \tag{2.2}$$

Für Axial-Symmetrie, wie es in Rubin der Fall ist und g_{zz} parallel zur Symmetrie-Achse kann man den g-Tensor auf folgende Form bringen:

$$g^2 = g_\perp^2 \sin^2\Theta + g_\parallel^2 \cos^2\Theta. \tag{2.3}$$

Dabei wurde verwendet, das durch die axiale Symmetrie $g_{xx} = g_{yy} = g_{\perp}$ und $g_{zz} = g_{||}$ wird. Θ stellt hier den Winkel zwischen der Richtung von g_{zz} und dem magnetischen Feld dar. Der Grundzustand von Rubin $^4A_2$ mit dem Spinquartett (S = 3/2) wird durch die Spin-Spin-Wechselwirkung der Elektronen bereits ohne Magnetfeld aufgespalten. Diese Nullfeld-Aufspaltung 2D muß im Hamilton-Operator berücksichtigt werden, und beträgt D = -5.7235 GHz [1]. Die komplette Hamilton-Operator hat dann folgende Form:

$$\mathbf{H} = \mu_B(g_{||}B_zS_z + g_{\perp}[B_xS_x + B_yS_y]) + D(S_z^2 - 1/3S(S+1)), \tag{2.4}$$

mit $g_{||} = 1.984$, und $g_{\perp} = 1.987$ [1]. Mit diesem Operator lassen sich nun die Energien des Grundzustandes $^4A_2$ in Abhängigkeit vom Magnetfeld und dessen Richtung bezüglich der trigonalen Achse des Kristalls berechnen. Zwei mögliche Konfigurationen sollen hier als Spezialfall hervorgehoben werden:

- Wenn das Feld parallel zur c-Achse des Kristalls liegt ($\Theta = 0^0$) und als Quantisierungsachse die Feldrichtung gewählt wird, ist der Hamilton-Operator in den Spinzuständen $|\pm3/2>$ und $|\pm1/2>$ diagonal und man kann die Energien als Funktion des Feldes angeben.

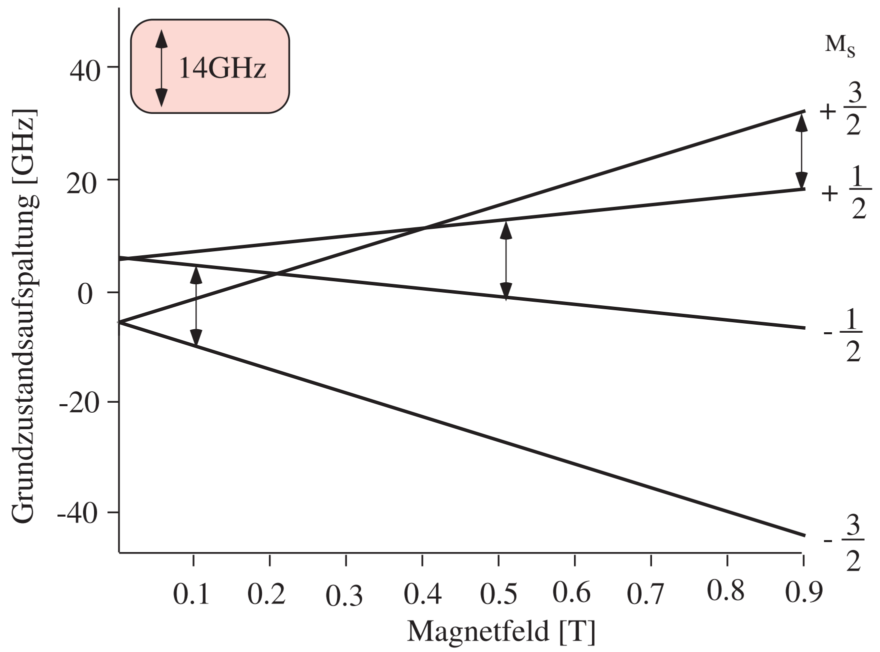

Abbildung 2.4: *Energieniveaus für die parallele Konfiguration.*

Abbildung 2.4 zeigt das Ergebnis der Rechnung. Man erkennt die vorher erwähnte Nullfeld-Aufspaltung mit 2D = -11.44GHz. Angedeutet, zwischen den Spin-Eigenzuständen, sind auch die möglichen EPR-Übergänge bei einer Mikrowellenfrequenz von 14GHz, wenn man die Auswahlregel $\Delta S = \pm 1$ beachtet. Es zeichnen sich drei mögliche Übergänge ab.

- Die zweite Konfiguration, die hier gezeigt werden soll, entsteht durch Drehung des Kristall um $\Theta = 90^0$, so daß jetzt die c-Achse senkrecht auf dem Magnetfeld steht.

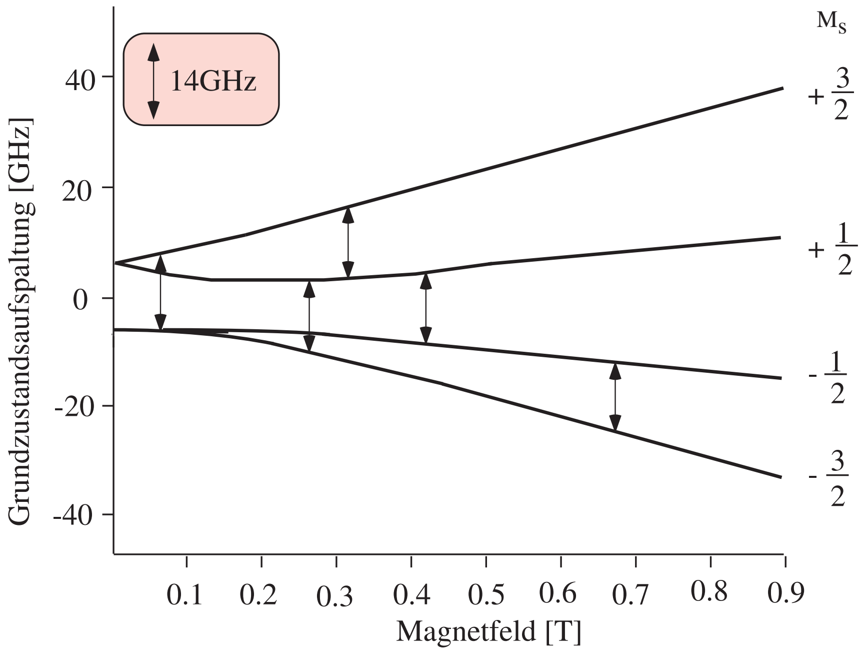

Abbildung 2.5: *Energieniveaus für die senkrechte Konfiguration.*

Wieder sind die möglichen Eigenzustände der Elektronen-Spins eingezeichnet. Die EPR-Übergänge werden für 14GHz durch die Pfeile markiert. Hier zeichnen sich prinzipiell sechs Resonanzen ab, von denen aber nur maximal fünf zu sehen sein werden, da die ersten beiden Übergänge bei $B_0 \approx 50$mT kaum von einander getrennt sind. Der Abstand beträgt bei 14GHz Anregungsfrequenz theoretisch ca. 2.5mT, und liegt damit innerhalb der zu erwarteten Linienbreite von 10mT [13]. Die ersten drei Übergänge werden lediglich schwach ausgeprägt sein, da sie nicht die Auswahlregel erfüllen.

2.2 Theorie

2.2.1 Elektronen-Spin-Resonanz

Die EPR oder auch Elektronen-Spin-Resonanz basiert wie die NMR auf der Anregung der atomaren Spins durch ein magnetisches Wechselfeld. Dabei wird die Zeeman-Entartung zuvor durch ein statisches Magnetfeld aufgehoben. Während die NMR dabei die Protonen zur Anregung im Bereich von einigen 100MHz verwendet, wird mit der ESR die elektronische Struktur der Moleküle im Anregungsbereich von einigen GHz untersucht, was wegen der höheren Quantenenergie eine wesentlich höhere Nachweisempfindlichkeit zuläßt.

Die theoretischen Grundlagen der EPR sind sehr ähnlich zu denen der kernmagnetischen Resonanz-Spektroskopie. Mit dem Elektronenspin ist ein magnetisches Moment μ = -$g_S \mu_B \cdot \mathbf{S}$ assoziiert (μ_B: Bohrsches Magneton, g_S Landé- oder g-Faktor). Bei gepaarten Elektronen hebt sich das magnetische Moment auf. Im Falle ungepaarter Elektronen wechselwirkt das Moment μ mit einem angelegten äußeren Magnetfeld B_0. Je nach Orientierung des Spins in Richtung von B_0 sind je zwei Zustände m_1 und m_2 mit unterschiedlicher potentieller Energie $E_{1,2}$ möglich. Eine resonante Absorption des magnetischen Wechselfeldes B_1 wird daher möglich, wenn das statische Magnetfeld B_0 die Entartung aufhebt. Im Resonanzfall kann es dann zu Übergängen zwischen den Spin-Zuständen kommen.

Aufgrund eines eventuellen Besetzungsunterschiedes $\Delta N_{1,2}$ kann die Mikrowelle (B_1-Feld) absorbiert werden. Die thermische Besetzungsdifferenz gibt dabei Aufschluß über die makroskopische Magnetisierung eines Spin1/2-Systems:

$$\Delta N_{1,2} \propto \Delta M_z \propto \tanh[\frac{g_S \mu_B B_0}{2kT}]. \tag{2.5}$$

Die Dynamik dieser Magnetisierung, die durch Präzession und Relaxation erzeugt wird, kann für ein Spin1/2-Systems durch die Bloch-Gleichungen beschrieben werden:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma(\vec{M} \times \vec{B_0}) - (\frac{M_x}{T_2}, \frac{M_y}{T_2}, \frac{(M_z - M_0)}{T_1}). \tag{2.6}$$

Darin wird die Dämpfung durch T_1 beschrieben und stellt die longitudinale oder Spin-Gitter-Relaxationszeit dar, d.h. die Zeitkonstante, mit der die Magnetisierung in z-Richtung ihrem Gleichgewichtswert $M_0 = \chi_0 H_0$ zustrebt ($B_0 = \mu_0 H_0$). T_2, die transversale oder Spin-Spin-Relaxationszeit, ist entsprechend die Zeitkonstante für die x- und y-Komponenten, wobei hier der Gleichgewichtswert Null ist. Sie wird durch Spin-Spin-, Spin-

Gitter- Wechselwirkungen und Inhomogenitäten des äußeren Magnetfeldes B_0 bestimmt, und gibt daher die Linienbreite wieder. Das frequenzabhängige Signal, das in x- bzw. y-Richtung der Magnetisierung auftritt, kann dann durch Absorption und Dispersion beschrieben werden. Beide lassen sich durch die Kramers-Kroning-Relation ineinander überführen, wenn keine Sättigung des Systems auftritt. Der Einfluß des B_1-Feldes verursacht eine transversale Magnetisierung, dessen Orientierung in der x-y-Ebene mit der Phase der induzierten Übergänge zwischen den beiden Spins-Zuständen korreliert ist. Die Komponente, die mit dem Mikrowellenfeld in Phase ist, kann als Dispersionsanteil geschrieben werden, während die außer-Phase-Komponente dem Absorptionsanteil proportional ist.

Im Zentrum der Resonanz $\omega = \omega_{MW}$ wird die in-Phase-Komponente Null, sodaß die Amplitude der oszillierenden transversalen Magnetisierung M_t näherungsweise durch

$$M_t = \omega_{MW} T_2 \frac{H_1}{H_0} M_z \tag{2.7}$$

beschrieben werden kann [61].

In komplexeren Systemen gilt diese einfache Beschreibung nicht mehr, so daß auch inhomogene Linienformen auftreten können. In diesem Fall lassen sich Absorption und Dispersion nicht mehr durch die Kramers-Kroning-Relation in einander überführen. Außerdem hat A.M. Portis schon 1953 gezeigt, daß sich die Absorption unter gewissen Voraussetzungen, wie z.B. bei Erhöhung der HF-Leistung, schneller in Sättigung bringen läßt, als die Dispersion [50].

2.2.2 Gepulste, kohärente Raman-Streuung

Die Verbindung zwischen magnetischer Resonanz und optischer Detektion kann über die kohärente Raman-Streuung hergestellt werden. Bei einem Raman-Prozess wird ein Photon inelastisch an einem Material gestreut, weshalb diese Prozesse selbst nichtlinear sind. Bei einer solchen Streuung kann das Photon einen Teil seiner Energie an das Medium abgeben oder von diesem aufnehmen, und so die Energie der Moleküle verändern. Man unterscheidet dabei drei Varianten der Raman-Streuung: die spontane, die induzierte und die kohärente. Diese drei optischen Prozesse unterscheiden sich in ihren experimentellen Vorraussetzungen: Während die spontane Raman-Streuung schon bei niedrigen Laserleistungen zu sehen ist, benötigt man für die induzierte Streuung deutlich mehr Intensität. Bei der kohärenten Raman-Streuung wird zusätzlich zur optischen Welle eine resonante

Anregung durch ein Hochfrequenz-Feld oder durch Infrarot-Strahlung benötigt. Genau wie bei der induzierten Raman-Streuung werden dadurch für Stokes- und Anti-Stokes-Strahlung gleiche Amplituden erzeugt. Beide Varianten zeigen zusätzlich zu den Frequenzen ω_S und ω_{AS} noch weitere Seitenbänder, die durch Mehrfachstreuung entstehen.

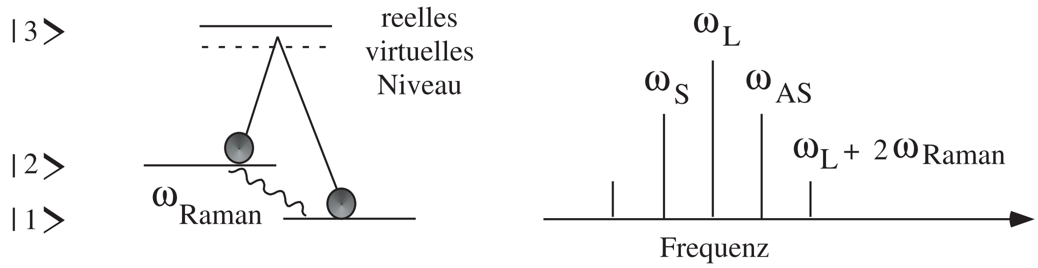

Abbildung 2.6: *Kohärente Raman-Streuung. Eingezeichnet ist auch ein mögliches virtuelles Niveau [67].*

Im weiteren werden ausschließlich Stokes-Wellen diskutiert. Die gleiche Argumentation bezieht dann auch auf Anti-Stokes-Wellen. Wie in Abbildung 2.6 dargestellt, koppelt in der kohärenten Raman-Streuung ein Mikrowellenfeld in Resonanz an die beiden magnetischen Zeeman-Niveaus, und erzeugt dort eine kohärente Superposition zwischen den beiden Spin-Zuständen |1> und |2>.

Wenn auch das Laserfeld - durch Ankopplung an einen optischen Übergang - eine Kohärenz erzeugt, können Stokes- Komponenten im Abstand ω_{Raman} auftreten. Die Stokes-Kohärenz stellt sich dann als Quelle von neuen Feldern dar, dessen optische Frequenzen um die Harmonischen der Hochfrequenz vom ursprünglichen Laserfeld verschoben sind.

Raman-Wellen können über die Heterodyn-Technik [67] nachgewiesen werden, wenn beide Laserfelder - Stokes- und ursprüngliches Laserfeld - auf einem Detektor zum Interferieren gebracht werden. Als Signal erhält man Frequenzen, die aus der Kombination der beteiligten Felder entstehen. Unter anderem sind darin auch zum Hochfrequenzfeld proportionale Frequenzen enthalten, sodaß sich mit dieser Technik auch Zeeman-Übergänge nachweisen lassen [12].

Strahlt man anstelle eines kontinuierlichen Laserfeldes ein gepulstes Feld ein, so findet im Medium eine zusätzliche Modulation statt. Nach dem Fourierschen Theorem besteht ein Pulszug aus einer Anzahl von diskreten Frequenzen, deren Amplitude durch die Form des Pulses bestimmt wird (Kapitel 1, Abbildung 1.14). In der Probe wird daher - bei der Erzeugung einer Stokes-Welle - zusätzlich eine Modulation mit den Harmonischen der Repetitionsfrequenz ω_k = k$\cdot\omega_R$ des Lasers stattfinden. Deshalb oszilliert die resultierende Welle nicht nur mit den Frequenzen, die aus der Kohärenz von Mikrowellen- und Laserfrequenz entsteht, sondern auch mit den Harmonischen der Repetitionsfrequenz.

Eine theoretische Frequenzanalyse des Raman-Signals ist durchführbar, wenn man das gepulste Laserfeld E_L(t) aus Kapitel 1 (Gleichung 1.4) mit dem Mikrowellenfeld moduliert und anschließend die Heterodyndetektion durch Fouriertransformation analysiert: Moduliert man das gepulste Laserfeld mit der Mikrowelle, so entstehen Stokes-und Anti-Stokesfelder E_S(t):

$$E_S(t) = E_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} e^{-(t-m\cdot T_R)^2/\Delta t_P^2} \cdot \frac{1}{4}\left(e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t}\right) \cdot \left(e^{i\omega_{MW} t} + e^{-i\omega_{MW} t}\right), \qquad (2.8)$$

Die Heterodyndetektion verlangt, daß dieses Feld mit dem gepulsten Laserfeld selbst überlagert wird. Im Zeitbereich entspricht dies einer Multiplikation mit E_L(t):

$$\begin{aligned} I_{Het}(t) &= \frac{1}{2}\epsilon_0 c \cdot |E_S(t)^* E_L(t)| = \qquad (2.9) \\ &= \frac{I_0}{8} \sum_{m=-\infty}^{\infty} e^{-2(t-m\cdot T_R)^2/\Delta t_P^2} \cdot \left(e^{2i\omega_0 t} + e^{-2i\omega_0 t}\right) \cdot \left(e^{i\omega_{MW} t} + e^{-i\omega_{MW} t}\right), \end{aligned}$$

mit $I_0 = 1/2\epsilon_0 c|E_0|^2$. Um die frequenzabhängige Intensität zu erhalten, kann dieses Raman-Signal einer Fouriertransformation unterworfen werden. Man erhält:

$$\begin{aligned} I_{Het}(\omega) &= \frac{I_0}{4}\frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}}\frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \left(2 \cdot e^{-(\omega-\omega_{MW})^2\cdot\Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - \omega_{MW} - \omega_k)\right) \\ &+ \frac{I_0}{4}\frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}}\frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \left(2 \cdot e^{-(\omega+\omega_{MW})^2\cdot\Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega + \omega_{MW} - \omega_k)\right) \\ &+ \text{Intensitäten bei } \delta(\omega \pm \omega_{MW} \pm 2\omega_0 - \omega_k), \qquad (2.10) \end{aligned}$$

mit $\omega_k = k \cdot \omega_R$ und k dem Laufindex. Aufgrund der hohen optischen Frequenzen kann man die vier Beiträge mit ($\pm 2\omega_0$) sofort vernachlässigen.

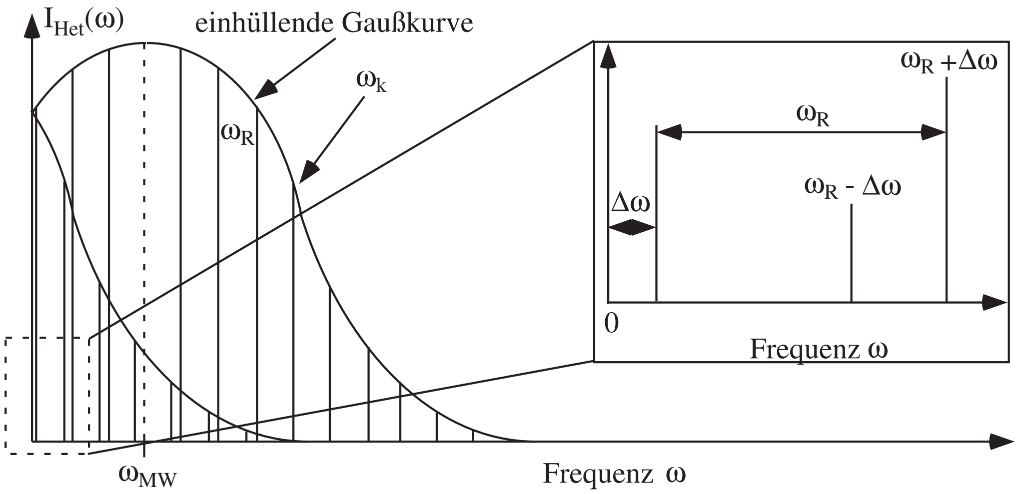

Abbildung 2.7: *Spektrale Intensitätsverteilung des Ramansignals bei Heterodyndetektion mit optisch gepulster Strahlung.*

Das Maximum der einhüllenden Gaußkurve mit der Breite

$$\delta\omega' = \sqrt{2} \cdot \delta\omega = \frac{2\sqrt{2\ln 2}}{\Delta t_P} = \frac{\sqrt{2}}{\tau_P} \tag{2.11}$$

hat sich vom Nullpunkt (vgl. Abbildung 1.15) zur Mikrowellenfrequenz ω_{MW} verschoben. Von der Mikrowellenfrequenz ausgehend treten Harmonische k, im Abstand ω_R der Repetitionsfrequenz, auf. Da die Mikrowellenfrequenz kein ganzzahliges Vielfaches von ω_R sein muß gilt:

$$\Delta\omega = \omega_{MW} - n_0\omega_R. \tag{2.12}$$

n_0 stellt in dieser Definition eine ganze Zahl aus dem Wertebereich $\{-\infty \leq \mathrm{k} \leq \infty\}$ dar, und kennzeichnet die niedrigste im Spektrum vorkommende Frequenz $\Delta\omega$. Diese kleinste Frequenz soll die Magnetisierungsinformation aus der Probe übertragen, und wird daher im weiteren mit Trägerfrequenz bezeichnet. Sie kann prinzipiell über die Mikrowellenfrequenz und die Laserrepetitionsfrequenz variiert werden:

$$\Delta(\Delta\omega_{k-teHarm.}) = \frac{\omega_R^2}{2\pi n_0} \cdot \Delta T_R = \frac{\pi c}{L^2} \cdot \frac{\Delta L}{n_0} = \frac{1}{n_0}\Delta(\Delta\omega_{1-teHarm.}). \tag{2.13}$$

Dabei muß beachtet werden, daß eine Änderung von $\Delta\omega$, durch die Laserresonatorlänge L, in der n_0-.ten Harmonischen von ω_R die n_0-fache Abweichung ausmacht.

Zusammenfassend bedeutet dies: Die Überlagerung aus Stokes- bzw. Anti-Stokes-Wellen mit sich selbst oder dem Laserfeld führt bei der Heterodyn-Technik zu Feldern, die unter anderem mit der Frequenz der eingestrahlten Mikrowelle oszillieren. Wird statt eines cw-Lasers ein Puls-Laser verwendet, so bilden sich zusätzlich Frequenzkomponenten die aus der Differenz und Summe von ω_{MW} und kω_R entstehen. Durch Isolierung der niedrigsten Frequenzkomponente erhält man $\Delta\omega$ als Träger der Magnetisierungsinformation. Diese Trägerfrequenz kann über die Laserresonatorlänge variiert werden. Ihre Grenzen in der Frequenz liegen daher zwischen

$$0 \leq \Delta\omega \leq \frac{\omega_R}{2}. \tag{2.14}$$

Der Vorteil dieser Methode liegt unter anderem in der Möglichkeit der Variation dieser Trägerfrequenz. Während die Mikrowellenfrequenz durch die optimale Anpassung an den Resonator vorgegeben ist, kann der Laserresonator definiert in seiner Länge geändert werden, was zu einer Änderung der Repetitionsfrequenz und damit der Trägerfrequenz führt.

2.2.3 Modulierte MCD

Nachdem dargestellt wurde, mit welchen Frequenzkomponenten das Signal oszilliert, kann man eine Abschätzung für die Signalhöhe angeben. Zunächst muß allerdings erwähnt werden, daß dieses Experiment nicht mit linear, sondern mit zirkular polarisiertem Licht durchgeführt wird. Die Polarisation des Lasers wird vor der Probe mit einem Photoelastischen Modulator mit 50kHz variiert. Dies verursacht bei Absorption der optischen Welle in der Probe einen Absorptionsunterschied der ebenfalls mit dieser Frequenz moduliert ist, so daß die Trägerfrequenz $\Delta\omega$ Seitenbänder im Abstand von $2\pi\cdot$50kHz zeigt.

Der Absorptionsunterschied ΔA zwischen rechts- und links zirkularen Wellen ist für ein Spin-1/2-System proportional zur Magnetisierung. Das erlaubt es, den rotierenden zirkularen Dichroismus entlang eines magnetischen Feldes in Analogie zu Gleichung 2.7 zu spezifizieren

$$\Delta\epsilon_t = \frac{1}{2}\omega_{MW} T_2 \frac{B_1}{B_0} \Delta\epsilon_z, \tag{2.15}$$

wobei B_1 die Amplitude des Mikrowellenfeldes, B_0 das statische Magnetfeld, T_2 die transversale Relaxationszeit und $\Delta\epsilon_{z,t}$ die Differenz der Extinktionskoeffizienten zwischen rechts- und linkszirkular polarisiertem Licht für die z- bzw. transversale Richtung bezüglich des Magnetfeldes darstellen. Der Faktor 1/2 resultiert aus der Verwendung eines PEM's (vergl. Gl. 2.7). Wird dieser Extinktionskoeffizient mit ω_{MW} moduliert, so kann man schreiben

$$\epsilon = \epsilon_0 + \frac{1}{2}\Delta\epsilon_t \cdot \cos(\omega_{MW} t), \tag{2.16}$$

wobei ϵ_0 der statische Teil des Extinktionskoeffizienten ist. Folgt man dem Beer'schen Absorptionsgesetz, dann ist die transmittierte Intensität proportional zur Dicke l des Mediums und dem Extinktionskoeffizienten

$$I_T = I_L \cdot 10^{-\alpha l} = I_L \cdot 10^{-c\epsilon l}, \tag{2.17}$$

mit I_L der Laserintensität aus Gleichung 1.8. Hierbei ist α der Absorptionskoeffizient gleich dem Produkt aus c - der Konzentration - und ϵ. Unter Verwendung der Reihenentwicklung für $a^x = 1 + x \ln(a) + \ldots$ ergibt sich für die transmittierte Intensität:

$$\begin{aligned} I_T &= I_{DC} - I_{AC} \text{ mit} \\ I_{DC} &= I_L 10^{-\alpha_0 l} \text{ bzw.} \\ I_{AC}(\omega) &= I_{Het}(\omega) 10^{-\alpha_0 l} \cdot \Delta A \frac{\ln 10}{2} \text{ und} \\ \Delta A &= c \cdot l \cdot \Delta\epsilon_t. \end{aligned} \tag{2.18}$$

Dabei ist $\alpha_0 = \epsilon_0$c der statische Absorptionskoeffizient. ΔA - die Absorptionsdifferenz zwischen rechts- und linkszirkularem Licht - ist eine von der Wellenlänge abhängige Größe, und kann aufgrund früherer Messungen an Rubin ([29]) mit $5 \cdot 10^{-5}$ (P_{MW}=25mW) abgeschätzt werden. I_{DC} meint hierbei, daß dieses Signal nicht mit der Mikrowelle moduliert wurde. I_{AC} entsteht durch die Fouriertransformation des Produktes $I_L(t) \cdot \cos(\omega_{MW} t)$. Für die spektrale Intensität erhält man im Bild der modulierten MCD das gleiche Signal, wie es schon für die kohärente Raman-Streuung abgeleitet wurde (vgl. Gleichung 2.10):

$$\begin{aligned} I_{Het}(\omega)_{\text{kohär. Raman-Str.}} &= \mathbf{FT}\left(\frac{1}{2}\epsilon_0 c |E_S(t)^* E_L(t)|\right) = \\ &= \mathbf{FT}\left(I_L(t) \cdot \cos(\omega_{MW} t)\right) = I(\omega)_{\text{mod. MCD}}. \end{aligned} \tag{2.19}$$

[3]Die Parallele dieser beiden Bilder wird hiermit eindrucksvoll deutlich.

[3]Vorrausgreifende Bemerkung: Da $I(\omega)_{\text{mod. MCD}}$ noch keine Absorption beachtet, entspricht es auch dem Signal, das man erhält, wenn man die Laserintensität über einen Mischer mit der Mikrowelle moduliert. Dies wird im Kapitel 2.3.2 noch von Bedeutung sein.

Betrachtet man zunächst I_{AC} aus Gleichung 2.18, so ergibt sich der von der Mikrowelle abhängige Teil durch

$$I_{AC}(\omega) = I_{Het}(\omega) \cdot 10^{-\alpha_0 l} \cdot \Delta A \frac{\ln 10}{2} \tag{2.20}$$

$$= \frac{I_0}{2} \frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \left(e^{-(\omega-\omega_{MW})^2 \cdot \Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{k=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - (\omega_{MW} + k\omega_R)) \right) \cdot 10^{-\alpha_0 l} \cdot \Delta A \frac{\ln 10}{2}.$$

Die niedrigste im Spektrum vorkommende Frequenz ($\Delta\omega = \omega_{MW}$- $n_0\omega_R$) erhält man für k = -n_0. $I_{AC}(\Delta\omega)$ ergibt sich dann zu:

$$\begin{aligned} I_{AC}(\Delta\omega) &= \frac{I_0}{2} \frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot \left(\cdot e^{-(\Delta\omega-\omega_{MW})^2 \cdot \Delta t_P^2/8} \right) \cdot 10^{-\alpha_0 l} \cdot \Delta A \frac{\ln 10}{2} \\ &= \frac{I_0}{2} \frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot 10^{-\alpha_0 l} \cdot \Delta A \frac{\ln 10}{2}. \end{aligned} \tag{2.21}$$

Für I_{DC} aus Gleichung 2.18, den nicht mit der Mikrowelle moduliereten Anteil, ergibt sich unter Verwendung von Gleichung 1.8 (Kapitel 1.5.2):

$$\begin{aligned} I_{DC} &= I_L(\omega = 0) \cdot 10^{-\alpha_0 l} \\ &= 10^{-\alpha_0 l} \cdot I_0 \frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R} \cdot e^{-\omega^2 \Delta t_P^2/8} \cdot \sum_{l=-\infty}^{\infty} \delta(\omega - l\omega_R) \Big|_{l=0} \\ &= 10^{-\alpha_0 l} \cdot I_0 \frac{\pi\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \frac{\Delta t_P}{T_R}. \end{aligned} \tag{2.22}$$

Für das Verhältnis aus I_{AC} zu I_{DC} läßt sich jetzt ein Wert von

$$\frac{I_{AC}}{I_{DC}} = \frac{1}{2} \Delta A \frac{\ln 10}{2} = 28 \cdot 10^{-6} \tag{2.23}$$

angeben. Unter Verwendung aller experimentellen Parameter des Detektors (Modell Eigenbau Nr. 94: Verstärkung: 40V/mA, Empfindlichkeit (415nm): 0.18A/W) kann man daher, bei 95% Absorption (Dämpfung) und 10mW Laserleistung vor der Probe, eine maximale Signalhöhe im Bereich von 100μV erwarten.

Beachtet werden muß hier noch, daß bei Verwendung eines PEM's eine zusätzliche Modulation mit cos(ω_mt) stattfindet. ω_m steht für die m-te Ordnung der Modulationsfrequenz des PEM's. Diese wirkt sich allerdings nur auf den AC-Anteil aus, der deshalb einen zusätzlichen Bessel-Faktor $J_1 \approx 0.57$ erhält und das Verhältnis von modulierter zu nichtmodulierter Intensität entsprechend ändert. Die zu erwartende Signalhöhe beträgt dann ca. $57\mu V$, während die Steigung des Signals in Abhängigkeit von der Laserleistung $5.7\mu V/mW$ sein sollte.

2.3 Der experimentelle Aufbau

Um ein besseres Verständnis für die experimentellen Details zu bekommen, wurde die Beschreibung des experimentellen Aufbaus in zwei Teile zerlegt. Der **Signalzweig**, an dem die ODEPR gezeigt wird, bildet dabei den Kern des Experimentes. Hier wird die oben beschriebene Trägerfrequenz, in der die Information der Magnetisierung enthalten ist, erzeugt und detektiert.

Um die Information aus der optischen Welle herauszuholen, muß ein zweites Signal generiert werden. Die **Referenzfrequenz** oszilliert dazu mit der gleichen Frequenz, wie das eigentliche Signal, enthält aber keine Information über die Probe.

Ein Vergleich der beiden optischen Signale isoliert im Idealfall das magnetfeldabhängige EPR-Signals. Wichtig bei dieser Art der Detektion ist, daß beide Frequenzen - aus Signal und Referenz - zu jeder Zeit und bis auf die Information der Probe, identisch sind. Nur so kann gewährleistet sein, daß die Magnetisierung vom Magnetfeld allein und nicht von der verwendeten Detektion abhängt. Allerdings kann eine Phasenverschiebung zwischen Referenz und Signal auftreten, und führt zur phasenabhängigen Superposition von Absorption und Dispersion. Es werden also Mischsignale auftreten, aus denen mit Hilfe von Phasenschiebern eindeutige Signale herzustellen sind.

2.3.1 Der Signalzweig

Abbildung 2.8 repräsentiert den experimentellen Aufbau zur Erzeugung des Signals durch die Probe. Zunächst erkennt man den in Kapitel 1 besprochenen Titan-Saphir-Puls-Laser, der von einem Verdi gepumpt wird.

Der erzeugte Laserstrahl mit einer Zentralwellenlänge von 830nm, wird zunächst, aus Gründen der Absorptionseigenschaften der Probe, frequenzverdoppelt. Hierzu wird der Pulslaserstrahl in ein nichtlineares Medium (BBO) hinein fokussiert, und dort mit einer Effizienz von ca. 10 Prozent auf die halbe Wellenlänge transformiert. Unter Einbeziehung von Verlusten durch weitere optische Elemente standen dem Experiment noch maximal

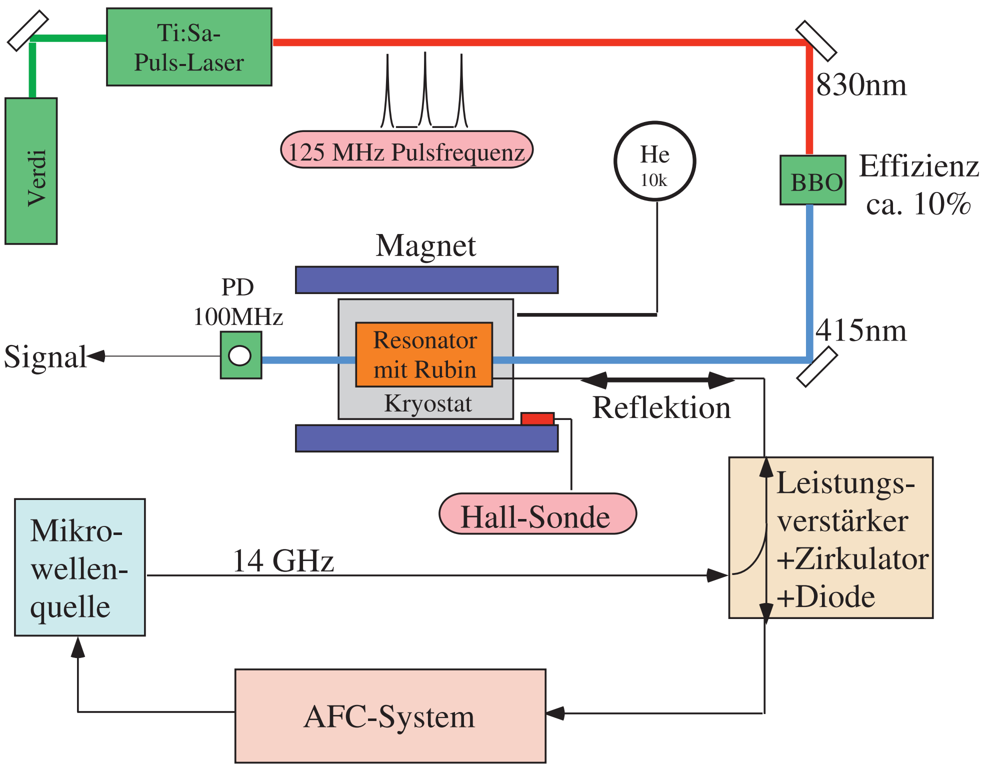

Abbildung 2.8: *Experimenteller Aufbau des Signalzweiges. Durch die kohärente Raman-Streuung wird die Magnetisierung der Probe auf die optische Welle übertragen. Wegen der Heterodyndetektion wird das Signal mit der Trägerfrequenz $\Delta\omega$ übertragen.*

35mW mittlere Leistung bei 415nm zur Verfügung.

Diese violette Strahlung wird nun in die Probe fokussiert, und zu ca. 95 Prozent absorbiert. Danach wird der aus der Probe austretende Strahl von einer schmalbandigen Photodiode (100MHz) detektiert. Ein Bandpass eleminiert alle Frequenzkomponenten außer der Trägerfrequenz $\Delta\omega$.

Die Probe befindet sich dabei in einem Mikrowellenresonator, der selbst in einem Kryostaten untergebracht wurde. Um die Signalhöhe zu optimieren, wird die Probe auf ca. 10K abgekühlt. Resonator, Probe und Kryostat wurden zusätzlich zwischen zwei Magnetpolschuhen arretiert. Der Magnet ist in der Lage ein Feld bis zu 1.4T senkrecht zur Laserachse aufzubauen, während das B_1-Feld also die Mikrowelle senkrecht dazu anregt. Die Größe des B_0-Feldes wird über eine Hallsonde gemessen, deren Spannung genauso wie das Signal, vom Computer ausgelesen werden.

Die Mikrowelle wird über Wellenleiter, Verstärker und Isolatoren ins Innere des Resonators überführt. Die maximal erreichbare Leistung liegt bei ca. 200mW, und konnte über einen Abschwächer variiert werden. Um die Frequenz der Mikrowelle optimal auf der Resonatoreigenfrequenz zu halten, wurde die MW-Frequenz von einem *AFC-System* (Anhang C, Abbildung C.1) über das Minimum der Reflektion des Resonators moduliert.

2.3.2 Der Referenzzweig

Abbildung 2.9 zeigt den Aufbau zur Erzeugung der Referenz. Kernstück dieser Anordnung ist die verwendete Mikrowellenbrücke, auf der noch einmal die Mikrowellenquelle zu sehen ist.

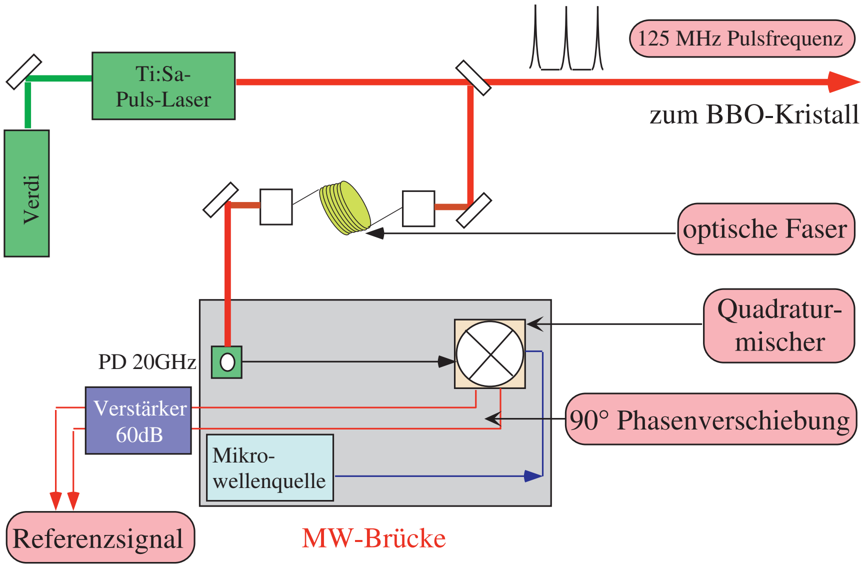

Abbildung 2.9: *Experimenteller Aufbau des Referenzzweiges. Durch Modulation der Laserintensität mit der Mikrowelle wird unter anderem auch die Trägerfrequenz $\Delta\omega$ erzeugt (vgl.: Gleichung 2.19).*

Aus Gründen der Übersichtlichkeit, wurden nur die wichtigsten Bauteile auf der Brücke eingezeichnet. Unter anderem eine breitbandige Photodiode (20GHz) und der sogenannte Quadraturmischer. Da diese Bauteile sehr empfindlich auf statische Aufladung und Reflektionen reagieren, befinden sich mehrere Isolatoren und Abschwächer auf der Platine, während die Signale, die von der Photodiode kommen, vor und nach der Verarbeitung eine Verstärkung benötigen.

Zur Erzeugung der Referenz wird ein Teil der Laserstrahlung, vor der Frequenzverdopplung im nichtlinearen Kristall, ausgekoppelt und durch eine zehn Meter lange Faser geschickt. Nach Verlassen wird der Strahl auf die Photodiode fokussiert. Die Faser wird benötigt, um die Laserpulse breiter zu machen, und so die Photodiode vor Beschädigung zu schützen. Durch die zusätzliche Dispersion wird der Puls spektral auseinander gezogen, was die Spitzenleistung in diesem herabsetzt. Auch so sollte eine mittlere Leistung von zehn Mikrowatt nicht überschritten werden: Da der Abstand der Pulse hiervon nicht beeinflußt wird, und die Pulsbreite hinter der Faser ca. 1ps (Messung mittels Autokorrelator) beträgt, ergibt sich so eine Pulsleistung von ca. 100mW auf der Photodiode. Laut Spezifikation liegt die Zerstörschwelle für die Pulsleistung bei 200mW (bei 1ps), während sie im Mittel 2mW nicht überschreiten soll. Experimentell wurden nie mehr als sechs Mikrowatt mittlerer Leistung benutzt, so daß noch ausreichend Spielraum existiert und die Diode nicht beschädigt wird.

Das Signal, das die Photodiode liefert besteht aus einer zeitlichen Abfolge von Pulsen im Abstand von ca. $8 \cdot 10^{-9}$ Sekunden. Das Frequenzspektrum dieser Pulsfolge besteht dann aus Frequenzkomponenten im Abstand von 125MHz ($\omega = k\omega_R$) (vgl. Gleichung 1.8). Die maximal detektierbare Frequenz dieses Spektrum ist durch die Bandbreite der Photodiode limitiert und beträgt 20GHz. Dieses Spektrum wird an einen der beiden Eingänge des Quadraturmischers angelegt. Der zweite Eingang wird von der Mikrowellenquelle belegt. Durch Modulation beider Signale entstehen hier die gleichen Frequenzen wie in der Probe (vgl. Gleichung 2.19). Unter anderem auch die benötigte Trägerfrequenz $\Delta\omega$. Abbildung 2.10 zeigt eine Aufnahme des fouriertransformierten Referenzsignals.

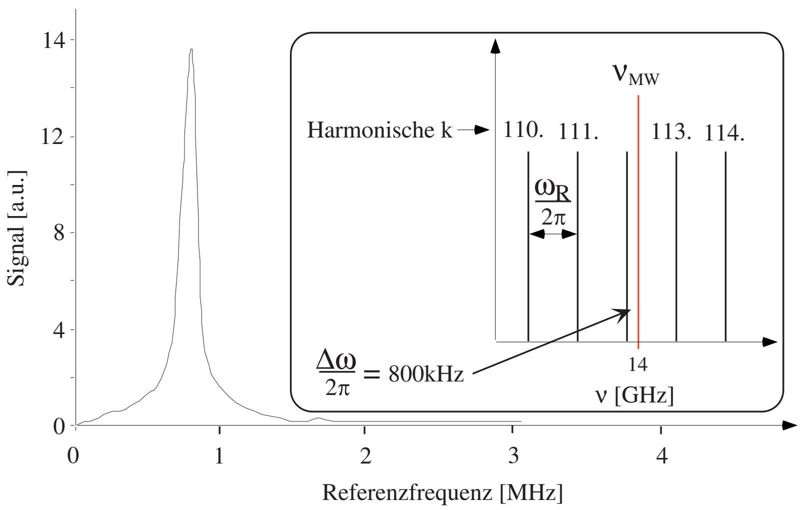

Abbildung 2.10: *Fouriertransformierte des Referenzsignals.*

Durch Änderung der Länge des Laserresonators konnte die Trägerfrequenz $\Delta\omega$ definiert auf ca. 800kHz eingestellt werden. Die spektrale Linienbreite entspricht der Frequenzmodulation der Mikrowelle (100kHz) durch das AFC-System (Anhang C). Dieses Signal wurde anschließend um 60dB verstärkt (Abbildung 2.9).

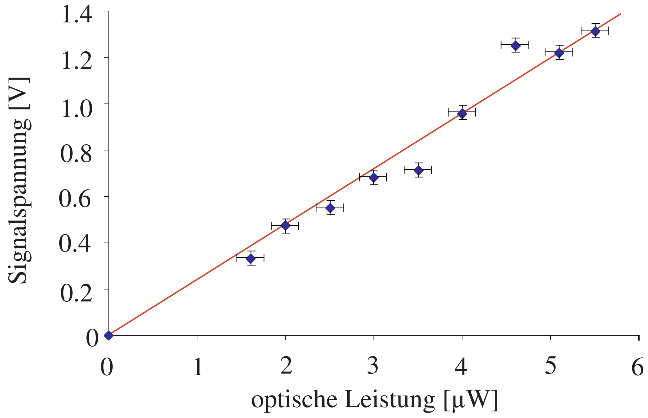

Abbildung 2.11: *Amplitude des Referenzsignals gegen die verwendete mittlere Laserleistung, nach Verstärkung um 60dB. Die Steigung beträgt 0.23V/μW.*

Solche Fouriertransformationen wurden für verschiedene Laserleistungen durchgeführt und gegen die verwendete Leistung aufgetragen. Abbildung 2.11 zeigt die lineare Abhängigkeit bis sechs Mikrowatt. Die Amplitude des Referenzsignals bei dieser Leistung beträgt etwa 1.3V und stellt den optimalen Arbeitspunkt für die verwendeten Hochfrequenzmischer (Abbildung 2.13) dar. Um den Frequenzgang des Referenzzweiges zu dokumentieren, wurde auch die Abhängigkeit der Amplitude von der Trägerfrequenz überprüft.

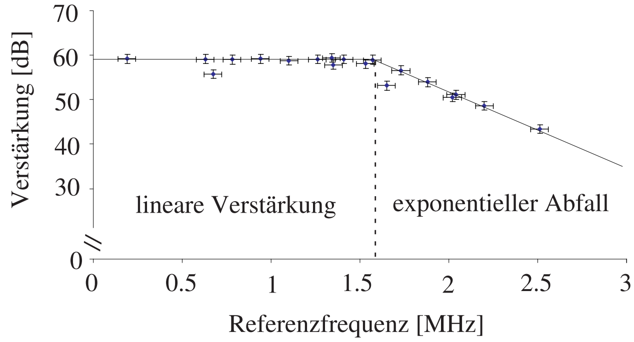

Abbildung 2.12: *Logarithmisch aufgetragene Amplitude des Referenzsignals - in Einheiten der Verstärkung - gegen die verwendete Trägerfrequenz (60dB$\cdot I_S$ entsprechen 1.3V).*

Abbildung 2.12 zeigt bis 1.5MHz keine signifikante Änderung des Signals. Damit ist gewährleistet, daß jede Trägerfrequenz in diesem Bereich zum gleichen Ergebnis führt. Ab 1.5MHz nimmt die Verstärkung aufgrund der Bandbreite der Verstärker exponentiell ab.

2.3.3 Die gepulste ODEPR

In Abbildung 2.13 (Kombination aus Abb. 2.8 und Abb. 2.9) ist eine vereinfachte schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur gepulsten ODEPR an Rubin und in Transmission zu sehen.

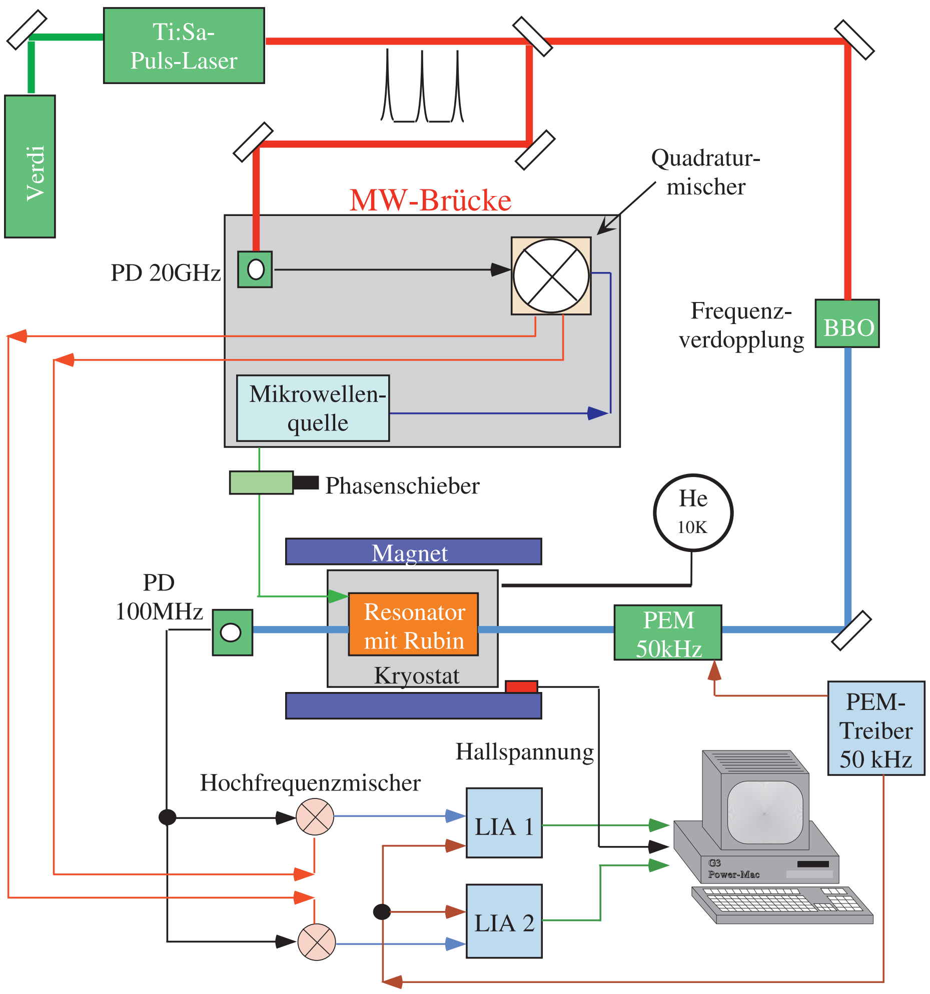

Abbildung 2.13: *Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur gepulsten ODEPR. Hier eingezeichnet ist auch der PEM, der die Polarisation des Laserlichtes vor der Probe zwischen* σ^+ *und* σ^- *variiert.*

Man erkennt die getrennte Erzeugung von Signal und Referenz, und die Zusammenführung unter Verwendung von zwei Hochfrequenzmischern. Da die Referenz zwei um 90^0 phasenverschobene Ausgänge zur Verfügung stellt, muß das Signal auch zweimal analysiert werden. Außerdem wird die Verwendung des Phasenschiebers im Signalzweig deutlich. Durch diesen und die Verwendung von 90^0 phasenverschobenen Referenzsignalen wird es möglich, die Signalfrequenz relativ zur Referenzfrequenz in der Phasenlage zu ändern. So kann das Signal beliebig von einem Kanal auf den anderen transportiert werden.

Im Signalzweig befindet sich vor der Probe ein Photoelastischer Modulator. Die Polarisationsmodulation, die von dem PEM ausgeht, überträgt sich auch auf die Trägerfrequenz des Signals, weshalb diese nun Seitenbänder im Abstand von 50kHz aufweist. Das zu analysierende Signal besteht dann im Resonanzfall aus der Trägerfrequenz und den Seitenbändern:

$$\omega_{Signal} = \Delta\omega \pm \omega_{PEM}. \tag{2.24}$$

Werden diese Signalfrequenzen mit der Referenzfrequenz $\Delta\omega$ über Hochfrequenzmischer demoduliert, so läßt sich das Absorptions- und Dispersionssignal mit der Frequenz des PEMs isolieren. Natürlich entsteht neben der Differenz aus Signal und Referenz auch deren Summe, die aber mittels Filter eliminiert werden kann.

Die weitere Demodulation des Signals liefert - unter Verwendung eines Lock-In-Verstärkers, der als Referenz die Frequenz des PEM's erhält - als Ausgangssignal die gewünschte Probeninformation.

2.4 Ergebnisse zur gepulsten ODEPR

2.4.1 Magnetfeldabhängigkeit

Abbildung 2.14 zeigt eine Aufnahme des ODEPR Spektrums in Transmission an Rubin. Die experimentellen Parameter sind für die optische Seite 30mW Laserleistung bei 415nm Zentralwellenlänge. Dies wurde durch die Frequenzverdopplung - in einem BBO-Kristall - der infraroten Pulslaserstrahlung bei 830nm und 400mW Ausgangsleistung erreicht. Die Pulsbreite beträgt ca. 50fs bei einer Pulsfolgefrequenz von 126MHz.

Die eingestellten Parameter für die magnetische Resonanz sind 13.96GHz Mikrowellenfrequenz bei einer Leistung von maximal 200mW im Resonator. Die Temperatur an der Probe beträgt ca. 10K, wobei die c-Achse des Kristalls senkrecht zum Feld ausgerichtet ist.

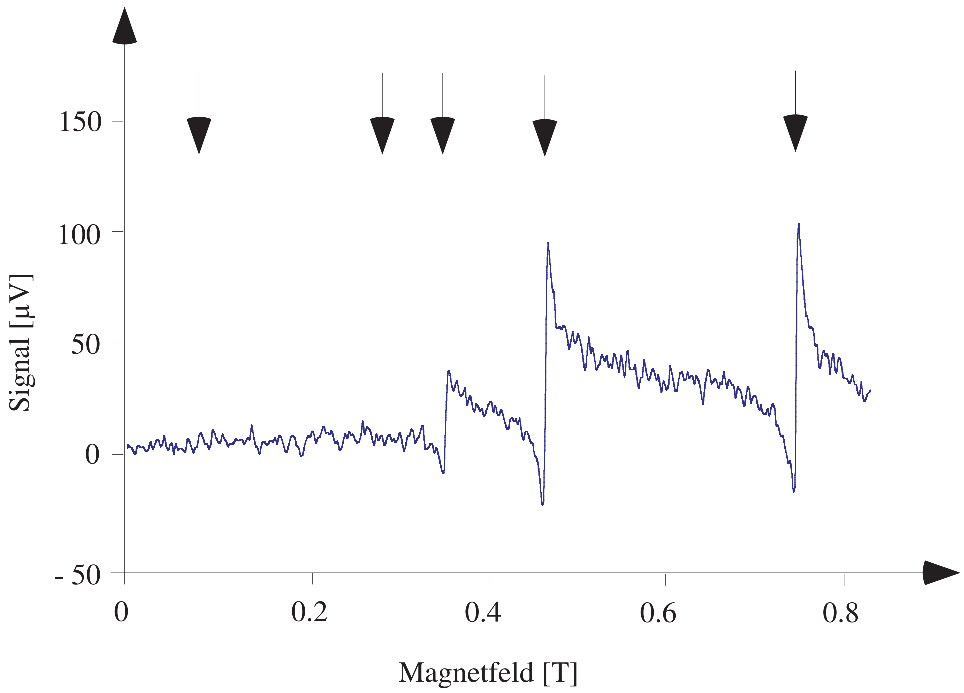

Abbildung 2.14: *Experimentelle Aufnahme eines ODEPR-Signals an Rubin. Angedeutet sind auch die theoretischen Resonanzlagen aus Abb. 2.5.*

Aufgenommen wurde ein Magnetfeldscan von 0 bis 850mT. Die Eichung des Magnetfeldes wurde über eine Hall-Sonde durchgeführt.

Die drei letzten magnetisch erlaubten Resonanzen - die sehr gut mit den theoretischen Magnetfeldpositionen übereinstimmen - sind gut zu erkennen. Dagegen konnten die drei vorderen Übergänge - die nur schwach erlaubt sind - in keiner Messung beobachtet werden. Deren theoretische Lage ist allerdings angedeutet. Die Breite der hinteren drei Resonanzlinien liegt im erwarteten Bereich und beträgt ca. 10mT.

Der auftretende Rauschpegel von 3.5μV (rms) stammt von der Photodiode im Signalzweig. Die theoretische Abschätzung des Nyquist-Rauschens für die verwendete Photodiode ergibt eine Rauschamplitude von 2μV (rms), was sehr gut mit dem Rauschen dieser Einzelmessung (keine Akkumulation) übereinstimmt. Die Photodiode stellt in diesem Fall also den begrenzenden Faktor dar.

Die experimentelle Signalhöhe von ca.124μV ist von der gleichen Größenordnung wie die Abschätzung aus Kapitel 2.2.3. Dort ergab sich ein Wert von ca. 57μV bei 25mW Mikrowellenleistung bzw. 10mW Laserleistung. Skaliert man auf die hier verwendeten Werte um, so erhält man einen Wert von 483μV. Die Abweichung kann mit der unzureichenden Kenntnis von ΔA (Kapitel 2.2.3) erklärt werden [4].

Während der gesamten Meßreihe konnte keine eindeutige Absorption beobachtet werden. Vielmehr deuten die vorhandenen Absorptionssignale auf Artefakte (Anhang D) hin, die eventuell durch ein Überkoppeln des Resonators ausgelöst werden. Dabei nehmen wir an, daß das AFC-System - in der Nähe einer Resonanz - die Frequenz und damit die Phase der Mikrowelle verschiebt.

2.4.2 Leistungsabhängigkeit

Um die Reproduzierbarkeit der Apparatur nachzuweisen, wurde die Amplitude der letzten Resonanzlinie bei 750mT für verschiedene Leistungen vermessen. Die vorher genannten experimentellen Parameter wie sie in Abschnitt 2.4.1 angegeben wurden, behalten dabei ihre Gültigkeit.

Abbildung 2.15 zeigt die Abhängigkeit der Dispersions- und Absorptionsamplitude der Hochfeld-Resonanz von der Mikrowellenleistung. Dabei wurden 30mW Laserleistung verwendet. Die Achsen wurden doppelt logarithmisch aufgetragen. Die theoretische Steigung des Signals sollte dann 1/2 sein.

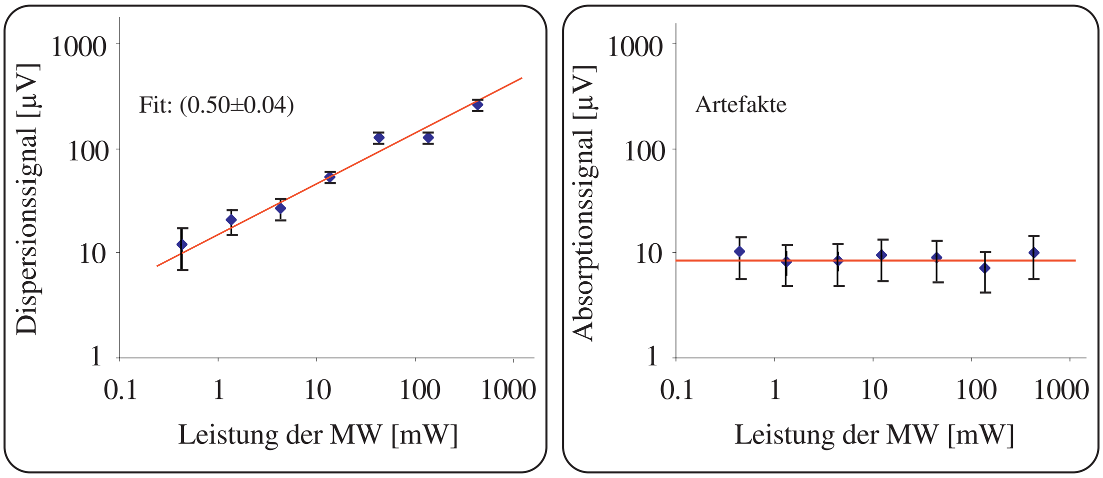

Abbildung 2.15: *Abhängigkeit der Hochfeld-Resonanz-Amplitude von der Mikrowellenleistung. Die experimentell gemessene Steigung ist angegeben.*

Wie man erkennt, stimmt die Forderung für die Dispersion innerhalb der Fehlergrenzen mit der Messung überein. Die Halbwertsbreite blieb bei allen Messungen konstant bei

[4] Hierauf wird in Kapitel 2.4.2 nocheinmal genauer eingegangen.

10mT. Gleiches Verhalten zeigte sich für die beiden anderen dispersiven Resonanzen bei 360 und 470mT, während sich die absorptiven lediglich durch ein Artefakt (Anhang D) äußerten, und wir daher von einer Sättigung des Systems ausgehen.

Die Abhängigkeit der Hochfeld-Resonanzamplitude von der Laserleistung zeigt Abbildung 2.16. Aufgetragen ist hierbei die - durch Frequenzverdopplung erzeugte - Laserleistung bei 415nm. Die Mikrowellenleistung beträgt ca. 150mW. Wieder blieb die Linienbreite in etwa konstant bei 10mT. Die theoretische Forderung der Linearität für die Dispersion ist innerhalb der errechneten Fehler erfüllt. Die Absorptionsamplitude reagierte dagegen kaum auf eine Änderung der Laserleistung.

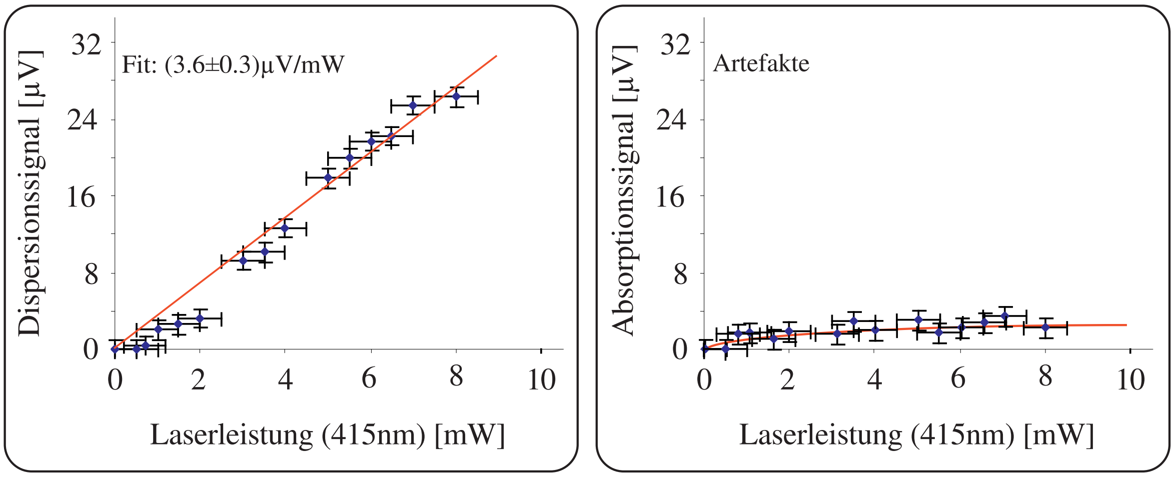

Abbildung 2.16: *Abhängigkeit der Hochfeld-Resonanz-Amplitude von der Laserleistung.*

Nach Kapitel 2.2.3 war die theoretisch erwartete Steigung $5.7\mu\mathrm{V/mW}$ (bei einer Mikrowellenleistung von 25mW). Faktorisiert man auf die experimentell verwendete Mikrowellenleistung von 150mW, so sollte die theoretische Steigung $14\mu\mathrm{V/mW}$ betragen. Abbildung 2.16 zeigt allerdings, daß die experimentell ermittelte Steigung für die Dispersion nur $3.6\mu\mathrm{V/mW}$ beträgt. Die Abweichung um einen Faktor 3.89 wird mit der bisher unzureichenden Kenntnis des Absorptionsunterschiedes ΔA erklärt. Durch die gewonnenen Ergebnisse kann der Absorptionsunterschied für die Wellenlänge 415nm genauer angegeben werden. Für Rubin - mit einer Probenlänge von 2mm und einer Konzentration von $5{\cdot}10^{-4}$ pro Aluminium-Atom - ergibt sich ein Wert von:

$$\Delta A = (1.3 \pm 0.2) \cdot 10^{-5} \;(\mathrm{P}_{MW} = 25\mathrm{mW}), \tag{2.25}$$

statt $5{\cdot}10^{-5}$, wie er in Kapitel 2.2.3 angenommen wurde.

Kapitel 3

Ferromagnetische Resonanz

In der Einleitung dieser Arbeit wurde bereits erwähnt, daß wir auch die Magnetisierungsänderung eines Ferromagneten optisch detektieren möchten. Um die Apparatur auf die ODFMR an einem dünnen Film vorzubereiten, müssen zuvor noch einige Untersuchungen durchgeführt werden: Das resonante Magnetfeld beispielsweise wird - aufgrund der flachen Probengeometrie - nicht an der Stelle zu finden sein, an der es bei einer Bulk-Untersuchung liegt. Der Einfluß der Probenform auf die Resonanzfrequenz muß also herausgestellt werden. Weiterhin treten Kristallanisotropie- und wegen der Probenform, auch Oberflächenanisotrieeffekte auf. Dies führt zu einer Winkelabhängigkeit, die für die Resonanzlinienlage und -breite dokumentiert werden müssen. Aus diesem Grund wurden konventionelle FMR-Messungen durchgeführt.

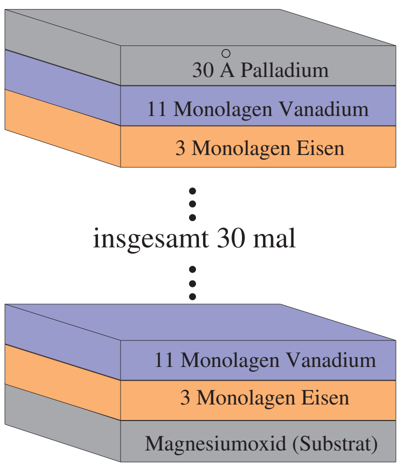

Abbildung 3.1: *Die ferromagnetische Probe.*

Die Probe, die an der Front eine Palladium-Deckschicht (Pa) besitzt, besteht aus 30 Abfolgen von jeweils 11 Monolagen Vanadium (Va) und 3 Monolagen Eisen (Fe). Aufgebracht ist sie auf einem Magnesiumoxidsubstrat (MgO). Sie wurde uns von Herrn Prof. Dr. M. Farle [24] (Freie Universität Berlin, Institut für Experimentalphysik) zur Verfügung gestellt. Das zu untersuchende Material dieser vielschichtigen Probe ist das ferromagnetische Eisen.

3.1 Eisen

Eisen ist ein Element der Nebengruppe VIII des Periodensystems - der Eisengruppe - bzw. der Gruppe Nr. 8 des Langperiodensystems. Die Ordnungszahl ist 26 und seine Elektronenkonfiguration lautet [Ar]$3d_6 4s_2$. Es kommt in der Natur in vier Isotopen vor (54Fe, 56Fe, 57Fe, 58Fe) während chemisch reines Eisen in drei enantiotropen Modifikationen vorliegt:

- a-Eisen (kubisch raumzentriert; ferromagnetisch),
- b-Eisen (kubisch dichtest; paramagnetisch) und
- d-Eisen (kubisch raumzentriert; paramagnetisch).

Die Eisengruppe enthält die nebeneinander angeordneten Elemente Eisen, Cobalt und Nickel, die den Gruppen 8, 9 und 10 des Langperiodensystems angehören, alle ferromagnetisch sind und sich in ihren physikalischen Eigenschaften sehr ähneln.

Eisen kann eine Domänenstruktur ausbilden, sogenannte Weiss'sche Bezirke. Sie sind in unterschiedlichen Richtungen magnetisiert, da die Magnetisierung M innerhalb eines Ferromagneten nicht einheitlich ist. Dadurch ist das resultierende magnetische Moment der Probe verringert und kann sogar verschwinden. Der Magnetisierungsvektor innerhalb der Weiss'schen Bezirke liegt infolge der magnetischen Anisotropie in den sog. leichten Richtungen, die z.B. beim Eisen die [100]-, [010]- und [001]-Richtung und die entsprechenden Gegenrichtungen sind. Zum Aufbau von Domänengrenzen muß Arbeit geleistet werden, die durch die gleichzeitig sinkende magnetische Feldenergie $\int HdM$ gewonnen wird. Die Domänenstruktur stellt sich so ein, daß die Gesamtenergie minimal ist.

In einigen Fällen bilden sich sogenannte Abschlußdomänen. Dies ist eine spezielle Domänenstruktur an den Oberflächen eines Ferromagneten, bei der die Magnetisierung parallel zur Probenoberfläche ausgerichtet ist. Die prismenförmigen Abschlußdomänen entstehen, wenn antiparallel magnetisierte Weiss'sche Bezirke nicht bis zur Oberfläche reichen. An den Domänengrenzen ist die Normalkomponente der Magnetisierung stetig, falls benachbarte Abschlußdomänen einen Winkel von 45^0 einnehmen, da in diesem Fall beide Magnetisierungsvektoren senkrecht aufeinander stehen (90^0-Wände). Dadurch ist der magnetische Fluß in der Probe geschlossen, sodaß auf der Oberfläche keine magnetischen Pole existieren.

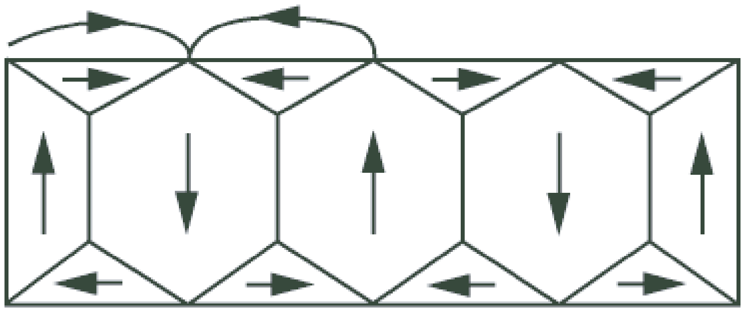

Abbildung 3.2: *Schematische Darstellung der Domänenstruktur mit prismenförmigen Abschlußdomänen [42].*

Durch die magnetische Anisotropie ist bei Ferromagneten die Magnetisierungsarbeit abhängig von der Richtung des äußeren Feldes H bezüglich der Kristallachsen. Sie ist in der leichten Richtung minimal. Die Anisotropieenergie ist die Energie, die erforderlich ist, um die Magnetisierung M aus der leichten Richtung herauszudrehen. Ist W_0 die Magnetisierungsarbeit in einer leichten Richtung, so ist die Anisotropieenergie gegeben durch:

$$W_A = \int H dM - W_0 \tag{3.1}$$

In Eisen ist die Magnetisierungsarbeit in der [100]-Richtung, in Nickel in der [111]-Richtung und in Cobalt in der hexagonalen Richtung am geringsten. Da sich die Spins spontan in die leichten Richtungen einstellen, muß bei gegenseitiger Verkippung benachbarter Spins zur Ausbildung von Bloch-Wänden Energie aufgebracht werden. In der Praxis beschreibt man die Anisotropieenergie mit Hilfe der Anisotropiekonstanten oder durch das Anisotropiefeld (Kapitel 3.2.2).

Dabei sind Bloch-Wände Übergangsschichten, die in einem Ferromagneten benachbarte Weiss'sche Bezirke mit unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen trennt. Die Änderung der Spinrichtung erfolgt allmählich über viele Gitterebenen, da dies mit einer geringeren

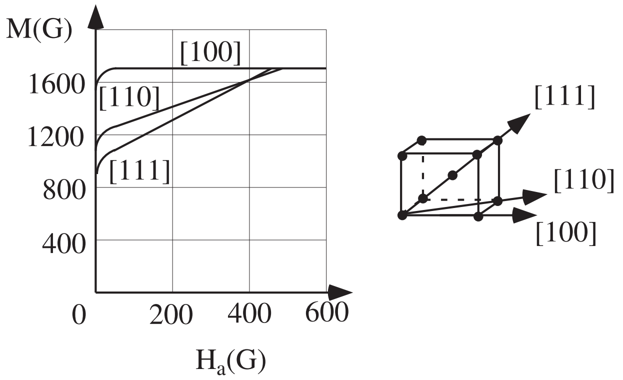

Abbildung 3.3: *Anisotropieenergie: Magnetisierungskurven von kubischen Fe-Einkristallen für die Achsen [100], [110] und [111] ([42]).*

Austauschenergie verbunden ist, als wenn die Richtungsänderung sprunghaft über eine einzige Netzebene erfolgte. Der Wandverbreiterung wirkt die Anisotropieenergie entgegen, da mit zunehmender Wanddicke immer mehr Spins nicht in eine energetisch günstige Magnetisierungsrichtung (leichte Richtung) weisen. Durch diese gegenläufigen Effekte stellt sich eine endliche Wanddicke ein.

3.2 Magnetische Resonanz an dünnen Filmen

Die magnetische Resonanz an dünnen Filmen, speziell an Ferromagneten, unterscheidet sich von einer Volumenanregung. Hier bestimmt auch die Oberflächenanisotropie der Probe, an welcher Position die Resonanzfrequenz zu finden ist. Der Winkel zwischen Probennormalen und Magnetfeldachse spielt dabei eine entscheidende Rolle.

3.2.1 Zeeman- und Entmagnetisierungsfeld

Der Einfluß der Probengeometrie kann ganz allgemein für einen Ferromagneten abgeleitet werden, wenn man diesen als Ellipsoid betrachtet und später eine Spezialisierung auf die gegebene Ausdehnung durchführt. Definiert man die drei Hauptachsen des Ellipsoids parallel zu den kartesischen Koordinaten, so können die an der Oberfläche erzeugten Entmagnetisierungsfelder $\mathbf{B}_e$ der Probe durch die Magnetisierungsrichtung selbst beschrieben werden. Ein äußeres Magnetfeld ruft innerhalb der Probe eine makroskopische Magnetisierung hervor, die an der Oberfläche freie Pole induziert ([5], [6]). Diese allerdings wirken ihrer Ursache entgegen, indem sie ein Magnetfeld erzeugen, das zur inneren Magnetisierung antiparallel ist. Daher spricht man von den Entmagnetisierungsfeldern, die den Komponenten der Magnetisierung M_x, M_y und M_z in Richtung der Hauptachsen des Ellipsoids antiproportional sind.

$$B_{e,k} = -\mu_0 N_k M_k \text{ mit } k = x, y, z \tag{3.2}$$

Hierbei sind N_x, N_y und N_z die Entmagnetisierungsfaktoren, deren Summe in SI-Einheiten immer eins, im cgs-System immer 4π ist. Sie beschreiben die Geometrie der Probe und sind daher auch immer positiv. Ihr Wert hängt vom Verhältnis der Hauptachsen des Ellipsoids ab. Während das äußere Feld die Probe durchsetzt, erzeugt es gleichfalls im Inneren eine Magnetisierung, die ein Entmagnetisierungsfeld zur Folge hat. Beide Felder bestimmen das innere Feld $\mathbf{B}_i$, das sich als Summe darstellt:

$$B_{i,k} = B_{0,k} - \mu_0 N_k M_k \text{ mit k = x,y,z} \tag{3.3}$$

Das Vorzeichen bestimmt dabei die Richtung. Während Gleichung 3.3 die statische Magnetisierung beschreibt, kann die Dynamik - durch Bilden der zeitlichen Änderung - im äußeren Magnetfeld durch die Landau-Lifshitz-Bewegungsgleichungen beschrieben werden.

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma[\mathbf{M} \times \mathbf{B}] \tag{3.4}$$

Hier sollen Relaxationen zunächst vernachlässigt und vorausgesetzt werden, daß sich die Magnetisierung M_z zeitlich nicht ändert ($dM_z/dt = 0$), wenn das Magnetfeld in die z-Richtung zeigt. Dann erhält man mit $M_z = M_S$ als der Sättigungsmagnetisierung und γ dem gyromagnetischen Verhältnis $\gamma = -2\pi g\mu_B/h$:

$$\begin{aligned} \frac{dM_x}{dt} &= +\gamma[B_0 + (N_y - N_z)\mu_0 M_S]M_y \\ \frac{dM_y}{dt} &= -\gamma[B_0 + (N_x - N_z)\mu_0 M_S]M_x \\ \frac{dM_z}{dt} &= 0 \end{aligned} \tag{3.5}$$

Die Lösung dieser Differenzialgleichungen ist:

$$\omega_0^2 = \gamma^2[B_0 + (N_y - N_z)\mu_0 M_S] \cdot [B_0 + (N_x - N_z)\mu_0 M_S] \tag{3.6}$$

Um daraus die richtige Abhängigkeit der Resonanzfrequenz vom Magnetfeld zu erhalten, muß eine Spezialisierung auf einen dünnen Film vollzogen werden. Dazu wird die Ausdehnung einer Achse des Ellipsoids im Vergleich zu den beiden anderen reduziert, sodaß man im Grenzfall eine flache Scheibe erhält. Jetzt kann man durch Festlegen des Koordinatensystems bezüglich der Probe drei Spezialfälle unterscheiden: Legt man die z-Achse, also die Richtung des Magnetfeldes parallel zur Oberfläche der Probe, so erhält man die longitudinale bzw. transversale Konfiguration, während senkrecht zu dieser die polare Konfiguration herangezogen wird. In der longitudinalen bzw. transversalen Konfiguration verschwinden die Entmagnetisierungsfaktoren N_z und N_y bzw. N_z und N_x, und man erhält mit $N_x = 1$ bzw. $N_y = 1$. Beides führt auf:

$$\omega_0 = \gamma [B_0(B_0 + \mu_0 M_S)]^{1/2} \tag{3.7}$$

Im polaren Fall zeigt das Magnetfeld senkrecht zur Probenoberfläche und N_x und N_y verschwinden, während jetzt $N_z = 1$. Damit ergibt sich:

$$\omega_0 = \gamma [B_0 - \mu_0 M_S] \tag{3.8}$$

Gleichung 3.8 zeigt, daß der Beitrag senkrecht zur Schichtebene im wesentlichen durch das große Entmagnetisierungsfeld ($B_e = \mu_0 M_s$ mit $M_S = 1.71 \cdot 10^{-6}$ A/m) von 2.1T geprägt ist. Der Übergang von einem in den anderen Spezialfall kann durch Drehen der Magnetfeldachse vollzogen werden. Dies wird im Nachfolgenden unter Verwendung der beteiligten Anisotropiebeiträge abgeleitet.

Der Beitrag zur Resonanzfrequenz, wie er hier dargestellt ist, zeigt keine Schichtdickenabhängigkeit. Dies ist für ultra-dünne Schichten aber nicht korrekt. In diesem Fall sollte die magnetische Schicht nicht mehr als Kontinuum angesehen werden, so daß das Entmagnetisierungsfeld als Kollektion diskreter magnetischer Dipole in einem regelmäßigen Gitter betrachtet werden. Dieser kristalline Beitrag der Dipol-Dipol-WW nimmt etwa mit der Ordnung ($1/r^5$) ab. Dies hat zur Folge, daß am Rande einer Schicht die oberen Atomlagen in Abhängigkeit der Oberflächensymmetrie des entsprechenden Kristalls eine erheblich kleinere dipolare Anisotropie erfahren als im Inneren einer Schicht. Bei einer ultra-dünnen Schicht kann man diesen Effekt durch eine Absenkung des Entmagnetisierungsfeldes berücksichtigen. Es ergibt sich für eine bcc (001) Fe-Oberfläche ein gemittelter Entmagnetisierungsfaktor [30]:

$$N = 1 - \frac{0.4245}{x} \tag{3.9}$$

mit x als der Anzahl der Atomlagen. Dieser Korrekturfaktor muß bei dem hier verwendeten Multilayer beachtet werden.

3.2.2 Kristall- und Oberflächenanisotropie

Neben dem Einfluß durch das Zeeman- und Entmagnetisierungsfeld, liefert auch die Anisotropie der magnetischen Schichten einen großen Beitrag. Der Begriff der Anisotropie faßt hier die des Kristalls und der Oberfläche zusammen. Zur Kristallanisotropie tragen die Austauschwechselwirkung und die Dipol-Dipol-Wechselwirkung bei. Der hauptsächliche Anteil kommt allerdings von der Spin-Bahn-Wechselwirkung, da sich die Dipol-Dipol-WW im kubischen Kristall aus Symmetriegründen heraushebt. Der Anteil der Austauschwechselwirkung kann zudem nur isotrop sein, da die WW vom Skalarprodukt der Spinvektoren abhängt, somit also unabhängig von der Orientierung des Spins zum Gitter ist.

Eisen ist ein kubischer Kristall und die Würfelkanten sind die Richtungen leichter Magnetisierung. Als die gebräuchlichste Art der Darstellung der kubischen Kristallanisotropie hat sich die Schreibweise in Potenzen der sogenannten Richtungskosinusse α_i der Magnetisierung bezüglich der Kristallachsen erwiesen. Diese Schreibweise wurde zuerst von N. S. Akulov [3] verwendet:

$$E_{cub} = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) \text{ mit } \alpha_i = \frac{\mathbf{M_i}}{\mathbf{M}} \tag{3.10}$$

und M_i als Projektion der Magnetisierung auf die i-te Kristallachse und K_1, K_2 als kubische Anisotropiekonstanten. Für Eisen ergibt sich bei Zimmertemperatur für $K_1=4.2\cdot10^4 J/m^3$ und $K_2=1.5\cdot10^4 J/m^3$ [42]. Im Falle, daß die entgegengesetzten Enden einer Kristallachse gleich magnetisiert sind, darf der Ausdruck für die Anisotropieenergie nur gerade Potenzen von jedem α_i enthalten und muß außerdem bei einem Austausch der α_i untereinander invariant bleiben. Die niedrigste Ordnung, die dies erfüllt, ist die Zweite $(\alpha_1^2+\alpha_2^2+\alpha_3^2)$. Diese ist allerdings identisch gleich Eins und beschreibt daher keine Anisotropieeffekte. Die nächst höhere Potenz ist die vierte Ordnung der Richtungskosinusse, die durch K_1 repräsentiert wird. K_2 stellt dann die sechste Ordnung dar.

Für die spätere Übertragbarkeit auf die experimentellen Ergebnisse ist es sinnvoll die freie Energiedichte auf Kugelkoordinaten zu transformieren. Nach Abbildung 3.4 ergibt sich

$$E_{cub} = \frac{K_1}{4}(\sin^2(2\Theta) + \sin^4\Theta\sin^2(2\Phi)) + \frac{K_2}{16}\sin^2\Theta\sin^2(2\Theta)\sin^2(2\Phi). \tag{3.11}$$

Der Winkel Θ schließt die Normale der Oberfläche mit der statischen Magnetisierung ein, während Φ die Magnetisierung in der Probenoberfläche kennzeichnet.

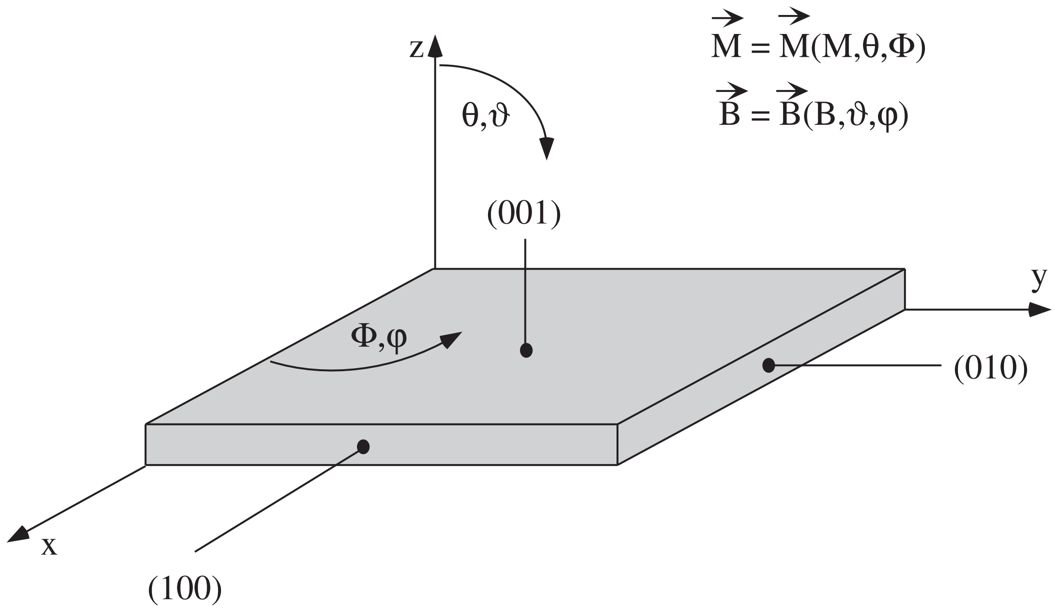

Abbildung 3.4: *Darstellung der Symmetrie der untersuchten Probe.*

Der zweite Anteil der zur Anisotropie beiträgt, ist der der Oberfläche und wurde zuerst von Neel auf dem Modell von van Vleck ermittelt. Dieses Modell beruht auf der Paarwechselwirkung lokalisierter Momente. An der Oberfläche des magnetischen Kristalls kommt es durch Symmetrieerniedrigung zu einer geänderten magnetischen Anisotropie, die deutlich von der des Bulks abweicht [30]. Die entsprechende Oberflächenanisotropiekonstante ist $K_S \approx 0.69$-$0.81 mJ/m^2$. Die freie Energiedichte läßt sich in erster Ordnung schreiben als:

$$E_S = \frac{2K_S}{d} \sin^2 \Theta \tag{3.12}$$

Da hier durchgehend die freie Energie pro Volumeneinheit angegeben ist, kommt der Faktor 1/d für eine ebene Oberfläche des magnetischen Materials zustande (d steht also für die Schichtdicke des dünnen Films). Der Faktor 2 beachtet, daß eine Fe-Schicht 2 Oberflächen hat, und man annimmt, daß beide die gleiche Oberflächenanisotropie erzeugen [4].

3.2.3 Resonanzbedingung

Die gesamte freie Energie des Systems, die die Beiträge zum effektiven Magnetfeld der FMR beschreibt, kann man dann für Dünnschichtsysteme in drei Anteilen zusammenfassen. Hier sollen auch das Zeeman- und das Entmagnetisierungsfeld in Kugelkoordinate angegeben werden. In dieser Darstellungsform lassen sich auch Änderungen bezüglich des Winkels zwischen Magnetfeld und Probe berechnen [71].

$$\begin{aligned} E &= E_{Zee} + E_{Dem} + E_{Ani} \\ &= -MB(\cos(\Phi - \varphi)\sin\Theta\sin\vartheta + \cos\vartheta\cos\Theta) \\ &\quad + \frac{1}{2}\mu_0 M^2 \cos^2\Theta \\ &\quad + \frac{2K_S}{d}\sin^2\Theta \\ &\quad + \frac{K_1}{4}(\sin^2(2\Theta) + \sin^4\Theta\sin^2(2\Phi)) + \frac{K_2}{16}\sin^2\Theta\sin^2(2\Theta)\sin^2(2\Phi) \end{aligned} \tag{3.13}$$

[5]Während Θ und Φ die Magnetisierungsrichtung beschreiben, geben ϑ und φ die Orientierung des Magnetfeldes an. Bei Vonsovskii ([71]) findet sich die Dispersionsrelation der Landau-Lifshitz-Bewegungsgleichung in Kugelkoordinaten:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M^2\sin^2\Theta}\left[\frac{\partial^2 E}{\partial\Theta^2}\frac{\partial^2 E}{\partial\Phi^2} - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial\Theta\partial\Phi}\right)^2\right] \tag{3.14}$$

Die Herleitung beruht auf einer Störungsrechnung, in der der Betrag der Magnetisierung als konstant und die Auslenkung als minimal angenommen wurden. Zusätzlich zur Resonanzbedingung müssen noch die beiden Gleichgewichtsbedingungen der Magnetisierung (Minimum der freien Energiedichte E) erfüllt sein.

$$\frac{\partial E}{\partial\Theta} = 0 \text{ und } \frac{\partial E}{\partial\Phi} = 0 \tag{3.15}$$

Diese beiden Forderungen beschreiben die Einstellung der Magnetisierung relativ zum B-Feld für verschiedene Magnetfeldorientierungen. Analog zur Resonanzlinienlage findet sich z.B. auch bei Vonsovskii die Ableitung der Resonanzlinienbreite in Abhängigkeit der Orientierung des Magnetfeldes. Sie wird mit

[5]Bemerkung: Die Kristallanisotropie der sechsten Ordnung mit $K_2 < K_1$ wurde im weiteren und bei den theoretischen Rechnungen vernachlässigt, da sonst der numerische Rechenaufwand zur Bestimmung der theoretischen Linienlage und -breite zu groß wird.

$$\Delta\omega = \frac{\lambda}{M^2}\left(\frac{\partial^2 E}{\partial\Theta^2} + \frac{1}{\sin^2\Theta}\frac{\partial^2 E}{\partial\Phi^2}\right) \text{ und } \Delta B_i = \frac{\partial B}{\partial\omega}\cdot\Delta\omega \tag{3.16}$$

angegeben. ΔB_i stellt hier die intrinsische Linienbreite dar, in der keine Einflüsse durch die Probendicke oder Inhomogenitäten enthalten sind. Der Faktor λ repräsentiert die Relaxationsfrequenz des Systems. Bhagat [8] gibt sie für einen Fe-Whisker (d=40μm) im Temperaturbereich von 4-300K mit $0.7 \cdot 10^8 s^{-1}$ an. Celinski [16] und Heinrich allerdings haben nachgewiesen, daß die Relaxationsfrequenz von der Dicke der Fe-Lagen abhängt, und mit abnehmender Monolagenanzahl ansteigt. Dies wird auf den immer größer werdenden Anteil der Spin-Bahn-Kopplung zurückgeführt. Sie geben zum Beispiel für eine 10ML dicke Probe eine Relaxationsfrequenz von $1.78 \cdot 10^8 s^{-1}$ an.

3.3 Ergebnisse zur konventionellen FMR

Um die Abhängigkeit des resonanten Magnetfeldes von der Mikrowellenfrequenz und vom Winkel zwischen Magnetfeld und Probennormalen an der ferromagnetischen Probe zu untersuchen, wurden konventionelle FMR-Experimente durchgeführt. Der Vergleich mit den Ergebnissen aus den ODFMR-Experimenten soll dann den Unterschied zur optischen Detektion herausstellen.

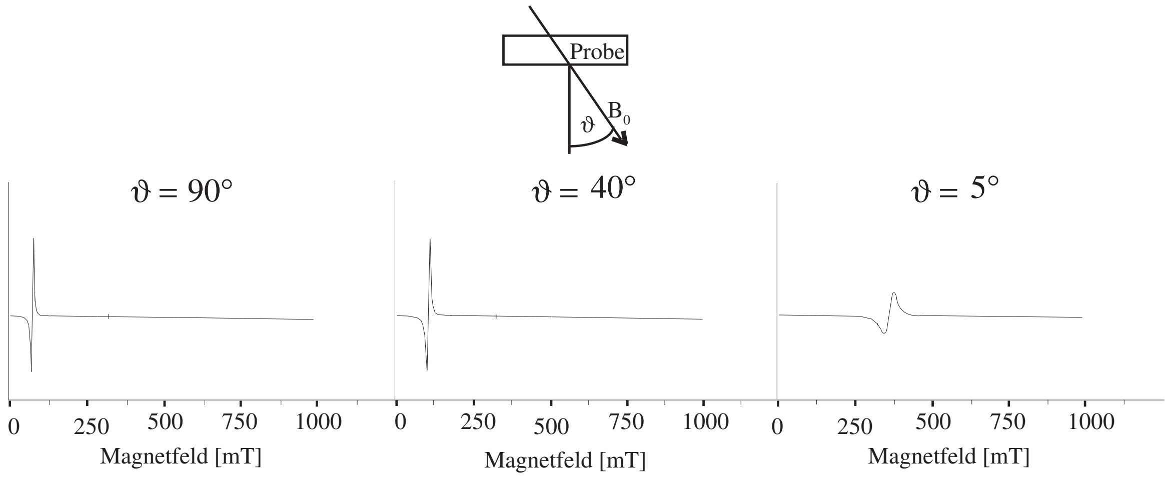

Abbildung 3.5: *FMR-Messung am Fe-Multilayer für drei verschiedene Winkel.*

Die FMR-Messungen wurden an einem 9GHz-Spektrometer im Fachbereich Chemie an der Universität Dortmund, in Zusammenarbeit mit Diplomchemiker Karsten Jakobi

(Arbeitskreis Prof. Lehnig) durchgeführt. Aufgenommen wurden winkelabhängige Spektren im Abstand von 5^0 bzw. 10^0. Die eingestellten Parameter waren: Detektionsfrequenz: 8.9863GHz, Modulationsfrequenz: 100kHz, Mikrowellenleistung: 2mW, Temperatur: 293K. Das Magnetfeld wurde von 0 bis 1T durchgefahren. Abbildung 3.5 zeigt die Ableitung der gemessenen FMR-Absorptionslinie für drei verschiedene Winkel.

Es ist deutlich zu erkennen, daß es erst in der Nähe der polaren Konfiguration zu einer merklichen Änderung der Resonanzlinienlage, -form und -amplitude kommt. Trägt man das resonante Magnetfeld gegen den Winkel auf, so läßt sich der experimentelle Verlauf mit dem theoretischen (Gleichung 3.14) vergleichen (Abbildung 3.6). Durch diesen Datensatz wurden die Anisotropieparameter K_1 und K_S bestimmt.

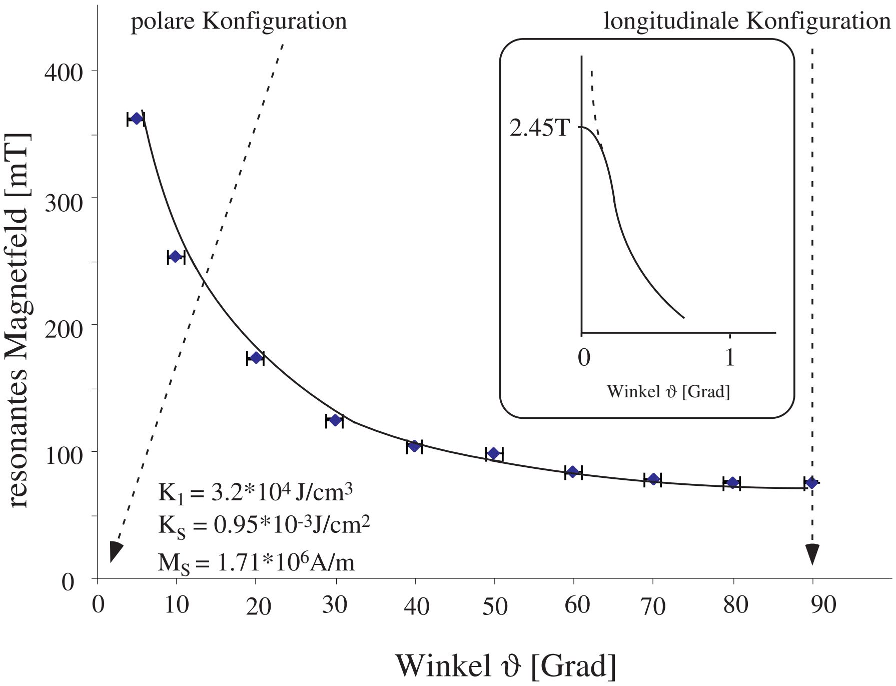

Abbildung 3.6: *Abhängigkeit des Resonanzfeldes von der Orientierung des B-Feldes relativ zur Probennormalen. Die durchgezogene Linie stellt den theoretischen Verlauf dar (numerische Berechnung durch Gl. 3.14 und Gl. 3.13).*

Hier ist auch der Verlauf des resonanten Feldes bis 2.45T (vergrößerter Ausschnitt) dargestellt. Die Theorie (Gleichung 3.14) sagt voraus, daß das resonante Magnetfeld in der polaren Konfiguration einen Pol hat (gestrichelte Linie). Dies ist nicht korrekt. Da die Orientierung senkrecht zur Probenebene [001] bezüglich der Kristallanisotropie wieder eine leichte Richtung darstellt, ist aufgrund des hohen Entmagnetisierungsfeldes von ca.

2.1T einer dünnen Schicht eine Resonanzlinie bei ca. 2.45T (ν_{MW} = 9GHz, Gl. 3.8) zu erwarten [4]. Diese Unstimmigkeit rührt daher, daß die Gleichung 3.14 für die polare Konfiguration nicht definiert ist. Leider konnte dies experimentell nicht bestätigt werden, da das maximal erreichbare Feld dieses FMR-Spektrometers bei 1T lag.

Verwendet man die aus den Experimenten erhaltenen Anisotropiekonstanten $K_1 = 3.2{\cdot}10^4 J/cm^3$ und $K_S = 0.95{\cdot}10^{-3} J/cm^2$, so kann hierdurch auch die experimentelle Resonanzbreite mit der Theorie verglichen werden.

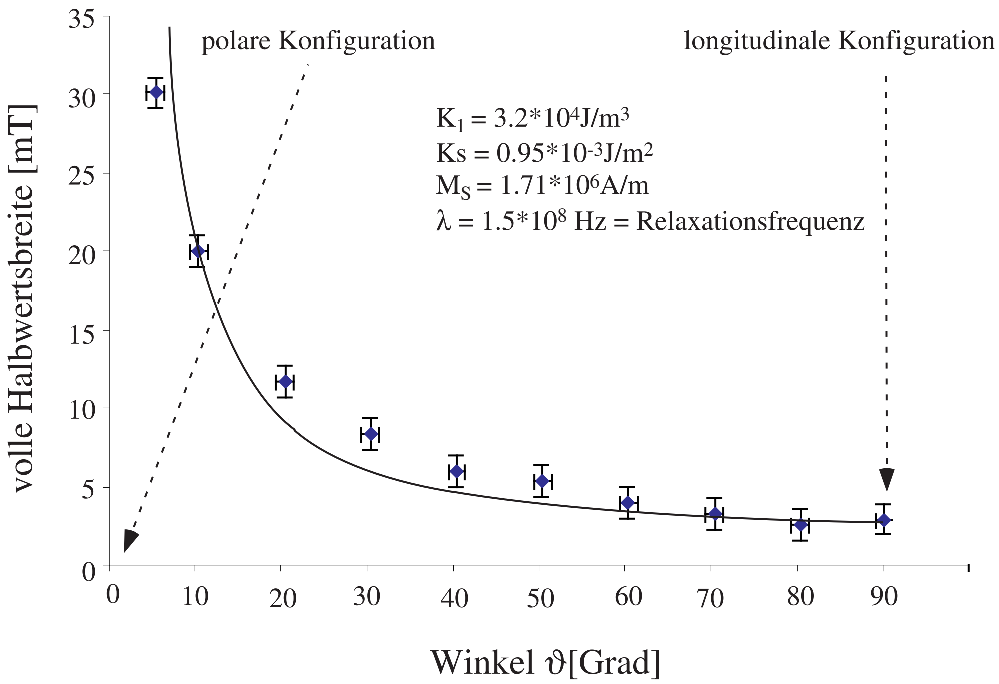

Abbildung 3.7: *Abhängigkeit des Resonanzbreite von der Orientierung des B-Feldes. Die durchgezogene Linie stellt den theoretischen Verlauf dar. Dabei wurde die Relaxationsfrequenz λ (Gl. 3.16) variiert.*

Als variabler Parameter wurde die Relaxationsfrequenz λ herangezogen. Sie ergab sich für diesen ultra-dünnen Multilayer zu $1.5{\cdot}10^8 s^{-1}$, und stimmt damit sehr gut mit dem von Celinski und Heinrich überein ($1.78{\cdot}10^8 s^{-1}$). Er beinhaltet alle Relaxationsprozesse, in Form einer Dämpfung der Bewegung von **M**. Der ungedämpften Bewegung von **M** wird dabei in einem Ferromagneten - durch die Wechselwirkung der Spins untereinander (Magnon-Magnon-WW) oder mit der Umgebung (Magnon-Phonon-WW) - Energie entzogen.

Bei den Experimenten zur konventionellen FMR haben wir in den Spektren noch weitere Resonanzen entdeckt. Abbildung 3.8 zeigt die ferromagnetische Resonanz in longitudinaler Konfiguration und einen vergrößerten Ausschnitt (Faktor 40). Zu sehen sind sechs etwa äquidistante Resonanzen und eine etwas breitere siebte Resonanz bei 321.05mT.

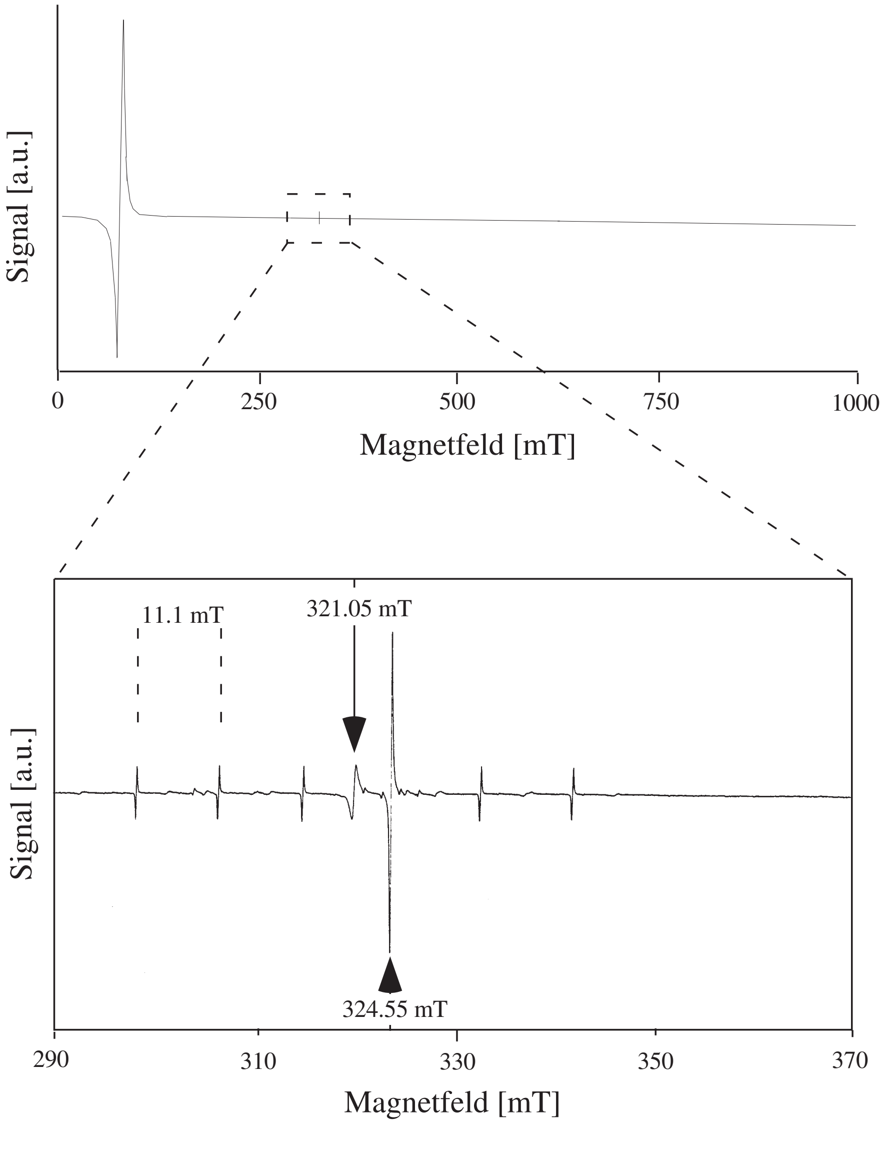

Abbildung 3.8: *Ferromagnetische Resonanz bei Magnetfeldvariation bis 1T, und vergrösserter Ausschnitt in longitudinaler Konfiguration.*

Dies sind klassische ESR-Signale von Verunreinigungen im MgO-Substrat. Sehr gut sind fünf der eigentlich sechs etwa äquidistanten Hyperfeinstrukturlinien von Mangan (Mn^{2+}, $^{55}_{25}Mn$, I=5/2 [1]) zu erkennen. Die vierte der sechs Linien liegt unter der höchsten Resonanz bei 324.55mT. Dabei erklärt die Hyperfeinwechselwirkung in zweiter Ordnung die nicht vollständige Äquidistanz der Linien. Der Abstand von etwa 11.1mT (Mittel) bedeutet, daß eine weitgehend ionische Bindung des Mn^{2+} vorliegt und daher vorraussichtlich ein Mangan-Ion auf einem Magnesium-Platz sitzt. Dies wird auch dadurch bestätigt, daß die sechs Hyperfeinstrukturlinien keine Orientierungsabhängigkeit vom äußeren Magnetfeld zeigen und der g-Faktor von Mangan im MgO-Gitter isotrop ist [23].

Die höchste Resonanz bei 324.55mT stammt von Cr^{3+} mit einem experimentellen g-Faktor von 1.979. Abragam und Bleaney [1] geben hierzu für Cr^{3+} in MgO einen Wert von g=1.98 an.

Da die etwas breitere Resonanz bei 321.05mT genau im Schwerpunkt des Mn^{2+}-Spektrums auftaucht, liegt die Vermutung nahe, daß es sich hierbei um eine Austauschverschmälerung der Mn-Hyperfeinwechselwirkung handelt. Wir gehen davon aus, daß dies durch Konzentrationsschwankungen der Mn^{2+}-Verunreinigungen oder durch die Fe-Deckschicht zustande kommt [23].

Kapitel 4

Gepulste ODFMR in Reflektion

Wir möchten Experimente durchführen, mit denen man Oberflächen getrennt vom Volumen detektieren kann. Hierbei soll ein modengekoppelter Femtosekunden-Pulslaser die Detektion der magnetischen Signale ermöglichen. Während ein statisches Magnetfeld die Zeeman-Entartung aufhebt, wird ein Mikrowellenfeld die magnetische Anregung erlauben. Die Übertragung der Magnetisierung des Systems auf die optische Welle soll in Reflektion durch den sogenannten Kerr-Effekt möglich werden. In Grundwellendetektion wird dieser das Verhalten der Bulkmagnetisierung aufzeigen. Um dabei definierte Aussagen über die ausgelesenen Informationen machen zu können, ist es unumgänglich die Reaktion des Kerr-Effektes bei Änderung der Magnetisierung zu kennen.

4.1 Der Kerr-Effekt als Detektor der Magnetisierung

Will man Informationen über die Magnetisierung eines Spinsystems auf optischem Wege erhalten, so benötigt man einen Mechanismus der die Informationen der Materie isoliert und an das Licht koppelt. In Reflexion kann der magnetooptische Kerr-Effekt ein solcher Mechanismus sein. Benannt nach J. Kerr (1877), beschreibt er den Einfluß der Magnetisierung eines Mediums auf die Polarisation der am Medium reflektierten optischen Welle. Im Grunde ist er in niedrigster Ordnung dem Faraday-Effekt in Transmission gleich, wobei beide Effekte dann eine lineare Funktion des angelegten Feldes sind [57]. Der magnetooptische Kerr-Effekt selbst kann dabei auf die Spin-Photon-Wechselwirkung zurückgeführt werden, in welcher die Lichtquanten elastisch an dem magnetischen Kristall gestreut werden und dadurch eine Änderung in der Polarisation auftritt.

Das Auftreten der Doppelbrechung in einem solchen äußeren Feld wird für Schalt- und

Modulationsvorgänge von Licht, seit einiger Zeit besonders auch bei Lasern, genutzt. Bei ferroelektrischen und -magnetischen Festkörpern ergeben sich interessante elektro- und magnetooptische Wechselwirkungen, die für die Entwicklung von Datenspeichern genutzt werden können. Als Speichermedien, die optisch abgefragt werden, benutzt man oft auch dünne, anisotrope Schichten auf geeigneten Substraten.

4.1.1 Das Auftreten des Kerr-Effektes

Der magnetooptische Kerr-Effekt kann auf zwei Effekte zurückgeführt werden. Ganz allgemein wird dieser als komplexe Summe von Rotation und Elliptizität dargestellt. In dieser Notation stellt der komplexe Kerr-Effekt dann eine Kombination aus zirkularer Doppelbrechung und zirkularem Dichroismus dar.

$$\Phi_K = \Theta_K + i\epsilon_K \tag{4.1}$$

Im allgemeinen treten beide Effekte bei Reflexion an einem magnetisierten Medium gleichzeitig auf. Man kann sich dazu eine linear polarisierte Welle an einem magnetisierten Medium reflektiert denken. Dann führt die zirkulare Doppelbrechung zu einer Rotation Θ_K der Polarisation, während der zirkulare Dichroismus zu einer Elliptizität ϵ_K führt. In Kombination dieser Effekte erhält man also für die reflektierte Welle eine elliptische Polarisation, deren Hauptachsen aus der ursprünglichen Lage herausgedreht wurden.

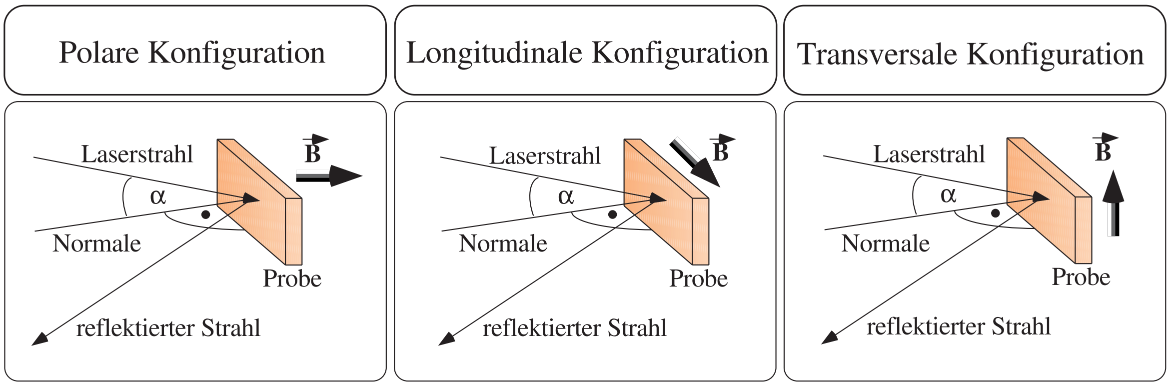

Abbildung 4.1: *Mögliche Konfigurationen des Kerr-Effektes.*

Nun hängen diese beiden Effekte nicht nur von der einfallenden Polarisation ab, sondern auch von der Konfiguration des angelegten Feldes. Prinzipiell kann man dabei drei verschiedene Einstellungen unterscheiden. Der polare Kerr-Effekt zeichnet sich dadurch aus, daß das äußere Magnetfeld eine Magnetisierung senkrecht zur Probenoberfläche erzeugt. Liegt das äußere Magnetfeld parallel zur Oberfläche der Probe, so muß man hier zwischen dem longitudinalen und dem transversalen Kerr-Effekt unterscheiden. In der longitudinalen Konfiguration zeigt das Magnetfeld in Richtung des von der einfallenden und reflektierten Welle aufgespannten Ebene, während es in transversaler Geometrie senkrecht zu dieser Ebene liegt.

4.2 Untersuchung des linearen Kerr-Effektes

Um die Größenordnung abschätzen zu können, mit der die Magnetisierung der Probe (Eisen-Multilayer aus Kapitel 3) an die Polarisation der optischen Welle koppelt, wurden Experimente durchgeführt, in denen dies untersucht werden sollte. Dafür wurden Rotation und Elliptizität der zuvor linear polarisierten Welle nach der Reflexion an dem magnetisierten Medium getrennt von einander vermessen. Die Verwendung eines Analysators ermöglicht es dabei, eine Änderung der Polarisation in eine Änderung der reflektierten Intensität zu übertragen.

Da dieses Experiment zur Bestimmung des statischen Kerr-Effektes parallel zum Aufbau des Ti:Sa-Lasers durchgeführt wurde, stand er zu diesem Zeitpunkt noch nicht zur Verfügung. Aus diesem Grund wurde eine Laserdiode verwendet.

4.2.1 Der experimentelle Aufbau

Abbildung 4.2 zeigt den experimentellen Aufbau mit der angesprochenen Laserdiode (852nm). Die Probe, die durch ein Spulenpaar (Helmholz-Anordnung) eingeschlossen wird, kann in ihrer Magnetisierung definiert beeinflußt werden. Die Analyseeinheit besteht aus einem Photoelstischem Modulator (PEM), einem Analysator und einer Photodiode. Um eine definierte Polarisation an der Probenoberfläche zu gewährleisten, wird vor der Probe ein weiterer Polarisator eingesetzt. Diese Anordnung bietet die Möglichkeit, den linearen und auch - wie Kapitel 5.2.2 zeigen wird - den quadratischen Kerr-Effekt in beliebigen Magnetfeldkonfigurationen mit definierten Eingangspolarisationen zu bestimmen. Da uns allerdings nur einige Spezialfälle in dieser Anordnung interessierten, wurden Messungen mit nur einer Polarisation für zwei verschiedene Magnetfeldkonfigurationen durchgeführt. Im Hinblick auf die weiteren Experimente erschienen uns dabei die polare sowie die longitudinale Konfiguration als vernünftig.

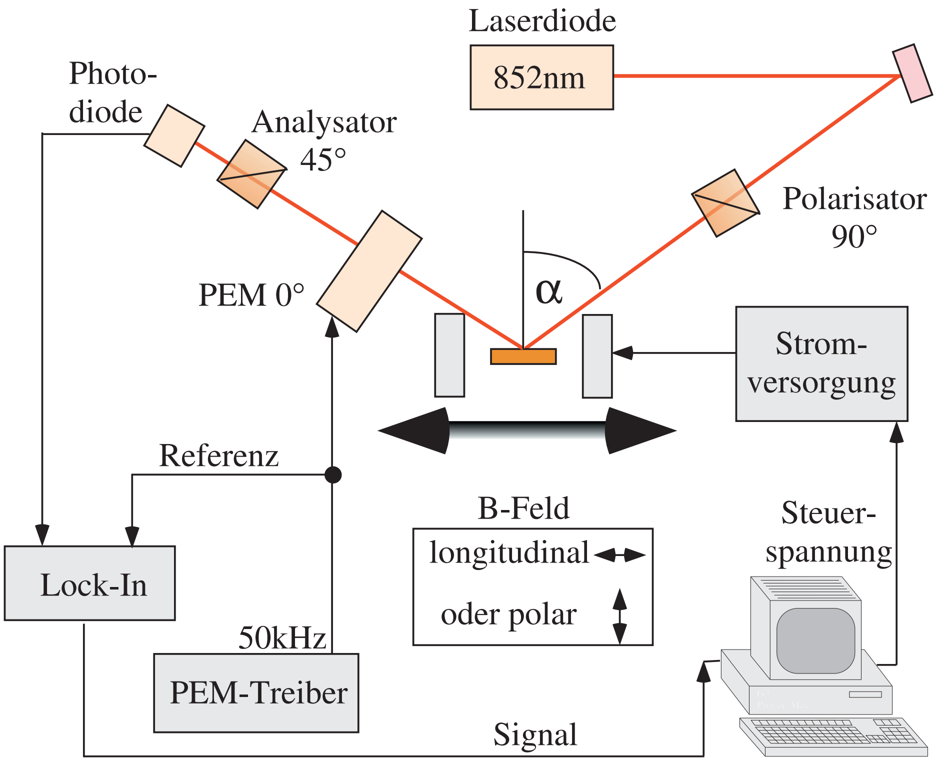

Abbildung 4.2: *Experimenteller Aufbau zur Messung des linearen Kerr-Effektes.*

Da es sich bei der Probe um einen Ferromagneten handelt, sollte das zu erwartende Signal, das die Magnetisierung der Probe wiederspiegelt, bei geeigneter Variation des äußeren Feldes eine Hysterese wiedergeben. Die Signaländerung wird dann zwischen den Sättigungsmagnetisierungen M_S der beiden antiparallelen Magnetfeldrichtungen auftauchen, was übertragen auf die reflektierte optische Welle einer doppelten Drehung um den Kerr-Winkel Θ_K bzw. einer doppelten Kerr-Elliptizität ϵ_K um die Ursprungspolarisation entspricht. Die Höhe des Signals bei einer solchen Drehung ist dann über die Kopplung des magnetooptischen Effektes proportional zur Magnetisierung.
Aufgrund der niedrigen Signalstärken ([22], [55], [56]), die wir für den linearen Kerr-Effekt erwarten, und um eine Trennung von Rotation und Elliptizität durchführen zu können, wurde auf eine phasensensitive Detektion mit Hilfe eines photoelastischen Modulators (PEM) zurückgegriffen.

4.2.2 Theoretische Beschreibung der Apparatur

Um herauszustellen, welchen Einfluß eine phasensensitive Detektion auf eine durch die Probe erzeugte Polarisationsänderung hat, wurde der experimentelle Aufbau mit seinen optischen Bauteilen mathematisch beschrieben. Damit konnten die entsprechenden Operatoren in richtiger Reihenfolge, so wie sie im Experiment Anwendung fanden, auf die Lichtwelle wirken. Das Signal wurde dann bezüglich Rotation und Elliptizität untersucht. Um dieses Verfahren deutlich zu machen, soll hier ein kurzer Überblick gegeben werden.

Zunächst benötigt man eine linear polarisierte Lichtwelle, deren Schwingungsebene willkürlich in die x-Richtung zeigt. Um dem Experiment Rechnung zu tragen, wird nun ein Koordinatensystem festgelegt, das eine s-polarisierte (s = senkrecht) Welle ihre Schwingung in der x-Richtung durchführt. Die y-Achse definiert dann eine p-Polarisation (p = parallel). Die z-Achse, die in dieser Rechnung keine Rolle spielt, zeichnet die Flugbahn der Photonen aus.
Linear polarisierte Wellen können in zirkulare Anteile zerlegt werden und mit Hilfe des Jones-Formalismus dargestellt werden.

$$\mathbf{E}_{LP} = E_0 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} = \frac{E_0}{2} \cdot \left[\begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \right] \tag{4.2}$$

Zeigt eine Probe zirkulare Doppelbrechung, so läßt sich dies mathematisch durch einen komplexen Phasenfaktor $\Delta\phi$ beschreiben, der eine Rotation der Polarisation um den Kerr-Winkel Θ_K=$\Delta\phi/2$ zur Folge hat. Dieser Phasenfaktor resultiert aus dem Geschwindigkeitsunterschied beider Wellen, aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindizes für $\sigma^{\pm}$-Licht. Mathematisch läßt sich der Einfluß deshalb mit der Änderung einer der beiden Teilwellen beschreiben. Der Phasenfaktor $\Delta\phi$ kann dabei Werte von 0 bis 2π annehmen. Alle höheren Phasenänderungen sind dann modulo 2π. Die daraus resultierende Kerr-Rotation Θ_K liegt dann entsprechend zwischen 0^0 und 180^0.

Neben der Doppelbrechung kann auch Dichroismus auftreten, der sich durch eine Elliptizität zwischen 0 und 1 beschreiben läßt. Da in dieser Rechnung eine eventuelle Dämpfung außer acht gelassen wird, genügt es vollkommen, die Änderung einer der beiden zirkularen Wellen relativ zur anderen zu betrachten. Zeigt sich dann keine Elliptizität, so äußert sich dies durch den Spezialfall einer eventuell noch gedämpften linear polarisierten Welle. Dagegen entsteht bei einer Elliptizität vom Betrag 1 eine zirkulare Welle.

Mit diesen Definitionen kann man nun den zirkularen Einfluß einer magnetisierten Probe in Reflexion, bzw. auch in Transmission wiedergeben:

$$\mathbf{E}_{Refl.} = \frac{E_0}{2} \cdot \left[\begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} \cdot (1 - \epsilon_K) \cdot e^{(i\Theta_K)} + \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \right], \tag{4.3}$$

mit den Einschränkungen:

$$0 \leq \Theta_K \leq 180^0 \text{ (modulo } 180^0\text{) und } 0 \leq \epsilon_K \leq 1. \tag{4.4}$$

Unter dem Einfluß des PEMs, der den Brechungindex in y-Richtung mit 50kHz moduliert, wird diese Welle nun einer Polarisationsmodulation ausgesetzt. Voraussetzung ist, daß die Welle nun eine, durch den magneto-optischen Effekt erzeugte, Komponente in y-Richtung aufweist. Dazu muß zunächst die Wirkung des photoelastischen Modulators gezeigt werden. Die Brechungsindizes des Modulators können mit n_x und n_y bezeichnet werden. Während n_x stets konstant gehalten wird, kann n_y mit der Amplitude A_{Mod} und der Frequenz ν_{Mod} variiert werden. Mathematisch läßt sich dies ausdrücken durch:

$$\begin{aligned} n_x &= n_{x0} = n_{y0} \text{ und} \\ n_y &= n_{y0} + n_{y1}, \end{aligned} \tag{4.5}$$

wobei der Brechungsindex n_{y0} gleich dem konstanten Brechungsindex n_{x0} sein soll. Der oszillierende Anteil schwingt mit einer festen Frequenz von $\nu_{Mod} = 50kHz$:

$$n_{y1} = \Delta n \sin(2\pi\nu_{Mod} t) = \Delta n \sin(\omega_{Mod} t). \tag{4.6}$$

Dadurch wirkt der PEM, wenn keine Modulation des Brechungsindexes durchgeführt wird, wie eine einfache Glasplatte. Aus diesem Verhalten läßt sich nun ein Operator konstruieren.

$$(\mathbf{PEM}) = \begin{pmatrix} e^{i \cdot n_x kd} & 0 \\ 0 & e^{i \cdot n_y kd} \end{pmatrix} = e^{i \cdot n_{y0} kd} \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{[i A_{Mod} \sin(2\pi\nu_{Mod} \cdot t)]} \end{pmatrix}, \tag{4.7}$$

mit $A_{Mod} = \Delta nkd$ und k als dem Betrag des Wellenvektors der elektromagnetischen Welle und d der Dicke des Modulators. Die Modulationsamplitude A_{Mod} kann dabei frei gewählt werden.

Der Winkel, unter dem der PEM steht, also sein Hauptachsensystem relativ zum Koordinatensystem kann im Experiment frei gewählt werden. Entsprechend wird diese Rechnung den optimalen Winkel finden. Aus diesem Grund wird der PEM einem Drehoperator ($\mathbf{D}(\delta)$) unterworfen. Die Drehmatrix und deren Wirkung auf den PEM werden daher wie folgt festgelegt:

$$(\mathbf{D}(\delta)) = \begin{pmatrix} \cos\delta & \sin\delta \\ -\sin\delta & \cos\delta \end{pmatrix} \tag{4.8}$$

und:

$$(\mathbf{PEM}(\delta)) = (\mathbf{D}(\delta))^T(\mathbf{PEM})(\mathbf{D}(\delta)) \tag{4.9}$$

Diese Konstruktion ist in Abbildung 4.3 gezeigt. Man erkennt den frei wählbaren Winkel δ, der aus dieser Rechnung hervorgehen soll.

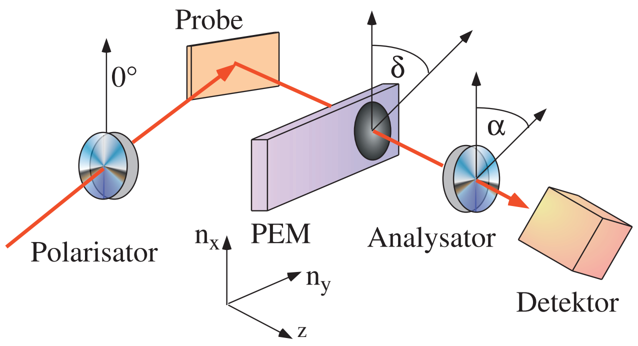

Abbildung 4.3: *Schematischer Aufbau zur Bestimmung der optimalen Empfindlichkeit.*

Nach Modulation der Polarisation durch den PEM propagiert die Welle durch einen Analysator **A**. Dort wird eine mögliche Polarisationsmodulation in eine Intensitätsmodulation übersetzt. Auch der Analysator soll in seiner Durchlaßrichtung frei wählbar sein, weshalb auch er einem Drehoperator $\mathbf{D}(\alpha)$ unterworfen wird. Zunächst wird er als vertikal positioniert definiert, läßt sich aber jederzeit frei drehen. Der sich daraus ergebende optimale Winkel wird mit α bezeichnet und kann im Experiment verwirklicht werden. Mathematisch läßt sich dies analog zum PEM formulieren:

$$(\mathbf{A}(\alpha)) = (\mathbf{D}(\alpha))^T(\mathbf{A})(\mathbf{D}(\alpha)) \text{ mit} \tag{4.10}$$

$$(\mathbf{A}) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ und} \tag{4.11}$$

$$(\mathbf{D}(\alpha)) = \begin{pmatrix} \cos\alpha & \sin\alpha \\ -\sin\alpha & \cos\alpha \end{pmatrix}. \tag{4.12}$$

Mit diesen Definitionen kann das Signal auf der Photodiode berechnet werden.

$$\mathbf{E}_{Signal} = (\mathbf{A}(\alpha)) \cdot (\mathbf{PEM}(\delta)) \cdot \mathbf{E}_{Refl.} \tag{4.13}$$

$$\text{mit } I = \frac{1}{2}c\varepsilon_0|\mathbf{E}^*_{Signal} \cdot \mathbf{E}_{Signal}| \text{ und } I_0 = \frac{1}{2}c\varepsilon_0|\mathbf{E}^*_0 \cdot \mathbf{E}_0|. \tag{4.14}$$

Für die Intensität, die sich durch Besselfunktionen ausdrücken läßt, erhält man Signalanteile mit unterschiedlichen Frequenzen und auch einem frequenzunabhängigen DC-Anteil:

$$\begin{aligned}
I &= \frac{1}{2}\varepsilon_0 c|\mathbf{E}^*{}_{Signal} \cdot \mathbf{E}_{Signal}| = \\
&= \frac{I_0}{4}[1 + (1-\epsilon_K)^2 - 2J_0(A_{Mod})(1-\epsilon_K)\sin(2(\alpha-\delta))\sin(2\delta+\Theta_K) \\
&+ 2(1-\epsilon_K)\cos(2(\alpha-\delta))\cos(2\delta+\Theta_K)] && \text{DC-Anteil} \\
&+ \frac{I_0}{2}[J_1(A_{Mod})\sin(\omega_{Mod}t)(1-(1-\epsilon_K)^2)\sin(2(\alpha-\delta))] && \text{1.Harmonische} \\
&- I_0[J_2(A_{Mod})\cos(2\omega_{Mod}t)(1-\epsilon_K)\sin(2(\alpha-\delta))\sin(2\delta+\Theta_K)] && \text{2.Harmonische} \\
&+ \frac{I_0}{2}[J_3(A_{Mod})\sin(3\omega_{Mod}t)(1-(1-\epsilon_K)^2)\sin(2(\alpha-\delta))] && \text{3.Harmonische} \\
&- I_0[J_4(A_{Mod})\cos(4\omega_{Mod}t)(1-\epsilon_K)\sin(2(\alpha-\delta))\sin(2\delta+\Theta_K)] && \text{4.Harmonische} \\
&+ \ldots \quad \text{höhere Harmonische.}
\end{aligned} \tag{4.15}$$

Die unterschiedlichen frequenzabhängigen Signalanteile sind jeweils mit den Harmonischen der PEM-Frequenz moduliert und enthalten alle eine von der Ordnung der Harmonischen abhängigen Besselfunktion J_x, welche durch die Modulationsamplitude A_{Mod} bestimmt werden.

Man kann eine Näherung ansetzen, indem man $\epsilon_K \ll 1$ und $\sin(\Theta_K) \ll 1$ verlangt. Wie sich im experimentellen Teil dieses Kapitels herausstellen wird, ist diese Einschränkung gerechtfertigt. Damit ergibt sich für die Intensitäten der ersten und zweiten Harmonischen, nach der Demodulation mit der jeweiligen PEM-Harmonischen:

$$I_{1\omega} = I_0 J_1(A_{Mod}) \sin(2(\alpha - \delta))\epsilon_K \tag{4.16}$$

bzw.

$$I_{2\omega} = -I_0 J_2(A_{Mod}) \sin(2(\alpha - \delta)) \sin(2\delta + \Theta_K). \tag{4.17}$$

Man erkennt, daß die erste Harmonische nur noch von der Elliptizität ϵ_K abhängt, während die zweite Harmonische nur noch von der Rotation Θ_K bestimmt wird. Dieses Verhalten setzt sich auch in den höheren ungeraden bzw. geraden Harmonischen fort. Für die theoretische Beschreibung des Experimentes genügt es daher die Betrachtung auf die beiden ersten Harmonischen zu beschränken.

Ein Ergebnis aus dieser Rechnung kann daher schon festgehalten werden: Zur Bestimmung der Elliptizität getrennt von der Rotation und auch in umgekehrter Reihenfolge, ist es völlig ausreichend die entsprechende Referenzfrequenz am Lock-In-Verstärker auszuwählen, um so die gewünschte Frequenzkomponente herauszufiltern und den entsprechenden Effekt zu lokalisieren.

Um die optimale Konfiguration der optischen Elemente zu ermitteln, und damit die Empfindlichkeit der Apparatur zu erhöhen, kann man sich die maximale Änderung des Signals in Abhängigkeit von der entscheidenden Größe anschauen. Die optimalen Parameter können also gefunden werden, wenn man die erste Ableitung von $I_{1\omega}$ nach ϵ_K bzw. von $I_{2\omega}$ nach Θ_K berechnet:

$$\frac{\partial I_{1\omega}}{\partial \epsilon_K} = I_0 J_1(A_{Mod}) \sin(2(\alpha - \delta)) \tag{4.18}$$

$$\frac{\partial I_{2\omega}}{\partial \Theta_K} = -I_0 J_2(A_{Mod}) \sin(2(\alpha - \delta)) \cos(2\delta + \Theta_K). \tag{4.19}$$

Gleichung 4.18 und 4.19 wird, abhängig von $J_1(A_{Mod})$ bzw. $J_2(A_{Mod})$ genau dann maximal, wenn zwischen den beiden Winkeln α und δ, ein Unterschied von 45^0 existiert:

$$\alpha - \delta = \frac{\pi}{4}. \tag{4.20}$$

Unter Berücksichtigung dieses Ergebnisses und der Näherung, daß $\sin(\Theta_K) \ll 1$ wird Gleichung 4.19 dann maximal, wenn $\delta = 0$, womit $\alpha = \pi/4$ ist.

Diese Forderungen lassen sich nun verwenden, um die frequenzabhängigen Intensitäten sowie den DC-Anteil absolut zu bestimmen. Die Intensitäten der frequenzabhängigen Anteile, die sich aus dieser Analyse ergeben, sind:

$$I_{1\omega} = I_0 J_1(A_{Mod})\epsilon_K \tag{4.21}$$

$$I_{2\omega} = -I_0 J_2(A_{Mod}) \sin(\Theta_K) \cong -I_0 J_2(A_{Mod})\Theta_K. \tag{4.22}$$

Nun läßt sich der frequenzunabhängige Teil aus Gleichung 4.15 ermitteln. Auch in diesem Fall wird die Näherung eines geringen komplexen Kerr-Effektes benutzt. Unter Verwendung der vorgegebenen Winkel α und δ ergibt sich in guter Näherung für den DC-Anteil:

$$I_{DC} \approx \frac{I_0}{2}. \tag{4.23}$$

Dieser wird nicht vom komplexen Kerr-Effekt beeinflußt, und ist daher bei allen Messungen und für alle Modulationsamplituden A_{Mod} konstant. Um ein von der Intensität I_0 unabhängiges Kerr-Signal zu erhalten werden die später im Experiment gemessenen Intensitäten der ersten und zweiten Harmonischen auf diesen DC-Anteil normiert.

Zum Schluß soll noch die angesprochene Modulationsamplitude bestimmt werden. Sie ist eine Funktion der Wellenlänge des verwendeten Laserlichtes:

$$A_{Mod} = \Delta n \cdot k \cdot d \text{ mit } k = \frac{2\pi}{\lambda}. \tag{4.24}$$

k ist der Wellenvektor der elektromagnetischen Welle und d die Dicke des optischen Mediums, also des PEMs. Δn stellt in dieser Gleichung die mögliche Variationsbreite des Brechungsindexes dar. Die Besselfunktionen $J_1(A_{Mod})$ und $J_2(A_{Mod})$ sind aufgrund vorgegebener Wellenlänge und fester Dicke des optischen Mediums nur noch Funktionen der Variation des Brechungsindexes.

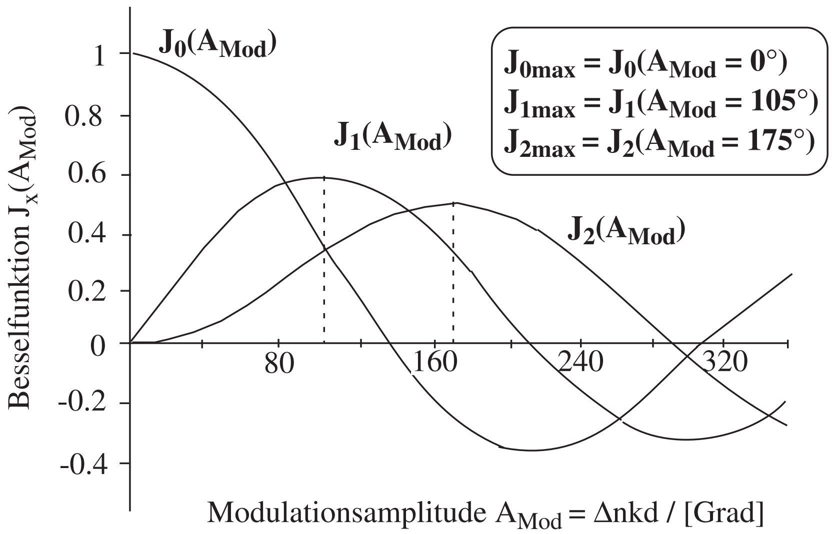

Abbildung 4.4: *Besselfunktionen verschiedener Ordnungen.*

In Abbildung 4.4 sind die Besselfunktionen verschiedener Ordnungen gegen die Modulationsamplitude A_{Mod} aufgetragen. Sie zeigt, bei welchen Amplituden die Besselfunktionen maximal werden. Aus der Extremwertberechnung zeigt sich, daß die erste Ordnung bei $A_{Mod} = 105^0$, die zweite Ordnung bei 175^0 ein Maximum hat. Die nullte Ordnung wird nicht benötigt, da der DC-Anteil für alle Modulationsamplituden konstant ist. Für kleine Kerr-Effekte ist er daher von den Besselfunktionen unabhängig.

Verwendet man diese durch die simulierte Rechnung erhaltenen Werte, so sollte das Experiment optimal für die Messungen vorbereitet sein, weil man so die theoretisch höchst mögliche Empfindlichkeit garantiert hat.

4.2.3 Die Eichung der Apparatur

Um das vom Lock-In-Verstärker gelieferte Signal in ein Kerr-Signal zu übersetzen, muß dieses zuvor noch einer Eichung unterworfen werden. Die Rotation wird dann durch definierte Veränderung eines zuvor zusätzlich eingefügten $\lambda/2$-Plättchens geeicht, während die Elliptizitäts-Messung eine Eichung mit Hilfe eines $\lambda/4$-Plättchens verlangt. Analytisch gesehen ist es völlig irrelevant, ob die Polarisationsänderung durch eine magnetisierte Probe oder durch ein Verzögerungsplättchen hervorgerufen wird. Man muß lediglich beachten, daß die Drehung des Verzögerungsplättchens um einen Winkel α, eine Drehung der Polarisation um 2α zur Folge hat.

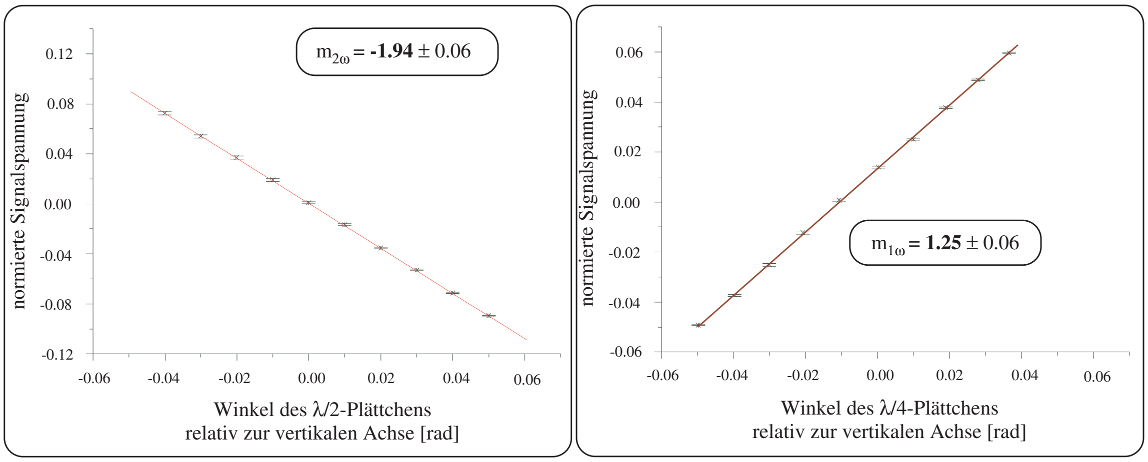

Abbildung 4.5: *Eichung der Apparatur bezüglich Rotation und Elliptizität.*

In Abbildung 4.5 kann man nun die Eichgeraden sehen, wie sie für Rotation und Elliptizität getrennt von einander aufgenommen werden konnten. Die Eichung der Apparatur erfolgt also, indem man die Achse des jeweiligen Verzögerungsplättchen um einen kleinen Betrag ändert, und die erhaltene Signalspannung, die zuvor auf den DC-Anteil normiert wurde, gegen den Winkel aufträgt. Dieser DC-Anteil wird vorher am Lock-In-Verstärker entnommen, und ist in erster Näherung konstant. Die aus dem Quotienten resultierende normierte Signalspannung ist dann ein Eichmaß für die Änderung der Polarisation, die durch den Kerr-Effekt hervorgerufen wird.

Bei einer Modulationsamplitude A_{Mod} von 105^0, bzw. 175^0 im Falle der ersten (Elliptizität), bzw. zweiten Harmonischen (Rotation) erhält man eine theoretische Steigung von:

$$m_{1\omega} \text{ (theoretisch für } A_{Mod} = 105^0) = \frac{\partial \frac{I_{1\omega}}{I_{DC}}}{\partial \epsilon_K} = 2J_1(A_{Mod}) = 1.16 \text{ und} \tag{4.25}$$

$$m_{2\omega} \text{ (theoretisch für } A_{Mod} = 175^0) = 2 \cdot \frac{\partial \frac{I_{2\omega}}{I_{DC}}}{\partial \theta_K} = -4J_2(A_{Mod}) = -1.95. \tag{4.26}$$

Die theoretisch ermittelten Steigungen stimmen recht gut mit den experimentellen Ergebnissen überein. Die erhaltenen Eichgeraden lassen nun eine Berechnung der Kerr-Effekte zu. Dazu kann man folgende einfache Relationen finden:

$$\epsilon_K = \frac{1}{m_{1\omega}} \cdot \frac{Messung_{1\omega}}{I_{DC-Anteil}} \text{ und} \tag{4.27}$$

$$\Theta_K = \frac{2}{m_{2\omega}} \cdot \frac{Messung_{2\omega}}{I_{DC-Anteil}}. \tag{4.28}$$

Messung$_{1\omega}$. bzw. Messung$_{2\omega}$ sind die Signale am Lock-In-Verstärker durch Einstellen der ersten bzw. der zweiten Harmonischen der PEM-Frequenz. $m_{1\omega}$, bzw. $m_{2\omega}$ stellen die Steigungen der Eichgeraden, aufgenommen durch ein $\lambda/4$, bzw. $\lambda/2$-Plättchen, dar. Durch den Faktor 2 in Gleichung 4.28 wird beachtet, daß die Steigung durch ein $\lambda/2$-Plättchen doppelt so groß ist, wie die Steigung durch die Rotation θ_K. Es gilt also:

$$m_{2\omega} = m_{\lambda/2} = 2m_{\theta_K}. \tag{4.29}$$

4.2.4 Ergebnisse zum linearen Kerr-Effekt

Nachdem nun das Experiment mit den berechneten Parametern auf optimale Empfindlichkeit einjustiert wurde, konnten Messungen an der beschriebenen Probe, dem Ferromagneten, durchgeführt werden. Zunächst wurden Einzelmessungen durchgeführt, die sich allerdings als nicht erfolgreich herausstellten. Deshalb wurden mehrere Messungen durchgeführt und aufsummiert. Hierdurch wurde das statistische Rauschen weiter reduziert.

Mit jeweils 50 Durchläufen wurden Rotation und Elliptizität für zwei verschiedene Magnetfeldkonfigurationen aufgenommen. Ein Durchlauf besteht dabei aus einer kontinuierlichen Variation des Magnetfeldes mit Hilfe einer vom Computer ausgegebenen Sägezahnspannung. Das Feld wird also von Null nach B_{max}, von dort zurück über Null nach $-B_{max}$ und wieder zur Null gefahren. Danach beginnt ein neuer Durchlauf, der dann vom Computer zu den vorherigen addiert wird. Zum Schluß wird das Signal durch die Anzahl der Durchläufe geteilt. Das - bei einem Strom von 10A - maximal erreichbare Magnetfeld lag bei 20mT, begrenzt durch die Geometrie der speziell für diese Versuche konstruierten Helmholz-Spulen. Um dieses Feld erzeugen zu können, mußte ein Strom von 10A durch die Spulen geschickt werden. Dieser relativ hohe Strom verlangte zum Umpolen der Magnetfeldrichtung ein spezielles Relais, das eine endliche Schaltzeit von einigen Millisekunden besaß. Während dieser Zeit stoppte der Computer daher die Datenaufnahme. Das führte im Nullfeld, aufgrund der Wartezeit zu einem kleinen Sprung in der Hysterese, weil die Apparatur einen steten *Drift* aufwies. Leider konnte nie ganz geklärt werden, woher dieser Drift stammt. Allerdings deutet der Vergleich mit anderen Gruppen (z.B.: [22]) an, daß es sich hierbei nicht zwangsläufig um ein experimentelles Problem handeln muß. Ein weiteres Indiz dafür, daß dies eine Eigenschaft der Magnetisierung darstellt, zeigt der Vergleich zwischen den beiden Konfigurationen: Lediglich in der Polaren kann man von einem linearen Anstieg der Sättigungsmagnetisierung sprechen.

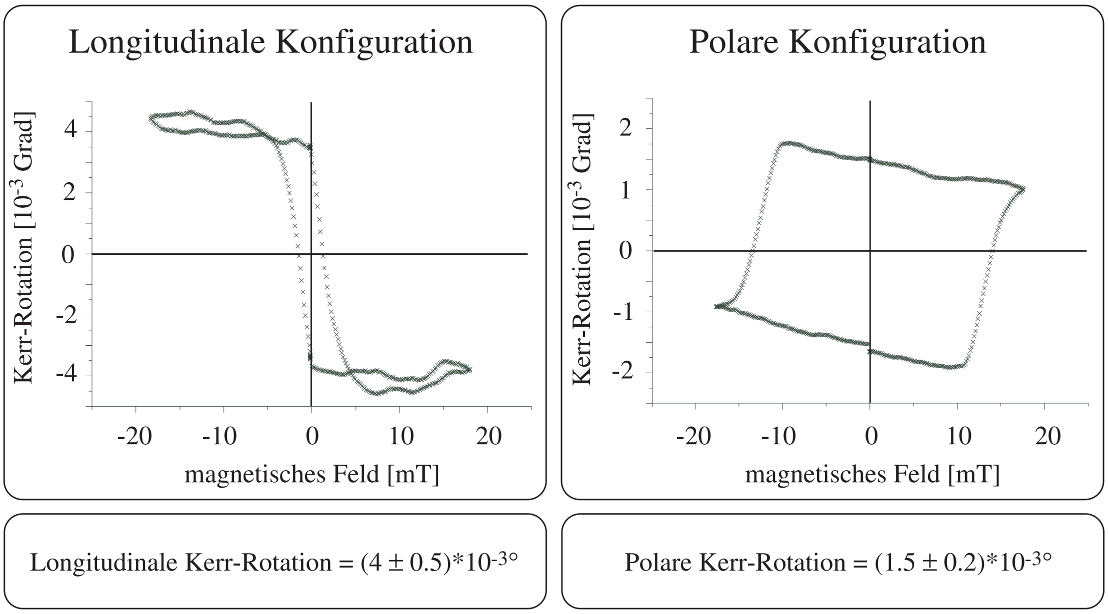

Abbildung 4.6: *Rotation für polare und longitudinale Konfiguration.*

Abbildung 4.6 a und b zeigt die Kerr-Rotation für die longitudinale und polare Konfiguration. Beide Aufnahmen wurden mit der zweiten Harmonischen der PEM-Frequenz gemessen. Wie vorher vermutet, zeigt das aufgenommene Signal die Form einer Hysteresekurve, die symmetrisch um das Nullfeld liegt. Das angelegte äußere Feld führt zumindest für die longitudinale Konfigurationen zu einer vollständigen Sättigung. Weiterhin erkennt man in der polaren Geometrie auch den zuvor angesprochenen Sprung am Nulldurchgang, der auf die endliche Schaltzeit des Relais zurückgeführt wird.

Die Stärke des Magnetfeldes für die polaren Effekte, also auch für die Elliptizität war nicht ausreichend, um eine vollständige Sättigung zu erreichen. Während hier mehr als 18mT benötigt werden, trat der Umschlag des Signals beim longitudinalen Effekt schon bei ca. 5mT auf. Diese Tatsache begründet sich durch die in Kapitel 3 angesprochene Oberflächenanisotropie. Liegt die Richtung der leichten Magnetisierung, hervorgerufen durch die Kristallanisotropie, nicht in der Ebene des dünnen Films, so kann es zwischen dieser und der Oberflächenanisotropie zu einem konkurierenden Verhalten kommen. Für ultra-dünne Proben, wie es hier der Fall ist, überwiegt dabei die Oberflächenanisotropie, was beim polaren Kerr-Effekt zu einem hohen Sättigungsfeld führt. Das Magnetfeld versucht also, die Spins gegen das Anisotropiefeld auszurichten, und dies gelingt in der polaren Konfiguration nur durch Anlegen höherer Felder. Mit zunehmender Monolagenanzahl verliert die Anisotropie der Oberfläche schnell an Einfluß während die des Kristall im Vergleich dazu an Dominanz gewinnt [46].

Zur Höhe der Signale, also der Stärke mit der die magneto-optische Kerr-Rotation die Magnetisierung auf die optische Welle überträgt, läßt sich zunächst feststellen, daß für die longitudinale Konfiguration eine Drehung um ca. $4 \cdot 10^{-3}$ Grad registriert wurde, während es im polaren Fall nur $1.5 \cdot 10^{-3}$ Grad sind.

Der leichte Unterschied im Drehwinkel, der zwischen longitudinaler und polarer Kerr-Rotation vorherrscht, kann durch die Magnetfeldkonfiguration erklärt werden. Die Projektion der Ausbreitungsrichtung der Lichtwelle auf die Magnetfeldachse führt nur dann für beide Konfigurationen zum gleichen Ergebnis, wenn der Winkel zwischen Laserstrahlrichtung und Magnetfeld 45 Grad ist. Da in diesem Experiment aber ein willkürlicher Winkel von (63 ± 3) Grad eingestellt wurde, um genau diese Abhängigkeit zu zeigen, äußert sich dies in einer vom Einfallswinkel abhängigen Drehung. Die Ursache liegt in der Spin-Orbit-Kopplung und resultiert in der Projektion des Wellenvektors $\mathbf{k}$ auf die Magnetisierung $\mathbf{M}$ [11]. Für den linearen Kerr-Effekt ist die Kopplung der Magnetisierung - die in erster Näherung in die Richtung des Magnetfeldes zeigt - an die optische Welle proportional zum Kosinus des Winkels zwischen beiden Richtungen. Im polaren Fall beträgt dieser Winkel 63 Grad, während er im longitudinalen Fall $(90 - 63)$ Grad, also 27 Grad einnimmt. Der Quotient aus den Kosinussen dieser Winkel ergibt einen Wert von:

$$\frac{\frac{\mathbf{k}\cdot\mathbf{M}}{|\mathbf{k}\cdot\mathbf{M}|}\mathrm{polar}}{\frac{\mathbf{k}\cdot\mathbf{M}}{|\mathbf{k}\cdot\mathbf{M}|}\mathrm{longitudinal}} = \frac{\cos(63^0)}{\cos(27^0)} = \tan(27^0) \approx \frac{1}{2}. \tag{4.30}$$

Dann sollte die longitudinale Kerr-Rotation also etwa doppelt so groß sein, wie die polare, was tendenziell auch zutrifft.

Abbildung 4.7 a und b zeigt die Ergebnisse aus der Elliptizitäts-Messung. Auch hier zeigen sich die vorher beschriebenen Effekte. Das Hystereseverhalten, die Remanenz, und die größere Koerzitivfeldstärke aufgrund der Oberflächenanisotropie im polaren Fall sind gut zu erkennen. Auch ist die Tendenz der Winkelabhängigkeit in beiden Konfigurationen richtig wiedergegeben.

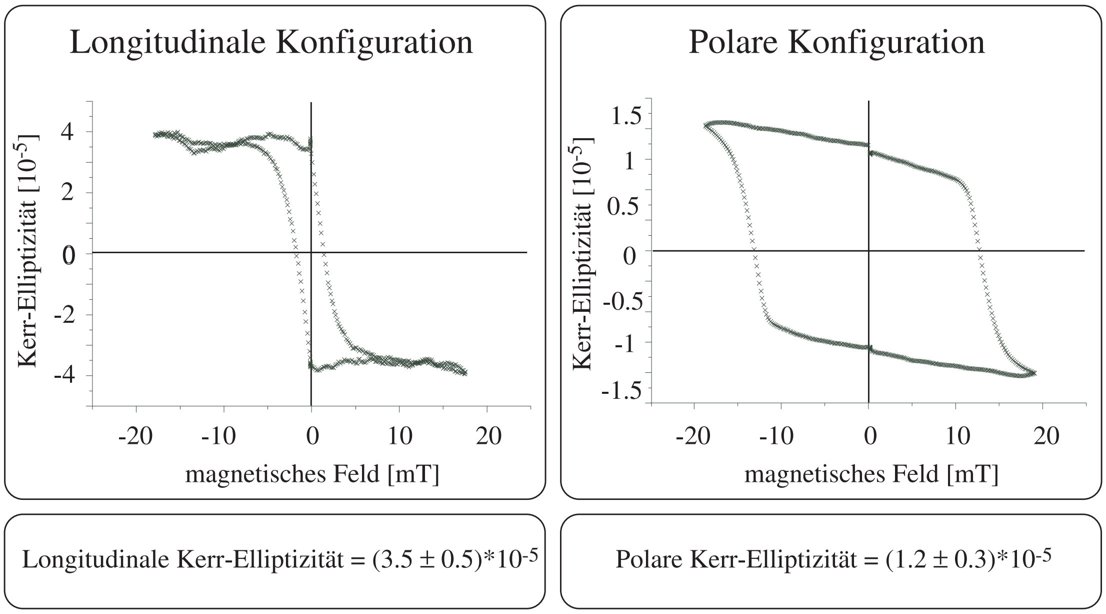

Abbildung 4.7: *Elliptizität für polare und longitudinale Konfiguration.*

Die magnetische Feldstärke, die zur Sättigung dieses Spinsystems aufgewandt werden muß entspricht der vorher gezeigten Rotation und beträgt für die longitudinale Konfiguration ca. 6mT, während man für die polare, wegen der Anisotropie der Oberfläche etwa 20mT benötigt. Auch hier ist die Sättigung der Magnetisierung nur zum Teil vollständig. Aus der Amplitude der Hysterese läßt sich ablesen, daß die Elliptizität für die longitudinale Konfiguration etwa im Bereich von $3.5 \cdot 10^{-5}$ liegt und damit etwa dreimal höher ist, als die polare.

4.2.5 Zusammenfassung

Die Experimente zum linearen Kerr-Effekt dienen vor allem dazu, ein grundlegendes Verständnis zur Wechselwirkung zwischen Licht und Materie zu bekommen. Die Stärke, mit der der lineare Kerr-Effekt die Magnetisierung der Probe an die optische Welle koppelt, konnte ermittelt werden und läßt damit eine Bestimmung der benötigten Kopplungskonstanten zu: Das Verhältnis aus $I_{1\omega}$ bzw. $I_{2\omega}$ zu I_{DC} gibt den Anteil von modulierter zu nicht-modulierter Intensität wieder, entspricht also einer relativen Signalstärke. Überträgt man den Wellencharakter in einen Teilchencharakter, so repräsentiert dieses Verhältnis auch die Anzahl der Photonen relativ zur gesamten Photonenanzahl, die einen Kerr-Effekt - durch Ankopplung an die Magnetisierung - ausgesetzt wurden. Aus Gleichung

4.21, 4.22 und 4.23 läßt sich dieses Verhältnis berechnen:

$$\frac{I_{1\omega}}{I_{DC}} = 2J_1(A_{Mod}) \cdot \epsilon_K \text{ bzw} \tag{4.31}$$

$$\frac{I_{2\omega}}{I_{DC}} = -2J_2(A_{Mod}) \cdot \sin(\theta_K) \tag{4.32}$$

Für die Rotation ergibt sich eine relative Signalstärke von $6.8 \cdot 10^{-5}$ (longitudinal), bzw. $2.5 \cdot 10^{-5}$ (polar). Entsprechend ergibt sich für die Elliptizität $4.0 \cdot 10^{-5}$ (longitudinal), bzw. $1.4 \cdot 10^{-5}$ (polar). Das heißt, nur wenig mehr als 10^{-5} der zur Verfügung stehenden Photonen tragen durch Ankopplung der Magnetisierung an die Polarisation des Lichtes zu einer effektiven Kerr-Rotation, bzw. Kerr-Elliptizität bei. Zirkulare Doppelbrechung und zirkularer Dichroismus unterscheiden sich dann in ihrem Signalbeitrag um etwa einen Faktor 1.7, während sich der Kerr-Effekt unter anderem durch die relative Lage des Magnetfeldes zur Strahlachse auszeichnet. In polarer Konfiguration benötigt man mehr als dreimal so hohe Feldstärken, um die Spins vollständig auszurichten, was die Entscheidung bezüglich der Magnetfeldkonfiguration im ODFMR-Experiment beeinflußt hat. Es konnte keine antiferromagnetische Austausch-Kopplung - wie zum Beispiel bei Poulopoulos [51] - zwischen den Fe-Lagen beobachtet werden.

4.3 Die gepulste ODFMR

Abbildung 4.8 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau zur optisch gepulsten und detektierten ferromagnetischen Resonanz. Analog zu den Experimenten des statischen Kerr-Effektes wird hier bei Grundwellendetektion zur Ankopplung der Magnetisierung der Probe an die optische Welle der lineare Kerr-Effekt verwendet. Das Signal wird mit der zweiten Harmonischen der PEM-Frequenz demoduliert, weshalb das Spektrometer auf die Kerr-Rotation (siehe Kapitel 4.2.2) empfindlich ist.

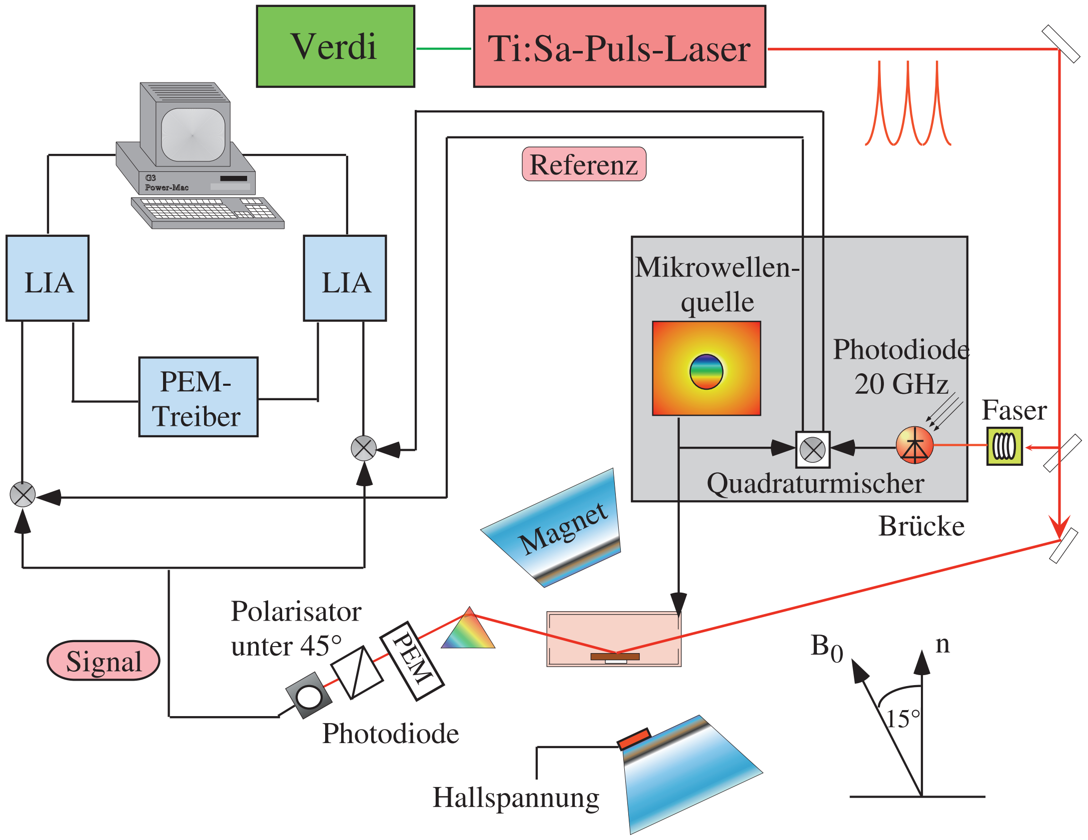

Abbildung 4.8: *Aufbau zur gepulsten ODFMR.*

Für eine Reflektion an der Probe mußte der Signalzweig im Vergleich zur ODEPR umgebaut werden während der Referenzzweig (vergl. Abbildung 2.9) in gleicher Weise weiter betrieben werden kann: Die optische Welle wird, wie bei den ODEPR-Experimenten, in zwei Teilwellen aufgespalten. Der geringste Teil der infraroten Laserstrahlung mit ca. 6μW optischer Leistung wird dabei wieder in eine Faser eingefädelt, um die Pulsbreite zu erhöhen und die Photodiode auf der Mikrowellenbrücke nicht zu beschädigen.

Der weitaus größere Teil der Laserstrahlung wird an der Probe reflektiert und durch einen unter 45^0 stehenden Analysator auf eine Änderung der Polarisation untersucht. Man beachte, daß der optische Aufbau bezüglich der Analyse des Kerr-Effektes, dem aus Kapitel 4.2.2 gleicht. Die abgeleiteten Abhängigkeiten für den komplexen Kerr-Effektes gelten also weiterhin. Die elektronische Analyse der magnetischen Signale geschieht dann analog zu den Experimenten der gepulsten ODEPR, weshalb hier nicht weiter darauf eingegangen wird.

Die Ergebnisse zur konventionellen FMR (Kapitel 3) bei 9GHz Mikrowellenfrequenz haben gezeigt, daß das resonante Magnetfeld in der polaren Konfiguration, aufgrund des hohen Entmagnetisierungsfeldes von 2.1T, bei ca. 2.45T zu finden sein wird. Im Falle eines 14GHz-Spektrometers, wie es hier Verwendung fand, sollte das resonante Feld - in der gleichen Konfiguration - etwa 2.61T betragen. Aus dem Grund einer unzureichenden Feldvariation - bis maximal 1T - wird daher die Magnetfeldrichtung relativ zur Probennormalen um ca. 15^0 gedreht. Hierdurch kann man eine Detektion der ferromagnetischen Resonanz bei etwa 550mT (numerische Rechnung) erwarten.

Abbildung 4.8 zeigt weiterhin, daß ein spezieller Mikrowellenresonator verwendet werden muß (Daten: siehe Anhang E). Dieser neu konstruierte Resonator bietet die Möglichkeit einer Reflektion unter 70^0 (Winkel zwischen Probennormale und Laserstrahlachse), bei einer gleichzeitig longitudinalen Anregung durch die Mikrowelle. Für die weiteren Experimente zur oberflächensensitiven ODFMR (Kapitel 5) ist dieser Winkel von großer Bedeutung, kann hier aber zunächst außer Acht gelassen werden, da hier nur die Reflektion an sich durchgeführt werden muß.

4.4 Ergebnisse zur gepulsten ODFMR

Abbildung 4.9 zeigt die erste Aufnahme des optisch detektierten ferromagnetischen Resonanzsignals. Die experimentellen Parameter sind:

- für die optische Seite 3mW Laserleistung bei 830nm Zentralwellenlänge. Die Pulsbreite beträgt ca. 50fs bei einer Pulsfolgefrequenz von 126MHz.

- für die magnetische Seite 13.96GHz Mikrowellenfrequenz bei einer Leistung von ca. 20mW (10dB) im Resonator. Aufgenommen wurde hierbei ein Magnetfeldscan von 400 bis 800mT.

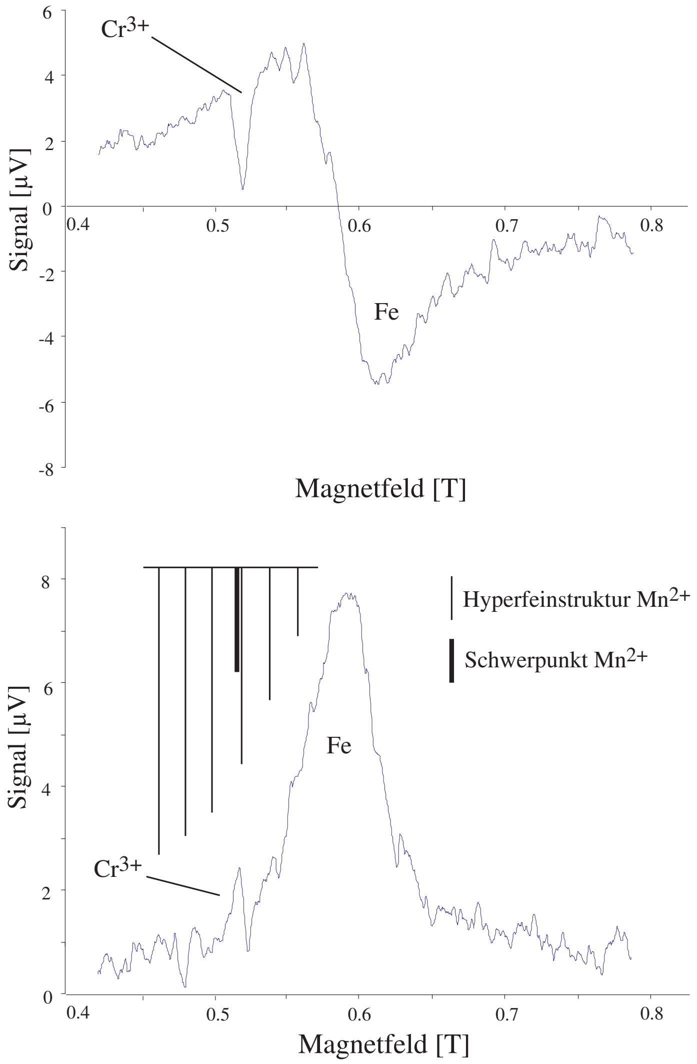

Abbildung 4.9: *Aufnahme des optisch detektierten Resonanzsignals bei Grundwellendetektion. Im unteren Bild sind auch die theoretischen Lagen der Verunreinigungen durch Mangan und Chrom (Abbildung 3.8) angegeben.*

- Die Temperatur an der Probe betägt ca. 293K, wobei die Probennormale unter 15^0 zum äußeren B_0-Feld ausgerichtet ist.

Man erkennt zunächst zwei Resonanzen. Die größere von beiden bei 586mT ist die gesuchte ferromagnetische Resonanz. Die Breite der Resonanzlinien beträgt ca. 52mT. Das Verhältnis aus Signal zu Rauschen dieser Einzelmessung war etwa 30:1. Die zweite Resonanz bei 520mT ist die bei den ESR-Messungen schon entdeckte Chrom-Verunreinigung. Ihre Lage stimmt exakt mit dem Feld aus den konventionellen Messungen überein, wobei man hier allerdings die Faktorisierung der Mikrowellenfrequenz von 9 auf 14GHz beachten muß . Dagegen hat der Winkel zwischen Magnetfeld und Probennormale keinen Einfluß auf die Lage der Chrom-Resonanzlinie.

Um systematische Abhängigkeiten nachweisen zu können, wurden leistungsabhängige Messungen durchgeführt. Hierzu wurde Mikrowellen- und Laserleistung variiert, und die Signale bezüglich ihrer Amplitude vermessen. Bei beiden Messungen blieb die Linienbreite konstant.

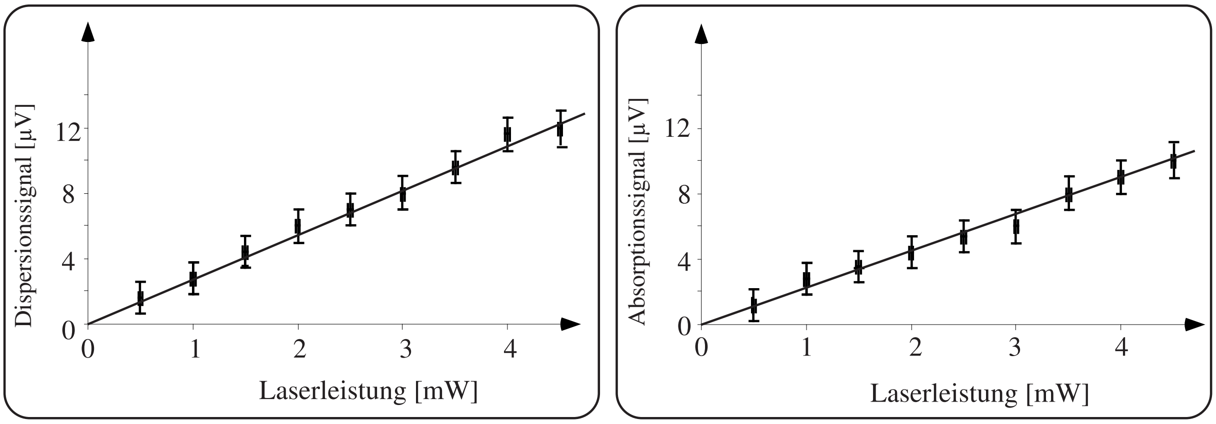

Abbildung 4.10: *Abhängigkeit der Resonanzamplitude von der Laserleistung. Der durch lineare Regression ermittelte experimentelle Verlauf ist eingezeichnet.*

Die Abhängigkeit von der Laserleistung zeigt Abbildung 4.10, wobei die Mikrowellenleistung ca. 20mW (10dB) beträgt. Die Steigung des Signals bezüglich der Laserleistung beträgt für die Dispersion 2.6μV/mW, dagegen für die Absorption nur 2.2μV/mW, was auf eine schon vorhanden Sättigung hindeutet.

Abbildung 4.11 zeigt die Abhängigkeit der ferromagnetischen Resonazamplituden von der Mikrowellenleistung. Dabei wurden 4mW Laserleistung vor der Probe verwendet. Die Achsen wurden doppelt logarithmisch aufgetragen.

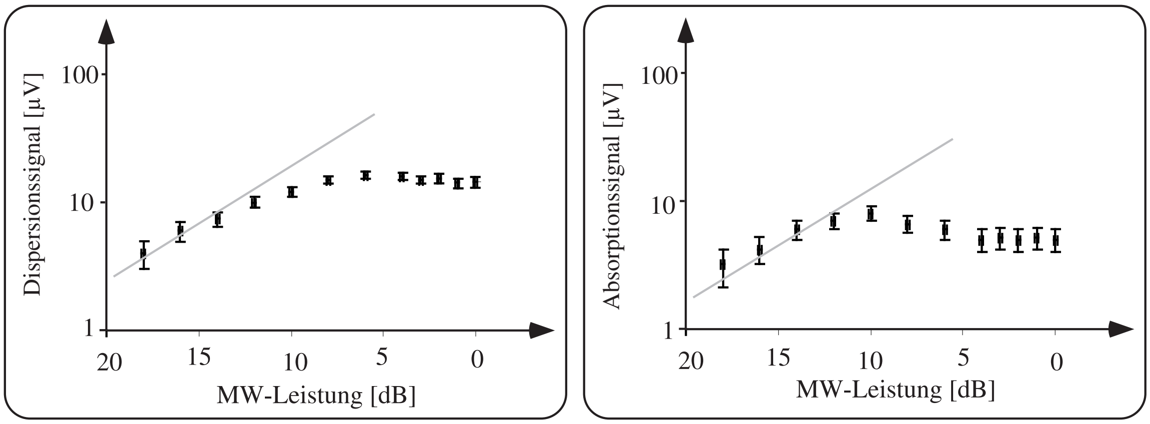

Abbildung 4.11: *Sowohl die Abhängigkeit der Resonanzamplituden von der Mikrowellenleistung, als auch der theoretisch erwartete Verlauf ohne Sättigung sind eingezeichnet.*

Eine interessante Beobachtung ist, daß bei Erhöhung der Mikrowellenleistung das System bei ca. 12mW (12dB) sättigt. Hierdurch kann auf die maximale Magnetisierungsänderung geschlossen werden:

Durch die experimentellen Gegebenheiten, wie Verstärker (28dB), Empfindlichkeit (0.6A/W (830nm)) und Verstärkung (40V/mA) der Photodiode (Modell: Eigenbau Nr. 94), läßt sich an der Photodiode eine optisch modulierte Leistung von $I_{AC} = 12.5$pW (Signalamplitude = 9μV) abschätzen. Ist der nichtmodulierte Anteil des optischen Signals (I_{DC}) bekannt, so läßt sich über Gleichung 4.32 die dynamische Kerr-Rotation angeben:

$$\theta_K(dynamisch) = \arcsin\left(\frac{I_{2\omega}(dynamisch)}{I_{DC}(-2J_2(A_{Mod}))}\cdot\right) \tag{4.33}$$

Das nichtmodulierte optische Signal wurde zuvor an der Photodiode gemessen, und betrug 100μW. Damit ergibt sich eine dynamische Kerr-Rotation von $8.9 \cdot 10^{-6}$ Grad. Die statische Kerr-Rotation für obige Konfiguration (polar) ist ebenfalls bekannt und beträgt nach Abbildung 4.6b $1.5 \cdot 10^{-3}$ Grad.

Vergleicht man den dynamischen mit dem statischen Kerr-Effekt, so ergibt sich eine relative Magnetisierungsänderung von 0.6 Prozent (gemessen an der Sättigungsschwelle: 12dB). Dieser Wert stellt die Änderung der Magnetisierung im Vergleich zur statischen Gesamtmagnetisierung dar und wird in Kapitel 5 noch von Bedeutung sein.

Kapitel 5

Gepulste ODFMR in Reflektion - oberflächensensitiv

Analog zum linearen Kerr-Effekt konnten - im Anschluß an die Fertigstellung des benötigten Puls-Lasers - Messungen zum quadratischen Kerr-Effekt durchgeführt werden. Dabei erlaubte die Methode der Frequenzverdopplung, wie sich später herausstellen wird, eine selektive Aufnahme der Oberflächenspins im Bereich von unter 1nm. Ein Ziel dieser Arbeit ist es, einen experimentellen Aufbau zu entwerfen, der die Möglichkeit der oberflächensensitiven Untersuchung bietet. Dabei soll ausgenutzt werden, daß eine Frequenzverdopplung innerhalb eines Volumens (Bulk) nur dann möglich ist, wenn das Medium keine Inversionssymmetrie bezüglich seiner Raumkoordinaten besitzt. Da diese jedoch bei vielen Untersuchungsproben vorhanden ist, kann ein mögliches Oberwellensignal ($\chi^{(2)} - Prozess$) nur von der Oberfläche stammen, da dort die Symmetrie auf jeden Fall gebrochen wird. Hat eine Probe - im vorliegenden Fall die Eisen-Multilayer-Probe - ein Inversionszentrum, so ermöglicht dies die Untersuchung der Spins der ersten 3-5 Monolagen [53]. Für eine optische Untersuchung des Spinsystems der Oberfläche müssen dafür ebenfalls die Informationen, analog zum linearen Fall, auf die Polarisation der optischen Welle übertragen werden. Wegen der Frequenzverdopplung allerdings, die an der Oberfläche stattfinden soll, benötigt man nun einen Mechanismus, der die Information der Magnetisierung auf die Polarisation zweiter Ordnung überträgt. Dafür eignet sich der quadratische Kerr-Effekt, der sich im Gegensatz zum linearen Kerr-Effekt ([52], [54]) nicht durch Plasmaschwingungen unterdrücken läßt. Die Ursache liegt in der Erzeugung der Oberwelle an der Oberfläche. Während im Volumen Inter- und Intraband-Übergänge stattfinden und dies zu destruktiven Beiträgen in der Spin-Orbit-Kopplung führt, wird die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie im nichtlinearen Fall allein durch die Oberfläche bestimmt.

5.1 Frequenzverdopplung an Oberflächen

Zur Messung des quadratischen Kerr-Effektes ist es notwendig zu wissen, mit welchen Verdopplungseffizienzen man rechnen kann. Bei einer Frequenzverdopplung innerhalb eines Kristalls (z.B. bei BBO, Kapitel 2) kann man für die Effizienz ohne Probleme in den Prozentbereich gelangen. Bei einer Oberwellenerzeugung durch Reflektion an einem Medium ist die Wechselwirkungszone allerdings so gering, daß man Leistungen im Bereich von Femtowatt detektieren muß.

Gleichung 5.1 [7] zeigt die Intensität der zweiten Harmonischen unter anderem in Abhängigkeit von der Grundwellenintensität und der Länge des durchsetzten Mediums:

$$I_{2\omega} = I_{1\omega}^2 \frac{2\pi^2 \cdot (\chi^{(2)})^2}{\epsilon_0 c_0 \lambda_1^2 n_1^2 n_2} \cdot [\frac{\sin(\Delta k \cdot L/2)}{\Delta k/2}]^2, \tag{5.1}$$

mit $\Delta k = k_2 - k_1 \neq 0$ und $k_{1,2} = 2\pi/\lambda_{1,2}$ als den Wellenvektoren von Grund- und Oberwelle. Neben der Abhängigkeit von der Weglänge L, und der dadurch erzeugten Modulation der Intensität durch Phasenfehlanpassung, wird die frequenzverdoppelte Intensität auch von der Grundwellenintensität $I_{1\omega}$, der Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ und durch die Brechungsindizes n_1 und n_2 von Grund- und Oberwelle bestimmt.

Durch Gleichung 5.1 kann eine Abschätzung für die Effizienz der Frequenzverdopplung an der Oberfläche angegeben werden. Dazu müssen neben den vom Medium abhängigen Größen, die man in der Literatur finden kann, auch die Intensität, die optische Wellenlänge und vor allem die Wechselwirkungslänge L der optischen Welle mit dem Medium bekannt sein. Eine Frequenzverdopplung an einem inversionssymmetrischen Medium wird nur von den ersten drei bis fünf Monolagen initiiert [54]. Bis zu diesem Punkt im Medium ist die Welle aber in erster Näherung noch nicht sehr stark absorbiert worden, weshalb die Grundwellenintensität $I_{1\omega}$ über diesen Bereich als konstant angesehen werden kann.

Da die Wellenlänge der elektromagnetischen Grundwelle vorgegeben ist, muß nur noch deren Intensität ermittelt werden. Für einen Puls-Laser ergibt sie sich nach Kapitel 1 zu

$$I_{1\omega} = \frac{P_{1\omega}^P}{\pi r^2} = \frac{P_{1\omega}^m}{\pi r^2 \cdot \tau_P \nu_R}, \tag{5.2}$$

mit r dem Spotradius des Laserstrahls auf der Probe, τ_P als der Pulsbreite und ν_R als der Repetitionsfrequenz. $P_{1\omega}^P$ stellt die Pulsleistung dar, während $P_{1\omega}^m$ die Leistung im

Mittel ist.[6]

Nimmt man nun auf der Probe einen Spotradius von $100\mu m$ an, so läßt sich dort eine Intensität von ca. $15 MW/cm^2$ bei einer Pulsleistung von ca. 5kW erzeugen. Mit diesen Werten, den materialabhängigen Größen [34] $n_1(\omega) = 2.94$, $n_2(2\omega) = 2.35$ und der entsprechenden Suszeptibilität $\chi^{(2)} = 5 \cdot 10^{-10} cm/V$ für Eisen kann die Pulsintensität der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit von der Anzahl der Monolagen berechnet werden, wenn man die Näherung macht, daß sich in den ersten 10 Monolagen noch keine Phasenverschiebung ereignet hat, wenn also gilt

$$\frac{\sin(\Delta k L/2)}{\Delta k/2} = \frac{\sin(\Delta k L/2) \cdot L}{\Delta k L/2} \approx L \tag{5.3}$$

mit $\Delta k = k_2 - k_1 \neq 0$ und $k_{1,2} = 2\pi/\lambda_{1,2}$ als den Wellenvektoren von Grund- und Oberwelle. Diese Näherung ist erlaubt, da das Produkt aus Δk und L hier einen Wert von ca. $2{\cdot}10^{-3}$ ergibt.

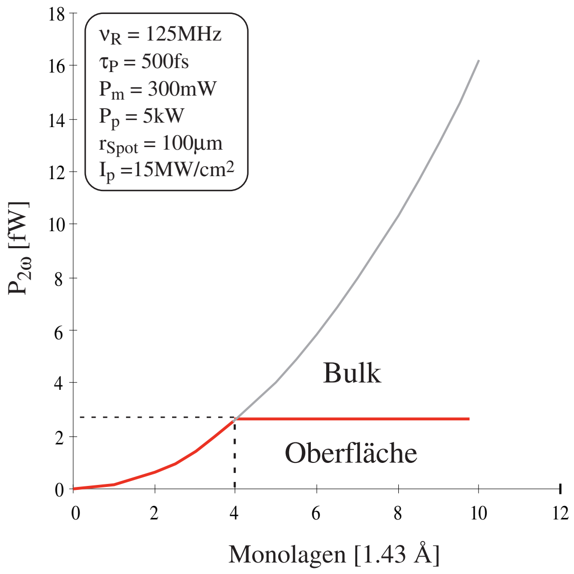

Abbildung 5.1: *Gerechnete Oberwellenleistung am Eisen-Multilayer in Reflexion an der Oberfläche. Der Symmetriebruch zwischen der Oberfläche und dem Bulk ist angedeutet.*

[6]Bemerkung: Die Experimente zum statischen, quadratischen Kerr-Effekt wurden - historisch gesehen - parallel zum Aufbau des Lasersystems durchgeführt. Das Lasersystem bot zu diesem Zeitpunkt, da es noch in der Erprobung war, eine mittlere Leistung von ca. 300mW bei einer Pulsbreite von ca. 500fs. Die Repetitionsfrequenz, die sich aus der Resonatorlänge des Lasers berechnen läßt, lag bei 125MHz. Dagegen stand der Laser bei den ODEPR- und ODFMR-Experimenten bereits in vollem Umfang zur Verfügung.

Aus der Pulsintensität läßt sich nun unter Beachtung von Repetitionsfrequenz, Pulsbreite und Spotradius die mittlere Leistung der Oberwelle berechnen, die man bei Reflexion an einer Eisen-Probe erwarten würde. Als variabler Parameter wurde in Abbildung 5.1 die Anzahl der Monolagen verwendet, wobei der Abstand von einer Monolage Eisen zur nächsten einer Länge von 1.43Å entspricht. Man erkennt, daß selbst für eine Frequenzverdopplung durch einen Puls-Laser die theoretische ermittelte mittlere Leistung im Bereich von einigen Femtowatt liegt. Bei Verwendung eines cw-Lasers wäre die Effizienz der Verdopplung bei diesen Werten sogar noch um mehr als vier Größenordnungen kleiner.

Wegen den Experimenten, die von T. Rasing 1996 [54] durchgeführt wurden, kann außerdem die Oberfläche in ihrer Tiefenausdehnung definiert werden. Weil sich in seinen Experimenten eine Zunahme der Oberwellenintensität nur bis etwa vier Monolagen zeigt, kann die Probe ab diesem Ort als Volumen aufgefaßt werden, da die Symmetrie offenbar nur bis zu dieser Monolage gebrochen wird. Die zu erwartende Signalleistung ($I_{2\omega}$(DC)) beträgt dann ca. 3fW.

5.1.1 Ergebnisse zur Frequenzverdopplung an der Oberfläche

Prinzipiell kann die Messung der Intensität, bei Frequenzverdopplung an der Oberfläche, sehr einfach gestaltet werden. Notwendig dazu wären nur der Laser, die Probe und ein Photomultiplier mit Prisma und Filter. Um allerdings die Effizienz des kompletten Aufbaus zur Messung des quadratischen Kerr-Effektes zu ermitteln, und damit den Vergleich zu den linearen Experimenten zu wahren, wurde die Messung der Intensität der Oberwelle am gleichen Aufbau durchgeführt, an dem auch die Experimente zum quadratischen Kerr-Effekt geprobt wurden. Man muß also damit rechnen, daß durch die Verwendung zusätzlicher Optiken die Effizienz der Umsetztung etwas herabgesetzt ist. Ein weiterer Grund, warum der Aufbau zur Messung des quadratischen Kerr-Effektes bei der Messung der Verdopplungseffizienz genutzt wurde, ist der eindeutige Nachweis. Neben der Höhe des Kerr-Signals dient auch die quadratische Abhängigkeit der Oberwellen- von der Grundwellenleistung als Nachweis für eine Frequenzverdopplung und damit für die *echte* Aufnahme des quadratischen Kerr-Effektes. Einige Ergebnisse aus diesem Nachweisverfahren sollen nun hier vorgestellt werden.

Für eine feste Repetitionsrate, Pulsbreite und Spotgröße kann man Gleichung 5.1 auf folgende Relation vereinfachen:

$$P_{2\omega} = aP_{1\omega}^2 \tag{5.4}$$

Darin sind $P_{1\omega}$ und $P_{2\omega}$ die mittleren Leistungen von Grund- und Oberwelle, während a die Effizienz der Verdopplung pro Grundwellenleistung darstellt.

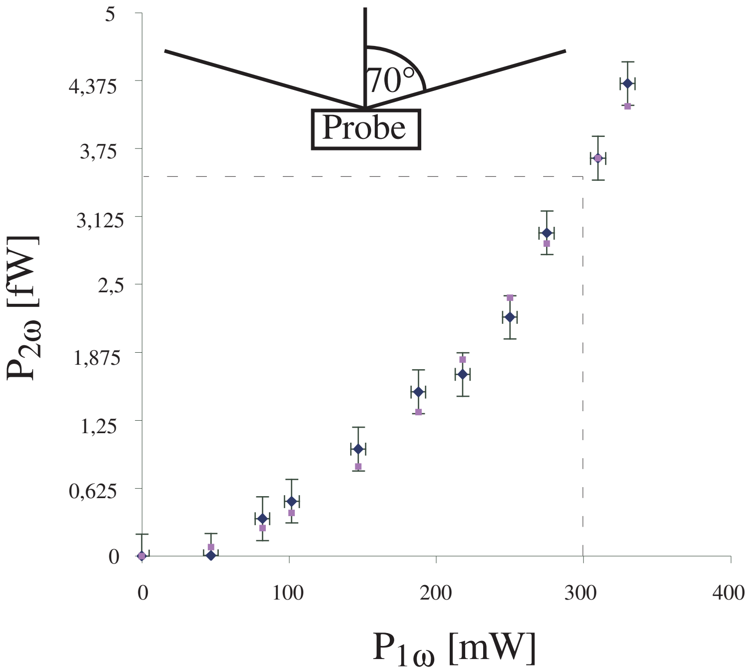

Abbildung 5.2: *Erzeugte Oberwellenleistung am Eisen-Multilayer in Reflexion unter 70^0 zur Normalen der Probe (Repetitionsfrequenz ν_R=125MHz, Pulsbreite τ_P=500fs). Die Effizienz a lag hier bei ca. $3.9{\cdot}10^{-14}W^{-1}$.*

Abbildung 5.2 zeigt die an Eisen gemessene Oberwellenleistung, aufgenommen für einen Reflexionswinkel von 70^0, in Abhängigkeit von der Leistung der Grundwelle. Ein Ergebnis aus diesen Messungen war, daß die theoretisch abgeleitete Oberwellenleistung im Bereich von einigen Femtowatt richtig berechnet wurde. Ist die relative Signaländerung durch den quadratischen Kerr-Effekt bekannt, so läßt sich zusammen mit der erwarteten Signalhöhe aus der Frequenzverdopplung eine Abschätzung für das zu erwartende magnetische Resonanzsignal im Falle der oberflächensensitiven ODFMR angeben.

In der Literatur findet man oftmals auch die Effizienz der Verdopplung als Funktion der Intensität. Daraus ergibt sich ein neuer Parameter A:

$$I^P_{2\omega} = A(I^P_{1\omega})^2 \tag{5.5}$$

mit

$$A = \pi r^2 \tau^P \cdot \nu_R \cdot a. \tag{5.6}$$

Dieser Parameter kann vermessen und gegen den geänderten Reflektionswinkel aufgetragen werden. Abbildung 5.3 zeigt die Ergebnisse aus den winkelabhängigen Messungen für die Eisen-Probe.

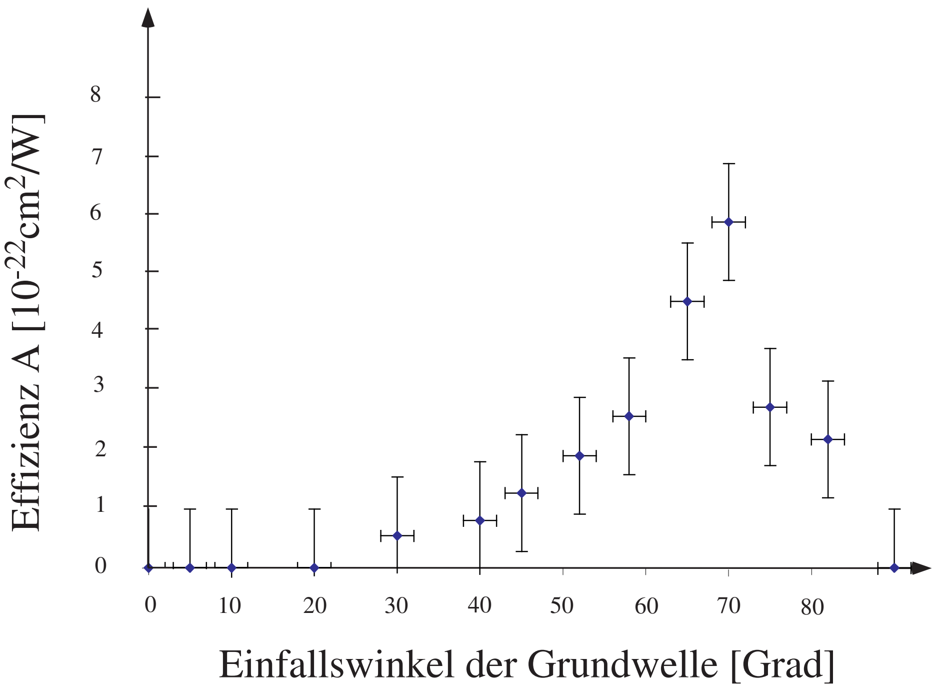

Abbildung 5.3: *Winkelabhängige Oberwellenerzeugung in Reflexion. Die verwendeten Parameter waren: Repetitionsfrequenz ν_R=125MHz, Pulsbreite τ_P=500fs, mittlere Leistung $P_{1\omega}$=300mW und Spotradius ca. 100μm.*

Durch Frequenzverdopplung an einer Eisenoberfläche zeigt sich bei ca. 70^0 ein Maximum in der Effizenz. Dieses Ergebnis läßt sich auch in der Literatur wiederfinden ([19], [20], [60]). Daher wurden - um eine möglichst hohe Oberwellenleistung zu gewährleisten

- die anschließenden Experimente zum quadratischen Kerr-Effekt und auch die ODFMR unter diesem Winkel ausgeführt.

5.2 Untersuchung des quadratischen Kerr-Effektes

5.2.1 Der experimentelle Aufbau

In Abbildung 5.4 ist der Aufbau zur Messung des quadratischen Effektes, mit seinen Modifikationen in der Anregung und dem Nachweis gezeigt.

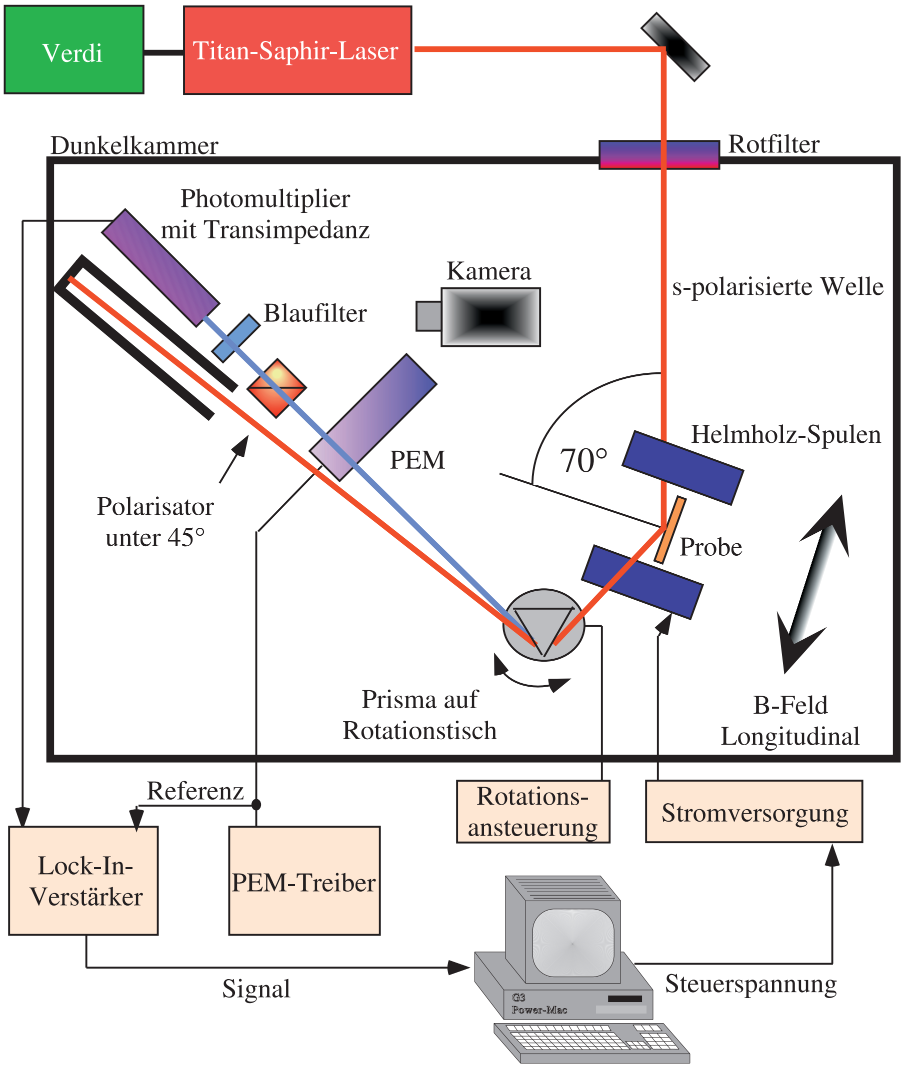

Abbildung 5.4: *Aufbau zur Messung des quadratischen Kerr-Effektes.*

Der Einfallswinkel, also der Winkel zwischen Strahl und Normalen der Probe, beträgt in diesem Fall 70^0. Die auf diese Weise an der Oberfläche erzeugte, intensitätsmodulierte und frequenzverdoppelte Welle wird nun durch ein Prisma und Farbfilter von der Grundwelle getrennt, und anschließend von einem Photomultiplier detektiert. Durch den Einsatz eines Prismas mit einer Winkeldispersion von

$$\frac{d\Theta}{d\lambda} = \left(\frac{\partial\Theta}{\partial n}\right) \cdot \left(\frac{\partial n}{\partial\lambda}\right) = 1.6 \cdot 10^{-4} Rad/nm^{-1} \tag{5.7}$$

läßt sich ein Aufspaltungswinkel von ca. 4^0 zwischen Grund- und Oberwelle erzeugen, was in einem Meter Entfernung zum Photomultiplier zu einem ausreichendem Strahlabstand von 7cm führt. Der Photomultiplier ist in der Lage eine Photonenleistung bis zu einigen Attowatt zu detektieren. Aufgrund dieser hohen Empfindlichkeit muß der gesamte Aufbau daher in einer Dunkelkammer aufgebaut werden, um mögliches Streulicht von außen auszuschliessen, und den Detektor vor Beschädigung zu schützen. Weil - nachdem die Kammer einmal geschlossen ist - eine Justage des Strahls auf den Photomultiplier nicht mehr möglich ist, wurde das Prisma auf eine elektrisch von außen ansteuerbare Rotationseinheit gesetzt. Hiermit ist man in der Lage das Prisma von außen derart einzustellen, daß der Strahl optimal auf den Multiplier fällt. Dies konnte durch eine Kamera im Inneren des Gehäuses überwacht werden.

Die Aufnahme der Signale geschieht analog zu den statischen Messungen des linearen Kerr-Effektes. Auch hier muß eine Mittelung über 50 Messungen wieder zu einer Rauschunterdrückung führen. Allerdings liegt der Grund hierfür nicht in der niedrigen Signaländerung - wie im linearen Kerr-Effekt der Fall - sondern in der niedrigen Oberwellenleistung.

Eine theoretische Ableitung der Signaländerung, erzeugt durch den optischen Aufbau ist nicht mehr notwendig, da hier die Ergebnisse aus der linearen Kerr-Effekt-Rechnung noch immer Geltung haben. Es ist allerdings klar, daß die Eichgeraden, die in Kapitel 4.2.2 gezeigt wurden, keinen Bestand mehr haben, da sich die Analyseeinheit und damit auch die Empfindlichkeit der Apparatur geändert hat. Daher muß der zur Normierung notwendige DC-Anteil neu vermessen, und die Apparatur noch einmal auf ihr Empfindlichkeit untersucht werden.

Aufgrund der niedrigen zeitlichen Auflösung, mit der dieses Experiment durchgeführt wird, hat die Pulsfolge, die der Laser generiert, keinen Einfluß auf das gemessene oder theoretisch abgeleitete Signal. Die Pulse erzeugen auf der Oberfläche lediglich die für das Experiment notwendige Leistung der frequenzverdoppelten optischen Welle. Nach der Reflexion an der Probe kann das Signal wieder als kontinuierlich angesehen werden, da die benutzte Transimpedanz hinter dem Photomultiplier zusammen mit dessen Kapazität nur Frequenzen bis 51kHz (siehe Anhang F) erkennt, nicht aber die hohe Pulsfolgefrequenz von 125MHz des Lasers.

5.2.2 Ergebnisse zum quadratischen Kerr-Effekt

Abbildung 5.5 zeigt die Hysteresekurven, die durch Frequenzverdopplung an der Probe mittels quadratischen Kerr-Effekt (hier Rotation) aufgenommen wurden.

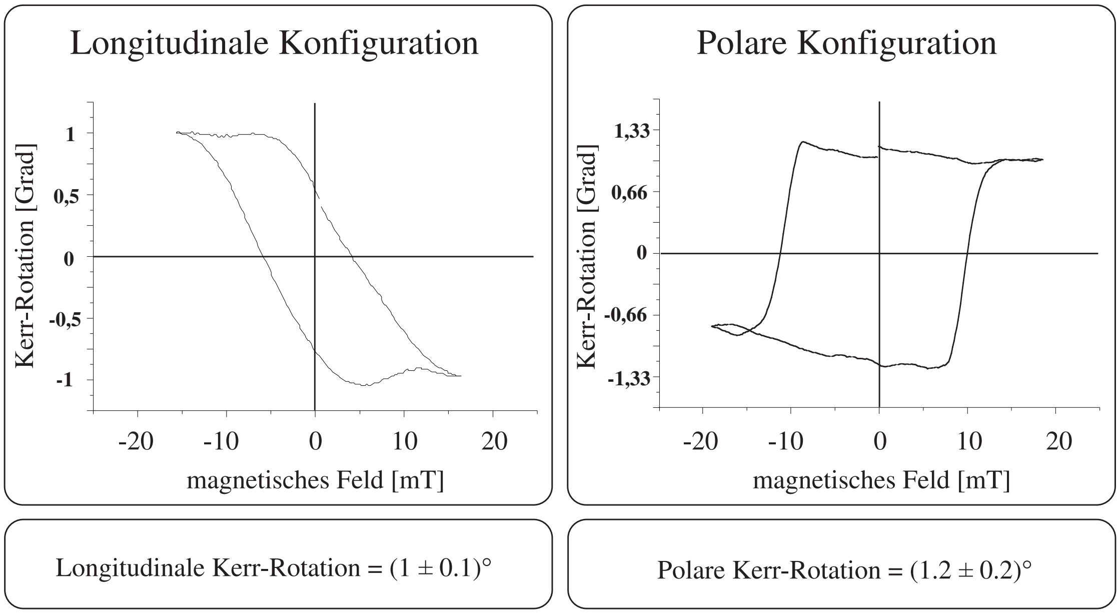

Abbildung 5.5: *Quadratische Kerr-Rotation für die longitudinale und polare Geometrie.*

Es konnten wieder beide Konfigurationen, longitudinal und polar, vermessen werden. Dabei zeigte sich das gleiche Verhalten, wie im linearen Kerr-Effekt. Auch hier führt die Anisotropie der Oberfläche im polaren Fall zu einem hohen Sättigungsfeld. Die relative Signalhöhe $\frac{I_{2\omega}}{I_{DC}}$ ergab sich aus den Messungen zu $1.7 \cdot 10^{-2}$ (longitudinal), bzw. $2.0 \cdot 10^{-2}$ (polar). Dies entspricht einer Kerr-Rotation von 1^0 bzw. 1.2^0.

In gleicher Weise wurden die Messungen zur Elliptizität durchgeführt. Auch hier zeigt sich wieder das Konkurenzverhalten zwischen Kristall- und Oberflächenanisotropie (Abbildung 5.6).

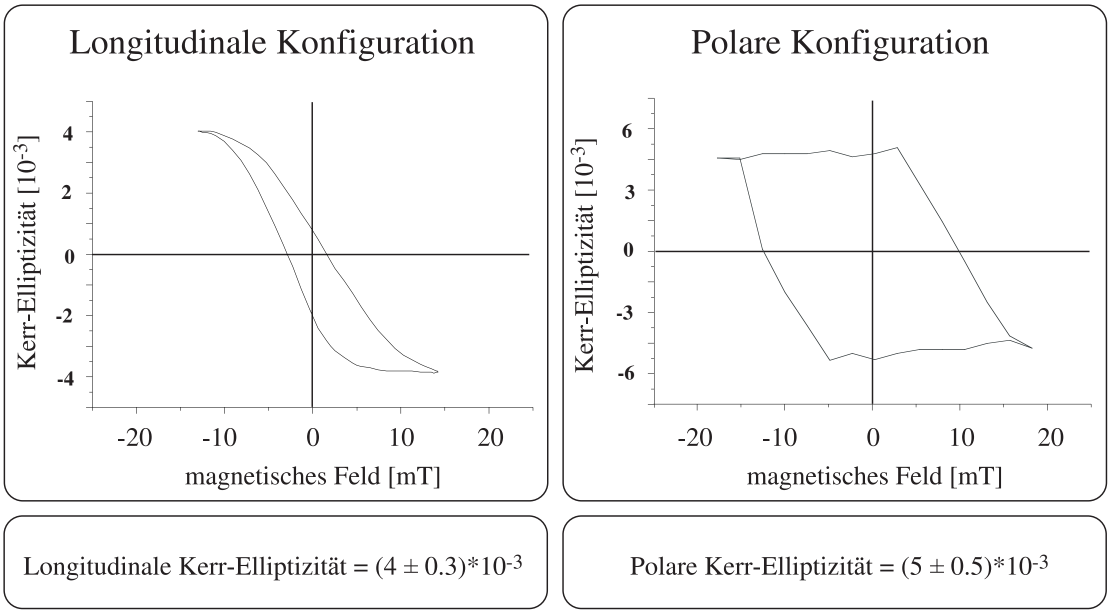

Abbildung 5.6: *Quadratische Kerr-Elliptizität für die longitudinale und polare Geometrie.*

Das erhaltene Signal für die Elliptizität (long.: $4 \cdot 10^{-3}$, bzw. polar: $5 \cdot 10^{-3}$) resultierte dabei aus einer relativen Signaländerung $\frac{I_{1\omega}}{I_{DC}}$ von $4.6 \cdot 10^{-3}$ (longitudinal) bzw. $5.8 \cdot 10^{-3}$ (polar). Damit unterscheiden sich die relativen Signalstärken, erzeugt durch Rotation und Elliptizität, um einen Faktor 3.5.

In der longitudinalen Konfiguration zeigt sich für die Rotation sowie für die Elliptizität im Vergleich zum linearen Kerr-Effekt eine niedrigere Remanenz. Dieses Verhalten wird von K. Böhmer [14] auf die an der Oberfläche existierende niedrigere magnetische Energie zurückgeführt. Nach seiner Meinung ist dies ein Indiz für eine oberflächensensitive Beobachtung. Aufgrund der Oberflächenanisotropie in der polaren Konfiguration scheint dieser Effekt nicht so stark ausgeprägt zu sein. Bei genauerer Betrachtung der Hysteresekurven zeigt sich allerdings, daß die Koerzitivfeldstärke mit ca. 10mT geringer ausfällt, als beim Bulk mit ca. 13mT. Das bedeutet: Mit zunehmender Monolagenanzahl, und damit abnehmender Oberflächenanisotropie wird die Hysteresekurve schmaler. Durch ihre gleichzeitige Schieflage sinkt dann aber auch die Remanenz ab. Betrachtet man also die polaren Hysteresen ohne den den Einfluß durch die Oberfläche, so zeigt sich auch in diesem Fall eine - im Vergleich zum linearen Kerr-Effekt - kleiner Remanenz.

5.2.3 Zusammenfassung

Auch im Falle des nichtlinearen Kerr-Effektes zeigt sich für die polare Konfiguration eine Oberflächenanisotropie, die auf die Probendicke zurückgeführt werden kann. Mit abnehmender Probendicke kommt es zu einem größer werdenden Einfluß des Oberflächeneffektes. Dieser Effekt vereitelt zunächst das Ausrichten der Spins gegen die Oberfläche, dessen Induzierung vom senkrecht zur Oberfläche angelegten Magnetfeld herrührt. Dies führt dazu, daß genau wie beim linearen Kerr-Effekt in der polaren Konfiguration mehr als dreimal so hohe Felder aufgewendet werden müssen, um eine vollständige Sättigung zu erreichen.

Bei der quadratischen MOKE-Messung zeigt sich zumindest in der longitudinalen Konfiguration, in Anlehnung an die Ergebnisse von K. Böhmer, eine etwas abgerundete Form der Hysterese. Dies deutet darauf hin, daß die lineare MOKE vorzugsweise die Bulk-Magnetisierung untersucht, während die SHG auf die Oberflächenmagnetisierung sensitiv ist. Da eine Oberfläche - wie aus den Experimenten von T. Rasing et. al. gezeigt wurde [54] aus nur drei bis fünf Monolagen besteht, ist die selektive Lokalisierung des Spinsystems auf unter 1nm - senkrecht zu einer Oberfläche - bereits erreicht.

Der Vergleich mit dem linearen Kerr-Effekt zeigt, daß Rotation und Elliptizität, und damit auch die relativen Signaländerungen durch den quadratischen Kerr-Effekt ca. zwei bis drei Größenordnungen höher sind. Dies wird auf die oberflächensensitive Beobachtung zurückgeführt, da dort keine Inter- und Intraband-Übergänge stattfinden.

Weiterhin zeigte das Experiment zur Frequenzverdopplung bei einem Einfallswinkel von 70^0 ein Maximum in der Oberwellenintensität. Um eine optimale Effizienz in der verdoppelten optischen Welle zu erhalten, wurde daher ein neuer Mikrowellenresonator entworfen, der genau diesen Reflexionswinkel realisierte (Anhang E).

5.3 Die oberflächensensitive ODFMR

Analog zur gepulsten ODFMR in Kapitel 4 kann nun auch die Magnetisierung der Oberfläche durch Frequenzverdopplung an der Probe untersucht werden. Zur Übertragung der Informationen auf die optische Welle soll in diesem Experiment allerdings die quadratische Kerr-Rotation Verwendung finden.

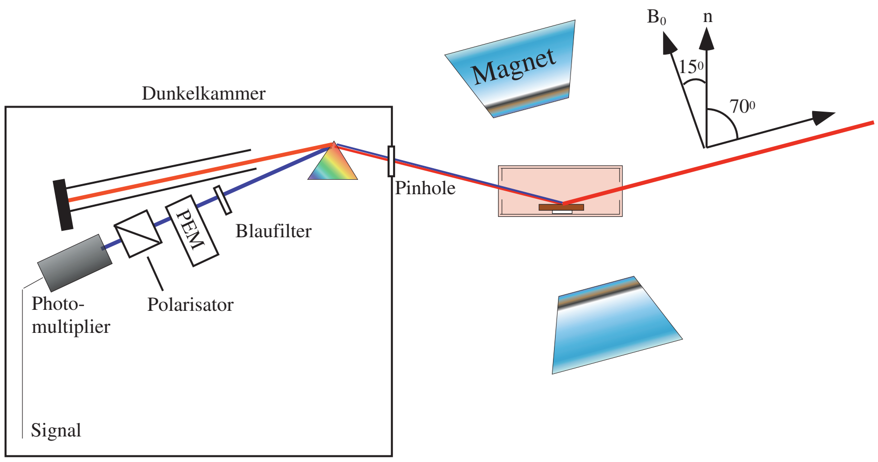

Abbildung 5.7: *Ausschnitt aus dem oberflächenselektiven Experiment.*

Abbildung 5.7 zeigt die Änderung des Aufbaus im Vergleich zur gepulsten ODFMR in Grundwellendetektion. Nach der Reflektion und Frequenzverdopplung an der Probe wird der Strahl über ein Prisma zum Detektor geführt. Das Prisma dient hier in Zusammenarbeit mit mehreren Blaufiltern für eine Trennung von Grund- und Oberwelle. Analog zu den quadratischen Kerr-Effekt-Messungen soll der Photomultiplier für eine Steigerung der Empfindlichkeit sorgen, während die Rauschunterdrückung wieder durch die Verwendung einer Dunkelkammer gewährleistet ist (Vergleiche Kapitel 4.1).

Empfindlichkeit (415nm)	41mA/W
Verstärkung (1600V)	$2{,}6{\cdot}10^6$
Dunkelrauschen	typ. = 50pA, max. = 1000pA
Detektionsfrequenz $\Delta\omega$	800kHz
Transimpedanz	1kOhm

Tabelle 5.1: Zugehörige Daten des Photomultipliers.

Aufgrund der höheren Detektionsfrequenz muß der Abschlußwiderstand des Photomultipliers (Anhang F) im Vergleich zu den statischen Messungen neu angepasst werden.

5.4 Ergebnisse zur oberflächensensitiven ODFMR

Die mittlere Leistung, die durch Frequenzverdopplung an der Oberfläche erzeugt werden konnte, betrug ca. 240fW, also 80 mal mehr als in den Experimenten zur Frequenzverdopplung in Kapitel 5.1.1. Erreicht wurde dies durch die Optimierung des Lasersystems ($\tau_P =$ 50fs, $\nu_R = 126$MHz, $P_m = 0.3$W) und des Strahlfokus (r $\approx 30\mu$m). Leider reichte dies noch immer nicht aus, um ein detektierbares oberflächensensitives Resonanzsignal zu erzeugen. Der Vergleich von Signal zu Rauschen soll zeigen, warum dies nicht gelang: Aus den vorher durchgeführten Experimenten zum statischen und quadratischen Kerr-Effekt ist bekannt, daß man mit einer Kerr-Rotation von 1.2^0 rechnen kann. Bezieht man die Magnetisierungsänderung in Höhe von 0.6 Prozent mit in die Rechnung ein, so kann man analog zu Gleichung 4.33 das modulierte Signal theoretisch mit ca. 10aW abschätzen. Unter Verwendung der experimentellen Parameter des Photomultipliers ergibt sich daher ein maximal detektierbarer Photostrom von etwa 1pA. Der Vergleich mit dem experimentell ermittelten Rauschstrom des Photomultipliers (100pA) zeigt, daß dieses Experiment unter den gegebenen Bedingungen keine Aussicht auf Erfolg hat.

Die vorliegenden Ergebnisse dieser Arbeit lassen vermuten, daß eine auf die Oberfläche sensitive Detektion zwar prinzipiell möglich ist. Allerdings zeigte sich auch, daß dazu eine Rauschunterdrückung notwendig ist, die mit der zur Verfügung stehenden Technik noch nicht erreicht werden kann. Eine Beschränkung der Signalinformation - mittels ultraschneller Elektronik - auf die Zeit im Puls könnte das Dunkelrauschen um bis zu fünf Größenordnungen reduzieren. Um dies realisieren zu können, müßte die Signalisolierung allerdings innerhalb von wenigen hundert Femtosekunden stattfinden.

Weiterere Parameter, die in diesem Experiment eine Optimierung bringen könnten, sind einerseits der Laser, andererseits auch die Probe. In beiden Fällen müßte dazu eine Signalerhöhung um mindestens einen Faktor 500 erreicht werden:

Zwar existieren Lasersysteme, die die dafür notwendigen Spitzenleistungen erbringen, allerdings könnte man für eine reversible Untersuchung nicht mehr garantieren, da die verwendeten Leistungen im Mittel oberhalb der Zerstörschwelle der Probe liegen. Eine weitere Reduzierung des Laserfokus auf der Probe scheint dagegen eine vielversprechende Methode zu sein. Durch die quadratische Abhängigkeit in der Intensität ist auch hier noch eine Optimierung möglich. Allerdings muß auch in diesem Fall auf die Zerstörschwelle des Kristalls geachtet werden. Ein erfolgreicher Austausch der Probe ist dagegen von einigen Parametern abhängig. Der hier verwendete Ferromagnet bietet an sich - mit 0.6 Prozent Magnetisierungsänderung und quadratische Kerr-Rotation von mehr als einem Grad - schon gute Vorraussetzungen. Allerdings ist auch hier noch eine Optimierung durchführbar.

Insgesamt stellt die oberflächensensitive Detektion so hohe Anforderungen an das Experiment, daß nur eine Kombination aus den genannten Optimierungsmöglichkeiten erfolgversprechend ist.

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit dem Aufbau eines neuartigen Spektrometers zur Elektronen-Paramagnetischen Resonanz. Die magnetische Resonanz wurde um eine optisch gepulste Detektion erweitert. Hierzu mußte zunächst ein Titan-Saphir-Puls-Lasersystem aufgebaut und spezifiert werden. Die vorhergesagte - durch die Dispersion begrenzte - minimale Pulsbreite von 50fs konnte erzeugt werden. Die hierdurch erreichte Pulsintensität von ca. 2.25GW/cm^2 stellte sich als ausreichend heraus, um eine Frequenzverdopplung an der Oberfläche durchführen und nachweisen zu können.

Parallel dazu konnten Hysterese-Messungen an einem Eisen-Multi-Layer durchgeführt werden. Durch den optischen Nachweis über den linearen und statischen Kerr-Effekt wurde eine laterale Auflösung von etwa 30μm möglich. Die Modulation-Demodulations-Technik erlaubte gleichfalls eine Trennung von Rotation und Elliptizität. Diese konnten für die longitudinale und die polare Konfiguration bestimmt werden. Es zeigte sich, daß man aufgrund der Oberflächenanisotropie in der polaren Geometrie drei- bis viermal mehr Feldstärke benötig, um die Magnetisierungsrichtung umzuklappen.

Durch Frequenzverdopplung an der Multi-Layer-Oberfläche waren auch Messungen bezüglich des quadratischen Kerr-Effektes möglich. Hier zeigte sich durch die Selektivität der Oberfläche eine um bis zu 3 Größenordnungen höhere komplexe Kerr-Drehung. Der Bruch der Inversionssymmetrie bei einer Oberflächenfrequenzverdopplung ermöglichte weiterhin eine Tiefenlokalisierung auf unter ein Nanometer.

Der nächste Schritt war die Kombination aus gepulster optischer Detektion mit der magnetischen Resonanz über die kohärente Raman-Streuung. Als Untersuchungskandidat eignete sich der Rubin-Kristall, an dem zum ersten Mal die gepulste und kohärente optisch detektiert Elektronen-Spin-Resonanz getestet wurde. Neben einer theoretischen Signal- und Rauschabschätzung - die das ODEPR-Spektrometer charakterisieren - konnten erste magnetische Signale aufgenommen werden. Die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse wurde durch Variation von Laser- und Mikrowellenleistung nachgewiesen. Hierdurch war die Ermittlung des Absorptionsunterschiedes ΔA für Rubin bei einer Wellenlänge von 415nm und tiefen Temperaturen möglich.

Der Umbau des Spektrometers von Transmission auf Reflektion erlaubte dann die Untersuchung der Eisen-Multilayer-Probe mittels dynamischen Kerr-Effekt. Die zuvor an dieser Probe durchgeführten Messungen zum statischen Kerr-Effekt ließen eine Optimierung des experimentellen Aufbaus zu. Auch die theoretischen Abschätzungen, verglichen mit den experimentellen Ergebnisse aus der konventionellen ferromagnetischen Resonanz, stellten sich als nützlich heraus. Hierdurch konnten Verunreinigungen im Substrat erkannt und benannt werden. Die Untersuchungen mittels integraler FMR machten auch deutlich, daß eine ODFMR in polarer Konfiguration nicht möglich ist, da das verwendete Spektrometer - wegen des maximal ereichbaren Magnetfeld von 1T - keine resonante Anregung erlaubte.

Unter Verwendung aller Ergebnisse, die aus den vorbereitenden Experimenten gewonnen wurden, konnte eine optisch detektierte Probenuntersuchung in Reflektion durchgeführt werden. Durch die Grundwellendetektion wurde die maximale Magnetisierungsänderung der Eisenprobe an der Sättigungsschwelle ermittelt. Hiermit war eine Signal- zu Rauschabschätzung für das oberflächensensitive Experiment möglich.

Die optische Detektion der ferromagnetischen Resonanz erlaubte allerdings keine Trennung von Volumen- und Oberflächensignal. Die vorliegenden Ergebnisse zeigen, daß eine auf die Oberfläche sensitive Detektion prinzipiell möglich ist. Allerdings zeigte sich auch, daß dazu eine Rauschunterdrückung notwendig ist, die nur durch Kombination verschiedener Optimierungsmöglichkeiten erreichbar scheint.

Anhang A

Indexänderung

Hier soll gezeigt werden, daß

$$\frac{d^2\phi(\omega)}{d\omega^2} \approx \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\frac{d^2P(\lambda)}{d\lambda^2} \tag{A.1}$$

ist. Der Beweiß läuft in umgekehrter Reihenfolge.

$$\begin{aligned}
\frac{\lambda^3}{2\pi c^2}\frac{d^2P(\lambda)}{d\lambda^2} &= \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}(\frac{\partial\omega}{\partial\lambda}\frac{d}{d\omega}(\frac{\partial\omega}{\partial\lambda}\frac{dP(\omega)}{d\omega})) \\
&= \frac{\lambda^3}{2\pi c^2}(\frac{(2\pi c)^2}{\lambda^4})\frac{d^2P(\omega)}{d\omega^2} \\
&= \frac{2\pi}{\lambda}\cdot\frac{d^2P(\omega)}{d\omega^2} = k\cdot\frac{d^2P(\omega)}{d\omega^2}. \qquad \text{(A.2)}
\end{aligned}$$

Benutzt man die Näherung $\omega \approx \omega_0$, so ist $k(\omega) \approx k(\omega_0) = \text{const.}$. Dann läßt sich die Ausbreitungskonstante k in die zweifachen Ableitung ziehen, und es gilt:

$$k\cdot\frac{d^2P(\omega)}{d\omega^2} \approx \frac{d^2P(\omega)\cdot k}{d\omega^2} = \frac{d^2\phi(\omega)}{d\omega^2}. \tag{A.3}$$

Da die Änderungen der Ausbreitungskonstanten k in Abhängigkeit von der Frequenz ω sehr klein sind, ist obige Näherung gut erfüllt.

Anhang B

Prismendispersion

Um die Dispersion zweiter Ordnung des Prismenkompensators berechnen zu können, benötigt man nach Gleichung 1.16 die zweite Ableitung des optischen Wegs nach der Wellenlänge. Die optische Weglänge ist vom Winkel $\beta(\lambda)$ und vom Brechungsindex n(λ) abhängig:

$$P = P(\beta(n(\lambda))). \tag{B.1}$$

Für die erste Ableitung ergibt sich unter Ausnutzung der Kettenregel

$$\frac{dP}{d\lambda} = \frac{\partial P}{\partial \beta}\frac{\partial \beta}{\partial n}\frac{\partial n}{\partial \lambda}. \tag{B.2}$$

Dementsprechend folgt für die die zweite Ableitung

$$\frac{d^2 P}{d\lambda^2} = \frac{\partial P}{\partial \beta}\left[\frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2}\frac{\partial \beta}{\partial n} + \frac{\partial^2 \beta}{\partial n^2}\left(\frac{\partial n}{\partial \lambda}\right)^2\right] + \left(\frac{\partial \beta}{\partial n}\frac{\partial n}{\partial \lambda}\right)^2 \frac{d^2 P}{d\beta^2}. \tag{B.3}$$

Gemäß Gleichung 1.22 ergibt sich für die partiellen Ableitungen des optischen Wegs nach dem Winkel β

$$\frac{\partial P}{\partial \beta} = -2L\sin\beta, \tag{B.4}$$

$$\frac{\partial^2 P}{\partial \beta^2} = -2L\cos\beta. \tag{B.5}$$

Ferner kann man aus Abbildung 1.21 einen Zusammenhang zwischen den Winkeln β und θ_2 entnehmen. Wenn sich β vergrößert, wird der Winkel θ_2 dementsprechend kleiner:

$$\frac{\partial\beta}{\partial n} = -\frac{\partial\theta_2}{\partial n}, \tag{B.6}$$

$$\frac{\partial^2\beta}{\partial n^2} = -\frac{\partial^2\theta_2}{\partial^2 n}. \tag{B.7}$$

Dabei ist der Winkel θ_2 durch Gleichung 1.21 gegeben. Die erste Ableitung dieses Winkels nach n liefert:

$$\frac{\partial\theta_2}{\partial n} = \frac{\frac{\cos\left(\alpha - \arcsin(\frac{\sin\theta_B}{n})\right)\sin\theta_B}{n\sqrt{1-\frac{\sin^2\theta_B}{n^2}}} + \sin\left(\alpha - \arcsin(\frac{\sin\theta_B}{n})\right)}{\sqrt{1 - n^2\sin^2\left(\alpha - \arcsin(\frac{\sin\theta_B}{n})\right)}}. \tag{B.8}$$

Unter Verwendung des Snellius'schen Brechungsgesetztes für die Winkel θ_{ein} und θ_{aus} (Gleichungen 1.19), aus denen sich die die beiden Winkel θ_B und θ_2 ableiten lassen, und Gleichung 1.20 kann man Gleichung B.8 vereinfachen. Es ergibt sich:

$$\frac{\partial\theta_2}{\partial n} = \frac{\cos\theta_{aus}\cdot\tan\theta_{ein} + \sin\theta_{aus}}{\cos\theta_2}. \tag{B.9}$$

Im Falle eines für alle Wellenlängen symmetrischen Strahlenganges gilt für die Winkel θ_{ein} und θ_{aus}, daß sie gleich groß sind. Daraus folgt unter Verwendung von Gleichung 1.20, daß $\theta_{aus} = \theta_{ein} = \pi/2$-$\theta_2$ ist. Setzt man dies in Gleichung B.9 ein, so ergibt sich näherungsweise:

$$\frac{\partial\beta}{\partial n} = -\frac{\partial\theta_2}{\partial n} \approx -2. \tag{B.10}$$

Die erwähnte Näherung eines symmetrischen Strahlengangs ist sehr gut erfüllt, solange die Pulse nicht kürzer als 20fs werden. Rechnet man mit schmaleren Pulsebreiten, so sollte man die exakte Lösung benutzen. Dies gilt auch für die zweite Ableitung von θ_2 nach dem Brechungsindex, die man durch analoges Vorgehen erhält. Durch zweifaches Ableiten von θ_2 nach n ergibt sich so:

$$\frac{\partial^2\theta_2}{\partial n^2} = \tan\theta_2\left(\frac{\partial\theta_2}{\partial n}\right)^2 - \frac{\tan^2\theta_{ein}}{n}\left(\frac{\partial\theta_2}{\partial n}\right). \tag{B.11}$$

Auch hier führt die Näherung eines symmetrischen Strahlengangs zu einer weiteren Vereinfachungung [26]:

$$\frac{\partial^2 \beta}{\partial n^2} = -\frac{\partial^2 \theta_2}{\partial^2 n} \approx -4n + \frac{2}{n^3}. \tag{B.12}$$

Durch Einsetzen der Gleichungen B.4, B.5, B.10 und B.12 in Gleichung B.3 ergibt sich dann

$$\frac{d^2 P}{d\lambda^2} \approx 4 \left[\frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3}\right) \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2 \right] L \sin\beta - 8 \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2 L \cos\beta. \tag{B.13}$$

Im Gegensatz zu dem Winkel β ist h dem Experiment viel einfacher zugänglich, da der betrachtete Lichtstrahl das Prisma P2 durchdringt. Es ist daher nützlich den Winkel β durch h zu bestimmen. Ist α der Öffnungswinkel der Brewsterprismen, dann folgt aus Abbildung 1.21 der Zusammenhang zwischen den Größen h und s:

$$\cos\frac{\alpha}{2} = \frac{h}{s}. \tag{B.14}$$

Unter Verwendung des Sinus-Satzes folgt weiterhin, daß

$$s = L \frac{\sin\beta}{\cos\theta_2}. \tag{B.15}$$

Damit ergibt sich aus B.14 und B.15:

$$\sin\beta = \frac{h}{L} \frac{\cos\theta_2}{\cos(\alpha/2)}. \tag{B.16}$$

Einsetzen von Gleichung B.16 in Gleichung B.13 bringt dann:

$$\frac{d^2 P}{d\lambda^2} \approx \tag{B.17}$$

$$4 \left[\frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3}\right) \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2 \right] \frac{h \cos\Theta_2}{\cos(\alpha/2)} - 8 \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)^2 L \cos\left(\arcsin\left(\frac{h}{L}\frac{\cos\theta_2}{\cos(\alpha/2)}\right)\right). \tag{B.18}$$

Dieses Ergebnis läßt sich nun wiederum in Gleichung 1.16 einsetzten, wodurch man Gleichung 1.24 erhält.

Anhang C

Automatische Frequenzkontrolle (AFC)

Es kommt vor, daß sich die Eigenfrequenz des Resonators ändert. Besonders stark ist dieser Effekt bei einer Änderung der Temperatur im Inneren des Resonators. Würde man die Mikrowellenfrequenz konstant auf einem Wert halten, also der Änderung durch die Temperatur nicht folgen, so würde auch das Absorptionssignal ständig fluktuieren, und man hätte kein reproduzierbares Experiment. Daher wird die Mikrowellenfrequenz an die Absorptionspitze des Resonators angebunden.

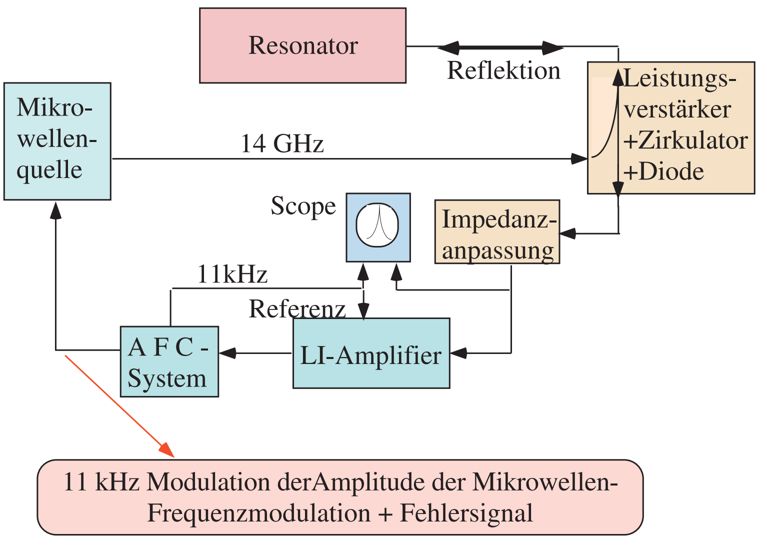

Abbildung C.1: *AFC-System.*

Hierzu dient das AFC-System, das von Dr. Stephen Bingham aufgebaut wurde. In Verbindung mit einem Zirkulator, einer Diode und einem Lock-In-Verstärker kann ein Fehlersignal erzeugt werden, das zur Mikrowellenfrequenz addiert wird. Experimentell wird dies durch die Beobachtung der Reflektion der Mikrowelle möglich. Das reflektierte Signal wird von einer Mikrowellendiode aufgenommen und über einen Zirkulator an einen Lock-In-Verstärker (LIA) weitergegeben. Als Referenz bekommt dieser die Modulationsfrequenz, mit der die Mikrowellenfrequenz über das Minimum der Reflektion gefahren wird (11kHz). Das Ausgangssignal wird dann dem AFC-System als Eingang präsentiert. Hat sich die Eigenfrequenz des Resonators geändert, so kann dieses System aus dem LIA-Signal ein Fehlersignal generieren, daß die Mikrowellenfrequenz entsprechend anpasst. Die 11kHz Modulationsfrequenz werden vom AFC-System erzeugt und auf das Fehlersignal aufaddiert. Fehlersignal und Modulation dienen nun dazu, die Mikrowellenfrequenz über den lokalen Oszillator zu manipulieren.

Die Amplitude der Frequenzmodulation gibt den Bereich vor, in der die Mikrowellenfrequenz variiert wird. Diese kann dazu in Stufen eingestellt werden. Je kleiner dieser Bereich, desto empfindlicher reagiert das System auf eine Änderung der Resonatoreigenfrequenz. Die kleinste einstellbare Amplitude entspricht dabei einer Verschiebung der Mikrowellenfrequenz um $\pm$100kHz, wobei die Zentralfrequenz der Mikrowelle, also die Anregungsfrequenz bei ca. 14GHz liegt und so auf den verwendeten Resonator optimiert wurde. Die größte einstellbare Amplitude entspricht einer Frequenzvariation um ca. $\pm$250 MHz, bei der die Mikrowelle also von (14 ± 0.25)GHz variiert wird.

Beachtung finden muß hier noch, daß bei einer Variation der Mikrowellenfrequenz - mit Hilfe des AFC-Systems - auch die Trägerfrequenz $\Delta\omega$ des Signals diese Modulation zeigt. Dies wird sich in der Linienbreite des Signals bemerkbar machen. In Kapitel 1 wurde weiterhin darauf hingewiesen, daß die Schwankung des Pulsabstandes zu einer Frequenzabweichung von 25Hz pro Harmonische führt. Auch dies muß beachtet werden, und resultiert in einer effektiven Frequenzunschärfe von ca. 2.8kHz in der $n_0 = 112.$-ten Harmonischen ($n_0 = (\omega_{MW} - \Delta\omega)/\omega_R$). Wie man sieht, liegt diese aber deutlich unter der Modulationsbreite der Mikrowellefrequenz, weshalb dieser Effekt das Experiment nicht beschränken wird.

Anhang D

Artefakte

Wir nehmen an, daß das AFC-System - in der Nähe einer Resonanz - die Frequenz und damit die Phase der Mikrowelle verschiebt.

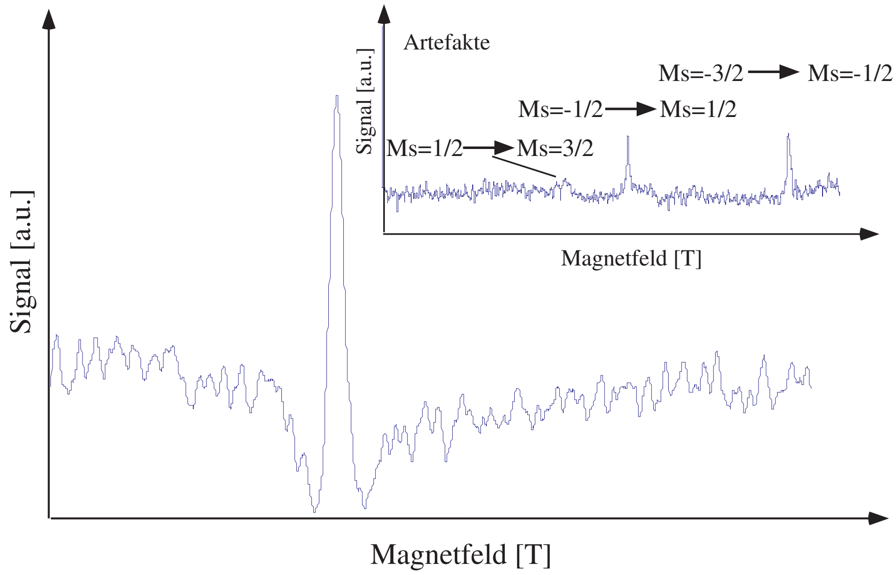

Abbildung D.1: *Experimentell aufgenommene Artefakte.*

Das Minimum der aus dem Resonator reflektierten Leistung wird - durch Rückkopplung in das AFC-System - dazu benutzt, die Mikrowelle stabil auf der Resonatoreigenfrequenz zu halten (vgl. Anhang C). Erreicht die Zeemann-Aufspaltung durch das B_0-Feld einen passenden Wert für die magnetischen Resonanz, so werden bei vollständiger Sättigung der Absorption, vom Kristall nur Dispersionssignale erzeugt. Diese werden vom Resonator zurückreflektiert und von der Mikrowellendiode detektiert.

In der Nähe der Resonatoreigenfrequenz zeigt sich daher, zusätzlich zum Resonatordip ein weiteres lokales Minimum, das - wegen der Modulation der Mikrowellenfrequenz - auch vom AFC-System erkannt wird. Zeigt das Probensignal, aufgrund des sich ändernden Zeeman-Feldes, im Vergleich zum Resonatordip ein attraktiveres Minimum, so wird sich die Mikrowellenfrequenz zu diesem Minimum verschieben.

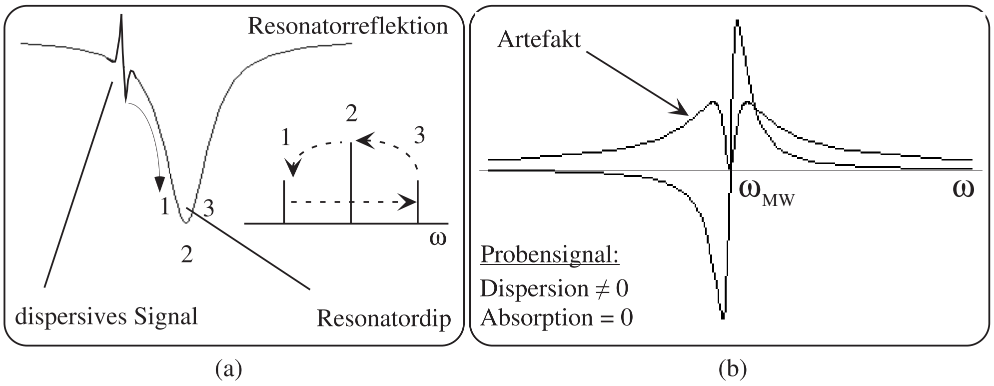

Abbildung D.2: *(a): Aus dem Resonator zurück reflektierte Leistung mit dispersiven Signal und dadurch entstandenes Artefakt (b). Das Absorptionssignal wurde in dieser Simmulation Null gesetzt.*

Es kommt zunächst zu einer Frequenzdrift in das neue lokale Minimum (1) (Abbildung D.2a). Von dort verschiebt sich die Mikrowellenfrequenz über die optimale Resonatoreigenfrequenz (2) bis zum Punkt (3). An dieser Position bemerkt das AFC-System, daß das Minimum des Resonatordips attraktiver ist und driftet daher wieder zur Ausgangsfrequenz zurück.

Durch die Frequenzdrift der Mikrowelle tritt auch eine Phasendrift auf, die ein scheinbares Absorptionssignal (Artefakt) erzeugt. Diese Artefakte entstehen auch, wenn kein effektiver Absorptionsunterschied mehr vorhanden ist (Simmulation: Abbildung D.2b). Ist die Absorption nicht gesättigt, so werden die Artefakte von dieser überlagert.

Da bei den gesamten Messungen zur ODEPR das aufgenommene Signal keinerlei Änderung in der Amplitude zeigt (z.B. bei Variation der HF-Leistung), müssen wir davon ausgehen, daß kein effektiver Absorptionsunterschied mehr vorhanden war [50], und daß das Absorptionssignal lediglich durch eine Phasenverschiebung der Mikrowelle entstanden ist.

Anhang E

Mikrowellenresonator

Hier dargestellt ist der für die volumen- und oberflächensensitive ODFMR verwendete Mikrowellenresonator, dessen Aufbau speziell an die gewonnenen Ergebnisse zur Frequenzverdopplung an Oberflächen (Kapitel 5.1.1) angepasst wurde.

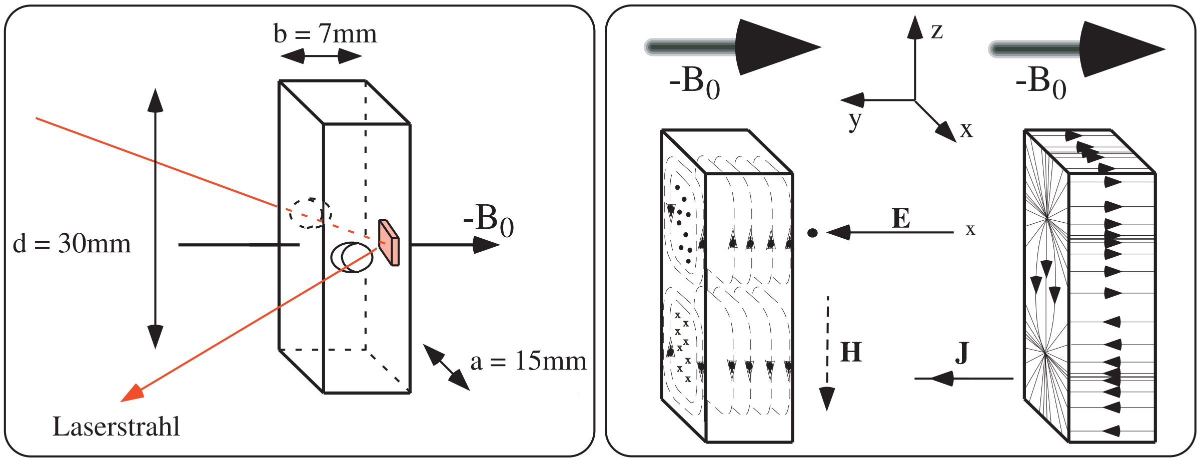

Abbildung E.1: *Geometrische- und Feld-Darstellung des verwendeten Mikrowellenresonators [49].*

Die ferromagnetische Probe wurde derart im Resonator angebracht, daß das statische Magnetfeld senkrecht zur Oberfläche zeigt (Polar), während die Hochfrequenzanregung (TEM_{102}) in der Probenebene stattfinden kann. Dabei kann die Position der Probe innerhalb des Resonators mit $x = a/2$, $y = 0$ und $z = d/2$ beschrieben werden. Das entsprechende magnetische Feld H, welches auf den Wänden zwei Kreisströme induziert kann wie folgt dargestellt werden [49]:

$$\begin{aligned} H_x &= \frac{H_0}{\sqrt{1+(d/2a)^2}} \sin\frac{\pi x}{a} \cos\frac{2\pi z}{d}, \\ H_y &= 0, \\ H_z &= \frac{-H_0}{\sqrt{1+(d/2a)^2}} \sin\frac{\pi x}{a} \cos\frac{2\pi z}{d}. \end{aligned} \tag{E.1}$$

Dabei beträgt der magnetische Fluß an der Position der Probe in x,y-Richtung $B_{1x,y} = \mu_0 H_{x,y} = \mu_0 H_0/\sqrt{2}$, während die Amplitude über die Güte Q des Resonators bestimmt ist:

$$\begin{aligned} Q &= \omega \frac{\text{gespeicherte Energie}}{\text{verlorene Leistung}} \\ &= \frac{\omega_{MW} \int \frac{\mu_0 H^2}{2} dV}{P_{MW}} \\ &= \frac{\omega_{MW} V B_1^2}{4\mu_0 P_{MW}}, \end{aligned} \tag{E.2}$$

wobei P_{MW} für die Mikrowellenleistung steht, $H = B_1/\mu_0$ und $\omega_{MW}/2\pi$ die Mikrowellenfrequenz ist. In dieser Notation ergibt sich, nach einer Integration über das Volumen V, für den magnetischen Fluß

$$B_1 = \sqrt{\frac{4\mu_0 P_{MW} Q}{\omega_{MW} V}}, \tag{E.3}$$

während die Güte Q eine experimentell zu bestimmende Größe ist und von der Qualität des Resonators bestimmt wird. Als Größenordnung kann man $Q = \nu_{MW}/\Delta\nu_{Dip} = 5\cdot 10^3$ ansetzen, wodurch man eine Amplitude von

$$B_1 \approx 50\mu T \tag{E.4}$$

für das Mikrowellenfeld erhält. ν_{Dip} stellt die Breite des Resonatordips dar und beträgt bei dem verwendeten Resonator ca. 3MHz. Die weiteren verwendeten Werte sind:

$$\begin{aligned} \omega_{MW} &= 2\pi \cdot 13.989\text{GHz}, \\ V &= 3.15 \cdot 10^{-6} m^3 (\text{Resonatorvolumen}) \text{ und} \\ P_{MW} &= 20mW \text{ (10dB, 14GHz)}. \end{aligned} \tag{E.5}$$

Anhang F

Transimpedanz

Die Signalhöhe, die vom Photomultiplier geliefert wird, ist wegen des angeschlossenen Widerstandes frequenzabhängig und fällt nach der Grenzfrequenz (f_G: abhängig von Impedanz und Kapazität) zu hohen Frequenzen hin mit 1/f ab (Tiefpassverhalten). f steht dabei für die detektierte Frequenz, mit der zuvor eine Signalmodulation erzeugt wurde. Im Falle der statischen Kerr-Effekt-Untersuchung entspricht diese Modulationsfrequenz der PEM-Frequenz, also 50kHz.

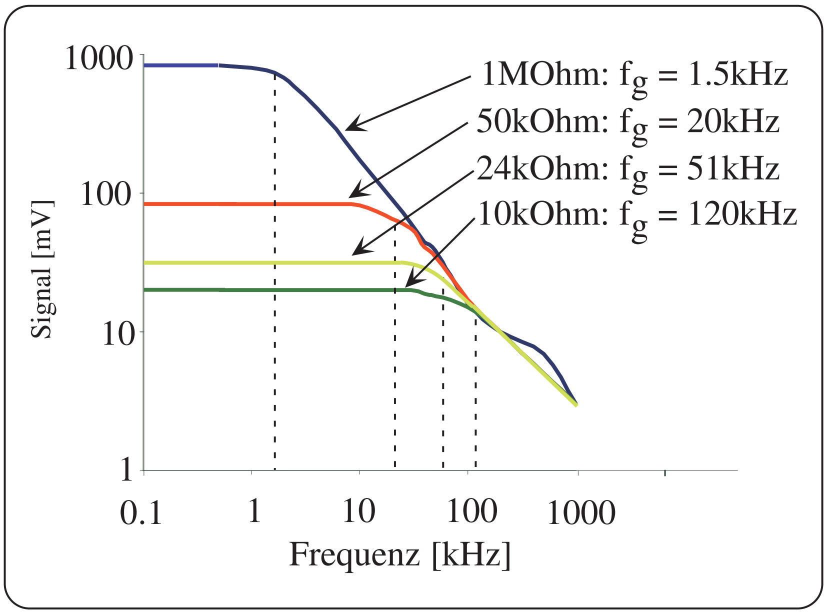

Abbildung F.1: *Experimentelle Bestimmung des frequenzabhängigen Signals.*

Abbildung F.1 zeigt die Signalamplitude für vier verschiedene Abschlußwiderstände.

Die entsprechenden Grenzfrequenzen sind angegeben. Die frequenzabhängige Verstärkung wurde gemessen, indem ein Laserstrahl bei 830nm durch einen akusto-optischer Modulator (AOM) definiert moduliert wurde. Die Signalfrequenz wurde anschließend mit Hilfe eines Lock-In-Verstärkers demoduliert und die Amplitude des Signals ausgelesen.

Um einer frequenzabhängigen Verstärkung entgegen zu wirken, muß der Abschlußwiderstand so gewählt werden, daß die Signalfrequenz kleiner ist, als die Grenzfrequenz der Analyseeinheit. Eine maximale frequenzunabhängige Signalverstärkung erhält man also, wenn der Abschlußwiderstand so gewählt wird, daß $f \approx f_g$ aber $f < f_g$.

Aus den Meßdaten läßt sich für den Photomultiplier eine Gesamtkapazität (eventuelle parasitäre Kapazitäten) von ca. 130pF errechnen. Bei einer Detektionsfrequenz von 50kHz (PEM) führt dies auf eine Transimpedanz von ca. 24kOhm. Dieser Abschlußwiderstand wurde zur Detektion der frequenzverdoppelten Welle in den statischen Kerr-Effekt-Messungen eingesetzt. Aus einer Signalfrequenz von $\Delta\omega/2\pi \approx 800$kHz errechnet sich dagegen die optimale Transimpedanz zu etwa 1kOhm. Dieser Abschlußwiderstand wurde in der oberflächensensitiven ODFMR verwendet.

Anhang G

Tabellierte Daten

	gemessener Wert
Zentralwellenlänge	830nm
spektrale Breite (50fs)	20nm
mittlere Leistung (500fs/50fs)	max. 660mW/400mW
Repetitionsfrequenz	125MHz (1.2m) - variabel
Stabilität der Pulsfolge	< 25Hz
relative Stabilität	$< 2 \cdot 10^{-7}$
Pulsbreite	min. 50fs
Leistung im Puls	64kW
Intensität im Puls (30μm)	2.25GW/cm^2
Polarisation	horizontal

Tabelle G.1: Spezifikationen des Pulslasers.

Konstruktion von...	**Abgelegt unter...**
Kristallhalterung und Wasserkühlung	Nr. PE3.075.05.98
Schlauchanschlußschraube für Kristallhalter	Nr. PE3.059.02.98
Positionierungsschiene (Kristall, Linse, Kristallspiegel)	Nr. PE3.091.08.98
Höhenverstellbarer Translations- und Rotationssockel für Prismen	Nr. PE3.098b.09.98
Stamp-Halterung	Nr. PE3.085.08.98
Stamp-Halterung verbessert	Nr. PE3.100.09.98
Autokorrelator	EII, Prof. U. Woggon
Laserbank für Argon-Ionen-Laser	Nr. PE3.124.03.99
Linsenhalterung	Nr. PE3.092.08.98
Linsenhalterung verbessert	Nr. PE3.098.09.98
Spiegelhalterung	Nr. PE3.093.08.98
Stamps für Laserspiegel und Linsen	Nr. PE3.077.06.98
Helmholzspulen	Nr. PE3.042b.09.97
	und Nr. PE3.045b.10.97
Spulenaufsatz	Nr. PE3.062.03.98
Mikrowellenresonator für Reflektion	Nr. PE3.137b.05.99

Tabelle G.2: Verzeichnis der benötigten und konstruierten Bauteile. Die Nummer bezieht sich auf den Werkstattordner von Herrn W. Goralczyk.

Literaturverzeichnis

Literaturverzeichnis

[1] A. Abragam and B. Bleaney, ⋆ Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions ⋆, Oxford University Press, Oxford (1970).

[2] S. A. Akhamow, et al. ⋆ Laser Handbook ⋆, Vol. 2, North Holland Publ. Comp. Amsterdam, (1972).

[3] N. S. Akulov ⋆ Ferromagnetizm (Ferromagnetism) ⋆ - ONTI. Moskva-Leningrad (1939).

[4] A. N. Anisimov, et al. ⋆ The temperatur-dependent in- and out-of-plane magnetic anisotropies in $Fe_n/V_m(001)$ superlattices ⋆ J. Phys.: Condens. Matter **9**, 10581-10593 (1997).

[5] R. Becker, ⋆ Electromagnetic fields and interactions ⋆, Blaisdell (1964).

[6] Bergmann und Schäfer, ⋆ Lehrbuch der Experimentalphysik - Aufbau der Materie ⋆, Band 4. de Gruyter, 2. Auflage (1980).

[7] Bergmann und Schäfer, ⋆ Lehrbuch der Experimentalphysik - Optik ⋆, Band 3. de Gruyter, 8. Auflage (1987).

[8] S.M. Bhagat, P. Lubitz, ⋆ Temperature variation of ferromagnetic relaxation in the 3d transition metals ⋆ Phys. Rev. B, Vol. 10, **1**, 179-185 (1974).

[9] S. J. Bingham, ⋆ Magnetic Circular Dichroism and Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions ⋆, PhD thesis, School of Chemical Sciences, University of East Anglia, Norwich, UK (1993).

[10] S. J. Bingham, D. Suter, A. Schweiger, and A. J. Thomson, ⋆ Optical detection of transition metal ion electron paramagnetic resonance by coherent raman spectroscopy ⋆, Chem. Phys. Letters, **266**, 543-547 (1997).

[11] J. A. C. Bland, M. J. Padgett, K. D. Mackay and A. D. Johnson, ⋆ Investigation of the magnetic properties of sandwiched epitaxial Fe and Co films using the magneto-optic Kerr effect ⋆, J. Phys.: Condens. Matter **1**, 4407-4413 (1989).

[12] N. Bloembergen, P. S. Pershan, and L. R. Wilcox, ⋆ Microwave modulation of light in paramagnetic crystals ⋆, Phys. Rev., **120**(6), 2014-2023 (1969).

[13] B. Börger, ⋆ Optically detected electron paramagnetic resonance of ruby and metalloproteins ⋆, Master's thesis, Fachbereich Physik, Universität Dortmund, Germany (1998).

[14] K. Böhmer, J. Hohlfeld, E. Matthias ⋆ SHG studies of magnetization effects on polycrystalline nickel surfaces⋆, Appl. Phys **A** 60, 203-208 (1995).

[15] L. R. Brovelli, I. D. Jung, D. Kopf, M. Kamp, M. Moser, F. X. Kärtner und U. Keller, ⋆ Self-starting soliton modelocked Ti-sapphire laser using a thin semiconductor saturable absorber ⋆, Electronics Letters **31**(4), 287 (1995).

[16] Z.Celinski, B. Heinrich, ⋆ Ferromagnetic resonance linewidth of Fe ultrathin films grown on a bcc Cu substrate ⋆, J. Appl. Phys. **70** (10), 5935 (1991).

[17] G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magni und L. Pallaro, ⋆ Resonators for Kerr-lens mode-locked femtosecond Ti:sapphire lasers ⋆, Optics Letters **19**, 807 (1994).

[18] I. P. Christov, V. D. Stoev, M .M. Murnane und H. C. Kapteyn, ⋆ Sub-10-fs operation of Kerr-lens mode-locked lasers ⋆, Optics Letters **21**, 1493-1495 (1996).

[19] J. L. Coutaz, D. Maystre, M. Neviere, and R. Reinisch, ⋆ Optical second-harmonic generation from silver at 1.064-micron pump wavelength ⋆, J. Appl. Phys., **62**, 1529-1531, (1987).

[20] J. L. Coutaz, ⋆ Surface Enhanced Second Harmonic Generation from Metals ⋆, Nonlinear Optics in Solids, Proceedings of the International Summer School, Springer-Verlag, Aalborg, Denmark (1989).

[21] W. Demtröder, ⋆ Laserspektroskopie ⋆, Springer-Verlag, 3. Auflage (1993).

[22] J. F. Jr. Dillon, E. M. Gyorgy, F. Hellmann, L. R. Walker, and R. C. Fulton, ⋆ Use of the longitudinal magneto-optical Kerr effect to study nonmagnetic/magnetic bilayers ⋆, J. Appl. Phys., **64**(10), 6098-6100 (1988).

[23] ⋆ Persönliches Gespräch mit Prof. E. Dormann ⋆ Inst. f. Physik, Universität Karlsruhe (2000).

[24] M. Farle, ⋆ Ferromagnetic resonance of ultrathin metallic layers ⋆, Rep. Prog. Phys., **61**, 755ff (1998).

[25] R. Fluck, I. D. Jung, G. Zhang, F. X. Kärtner und U. Keller, ⋆ Broadband saturable absorber for 10-fs pulse generation ⋆, Optics Letters **21**(10), 743ff (1996).

[26] R. L. Fork, O. E. Martinez und J. P. Gordon, ⋆ Negative dispersion using pairs of prisms ⋆, Optics Letters **9**, 150 (1984).

[27] F. S. Galasso, ⋆ Structure and Properties of Inorganic Solids ⋆, Pergamon Press, Oxford (1970).

[28] M. Gerloch and E. C. Constable, ⋆ Transition Metal Chemistry ⋆, VCH Verlagsgesellschaft (1994).

[29] J. Gutschank, ⋆ Raman Hederodyn Detected Electron Paramagnetic Resonance Spectroscopy of Metalloproteins ⋆, Master's thesis, Fachbereich Physik, Universität Dortmund, Germany (1999).

[30] B. Heinrich and J.A.C. Bland, ⋆ Ultrathin magnetic structures ⋆, Vol. II, Springer-Verlag, Berlin (1994).

[31] B. Henderson and G. F. Imbusch, ⋆ Optical Spectroscopy of Inorganic Solids ⋆, chapter 9, Oxford University Press, Oxford (1989).

[32] G. Huber, ⋆ Festkörperlaser - neue Entwicklungen ⋆, Physikalische Blätter **47**,365-370 (1991).

[33] Dr. Erich Ippen, ⋆ Optiken für ultrakurze Pulse ⋆, Newport Katalog S. 97ff. (1995).

[34] P. B. Johnson and R. W. Christy, ⋆ Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd ⋆,Phys. Rev. B, Vol. **9**, Num. 12, 5056-5069 (1974).

[35] I. D. Jung, L. R. Brovelli, M. Kamp, U. Keller und M. Moser, ⋆ Scaling of the antiresonant Fabry-Perot saturable absorber design toward a thin saturable absorber ⋆, Optics Letters **20**(14), 1559 (1995).

[36] I. D. Jung, F. X. Kärtner, L. R. Brovelli, M. Kamp und U. Keller, ⋆ Experimental verification of soliton mode locking using only a slow saturable absorber ⋆, Optics Letters **20**(18), 1892 (1995).

[37] I. D. Jung, F. X. Kärtner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, Z. Shi, V. Scheuer, M. Tilsch, T. Tschudi und U. Keller, ⋆ Semiconductor saturable absorber mirrors supporting sub-10-fs pulses ⋆, Applied Physics B **65**, 137 (1997).

[38] I. D. Jung, F. X. Kärtner, J. Henkmann, G. Zhang und U. Keller, ⋆ High-dynamic-range characterization of ultrashort pulses ⋆, Appl. Phys. B **65**, 307-310 (1997).

[39] I. D. Jung, F. X. Kärtner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch und T. Tschudi, ⋆ Self-starting 6.5-fs pulses from a Ti:sapphire laser ⋆, Optics Letters **22**(13), 1009 (1997).

[40] F. X. Kärtner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. A. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Scheuer, M. Tilsch und T. Tschudi, ⋆ Design and fabrication of double-chirped mirrors ⋆, Optics Letters **22**, 831 (1997).

[41] U. Keller, G. W. 'tHooft, W. H. Knox und J. E. Cunningham, ⋆ Femtosecond pulses from a continuously self-starting passively mode-locked Ti:sapphire laser ⋆, Optics Letters **16**, 1022 (1991).

[42] Ch. Kittel, ⋆ Einführung in die Festkörperphysik ⋆ R. Oldenbourg Verlag, 9. Auflage(1991).

[43] J.Koehler, J.A.J.M. Disselhorst, M.C.J.M. Donckers, E.J.J. Groenen, J. Schmidt, and W.E. Moerner, ⋆ Magnetic resonance detection of a single molecular Spin ⋆, Nature **363**, 242-243 (1993).

[44] E. G. Lariontsev und V. N. Serkin, ⋆ Possibility of using self-focusing for increasing contrast and narrowing of ultrashort light pulses ⋆, Sov. J. Quant. Electron. **5**, 796-800 (1975).

[45] Lexikon der Physik, ⋆ Autokorrelationsverfahren zur Messung ultra-kurzer Pulse ⋆, Spektrum Akademischer Verlag (1998).

[46] C. Liu, E.R. Moog, and S.D. Bader, ⋆ Polar Kerr-effect observation of perpendicular surface anisotropy for ultrathin ferromagnetic films: fcc Fe/Cu (100) ⋆, J. Appl. Phys. **64** (10), 5325-5327 (1988).

[47] Melles Griot Katalog, S. A4.4. (1998).

[48] P. F. Moulton, ⋆ Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al_2O_3 ⋆, J. Opt. Soc. Am. B **3**, 125-132 (1986).

[49] C. P. Jr. Poole ⋆ Electron Spin Resonance, A Comprehensive Treatise on Experimental Techniques ⋆ John Wiley & Sons, New York, 263 (1967).

[50] A. M. Portis, ⋆ Electronic Structure of F Centers: Saturation of the Electron Spin Resonance ⋆ Phys. Rev., Vol.91, **5**, 1071-1078 (1953).

[51] P. Poulopoulos, et. al. ⋆Magnetic anisotropy and exchange coupling in Fe_nV_m(001) superlattices on MgO(001) ⋆ J. Magn. Magn. Mater. 170, 57-66 (1997).

[52] U. Pustogowa, W. Hübner, and K. H. Bennemann ⋆, Enhancement of the magneto-optical Kerr rotation in nonlinear optical response ⋆, Appl. Phys. A, **59**, 611-615, (1994).

[53] T. Rasing, ⋆ Studies of buried interfaces by optical second-harmonic generation ⋆, Appl. Phys. A, **59**, 531-536 (1994).

[54] T. Rasing, ⋆ Nonlinear magneto-optics of magnetic thin films ⋆, J. Magn. Soc. Jpn., **20**(S1), 13-18, (1996).

[55] W. Reim, ⋆ magneto-optical Kerr-effect of uranium componends ⋆, PhD thesis, ETH Zürich (1984).

[56] W. Reim and D. Weller, ⋆ Kerr rotation enhancement in metallic bilayer thin films for magneto-optical recording ⋆, Appl. Phys. Lett., **53**(24), 2453ff (1988).

[57] W. Reim, J. Schoenes, ⋆ Magneto-optical Spectroscopie of f-Electron System ⋆, Ferromagnetic Materials, Vol.5, Chap.2, (1990).

[58] F. Salin, J. Squier und M. Piché, ⋆ Mode locking of Ti:Al_2O_3 lasers and self-focusing: a Gaussian approximation ⋆, Optics Letters **16**, 1674-1676 (1991).

[59] A. E. Siegman, ⋆ Lasers ⋆, University Science Books (1986).

[60] J. E. Sipe, V. So, M. Fukui, and G. I. Stegemann ,⋆ Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces ⋆, Phys. Rev. B, **21**, 4389ff, (1980).

[61] C. P. Slichter, ⋆ Principles of Magnetic Resonance ⋆, Springer-Verlag (1978).

[62] D. E. Spence, P. N. Kean und W. Sibbett, ⋆ 60-fsec pulse from a self-mode-locked Ti:sapphire laser ⋆, Optics Letters **16**, 42 (1991).

[63] Ch. Spielmann, M. Lenzner, A. Stingl, R. Szipöcs und F. Krausz, ⋆ Femtosekundenlaser: Sind die Grenzen schon erreicht? ⋆, Physikalische Blätter **51** 289 (1995).

[64] A. Stingl, C. Spielmann, F. Krausz und R. Szipöcs, ⋆ Generation of 11-fs pulses from a Ti:sapphire laser without the use of prisms ⋆, Optics Letters **19**, 204-206 (1994).

[65] P. J. Stephens, Adv. Chem. Phys., **52**, 3489 (1970).

[66] S. Sugano and Y. Tanabe, ⋆ Absorption Spectra of Cr^{3+} in Al_2O_3 ⋆, J. Phys. Soc. Japan, **13**(8), 880-910 (1958).

[67] D. Suter, ⋆ The Physics of Laser-Atom Interactions ⋆, Cambridge University Press, Cambridge (1997).

[68] J. C. Sutherland, Magnetic Circular Dichroism, ⋆ Methods in Enzymology ⋆, **246**, 110-131 (1995).

[69] R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann und F. Krausz, ⋆ Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers ⋆, Optics Letters **19**, 201-203 (1994).

[70] A.J. Thomson, M.R.Cheesman and S.J. George, ⋆ Variable-Temperatur Magnetic Circular Dichroism ⋆, Methods in Enzymology, Vol.226, 199 (1993).

[71] S.V. Vonsovskii, ⋆ Ferromagnetic Resonance ⋆, Pergamon (1960).

[72] J.Wrachtrup, C.v. Borczyskowski, J.Bernhard, M.Orrit, and R. Brown, ⋆ Optical detection of magnetic resonance in a single molecule ⋆, Nature **363**, 244-245 (1993).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich herzlich bei Herrn Prof. Dr. D. Suter bedanken, insbesondere für die Bereitstellung dieses interessanten Promotionsthemas. Erwähnung muß hier auch finden, daß er maßgeblich an der Funktionsfähigkeit des Puls-Lasers beteiligt war, in dem er dazu anregte, einen solchen an der ETH-Zürich zu besichtigen. Durch seine Beziehungen zur freien Universität Berlin wurde uns weiterhin die Fe-Multilayer-Probe von Prof. Dr. M. Farle bereitwillig zur Verfügung gestellt.

Ein besonderer Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. D. Winter (Fachbereich Chemie, Universität Dortmund), der mir als Sprecher des Graduiertenkollegs "Struktur-Dynamik-Beziehungen in mikrostrukturierten Sytemen" die Teilnahme als Stipendiat und Kollegiat ermöglichte.

Herrn Prof. Dr. Weber möchte ich dafür danken, daß er mir die Aufnahme der Absorptionsspektren an Rubin ermöglichte.

Frau Prof. Dr. Woggon danke ich für die Leihgabe und den Nachbau des Autokorrelators, mit dem eine genaue Messung des zeitlichen Pulsbreite möglich war.

Ebenfalls zu Dank verpflichtet bin ich Dipl.-Chemiker Karsten Jakobi (Arbeitskreis Prof. Dr. Lehnig - Fachbereich Chemie, Universität Dortmund), der mir bei der Bedienung des 9GHz-ESR-Spektrometers zur Seite stand.

Herrn T. Kalthof danke ich für die Mithilfe am Aufbau des Pulslasers und der Beteiligung an den Experimenten zum linearen und quadratischen Kerr-Effekt.

Herrn Dr. S. Bingham danke ich für das Interesse an meiner Arbeit und die daraus resultierenden Anregungen. Insbesondere die regen Diskussionen mit der gesamten PROD-Gruppe, darunter B. Börger, J. Gutschank und M. O. Schweika, werde ich sehr vermissen.

Durch die Verwendung der Mikrowellenbrücke wurden die Experimente zur ODEPR und ODFMR erst möglich.

Nicht zuletzt danke ich auch den beiden Technikern H. Rombeck und W. Goralczyk und unserer Sekretärin Frau Sommer, insbesondere für das warme Essen, das kalte Helium und die steten Auskünfte. Ebenfalls der mechanischen und elektronischen Werkstatt und dem Präparationslabor sei an dieser Stelle gedankt.

Ganz besonderer Dank gilt allen Mitarbeitern am Lehrstuhl EIII für das herzliche Betriebsklima und die vielen außerordentlichen Treffen.

Zum Schluß bedanke ich mich bei meiner Verlobten Anke Wiegmann, die durch ihre Unterstützung während der gesamten Zeit einen erheblichen Anteil am Gelingen dieser Arbeit hat.