

# Magneto-optische Reflexionsspektroskopie mittels linear polarisierter Synchrotron- strahlung an dünnen einkristallinen Fe-, Co- und Ni-Schichten

von der Fakultät für Physik der Universität Duisburg-Essen  
zur Erlangung des akademischen Grades  
*doctor rerum naturalium*  
genehmigte

DISSERTATION

vorgelegt von

**Marc Frederic Tesch**

geboren in Münster

1. Gutachter: Prof. Dr. C. M. Schneider

2. Gutachter: Prof. Dr. H.-Ch. Mertins

Eingereicht am: 21.05.2014

Tag der Disputation: 24.09.2014



## Übersicht

Die Entwicklung und Erforschung neuer auf magnetischen Materialien basierenden Systeme, z.B. für die Spintronik, schreitet stetig voran. Zur Untersuchung und Charakterisierung solcher magnetischer Materialien haben sich magneto-optische Spektroskopiemethoden mit polarisierter Synchrotronstrahlung fest etabliert. In der vorliegenden Arbeit wurden systematisch die ferromagnetischen Übergangsmetalle Fe, Co und Ni in kristalliner Form mittels magneto-optischer Reflexionsspektroskopie an den  $3p$ - und  $2p$ -Absorptionskanten untersucht. Im Gegensatz zur häufig genutzten Elektronenspektroskopie zeigt sich die Reflexionsspektroskopie als *photon-in - photon-out* Methode vor allem im extremen Ultraviolett (EUV) an den  $3p$ -Kanten von Fe, Co und Ni als besonders gut geeignet, da das Reflexionsvermögen der Proben in diesem Energiebereich auch für senkrechten Lichteinfall leicht messbar ist. In jüngster Zeit konzentriert sich die Forschung auf die Beeinflussung magnetischer und elektronischer Eigenschaften durch kristalline Anisotropie und deren Detektion mittels magneto-optischer Spektroskopiemethoden. Hierzu existieren bisher nur einige wenige Messungen, hauptsächlich an den  $2p$ -Kanten von Fe-, Co- und Ni-Verbindungen.

Das Hauptaugenmerk der Arbeit liegt auf dem Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf magneto-optische Effekte an den  $3p$ -Kanten von reinem Fe, Co und Ni. Es kann gezeigt werden, dass sich der transversale und der longitudinale magneto-optische Kerr-Effekt (L-MOKE und T-MOKE), welche linear in der Magnetisierung sind, als ungeeignet erweisen die Orientierung der magnetischen Momente im Kristall zu detektieren. In dieser Arbeit steht daher der magnetische Röntgenlineardichroismus (XMLD), welcher quadratisch in der Magnetisierung ist, im Vordergrund. Es konnte hier erstmalig gezeigt werden, dass der XMLD auch an den  $3p$ -Kanten sehr empfindlich auf die Orientierung der Magnetisierung bezüglich der Kristallachsen reagiert. Dabei erfahren die XMLD-Spektren für unterschiedliche Orientierung des Kristalls Änderungen von bis zu 100%. In Kombination mit den Vorteilen der Reflexionsspektroskopie macht dies den XMLD zu einem hervorragenden Werkzeug um magnetische kristalline Strukturen zu untersuchen. Zudem wird in dieser Arbeit gezeigt, dass Interferenzeffekte einen entscheidenden Einfluss auf die mittels Reflexionsspektroskopie gemessenen Spektren haben können. Im Gegensatz zu T-MOKE zeigt sich der XMLD an den  $3p$ -Kanten jedoch wesentlich unanfälliger gegen störende Einflüsse von Interferenz. Zur Detektion des XMLD, der in etwa um eine Größenordnung geringer ausfällt als z.B. T-MOKE, wurden im Rahmen dieser Arbeit umfangreiche Experimentiervorrichtungen entwickelt, aufgebaut und in Betrieb genommen.

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit ist die Validierung theoretischer Bandstrukturmodelle. Die vorgestellten experimentellen Spektren werden mit *ab initio* Rechnungen verglichen und es werden Rückschlüsse auf die Anwendbarkeit eines Ein-Elektronen-Ansatzes gezogen. Dabei konnte gezeigt werden, dass *ab initio* Rechnungen mittels LSDA die XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten von Fe sehr gut reproduzieren können. Zudem wird ein Modell vorgestellt, welches es erlaubt die Austauschspaltung der Rumpfstände direkt in den XMLD-Spektren zu identifizieren. Die in der Arbeit systematisch durchgeführte Untersuchung des XMLD erweitert somit das Verständnis des magnetischen Röntgenlineardichroismus auf den Energiebereich des EUV und kann als Grundstein für zukünftige Anwendungen dienen, welche diesen Energiebereich nutzen.

## Abstract

The development and investigation of new electronic systems based on magnetic materials, e.g. in spintronics, is still in progress. To characterise and explore such magnetic materials the magneto-optical spectroscopies with polarized synchrotron radiation are an established tool. This thesis deals with the systematic exploration of the ferromagnetic transition metals Fe, Co, and Ni at their  $3p$  and  $2p$  edges using reflection spectroscopy. In contrast to the often used total electron yield technique the reflection spectroscopy as a photon-in – photon-out method is appropriate especially in the extreme ultra violet (XUV) at the Fe, Co, and Ni  $3p$  edges because of the good sample reflectance in this energy range even at normal incidence. Recently, the influence on electronic and magnetic properties by crystalline anisotropy and its detection with magneto optical spectroscopies comes into the focus of research. Up to now only a few measurements exist mainly at the  $2p$  edges of Fe, Co, and Ni alloys.

The main part of this thesis deals with the influence of the magnetocrystalline anisotropy on magneto optical effects at the  $3p$  edges of pure Fe, Co, and Ni. It can be shown that the longitudinal and the transversal magneto-optical Kerr effect (L-MOKE and T-MOKE), which are linear in magnetisation, are inapplicable to detect the orientation of the magnetic moments in the crystal. Therefore, this thesis is focused on the x-ray magnetic linear dichroism (XMLD), which is quadratic in magnetization. It can be shown for the first time that also at the  $3p$  edge the XMLD is very sensitive to the magnetization orientation within the crystal. The XMLD signal undergoes changes up to 100% when changing the orientation of the crystal. In combination with the advantages of reflection spectroscopy the XMLD turns out as a perfectly suitable tool for the investigation of magnetic crystal structures. Additionally it is shown in this thesis that interference effects can have a drastic impact on the magneto-optical spectra measured in reflection but in contrast to T-MOKE the XMLD at the  $3p$  edges is nearly unaffected by interference effects. To detect the XMLD, which is about one order of magnitude smaller than e.g. T MOKE, versatile experimental devices have been developed and deployed within the scope of this thesis.

A second main aspect of this thesis is the validation of theoretical band structure models. The presented experimental spectra are compared with *ab initio* calculations and the applicability of a one electron model is discussed. It is shown that with an LSDA approach the XMLD spectra of Fe can be described very well. In addition a simple model is introduced which allows to identify the core level exchange splitting directly within the spectral structures of the XMLD. The systematic investigations of the XMLD at the  $3p$  edges presented in this thesis expands the understanding of the XMLD to the energy range of the XUV and can be used as a foundation for future experiments using this energy range.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Motivation</b>	<b>7</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>11</b>
2.1	Festkörpermagnetismus . . . . .	11
2.1.1	Magnetismus in Kristallstrukturen . . . . .	14
2.1.2	Magnetismus in dünnen Schichten . . . . .	15
2.2	Magneto-optische Detektionsmethoden . . . . .	17
2.2.1	Elektromagnetische Strahlung & magnetisierte Materie . . . . .	19
2.2.2	XMCD in Reflexion . . . . .	26
2.2.3	T-MOKE . . . . .	28
2.2.4	L-MOKE und P-MOKE . . . . .	29
2.2.5	XMLD . . . . .	31
2.3	Anpassungsrechnungen für magneto-optische Effekte . . . . .	35
2.4	Theoretische Modelle & <i>ab initio</i> Rechnungen . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>43</b>
3.1	Synchrotronstrahlung . . . . .	43
3.2	XMAPS-Polarimeter . . . . .	44
3.3	BESSY-Polarimeter . . . . .	45
3.4	MiniMag . . . . .	46
3.5	E.M.M.A. . . . .	47
3.6	Proben . . . . .	47
3.6.1	Eisen . . . . .	48
3.6.2	Kobalt . . . . .	50
3.6.3	Nickel . . . . .	53
3.6.4	Zusammenfassung . . . . .	55
<b>4</b>	<b>Eisen</b>	<b>57</b>
4.1	Magnetische Eigenschaften & Reflexionsvermögen . . . . .	57
4.2	Anisotropie in T-MOKE . . . . .	63
4.3	Anisotropie in L-MOKE . . . . .	69
4.4	Anisotropie in XMLD an den 3 <i>p</i> -Kanten . . . . .	71
4.5	Anisotropie in XMLD an den 2 <i>p</i> -Kanten . . . . .	78
4.6	Vergleich mit <i>ab initio</i> Rechnungen . . . . .	82
4.6.1	Fe 3 <i>p</i> -Kanten . . . . .	82
4.6.2	Fe 2 <i>p</i> -Kanten . . . . .	93
4.7	Zusammenfassende Diskussion . . . . .	97
<b>5</b>	<b>Kobalt</b>	<b>99</b>
5.1	Magnetische Eigenschaften & Reflexionsvermögen . . . . .	99
5.2	Anisotropie in T-MOKE . . . . .	100

5.3	Anisotropie in XMLD an den 3 <i>p</i> -Kanten . . . . .	101
5.4	XMLD an den 3 <i>p</i> -Kanten von polykristallinem Co . . . . .	103
5.5	Anisotropie in XMLD an den 2 <i>p</i> -Kanten . . . . .	104
5.6	Vergleich mit <i>ab initio</i> Rechnungen . . . . .	106
5.7	Zusammenfassende Diskussion . . . . .	111
<b>6</b>	<b>Nickel</b>	<b>113</b>
6.1	Magnetische Eigenschaften & Reflexionsvermögen . . . . .	113
6.2	Anisotropie in T-MOKE . . . . .	115
6.3	Anisotropie in XMLD an den 3 <i>p</i> -Kanten . . . . .	116
6.4	Anisotropie in XMLD an den 2 <i>p</i> -Kanten . . . . .	117
6.5	Vergleich mit <i>ab initio</i> Rechnungen . . . . .	118
6.6	Zusammenfassende Diskussion . . . . .	120
<b>7</b>	<b>Vergleich von Fe, Co und Ni</b>	<b>123</b>
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung &amp; Ausblick</b>	<b>127</b>
	<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>129</b>
	<b>Symbolverzeichnis</b>	<b>131</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>133</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>145</b>
	<b>Erklärung</b>	<b>147</b>
	<b>Veröffentlichungen</b>	<b>149</b>

# 1 Motivation

Die Entwicklung elektronischer Systeme wie Speichermedien und Sensoren schreitet seit Jahrzehnten stetig voran. Dabei spielen magnetische Materialien, die in solchen Systemen verbaut werden, eine wichtige Rolle [1]. Neben dem physikalischen Interesse an den grundlegenden Funktionsweisen magnetischer Materialien gibt dies Anlass zum Bestreben eines umfassenden Verständnisses solcher magnetischer Systeme. Die hinzukommende Miniaturisierung wirft weitere Fragen auf, beispielsweise nach den magnetischen Eigenschaften räumlich begrenzter Systeme wie Nanostrukturen und ultradünne Schichten [2]. Ein weiterer Aspekt ist die energetische Effizienz, da die Abfuhr der Verlustleistung häufig ein wichtiges Kriterium bei stark miniaturisierten Systemen darstellt. Daher ist in den letzten Jahren ein weiteres Forschungsfeld hinzugekommen, welches nicht die Ladung des Elektrons, sondern dessen Spin zur Informationsübertragung nutzt [3; 4]. Um hierauf basierende Systeme nutzbar zu machen, ist jedoch ein umfassendes Verständnis der dahinter stehenden Physik notwendig. Auch wenn die theoretischen Modelle, um die zugrundeliegenden physikalischen Vorgänge deuten und korrekt beschreiben zu können, in den letzten Jahren immer weiter verfeinert wurden, gibt es dennoch noch viele offene Fragen.

Bei der Analyse magnetischer Systeme wird häufig auf magneto-optische Spektroskopiemethoden zurückgegriffen [5; 6; 7]. Mit diesen kann Magnetismus auf atomarer Ebene untersucht werden, hierzu müssen jedoch die zugrundeliegenden magneto-optischen Effekte bekannt sein. Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Untersuchung magneto-optischer Effekte mittels linear polarisierter Synchrotronstrahlung sowie den Einfluss magnetokristalliner Anisotropie auf diese Effekte. Untersucht wurden die ferromagnetischen  $3d$ -Übergangsmetalle Fe, Co und Ni, wobei das Hauptaugenmerk dieser Arbeit auf den  $3p$ -Absorptionskanten liegt. Zur Detektion der magneto-optischen Effekte wurde die Reflexionsspektroskopie gewählt. Diese *photon-in - photon-out* Methode ist an den  $3p$ -Kanten besonders gut geeignet, da das Reflexionsvermögen der Proben in diesem Energiebereich leicht messbar ist. Dieses ist im Gegensatz zu den  $2p$ -Kanten um einen Faktor  $10^3$  größer. Zudem bieten sich folgende weitere Vorteile der Reflexionsspektroskopie gegenüber anderen Methoden, wie beispielsweise Messungen mittels *total electron yield* (TEY): Bei der Reflexionsspektroskopie gibt es keine Beeinflussung der Messung durch externe Magnetfelder, welche benötigt werden um die Proben in Sättigung zu bringen, dies vereinfacht den Messaufbau. Von Vorteil erweist sich auch, dass die Informationstiefe für Reflexionsmessungen in dem in dieser Arbeit verwendeten Energiebereich (ca. 40 - 80 eV) einige zehn Nanometer beträgt. Im Gegensatz hierzu hat die freie Weglänge von Elektronen in diesem Energiebereich gerade ein Minimum. Die Informationstiefe für in Absorptionsspektroskopie gemessenen Photoelektronen mittels TEY beträgt nur ca. 0,5 - 1 nm [8] und erfasst damit hauptsächlich die Oberfläche einer Probe. In der Reflexionsspektroskopie können deshalb auch „vergrabene“ Strukturen und Schichtsysteme [9], sowie industriell hergestellte Proben untersucht werden. Das erlaubt es, die Proben *ex situ* zu präparieren und mit einer Deckschicht zu versehen, um diese vor Oxidation zu schützen. Zudem können Sättigungseffekte wie Selbstabsorption in TEY-Messungen die Ergebnisse verfälschen [10].

Die Verwendung von Synchrotronstrahlung im extremen Ultraviolett (EUV) bietet bei der Untersuchung magnetischer Eigenschaften eine Reihe weiterer Vorteile: Die Wechselwirkung von Photonen mit Materie hängt über einen großen Energiebereich nur geringfügig von der Photonenenergie ab, da sich der Brechungsindex nur langsam mit der Photonenenergie ändert. Nähert sich jedoch die Photonenenergie der Bindungsenergie der Rumpfniveau-Elektronen eines Elements, führt dies zu einer abrupten Änderung des Brechungsindex, da Übergänge der Rumpfniveau-Elektronen in unbesetzte Zustände stattfinden können. Diese resonante Anregung führt dazu, dass in den Reflexionsspektren deutliche Strukturen auftreten, die eindeutig einem charakteristischen Übergang und damit einem Element zugeordnet werden können. Zusätzlich sind magneto-optische Effekte in diesem Energiebereich bis zu 100-fach stärker ausgeprägt als für Intrabandübergänge im sichtbaren Spektralbereich. Die Spektren ergeben sich dabei aus dem unterschiedlichen Reflexionsvermögen, abhängig von der Polarisation des Lichts und der Richtung der Magnetisierung. Da die Strukturen in den magneto-optischen Spektren direkt den Elementen zugeordnet werden können, können so gezielt Proben auf den Ursprung ihres Magnetismus und ihr magnetisches Verhalten untersucht werden [6]. Dies ist für die Entwicklung und das Verständnis neuartiger Materialkombinationen und Nanostrukturen z.B. für die Spintronik unumgänglich.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf verschiedene magneto-optische Effekte zu untersuchen. Dabei steht der magnetische Röntgenlineardichroismus (XMLD) im Vordergrund. Auch wenn es die oben genannten Vorzüge der Synchrotronstrahlung erlauben, auch komplexe Verbindungen gezielt auf den Ursprung magnetischer Effekte hin zu untersuchen, wurden in dieser Arbeit Proben aus reinen Fe, Co und Ni gewählt. Denn obwohl die drei ferromagnetischen Übergangsmetalle elementare Bestandteile vieler wichtiger magnetischer Verbindungen sind, existieren bis jetzt, bis auf eine Arbeit an den Fe  $2p$ -Kanten [11] keine systematischen Untersuchungen des Einflusses der kristallinen Orientierung auf den XMLD an den reinen Elementen selbst. Vielmehr wurde der XMLD bisher nahezu nur in Oxiden und andere Verbindungen auf die Abhängigkeit von der kristallinen Orientierung untersucht [12; 13; 14]. In der vorliegenden Arbeit werden zudem erstmals XMLD-Messungen an den  $3p$ -Kanten von kristallinem Fe, Co und Ni vorgestellt. Es wird gezeigt werden, dass der XMLD, welcher quadratisch in der Magnetisierung ist, auch an den  $3p$ -Kanten sehr empfindlich auf die Orientierung der Magnetisierung bezüglich der Kristallachsen reagiert. Dies steht im Gegensatz zum transversalen oder longitudinalen magneto-optischen Kerr Effekt (L-MOKE, T-MOKE), welche linear in der Magnetisierung sind und von der Kristallorientierung nahezu unbeeinflusst bleiben. Die XMLD-Spektren hingegen erfahren je nach Orientierung des E-Feld-Vektors des Lichts im Kristall Änderungen von bis zu 100%. Damit ist XMLD ein hervorragendes Werkzeug um kristalline Strukturen zu untersuchen. Zur Detektion des XMLD an den  $3p$ -Kanten wurden im Rahmen dieser Arbeit umfangreiche Experimentiervorrichtungen entwickelt, aufgebaut und in Betrieb genommen.

Ein wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit ist die Validierung theoretischer Bandstrukturmodelle und magneto-optischer Rechnungen. Die hier vorgestellten experimentellen Spektren werden mit *ab initio*-Rechnungen verglichen und es werden Rückschlüsse auf die Anwendbarkeit eines Ein-Elektronen-Ansatzes gezogen. Der Vergleich von experimentellen und *ab initio* berechneten XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten bietet dabei einen besonderen Vorteil. Es hat sich gezeigt, dass die Austauschspaltung der Rumpfniveau-Zustände eine große Rolle für den magnetischen Röntgenlineardichroismus spielt. An den  $3p$ -Kanten ist die Austauschspaltung in etwa gleich groß der Spin-Bahn-Aufspaltung. Damit stellt sich dieser Energiebereich als ein geeignetes Arbeitsfeld zum Test theoretischer Bandstruktur-Modelle dar. Für die



$3p$ -Kanten können keine Näherungen verwendet werden, welche an den  $2p$ -Kanten aufgrund der im Verhältnis zur Austauschaufspaltung wesentlich größeren Spin-Bahn-Aufspaltung gelten. Vielmehr müssen Austauschaufspaltung und Spin-Bahn-Aufspaltung in den Rechnungen an den  $3p$ -Kanten exakt berücksichtigt werden.

Die Entscheidung, den Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den XMLD erstmals an den  $3p$ -Kanten zu untersuchen, hat noch einen weiteren Hintergrund. Die genauen Kenntnisse des magneto-optischen Verhaltens der  $3d$ -Übergangsmetalle an den  $3p$ -Kanten wird immer wichtiger, denn es entwickelt sich derzeit ein großes Arbeitsfeld in welchem dieser Energiebereich Verwendung findet. Es existieren seit einiger Zeit Laborlichtquellen, welche auf *higher harmonic generation* (HHG) basieren [15] und diesen Energiebereich abdecken. Zudem schreitet die Entwicklung und der Einsatz von Freie-Elektronen-Lasern (FEL) [16] weiter voran. Mit diesen Systemen können zeitaufgelöste magneto-optische *pump-probe* Experimente einen Einblick in die Magnetisierungsdynamik magnetischer Systeme liefern [17; 18; 19; 20; 21]. Auch bietet das hohe Reflexionsvermögen für Energien der  $3p$ -Kanten die Möglichkeit für zukünftig hochauflösende Reflexionsmikroskopie mit Synchrotronstrahlung oder HHG-Quellen. Mittels abbildender Verfahren könnten auf diese Weise gezielt räumliche Regionen einer Probe, wie z.B. Korngrenzen oder Nanostrukturen auf ihre magnetischen Eigenschaften untersucht werden. Mit dieser Arbeit soll daher ein Grundstein für das Verständnis des magnetischen Röntgenlineardichroismus an den  $3p$ -Kanten gelegt werden.



## 2 Grundlagen

Als theoretische Basis für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente und die daraus folgenden Überlegungen und der zugrundeliegenden physikalischen Effekte und Methoden gibt dieses Kapitel eine Übersicht über die Grundlagen des Festkörpermagnetismus und der Magneto-Optik. In Abschnitt 2.1 werden allgemein die Grundlagen des Magnetismus in Festkörpern erläutert. Eine eingehende Betrachtung der magnetischen Anisotropieeffekte, wie die magnetokristalline Anisotropie und die Formanisotropie erfolgt in den Kapiteln 2.1.1 bzw. 2.1.2. In Kapitel 2.2 wird anschließend ausführlich auf die unterschiedlichen magneto-optischen Effekte sowie ihre experimentellen Detektionsmethoden eingegangen. Ein besonderes Augenmerk wird dabei auf den Röntgenlineardichroismus gelegt, welcher quadratisch in der Magnetisierung ist, d.h. die Magnetisierungsachsen detektiert und eine hohe Sensitivität bezüglich Kristallstrukturen aufweist [22].

### 2.1 Festkörpermagnetismus

Zur Beschreibung des magnetischen Verhaltens von Festkörpern sollen im Folgenden zunächst einige Grundlagen kurz umrissen werden. Zunächst aber noch eine Anmerkung vorweg: In der gängigen Literatur wird für die Beschreibung magnetischer Größen sowohl das CGS-Einheitensystem als auch das SI-Einheitensystem verwendet. Um Verwechslungen bei den verwendeten Größen zu vermeiden wird sich in der vorliegenden Arbeit auf das Letztere beschränkt. Als weitere Vereinfachung wird die magnetische Flussdichte  $\mathbf{B}$  in dieser Arbeit vereinfacht als „Magnetfeld“ bezeichnet und die Größe  $\mathbf{H}$  als magnetische Erregung, wie es auch in gängiger Fachliteratur gelegentlich praktiziert wird [23]. Der bekannte Zusammenhang der beiden Größen ist durch  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$  gegeben.

#### Atomarer Magnetismus

Da ein Festkörper aus Atomen aufgebaut ist, bietet es sich an zunächst den Magnetismus einzelner Atome zu betrachten. Das magnetische Moment  $\mathbf{m}$  eines Atoms wird im Wesentlichen hervorgerufen durch die Elektronenhülle. Das magnetische Moment des Atomkerns ist um etwa 3 Größenordnungen kleiner und soll hier nicht weiter berücksichtigt werden. Das durch die Elektronen hervorgerufene magnetische Moment setzt sich aus dem vom Elektronenspin erzeugten Moment  $\mu_s$  und dem durch die Elektronenbahn erzeugten Moment  $\mu_l$  zusammen. Das magnetische Bahnmoment  $\mu_l$  des Elektrons lässt sich berechnen als [23]

$$\mu_l = -\frac{|e|\hbar}{2m_e} \sqrt{\langle \mathbf{L}^2 \rangle} \quad , \quad \text{mit} \quad \langle \mathbf{L}^2 \rangle = l(l+1)\hbar^2 \quad . \quad (2.1)$$

Das Spinmoment eines Elektrons ergibt sich zu

$$\mu_s = -g \frac{|e|\hbar}{2m_e} \sqrt{\langle \mathbf{S}^2 \rangle} \quad , \quad \text{mit} \quad \langle \mathbf{S}^2 \rangle = s(s+1)\hbar^2 \quad . \quad (2.2)$$

Dabei ist  $e$  die Elektronenladung,  $m_e$  die Elektronenmasse und  $g$  das gyromagnetische Verhältnis. Der beiden Ausdrücken innewohnende Term  $\frac{|e|\hbar}{2m_e}$  ist das Bohr'sche Magneton  $\mu_B$  und beschreibt als magnetisches Quant des Elektrons das kleinstmögliche magnetische Moment, das durch ein Elektron hervorgerufen werden kann. Die Spin- und die Bahnmomente, sowie das Spinnmoment und das Bahnmoment untereinander treten nun miteinander in Wechselwirkung und koppeln, wobei die Art der Kopplung von der Kernladungszahl abhängt. Für die in der vorliegenden Arbeit betrachteten Übergangsmetalle Fe, Co und Ni ist die Spin-Bahn Wechselwirkung schwach. Zur Berechnung des Gesamtdrehimpulses  $\mathbf{J}$  kann daher die Näherung der LS-Kopplung verwendet werden. Hierbei ergibt sich der Gesamtdrehimpuls  $\mathbf{J}$  aus der Summe aller Spins  $\mathbf{S}$  und Bahnpulse  $\mathbf{L}$  zu

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S} \quad , \quad \text{mit} \quad \mathbf{L} = \sum_i \mathbf{l}_i \quad \text{und} \quad \mathbf{S} = \sum_i \mathbf{s}_i \quad (2.3)$$

wobei über alle Elektronen des Atoms summiert wird. Das magnetische Gesamtmoment des Atoms  $\mu_j$  ergibt sich zu

$$\mu_j = \mu_l + \mu_s \quad . \quad (2.4)$$

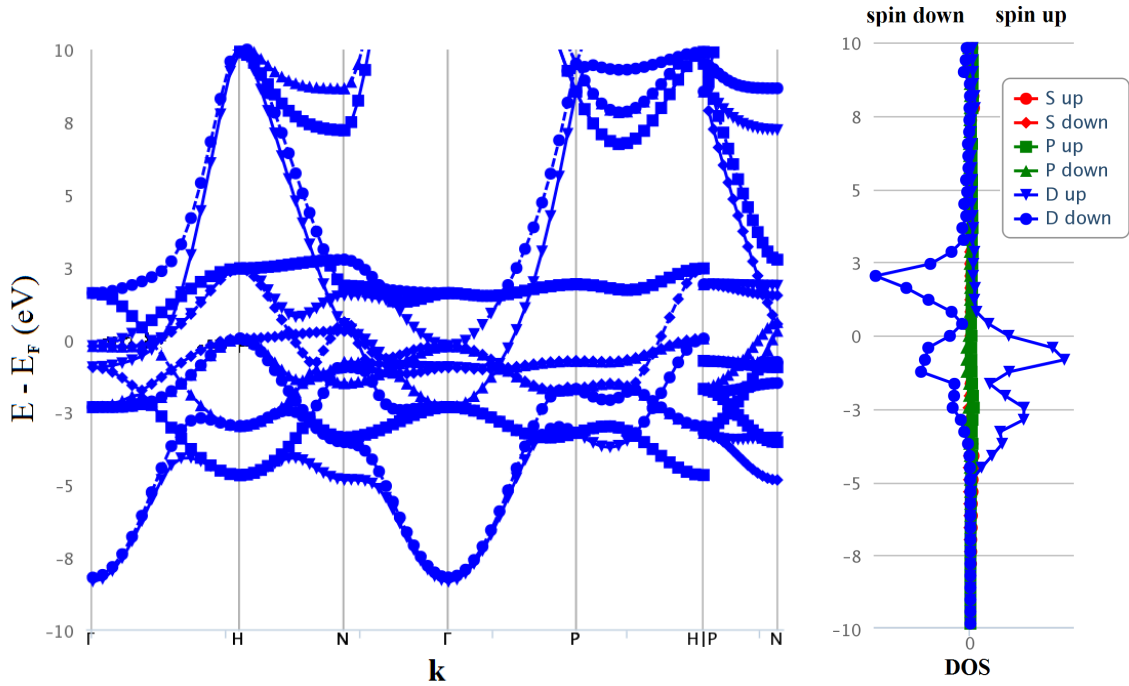
Die obige Beschreibung des atomaren Magnetismus reicht zwar aus den Dia- und den Paramagnetismus zu erklären, um aber Ferromagnetismus zu beschreiben, müssen sich die Momente der einzelnen Atome parallel ausrichten. Neben einer erzwungenen Ausrichtung der Spins über ein externes Feld können sich die Spins unter bestimmten Bedingungen auch spontan ausrichten. Dies geschieht über die Austauschwechselwirkung und wird im folgenden Kapitel eingehend beleuchtet.

### Bandmagnetismus in Festkörpern

Der Magnetismus in Fe, Co und Ni hat seinen Ursprung in den  $3d$ -Elektronen, die delokalisiert sind und miteinander in Wechselwirkung treten. Die parallele Ausrichtung der Spins führt zu einer Absenkung der Gesamtenergie des Systems. Zur Beschreibung des Ferromagnetismus wurden im Laufe der Zeit verschiedene Modelle erarbeitet [24; 25], welche die magnetischen Eigenschaften verschiedener Materialien mehr oder minder gut beschreiben. Eine gute Näherung zur Beschreibung des Magnetismus in Fe, Co und Ni liefert das Stoner-Modell [26], beruhend auf der spinabhängigen Zustandsdichte [27; 28]. Demnach ist das Potential, also auch die Bindungsenergie, welche die Elektronen erfahren, spinabhängig. Dies führt zu einer Aufspaltung der Bandstruktur für *spin up* und *spin down* Elektronen. Dies wiederum begünstigt energetisch eine Spinorientierung - also die parallele Ausrichtung der Spins - die zu einer Magnetisierung führt. Die Voraussetzung, dass es in einem Material zu Ferromagnetismus kommt, ist ein hohes Austauschintegral  $I$  bei gleichzeitig hoher Zustandsdichte der Elektronen an der Fermi-Kante  $D(E_F)$ . Nach dem Stoner-Kriterium tritt Ferromagnetismus auf, wenn gilt:

$$I \cdot D(E_F) > 1 \quad . \quad (2.5)$$

Je nach verwendeter Näherung zur Berechnung der Bandstruktur (z.B. LSDA, LSDA+U oder GGA. Details siehe Kap. 2.4) können die Werte für das magnetische Moment die experimentell ermittelten Werte gut reproduzieren.



**Abbildung 2.1:** Theoretische Bandstruktur von Fe für *spin up* und *spin down* Elektronen [29].

**Abbildung 2.2:** Spinaufgelöste Zustandsdichte für die *s*-, *p*- und *d*-Orbitale.

Abbildung 2.1 zeigt die mit der Gradientennäherung (GGA) berechnete Bandstruktur von Fe [29]. Die einzelnen Symbole stehen für die verschiedenen Orbitale, wobei außerdem zwischen *spin up* und *spin down* bezüglich eines externen B-Feldes unterschieden wird. Ohne auf die Bänder im Einzelnen einzugehen, ist klar zu erkennen, dass an der Fermi-Kante ( $E - E_F = 0$ ) eine hohe Dichte an Zuständen vorherrscht, welche sich im Spin unterscheiden. Abbildung 2.2 zeigt die sich aus der Bandstruktur ergebende Zustandsdichte der einzelnen Orbitale für *spin up* und *spin down*. Wie zu erwarten, sind die meisten Zustände in den *d*-Orbitalen zu finden. Auch ist die energetische Aufspaltung der Zustandsdichte für *spin up* und *spin down* Elektronen klar zu erkennen. Aus der so berechneten Bandstruktur lässt sich auch direkt das magnetische Moment ausrechnen. Für den hier gezeigten Fall ergibt sich ein magnetisches Moment für kubisch raumzentriertes Fe von  $2,33\mu_B/Atom$ . Dies liegt leicht über dem experimentell ermittelten Wert von  $2,216\mu_B/Atom$  [30]. Die experimentell ermittelten Werte für das gesamte atomare magnetische Moment  $\mu$  und den Bahn-Anteil des magnetischen Moments  $\mu_l$  für Fe, Co und Ni sind in der nachfolgenden Tabelle aufgelistet.

	$\mu$ ( $\mu_B/Atom$ )	$\mu_l$ ( $\mu_B/Atom$ )
bcc Fe	2,216	0,0918
hcp Co	1,715	0,1472
fcc Co <sup>a</sup>	$1,8 \pm 0.25$	-
fcc Ni	0,616	0,0507

**Tabelle 2.1:** Magnetische Momente von Fe, Co und Ni. [30; 6], a:[31]

Während die Austauschwechselwirkung der Bandelektronen der Grund für die parallele Ausrichtung der Spins und damit für den Ferromagnetismus in Fe, Co und Ni ist, bewirkt die wesentlich schwächere Spin-Bahn-Wechselwirkung eine Kopplung der atomaren magnetischen Momente an das Kristallgitter und ist Auslöser der magnetokristallinen Anisotropieenergie [6]. Da die oben beschriebenen Näherungen auf der Ladungsdichte der Elektronen basieren, werden auch Effekte, welche durch die Kristallstruktur hervorgerufen werden, berücksichtigt. Auf den Einfluss der Kristallstruktur auf den Magnetismus wird nun im Folgenden eingegangen.

### 2.1.1 Magnetismus in Kristallstrukturen

Genauso wie auf die elektronische Struktur wirkt sich die Symmetrie eines Kristalls auf die magnetischen Eigenschaften aus. Dabei existieren im Kristall Vorzugsrichtungen der Magnetisierung, sogenannte magnetisch leichte Achsen. Die magnetischen Momente im Kristall richten sich so aus, dass die freie Energie minimiert wird. In Abwesenheit eines äußeren Feldes liegt die Magnetisierung des Kristalls entlang dieser Achsen. Der Unterschied in der freien Energie für verschiedene Orientierung der magnetischen Momente im Kristall im Raum wird magnetokristalline Anisotropieenergie (MAE) genannt. Zur Klärung des Ursprungs der magnetokristallinen Anisotropie können die Hamilton-Operatoren der Austausch- und der Spin-Bahn-Wechselwirkung betrachtet werden. Der Hamilton-Operator der Austauschwechselwirkung im Heisenbergmodell ist gegeben als Skalarprodukt zwischen zwei Spinoperatoren  $\mathbf{S}_i$  und  $\mathbf{S}_j$  sowie der Austauschkonstante  $J_{ij}$

$$\mathcal{H}_{ex} = -\frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \quad , \quad (2.6)$$

dieser hängt jedoch nicht von der Magnetisierungsrichtung ab und ist daher isotrop bezüglich der Richtung im Kristall [32]. Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung kann aus Symmetriegründen in kubischen Kristallen ebenfalls nicht zur magnetokristallinen Anisotropie beitragen [33]. Anders sieht es mit der Spin-Bahn-Wechselwirkung aus. Nach längerer Rechnung [32] ergibt sich der Hamilton-Operator für die Spin-Bahn-Wechselwirkung zu

$$\mathcal{H}_{SB} = \xi(r) \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} \quad , \quad (2.7)$$

mit dem Drehimpulsoperator  $\mathbf{L}$  und der vom Abstand zum Atomkern  $r$  abhängigen Spin-Bahn-Kopplungskonstante  $\xi(r)$ . Da die Matrixelemente des Terms  $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$  von der Spinquantisierungsachse abhängen, ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung richtungsabhängig bezüglich des Kristallgitters. Der physikalische Ursprung der magnetokristallinen Anisotropie liegt also in der Spin-Bahn-Kopplung. Da die Orbitale der Elektronen sich entsprechend dem Kristallgitter ausrichten, ist über die Spin-Bahn-Wechselwirkung auch die Orientierung der magnetischen Momente der Spins an das Kristallgitter gekoppelt. Die magnetokristalline Anisotropie ist spezifisch für die Kristallstruktur und kann über die Anisotropiekonstanten beschrieben werden. Diese ergeben sich aus der Entwicklung der Energiedichte  $U$  nach den Richtungskosinussen der Magnetisierungsrichtung relativ zu den Kristallachsen [34]. Für eine kubische Struktur, wie sie z.B. bei kubisch raumzentriertem (bcc) Fe oder kubisch flächenzentriertem (fcc) Ni vorliegt, ergibt sich die folgende Gleichung:

$$U = K_1 \cdot (\alpha^2 \beta^2 + \alpha^2 \gamma^2 + \beta^2 \gamma^2) + K_2 \cdot \alpha^2 \beta^2 \gamma^2 \quad , \quad (2.8)$$

wobei  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  die Komponenten der Magnetisierung entlang der Kristallachsen und  $K_1$  und  $K_2$  die materialspezifischen Anisotropiekonstanten bezeichnen. Für eine hexagonale Kristallstruktur, wie es z.B. der Fall ist für die hexagonal dichteste Kugelpackung (hcp) des Co, berechnet sich die Energie zu

$$U = K_1 \cdot \sin^2 \vartheta - K_2 \cdot \sin^4 \vartheta \quad , \quad (2.9)$$

wobei  $\vartheta$  hier der Winkel der Magnetisierung zur  $c$ -Achse ist. Die Anisotropiekonstanten aus den Gleichungen 2.8 und 2.9 haben keine direkte physikalische Bedeutung, sondern stellen eine phänomenologische Beschreibung des magnetischen Verhaltens dar [23].

	$K_1 (\times 10^4 \frac{J}{m^3})$	$K_2 (\times 10^4 \frac{J}{m^3})$
Fe (bcc)	4,2	1,5
Co (hcp)	41	10
Co (fcc) <sup>a</sup>	-6,3	-10,8
Ni (fcc)	-0,57	-0,23

**Tabelle 2.2:** Anisotropiekonstanten der Übergangsmetalle Fe, Co und Ni bei Raumtemperatur [34], *a*: [35].

Tabelle 2.2 listet die Anisotropiekonstanten für Fe, Co und Ni bei Raumtemperatur auf. Aus diesen Werten lässt sich auch die Richtung der magnetisch leichten, mittelschweren und schweren Achse ableiten, welche in Tab. 2.3 aufgelistet sind.

	leichte Achse	mittelschwere Achse	schwere Achse
Fe (bcc)	$\langle 100 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 111 \rangle$
Co (hcp)	$\langle 1000 \rangle$	-	$\langle 10\bar{1}0 \rangle$
Co (fcc) <sup>a</sup>	$\langle 110 \rangle$	-	-
Ni (fcc)	$\langle 111 \rangle$	$\langle 110 \rangle$	$\langle 100 \rangle$

**Tabelle 2.3:** Richtung der magnetischen Achsen in Fe, Co und Ni bei Raumtemperatur [36] (*a*: gemessen an einer dünnen Co Schicht [37]).

Eine Änderung der Ausrichtung der Magnetisierung bezüglich dieser Achsen führt also zu einer Änderung der Energie des Systems. Inwiefern magneto-optische Messungen, für entlang der verschiedenen Achsen magnetisierte Proben, von dieser Anisotropie beeinflusst werden, wird im Verlauf dieser Arbeit betrachtet.

### 2.1.2 Magnetismus in dünnen Schichten

Neben der intrinsischen Kristallanisotropie, welche charakteristisch für die Materialien selbst ist, existieren noch eine Reihe weiterer Faktoren, die die Magnetisierung einer Probe beeinflussen. Insbesondere in dünnen Schichten, wie sie hier untersucht wurden, können diese Effekte

einen merkbaren Einfluss auf die Messergebnisse ausüben. Um abschätzen zu können wie stark dieser Einfluss auf die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Messungen ist, soll im Folgenden nun auf einige dieser Effekte eingegangen werden.

## Formanisotropie

Die Formanisotropie beschreibt die Anisotropie einer Probe aufgrund ihrer makroskopischen Form. Während die Ursache der kristallinen Anisotropie die Spin-Bahn-Wechselwirkung ist, wird die Formanisotropie durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung hervorgerufen. Anschaulich lässt sich die Formanisotropie einer dünnen Schicht, die für die vorliegende Arbeit die typische Probenform darstellt, durch die Minimierung der freien Energie erklären. Eine Ausrichtung der Magnetisierung in Richtung der Probennormalen führt zu einem Depolarisationsfeld, erzeugt durch den Sprung in der Magnetisierung an der Probengrenze. Dies führt zu einer Erhöhung der Energie in der Form

$$u = \frac{1}{2}\mu_0\mathbf{M}^2 \cdot \sin^2 \vartheta \quad . \quad (2.10)$$

Hier ist  $\vartheta$  der Winkel der Magnetisierung gemessen zur Probenoberfläche. Wenn die magnetisch leichte Achse senkrecht zur Oberfläche der Probe steht, wie es z.B. für hcp Co mit (0001)-Oberfläche der Fall ist, steht die Formanisotropie in Konkurrenz zur magnetokristallinen Anisotropie. In diesem Fall hängt es von der Probendicke ab, ob die Formanisotropie das Magnetfeld in die Probenebene zwingt oder die Kristallanisotropie das Magnetfeld entlang der c-Achse ausrichtet. Im Gegensatz hierzu führt die Formanisotropie bei Fe dazu, dass sich die Magnetisierung in dünnen Filmen entlang der magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Richtungen innerhalb der Probenebene ausrichtet. Allerdings können für sehr dünne Schichten im Bereich weniger Monolagen Grenzflächeneffekte wieder zu einer Ausrichtung der Magnetisierung senkrecht zur Probenoberfläche führen. Dies ist jedoch für die in dieser Arbeit untersuchten Schichten nicht der Fall.

## Andere Formen magnetischer Anisotropie

Zusätzlich zu der magnetokristallinen Anisotropie und der Formanisotropie treten noch weitere Anisotropie-Effekte auf. Diese sind Grenzflächenanisotropie [38], magnetoelastische Anisotropie [33; 39] und Anisotropie hervorgerufen durch Rauigkeit [40].

All die oben beschriebenen Effekte treten selbstverständlich gleichzeitig auf und überlagern sich zu einer gesamten magnetischen Anisotropie. Eine exakte Bestimmung ist daher sehr aufwändig. Bis auf die magnetokristalline Anisotropie und die Formanisotropie beschränken sich die Effekte jedoch auf wenige Atomlagen an den Grenzflächen. Das Hauptaugenmerk liegt in dieser Arbeit auf der magnetokristallinen Anisotropie, welche in den dickeren Proben mit 30 nm Schichtdicke klar dominieren sollte. Für abnehmende Schichtdicke nimmt der Einfluss von Oberflächen- und Rauigkeitseffekten zu. Einflüsse auf die Ergebnisse werden für die jeweiligen Proben gesondert diskutiert (siehe Kap. 4.7, 5.7 und 6.6). An dieser Stelle soll jedoch erwähnt werden, dass es nicht Ziel dieser Arbeit ist, die Anisotropiekonstanten für die untersuchten Proben experimentell zu bestimmen.



## 2.2 Magneto-optische Detektionsmethoden

Für die Untersuchung magnetischer Eigenschaften von Festkörpern stehen diverse Methoden zur Verfügung wie z.B. das *superconducting quantum interference device* (SQUID) [41], die Faradaywaage [42] oder das Vibrationsmagnetometer [43]. Ein Nachteil dieser Methoden besteht darin, dass mit ihnen die Magnetisierung über das gesamte Volumen der Probe integriert gemessen wird. Eine Zuordnung zu bestimmten Regionen der Probe wie Grenzflächen, Oberflächen oder individueller Elementen ist so nicht möglich. Eine sehr effektive Methode, die magnetischen Eigenschaften eines Elements oder eines Systems aus verschiedenen Elementen zu bestimmen, ist die magneto-optische Spektroskopie [6; 7] mit Synchrotronstrahlung. Die Magneto-Optik basiert auf der Wechselwirkung von elektromagnetischer Strahlung mit magnetisierter Materie. Die Untersuchung magnetischer Eigenschaften mit Synchrotronstrahlung bietet dabei einige entscheidende Vorteile, von denen die wichtigsten hier aufgezählt sind:

- Da sich magneto-optische Effekte auf die Wechselwirkung von Photonen mit der Materie in einem lokal beschränkten Bereich beziehen, kann die Probe orts aufgelöst bezüglich ihrer Magnetisierung untersucht werden. Dies umfasst neben mikroskopischen Verfahren z.B. auch magnetische Tiefenprofile, die über die Eindringtiefe des Lichts in der Probe erstellt werden können [44; 45].
- Der breite einsetzbare Energiebereich ermöglicht die Untersuchung der elektronischen und magnetischen Struktur der Proben und erlaubt sogar direkt auf die atomaren magnetischen Eigenschaften der untersuchten Elemente zu schließen und diese quantitativ zu bestimmen [6].
- Wie für die meisten Messmethoden, die den Energiebereich der weichen Röntgenstrahlung nutzen, ermöglicht auch die Reflexionsspektroskopie über die spezifischen Bindungsenergien eine elementselektive Untersuchung der Proben bezüglich ihrer magnetischen Eigenschaften.
- Die Elementselektivität kann genutzt werden, um mittels magneto-optischer Messungen den Einfluss quantenmechanischer Phänomene wie Austausch- und Spin-Bahn-Aufspaltung auf die magnetischen Eigenschaften einer Probe den einzelnen Elementen zuzuordnen. Die magnetischen Spin- und Bahnmomente der *3d*-Übergangsmetalle können beispielsweise mittels Summenregeln aus Absorptionsmessungen an den *2p*-Kanten bestimmt werden. Außerdem können verschiedene theoretische Modelle überprüft werden, indem experimentelle Messungen mit *ab initio* Rechnungen verglichen werden.
- Je nach angewendeter Messgeometrie können die magnetischen Eigenschaften kristalliner Proben bezüglich der Orientierung der Magnetisierung im Kristall untersucht werden, was wiederum Rückschlüsse auf den Einfluss des Kristallfeldes auf die Austausch- und Spin-Bahn-Aufspaltung und die magnetische Anisotropie erlaubt.

Magneto-optische Messungen sind generell in Transmission, Absorption oder Reflexion möglich. Im Rahmen dieser Arbeit wird ausschließlich mit Messungen in Reflexion gearbeitet, wobei der Schwerpunkt auf den *3p*-Kanten der *3d*-Übergangsmetalle Fe, Co und Ni liegt. Dabei ergeben sich einige Unterschiede zwischen den einzelnen Messgeometrien:

In Absorption werden häufig die aus der Probe austretenden Elektronen mittels *total electron yield* (TEY) gemessen. Der so gemessene Strom ist proportional zur Absorption der Probe. Bei den magneto-optischen Absorptionsmessungen mittels TEY ist der experimentelle Aufbau mit

angelegtem äußeren Feld kompliziert, da dieses die aus der Probe austretenden Elektronen beeinflusst. Denn um die Abhängigkeit der magneto-optischen Effekte bezüglich ihrer magnetokristallinen Anisotropie zu untersuchen, muss zwingend ein äußeres Feld angelegt sein, um die Proben entlang der energetisch ungünstigeren mittelschweren und schweren Achsen zu magnetisieren. Auch ist die Informationstiefe bei TEY-Messungen auf wenige Nanometer beschränkt [8].

Transmissionsmessungen haben den Nachteil, dass die Proben auf dünnen Membranen aufgebracht werden müssen. Um eine einkristalline Struktur zu erhalten, ist jedoch ein passendes kristallines Substrat nötig, auf dem die zu untersuchende Schicht epitaktisch aufwachsen kann, was bei den Membranen nicht gegeben ist.

In dieser Arbeit wurde daher auf die Reflexionsspektroskopie zurückgegriffen. Diese Technik hat den Vorteil, dass angelegte Magnetfelder die Messung nicht stören, die Informationstiefe mehrere zehn Nanometer beträgt und das absolute Reflexionsvermögen in dem in dieser Arbeit primär untersuchten Energiebereich der  $3p$ -Kanten mit einigen Prozent um einen Faktor  $10^3$  größer ist als an den  $2p$ -Kanten. Außerdem bieten Reflexionsmessungen den Vorteil, dass nicht nur die Intensität der reflektierten Strahlung magneto-optische Informationen enthält, sondern auch der Polarisationszustand, welcher über eine Polarisationsanalyse gemessen werden kann. Dies bringt einen Zugang zu dem kompletten Satz magneto-optischer Konstanten, was aber nicht Hauptthema dieser Arbeit ist. In dieser Arbeit werden hauptsächlich Intensitätsmessungen betrachtet. Für Reflexionsmessungen müssen Interferenzeffekte besonders berücksichtigt werden. Diese können durch entsprechende Anpassungsrechnungen identifiziert und deren Einfluss auf die magneto-optischen Effekte bestimmt werden. Auch können Interferenzeffekte gezielt in die Messmethoden mit einbezogen werden [46].

Messgeometrien der Magneto-Optischen Reflexionsspektroskopie					
Messgeometrie					
Effekt	<b>XMCD</b>	<b>T-MOKE</b>	<b>L-MOKE</b>	<b>P-MOKE</b>	<b>XMLD</b>
benötigte Polarisation	zirkular	linear: p-pol.	linear: p-pol. , s-pol.		
Detektionsmethode	Intensitätsmessung		Polarisationsanalyse		Intensitätsmessung
proportional zu	<b>M</b>				<b>M<sup>2</sup></b>

Abbildung 2.3: Übersicht über verschiedene in Reflexion gemessene magneto-optische Effekte.

Abbildung 2.3 zeigt typische Messgeometrien in Reflexion. In dieser Arbeit wurde der Einfluss der kristallinen Anisotropie auf T-MOKE, L-MOKE und den XMLD untersucht. In den folgenden Abschnitten wird nach einer allgemeinen Einleitung zur Wechselwirkung elektromagnetischer Wellen mit magnetisierter Materie im Detail auf die einzelnen Effekte eingegangen, dabei wird immer davon ausgegangen, dass sich die magnetisierten Proben in Sättigung befinden.

## 2.2.1 Elektromagnetische Strahlung & magnetisierte Materie

Um die Wechselwirkung magnetischer Materie mit elektromagnetischer Strahlung zu verstehen, soll hier zunächst ein kurzer Abriss über die Beschreibung elektromagnetischer Wellen im Allgemeinen erfolgen. Die Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle wird beschrieben durch die Maxwell-Gleichungen

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad , \quad (2.11a)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad , \quad (2.11b)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad , \quad (2.11c)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \cdot \mathbf{j} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad . \quad (2.11d)$$

$\mathbf{E}$  und  $\mathbf{B}$  sind die elektrische bzw. die magnetische Komponente des elektrischen Feldes,  $\rho$  ist die Ladungsdichte und  $\mathbf{j}$  die Stromdichte (siehe z.B. [47; 48]). Die magnetische Flussdichte  $\mathbf{B}$  und das elektrische Feld  $\mathbf{E}$  lassen sich über die magnetische Feldstärke  $\mathbf{H}$  bzw. die dielektrische Verschiebungsdichte  $\mathbf{D}$  ausdrücken als

$$\mathbf{B} = \mu_0(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad , \quad (2.12)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\epsilon_0}(\mathbf{D} - \mathbf{P}) \quad . \quad (2.13)$$

Hierbei sind  $\mathbf{M}$  und  $\mathbf{P}$  die Magnetisierung bzw. die Polarisation des umgebenden Materials. An dieser Stelle lässt sich bereits erkennen, dass die elektrischen und magnetischen Eigenschaften eines Materials die Ausbreitung der Welle erheblich beeinflussen können. Im Vakuum verschwindet die Ladungsträgerdichte und die Stromdichte. Über die Maxwell-Gleichungen ergibt sich so eine sich selbst erhaltende elektromagnetische Welle, die sich geradlinig ausbreitet, bestehend aus einem sinusförmig alternierenden elektrischen und magnetischen Anteil. Für den Spezialfall einer sich in z-Richtung ausbreitenden Welle lassen sich die Komponenten des elektrischen und magnetischen Anteils schreiben als

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cdot e^{i(\omega t - kz)} \quad , \quad (2.14)$$

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}_0 \cdot e^{i(\omega t - kz)} \quad . \quad (2.15)$$

Dabei sind  $\mathbf{E}_0$  und  $\mathbf{B}_0$  die Amplituden des elektrischen Feldes bzw. der magnetischen Flussdichte,  $\omega$  ist die Kreisfrequenz der Welle und  $k$  die Wellenzahl. Im Vakuum sind die beiden Komponenten  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{B}$  in Phase und stehen senkrecht auf der Ausbreitungsrichtung. In nichtleitenden Materialien führt der elektrische bzw. magnetische Anteil der Welle zu einer elektrischen bzw. magnetischen Polarisation [47]. In leitenden Materialien ändert sich dies. Da hier die Elektronen im Leitungsband frei beweglich sind, reagieren sie stark auf die Anwesenheit der elektrischen Feldkomponente der Lichtwelle. Die beschleunigten Elektronen erzeugen ihrerseits wiederum ein elektrisches Feld. Dies führt dazu, dass z.B. in Metallen die Absorption und das Reflexionsvermögen stark erhöht sind. Diese Effekte werden mit steigender Photonenenergie wieder schwächer. Während Metalle im sichtbaren Bereich noch nahezu 100% des einfallenden Lichts reflektieren, fällt dieser Wert beim Überschreiten der Plasmafrequenz, die für Metalle schon im UV-Bereich liegt, rapide ab [49].

Für die Ausbreitung von Licht in einem Medium lässt sich das Verhalten der elektromagnetischen Welle über die Wellenzahl beschreiben. Diese ist über die Dispersionsrelation

$$k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon(\omega)} \quad (2.16)$$

abhängig von der komplexen Permittivität des umgebenden Mediums, welches selbst wieder von der Frequenz  $\omega$  des Lichts abhängt.  $c$  ist hier die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Häufig wird aber anstatt der Wellenzahl der komplexe Brechungsindex  $n$  angegeben. Dieser schreibt sich als

$$n = n' + in'' \quad , \quad (2.17)$$

mit dem Realteil  $n'$ , welcher die Brechung beschreibt und dem die Dämpfung oder Absorption beschreibenden Imaginärteil  $n''$ . In der Röntgenoptik liegt der Realteil des Brechungsindex nahe an 1, daher wird Gleichung 2.17 normalerweise umgeschrieben zu [50]

$$n = 1 - \delta_0 + i\beta_0 \quad . \quad (2.18)$$

Hierbei entspricht  $1 - \delta_0$  dem Realteil  $n'$  und  $\beta_0$  dem Imaginärteil  $n''$ . Die Angabe der optischen Konstanten als komplexer Brechungsindex wird vor allem für Anpassungsrechnungen genutzt, welche auf den Fresnel'schen Gleichungen beruhen (siehe Kap. 2.3). Für *ab initio* Rechnungen hingegen wird normalerweise die Permittivität  $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$  oder die Leitfähigkeit  $\sigma = \sigma' + i\sigma''$  genutzt [50].

Die genannten Größen stehen in folgender Beziehung:

	Brechungsindex	Permittivität	Leitfähigkeit
<b>Realteil</b>	$n' = \sqrt{\frac{\epsilon' + \sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2}}{2}}$	$\epsilon' = 1 - \frac{\sigma''}{\omega\epsilon_0}$ $\epsilon' = n'^2 - n''^2$	$\sigma' = \omega\epsilon_0\epsilon''$
<b>Imaginärteil</b>	$n'' = \sqrt{\frac{-\epsilon' + \sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2}}{2}}$	$\epsilon'' = \frac{\sigma'}{\omega\epsilon_0}$ $\epsilon'' = 2n'n''$	$\sigma'' = -\omega\epsilon_0(\epsilon' - 1)$

**Tabelle 2.4:** Zusammenhänge der optischen Konstanten [50].

Mit diesen Größen lässt sich nun die Wechselwirkung einer elektromagnetischen Welle mit einem beliebigen Medium beschreiben. Um die Polarisationsabhängigkeit verschiedener Geometrien aufzunehmen, eignet sich eine sehr anschauliche Formulierung der elastischen Dipol-Streuung von polarisiertem Licht an magnetisierter Materie nach J. P. Hannon et al. [51]:

$$f = (\mathbf{e}' \cdot \mathbf{e})F_0 - i(\mathbf{e}' \times \mathbf{e}) \cdot \mathbf{M} F_1 + (\mathbf{e}' \cdot \mathbf{M})(\mathbf{e} \cdot \mathbf{M})F_2 \quad . \quad (2.19)$$

Die Streuamplitude  $f$  hängt ab von der Richtung des einfallenden und reflektierten E-Feld-Vektors des Lichts, bezeichnet durch die Einheitsvektoren  $\mathbf{e}$  und  $\mathbf{e}'$ , der Magnetisierung der Probe  $\mathbf{M}$  und den Gewichtungsfaktoren  $F_0$ ,  $F_1$  und  $F_2$ . Die letzteren beschreiben die elektronischen Dipolübergänge und sind detailliert in Referenz [51] beschrieben. In Gleichung 2.19 beschreibt der erste Term den Ladungsbeitrag, der unabhängig ist von der Magnetisierung. Im zweiten Term gehen Effekte ein, die linear - oder ungerade - mit der Magnetisierung variieren, und im dritten Term wird der Einfluss der quadratischen - oder geraden - Effekte beschrieben.

Die Streuamplitude nach Hannon (Gl. 2.19) zeigt in einer sehr intuitiven Weise den Zusammenhang zwischen der Messgeometrie und der Stärke der magneto-optischen Effekte, kann allerdings nicht direkt experimentell gemessen werden. Stattdessen wird die von der Probe reflektierte Intensität  $I_R$  gemessen, die über die einfache Beziehung

$$I_R = I_0 \cdot R \quad (2.20)$$

mit der Intensität des einfallenden Lichtstrahls  $I_0$  und dem Reflexionsvermögen der Probe  $R$  verknüpft ist. Die Intensität der elektromagnetischen Welle ergibt sich aus der elektrischen Feldstärke nach der Gleichung [52]

$$I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E_0^2 \quad , \quad (2.21)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , der Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_0$  und der Amplitude des elektrischen Feldes  $E_0$ . Hier zeigt sich auch das bekannte Problem, dass die Phaseninformation bei der Messung verloren geht. Eine Möglichkeit, dennoch an die Phaseninformation zu gelangen, ist in Kap. 2.2.4 beschrieben. Wie schon zuvor in diesem Kapitel erwähnt, hängt das Reflexionsvermögen von der Orientierung des E-Feld-Vektors ab. Der E-Feld-Vektor des reflektierten Lichts ergibt sich dann aus der Reflexionsmatrix und dem E-Feld-Vektor des einfallenden Lichts:

$$\mathbf{E}' = \begin{pmatrix} r_{xx} & r_{xy} & r_{xz} \\ r_{yx} & r_{yy} & r_{yz} \\ r_{zx} & r_{zy} & r_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \\ E_{z0} \end{pmatrix} \quad . \quad (2.22)$$

Die Reflexionsmatrix vereinfacht sich für bestimmte Geometrien. Für eine linear polarisierte Welle mit Ausbreitung in z-Richtung ergibt sich das Reflexionsvermögen zu (siehe z.B [52])

$$\left( \frac{E_0}{E_R} \right)_{\perp} = r_{\perp} = \frac{\frac{n_1 \cos \theta_i}{\mu_1} - \frac{n_2 \cos \theta_t}{\mu_2}}{\frac{n_1 \cos \theta_i}{\mu_1} + \frac{n_2 \cos \theta_t}{\mu_2}} \quad \text{und} \quad (2.23a)$$

$$\left( \frac{E_0}{E_R} \right)_{\parallel} = r_{\parallel} = \frac{\frac{n_2 \cos \theta_i}{\mu_2} - \frac{n_1 \cos \theta_t}{\mu_1}}{\frac{n_2 \cos \theta_i}{\mu_2} + \frac{n_1 \cos \theta_t}{\mu_1}} \quad , \quad (2.23b)$$

hierbei ist  $n$  der komplexe Brechungsindex und  $\mu$  die Permeabilität. Die Indizes ordnen die Konstanten den Medien links und rechts der Grenzfläche zu. Wie die vereinfachten Reflexionsmatrizen für die jeweiligen magneto-optischen Effekte aussehen, wird in den Kapiteln 2.2.2 - 2.2.5 im Einzelnen erläutert.

Abschließend sollen nun noch die Stokes'schen Parameter eingeführt werden, da sie in einigen in dieser Arbeit verwendeten Gleichungen vorkommen. Die im Jahr 1852 von G. G. Stokes entwickelten Parameter erlauben es den Polarisationszustand von elektromagnetischen Wellen in einer sehr überschaubaren Weise zu beschreiben [52; 53]. Dieser Ansatz hat den Vorteil, dass sich mit ihm unter Verwendung der Müller-Matrix [54] sehr einfach die optischen Eigenschaften eines Materials oder einer optischen Komponente darstellen lassen. Die vier Stokes'schen Parameter werden dabei häufig in der Vektorschreibweise

$$\begin{bmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} \quad (2.24)$$

angegeben. In einem kartesischen Koordinatensystem mit Ausbreitungsrichtung  $z$  gibt der Parameter  $S_0$  die Gesamtintensität des Lichts an. Der Parameter  $S_1$  beschreibt den Grad der linearen Polarisation parallel zur x- und y-Achse des Koordinatensystems,  $S_2$  beschreibt analog den um  $45^\circ$  hierzu gedrehten linearen Polarisationsgrad und  $S_3$  gibt den Grad der zirkularen Polarisation an. Die Stokes'schen Parameter sind über die folgenden Beziehungen mit dem elektrischen Feld des Lichts verknüpft:

$$S_0 = E_{0x}^2 + E_{0y}^2 \quad , \quad (2.25a)$$

$$S_1 = (E_{0x}^2 - E_{0y}^2) / S_0 \quad , \quad (2.25b)$$

$$S_2 = 2 \cdot E_{0x} E_{0y} \cdot \cos \Delta\phi / S_0 \quad , \quad (2.25c)$$

$$S_3 = 2 \cdot E_{0x} E_{0y} \cdot \sin \Delta\phi / S_0 \quad . \quad (2.25d)$$

Hierbei sind  $E_{0x}$  und  $E_{0y}$  die Amplituden der Komponenten des elektrischen Feldes in x-Richtung bzw. in y-Richtung und  $\Delta\phi$  der Phasenversatz der beiden Komponenten zueinander. Die Stokes'schen Parameter  $S_1$ ,  $S_2$  und  $S_3$  sind auf die Gesamtintensität  $S_0$  normiert. Für vollständig polarisiertes Licht kann der Grad der Polarisation aus den Stokes'schen Parametern berechnet werden zu

$$1 = S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 \quad . \quad (2.26)$$

Für vollständig polarisiertes Licht kann so der Polarisationsgrad exakt bestimmt werden, wenn zwei der drei Parameter bekannt sind.

Bisher ist die Magnetisierung der Probe noch nicht berücksichtigt worden. Um nun den Einfluss einer Magnetisierung mit einzubeziehen, kann Gleichung 2.18 ergänzt werden. Dabei werden der Realteil und der Imaginärteil um einen zusätzlichen Term erweitert. Je nach Richtung der Magnetisierung wird dieser Zusatzterm addiert bzw. subtrahiert. Somit besitzt das Material je nach Magnetisierung unterschiedliche optische Eigenschaften. Der komplexe Brechungsindex ergibt sich auf diese Weise zu

$$n_{\pm} = 1 - (\delta_0 \pm \Delta\delta) + i(\beta_0 \pm \Delta\beta) \quad . \quad (2.27)$$

Die Darstellung der Permittivität und der Leitfähigkeit ergibt sich analog (siehe Tab. 2.4). Die durch die Magnetisierung hervorgerufene Änderung der optischen Konstanten eines Materials wirkt sich sowohl auf die Reflexion als auch auf die Transmission und Absorption aus. Diese Darstellung ist insbesondere für die Anpassungsrechnungen wichtig. Durch Einsetzen dieses modifizierten Brechungsindex z.B. in die Fresnel'schen Gleichungen (Gl. 2.23b und 2.23a) können magneto-optische Effekte auf einfache Weise berechnet werden.

## Resonante Anregungsprozesse mit polarisiertem Licht

Bisher wurden nur die makroskopischen Auswirkungen der Wechselwirkung von Licht und Materie betrachtet. Im Folgenden sollen jetzt die auf atomarer Ebene stattfindenden Prozesse diskutiert werden. Die in dieser Arbeit verwendeten Spektroskopiemethoden basieren auf der Nutzung von Synchrotronstrahlung im extremen Ultraviolett (EUV) und im Bereich der weichen Röntgenstrahlung. Da in diesem Energiebereich von  $10\text{ eV} - 1000\text{ eV}$  die freien Ladungsträger in den Metallen nur eine untergeordnete Rolle spielen und die eigentliche Wechselwirkung zwischen den Photonen und den Elektronen der Rumpfstände stattfindet, macht es Sinn, sich Gedanken über die Wirkungsquerschnitte der verschieden stark gebundenen Elektronen zu machen. Dabei sind vor allem die Übergangswahrscheinlichkeiten und die Auswahlregeln von Interesse. Generell lässt sich die Übergangswahrscheinlichkeit eines Elektrons über die Gleichung [6]

$$T_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle f | \mathcal{H} | i \rangle + \frac{\langle f | \mathcal{H} | n \rangle \langle n | \mathcal{H} | i \rangle}{\epsilon_i - \epsilon_n} \right|^2 \delta(\epsilon_i - \epsilon_f) \rho(\epsilon_f) \quad (2.28)$$

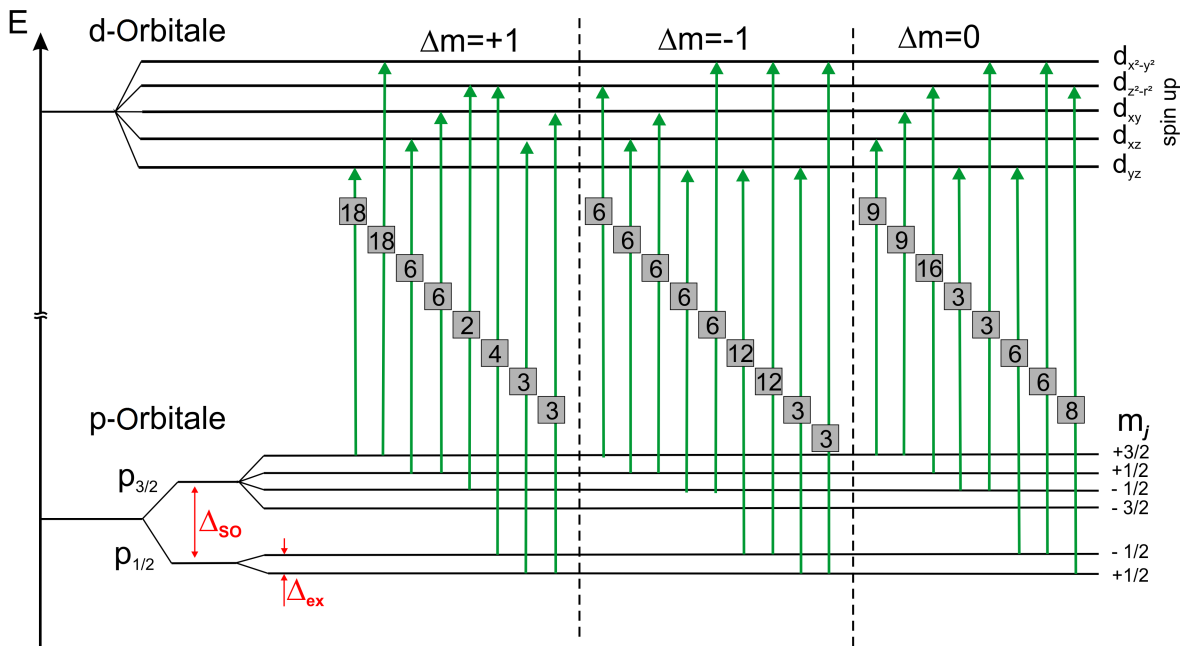
beschreiben. Dabei ist der erste Term aus Gleichung 2.28 bekannt unter dem Namen „Fermis goldene Regel“ [55]. Er wurde 1927 hergeleitet von Dirac [56] und beschreibt den Übergang von einem Grundzustand  $|i\rangle$  in einen angeregten Zustand oder Endzustand  $|f\rangle$  unter Einfluss des elektrischen Felds eines Photons.  $\mathcal{H}$  ist der Hamilton-Operator, welcher die Wechselwirkung zwischen dem Elektron und dem elektrischen Feld des Photons enthält,  $\epsilon_i$  und  $\epsilon_f$  sind die Energien des Grundzustandes und des angeregten Zustandes und  $\rho(\epsilon_f)$  beschreibt die Zustandsdichte des Endzustandes. Absorption ist ein Prozess erster Ordnung, also ohne Zwischenzustände, da es hier nur einen Anfangs- und einen Endzustand gibt und wird vom ersten Term beschrieben. Beim zweiten Term in Gleichung 2.28, bekannt als Kramers-Heisenberg Relation [57], handelt es sich um einen Prozess 2. Ordnung. Dieser beschreibt den Übergang von einem Anfangszustand in einen Endzustand über einen Zwischenzustand  $|n\rangle$ . Dies ist z.B. der Fall für spekulär reflektierte Photonen. Normiert man die Übergangswahrscheinlichkeit auf den Photonenfluss und wendet die Dipolnäherung für den E-Feld-Vektor an, erhält man nach wenigen Rechenschritten den Wirkungsquerschnitt für Absorption [6]

$$\sigma_A = 4\pi^2 \alpha_f \hbar \omega |\langle f | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | i \rangle|^2 \delta(\hbar\omega - \Delta E_A) \rho(E_f) \quad (2.29)$$

und den differentiellen Wirkungsquerschnitt für gestreute, also auch reflektierte, Photonen

$$\frac{\delta\sigma_S}{\delta\Omega} = \frac{\hbar^2 \omega^4 \alpha_f^2}{c^2} \left| \frac{\langle i | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e}^* | n \rangle \langle n | \mathbf{r} \cdot \mathbf{e} | i \rangle}{(\hbar\omega - \Delta E_S) + i(\Delta_n/2)} \right|^2, \quad (2.30)$$

welcher die Wahrscheinlichkeit angibt, ein gestreutes Photon in einem bestimmten Raumwinkel zu detektieren. In den Gleichungen 2.29 und 2.30 ist  $\omega$  die Kreisfrequenz des einfallenden Photons,  $\mathbf{e}$  und  $\mathbf{e}'$  bezeichnen die Einheitsvektoren der Polarisation des einfallenden bzw. gestreuten Photons,  $\alpha_f$  ist die Feinstrukturkonstante,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $\mathbf{r}$  der Ortsvektor des Elektrons. Die bei Streuung und Absorption beteiligten Zustände sind der Anfangszustand  $|i\rangle$ , der unbesetzte Endzustand  $|f\rangle$  mit der Energiedichte  $\rho(E_f)$  und ein Zwischenzustand  $|n\rangle$ . Bei der Absorption (Gl. 2.29) wird das Elektron von Zustand  $|i\rangle$  in Zustand  $|f\rangle$  angeregt, für die Streuung wird das Elektron von Zustand  $|i\rangle$  in einen Zwischenzustand  $|n\rangle$  angeregt und endet nach Emission des gestreuten Photons wieder in Zustand  $|i\rangle$ . In Gl. 2.30 wird hier von nur einem einzelnen Zwischenzustand ausgegangen.  $\Delta E_A$  bezeichnet die Energiedifferenz der Zustände  $|i\rangle$  und  $|f\rangle$ ,  $\Delta E_S$  die Energiedifferenz der Zustände  $|i\rangle$  und  $|n\rangle$  und  $\Delta_n$  die Halbwertsbreite der Energieverteilung des Zwischenzustandes.



**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung der  $p \rightarrow d$  Übergänge. Die  $p$ -Zustände sind Spin-Bahn-aufgespalten und die Entartung der insgesamt sechs  $p_{1/2}$  und  $p_{3/2}$ -Zustände ist durch die Austauschpaltung ( $\Delta_{ex}$ ) aufgehoben. Die den Übergängen zugeordneten Zahlen geben die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten an (entnommen aus Referenz [6]).

Die Wahrscheinlichkeit der elektronischen Übergänge und somit die Stärke der spektralen Strukturen in Absorptions- bzw. Reflexionsspektren lässt sich mittels der Übergangsmatrixelemente aus den Gleichungen 2.29 und 2.30 bestimmen. Dabei spielen nicht nur der Anfangs- und der Endzustand eine entscheidende Rolle, sondern auch der polarisationsabhängigen Dipoloperator  $\mathbf{e} \cdot \mathbf{r}$  und im Fall der Streuung auch  $\mathbf{e}' \cdot \mathbf{r}$ . Ein Beispiel für verschiedene Übergangswahrscheinlichkeiten für  $p \rightarrow d$  Übergänge ist in Abb. 2.4 dargestellt. Die Übergangsmatrixelemente liefern zudem nach längerer Rechnung [6] die Auswahlregeln für erlaubte elektronische Dipol-Übergänge. Die Auswahlregeln spielen für das Verständnis und die Interpretation magneto-optischer Effekte eine wichtige Rolle. Bei der Betrachtung der Auswahlregeln kommt auch die Magnetisierung des Materials ins Spiel [6]. Generell gilt für den Übergang



eines Elektrons von einem Zustand in einen anderen, dass der Spin und der Bahndrehimpuls Erhaltungsgrößen sind. Ein Spinübertrag bei der Anregung eines Elektrons durch die Dipolstrahlung eines Photons findet nicht statt, allerdings wird ein Bahndrehimpuls übertragen. Es lassen sich folgende Auswahlregeln ableiten:

$$\Delta s = 0 \quad , \quad (2.31a)$$

$$\Delta l = \pm 1 \quad , \quad (2.31b)$$

$$\Delta m = 0, \pm 1 \quad , \quad (2.31c)$$

mit der Spinquantenzahl  $s$ , der Drehimpulsquantenzahl  $l$  und der magnetischen Quantenzahl  $m$ . Der Drehimpuls des Photons ist für zirkuläre Polarisation  $\pm 1$ , wobei das Vorzeichen die Helizität angibt, und für lineare Polarisation 0. Je nach Orientierung des Magnetfeldes zum elektrischen Feld des Photons gibt es verschiedene Überträge der magnetischen Quantenzahl. In den Abschnitten 2.2.2 – 2.2.5 wird gesondert darauf eingegangen.

### Spin-Bahn- und Austauschspaltung

Streng genommen gelten die obigen Überlegungen nur für einzelne Atome. Durch geeignete Näherungen, auf die hier nicht näher eingegangen werden soll, können die Wellenfunktionen der atomaren elektronischen Zustände  $|i\rangle$ ,  $|f\rangle$  und  $|n\rangle$  aber auf Zustände für im Festkörper gebundene Atome übertragen werden [6]. Die wichtigsten Unterschiede für ein im Festkörper gebundenes Atom sind dabei folgende:

Die elektronischen Wellenfunktionen werden vom Kristallfeld beeinflusst. Dies bedeutet z.B. für die  $3d$ -Orbitale, dass diese sich in die  $e_g$ - und die  $t_{2g}$ -Zustände aufspalten. Des Weiteren sind in Fe, Co und Ni durch die Austauschspaltung die Zustände im Valenzband für *spin up* und *spin down* energetisch verschoben, so dass sich ein Ungleichgewicht von unbesetzten *spin up* und *spin down* Zuständen ergibt (siehe auch Kap. 2.1). Außerdem sind auch die Rump fzustände durch die Spin-Bahn-Kopplung ( $\Delta_{SO}$ ) aufgespalten in z.B.  $2p_{1/2}$  und  $2p_{3/2}$  oder  $3p_{1/2}$  und  $3p_{3/2}$ . Diese sind wiederum durch die Austauschwechselwirkung ( $\Delta_{ex}$ ) aufgespalten, so dass sich sechs energetisch unterscheidbare  $p$ -Rump fzustände ergeben.

In dieser Arbeit werden Übergänge von den  $2p$ - und den  $3p$ -Rump fzuständen in das Leitungsband betrachtet. Für die theoretischen Modelle ist vor allem von Interesse, dass sich die  $2p$ - und die  $3p$ -Zustände in folgenden Punkten stark unterscheiden: Die Spin-Bahn-Kopplung der  $2p$ -Zustände beträgt für Fe, Co und Ni ca. 15 eV und ist damit deutlich größer als die Austauschspaltung von wenigen 100 meV, während die Spin-Bahn-Aufspaltung der  $3p$ -Zustände nur in etwa 3 eV beträgt und somit ähnlich groß ist wie die Austauschspaltung der  $3p$ -Zustände von teilweise über 1 eV. Dies führt dazu, dass, obwohl die Auswahlregeln für die  $3p \rightarrow 3d$  und die  $2p \rightarrow 3d$  Übergänge identisch sind, die gemessenen Spektren sich stark voneinander unterscheiden. Während die  $2p \rightarrow 3d$  Übergänge klar den  $2p_{1/2}$  und den  $2p_{3/2}$ -Zuständen zugeordnet werden können, überlappen sich die Spektren der  $3p_{1/2}$ - und der  $3p_{3/2}$ -Niveaus bei den  $3p \rightarrow 3d$  Übergängen.

Die Spin-Bahn- und die Austauschspaltung ( $\Delta_{SO}$  und  $\Delta_{ex}$ ) sind in Abb. 2.4 schematisch dargestellt. Wie zuvor erwähnt werden die erlaubten Übergänge durch die Auswahlregeln (siehe Gleichungen 2.31a, 2.31b und 2.31c) bestimmt (siehe Abb. 2.4). Die Wahrscheinlichkeiten der Übergänge ergeben sich aus den Übergangsmatrixelementen aus Gleichung 2.29

[6]. Durch geschickte Wahl der Messgeometrie können somit gezielt elektronische und magnetische Informationen über eine Probe gesammelt werden. Dabei wird ausgenutzt, dass die möglichen elektronischen Übergänge von der Richtung der Magnetisierung abhängen. Die Differenzspektren zweier Messungen mit unterschiedlicher Magnetisierung können Aufschluss über die magneto-optischen Konstanten eines Materials oder auch die Zustandsdichte der beteiligten Bänder geben. Eine ausführliche Beschreibung der verschiedenen Messgeometrien erfolgt in den Kapiteln 2.2.2 bis 2.2.5.

## Summenregeln

Der Vollständigkeit halber seien hier die für absorptionsspektroskopische Untersuchungen wichtigen Summenregeln genannt. Mit den Summenregeln können die gesamte Zustandsdichte unbesetzter Zustände sowie das magnetische Moment des Atoms, aufgeteilt in Spin- und Bahnmoment, bestimmt werden. Die Summenregeln sind ein effektives Instrument zur Bestimmung atomarer magnetischer Momente. Die magneto-optischen Summenregeln basieren dabei auf folgendem Prinzip:

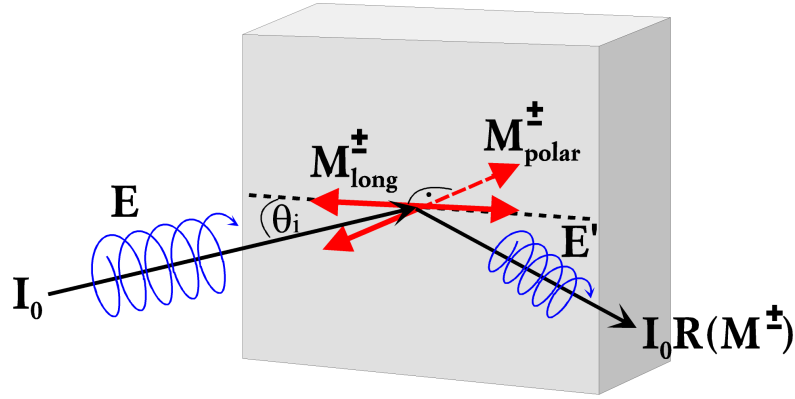
Die gesamte Intensität gemessen in Absorption integriert über die  $2p_{1/2}$ - und die  $2p_{3/2}$ -Kante ist direkt proportional zu der Zahl aller unbesetzten Zustände. Dies sind im Fall der  $3d$ -Übergangsmetalle überwiegend die  $3d$ -Zustände [58], so dass  $p \rightarrow s$  Übergänge vernachlässigt werden können. Zur Bestimmung des Spin-Anteils  $\mu_s$  und des Bahn-Anteils  $\mu_l$  wird die XMCD-Asymmetrie an den  $1/2$ - und  $3/2$ -Kanten gesondert betrachtet [59; 60; 61]. Auch für XMLD gab es den Versuch Summenregeln zu entwickeln [62; 63], welche auf einem ähnlichen Prinzip beruhen. Diese sind jedoch fraglich in der Anwendung, da wichtige Größen vernachlässigt werden.

Für die in dieser Arbeit durchgeführten Reflexionsmessungen sind die Summenregeln jedoch nicht anwendbar, da sich die in Reflexion gemessenen Spektren stark von in Absorption gemessenen Spektren unterscheiden. Zudem können in der Reflexionsspektroskopie starke Interferenzerscheinungen an den  $2p$ -Kanten auftreten wie in Kap. 4.6 gezeigt werden wird. Im Folgenden sollen nun einige magneto-optische Effekte näher betrachtet werden.

### 2.2.2 XMCD in Reflexion

Der magnetische Röntgen-Zirkulardichroismus (XMCD) ist eine seit vielen Jahren etablierte Technik um magnetische Eigenschaften von Materialien zu bestimmen [64; 61]. Obwohl im Rahmen dieser Arbeit keine systematischen XMCD-Messungen durchgeführt wurden, soll das Prinzip der XMCD-Messungen hier dennoch der Vollständigkeit halber vorgestellt werden. Wie bei allen magneto-optischen Effekten im weichen Röntgenbereich werden für XMCD-Experimente die verschiedenen von der Probenmagnetisierung abhängigen Übergangswahrscheinlichkeiten für Elektronen aus den Rumpfstufen in Leitungsbandzustände ausgenutzt. Wie dem Namen zu entnehmen ist, wird für die Messungen zirkular polarisiertes Licht verwendet. Entscheidend in der Messgeometrie ist die parallele / antiparallele Ausrichtung des Magnetfeldes zur Ausbreitungsrichtung des Lichts, also des  $k$ -Vektors. Abbildung 2.5 zeigt die Messgeometrie für XMCD-Messungen in Reflexion.

Für XMCD-Messungen gibt es zwei typische Geometrien, in denen die Probe magnetisiert wird. Zum Einen mit der Probenmagnetisierung in der Probenoberfläche, ähnlich wie für



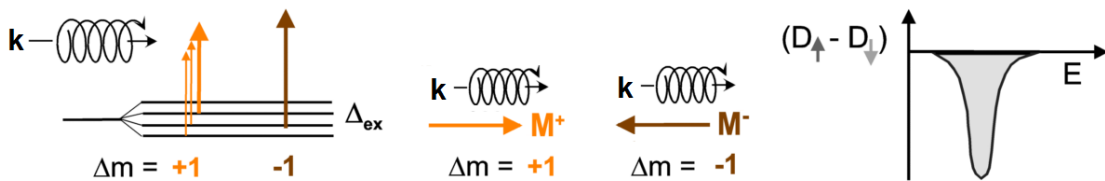
**Abbildung 2.5:** Prinzip einer XMCD-Messung. Das Reflexionsvermögen der Probe hängt ab von der Ausrichtung der Probenmagnetisierung zur Lichtausbreitungsrichtung.

den longitudinalen magneto-optischen Kerr Effekt (L-MOKE) (siehe Kap. 2.2.4). Und zum Anderen mit der Magnetisierung der Probe senkrecht zur Probenoberfläche, entsprechend der Geometrie des polaren magneto-optischen Kerr-Effekts (P-MOKE) (siehe Kap. 2.2.4).

Für die elektronischen Übergänge in die Leitungsbandzustände gelten die Auswahlregeln  $\Delta m = \pm 1$  wobei gilt:  $\Delta m = +1$  für Übergänge mit paralleler Ausrichtung von  $\mathbf{M}$  und  $\mathbf{k}$ , und  $\Delta m = -1$  für antiparallele Ausrichtung von  $\mathbf{M}$  und  $\mathbf{k}$ , siehe Abb. 2.6. Die experimentelle Größe zur quantitativen Beschreibung des XMCD ist die Asymmetrie

$$A_{XMCD} = \frac{R(M^+) - R(M^-)}{R(M^+) + R(M^-)} \quad (2.32)$$

Die Differenz aus zwei Spektren mit entgegengesetzter Magnetisierung, oder aber entgegengesetzter Helizität, liefert direkte Informationen über die Differenz der Zustandsdichten  $D \uparrow$  und  $D \downarrow$  im Leitungsband für Spin  $s = +1/2$  und  $s = -1/2$  [65].

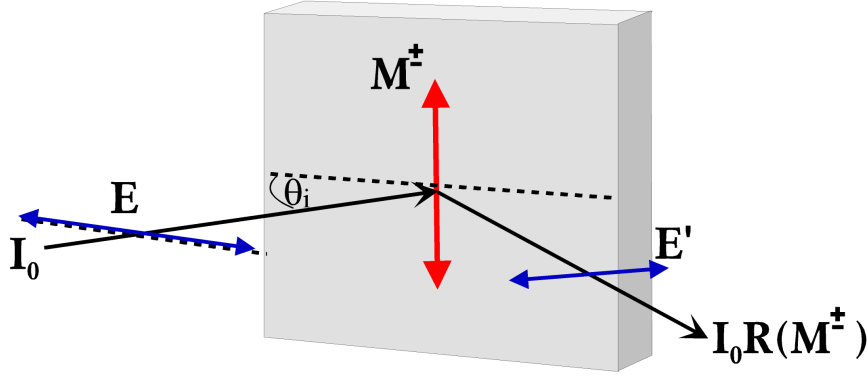


**Abbildung 2.6:** Schematische Darstellung der erlaubten Elektronenübergänge für XMCD

Ein großer Vorteil von XMCD-Messungen ist, dass über die Summenregeln direkt auf das atomare magnetische Spinnmoment und Bahnmoment geschlossen werden kann, siehe Kapitel 2.2.1. Da diese allerdings für die Absorptionsspektroskopie entwickelt wurden, können sie in der vorliegenden Arbeit, in welcher ausschließlich Reflexionsspektroskopie genutzt wird, nicht zur Anwendung kommen. In dieser Arbeit wird XMCD genutzt, um Informationen über das Magnetisierungsverhalten der Proben durch magneto-optische Hysteresemessungen zu erhalten.

### 2.2.3 T-MOKE

Der transversale magneto-optische Kerr-Effekt (T-MOKE) wird mit linear p-polarisiertem Licht gemessen. Abhängig von der Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Einfallsebene wirkt sich der T-MOKE auf das Reflexionsvermögen einer magnetischen Probe aus. Der T-MOKE wird daher, wie auch der XMCD, als Intensitätsunterschied des reflektierten Lichts für zwei entgegen gerichtete Probenmagnetisierungen gemessen.



**Abbildung 2.7:** Prinzip einer T-MOKE-Messung. Das einfallende linear p-polarisierte Licht wird je nach Ausrichtung der zur Einfallsebene senkrechten Probenmagnetisierung stärker oder schwächer reflektiert.

Die Geometrie zur Messung des T-MOKE ist in Abb. 2.7 gezeigt. Das Licht trifft unter einem Winkel  $\theta_i$  auf die senkrecht zur Einfallsebene magnetisierte Probe und wird reflektiert. Das elektrische Feld des Lichts liegt parallel zur Einfallsebene. Die Intensität des reflektierten Lichts hängt nun davon ab, ob die Magnetisierung der Probe parallel oder antiparallel zum Kreuzprodukt der E-Feld-Vektoren von einfallendem und reflektiertem Strahl liegt, wie aus Gl. 2.19 hervorgeht. Aus dieser Gleichung wird auch sofort ersichtlich, dass der T-MOKE für komplett streifenden bzw. senkrechten Einfall verschwinden muss. Eine Drehung der Polarisationsebene findet nicht statt. Der in Abhängigkeit der Magnetisierungsrichtung von der Probe reflektierte E-Feld-Vektor kann in Matrixschreibweise dargestellt werden als

$$\mathbf{E}' = \begin{pmatrix} r_{ss} & 0 \\ 0 & r_{pp} \pm \Delta_{pp} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_s \\ E_p \end{pmatrix}, \quad (2.33)$$

dabei beschreibt  $\pm\Delta_{pp}$  den magnetischen Anteil. Eine Besonderheit des T-MOKE im Gegensatz zu anderen magneto-optischen Effekten ist, dass Messungen prinzipiell auch mit unpolarisiertem Licht durchgeführt werden können. In diesem Fall beeinflusst der transversale magneto-optische Effekt nur den parallel zur Einfallsebene polarisierten Anteil des Lichts. Die aus dem von der Magnetisierungsrichtung abhängigen Reflexionsvermögen resultierende Asymmetrie lässt sich analog zu Gleichung 2.32 schreiben als

$$A_{TMOKE} = \frac{R(M^+) - R(M^-)}{R(M^+) + R(M^-)}. \quad (2.34)$$

Mit dem Reflexionsvermögen  $R(M^+)$  für parallel zum Kreuzprodukt der E-Felder orientiertem Magnetfeld (nach oben gerichtetes Feld in Abb. 2.7) und  $R(M^-)$  für die antiparallele

Ausrichtung (nach unten gerichtetes Feld in Abb. 2.7). Um mit teilweise polarisiertem oder unpolarisiertem Licht ebenfalls quantitative Aussagen treffen zu können, muss die gemessene Asymmetrie  $A_{TMOKE}$  über folgende Formel normiert werden [66]:

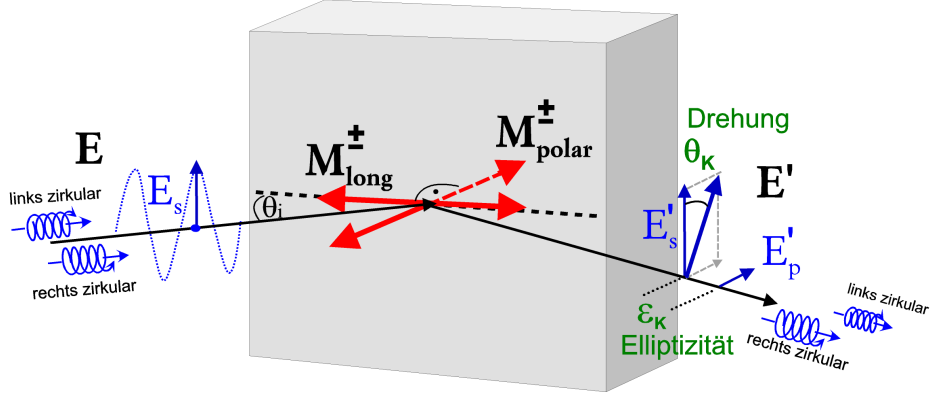
$$\begin{aligned}
A_{TMOKE} &= a_T(1 + S_1)/(1 - p_T S_1) & (2.35) \\
\text{mit } a_T &= 2\text{Re}\{\Delta_{pp}r_{pp}/(|r_{ss}|^2 + |r_{pp}|^2 + |\Delta_{pp}|^2)\} \\
\text{und } p_T &= (|r_{ss}|^2 - |r_{pp}|^2 - |\Delta_{pp}|^2)/(|r_{ss}|^2 + |r_{pp}|^2 + |\Delta_{pp}|^2) \quad .
\end{aligned}$$

Hierbei bezeichnet  $a_T$  die magnetische Asymmetrie,  $p_T$  das Polarisationsvermögen der Probe und  $S_1$  den zweiten Parameter nach Stokes (Gl. 2.25b). Die gemessene Asymmetrie lässt sich so in zwei Bestandteile zerlegen. In die Gleichung fließt einerseits die tatsächliche magnetische Asymmetrie  $a_T$  ein, welche nahezu proportional zu Magnetisierung ist, und andererseits das Polarisationsvermögen der Probe, welches nahezu unabhängig von der Magnetisierung ist [66]. Aus dieser Formel wird auch deutlich, dass das Asymmetrie-Signal im Bereich des Brewsterwinkels deutlich verstärkt wird. Hier ist das Polarisationsvermögen  $p_T$  maximal. Daher wird T-MOKE typischerweise bei Winkeln nahe des Brewsterwinkels gemessen. Der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den T-MOKE wird in dieser Arbeit systematisch untersucht.

## 2.2.4 L-MOKE und P-MOKE

Bisher wurden magneto-optische Effekte betrachtet, welche sich auf die Intensität des reflektierten Lichts auswirken. Der longitudinale und der polare magneto-optische Kerr Effekt (L-MOKE und P-MOKE) hingegen beeinflussen den Polarisationsgrad des reflektierten Lichts. Das Licht erfährt bei Reflexion an der Probe eine Drehung der Polarisationssebene und ändert den Grad der Elliptizität. Die Drehung der Polarisationssebene wird dabei Kerr-Drehung  $\theta_K$  genannt und der Grad der Elliptizität analog hierzu Kerr-Elliptizität  $\epsilon_K$ . Benannt nach J. Kerr, der diese Effekte im 19. Jahrhundert erstmals beobachtete [67; 68].

Die Geometrie zur Messung des L- und P-MOKE ist identisch zur XMCD-Messgeometrie (siehe Abb. 2.3 und 2.8). Anstatt zirkular polarisiertes Licht wird jedoch linear polarisiertes Licht verwendet, dabei kann sowohl s- als auch p-Polarisation verwendet werden. Der Unterschied zwischen P-MOKE und L-MOKE liegt in der Magnetisierung der Probe. Für P-MOKE ist die Probe senkrecht zur Probenoberfläche magnetisiert, für L-MOKE liegt die Magnetisierung innerhalb der Probenoberfläche und parallel zur Einfallsebene des Lichts. Da die qualitative Beschreibung beider Effekte sehr ähnlich ist und in der vorliegenden Arbeit nur L-MOKE experimentell genutzt wurde, soll sich hier auf die Beschreibung des longitudinalen magneto-optischen Kerr-Effekts beschränkt werden. Der longitudinale magneto-optische Kerr-Effekt lässt sich vereinfacht als XMCD beschreiben, wenn angenommen wird, dass das einfallende linear polarisierte Licht ( $S_1 = 1$ , bzw.  $S_1 = -1$ ) die phasengleiche Überlagerung zweier zirkular polarisierter Wellen ( $S_3 = \pm 1$ ) ist. Abbildung 2.8 zeigt dieses Prinzip für s-polarisiertes Licht. Analog zum XMCD kommt L-MOKE nur zustande, wenn das Skalarprodukt aus Magnetisierung und Ausbreitungsrichtung des Lichts ungleich Null ist, also  $\mathbf{M} \cdot \mathbf{k} \neq 0$  gilt.



**Abbildung 2.8:** Prinzip einer L-MOKE-Messung. Das einfallende linear polarisierte Licht erfährt nach Reflexion eine Drehung der Polarisationssebene und eine Änderung des Polarisationszustandes von linear zu elliptisch. Die Magnetisierung der Probe liegt innerhalb der Probenoberfläche und parallel zur Einfallsebene.

Das unter dem Winkel  $\theta_i$  einfallende s-polarisierte Licht wird von der Probe reflektiert. Das E-Feld des reflektierten Lichts lässt sich analog zu Gl. 2.33 berechnen zu

$$\mathbf{E}' = \begin{pmatrix} r_{ss} & \pm\Delta_{sp} \\ \mp\Delta_{sp} & r_{pp} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_s \\ E_p \end{pmatrix}, \quad (2.36)$$

wobei  $\pm\Delta_{sp}$  die mit der Magnetisierung veränderliche Komponente ist. Wenn, wie in Abb. 2.8 gezeigt, von einem einfallenden Strahl mit s-Polarisation ausgegangen wird, führen die Nicht-Diagonalelemente der Reflexionsmatrix dazu, dass das reflektierte Licht zusätzlich eine Komponente mit p-Polarisation erhält. Dies resultiert in einer Drehung der Polarisationssebene um  $\theta_K$ . Hinzu kommt, dass die s- und p-Komponente des reflektierten Lichts um den Winkel  $\epsilon_K$  zueinander phasenverschoben sind, was als Elliptizität des reflektierten Lichts messbar ist. Für s-polarisiertes Licht sind die beiden Größen  $\theta_K$  und  $\epsilon_K$  über die Beziehung [69]

$$\theta_{Ks} + i\epsilon_{Ks} = \frac{\Delta r_{sp}}{r_{ss}} \approx \frac{in_0nQ \cdot \sin\theta_i \cdot \cot\theta_t}{(n^2 - n_0^2) \cdot \cos(\theta_i - \theta_t)} \quad (2.37)$$

mit den Elementen der Reflexionsmatrix (Gl. 2.36) und dem komplexen magneto-optischen Brechungsindex  $n_{\pm}$  (2.27) verknüpft. Der Index  $s$  steht für s-Polarisation,  $n_0$  gibt den Brechungsindex einer Deckschicht bzw. des Vakuums an. Der Brechungsindex der magneto-optisch aktiven Schicht geht über die Beziehung  $n = 1/2(n_+ + n_-)$  und über den Voigt-Parameter  $Q = (n_+ - n_-)/(n \cdot \cos\theta_t)$  in die Gleichung ein. Die Winkel  $\theta_i$  und  $\theta_t$  bezeichnen den Einfallswinkel gemessen zur Probenoberfläche bzw. den Winkel des gebrochenen Strahls innerhalb der Probe [70]. Für streifenden Einfall und der im Röntgenbereich legitimen Annahme, dass  $\theta_i \approx \theta_t$  ist, kann eine direkte Beziehung zu den Koeffizienten des komplexen Brechungsindex aus Gl. 2.27 wie folgt genähert werden [71]:

$$\theta_{Ks} \approx \frac{\Delta\delta(\beta_1 - \beta_0) - \Delta\beta(\delta_0 - \delta_1)}{(\delta_0 - \delta_1)^2 + (\beta_1 - \beta_0)^2}, \quad (2.38a)$$

$$\epsilon_{Ks} \approx \frac{\Delta\delta(\delta_0 - \delta_1) - \Delta\beta(\beta_1 - \beta_0)}{(\delta_0 - \delta_1)^2 + (\beta_1 - \beta_0)^2}. \quad (2.38b)$$

Ferner kann näherungsweise sogar eine Beziehung zwischen Kerr-Drehung und Kerr-Elliptizität und den Asymmetriewerten des XMCD und des T-MOKE hergestellt werden [66; 71]. Die Größen sind für kleine Lichteinfallswinkel folgendermaßen verknüpft

$$\theta_{Ks} \approx A_{TMOKE} \cdot \Re \left\{ \sqrt{n^2 - n_0^2}/4n + n_0/4n \sin \theta_i \right\} \quad , \quad (2.39a)$$

$$\epsilon_{Ks} \approx \frac{1}{2} A_{XMCD} + \sin \theta_i \cdot \Im \left\{ \Delta r_{sp} \sqrt{n^2 - n_0^2}/n_0 r_{ss}^2 \right\} \quad . \quad (2.39b)$$

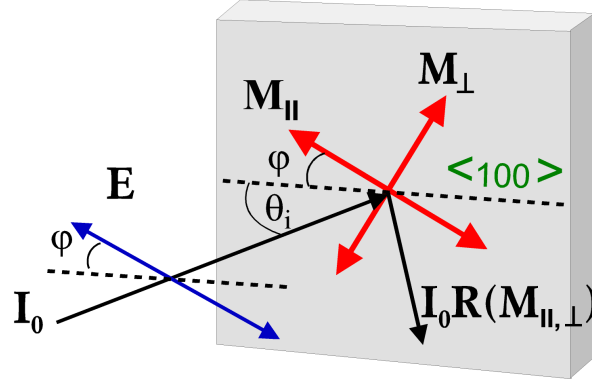
Die linear in der Magnetisierung verlaufenden Effekte stehen also miteinander in Zusammenhang. Messungen an den  $2p$ - und den  $3p$ -Kanten von Co konnten dies bestätigen [70; 72].

In der vorliegenden Arbeit wird näher betrachtet werden, wie groß der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den L-MOKE ist. Die Messung der Kerr-Drehung hat den Vorteil, dass auf der einen Seite kleine Winkeländerungen im Bereich von zehntel Grad problemlos gemessen werden können, und auf der anderen Seite die Drehungen im weichen Röntgenbereich sehr große Werte von mehreren zehn Grad erreicht können [73; 74].

## 2.2.5 XMLD

Im Vergleich zu den zuvor betrachteten magneto-optischen Effekten hat der magnetische Röntgenlineardichroismus (XMLD) in der Vergangenheit relativ wenig Beachtung gefunden. Obwohl der XMLD schon vor über zwei Jahrzehnten nachgewiesen werden konnte [75; 76], gibt es bis heute nur vergleichsweise wenige Messungen. Der magnetische Röntgenlineardichroismus hängt, im Gegensatz zu den zuvor beschriebenen magneto-optischen Effekten, quadratisch von der Magnetisierung ab (siehe Gl. 2.19). Dies bedeutet, dass der XMLD nicht vom Vorzeichen der Probenmagnetisierung abhängt, sondern nur von der Richtung der Magnetisierung in Bezug zum elektrischen Feldvektor des Lichts. Dies ermöglicht es unter anderem, auch antiferromagnetische Proben zu untersuchen. Bei der Messvorschrift des magnetischen Röntgenlineardichroismus wird zwischen XMLD der ersten und XMLD der zweiten Art unterschieden [6]. Bei letzterem ist die Magnetisierung in der Probe fix und es wird entweder der E-Feld-Vektor des Lichts oder die Probe gedreht. In dieser Arbeit wird der XMLD erster Art genutzt. Hierbei ist die Probe und der E-Feld-Vektor des Lichts fix und es wird die Magnetisierungsrichtung innerhalb der Probe gedreht. Dies hat den Vorteil, dass nur Effekte, welche direkt mit der Magnetisierung der Probe zusammenhängen, zum XMLD-Signal beitragen.

Zur Messung des XMLD ist linear polarisiertes Licht nötig. Für die in dieser Arbeit genutzte Reflexionsspektroskopie macht sich der XMLD als Änderung des Reflexionsvermögens in Abhängigkeit von der Richtung der Magnetisierung bezüglich der Polarisationssebene bemerkbar. Die Messgeometrie für den XMLD in Reflexion ist in Abbildung 2.9 dargestellt.



**Abbildung 2.9:** Prinzip einer XMLD-Messung. Das einfallende linear polarisierte Licht trifft unter dem Winkel  $\theta_i$  auf die Probe. Das Reflexionsvermögen  $R(\mathbf{M}_{\perp})$  und  $R(\mathbf{M}_{\parallel})$  der Probe unterscheidet sich für die Probenmagnetisierung senkrecht ( $\mathbf{M}_{\perp}$ ) und parallel ( $\mathbf{M}_{\parallel}$ ) zum E-Feldvektor des Lichts. Zur Untersuchung der magnetokristallinen Anisotropie im XMLD wird das E-Feld unter einem definierten Winkel  $\varphi$  zu einer Kristallachse eingestellt.

Um Einflüsse linearer Effekte, also solcher Effekte, die vom Vorzeichen der Magnetisierung abhängen in den Messungen zu unterdrücken, werden für parallele und senkrechte Magnetisierung jeweils zwei Messungen durchgeführt. Die Probenmagnetisierung wird zwischen den Messungen umgepolt. Der Messwert ergibt sich dann aus dem Mittelwert der beiden Messungen. Dies bedeutet,  $R(\mathbf{M}_{\parallel})$  und  $R(\mathbf{M}_{\perp})$  ergeben sich nach den Gleichungen

$$R_{\parallel} = \frac{R(M_{\parallel}^+) + R(M_{\parallel}^-)}{2} \quad \text{und} \quad (2.40a)$$

$$R_{\perp} = \frac{R(M_{\perp}^+) + R(M_{\perp}^-)}{2} \quad . \quad (2.40b)$$

Analog zu XMCD (Kap. 2.2.2) und T-MOKE (Kap. 2.2.3) kann aus dem Reflexionsvermögen für parallel zu  $\mathbf{E}$  liegende Magnetisierung  $R(M_{\parallel})$  und dem Reflexionsvermögen für senkrecht zu  $\mathbf{E}$  liegende Magnetisierung  $R(M_{\perp})$  die Asymmetrie

$$A_{XMLD} = \frac{R(M_{\parallel}) - R(M_{\perp})}{R(M_{\parallel}) + R(M_{\perp})} \quad (2.41)$$

berechnet werden. Auch diese Größe lässt sich wieder in Beziehung zum komplexen Brechungsindex aus Gl. 2.27 setzen und ergibt sich zu [9]

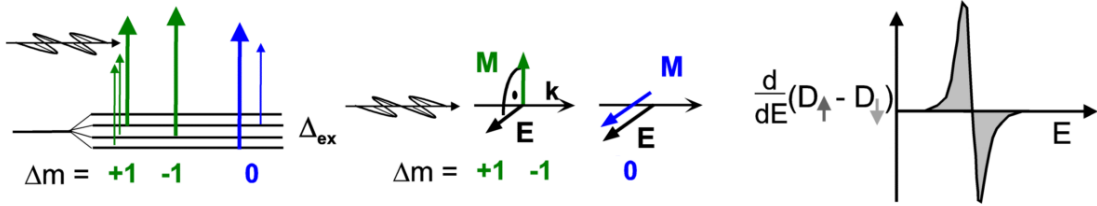
$$A_{XMLD} = \Re \left\{ (\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}) \frac{\sin \theta_i \sin \theta_t}{n(n^2 \frac{\sin^2 \theta_i}{\sin^2 \theta_t} - 1)} (\cot^2 \theta_t + 1) \right\} \quad , \quad (2.42)$$

mit dem nicht-magnetischen Anteil des Brechungsindex  $n$ , dem Winkel des einfallenden und des gebrochenen Lichtstrahls  $\theta_i$  und  $\theta_t$ , sowie den Komponenten des Dielektrizitätstensors  $\epsilon_{\parallel}$  und  $\epsilon_{\perp}$ . Für kubische Strukturen, wie es z.B. für Fe und Ni der Fall ist, schreibt sich dieser, für die magnetische Quantisierungsachse in x-Richtung, vereinfacht als [77]



$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{\parallel} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{\perp} & \epsilon_{yz} \\ 0 & -\epsilon_{yz} & \epsilon_{\perp} \end{pmatrix} . \quad (2.43)$$

Eine sehr anschauliche Methode den XMLD-Effekt zu verdeutlichen, ist die Betrachtung der möglichen Übergänge aus den Rumpfständen in das Leitungsband. In Abb. 2.10 ist schematisch dargestellt wie unter Berücksichtigung der Auswahlregeln (Gl. 2.31a - 2.31c) die XMLD-Asymmetrie zustande kommt [78].



**Abbildung 2.10:** Schematische Darstellung der erlaubten Elektronenübergänge beim XMLD (links und mitte) und des Zusammenhangs von Asymmetrie-Signal und Zustandsdichte (rechts).

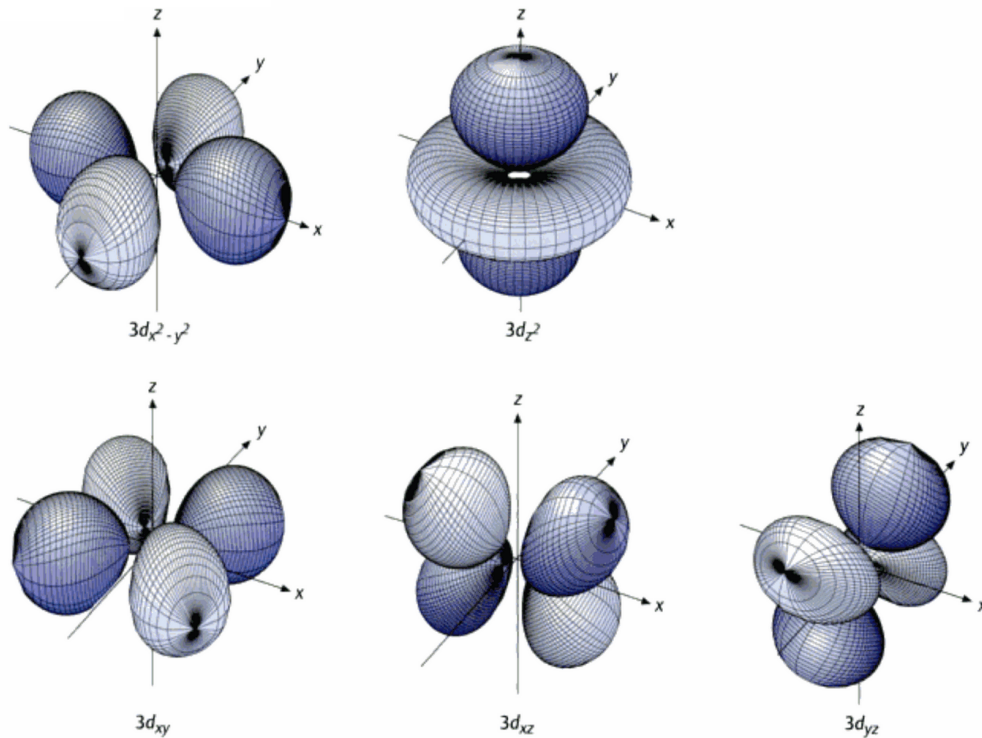
Für senkrechte Anordnung von E-Feld und Magnetisierung sind Elektronenübergänge mit den Auswahlregeln  $\Delta m = \pm 1$  erlaubt, während für parallele Ausrichtung von  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{M}$  die Auswahlregel  $\Delta m = 0$  gilt (siehe auch Abb. 2.4). Für polykristalline Proben konnte in Transmissionsmessungen experimentell gezeigt werden, dass sich das XMLD-Asymmetrie-Signal proportional zur Ableitung der Differenz der Zustandsdichte für *spin up* und *spin down* Zustände im Leitungsband verhält. Dies gilt jedoch nur für Materialien, deren *m*-Orbitale energetisch entartet sind, wie es z.B. bei Systemen mit sphärischer Symmetrie der Fall ist oder für polykristalline Proben [78]. Für diese verhält sich das XMLD-Spektrum wie die Ableitung des XMCD-Spektrums.

Da beim XMLD das Vorzeichen der Magnetisierung keine Rolle spielt, lassen sich neben ferromagnetischen auch antiferromagnetische Proben untersuchen [9]. Diese Eigenschaft macht den XMLD zu einem nützlichen Werkzeug zur Bestimmung magnetischer Eigenschaften, ist aber nicht Hauptaugenmerk dieser Arbeit. Die für diese Arbeit interessante Eigenschaft des XMLD ist die Empfindlichkeit auf die Orientierung der Magnetisierung und des elektrischen Feldes relativ zur Kristallstruktur. Diese Empfindlichkeit kann ausgenutzt werden um Informationen über den Einfluss des Kristallfeldes auf die elektronische Struktur eines Materials zu erhalten. Bei den in dieser Arbeit untersuchten Proben einkristalliner *3d*-Übergangsmetalle mit kubischer fcc- bzw. bcc-Kristallstruktur, muss die Kristallfeldaufspaltung der *3d*-Zustände berücksichtigt werden. Diese wirkt sich auf die Bandstruktur aus und führt zu einer unterschiedlichen Zustandsdichte der *e<sub>g</sub>*- und *t<sub>2g</sub>*-Zustände in Abhängigkeit der Ausrichtung im Kristall. Die Form der *e<sub>g</sub>*- und *t<sub>2g</sub>*-Orbitale ist in Abb. 2.11 dargestellt. In einer vereinfachten Schreibweise für die *2p*-Kanten lässt sich für eine kubische Kristallstruktur die XMLD-Asymmetrie proportional zur Ableitung der Differenz der *e<sub>g</sub>*- und *t<sub>2g</sub>*-Zustände für *spin up* und *spin down* darstellen als [65; 78]

$$A_{XMLD} \propto \Delta_{ex} \frac{d}{dE} (\alpha(t_{2g\uparrow} - t_{2g\downarrow}) + \beta(e_{g\uparrow} - e_{g\downarrow})) . \quad (2.44)$$

Hierbei sind  $\alpha$  und  $\beta$  Faktoren, die von der Ausrichtung der Magnetisierung im Kristall abhängen. Für eine Magnetisierung entlang der  $\langle 001 \rangle$ -Richtung haben diese die Werte  $\alpha = -1$  und  $\beta = 2$ , während für eine Ausrichtung der Magnetisierung entlang der  $\langle 111 \rangle$ -Richtung  $\alpha = 1$  und  $\beta = -1$  gilt. Der Vorfaktor  $\Delta_{ex}$  bezeichnet die Austauschwechselwirkung der  $2p$ -Zustände. Diese kann näherungsweise als konstant angenommen werden [65]. Zwei Dinge lassen sich anhand dieser vereinfachten Formel erkennen. Erstens hängt die Asymmetrie stark von den Koeffizienten  $\alpha$  und  $\beta$  und damit von der Richtung der Magnetisierung im Material ab und zweitens verschwindet die Asymmetrie wenn die Austauschwechselwirkung  $\Delta_{ex}$  gegen Null geht. Dies bedeutet, dass die Austauschwechselwirkung der Rumpfungszustände zwingend notwendig für den XMLD ist.

Dabei wurde in Gl. 2.44 folgende Näherung angewendet: Die Austauschaufspaltung geht in die Rechnungen als kleine Störung erster Ordnung ein. Dadurch ist es möglich die einzelnen  $p$ -Zustände über die Quantenzahl  $m_j$  zu definieren. Diese Näherung ist möglich, da die Spin-Bahn-Aufspaltung an den  $2p$ -Kanten mit ca.  $10 \text{ eV} - 15 \text{ eV}$  wesentlich größer ist als die nur wenige  $100 \text{ meV}$  große Austauschaufspaltung und eine Vermischung der  $2p_{1/2}$ - und der  $2p_{3/2}$ -Zustände nicht stattfindet [65].



**Abbildung 2.11:** Grenzflächendarstellung der 3d-Orbitale unterteilt in die zwei  $e_g$ -Orbitale (oben) und die drei  $t_{2g}$ -Orbitale (unten). (Entnommen aus Referenz [79])

Für die in dieser Arbeit untersuchten  $3p$ -Kanten der Übergangsmetalle Fe, Co und Ni kann die obige Näherung jedoch nicht gemacht werden. An den  $3p$ -Kanten ist die Austauschaufspaltung von gleicher Größenordnung wie die Spin-Bahn-Aufspaltung und kann daher nicht mehr als kleine Störung behandelt werden. In den Rechnungen muss sie exakt berücksichtigt werden. Des Weiteren führt das ähnliche Größenverhältnis der Spin-Bahn- und der Austauschaufspaltung an den  $3p$ -Kanten dazu, dass die  $3p_{1/2}$  und die  $3p_{3/2}$ -Zustände mischen und nicht mehr

klar trennbar sind, was eine einfache Interpretation der experimentellen Spektren erschwert. Dennoch kann aus der berechneten Zustandsdichte eine Zuordnung der am XMLD-Signal beteiligten Zustände unter Verwendung der Auswahlregeln (Gl. 2.31a, 2.31b und 2.31c) versucht werden (siehe auch Abb. 2.4). Dies wird ausführlich in Kapitel 4.6 behandelt.

Der Vollständigkeit halber soll hier noch erwähnt werden, dass es zu XMLD-Messungen, analog zum XMCD, einen Effekt in Reflexion gibt, bei dem nicht die Intensität, sondern die Polarisations-eigenschaften des reflektierten Lichts untersucht werden, nämlich der Schäfer-Hubert-Effekt. Dieser wurde erst kürzlich zum ersten Mal im EUV-Bereich an den 3p-Kanten einer polykristallinen Fe-Probe gemessen [80]. Ein Vergleich mit XMLD-Messungen in Reflexion hat dabei eine sehr gute Übereinstimmung des Verlaufs der Schäfer-Hubert-Drehung und des XMLD-Asymmetrie-Spektrums gezeigt. Auf eine Polarisationsanalyse des reflektierten Lichts in XMLD-Geometrie wurde im Rahmen dieser Arbeit zwar verzichtet, aber es soll hier erwähnt werden, dass zukünftige Messungen des Schäfer-Hubert-Effekts an kristallinen Proben vielversprechend sind. Hierdurch ergibt sich die Möglichkeit, analog zu den linearen Effekten, wie z.B. L-MOKE, einen vollständigen Satz der magneto-optischen Konstanten für die quadratischen Effekte in Abhängigkeit der Kristallachsen zu erhalten.

## 2.3 Anpassungsrechnungen für magneto-optische Effekte

Die Spektren der magneto-optischen Effekte lassen sich berechnen, wenn die magneto-optischen Konstanten (Gl. 2.27) der entsprechenden Materialien bekannt sind. Im Umkehrschluss ist es ebenso möglich die magneto-optischen Konstanten aus den experimentellen Spektren zu ermitteln. Ein solches Vorgehen erfordert jedoch genaue Kenntnisse über die untersuchte Probe. Häufig werden magneto-optische Konstanten aus Transmissionsmessungen mittels Polarisationsanalyse ermittelt (siehe z.B. [80; 81; 82]). Transmissionsmessungen haben den Vorteil, dass Mehrfachreflexionen innerhalb der Probe, die zu Interferenzeffekten führen, leicht abgeschätzt werden können. Wenn die Dicke der Probe bekannt ist, können aus der Drehung und der Absorption des transmittierten Lichts die magnetischen Anteile des Brechungsindex sehr genau ermittelt werden. Die magneto-optischen Konstanten aus Reflexionsspektren zu ermitteln ist ungleich schwerer, da Interferenz- und Rauigkeitseffekte die Reflexionsspektren stark beeinflussen können (siehe auch Kap. 4.1). In dieser Arbeit wurde daher unter anderem auf Datensätze zurückgegriffen, welche durch Transmissionsmessungen an den 3p-Kanten von Fe, Co und Ni bestimmt wurden [80; 81].

In dieser Arbeit wurden verschiedene Programme verwendet um die Reflexionsspektren und magneto-optische Asymmetrie-Spektren mittels Anpassungsrechnungen nachzubilden. Auf die Spezifikationen der einzelnen Programme wird weiter unten im Einzelnen eingegangen. Allen Programmen gemeinsam ist die Verwendung bekannter Datensätze der magnetischen und nicht-magnetischen Anteile der optischen Konstanten, häufig in Form des komplexen Brechungsindex. Eine große Sammlung an optischen Konstanten bieten die Henke-Tabellen [83]. Diese umfassen für nahezu alle Elemente die realen und imaginären nicht-magnetischen Anteile der optischen Konstanten über einen sehr großen Energiebereich vom EUV bis hin zu harter Röntgenstrahlung. Zur Ermittlung der Konstanten in den Henke-Tabellen wurde über Absorptionsmessungen der Imaginärteil bestimmt und anschließend mittels Kramers-Kronig-Transformation [84; 85] der Realteil berechnet. Für den nicht-resonanten Bereich der Streuung sind diese Datensätze sehr gut verwendbar. In den in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Anpassungsrechnungen wurden die Datensätze der Henke-Tabellen daher für GaAs sowie Au

und Ag verwendet, welche als Substrat, Schutzschicht vor Oxidation bzw. als Pufferschicht zur Verbesserung der Kristallstruktur in den Proben vorhanden sind. Resonante Anregung tritt für diese im Rahmen dieser Arbeit nicht auf. Im Bereich der Anregungsenergien der untersuchten Elemente Fe, Co und Ni sind die Henke-Tabellen jedoch zu ungenau, da sie nicht die Aufspaltung der Rumpfstände zeigen. Zudem umfassen sie nur die nicht-magnetischen Anteile der optischen Konstanten. Für Fe, Co und Ni wurde daher auf experimentell ermittelte Datensätze anderer Gruppen zurückgegriffen [80; 81]. Die Ergebnisse der Anpassungsrechnungen werden jeweils in direktem Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen vorgestellt. Im Folgenden werden nun die Besonderheiten der verwendeten Programme kurz aufgezeigt.

## ReMagX

Das Programm ReMagX wurde am Stuttgarter Max-Planck-Institut für Metallforschung entwickelt [86; 87; 88]. Es ist darauf ausgelegt, sowohl nicht-magnetische als auch magnetische Signale in spekulärer Reflexion an Einzel- und Mehrschichtsystemen zu simulieren. Dabei ist es sehr vielseitig was die Berechnungs- und Fit-Algorithmen betrifft. Als Berechnungsgrundlage kann zwischen dem sogenannten Parratt-, Zak- oder *full-matrix*-Formalismus gewählt werden. Der Parratt-Formalismus [89] basiert auf den Fresnel'schen Gleichungen und dem Snellius'schen Brechungsgesetz und beschreibt iterativ die Interaktion des Lichts an den Grenzflächen und die Ausbreitung innerhalb der einzelnen Schichten eines Mehrschichtsystems. Neben dem Einfluss der Probenmagnetisierung wird auch die Rauigkeit der einzelnen Schichten nach dem Nevot-Croce-Modell berücksichtigt [90]. Der Zak-Formalismus [91; 92; 93] legt den Erhalt der tangentialen Komponenten des E- und B-Feldes an den Grenzschichten zugrunde und beschreibt diese sowie die Ausbreitung des Lichts innerhalb der Schichten mittels einer  $4 \times 4$  Matrix, wobei auch hier ähnlich dem Parratt-Formalismus iterativ bezüglich der einzelnen Schichten vorgegangen wird, also die Mehrfachreflexionen an den einzelnen Schichten Stück für Stück berechnet werden. Die Polarisation der einfallenden Strahlung sowie die Richtung der Magnetisierung der einzelnen Schichten kann dabei beliebig gewählt werden. Eine Stärke des Programms ReMagX ist die Möglichkeit über geschickte Wahl von variierbaren Parametern die Schichtdicken- und Rauigkeitsverhältnisse in einem Mehrschichtsystem durch Anpassung der Modellrechnungen an das Experiment bestimmen zu können. Hierfür stehen verschiedene Fit-Algorithmen zur Verfügung, auf die hier nicht im Einzelnen eingegangen wird. Sowohl der Parratt- als auch der Zak-Formalismus gehen dabei von isotropen Medien aus und berücksichtigen nicht die Kristallstruktur. Da das Programm ReMagX im Zuge dieser Arbeit hauptsächlich dazu genutzt wurde die Schichtdicken und die Rauigkeiten der einzelnen Schichten abzuschätzen, ist diese Näherung jedoch von untergeordneter Bedeutung.

## REFLEC

Das Programm REFLEC, welches am BESSY entwickelt wurde [94], bietet verschiedene elementare optische Rechenmethoden für den EUV und Röntgenbereich. Neben der Möglichkeit optische Systeme wie Beamlines zu berechnen, auf die hier nicht eingegangen wird, lässt sich auch die Wechselwirkung von Licht mit Materie berechnen. Dabei lassen sich unter anderem Absorption, Reflexion und Transmission an Mehrschichtsystemen berechnen und sowohl die Intensität als auch der Polarisationsgrad des Lichts nach der Wechselwirkung bestimmen. Vor allem zur Berechnung von Reflexionsspektren und Eindringtiefen wurde das Programm in dieser Arbeit verwendet.

## Yeh-MOKE

Das Programm Yeh-MOKE ist eine frei verfügbare Software, welche zur Berechnung magneto-optischer Effekte in Mehrfachsichten am PGI-6 (ehemals IFF-9) des Forschungszentrums Jülich entwickelt wurde [95]. Es basiert auf dem  $4 \times 4$ -Matrix-Formalismus von P. Yeh [96] und der Erweiterung des Yeh-Formalismus von S. Visnovsky [97], welcher auch für die *ab initio* Rechnungen an der Universität Ostrava genutzt wurde (siehe auch Kap. 2.4). Das Programm Yeh-MOKE wurde im Zuge dieser Arbeit genutzt um T-MOKE und L-MOKE Spektren zu simulieren. Da im Programm Yeh-MOKE die Probenrauigkeit jedoch nicht berücksichtigt werden kann, dienen die Anpassungsrechnungen lediglich einer ersten groben Einschätzung der magneto-optischen Spektren.

## 2.4 Theoretische Modelle & *ab initio* Rechnungen

Die für die oben beschriebenen Anpassungsrechnungen verwendeten Datensätze sind alle empirisch ermittelt und gut anwendbar, wenn es um eine phänomenologische Beschreibung der magneto-optischen Effekte geht. Für ein tiefergehendes physikalisches Verständnis sind jedoch theoretische Bandstrukturmodellrechnungen nötig. Im Gegensatz zu den Anpassungsrechnungen zielen die theoretischen Modellrechnungen darauf ab, die elektronischen und magnetischen Eigenschaften einer Probe ohne die Eingabe gemessener Daten *ab initio* zu bestimmen. Zur Berechnung der magneto-optischen Spektren wird die elektronische Struktur eines Materials und die Wechselwirkung mit einer elektromagnetischen Welle berechnet. Die *ab initio* berechneten Spektren werden dann mit den experimentell ermittelten Spektren verglichen. Aus diesem Vergleich kann so auf die Validität der den Rechnungen zugrundeliegenden Modelle geschlossen werden. Da in der vorliegenden Arbeit mit Reflexionsmessungen gearbeitet wurde, reicht es nicht lediglich die Bandstruktur und die möglichen Übergänge der Rumpfstände ins Valenzband zu berechnen, sondern es müssen zusätzlich optische Modelle angewendet werden um die Reflexionsspektren zu reproduzieren. Das Vorgehen ist dabei wie folgt:

- Berechnung der elektronischen Struktur (Bandstruktur) des Materials.
- Berechnung der optisch angeregten Elektronenübergänge.
- Ermittlung des imaginären Anteils des nicht-diagonalen Dielektrizitätstensors.
- Bestimmung des realen Anteils des Dielektrizitätstensors mittels Kramers-Kronig Transformation [84; 85].
- Berechnung der konkreten Reflexionsmatrix für die Materialsysteme.

Zur Berechnung der elektronischen Struktur existieren verschiedene Modelle, in welchen unterschiedliche Näherungen zum Tragen kommen. Eine gut erprobte Methode ist die der Dichtefunktionaltheorie (DFT), insbesondere der Ansatz der Lokale-Spin-Dichte-Approximation (LSDA). Hierbei wird das Vielteilchensystem, welches der Festkörper an sich darstellt, auf ein Ein-Teilchen-Problem reduziert. Dies bedeutet, dass ein einzelnes Elektron betrachtet wird, welches sich in einem effektiven Potential befindet. Dieses setzt sich zusammen aus dem Potential der Kerne und einem effektiven Potential der anderen Elektronen, das als Funktional der Elektronendichte beschrieben wird. Dieser sogenannte Ein-Elektronen-Ansatz funktioniert für Fe und in gewissem Maße für Co sehr gut. Für komplexe Systeme, wie z.B. Oxide, in de-

nen starke Korrelationseffekte auftreten, verliert dieser vereinfachte Ansatz schnell seine Gültigkeit. In solchen stark korrelierten Systemen führt der Ein-Elektronen-Ansatz zu falschen Ergebnissen und es müssen Multiplett-Rechnungen angewendet werden. Die Gültigkeit des Ansatzes ist unter anderem abhängig von der Zustandsdichte der Elektronen oberhalb der Fermi-Kante. Eine sehr große Zustandsdichte an der Fermi-Kante führt dazu, dass kleine Abweichungen in der Berechnung der Bandstruktur einen großen Einfluss auf die berechneten magneto-optischen Effekte haben. Bereits für Ni stößt der Ansatz an seine Grenzen. Daher ist zu erwarten, dass die berechneten Spektren für Ni die experimentellen Spektren schlechter reproduzieren werden als die Fe- und Co-Spektren. Dies wird in den Kapiteln 4.6, 5.6 und 6.5 bestätigt werden. Häufig werden für Ni oder komplexere Systeme daher andere Methoden gewählt. Eine weitere Methode zur Bandstrukturberechnung innerhalb der DFT ist die *generalized gradient approximation* (GGA). Hierbei wird nicht nur die Spindichte, sondern auch deren Änderung, also deren Gradient berücksichtigt. Bei diesen Berechnungen gehen allerdings einerseits häufig sogenannte versteckte Parameter ein, welche vom Programmierer implementierte Gewichtungen innerhalb des Quellcodes sind [98] und andererseits erhöht sich die Zahl der variablen Parameter im GGA-Ansatz.

Ein Ziel dieser Arbeit ist es, die magneto-optischen Spektren mit *ab initio* Rechnungen unter Zuhilfenahme möglichst weniger freier Parameter zu reproduzieren, daher wurde in dieser Arbeit für die theoretischen Berechnungen der LSDA-Ansatz gewählt. Hier gehen nur feste Größen bezüglich der Kristallstruktur der Gitterkonstanten und der Kernladungszahlen der beteiligten Elemente ein. Die *ab initio* Rechnungen in dieser Arbeit wurden an der Technischen Universität Ostrava [99] und an der Universität Uppsala durchgeführt [100].

Nun soll näher auf die Rechnungen eingegangen werden. Zur Berechnung der elektronischen Struktur wurde der WIEN2k-Code [101] genutzt, unter Einbeziehung der Spin-Bahn-Kopplung. Dieser verwendet für die Berechnungen der Bandstruktur die *all electron full potential linearized augmented planewave* Methode. Über die LSDA [102] geht die Austauschwechselwirkung in die Rechnungen ein, die Form der Kernpotentiale wird über die *muffin tin* Näherung beschrieben. Für die selbstkonsistenten LSDA-Rechnungen wurden die folgenden typischen Parameter verwendet. Das Konvergenzkriterium betrug  $1 \cdot 10^{-7}$  Ry/Atom. Um die Stabilität des Rechenalgorithmus zu gewährleisten, wurde die *cut off* Energie auf  $R_{MT}K_{max} = 8,5$  gesetzt, wobei  $R_{MT}K_{max}$  das Produkt aus dem *muffin tin* Radius und dem maximalen  $k$ -Vektor im reziproken Raum beschreibt. Zur Simulation der ersten Brillouin-Zone wurde ein Volumen mit  $27 \times 27 \times 27$   $k$ -Punkten im Impulsraum gewählt. Dieses wurde für die Berechnung der optischen Eigenschaften zu einem Volumen mit  $81 \times 81 \times 81$   $k$ -Punkten erweitert. Diese bezüglich der Standardwerte um den Faktor 3 höhere Dichte an  $k$ -Punkten wurde gewählt, um die Genauigkeit der im Folgenden beschriebenen optischen Berechnungen zu erhöhen.

Anhand der Ergebnisse der Bandstrukturrechnungen werden die elektronischen Dipolübergänge berechnet [103]. Die daraus bestimmte Absorption der elektromagnetischen Strahlung liefert den Imaginärteil des Dielektrizitätstensors  $\epsilon$ . Aus den imaginären Anteilen der Elemente  $\epsilon_{ij}$  des Dielektrizitätstensors werden dann mittels einer Kramers-Kronig-Transformation [84; 85] die entsprechenden Realteile berechnet. Dabei wurde jedoch nicht auf die im WIEN2k-Code implementierte Kramers-Kronig-Transformation zurückgegriffen, da die Verwendung des WIEN2k-Codes für die Kramers-Kronig-Transformation erfahrungsgemäß zu falschen Ergebnissen führen kann [98]. Um die Richtigkeit der Kramers-Kronig-Transformation zu gewährleisten, wurde ein hausinterner Code an der Technischen Universität Ostrava verwendet [99]. Aus dem so erhaltenen vollständigen Satz der Elemente  $\epsilon_{ij}$  des Dielektrizitätstensors wurden die

Reflexions- und Transmissionsmatrizen bestimmt. Unter Verwendung dieser Matrizen können nun Reflexions- und Transmissionsrechnungen für beliebige Lichteinfallswinkel und Polarisierungsebenen nach den bekannten optischen Methoden (siehe Kap. 2.2) durchgeführt werden. Um hierbei den Rechenaufwand zu reduzieren, wurde der Probenaufbau vereinfacht als Trilayer, nur bestehend aus Au/XX/Ag angenommen, wobei XX für Eisen, Kobalt oder Nickel steht. Diese Vereinfachung ist gerechtfertigt, da die Ag-Schicht mit einer Dicke von 150 nm im verwendeten Energiebereich von ca. 40–80 eV nahezu sämtliche eindringende Strahlung absorbiert, wodurch Interferenzeffekte innerhalb der Ag-Schicht oder eine Wechselwirkung des Lichts mit dem GaAs-Substrat ausgeschlossen werden können. Die optischen Rechnungen wurden mit einem auf dem Yeh-Formalismus [96] für magnetische Schichtsysteme basierenden Programm [97] ebenfalls an der Technischen Universität Ostrava durchgeführt.

Um die in den theoretischen Modellen als ideal angenommenen Bedingungen den tatsächlich im Experiment herrschenden Bedingungen weiter anzupassen, wurden folgende Modifikationen in die Rechnungen miteinbezogen:

- **Linienverbreiterung:** Da die berechneten elektronischen Übergänge scharf abgegrenzt sind, ergeben sich in den berechneten Reflexions- und Asymmetrie-Spektren sehr ausgeprägte und aufgespaltene Strukturen. Solche Spektren sind im Experiment nicht zu beobachten, daher wurden die Elemente des Dielektrizitätstensors bezüglich ihrer energetischen Dispersion mit einer Lorentzfunktion geglättet. Diese soll linienverbreiternde Effekte, hervorgerufen z.B. durch die Energieauflösung des Experiments, Temperatureffekte, Lebensdauer der Zustände usw. simulieren. Streng genommen muss je nach verbreiterndem Effekt, wie z.B. die Energieauflösung des Experiments eine Gauß-Verbreiterung gewählt werden. Die Energieauflösung des Experiments ist etwa 20 meV. Die Gauß-Verbreiterung ist damit deutlich kleiner als die in den Rechnungen verwendete Lorentzverbreiterung von 2 eV und wurde daher nicht berücksichtigt. Es hat sich gezeigt, dass die ausschließliche Verwendung einer Lorentzverbreiterung ausreichend ist.
- **Probenrauigkeit:** Die nicht vernachlässigbare Oberflächenrauigkeit von bis zu 3 nm (siehe Kap. 4, 5 und 6) wurde durch Einbeziehung der Kirchhoff'schen Beugungstheorie [104; 105] berücksichtigt. Wobei die in den Rechnungen veränderlichen Parameter die mittlere Rauigkeit ( $\sigma_{rms}$ ) und die Korrelationslänge ( $T$ ) sind. Dabei skaliert das Reflexionsvermögen in Abhängigkeit der Rauigkeit  $\sigma_{rms}$ , des Lichtwellenvektors  $k$  und des Einfallswinkels  $\theta_i$  mit  $\exp\{-2(k \cdot \sigma_{rms} \cos \theta_i)^2\}$ . Das Rauigkeitsmodell wurde nur für die Grenzschicht Vakuum/Au angewendet. Die Anwendung des Modells für die weiteren Grenzschichten wies einen vernachlässigbar geringen Effekt auf.
- **Nichtresonante Absorption:** Vergleiche experimenteller und berechneter Spektren haben gezeigt, dass die Absorption in den *ab initio* Rechnungen im Bereich der nichtresonanten Energien stark unterschätzt wird und es nicht möglich war, die Reflexionsspektren nur mittels des *ab initio* berechneten Dielektrizitätstensors zu beschreiben. Aus diesem Grund wurde der die Absorption beschreibende imaginäre Anteil des Dielektrizitätstensors um einen Zusatzterm erweitert. Als Ansatz für dieses Zusatzterm wurde die gefundene Funktion  $A \cdot e^{-E/E_0}$  gewählt, mit den Parametern  $A$  und  $E_0$ . Diese Funktion liefert innerhalb begrenzter Energiebereiche ähnliche Ergebnisse wie das Drude-Modell [106] und hat sich als hinreichend gut erwiesen, um die Defizite der *ab initio* Rechnungen im nichtresonanten Energiebereich auszugleichen und die berechneten Spektren an die experimentellen Spektren anzugleichen.

An dieser Stelle soll erwähnt werden, dass die Anwendung der obigen Näherungen sich nur auf den optischen Teil der Rechnungen bezieht. Die zugrundeliegende Bandstrukturrechnung ist hiervon gänzlich unbeeinflusst.

Bisher wurde nur allgemein die Methodik zu den Rechnungen beschrieben, ohne Rücksicht auf eine Magnetisierung der Probe zu nehmen. Um magneto-optische Effekte berechnen zu können, muss aber das Reflexionsvermögen der Probe für unterschiedlich orientierte Magnetisierungen bezüglich der Lichteinfallsebene, der Lichtpolarisation und der Kristallstruktur bekannt sein. Die Magnetisierung der Proben wird direkt zu Beginn in der Bandstrukturberechnung und der Berechnung der möglichen elektronischen Übergänge berücksichtigt. Zur Bestimmung des XMLD sind daher für jede Kristallrichtung vier eigenständige Rechnungen nötig. Dies bedeutet zwar einen hohen Aufwand, ist aber für eine genaue Berechnung der magneto-optischen Effekte in Abhängigkeit der kristallinen Orientierung unumgänglich. Zur Überprüfung des Programmcodes wurde die obige Prozedur zudem für eine Magnetisierung entlang äquivalenter magnetischer Achsen im Kristall (z.B. [100]- und [010]-Richtung) durchgeführt. Dies führte zu den gleichen Ergebnissen, so dass diesbezügliche Fehler im Programmcode ausgeschlossen werden können.

Die Bestimmung der magneto-optischen Asymmetriewerte in XMLD, T-MOKE usw. erfolgt analog zum Experiment. Das heißt um z.B. die XMLD-Asymmetrie zu bestimmen, wird das Reflexionsvermögen für die vier Magnetisierungsrichtungen  $R(M_{\parallel}^+)$ ,  $R(M_{\parallel}^-)$ ,  $R(M_{\perp}^+)$  und  $R(M_{\perp}^-)$  entsprechend Gleichung 2.41 verrechnet. Da die oben beschriebenen *ab initio* Rechnungen alle magneto-optischen Effekte basierend auf linear polarisiertem Licht berücksichtigen, müssen auch für die *ab initio* berechneten XMLD-Spektren lineare Effekte, wie T-MOKE, durch Mittelung des Reflexionsvermögens entsprechend Gl. (2.40a) und (2.40b) eliminiert werden.

Der Vollständigkeit halber ist hier zu erwähnen, dass es insbesondere für Oxide und Verbindungen, welche die 3d-Übergangsmetalle enthalten, einen weiteren Ansatz zur Berechnung des XMLD gibt. Hierbei wird ein atomarer Ansatz gewählt. Die Begründung dieser Methode basiert darauf, dass für Ionen der 3d-Übergangsmetalle der Ein-Elektronen-Ansatz aufgrund der stark lokalisierten 3d-Elektronen nicht anwendbar ist. Für die Berechnungen wird ein einzelnes Atom oder Ion separat unter Einwirkung des Kristallfeldes betrachtet [107]. Auch mit dieser Methode können XMLD-Spektren reproduziert werden. In dieser Methode stehen jedoch Parameter zur Verfügung, um die Spektren anzupassen. Der in der vorliegenden Arbeit genutzte Ein-Elektronen-Ansatz kommt, bis auf den optischen Teil der Rechnung, völlig ohne zusätzliche Parameter aus, mit denen die berechneten Spektren an das Experiment angepasst werden könnten. Eine Reproduktion der XMLD-Spektren ist damit ein eindeutiger Hinweis auf die Validität dieser Methode.

Bezüglich des in dieser Arbeit vornehmlich diskutierten XMLD gibt es eine Besonderheit. Über den Ursprung der meisten magneto-optischen Effekte, wie T-MOKE oder XMCD, herrscht Einigkeit. Für den XMLD jedoch gibt es unterschiedliche Ansätze über den physikalischen Hintergrund des Effekts. Der Ursprung des XMLD wird zum einen in der Spin-Bahn-Aufspaltung im Valenzband [62; 108] vermutet und zum anderen in der Austauschufspaltung der Rumpfstände [65; 78]. Dabei konnte bereits gezeigt werden, dass der XMLD bei Vernachlässigung der Austauschufspaltung der Rumpfstände in den *ab initio* Rechnungen verschwindet [78; 109].



In den nachfolgenden Kapiteln wird gezeigt werden, dass die hier verwendete Methode der relativistischen Berechnung der Bandstruktur mittels LSDA die XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten vor allem an Fe sehr gut reproduzieren kann. Dabei ist es für die korrekte Berechnung nicht nur nötig die Abhängigkeit der  $3p$ -Zustände vom  $k$ -Vektor der Elektronen innerhalb der Brillouin-Zone zu berücksichtigen. Hinzu kommt, dass zwingend die Austauschspaltung der Rumpfstände berücksichtigt werden muss. Diese kann für die Spektren der  $3p$ -Kanten nicht wie in Rechnungen für Übergänge aus den  $2p$ -Zuständen als kleine Störung betrachtet werden, sondern muss im Detail in der Rechnung berücksichtigt werden. Erst diese akkurate Beschreibung der elektronischen Struktur des Kristalls ermöglicht die korrekte Berechnung der XMLD-Spektren und des Einflusses der magnetokristallinen Anisotropie auf diese. Die Anwendbarkeit dieses Modells für Fe, Co und Ni wird in den Kapiteln 4.6, 5.6 und 6.5 im Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen diskutiert.



## 3 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel erfolgt ein kurzer Abriss über Synchrotronstrahlung und es werden die in der vorliegenden Arbeit genutzten experimentellen Aufbauten beschrieben. Zudem werden die verwendeten Proben bezüglich ihrer Kristallstruktur und ihrer Beschaffenheit diskutiert.

### 3.1 Synchrotronstrahlung

Für die magneto-optischen Untersuchungen an den elementspezifischen Energien der Rumpfstände wurde in dieser Arbeit Synchrotronstrahlung genutzt. Dieser Abschnitt soll kurz die Erzeugung von Synchrotronstrahlung umreißen. Synchrotronstrahlung basiert auf der Strahlungsemission beschleunigter geladener Teilchen, in diesem Fall Elektronen. Diese werden auf nahezu Lichtgeschwindigkeit beschleunigt und in einem sogenannten Speicherring durch Magnetfelder näherungsweise auf einer Kreisbahn gehalten. Bei jeder Richtungsänderung der Elektronenbahn durch Umlenkmagnete wird ein Strahlungsbündel in Bewegungsrichtung der Elektronen emittiert, welches aus Photonen eines breiten kontinuierlichen Energiespektrums besteht. Durch geeignete Monochromatoren lässt sich ein Strahl der gewünschten Energie auskoppeln und zu experimentellen Untersuchungen verwenden. Ohne näher auf die verschiedenen Möglichkeiten der Strahlungserzeugung z.B. durch Ablenkmagnete und Undulatoren einzugehen, sollen nun einige wichtige Eigenschaften der Synchrotronstrahlung aufgezeigt werden, welche für die hier durchgeführten Experimente zwingend erforderlich sind:

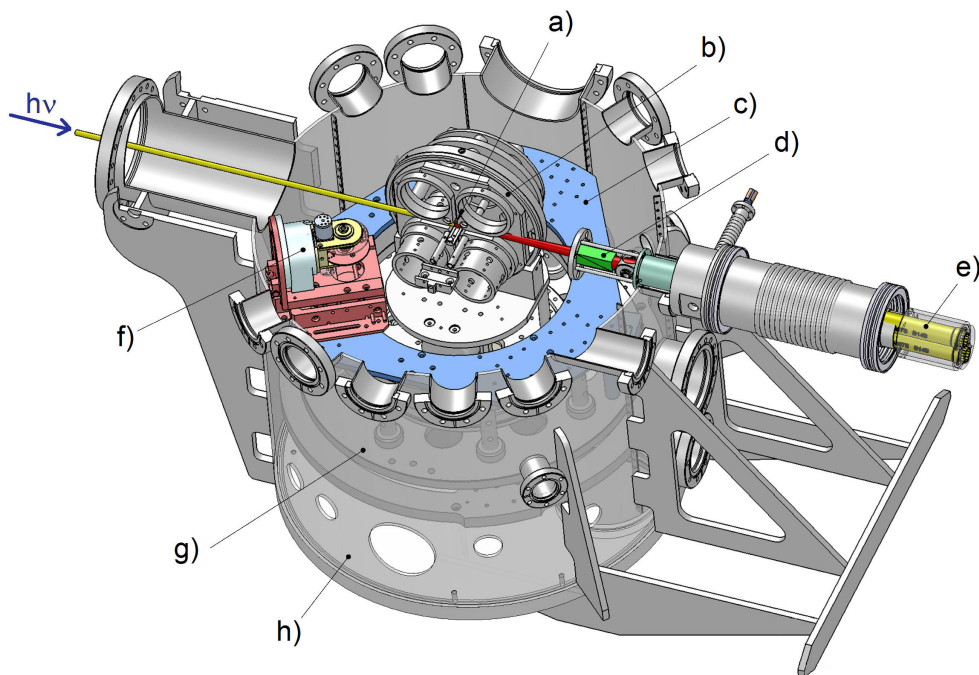
- Energiebereich: Synchrotronstrahlung deckt einen weiten Energiebereich ab. In dieser Arbeit wurde im extremen Ultraviolett (etwa 10-100 eV) und im weichen Röntgenbereich (etwa 100-1000 eV) gearbeitet. Ein Durchstimmen der Energie mittels Monochromatoren erlaubt es die spezifischen  $3p$ - und  $2p$ -Rumpfstände der hier verwendeten  $3d$ -Übergangsmetalle Fe, Co und Ni zu untersuchen.
- Polarisation: Synchrotronstrahlung ist polarisiert, dabei ist sowohl zirkulare als auch lineare Polarisation möglich. In dieser Arbeit wurde lineare Polarisation verwendet mit einem Polarisationsgrad besser als 0,99.
- Brillanz: Synchrotronstrahlungsquellen sind hochbrillant und liefern Licht, welches stark gebündelt ist und eine hohe Intensität hat. Diese Eigenschaften, wie sie z.B. auch bei Lasern zu finden sind, ermöglichen eine sehr gut definierte Strahlführung. Die hohe Intensität erlaubt es außerdem, das Signal-zu-Rausch Verhältnis zu erhöhen. Dies ist vor allem an den  $2p$ -Kanten wichtig, da in diesem Energiebereich die Proben nur noch ein Reflexionsvermögen von etwa  $10^{-6}$  aufweisen.

Die Messungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden sowohl an der Dortmunder Synchrotronstrahlungsquelle DELTA an den Strahlrohren 11 und 12 [110; 111] als auch am Berliner Synchrotron BESSY II an den Strahlrohren U125-2-SGM2 und UE56-2 PGM2 [112; 113]

durchgeführt. Weiterführende Informationen über die Erzeugung und experimentelle Nutzung von Synchrotronstrahlung findet sich z.B. in den Referenzen [114], [115] und [116].

### 3.2 XMAPS-Polarimeter

Die XMAPS-Experimentierkammer wurde im Rahmen dieser Arbeit entwickelt, aufgebaut und in Betrieb genommen. Sie bietet die Möglichkeit bei hohen magnetischen Feldstärken magneto-optische Untersuchungen in Reflexion und Transmission durchzuführen und sowohl die Lichtintensität als auch den Polarisationsgrad des Lichts vor und nach Wechselwirkung mit einer Probe zu bestimmen.



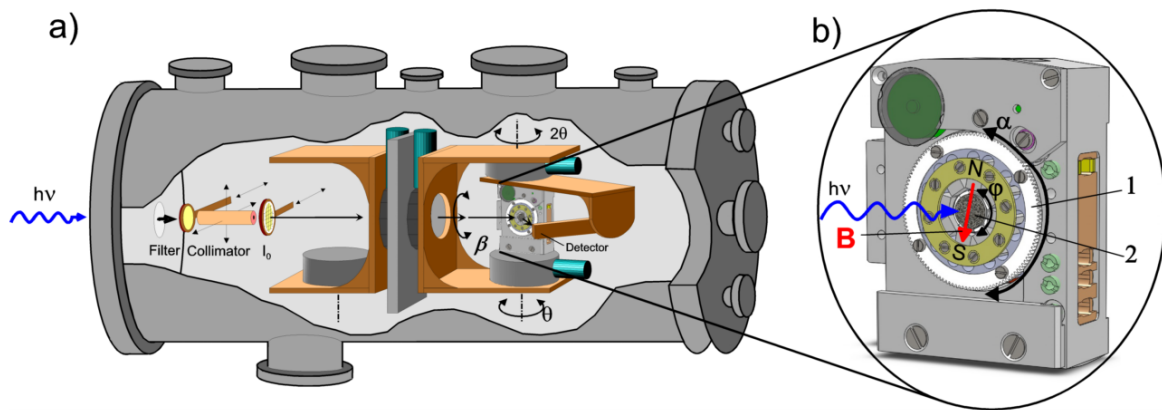
**Abbildung 3.1:** Aufbau der XMAPS-Experimentierkammer: Das von links kommende Licht wird von der Probe (a) im Zentrum des TetraMag [117] (b) reflektiert. Die Strahlanalyse erfolgt mittels auf einer Detektorplattform (c) angebrachten Analyseinstrumenten (f). Für sichtbares Licht und nahes UV können zusätzliche Instrumente basierend auf einem Wollaston-Prisma (d) und Photomultipliern (e) an der Kammer angebracht werden. Der Einfallswinkel des Lichts kann über ein  $\theta/2\theta$ -Goniometer (g) eingestellt werden. Für den Einsatz am Synchrotron ist die Anlage in eine UHV-taugliche Kammer (h) mit einem Durchmesser von 600mm integriert.

Der Aufbau der Kammer ist in Abb. 3.1 skizziert. Die Kammer ist für Experimente sowohl mit Synchrotronstrahlung als auch mit sichtbarem Licht ausgelegt. Da in dieser Arbeit ausschließlich mit Synchrotronstrahlung gearbeitet wurde, wird sich im Folgenden auf die hierfür notwendigen Komponenten beschränkt. Eine ausführliche Beschreibung der Kammer ist in Referenz [72] zu finden. Das Synchrotronlicht wechselwirkt, nachdem es Elemente zur Strahlanalyse und -modellierung passiert hat (nicht gezeigt in Abb. 3.1), mit der Probe in der Mitte der Kammer. Diese befindet sich in einem eigens hierfür entwickelten TetraMag [117], einer Magnetisierungsvorrichtung welche mittels NdFeB-Permanentmagneten ein im Probenbereich homogenes, in Stärke und Richtung variables, magnetisches Feld bis zu  $B = 500$  mT erzeugt,

das in Schritten von  $\Delta B = 0,02 \text{ mT}$  regelbar ist. Das TetraMag befindet sich auf dem inneren Ring eines  $\theta/2\theta$ -Goniometers, so dass der Einfallswinkel des Lichts zwischen  $\theta = 0^\circ$  und  $\theta = 88,5^\circ$  in  $\Delta\theta = 0,01^\circ$  Schritten eingestellt werden kann. Nach Wechselwirkung mit der Probe kann das reflektierte bzw. transmittierte Licht in Intensität und Polarisationszustand untersucht werden. Dazu befinden sich auf dem äußeren Ring des Goniometers sowohl eine Photodiode als auch ein Rabinovich-Detektor [118]. Die Kombination von in Richtung und Stärke variablem B-Feld, durchstimmbarem Einfallswinkel und den zwei Detektortypen ermöglicht eine Vielzahl von magneto-optischen Untersuchungen.

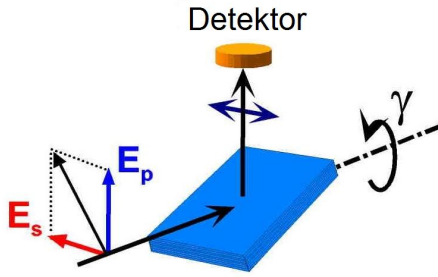
### 3.3 BESSY-Polarimeter

Das am Berliner Synchrotron BESSY entwickelte Polarimeter [119] bietet, ähnlich der XMAPS-Experimentierkammer, die Möglichkeit diverser magneto-optischer Untersuchungen und diente bereits mehrmals als Experimentierkammer bei der erstmaligen Untersuchung magneto-optischer Effekte im Röntgenbereich [80; 109].

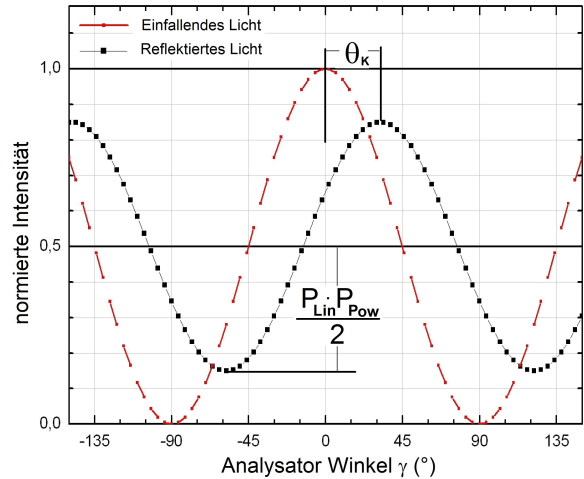


**Abbildung 3.2:** a): Aufbau des BESSY-Polarimeters. b): Integrierte Magnetisierungsvorrichtung „MiniMag“. (Details siehe Text)

In Teil a) von Abb. 3.2 ist das Polarimeter skizziert. Es ist für Transmissions-, Reflexions- und Absorptionsmessungen ausgelegt. Da in dieser Arbeit nur Reflexionsmessungen behandelt werden, ist die Erläuterung auf die entsprechenden Komponenten beschränkt. Weitergehende Informationen zum Polarimeter sind in Referenz [119] zu finden. Das Kernstück der Anlage ist das Mehrachsgoniometer. Das Licht trifft, nachdem es Elemente zur Analyse und Modellierung des einfallenden Lichts passiert hat, auf die im Zentrum des Goniometers angebrachte Probe. Der Einfallswinkel der Probe kann über den Winkel  $\theta$  von streifendem bis nahe senkrechten Einfall variiert werden. Die Elemente zur Strahlanalyse des reflektierten Lichts können über den Winkel  $2\theta$  in den reflektierten Strahl gefahren werden. Zusätzlich lässt sich das Goniometer über den Winkel  $\beta$  um die Lichtachse drehen, dies ermöglicht eine stufenlose Einstellung der Lichtpolarisation bezüglich der Einfallsebene von s-Polarisation bis p-Polarisation. Der reflektierte Strahl kann mit GaAs:P-Photodioden in seiner Intensität oder mit einem Rabinovich-Analysator in seinem Polarisationsgrad untersucht werden. Ein schneller *in situ* Austausch der Proben ermöglicht es dabei, ohne große zeitliche Verzögerung zu den Reflexionsmessungen den einfallenden Strahl zu vermessen und so das absolute Reflexionsvermögen der Proben bestimmen zu können.



**Abbildung 3.3:** Prinzip eines Rabinovich-Analysators. (Details siehe Text)



**Abbildung 3.4:** Prinzip einer Polarisationsanalyse. (Details siehe Text)

Das Funktionsprinzip des Rabinovich-Analysators ist in Abb. 3.3 dargestellt. Der Rabinovich-Detektor besteht aus einem Spiegel und einer Photodiode. Das Licht trifft auf den im Brewsterwinkel angeordneten Spiegel, so dass der bezüglich des Spiegels p-polarisierte Anteil des Lichts bestmöglich unterdrückt wird. Durch Drehung des Analysators um die Lichtachse kann so der Polarisationsgrad des Lichts bestimmt werden, solange es vollständig polarisiert ist. Das Prinzip einer solchen Messung ist in Abb. 3.4 dargestellt. Die rote gestrichelte Kurve zeigt eine Messung für einfallendes 100% linear polarisiertes Licht, die schwarzen Symbole zeigen eine Beispielmessung für das reflektierte Licht mit gedrehter Polarisationssebene und elliptischer Polarisation. Der Versatz der Messkurve des reflektierten Lichts bezüglich der Messkurve für das einfallende Licht gibt direkt die Drehung  $\theta_K$  der Polarisationssebene an. Der Grad der Polarisation lässt sich aus der Amplitude des normierten sinusförmigen Signals ermitteln, wobei davon ausgegangen wird, dass das Licht keine unpolarisierten Anteile enthält. Bei einer Amplitude von 1 ist das Licht 100% linear polarisiert, für eine Amplitude von 0 hingegen 100% zirkular. Werte zwischen 0 und 1 gehören zu elliptisch polarisiertem Licht. Bei bekanntem Polarisationsvermögen  $P_{Pow}$  des Spiegels kann der Grad der Elliptizität ermittelt werden zu

$$\epsilon_K = \frac{\arcsin\left(\sqrt{1 - P_{Lin}^2}\right)}{2} \quad (3.1)$$

Für magneto-optische Messungen enthalten die Werte  $\theta_K$  und  $\epsilon_K$  die vollständige magnetische Information (Vergl. auch Kap. 2.2.4).

### 3.4 MiniMag

Für die in dieser Arbeit vorgestellten XMLD-Messungen wurden die Proben entlang verschiedener Kristallachsen magnetisiert. Zur Ausrichtung der Probenmagnetisierung muss sich die Probe während der Messungen in einem äußeren Feld befinden, welches parallel zur Probenoberfläche gedreht werden kann. Zudem muss, um das E-Feld entlang einer beliebigen Kristallachse ausrichten zu können, die Probe um die Oberflächennormale gedreht werden können. Zu

diesem Zweck wurde im Rahmen dieser Arbeit das „MiniMag“ entwickelt und erfolgreich eingesetzt. Das MiniMag ist eine Magnetisierungsvorrichtung, welche in das BESSY-Polarimeter integriert werden kann und die Messmöglichkeiten des BESSY-Polarimeters entscheidend erweitert.

Eine schematische Zeichnung des MiniMag ist in Abb. 3.2 b) zu finden. Die Probe (2) befindet sich im Zentrum des MiniMag und kann um den Winkel  $\varphi$  um die Oberflächennormale gedreht werden. Um die Probe herum sind 8 NdFeB-Permanentmagnete kreisförmig angeordnet. Die Anordnung der Magnete ist so gewählt, dass sie ein resultierendes homogenes Dipolfeld am Probenort erzeugen. Die Magnete befinden sich auf einem drehbaren Ring (1), so dass das Feld innerhalb der Probenoberfläche beliebig ausgerichtet werden kann. Es stehen zwei Typen von Magnetringen zur Verfügung, welche Felder mit einer magnetischen Flussdichte von etwa  $B = 200 \text{ mT}$  und  $B = 250 \text{ mT}$  am Probenort erzeugen. Diese starken Felder sind notwendig, um die Probenmagnetisierung in Sättigung zu bringen und könnten mit einer Anordnung aus Spulen nur mit sehr hohem Aufwand erzeugt werden. Die Drehung von Probe und Magnetfeld wird über zwei Schrittmotoren gesteuert, welche in das etwa  $50 \text{ mm} \times 80 \text{ mm}$  große MiniMag integriert sind. Die Genauigkeit, mit der sowohl der Probenwinkel als auch das Magnetfeld eingestellt werden können, beträgt in etwa  $\Delta\varphi = 0,8^\circ$  und  $\Delta\alpha = 0,8^\circ$ . Der Vorteil dieser äußerst kompakten Anordnung besteht darin, dass die für die XMLD-Messungen erforderlichen 4 Messpunkte mit jeweils um  $90^\circ$  gedrehter Magnetisierungsrichtung (siehe Kap. 2.2.5) innerhalb einer kurzen Zeitspanne von etwa 2 Sekunden aufgenommen werden können, was die Auswirkungen von Langzeitdrifts während der Messung nahezu vollständig eliminiert und die Messunsicherheit in den Asymmetrie-Spektren auf unter  $0,02\%$  reduziert. Erst durch den Einsatz des MiniMag konnten brauchbare XMLD-Messungen an den  $3p$ -Kanten von Fe, Co und Ni durchgeführt werden.

### 3.5 E.M.M.A.

Um das MiniMag auch im Labor und an anderen Synchrotronstrahlungsquellen einsetzen zu können, wurde der *Extended MiniMag Apparatus* (E.M.M.A.) konstruiert. Die E.M.M.A.-Vakuumkammer beinhaltet eine drehbare Halterung für das MiniMag und ist mit Photomultipliern ausgestattet, mit welchen das reflektierte Signal detektiert werden kann. Die Photomultiplier sind außerhalb der Vakuumkammer angebracht, daher wird das reflektierte Synchrotronlicht zuerst durch mit Leuchtstoffen beschichtete Fenster in sichtbares Licht umgewandelt. Mit der E.M.M.A.-Experimentierkammer können magneto-optische Messungen in Reflexion sowohl für nahe senkrechten Einfall als auch im Bereich des Brewsterwinkels durchgeführt werden. In dieser Arbeit wurde die E.M.M.A.-Kammer am Synchrotron DELTA eingesetzt um T-MOKE und XMLD an den Fe  $2p$ -Kanten für nahezu senkrechten Einfall zu messen (siehe Kap. 4.5).

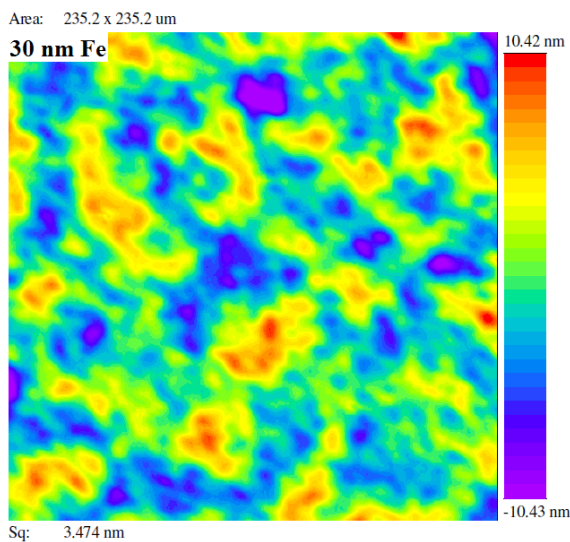
### 3.6 Proben

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben wurden mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) am PGI-6 des Forschungszentrum Jülich hergestellt. Als Substrat wurde für alle Proben ein GaAs(001)-Wafer genutzt welcher mit einer  $1 \text{ nm}$  Fe- und einer  $150 \text{ nm}$  Ag(001)-Pufferschicht bedeckt wurde. Das Aufbringen der Ag-Schicht ist, insbesondere für Fe-Kristalle,

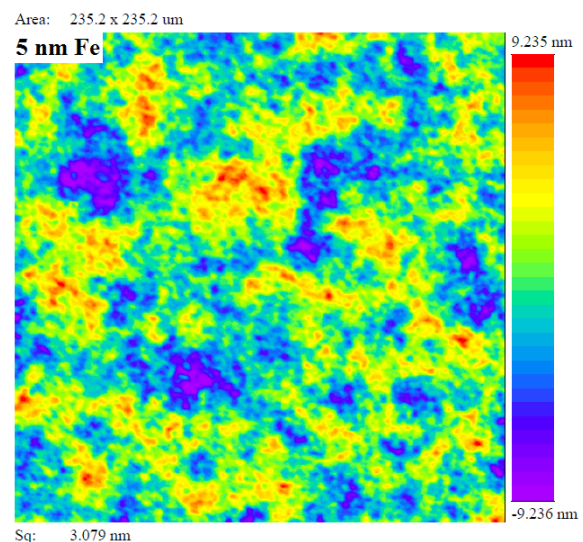
eine gut verstandene und häufig angewendete Methode um eine saubere und möglichst störstellenfreie Oberfläche für das Kristallwachstum der eigentlichen Probe zu ermöglichen [120; 121]. Auf die Ag-Schicht wurde dann jeweils die eigentliche Probe, also eine Fe-, Co- oder Ni-Schicht aufgebracht. Zum Schutz vor Oxidation wurden alle Proben anschließend mit 3 nm Au bedeckt. Auch wenn die Methode des Kristallwachstums mit einer Ag-Pufferschicht für Ni und Co noch nicht detailliert erforscht wurde, konnte die Kristallinität aller Proben mit *low energy electron diffraction* (LEED) Messungen nachgewiesen werden. Dabei zeigten alle Proben, wie erwartet, eine vierzählige Symmetrie. Die Topografie der Probenoberflächen wurde einige Tage nach der Fertigung mit einem Weißlichtinterferometer am BESSY untersucht. Des Weiteren wurden die Proben mittels Rasterelektronenmikroskopie (REM) und energie-dispersiver Röntgenspektroskopie (EDX) untersucht [122]. In den nachfolgenden Abschnitten werden die Proben im Einzelnen beschrieben. Alle an den Proben durchgeführten Messungen sind bei Raumtemperatur erfolgt und damit selbst bei den dünnsten Filmen weit unterhalb den Curie-Temperaturen von Fe (770°C), Co (1115°C) und Ni (354°C) [123].

### 3.6.1 Eisen

Die stabile Struktur von Fe bei Raumtemperatur ist  $\alpha$ -Fe mit einer bcc-Struktur der Kristallklasse  $3\bar{m}3$  [124]. Die in dieser Arbeit untersuchten Eisen-Proben haben Schichtdicken von 5 nm, 10 nm, 20 nm, 30 nm und 50 nm. Das epitaktische Wachstum für Fe auf Ag ist gut verstanden [121]. Die bcc-Struktur des Fe wächst dabei um  $45^\circ$  gedreht auf der Ag-Schicht auf, so dass die Diagonale der bcc-Einheitszelle mit etwa 0,405 nm zu der Kantenlänge des Ag fcc-Kristalls mit ca. 0,409 nm passt.



**Abbildung 3.5:** Aufnahme der Oberfläche der 30 nm Fe-Probe mit einem Weißlichtinterferometer. Die abgebildete Fläche misst  $235,2 \mu\text{m} \times 235,2 \mu\text{m}$ . Der maximale Höhenunterschied beträgt ca. 20 nm die mittlere Rauigkeit  $\sigma_{rms} \approx 3,5$  nm.

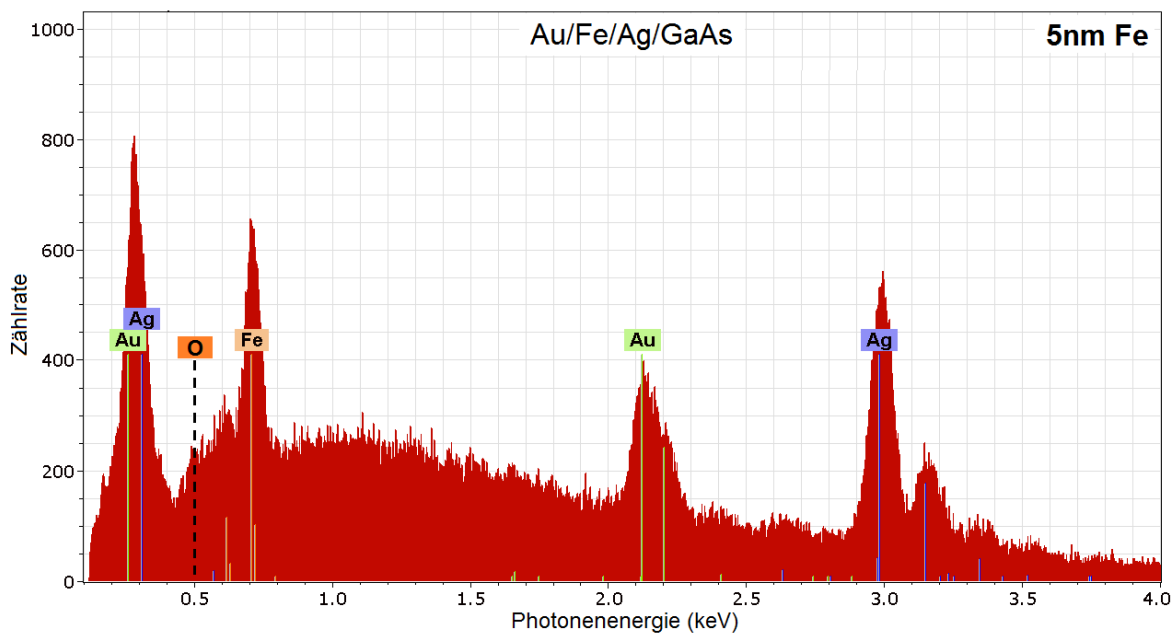


**Abbildung 3.6:** Aufnahme der Oberfläche der 5 nm Fe-Probe mit einem Weißlichtinterferometer. Obwohl der maximale Höhenunterschied und die mittlere Rauigkeit mit 18,5 nm bzw. 3,1 nm ähnlich den Werten der 30 nm Probe sind, unterscheidet sich die Topographie stark.



Für die Proben mit 5 nm, 20 nm und 30 nm wurde exemplarisch die Oberflächenbeschaffenheit mittels Weißlichtinterferometrie untersucht. Abbildung 3.5 zeigt die Oberfläche der 30 nm Fe-Probe. Zu sehen sind Höhenunterschiede von bis zu 20,85 nm. Dies mag zwar in Anbetracht der Fe-Schichtdicke sehr groß erscheinen, es existieren jedoch über mehrere  $\mu\text{m}$  ausgedehnte Bereiche, in denen sich die „Höhe“ nur sehr geringfügig ändert. Es werden daher keine starken Effekte durch die Oberflächenstruktur in den magneto-optischen Messungen, wie sie z.B. durch gebrochene Symmetrien an Kristallkanten oder durch magnetische Formanisotropie auftreten können, erwartet.

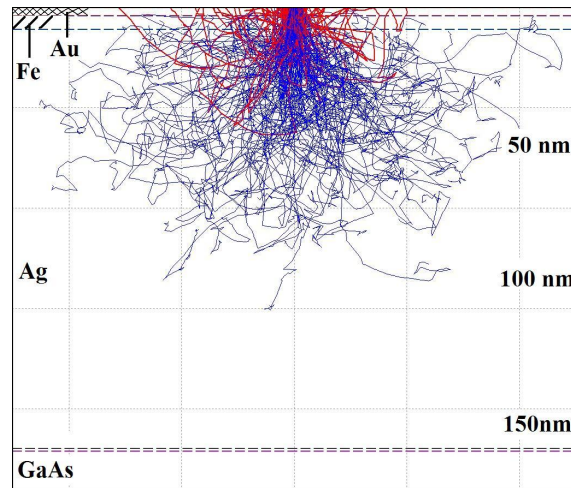
Anders verhält es sich mit der Topographie der 5 nm Fe-Probe (Abb. 3.6). Hier sind die Werte für den maximalen Höhenunterschied und die mittlere Rauigkeit zwar ähnlich der 30 nm Probe, jedoch sind die Bereiche mit konstanter Höhe weniger weit ausgedehnt als für die 30 nm Probe. Dementsprechend sind auch eventuelle Einflüsse auf die magneto-optischen Messungen eher bei der 5 nm Probe zu erwarten. Eine Messung an der 20 nm Probe hat ein ähnliches Bild ergeben wie das der 30 nm Probe. Die 10 nm Probe wurde nicht vermessen. Es ist aber anzunehmen, dass diese den Proben mit 20 nm und 30 nm Fe ähnelt, da die 10 nm, 20 nm und 30 nm Probe simultan hergestellt wurden. An dieser Stelle ist zu erwähnen, dass die Aufnahmen mittels Weißlichtinterferometrie nur die gesamte Oberflächenrauigkeit zeigen. Welche Schichten zur Rauigkeit wie stark beitragen, kann mit dieser Methode nicht bestimmt werden. Es ist jedoch zu vermuten, dass die dicksten Schichten (hier Ag) den größten Beitrag liefern.



**Abbildung 3.7:** EDX-Analyse der 5 nm Fe-Probe 5 Monate nach Herstellung. Zu sehen sind deutlich die erwarteten Elemente Fe, Ag und Au. Eine Oxidation der Probe kann ausgeschlossen werden, da sich keine Spuren von Sauerstoff finden.[122]

Zusätzlich zur Betrachtung der Probenoberfläche wurde für die 5 nm Probe die elementare Zusammensetzung mittels EDX-Analyse bestimmt. Die Messung wurde ca. 5 Monate nach Herstellung der Probe durchgeführt. Die Probe lagerte während dieser Zeit an Atmosphäre. Das in Abb. 3.7 gezeigte EDX-Spektrum zeigt klare Peaks bei den erwarteten Elementen Fe, Ag und Au. Ga und As sind nicht zu sehen, dies entspricht jedoch ebenfalls den Erwartungen,

da das EDX-Spektrum mit einer Elektronenenergie von 5 keV aufgenommen wurde. Bei dieser Energie erreichen die Elektronen das GaAs-Substrat nicht, wie eine einfache Monte-Carlo Simulation zeigt (Abb. 3.8). An der charakteristischen Energie für Sauerstoff bei etwa 0,5 keV ist in Abb. 3.7 nur eine sehr schwach ausgeprägte Schulter zu sehen. Zwar ist die EDX-Analyse für leichte Elemente nicht so empfindlich, eine Oxidation der Fe-Schicht würde sich jedoch als Peak im Spektrum bemerkbar machen, so dass eine Oxidation der Probe ausgeschlossen werden kann [125]. Die sehr schwach ausgeprägte Schulter deutet eher auf Ablagerungen an der Oberfläche hin, wie es für an Atmosphäre gelagerte Proben zu erwarten ist.



**Abbildung 3.8:** Bestimmung der Informationstiefe des EDX-Signals mittels einer Monte-Carlo-Simulation [122] durchgeführt mit dem Programm CASINO [126].

Für die anderen Proben liegen keine EDX-Daten vor. Da die 5 nm Probe durch die hohe Rauigkeit die größte Oberfläche besitzt und dementsprechend anfälliger ist für Oxidation, ist die Annahme berechtigt, dass auch die anderen Proben keine wesentliche Oxidation zum Zeitpunkt der magneto-optischen Messungen aufgewiesen haben.

### 3.6.2 Kobalt

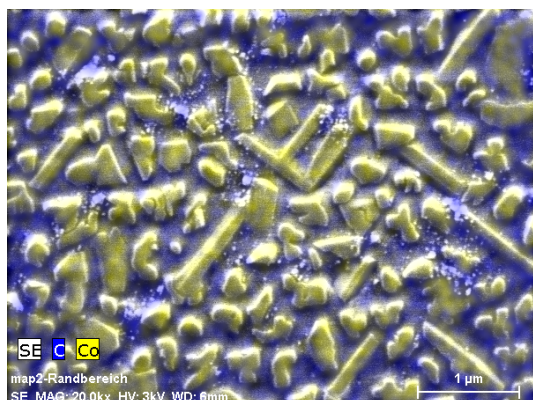
Eine bekannte Methode dünne kristalline Co-Schichten herzustellen ist es, das Co auf einer Au-Schicht aufzuwachsen. Die Kristallstruktur von Co, welches auf einer Au-Schicht aufwächst, zeigt eine Zwillingings-hcp-Struktur, welche über die gesamte Oberfläche integriert eine vierzählige Symmetrie aufweist [127; 128; 129]. Dabei wächst der Co-Kristall mit der  $(11\bar{2}0)$ -Ebene parallel zur Oberfläche auf (siehe Abb. 5.8, Kap. 5.1), wobei die c-Achse des Kristalls sowohl in  $[110]$ - als auch in  $[1\bar{1}0]$ -Richtung der Au-Schicht zeigen kann.

Erste Versuche das Co kristallin auf einer Au-Schicht aufzubringen schlugen jedoch fehl. Daher wurde in einem zweiten Versuch als Substrat, wie bei den Fe- und Ni-Proben, ein GaAs(001)-Wafer mit einer darauf aufgewachsenen Ag(001)-Schicht gewählt. Für die auf diese Weise hergestellten Co-Proben konnte eine vierzählige Symmetrie des Co durch LEED-Aufnahmen nachgewiesen werden. Über die genaue kristalline Struktur von Co auf Ag liegen allerdings nur wenige Vergleichsdaten vor. Für ultradünne Schichten von 1 – 3 Atomlagen wächst das Co mit der gleichen Struktur wie das kristalline Ag(001) auf [130]. Für Schichten dicker als drei Monolagen ist diese Struktur jedoch nicht mehr stabil. Au und Ag haben mit  $a_{Au} = 0,408$  nm bzw.

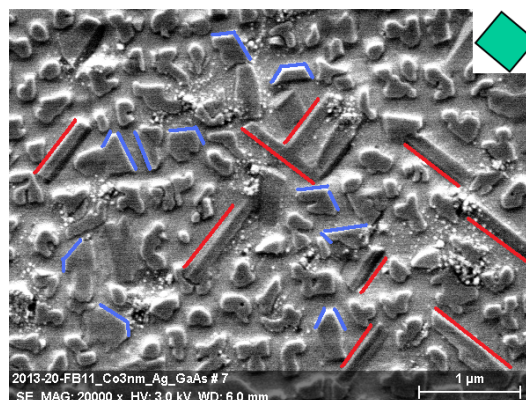
$a_{Ag} = 0,409$  nm eine ähnliche Gitterkonstante, wodurch ein ähnliches Verhalten für dickere Co Schichten auf Ag wie auf Au denkbar ist. Im Folgenden sollen hier mehrere Möglichkeiten für das kristalline Wachstum des Co in Erwägung gezogen werden. Folgendes Kristallwachstum für Co auf Ag ist denkbar [131]:

- Das Co wächst in einer Zwillings-hcp-Struktur mit einer  $(11\bar{2}0)$ -Oberfläche auf.
- Das Co wächst in fcc-Struktur mit einer  $(001)$ -Oberfläche auf.
- Das Co wächst in hcp-Struktur mit einer  $(0001)$ -Oberfläche auf das Ag auf.
- Die Kristallstruktur ist fcc und wächst mit einer  $(111)$ -Oberfläche auf.

Die letzten beiden Möglichkeiten lassen sich durch die vierzählige Symmetrie, die in den LEED-Aufnahmen beobachtet werden konnte, ausschließen. Die ersten beiden Möglichkeiten weisen beide eine vierzählige Symmetrie auf und können mit LEED-Messungen nur schwer unterschieden werden. Daher wurde die Co-Probe zusätzlich mittels REM untersucht.

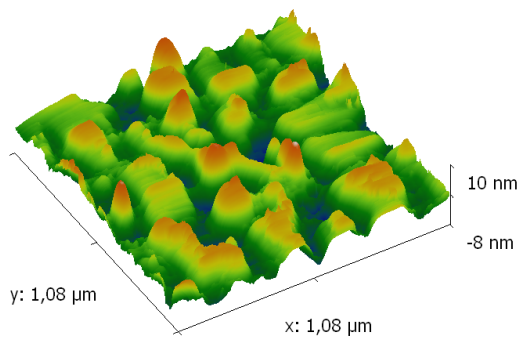


**Abbildung 3.9:** Kombinierte EDX-REM-Aufnahme der 3 nm Co-Probe. Das Co (gelb dargestellt) zeigt ein klares Inselwachstum. Die Darstellung des Kohlenstoffs (blau), welcher als Oberflächenkontamination für eine an Atmosphäre gelagerten Probe zu erwarten ist, dient als Kontrast.

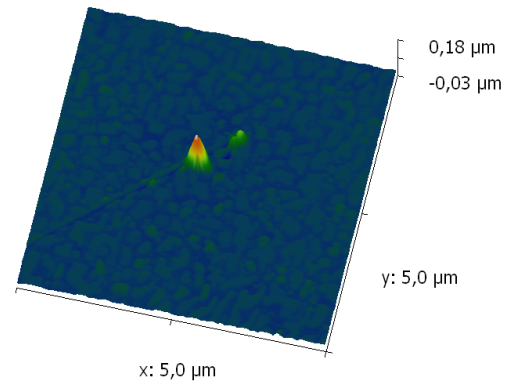


**Abbildung 3.10:** Die Co-Inseln weisen sowohl rechtwinklige Kantenverläufe (Rot) auf, wie sie typisch für vierzählige Symmetrien sind, als auch Kantenwinkel von  $60^\circ$  und  $120^\circ$ , die auf eine sechszählige Symmetrie hinweisen (Blau). Rechts oben ist die makroskopische Orientierung der Probe skizziert.

In den Abbildungen 3.9 und 3.10 ist eine Aufnahme mit 20000-facher Vergrößerung zu sehen. Abb. 3.9 zeigt die Verteilung der Elemente Co und C. Die Darstellung des Kohlenstoffs dient hier nur zur Verbesserung des Kontrastes. Eine gleichmäßige Bedeckung der Oberfläche mit Kohlenstoff ist durch die Lagerung der Probe an Atmosphäre durchaus üblich. Klar zu erkennen ist ein Inselwachstum mit größtenteils klar definierten Kanten. Das Co ist dabei hauptsächlich auf den Inseln zu finden, während die Co-Konzentration in den Zwischenräumen sehr gering ist. In Abb. 3.10 sind die Kantenverläufe der Co-Inseln hervorgehoben. Dabei ist zu erkennen, dass es neben klaren rechtwinkligen Strukturen (rote Linien), die auf eine vier- bzw. zweizählige Symmetrie hinweisen, auch Kantenverläufe gibt, die einen Winkel von  $60^\circ$  oder  $120^\circ$  einschließen, wie sie für hcp-Kristalle üblich sind. Es muss daher davon ausgegangen werden, dass beide Kristallstrukturen in der Co-Probe vorliegen. Die in den LEED-Messungen gefundene vierzählige Symmetrie weist aber auf eine Dominanz der vierzähligen Strukturen hin.



**Abbildung 3.11:** AFM-Bild der Co-Probe. Die Co-Inseln weisen eine Höhe von 10 nm bis 20 nm auf.

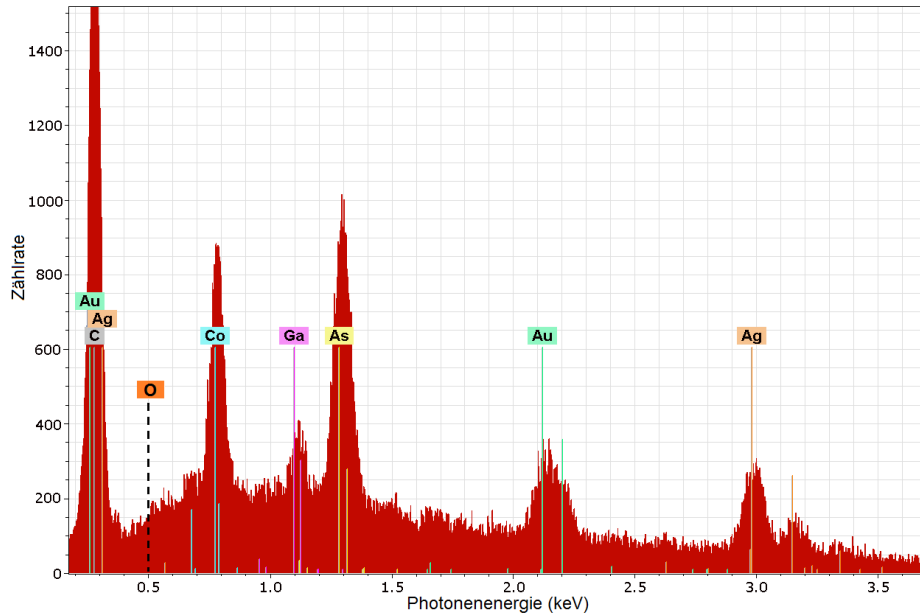


**Abbildung 3.12:** AFM-Bild einer anderen Stelle auf der Co-Probe. Neben der Inselstruktur aus Abb. 3.11 sind auch einzelne Strukturen von mehr als 100 nm Höhe zu erkennen.

Zur weiteren Charakterisierung der Probenoberfläche wurden am BESSY Messungen mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM) durchgeführt. Die Abbildungen 3.11 und 3.12 zeigen zwei ausgewählte Stellen der Probenoberfläche in unterschiedlicher Auflösung. Abb. 3.11 zeigt ein Höhenprofil der Inselstruktur wie sie in Abb. 3.9 zu sehen ist. Die z-Achse ist dabei stark vergrößert dargestellt. Die gleichmäßig verteilten Co-Inseln haben eine laterale Ausdehnung von wenigen 100 nm und eine Höhe von etwa 10 nm bis 15 nm. Zusätzlich zu den nur wenige nm hohen Inseln in Abb. 3.11 lässt sich in Abb. 3.12 noch eine zweite „Inselart“ von einigen 100 nm Höhe identifizieren, welche ungleichmäßig über die gesamte Probe verteilt sind. Worum es sich bei diesen Strukturen genau handelt, konnte nicht abschließend geklärt werden. Da diese großen Strukturen jedoch nur einen sehr geringen Teil der Oberfläche ausmachen und die kleineren Co-Inseln gleichmäßig über die gesamte Oberfläche verteilt sind, spielen sie in der weiteren Auswertung der Ergebnisse nur eine untergeordnete Rolle.

Abschließend soll noch auf eine Besonderheit der Co-Probe eingegangen werden. Eine EDX-Analyse (Abb. 3.13) zeigt, dass neben dem erwarteten Signal für Co, Au und Ag auch signifikante Anteile von Ga und As zu finden sind. Dies ist unerwartet, da die Eindringtiefe der mit 5 keV beschleunigten Elektronen nur ca. 50 nm bis 100 nm beträgt (siehe Abb. 3.8), diese also den GaAs-Wafer nicht erreichen. Es scheint also eine Diffusion des GaAs in die Ag-Schicht gegeben zu haben. Messungen an verschiedenen Stellen zeigen unterschiedliche Anteile von Ga und As. Diese inhomogene Verteilung könnte auch ein Grund für das Inselwachstum des Co sein. Es fällt außerdem auf, dass die in Abb. 3.10 gezeigten rechtwinkligen Kristallstrukturen vorzugsweise in den As-dominierten Gebieten vorkommen, während die eher sechszähligen Strukturen in den Ga-dominierten Bereichen auftreten (hier nicht gezeigt). Der Grund für diese Verteilung ist ebenfalls nicht eindeutig geklärt.

Es lässt sich also zusammenfassen, dass die Co-Probe nur bis zu einem gewissen Grad definiert ist. Aufgrund der Tatsache, dass über die LEED Messungen eine vierzählige kristalline Struktur gemessen werden konnte, werden die an dieser Probe erzielten Messergebnisse an den  $3p$ -Kanten in die vorliegende Arbeit miteinbezogen. Dabei ist allerdings zu beachten, dass LEED nur sensitiv für die Kristallstruktur an der Oberfläche ist, eine vierzählige Struktur im Volumen kann daher nur vermutet werden.



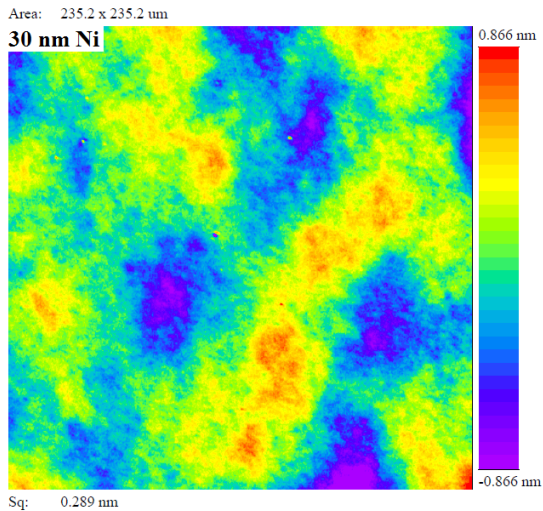
**Abbildung 3.13:** Die EDX-Analyse des Co nach mehreren Monaten Lagerung an Atmosphäre zeigt neben den erwarteten Co-, Ag- und Au-Anteilen auch klare Peaks bei den Substrat-Elementen Ga und As, allerdings keine Zeichen von Oxidation.[122]

Für eine weitere Messreihe an den  $2p$ -Kanten wurde zu einem späteren Zeitpunkt noch eine weitere Co-Probe hergestellt. Diese Probe wies ähnlich den Fe- und Ni-Proben eine homogene Probenoberfläche ohne Inselbildung und keine Anzeichen einer Durchmischung mit GaAs auf.

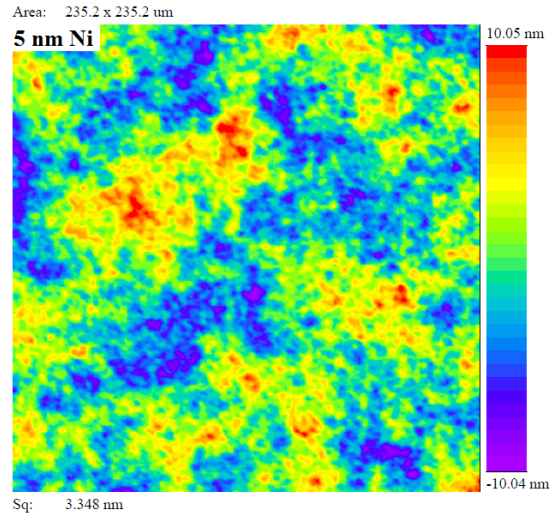
### 3.6.3 Nickel

Die Gitterkonstante von Ni ( $a_{Ni} = 0,352 \text{ nm}$ ) [132] weicht von der Gitterkonstante von Ag ( $a_{Ag} = 0,409 \text{ nm}$ ) um etwa 14% ab. Dennoch ist ein kristallines Wachstum von Ni auf Ag möglich. In den wenigen Quellen, die es zum Wachstum von Ni auf Ag gibt [133; 134], konnte beobachtet werden, dass die Gitterkonstante der Ni-Schicht direkt an der Grenzschicht ihren Volumenwert annimmt, so dass in den folgenden Atomlagen nahezu keine Verzerrung der Kristallstruktur vorliegt. Da die hier untersuchten Proben alle dicker als 5 nm sind, kann also von einer idealen fcc-Struktur ausgegangen werden. Die Orientierung des Ni-Kristalls ist nach den obigen Überlegungen parallel zur fcc-Struktur des Ag. Demnach liegt die  $\langle 100 \rangle$ -Richtung diagonal in der Probenoberfläche. Die in Kap. 6.1 vorgestellten Hysterese-Messungen werden dies bestätigen.

Es wurden vier Proben hergestellt mit den Schichtdicken 5 nm, 10 nm, 20 nm und 30 nm. In den Abbildungen 3.14 und 3.15 ist die Oberflächenbeschaffenheit der 30 nm bzw. der 5 nm Probe zu sehen, aufgenommen mit Weißlichtinterferometrie. Die 30 nm dicke Ni-Probe zeigt eine nahezu ideale Probenoberfläche mit Schwankungen in der Höhe von nur wenigen Atomlagen und mit einer mittleren Rauigkeit von  $\sigma_{rms} = 0,29 \text{ nm}$ . Die 5 nm dicke Ni-Schicht hat im Gegensatz hierzu eine zehnfach höhere Rauigkeit von  $\sigma_{rms} = 3,3 \text{ nm}$  und variiert in der Höhe um  $\pm 10 \text{ nm}$ . Das Höhenprofil ist ähnlich der Oberfläche der 5 nm Fe-Probe stark strukturiert,



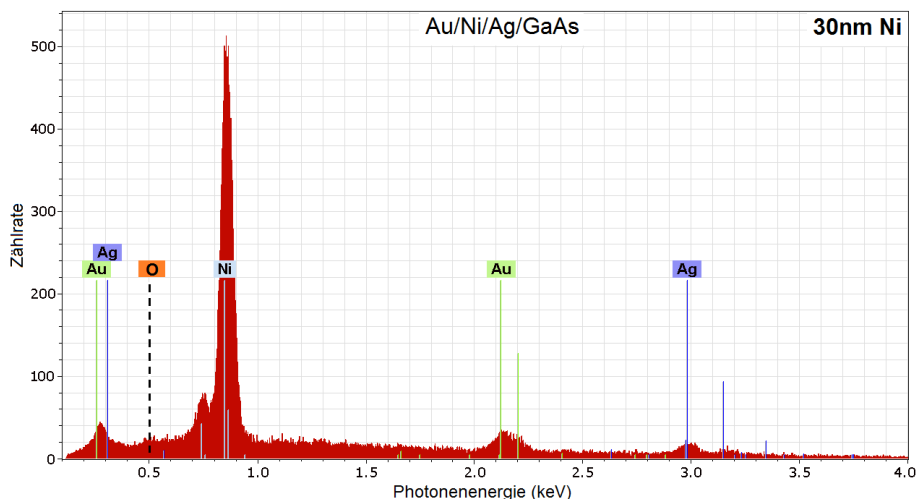
**Abbildung 3.14:** Oberfläche der 30 nm Ni-Probe. Die abgebildete Fläche mit  $235,2 \mu\text{m} \times 235,2 \mu\text{m}$  ist mit einer mittleren Rauigkeit von  $\sigma_{rms} = 0,3 \text{ nm}$  nahezu plan.



**Abbildung 3.15:** Die Oberfläche der 5 nm Ni-Probe zeigt eine starke Strukturierung mit einem maximalen Höhenunterschied von ca. 20 nm und einer mittleren Rauigkeit von  $\sigma_{rms} = 3,3 \text{ nm}$ .

so dass es vermutlich viele Bereiche gibt, an denen die kristalline Symmetrie durch Kanten und Stufen gestört ist. Diese Unterschiede müssen bei der Auswertung der magneto-optischen Effekte berücksichtigt werden.

Zusätzlich zu den Messungen der Topographie wurde eine EDX-Analyse durchgeführt (Abb. 3.16). Die Probe lagerte zu diesem Zeitpunkt schon ca. vier Monate an Atmosphäre, trotzdem sind keine Spuren einer Oxidation zu erkennen. Es finden sich in der Probe, wie erwartet, nur die Elemente Ni, Ag und Au.



**Abbildung 3.16:** EDX-Analyse der 30 nm Ni-Probe 4 Monate nach Herstellung. Neben Ag und Au ist ein stark ausgeprägter Ni-Peak zu sehen. Spuren von Oxidation finden sich nicht [122].

### 3.6.4 Zusammenfassung

Zur Übersicht sind im Folgenden noch einmal die topologischen Eigenschaften der einzelnen Proben zusammengestellt. In den Tabellen sind die Werte für die Schichtdicke  $d$ , die mittlere Rauigkeit  $\sigma_{rms}$ , den maximalen Hub in der Topographie  $\sigma_{max}$  und die aus der Topographie abgeschätzte Fläche nahezu atomar ebener Plateaus für die Fe-, Co- und Ni-Proben aufgelistet.

Fe			
$d$ (nm)	$\sigma_{rms}$	$\sigma_{max}$	Plateaufläche
5	3,1 nm	$\pm 9,3$ nm	$5\mu m^2$
10	-	-	-
20	3,9 nm	$\pm 11,8$ nm	$200\mu m^2$
30	3,5 nm	$\pm 10,4$ nm	$25\mu m^2$

**Tabelle 3.1:** Topologische Eigenschaften der Fe-Proben.

Co			
$d$ (nm)	$\sigma_{rms}$	$\sigma_{max}$	Plateaufläche
3	2,8 nm	$\pm 9$ nm	0,01 – 0,25 $\mu m^2$ Inseln

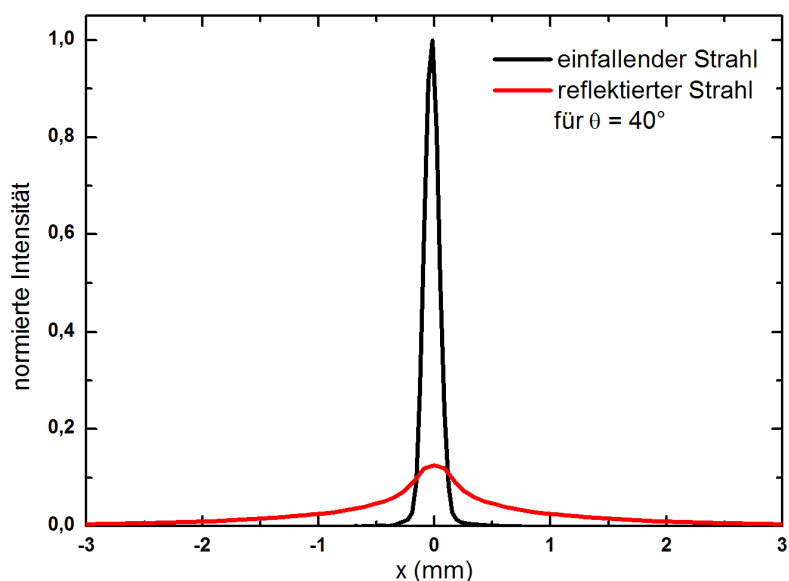
**Tabelle 3.2:** Topologische Eigenschaften der Co-Probe.

Ni			
$d$ (nm)	$\sigma_{rms}$	$\sigma_{max}$	Plateaufläche
5	3,2 nm	$\pm 9,3$ nm	$25\mu m^2$
10	-	-	-
20	0,49 nm	$\pm 1,5$ nm	$1000\mu m^2$
30	0,29 nm	$\pm 0,9$ nm	$2500\mu m^2$

**Tabelle 3.3:** Topologische Eigenschaften der Ni-Proben.

Die Ni-Proben mit 20 nm und 30 nm Schichtdicke zeigen die glatteste Oberfläche, während die dünne Probe eine ähnlich stark strukturierte Oberfläche aufweist, wie die Fe-Proben. Für die Proben mit 10 nm Schichtdicke wurden keine Messungen durchgeführt.

Die relativ großen Werte für die Rauigkeit führen dazu, dass der Strahl nach Reflexion an den Proben je nach Rauigkeit und Wellenlänge stark aufgeweitet ist. In Abbildung 3.17 ist das horizontale Strahlprofil des einfallenden und des an der 10 nm Fe-Probe reflektierten Strahls zu sehen. Klar zu erkennen ist, dass der einfallende Strahl (schwarze Linie) ein klar abgegrenztes Profil mit einer Halbwertsbreite von etwa  $200\mu m$  hat. Die Intensität ist im Abstand  $200\mu m$  vom Mittelpunkt auf weniger als 1% abgefallen. Das vertikale Strahlprofil ist vergleichbar; somit kann die Querschnittsfläche des einfallenden rechteckigen Strahls zu etwa  $400\mu m \times 400\mu m$  abgeschätzt werden. Die rote Linie in Abb. 3.17 zeigt den an der 10 nm Fe-Probe unter einem Winkel von  $\theta = 40^\circ$  reflektierten Strahl. Für die bessere Vergleichbarkeit wurde das Profil normiert, so dass die aufsummierte Intensität beider Kurven gleich ist. Die



**Abbildung 3.17:** Horizontales Strahlprofil des einfallenden und des an der 10 nm Fe-Probe reflektierten Strahls. Details siehe Text.

Halbwertsbreite des reflektierten Strahls beträgt etwa  $650 \mu\text{m}$ . Die Intensität bei  $x = \pm 3 \text{ mm}$  vom Maximum entfernt beträgt noch etwa 3,5% der maximalen Intensität bei  $x = 0 \text{ mm}$ . Der Strahl wird durch die raue Probe aufgeweitet, so dass die Querschnittsfläche des reflektierten Strahls am Ort des Detektors, verglichen mit dem einfallenden Strahl, deutlich größer ist. Die zur Detektion verwendete Photodiode hat einen Durchmesser von 4 mm und wird überstrahlt. Der nicht detektierte Anteil des reflektierten Strahls kann auf etwa 10 – 20% abgeschätzt werden.

Ausgehend davon, dass die Photonenenergie im für die Messungen genutzten Bereich von ca. 40 eV bis 70 eV nur einen vernachlässigbar geringen Einfluss auf die Aufweitung des reflektierten Strahls hat, führt die Überstrahlung der Diode dazu, dass die Werte der in dieser Arbeit gemessenen Reflexionsspektren um einen nicht exakt bekannten Faktor zu gering sind. Dieser Faktor unterscheidet sich zwar für die einzelnen Proben, ist aber für jede Probe an sich konstant. Die aus den Reflexionsspektren berechneten magneto-optischen Asymmetrien für unterschiedliche Magnetisierung (siehe Gleichungen 2.34 und 2.41) sind auf das Reflexionsvermögen normiert. Die Überstrahlung der Photodiode durch den reflektierten Strahl hätte nur Einfluss auf die Asymmetrie-Spektren, wenn sich die Position des Strahls zwischen den Messung für die verschiedenen Probenmagnetisierungen ändern würde. Da diese Messungen jedoch in einem Zeitintervall von nur wenigen Sekunden erfolgen, kann eine Beeinflussung der Asymmetrie-Spektren durch die Überstrahlung ausgeschlossen werden. Auf eine Korrektur des Reflexionsvermögens bezüglich der Überstrahlung wurde daher im weiteren Verlauf dieser Arbeit verzichtet.

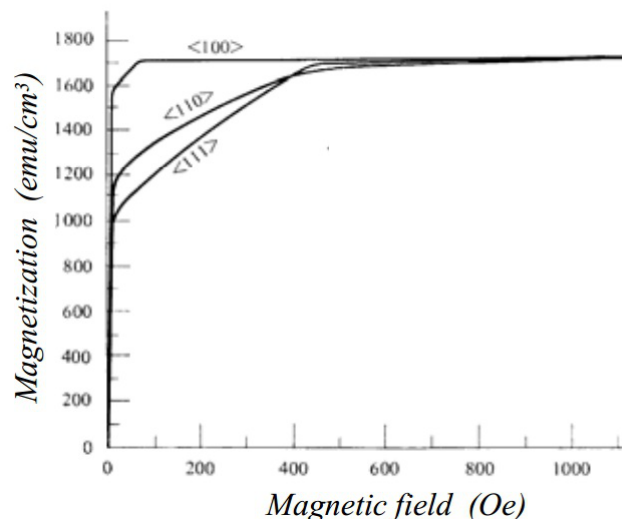


## 4 Eisen

Obwohl Eisen als Grundlage unzähliger Anwendungen in der Industrie und Forschung dient, bietet es immer noch Spielraum für Untersuchungen. Besonders das in den letzten Jahren neu aufgekommene Gebiet der Spintronik gibt Anlass, die elektronische und magnetische Struktur von Eisen noch umfassender zu verstehen. Da einerseits die Herstellung einkristalliner Fe-Proben gut beherrscht wird und andererseits die theoretische Beschreibung von Fe mittels LSDA sehr gut möglich ist, macht die Untersuchung der Fe-Proben den Hauptteil der vorliegenden Arbeit aus. Dieses Kapitel gliedert sich dabei in die Untersuchung der  $3p$ - und  $2p$ -Kanten. Zuerst werden Reflexionseigenschaften und der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf T-MOKE- und L-MOKE-Messungen betrachtet und mit Anpassungsrechnungen verglichen. Danach widmet sich dieses Kapitel ausführlich den XMLD-Messungen. Abschließend werden die experimentellen Ergebnisse mit *ab initio* Rechnungen verglichen und diskutiert.

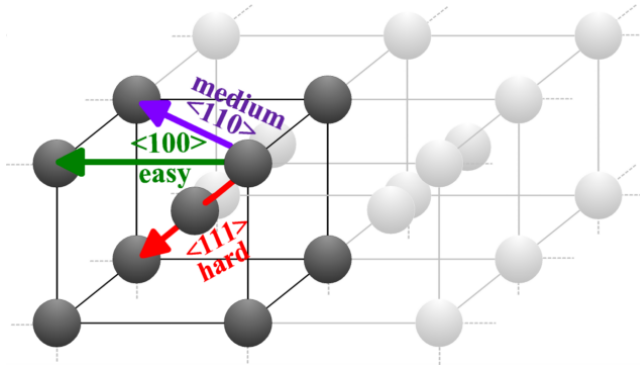
### 4.1 Magnetische Eigenschaften & Reflexionsvermögen

Im Folgenden werden die magnetischen Eigenschaften und das Reflexionsvermögen an den  $3p$ -Kanten der Fe-Proben beschrieben. Die Herstellung und Charakterisierung der Proben mit den Schichtdicken 5 nm, 10 nm, 20 nm, 30 nm und 50 nm ist ausführlich in Kapitel 3.6.1 beschrieben. In Abbildung 4.1 sind die Magnetisierungskurven für einen ausgedehnten bcc Fe-Einkristall dargestellt.



**Abbildung 4.1:** Magnetisierungsverhalten von bcc Fe für die magnetisch leichte  $\langle 100 \rangle$ -, mittlere  $\langle 110 \rangle$ - und schwere  $\langle 111 \rangle$ -Achse nach J. Honda und S. Kaja [135].

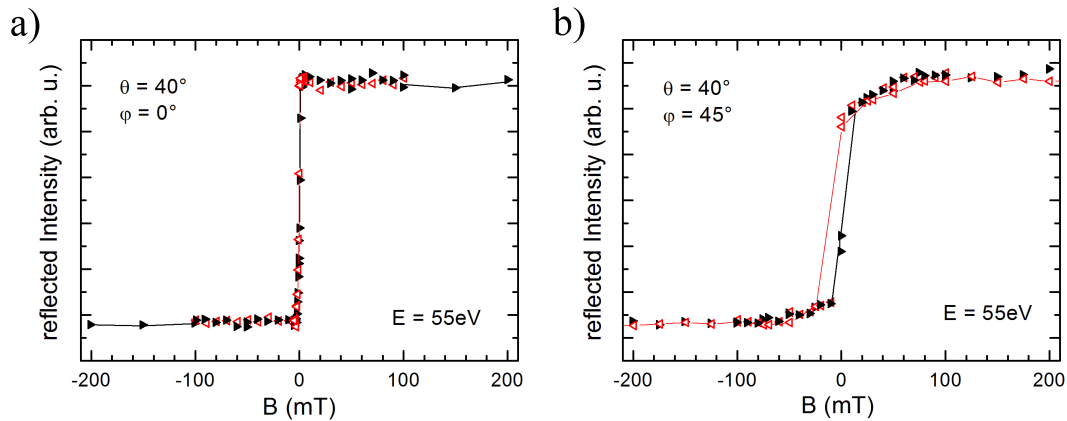
Wie in Abbildung 4.1 zu erkennen ist, sind alle drei magnetischen Achsen ab einer Magnetfeldstärke von ca. 600 Oe, entsprechend ca. 60 mT, in Sättigung. In Abbildung 4.2 sind die leichte, die mittelschwere und die schwere magnetische Achse in eine schematische Darstellung eines bcc-Gitters eingezeichnet. Die magnetisch leichte Achse liegt in  $[100]$ -Richtung und damit parallel zur Kante der Probe, aus Symmetriegründen sind die Richtungen  $[010]$ ,  $[\bar{1}00]$  und  $[0\bar{1}0]$  ebenfalls magnetisch leichte Achsen.



**Abbildung 4.2:** Schematische Darstellung der verschiedenen magnetischen Achsen in einer bcc-Kristallstruktur wie sie für Fe vorliegt.

Da es sich bei den untersuchten Proben um dünne Schichten handelt, sind die senkrecht zur Oberfläche stehenden Achsen  $[001]$  und  $[00\bar{1}]$  keine leichten Achsen mehr, sondern vielmehr durch die Formanisotropie (siehe Kap. 2.1.2) erzeugte schwere Achsen, deren Magnetisierungsverhalten von der Dicke der Fe-Schicht abhängt. Ähnlich verhält es sich mit den magnetisch mittelschweren Achsen welche auf den Flächendiagonalen des bcc-Gitters liegen. Nur die parallel zur Oberfläche liegenden  $[110]$ -,  $[\bar{1}\bar{1}0]$ -,  $[\bar{1}10]$ - und  $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtungen sind identisch in ihrem Magnetisierungsverhalten. Die magnetisch schweren Achsen liegen entlang der Raumdiagonalen ( $[111]$ ,  $[11\bar{1}]$ ,  $[1\bar{1}\bar{1}]$ , usw.). Diese drei Achsen haben alle eine Komponente parallel zur Oberflächennormalen der Probe. Daher muss davon ausgegangen werden, dass das Magnetisierungsverhalten dieser Achsen aufgrund der Formanisotropie von der Dicke der Fe-Schicht abhängt. Für die zuvor erwähnte leichte und mittelschwere Achse parallel zur Oberfläche sollte hingegen keine Abhängigkeit bezüglich der Fe-Schichtdicke auftreten. Im Folgenden werden die symmetrisch äquivalenten Achsen parallel zur Probenoberfläche mit  $\langle 100 \rangle$  für die magnetisch leichten Achsen und mit  $\langle 110 \rangle$  für die magnetisch mittelschweren Achsen bezeichnet. Die magnetisch harten Achsen werden mit  $\langle 111 \rangle$  bezeichnet.

Um das Magnetisierungsverhalten für die leichte  $\langle 100 \rangle$ - und mittelschwere  $\langle 110 \rangle$ -Achse der Proben zu überprüfen, wurden magneto-optische Hysteresemessungen an der Beamline 12 [111] des Synchrotrons DELTA in Dortmund mit der XMAPS-Experimentierstation [72] durchgeführt, diese sind in Abbildung 4.3 dargestellt. Dabei wurde die reflektierte Intensität an der  $3p$ -Kante in T-MOKE Geometrie gemessen (siehe Kap. 2.2.3). Das Reflexionsvermögen ist hierbei proportional zum Anteil der Probenmagnetisierung senkrecht zur Einfallsebene. Aufgenommen wurden die Hysteresekurven bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 40^\circ$ . Klar zu erkennen ist die bereits für sehr kleine magnetische Flussdichten von  $B \approx 3$  mT erfolgende Sättigung der Probenmagnetisierung, wenn das externe Feld parallel zur magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Achse liegt (Teil a) in Abbildung 4.3). Liegt die magnetisch mittelschwere  $\langle 110 \rangle$ -Achse parallel zum äußeren Feld, erfolgt die Sättigung erst bei einer magnetischen Flussdichte von ca. 60 – 80 mT. Dies entspricht den Werten aus Abb. 4.1.

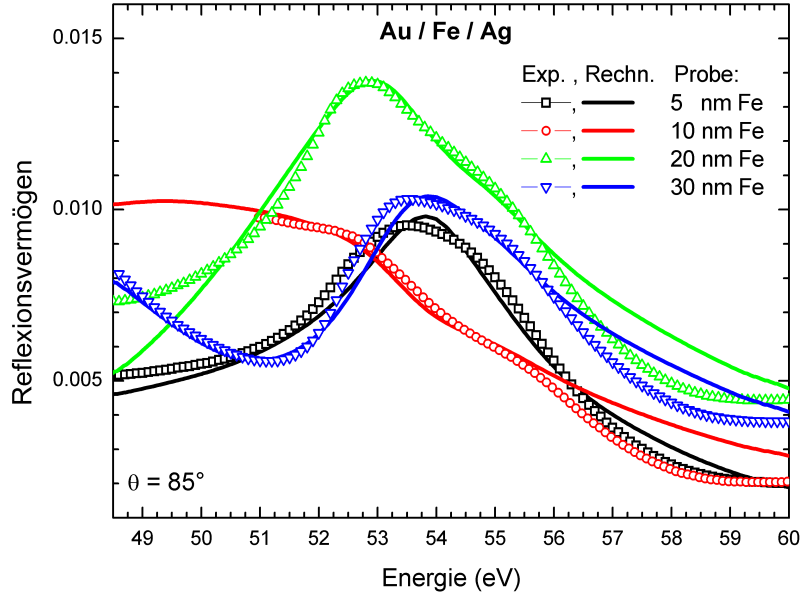


**Abbildung 4.3:** Magnetisierungskurven für die 50 nm dicke Fe-Schicht. Aufgenommen als Intensitätsänderung bei transversal angelegtem äußeren Magnetfeld (T-MOKE) bei einem Einfallswinkel von  $40^\circ$  und einer Photonenergie von 55 eV für a) die magnetisch leichte Achse und b) die magnetisch mittelschwere Achse parallel zum angelegten Magnetfeld.

Der Sprung in der Hysteresekurve für die mittelschwere Richtung bei Wechsel des Vorzeichens des äußeren Feldes erklärt sich dabei wie folgt: Für kleine Felder liegt die Magnetisierung entlang der leichten magnetischen Achsen, welche gedreht um  $\pm 45^\circ$  bezüglich der Richtung des äußeren Feldes ausgerichtet sind. Wechselt das Vorzeichen des äußeren Feldes richtet sich die Probenmagnetisierung entlang der anderen beiden magnetisch leichten Achsen aus, welche eine Komponente entlang der Richtung des äußeren Feldes haben. Der stetige Verlauf hin zur Sättigung ergibt sich dadurch, dass die magnetischen Momente, von diesen leichten Achsen ausgehend, mit steigendem externen Feld parallel zur mittelschweren Achse gedreht werden. Die Verläufe entsprechen denen aus Abb. 4.1. Da das externe magnetische Feld für die folgenden magneto-optischen Messungen stets parallel zur Probenoberfläche liegt, wurde darauf verzichtet, auch die Magnetisierungskurve der schweren Achse aufzunehmen. Die gemessenen Sättigungsfeldstärken der leichten und mittelschweren Achse zeigen, dass das für die magneto-optischen Messungen verwendete magnetische Feld mit einer Flussdichte von  $B > 200$  mT ausreichend ist, um die Proben vollständig zu magnetisieren.

Die das Hauptthema dieser Arbeit bildenden XMLD-Spektren werden, wie in Kapitel 2.2.5 beschrieben, aus der Differenz von Reflexionsspektren gewonnen. Deshalb werden nun die generellen Charakteristika von Reflexionsspektren betrachtet und ihre Bedeutung für die daraus abgeleiteten XMLD-Spektren beschrieben. Zur Berechnung des Reflexionsvermögens wurde die von der Probe reflektierte Intensität auf die einfallende Intensität normiert, welche vor jeder Messung aufgenommen wurde. Da die Proben, wie in Kap. 3.6.4 gezeigt, eine relativ hohe Rauigkeit aufweisen, wurde die Diode, mit der die reflektierte Intensität gemessen wurde, leicht überstrahlt. Dies führt zu der, in Kap. 3.6.4 erläuterten, Abweichung des gemessenen Reflexionsvermögens zum tatsächlichen absoluten Reflexionsvermögen um etwa  $\pm 20\%$ . Im Folgenden wird dennoch der Ausdruck „absolutes Reflexionsvermögen“ verwendet, um eine klare Abgrenzung zu den nicht normierten relativen Spektren zu gewährleisten. Die magneto-optischen Asymmetrie-Spektren werden durch die Überstrahlung der Diode, wie bereits erwähnt, nicht beeinflusst.

In Abbildung 4.4 ist das absolute Reflexionsvermögen für die vier Fe-Proben unterschiedlicher Schichtdicke im Bereich der  $3p$ -Resonanz dargestellt. Der Einfallswinkel betrug  $\theta = 85^\circ$ . Die



**Abbildung 4.4:** Vergleich der Reflexionskurven bei  $\theta = 85^\circ$  für verschiedene Fe-Schichtdicken (Symbole) und Anpassungsrechnungen (Linien), durchgeführt mit dem Programm ReMagX [86].

Spektren wurden aus zwei Messungen mit dem E-Feld einmal parallel zur  $\langle 100 \rangle$ -Richtung und einmal parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemittelt, um annähernd Spektren für polykristalline Proben zu erhalten, an denen anschließend Anpassungsrechnungen durchgeführt werden können. Für die einzelnen Schichtdicken ergeben sich deutlich unterschiedliche Reflexionsspektren. Dies ist auf Interferenz zurückzuführen, da bei einer Energie um die 50 eV die Wellenlänge der Synchrotronstrahlung mit etwa 23 nm in der Größenordnung der Schichtdicken liegt.

Um den Einfluss der Interferenz auf die Spektren zu ermitteln und diesen von Strukturen durch die resonante Anregung der  $3p$ -Niveaus zu trennen, wurden Anpassungsrechnungen mit dem Programm ReMagX [86] (Kap. 2.3) durchgeführt. Als Grundlage der Berechnung wurden die optischen Konstanten für GaAs, Ag und Au den Henke-Tabellen entnommen [83], die optischen Konstanten für Fe stammen aus Messungen von S. Valencia et al. [80]. Die Anpassungsrechnungen (Abb. 4.4 Linien) können die gemessenen Spektren mit geringen Abweichungen reproduzieren. Lediglich oberhalb von 56 eV scheint es zu einer systematischen Abweichung zu kommen. Diese ist möglicherweise den aus den Henke-Tabellen entnommenen optischen Konstanten für Ag und Au zu verschulden, da beide Elemente bei etwa 58 eV resonante Übergänge aufweisen. Dies ist für die weiteren Überlegungen jedoch nicht von Bedeutung. Die in den Anpassungsrechnungen verwendeten Parameter sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

Probe	$d_{Au}$ (nm)	$\sigma_{Au}(nm)$	$d_{Fe}(nm)$	$\sigma_{Fe}(nm)$	$\sigma_{Ag}(nm)$	Faktor	$\sigma_{exp.}(nm)$
5 nm Fe	3,60	3,10	5,40	1,20	3,50	1,15	3,1
10 nm Fe	3,10	2,58	10,30	2,25	2,40	1,35	-
20 nm Fe	3,15	2,20	20,40	1,80	2,10	1,25	3,9
30 nm Fe	3,25	2,30	29,30	1,93	3,02	1,20	3,5

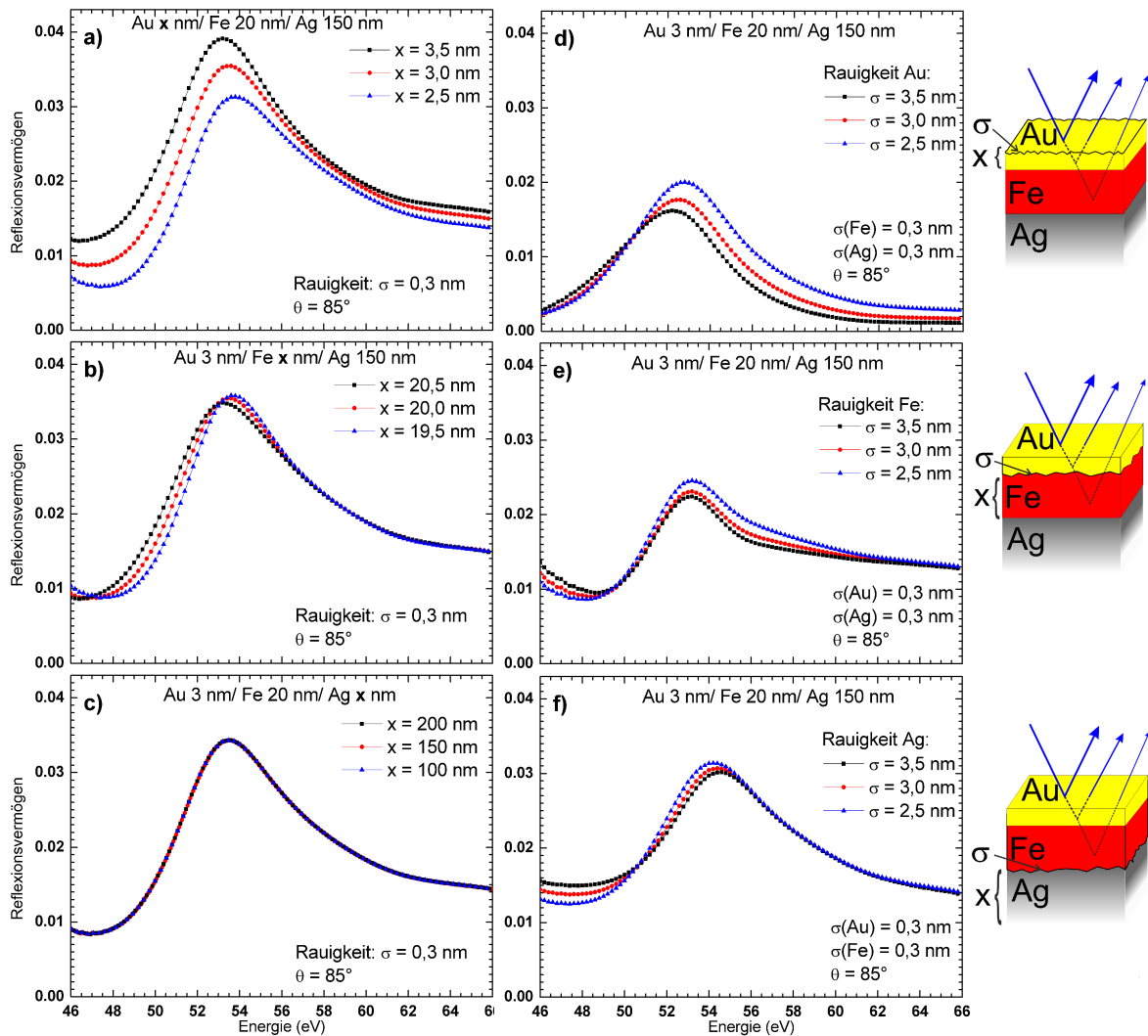
**Tabelle 4.1:** Parameter der Anpassungsrechnungen für das Reflexionsvermögen der Fe-Proben.

Die in den Anpassungsrechnungen variablen Parameter waren die Schichtdicke von Au und Fe, sowie die Rauigkeiten der Grenzschichten Vakuum/Au, Au/Fe und Fe/Ag. Die Dicke der Ag-Schicht wurde auf 150 nm festgesetzt. Die letzte Spalte in Tab. 4.1 enthält den Faktor, mit dem das experimentell ermittelte Spektrum multipliziert wurde. Dies spiegelt die Tatsache wider, dass der reflektierte Strahl die Diode überstrahlt, was zu einem scheinbar geringeren Reflexionsvermögen führt und stimmt mit den Überlegungen aus Kap. 3.6.4 überein. Die Werte für die mittlere Rauigkeit, die in der letzten Spalte angegeben sind, wurden zusätzlich experimentell mittels Weißlichtinterferometrie bestimmt (siehe Kap. 3.6.4). Allerdings kann mit dieser nur die Oberflächenrauigkeit, aber nicht die Rauigkeit der internen Grenzflächen bestimmt werden. Die experimentell ermittelten Werte für die 20 nm und 30 nm Probe fallen zwar etwas größer aus als die Werte aus den Anpassungsrechnungen für die Au-Deckschicht, jedoch zeigt sich an der Au/Fe-Grenzschicht eine höhere Rauigkeit. Die Rauigkeitswerte werden im späteren Verlauf für die Interpretation der XMLD-Spektren wieder herangezogen. Insbesondere zeigt sich im Folgenden, dass nicht nur die Schichtdicke, sondern auch die Schichtrauigkeit großen Einfluss auf die Reflexionsspektren hat. Schon eine Änderung von wenigen zehntel Nanometern in Schichtdicke und Rauigkeit reicht aus, um deutliche Unterschiede in den Reflexionsspektren zu verursachen.

Abbildung 4.5 zeigt mit dem Programm ReMagX [86] berechnete Reflexionsspektren. Die einzelnen Graphen zeigen Rechnungen für variierende Dicke (Graphen a), b) und c)) bzw. Rauigkeit (Graphen d), e) und f)). Dabei ist in jedem der sechs Graphen nur die Dicke oder die Rauigkeit einer einzelnen Schicht geändert worden, während alle anderen Parameter konstant gehalten wurden, wie rechts in Abb. 4.5 skizziert. Als Ausgangspunkt wurde ein typischer Multilayer bestehend aus 3 nm Au, 20 nm Fe und 150 nm Ag auf einem GaAs-Substrat angenommen, wobei als Standardwert eine Rauigkeit von 0,3 nm zwischen den Schichten angenommen wurde, wie sie in etwa bei idealen Bedingungen auftritt.

In der linken Spalte von Abb. 4.5 sind Ergebnisse für variierende Schichtdicke bei gleichbleibender Rauigkeit zu sehen. Die Schichtdicke für die Au-Schicht und die Fe-Schicht wurde um  $\pm 0,5$  nm geändert (a) und b)), für die Ag-Schicht wurde die Schichtdicke um  $\pm 50$  nm geändert (c)). Klar zu erkennen ist, dass das Reflexionsvermögen am stärksten auf eine Variation der Au-Schichtdicke reagiert (4.5 a)). Das Reflexionsvermögen ändert sich um etwa 30%, vor allem vor und an der Fe-Kante bei etwa 53 eV. Zudem verschiebt sich das Maximum des Spektrums bei zunehmender Schichtdicke leicht zu niedrigeren Energien. Ähnlich sieht es für eine Änderung der Fe-Schichtdicke aus (4.5 b)). Hier verschiebt sich das Maximum im Reflexionsspektrum für zunehmende Schichtdicke ebenfalls zu niedrigeren Energien, die Absolutwerte des Reflexionsvermögens ändern sich aber nur minimal. Auch ist zu sehen, dass die Spektren ab ca. 56 eV nahezu identisch bleiben. Dies ist auf das erhöhte Absorptionsvermögen für Energien oberhalb der Fe  $3p$ -Kante zurückzuführen. Das Licht wird ab einer Energie von 56 eV beim Durchlaufen der Fe-Schicht fast völlig absorbiert und kann nicht mehr zur Interferenz beitragen. Für die Ag-Schicht (Abb. 4.5 c)) zeigt sich, wie zu erwarten war, dass selbst eine Änderung von 50 nm keinen Einfluss auf das Reflexionsspektrum zeigt, die kritischen Schichtdicken sind also die der Au- und Fe-Schicht. Dies bedeutet für diese Arbeit, dass verstärkt auf den Einfluss von Interferenz in den im späteren Verlauf betrachteten magneto-optischen Spektren geachtet werden muss.

Für den Einfluss der Rauigkeit auf die Spektren ergibt sich ein anderes Bild (rechte Spalte aus Abb. 4.5). Ausgegangen wurde hier von einer Rauigkeit von 3 nm, wie sie sich in etwa aus den Weißlichtinterferometrie-Messungen ergeben hat (vgl. Kap. 3.6.1). Die Rauigkeitswerte



**Abbildung 4.5:** Einfluss der Schichtdicke (links) und der Rauigkeit (rechts) auf das Reflexionsvermögen. Details siehe Text.

beziehen sich auf die Grenze der angegebenen Schicht und der darüber liegenden Schicht. Der Einfluss der Rauigkeit geht über den Nevot-Croce-Formalismus [90] in die Rechnung ein. Dabei wird der Einfluss der Rauigkeit als Fehlerfunktion bei der Berechnung des Reflexionsvermögens an der Grenzschicht betrachtet und hat keinen Einfluss auf die tatsächliche Schichtdicke selbst. Um den Einfluss der Rauigkeit der jeweils näher betrachteten Grenzschicht abschätzen zu können, wurde die Rauigkeit der anderen Grenzschichten konstant auf 0,3 nm gehalten. Die Rauigkeit der betrachteten Grenzschicht wurde um  $\pm 0,5$  nm variiert. Für die Vakuum/Au-Grenze führt dies, wie schon bei der Variation der Schichtdicke zum größten Effekt. Das Reflexionsvermögen an der Fe-Kante nimmt bei zunehmender Rauigkeit ab. Zudem ist auch hier eine Verschiebung des Maximums im Reflexionsspektrum hin zu niedrigen Energien für zunehmende Rauigkeit zu beobachten. Allerdings wirkt sich die Variation der Rauigkeit im Gegensatz zur Variation der Schichtdicke auf der energetisch höheren Seite der Fe-Resonanz aus. Die Tatsache, dass der Wert von  $\sigma = 3,5$  nm den Wert für die Schichtdicke überschreitet, ist aus den oben genannten Gründen für die Anpassungsrechnungen hinnehmbar.

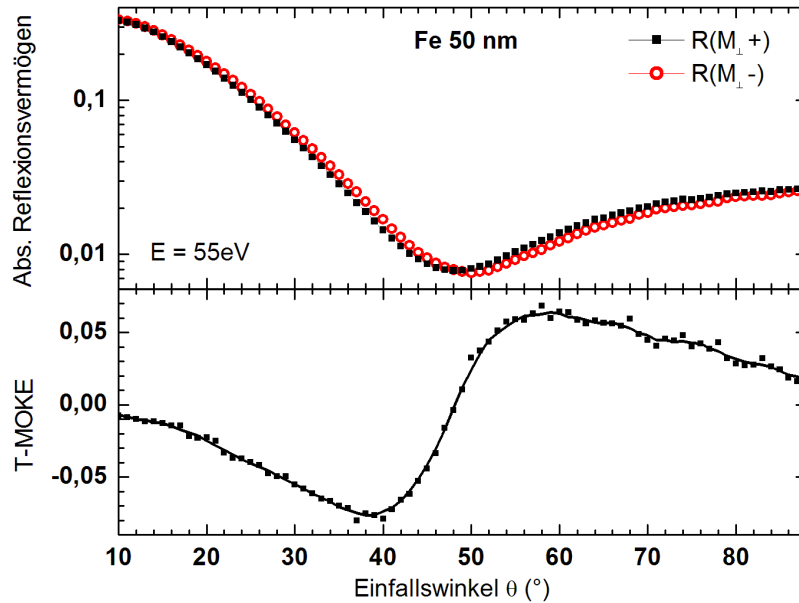
Für eine Variation der Rauigkeit zwischen der Fe- und der Au-Schicht ergibt sich ein ähnliches Bild wie für die Grenzschicht Vakuum/Au. Eine Variation der Rauigkeit an der Grenze zum Ag beeinflusst ebenfalls das Reflexionsspektrum, allerdings fast ausschließlich auf der niedere-nergetischen Seite der Fe-Kante. Dies bedeutet, dass die Photonen unterhalb der Fe-Kante aufgrund des geringen Absorptionsvermögens des Fe bis zur Fe/Ag-Grenzschicht vordringen können, während sie oberhalb der Fe  $3p$ -Kante in der Fe-Schicht absorbiert werden.

Zusammenfassend ergibt sich, dass schon minimale Änderungen in Rauigkeit und Schichtdicke von 0,5 nm einen deutlichen Einfluss auf das Reflexionsspektrum haben. Sowohl Interferenz als auch Rauigkeitseffekte spielen bei den Messungen eine nicht zu vernachlässigende Rolle und müssen bei der Auswertung der Ergebnisse im Folgenden berücksichtigt werden. Zudem müssen Interferenz- und Rauigkeitseffekte auch im optischen Teil der *ab initio* Rechnungen berücksichtigt werden. Da, wie in Abb. 4.5 erkennbar ist, die deutlichsten Effekte von der Au-Deckschicht ausgehen, und die Ag-Schicht kaum noch einen Einfluss hat, kann in den *ab initio* Rechnungen die Probe vereinfacht als Au/Fe/Ag-Trilayer betrachtet werden.

## 4.2 Anisotropie in T-MOKE

Parallel zu den sehr empfindlich auf die magnetokristalline Anisotropie reagierenden XMLD-Messungen (Kap. 4.4) wurden auch T-MOKE-Messungen durchgeführt. Dies dient zum Einen dazu, den Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den technisch einfacher durchzuführenden transversalen magneto-optischen Kerr-Effekt abschätzen zu können, und zum Anderen dazu, die Zuverlässigkeit der *ab initio* Rechnungen zu prüfen. Da der linear in der Magnetisierung  $\mathbf{M}$  skalierende T-MOKE in der Regel deutlich stärker ausfällt als der quadratisch in  $\mathbf{M}$  skalierende XMLD, dienen die T-MOKE-Spektren als Referenz zur Kontrolle der *ab initio* Rechnungen.

Der transversale magneto-optische Kerr-Effekt ist im Bereich des Brewster-Winkels am stärksten, erfährt jedoch am Brewster-Winkel selbst einen Vorzeichenwechsel [136], ist dort also exakt Null. Um einen geeigneten Einfallswinkel für die T-MOKE-Messungen zu bestimmen, wurde an der Beamline 12 des Dortmunder Synchrotrons DELTA mit der XMAPS-Experimentierstation (siehe Kap. 3.2) die T-MOKE-Asymmetrie in Abhängigkeit des Einfallswinkels gemessen. Dazu wurde die dicke 50 nm Fe-Probe gewählt, um Interferenzeffekte weitestgehend zu minimieren. Das externe Magnetfeld mit einer Flussdichte von  $B = \pm 100$  mT wurde entlang der magnetisch leichten Achse angelegt und die Photonenenergie wurde auf 55 eV eingestellt. Im oberen Abschnitt von Abbildung 4.6 ist das Reflexionsvermögen logarithmisch für beide Magnetisierungsrichtungen in Abhängigkeit des Einfallswinkels aufgetragen. Die Reflexionsspektren zeigen den typischen Verlauf für p-polarisiertes Licht. Das Reflexionsvermögen sinkt bis es am Brewster-Winkel ein Minimum erreicht und steigt danach wieder an. Die Tatsache, dass das Reflexionsvermögen am Brewster-Winkel nicht Null erreicht, liegt daran, dass Metalle aufgrund der Absorption einen Restbeitrag liefern und am unvollständig linearem Polarisationsgrad der für diese Messung genutzten Synchrotronstrahlung. Die durch die Ablenkmagnete der Beamline 12 erzeugte Strahlung ist nur zu 91% linear p-polarisiert, und hat nach Gl. 2.26 einen zirkularen Anteil von 41,5%. Die Bestimmung des Polarisationsgrads erfolgte bei 60 eV, dieser ist aber nahezu energieunabhängig und nur gegeben durch die nicht perfekte Ausrichtung der Beamline auf die Elektronenringebene.



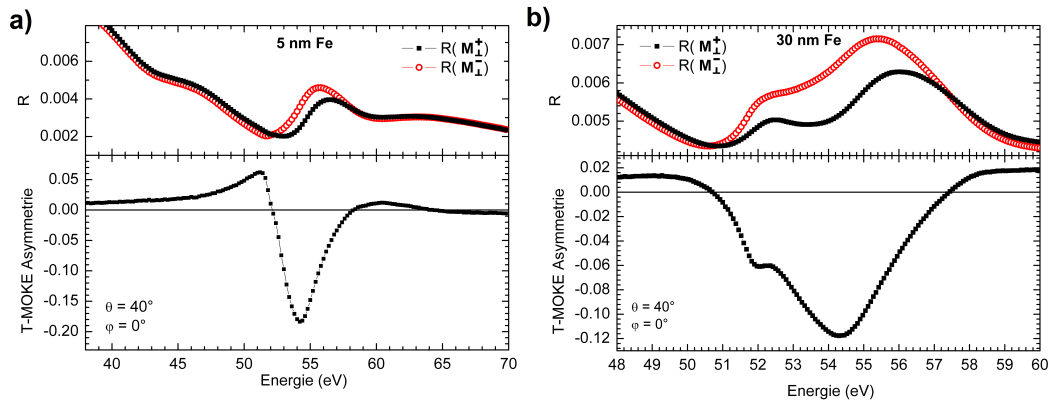
**Abbildung 4.6:** Oben: Winkelabhängiges Reflexionsvermögen für entgegengesetzte Probenmagnetisierung bei einer Photonenenergie von  $E=55\text{ eV}$ . Unten: Die aus der normierten Differenz des Reflexionsvermögens berechnete T-MOKE-Asymmetrie.

Im unteren Teil von Abb. 4.6 ist die gesuchte Abhängigkeit der T-MOKE-Asymmetrie vom Einfallswinkel dargestellt. Maximale Werte sind links und rechts des Brewster-Winkels bei etwa  $40^\circ$  und  $58^\circ$  zu erkennen. Für die weiteren Messungen der spektralen Abhängigkeit der T-MOKE-Asymmetrie wurde der Winkel  $\theta = 40^\circ$  gewählt, um ein maximales Asymmetriesignal bei gleichzeitig gutem Reflexionsvermögen zu erzielen.

Für den gewählten Einfallswinkel  $\theta = 40^\circ$  wurden im Folgenden energieabhängige T-MOKE-Spektren gemessen. Dazu wurden bei jeder Energie zwei Messwerte aufgenommen, für zwei antiparallele Magnetisierungen in der Probenebene transversal zur Richtung des elektrischen Felds des p-polarisierten Lichts (siehe Abb. 2.7). Durchgeführt wurden die energieabhängigen T-MOKE-Messungen mit dem BESSY-Polarimeter [119] (siehe Kap. 3.3) an der Beamline U125-2-SGM2 des Berliner Synchrotrons BESSY II [112]. Die Energieauflösung an der Fe  $3p$ -Kante betrug  $E/\Delta E = 3000$  und der Polarisationsgrad der linear polarisierten Synchrotronstrahlung lag über 0,99. Die Abbildungen 4.7 a) und b) zeigen T-MOKE-Messungen an der 5 nm und der 30 nm Fe-Probe. Im jeweilig oberen Teil der Abbildungen sind die Reflexionsspektren für beide Magnetisierungsrichtungen dargestellt. Klar zu erkennen ist die Abhängigkeit des Reflexionsvermögens von der Probenmagnetisierung im Bereich der Fe  $3p$ -Kante. Im unteren Teil der Abbildungen ist die aus der Differenz des Reflexionsvermögens berechnete T-MOKE-Asymmetrie gemäß Gl. 2.34 dargestellt.

Das Reflexionsspektrum für die 5 nm Fe-Probe ist über einen Energiebereich von 38 bis 70 eV aufgenommen. Das Reflexionsvermögen fällt mit zunehmender Energie ab, hat ein Minimum bei ca. 52,5 eV und ein darauf folgendes Maximum bei ca. 56 eV. Zusätzlich tritt ein weiteres sehr schwach ausgeprägtes Maximum bei 63,5 eV und eine Schulter bei etwa 46,5 eV auf. Obwohl das schwach ausgeprägte Maximum bei 63,5 eV nahe der Ag  $4p_{1/2}$ -Kante liegt, haben simulierte Spektren ergeben, dass das Reflexionsvermögen von reinem Silber keine nennenswerten Strukturen bei dieser Energie aufweist. Berechnungen (hier nicht gezeigt) für

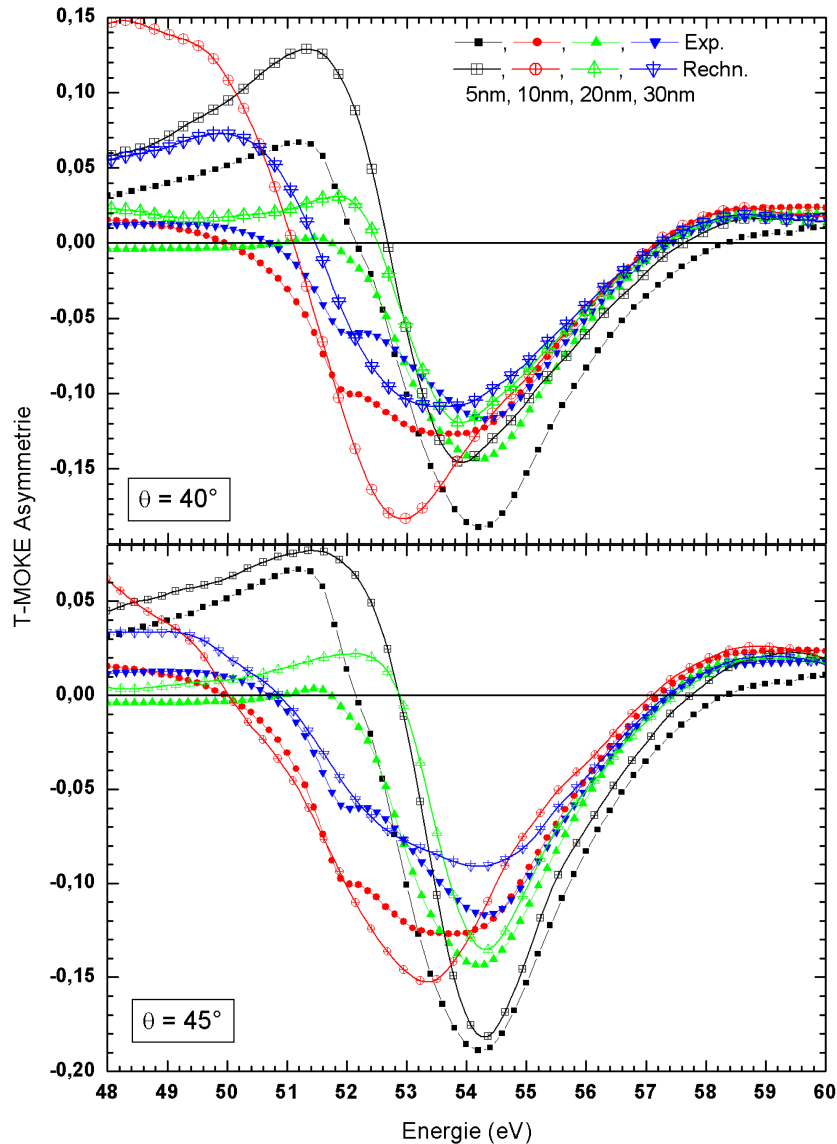




**Abbildung 4.7:** Oben: Reflexionsvermögen für eine Probenmagnetisierung entlang der magnetisch leichten Achsen bei  $40^\circ$  Einfallswinkel. Unten: Die resultierende T-MOKE-Asymmetrie. Jeweils für a) einen 5 nm Fe-Film und b) einen 30 nm Fe-Film. (Beachte die unterschiedliche Skalierung der Spektren)

Schichtsysteme bestehend aus einem Substrat mit einer ersten 5 nm dünnen Schicht und einer darüber liegenden 3 nm dünnen Schicht zeigen alle um ca. 45 eV und ca. 65 eV Strukturen auf, unabhängig von den für die Schichten und das Substrat gewählten Materialien. Dies zeigt, dass diese beiden Strukturen nicht auf resonante Anregung sondern auf Interferenz zurückzuführen sind. Bei näherer Betrachtung der erwähnten Strukturen fällt auf, dass das Minimum und das Maximum nahe der Fe  $3p$ -Kante für die beiden Magnetisierungsrichtungen an unterschiedlichen Positionen liegen. Da sich in der Nähe der Fe  $3p$ -Resonanz der komplexe Brechungsindex in Abhängigkeit der Magnetisierung ändert, erfährt die mit dem Fe wechselwirkende Synchrotronstrahlung je nach Magnetisierungsrichtung eine andere optische Weglänge im Material. Dadurch verschiebt sich das den charakteristischen Fe-Strukturen überlagerte Interferenzspektrum, was zu einer scheinbaren Verschiebung der Resonanzenergien führt [82]. Die aus den Reflexionsspektren der 5 nm Fe-Probe nach Gleichung 2.34 berechnete Asymmetrie im unteren Teil von Abbildung 4.7 a) zeigt eine Doppelstruktur im Bereich der Fe  $3p$ -Kante, mit Peakwerten von ca. 7% bei etwa 51,2 eV und 19,5% bei einer Energie von 54,3 eV. Zusätzlich zeichnet sich eine Schulter im Bereich des Nulldurchgangs bei etwa 52 eV ab. Für kleiner werdende Energien läuft die T-MOKE-Asymmetrie von positiven Werten her gegen Null, während sie sich für größere Energien erst nach einem Überschwingen der Null nähert.

Die 30 nm Fe-Probe (Abb. 4.7 b)) zeigt sowohl im Reflexionsspektrum als auch im T-MOKE-Spektrum ein anderes Verhalten. Das Reflexionsspektrum für positive Probenmagnetisierung hat zwei deutliche Maxima bei 52,3 eV und 55,5 eV. Für umgepolte Magnetisierung sind die Maxima leicht versetzt bei den Energien 52,5 eV und 56,0 eV zu finden. Das T-MOKE-Spektrum weist ebenfalls zwei deutliche Strukturen auf. Ein Peak mit knapp 12% liegt bei 54,3 eV, diesem vorgelagert ist eine stark ausgeprägte Schulter bei etwa 52,0 eV. Dieser sich deutlich unterscheidende Verlauf, sowohl der Reflexions- als auch der T-MOKE-Spektren zeigt eindrucksvoll den sehr dominanten Einfluss von Interferenzeffekten. Jedoch fällt auf, dass der Peak bei 54,3 eV und die Schulter bei 52,0 eV an den gleichen Energien liegen, wie auch für die 5 nm Probe. Trotz der unterschiedlichen Verläufe bieten die Positionen der Strukturen daher einen Anhaltspunkt für den späteren Vergleich der *ab initio* Rechnungen mit den experimentellen Spektren.



**Abbildung 4.8:** Vergleich der bei  $\theta = 40^\circ$  gemessenen T-MOKE-Asymmetrien (volle Symbole) mit Anpassungsrechnungen (offene Symbole) mit dem Programm Yeh-MOKE [95] für  $\theta = 40^\circ$  Einfallswinkel (oben) und  $\theta = 45^\circ$  Einfallswinkel (unten).

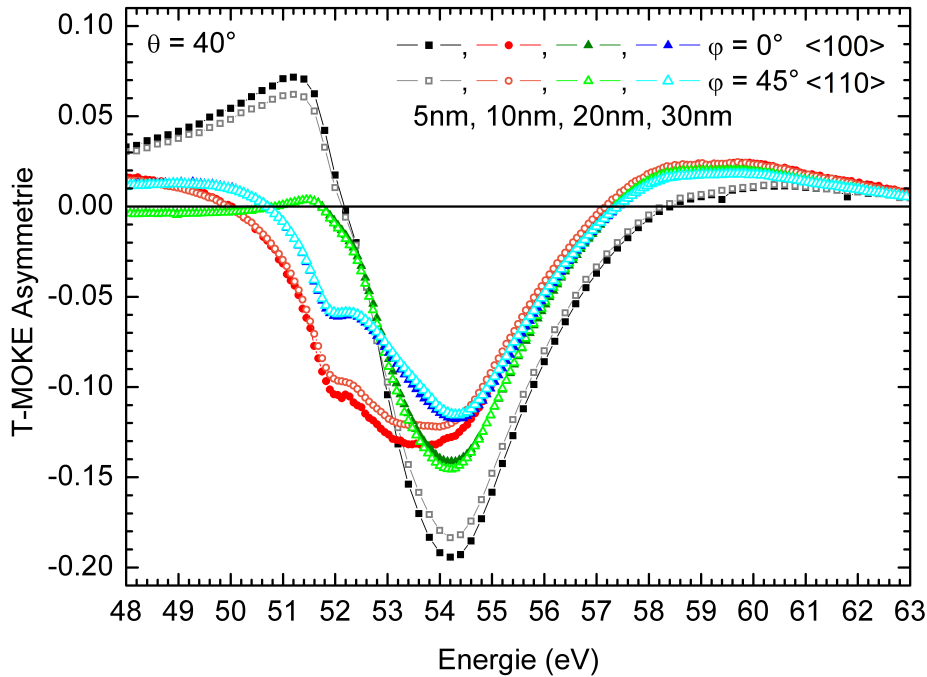
Wie bereits im vorherigen Kapitel an den Reflexionsspektren gezeigt, soll nun in den T-MOKE-Spektren der Einfluss von Interferenzeffekten näher betrachtet werden. Zur Interpretation der T-MOKE-Spektren sind Anpassungsrechnungen für die 5 nm, 10 nm, 20 nm und 30 nm Fe-Proben durchgeführt worden (Abb. 4.8). Hierzu wurde das Programm Yeh-MOKE [95] (Kap. 2.3) mit experimentell ermittelten magneto-optischen Konstanten von S. Valencia et al. [80] verwendet. Mit den anderen in dieser Arbeit genutzten Programmen sind Anpassungsrechnungen für T-MOKE nicht ohne weiteres möglich.

Die vollen Symbole in Abbildung 4.8 sind die experimentell ermittelten T-MOKE-Spektren. Diese wurden jeweils aus den Messungen für die magnetisch leichte und die magnetisch mittelschwere Achse gemittelt, da die in den Anpassungsrechnungen verwendeten magneto-optischen

Konstanten an polykristallinem Fe bestimmt wurden. Trotz der unterschiedlichen Verläufe der T-MOKE-Spektren ist zu erkennen, dass sich die markanten Strukturen, nämlich der Peak bei 54,3 eV und die Schulter bei 52,0 eV in allen vier Spektren wiederfinden. Auf der höherenergetischen Seite oberhalb der Fe 3*p*-Resonanz laufen die T-MOKE-Spektren zusammen. Auf der niederenergetischen Seite hingegen unterscheiden sich die Spektren stark voneinander. Dies ist ein starkes Indiz auf den Einfluss von Interferenzeffekten, denn vor der Fe 3*p*-Resonanz ist das Absorptionsvermögen der Fe-Schicht wesentlich geringer als oberhalb der Fe 3*p*-Resonanz. Die Eindringtiefe kurz vor der Fe 3*p*-Kante beträgt ca. 30 – 35 nm, im Gegensatz zu weniger als 10 nm oberhalb der Kante [83; 94]. Damit kann für Energien unterhalb der Fe 3*p*-Resonanz ein größerer Anteil des an der Fe/Ag-Grenzschicht reflektierten Lichts zur Interferenz beitragen. Diese Annahme wird untermauert durch die T-MOKE-Anpassungsrechnungen.

Die Anpassungsrechnungen sind in Abb. 4.8 mit offenen Symbolen in direktem Vergleich mit den gemessenen T-MOKE-Spektren (volle Symbole) dargestellt. Im oberen Teil von Abb. 4.8 beträgt der Einfallswinkel für die Anpassungsrechnungen wie im Experiment  $\theta = 40^\circ$ . Die gerechneten Spektren können den Verlauf der experimentell ermittelten Spektren trotz geringer Abweichungen im niederenergetischen Bereich gut reproduzieren. Wie auch für die experimentellen Spektren fällt der Unterschied für die verschiedenen Schichtdicken in den berechneten Spektren im niederenergetischen Bereich wesentlich größer aus als im höherenergetischen Bereich. Auch laufen die gerechneten Spektren ebenfalls oberhalb von etwa 54,5 eV zusammen. Die Maximalwerte der berechneten T-MOKE-Asymmetrie für die verschiedenen Fe-Schichtdicken zeigen bis auf die Rechnung für die 10 nm Fe-Schicht den gleichen Verlauf wie das Experiment. Als Parameter für die gerechneten Spektren wurden die Schichtdicken aus Tab. 4.1 genommen. In den Anpassungsrechnungen mit dem Programm Yeh-MOKE [95] konnte die Rauigkeit der Schichten jedoch nicht berücksichtigt werden. Zuvor wurde aber bereits gezeigt, dass die Rauigkeit einen großen Einfluss auf die Reflexionsspektren hat. Die Vernachlässigung der Rauigkeit ist daher vermutlich eine Ursache für die leichten Abweichungen der gerechneten Spektren vom Experiment. Um den Einfluss von Interferenz für die gerechneten Spektren noch besser abschätzen zu können, wurden auch Anpassungsrechnungen für einen um  $5^\circ$  größeren Einfallswinkel, also für  $\theta = 45^\circ$ , gerechnet (unterer Teil von Abb. 4.8). Die Spektren zeigen vor allem vor der 3*p*-Kante leicht veränderte Verläufe, was klar auf Interferenzen zurückgeführt werden kann. Die berechneten Spektren für  $\theta = 45^\circ$  reproduzieren den Verlauf der experimentellen Spektren sehr gut.

Nachdem nun der Einfluss der Interferenz auf die T-MOKE-Asymmetrie untersucht wurde, soll im Folgenden der Einfluss der Kristallorientierung auf die T-MOKE-Asymmetrie betrachtet werden. Dazu wurden für alle vier Proben T-MOKE-Spektren mit der Probenmagnetisierung einmal entlang der magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Richtung und einmal entlang der magnetisch mittelschweren  $\langle 110 \rangle$ -Richtung gemessen. In Abb. 4.9 sind die T-MOKE-Spektren aller vier Fe-Proben für die Probenmagnetisierung jeweils parallel zur magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Richtung ( $\varphi = 0^\circ$ ) und zur mittelschweren  $\langle 110 \rangle$ -Richtung ( $\varphi = 45^\circ$ ) dargestellt. Die Spektren der einzelnen Proben sind jeweils für beide Orientierungen der Kristallachsen bis auf leichte Unterschiede in der Stärke der Asymmetrie fast identisch. Die Unterschiede lassen sich nicht eindeutig der kristallinen Orientierung zuordnen. Für die 5 nm, 10 nm und 30 nm Probe ist das T-MOKE-Signal für die Orientierung der Magnetisierung entlang der mittelschweren Achse geringer als für die Magnetisierung entlang der magnetisch leichten Achse, für die 20 nm Probe ist dies umgekehrt.



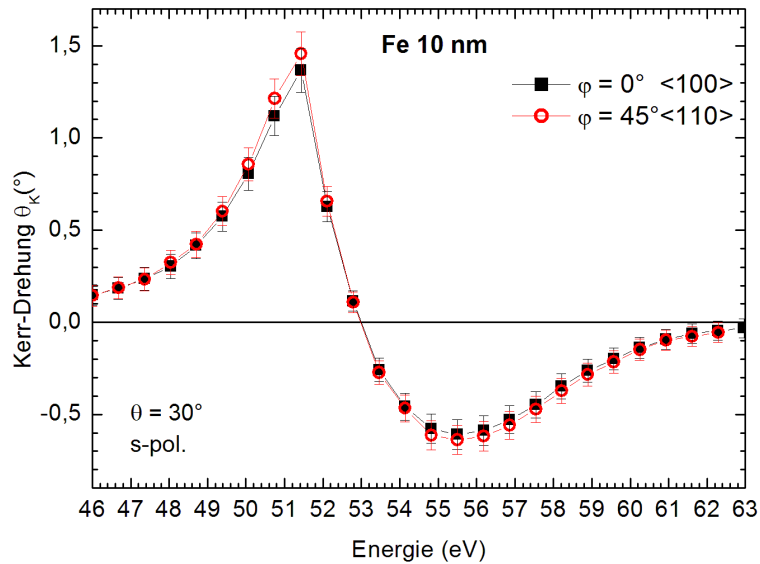
**Abbildung 4.9:** T-MOKE-Asymmetrie für die magnetisch leichte und mittelschwere Achse bei  $\theta = 40^\circ$  Einfallswinkel für verschiedene Schichtdicken.

Betrachtet man den Unterschied der T-MOKE-Spektren für die beiden Kristallachsen näher, fällt auf, dass sich die T-MOKE-Spektren für die 5 nm Fe-Schicht am stärksten voneinander unterscheiden und der Unterschied mit zunehmender Fe-Schichtdicke abnimmt. Dies lässt vermuten, dass die hier gemessenen Unterschiede der T-MOKE-Asymmetrie nicht auf die unterschiedliche Orientierung des Kristalls, sondern ebenfalls auf Interferenzeffekte, hervorgerufen durch die nicht homogene Schichtdicke zurückzuführen sind. Für die Messungen des T-MOKE für beide Kristallachsen muss die Probe um  $45^\circ$  gedreht werden, dies führt dazu, dass bei nicht perfekter Justage des Experiments der Synchrotronstrahl eine andere Stelle auf der Probe trifft, welche im Mittel eine leicht abweichende Schichtdicke haben kann. Für die 5 nm Fe-Probe fällt die Änderung in der Schichtdicke wesentlich stärker ins Gewicht als für die 30 nm Fe-Probe. Daher ist auch der Einfluss von Interferenz für die 5 nm Probe stärker als für die 30 nm Probe.

Für die T-MOKE-Messungen lässt sich also das Fazit ziehen, dass aufgrund der Stärke der T-MOKE-Asymmetrie mit bis zu 20% sehr deutliche Spektren gemessen werden konnten, der spektrale Verlauf aber stark durch Interferenzeffekte beeinflusst wird. Der Einfluss der Orientierung der Magnetisierung bezüglich der Kristallachsen ist verschwindend gering und konnte hier nicht eindeutig bestimmt werden. Selbst wenn die in Abb. 4.9 ersichtliche Änderung in der T-MOKE-Asymmetrie eindeutig der Orientierung des Kristalls zugeordnet werden könnte, würde sich der Einfluss der Anisotropie nur in einer leichten Intensitätsänderung, aber nicht in einer eindeutigen Änderung des spektralen Verlaufs widerspiegeln. Daher ist T-MOKE-Reflexionsspektroskopie an den  $3p$ -Kanten praktisch ungeeignet, die Abhängigkeit von der Ausrichtung der Kristallachsen zu untersuchen, da sich Justagefehler und Inhomogenitäten der Proben stärker auswirken, als die kristalline Anisotropie. Dieses Problem wird aber durch XMLD-Spektroskopie (Kapitel 5.3) überwunden werden.

### 4.3 Anisotropie in L-MOKE

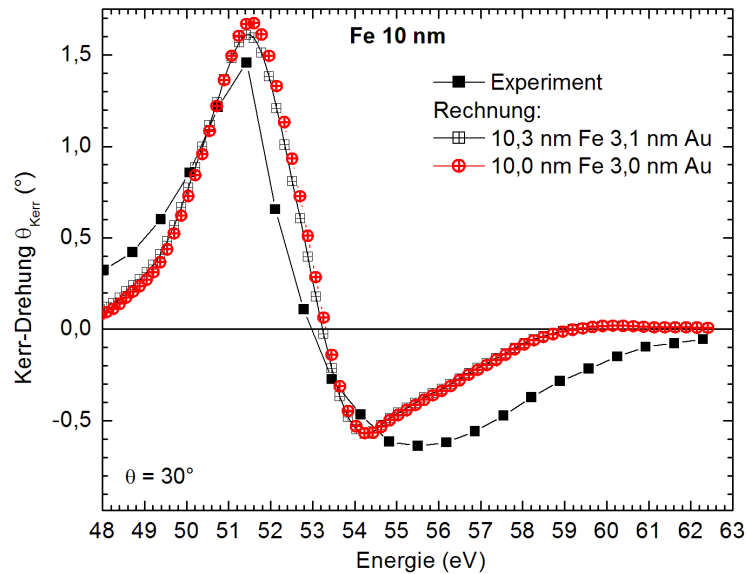
Ein weiterer magneto-optischer Effekt, der mit linear polarisiertem Licht gemessen werden kann, ist der longitudinale magneto-optische Kerr-Effekt. Dieser bewirkt eine Drehung der Polarisationssebene des reflektierten Lichts in Abhängigkeit der Probenmagnetisierung (siehe Kap. 2.2.4). Im Folgenden wird überprüft, wie stark sich die magnetokristalline Anisotropie auf L-MOKE-Spektren auswirkt. Da zur Messung eines Energiespektrums der Kerr-Drehung für jede Energie eine Polarisationsanalyse des reflektierten Strahls notwendig ist, ist diese Messmethode sehr zeitaufwändig. Daher wurde nur ein L-MOKE-Spektrum an der 10 nm Fe-Probe gemessen. Die Messung wurde mit dem BESSY-Polarimeter (Kap. 3.3) an der BESSY II Beamline U125-2-SGM2 [112] durchgeführt. Für die Messung wurde s-polarisiertes Licht verwendet. Zwar lässt sich die Kerr-Drehung auch mit p-polarisiertem Licht messen, s-polarisiertes Licht hat aber den Vorteil, dass die Schwingungsebene des E-Feldes in der Kristalloberfläche und somit für die Kristallwinkel  $\varphi = 0^\circ$  exakt parallel zur leichten und für  $\varphi = 45^\circ$  exakt parallel zur mittelschweren magnetischen Achse des Kristalls liegt. Dies ist ein deutlicher Vorteil gegenüber T-MOKE, wo p-polarisiertes Licht verwendet werden muss.



**Abbildung 4.10:** Kerr-Drehung  $\theta_K$  für die Probenmagnetisierung parallel zur magnetisch leichten ( $\varphi = 0^\circ$ ) (volle Rechtecke) und mittelschweren ( $\varphi = 45^\circ$ ) Achse (offene Kreise) bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 30^\circ$  für s-polarisiertes Licht.

Abbildung 4.10 zeigt die Kerr-Drehung für die 10 nm Fe-Probe für die Probenmagnetisierung und den elektrischen Feldvektor einmal parallel zur magnetisch leichten Achse ( $\varphi = 0^\circ$ ) und einmal parallel zur magnetisch mittelschweren Achse ( $\varphi = 45^\circ$ ). Die Kerr-Drehung weist bei 51,5 eV maximale Werte von etwa  $1,4^\circ$  auf. Das Vorzeichen der Drehung ändert sich bei 53,0 eV und hat bei ca. 55,5 eV einen Wert von  $0,6^\circ$  in entgegengesetzter Richtung. Die hier gemessene Drehung an der  $3p$ -Kante ist um ca. eine Größenordnung geringer als an der  $2p$ -Kante [70] und vergleichbar mit anderen Messungen an der  $3p$ -Kante von polykristallinem Fe [137]. Die Kerr-Spektren für die beiden Kristallachsen unterscheiden sich geringfügig, was den Schluss nahe legen könnte, dass sich die Ausrichtung der Kristallachsen auf die Kerr-Drehung auswirkt. Die Änderung der Kerr-Drehung liegt jedoch innerhalb des abgeschätzten experimentellen Fehlers, daher ist eine nähere Betrachtung der Spektren durch Anpassungsrechnungen notwendig.

Ein Vergleich mit Anpassungsrechnungen ist in Abbildung 4.11 gezeigt (schwarze offene Symbole). Die experimentell ermittelte Kerr-Drehung für  $\mathbf{M}$  und  $\mathbf{E}$  parallel zur magnetisch leichten Achse ist im Vergleich mit Anpassungsrechnungen für polykristallines Fe dargestellt. Zur Berechnung wurde das Programm Yeh-MOKE [95] (siehe Kap. 2.3) unter Verwendung der magneto-optischen Koeffizienten aus [80] genutzt. Die Anpassungsrechnung (schwarze offene Symbole) kann das gemessene Spektrum gut reproduzieren. Als Parameter wurden die Schichtdicken aus Tab. 4.1 genommen. Die Anpassungsrechnung wurde zusätzlich mit einem Faktor 0,4 multipliziert und so an das experimentelle Spektrum weiter angepasst. Der Unterschied in den Absolutwerten der Drehung ist vermutlich auf die Rauigkeit der Probe zurückzuführen, welche im Programm Yeh-MOKE nicht berücksichtigt werden kann.



**Abbildung 4.11:** Vergleich des experimentell ermittelten Kerr-Spektrums für die magnetisch leichte Achse ( $\varphi = 0^\circ$ ) mit Anpassungsrechnungen [95]. (Details siehe Text)

Aufgrund der zuvor angestellten Überlegungen muss überprüft werden, wie empfindlich das L-MOKE-Spektrum auf Änderungen in der Schichtdicke reagiert. Um zu zeigen, dass schon geringe Änderungen der Schichtdicken die Größe der Kerr-Drehung signifikant beeinflussen können, wurde eine weitere Anpassungsrechnung für eine Probe mit 10,0 nm Fe und 3,0 nm Au gerechnet (offenen runde Symbole in Abb. 4.11). Dieser Unterschied von wenigen zehntel Nanometern reicht bereits aus um die maximale Drehung bei 51,5 nm um über 5% zu verändern. Dieser Wert liegt in der Größenordnung des experimentell beobachteten Unterschiedes für die beiden Kristallrichtungen. Wie für die T-MOKE-Spektren ist also auch hier Interferenz eine mögliche Ursache für die Unterschiede in den L-MOKE-Spektren für verschiedene Kristallachsen.

Somit konnte gezeigt werden, dass sich sowohl T-MOKE als auch L-MOKE gemessen an den  $3p$ -Kanten nur unzureichend dazu eignet, Effekte, welche auf der kristallinen Anisotropie beruhen, zu messen. Vielmehr sind die Änderungen, welche durch Interferenz in den magneto-optischen Spektren hervorgerufen werden, so dominant, dass eine eindeutige Zuordnung von Unterschieden in den Spektren zur Orientierung der Magnetisierungsrichtung im Kristall nicht möglich ist. Im folgenden Kapitel wird gezeigt werden, dass XMLD hingegen sehr gut für diese Aufgabe geeignet ist.

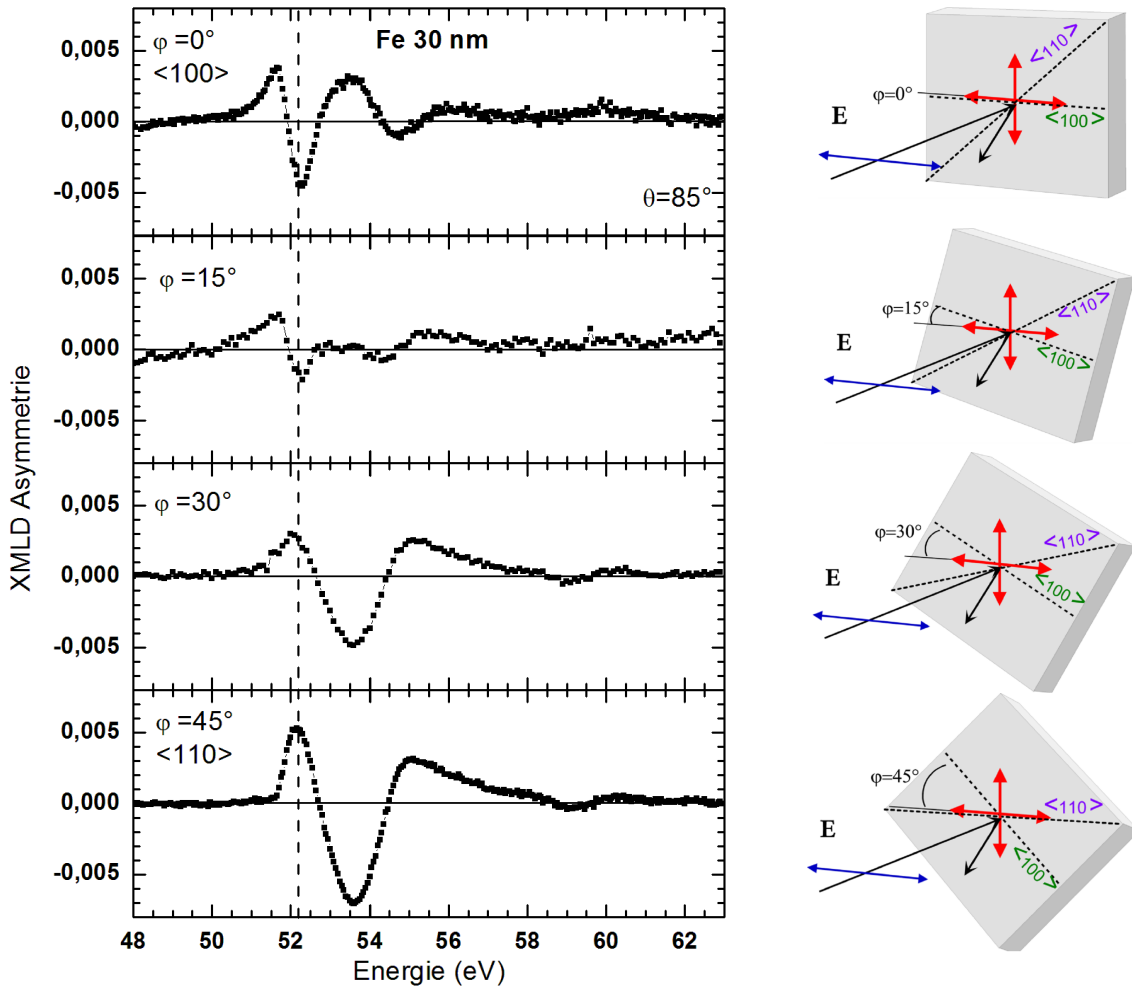
## 4.4 Anisotropie in XMLD an den $3p$ -Kanten

In den vorherigen beiden Abschnitten wurden die Fe-Proben bezüglich des transversalen und longitudinalen magneto-optischen Kerr-Effekts eingehend untersucht. Es konnte keine signifikante Abhängigkeit der beiden Effekte bezüglich der Orientierung der Kristallachsen festgestellt werden. Dieses Kapitel widmet sich nun der Untersuchung der Proben mittels des magnetischen Röntgenlineardichroismus (XMLD).

Es wird gezeigt werden, dass XMLD-Messungen eine wirkungsvolle Methode zur Untersuchung der kristallinen Symmetrie sind und die Richtungsabhängigkeit der  $3d$ -Zustandsdichte direkt aus den XMLD-Spektren ersichtlich wird. Zudem wird gezeigt, dass sich die Austauschspaltung der Rumpfstände direkt in den XMLD-Spektren widerspiegelt. Die Messungen an den  $3p$ -Kanten bieten zusätzlich den Vorteil, dass das Reflexionsvermögen der Proben um einen Faktor 1000 größer ist, als es für den Energiebereich der  $2p$ -Kanten der Fall ist. Damit sind an den  $3p$ -Kanten Messungen bei nahezu senkrechtem Einfall möglich, also idealer Geometrie für XMLD. Die XMLD-Messungen an den  $3p$ -Kanten wurden ebenfalls wie die T-MOKE- und L-MOKE-Messungen an der Beamline U125-2-SGM2 des BESSY II [112] mit dem BESSY-Polarimeter (siehe Kap. 3.3) durchgeführt. Die Energieauflösung betrug  $E/\Delta E = 3000$ .

Wie in Abschnitt 4.1 beschrieben wurde, liegen für Fe die leichten und mittelschweren Achsen parallel zur Probenoberfläche. Um das E-Feld des p-polarisierten Lichts möglichst parallel zu diesen beiden Achsen ausrichten zu können, wurde der Einfallswinkel auf  $\theta = 85^\circ$ , gemessen zur Probenoberfläche, eingestellt. Das E-Feld hat bei diesem Einfallswinkel einen Anteil von 99,6% parallel zur Probenoberfläche und wird daher im Weiteren als parallel zu Probenoberfläche betrachtet. Das an die Probe angelegte Magnetfeld ist aufgrund des Aufbaus des MiniMag (siehe Kap. 3.4) stets parallel zur Probenoberfläche ausgerichtet. Die Stärke des Magnetfeldes betrug dabei etwa 200 mT, was zur magnetischen Sättigung der Probe ausreicht. Das Messprinzip für XMLD ist ausführlich in Kap. 2.2.5 beschrieben. Im Folgenden werden sowohl der Einfluss der Kristallorientierung auf die XMLD-Spektren betrachtet, als auch der Einfluss der Schichtdicke der vier untersuchten Proben auf die XMLD-Spektren diskutiert.

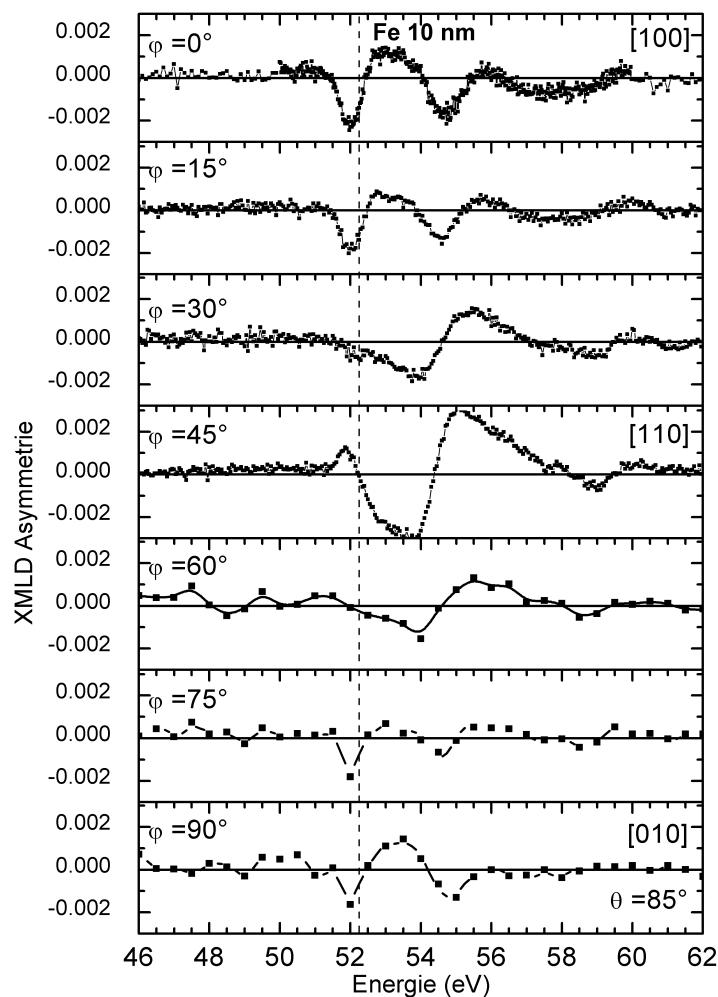
In Abb. 4.12 sind die XMLD-Spektren der 30 nm Fe-Probe für unterschiedliche Winkel  $\varphi$  zwischen E-Feld-Vektor und den Kristallachsen dargestellt. Um den Einfluss der Orientierung des Kristalls auf das XMLD-Signal zu untersuchen, wurde die Probe in Schritten von  $\Delta\varphi = 15^\circ$  um die Oberflächennormale gedreht. Dadurch wurde die Ausrichtung des E-Feldes zu den magnetischen Achsen variiert. Die jeweilige Messgeometrie ist in Abb. 4.12 rechts neben den Spektren skizziert. Für  $\varphi = 0^\circ$  (oberes Spektrum) liegt der E-Feld-Vektor parallel zur magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Achse des Kristalls. Die darauf folgenden Spektren zeigen die XMLD-Asymmetrie für  $\varphi = 15^\circ$  und  $\varphi = 30^\circ$ . Das untere Spektrum für  $\varphi = 45^\circ$  entspricht einer Orientierung des E-Feldes und der Magnetisierung parallel zu den magnetisch mittelschweren  $\langle 110 \rangle$ -Achsen. Der XMLD zeigt eine sehr starke Abhängigkeit bezüglich der Orientierung der Kristallachsen zum E-Feld-Vektor. Dabei erfährt das XMLD-Spektrum Änderungen von 100% beim Wechsel von der leichten zur mittelschweren Achse. Hinzu kommt, dass das XMLD-Spektrum, im Gegensatz zu den T-MOKE- und L-MOKE-Spektren, zahlreiche klar trennbare Strukturen aufweist.



**Abbildung 4.12:** XMLD-Asymmetrie der 30 nm Fe-Schicht für  $\theta = 85^\circ$ . Von oben nach unten ändert sich die Ausrichtung des Kristalls von  $\varphi = 0^\circ$  über  $\varphi = 15^\circ$  und  $\varphi = 30^\circ$  hin zu  $\varphi = 45^\circ$ . Das Umklappen des XMLD-Signals wird besonders bei 52,25 eV (gestrichelte Linie) deutlich.

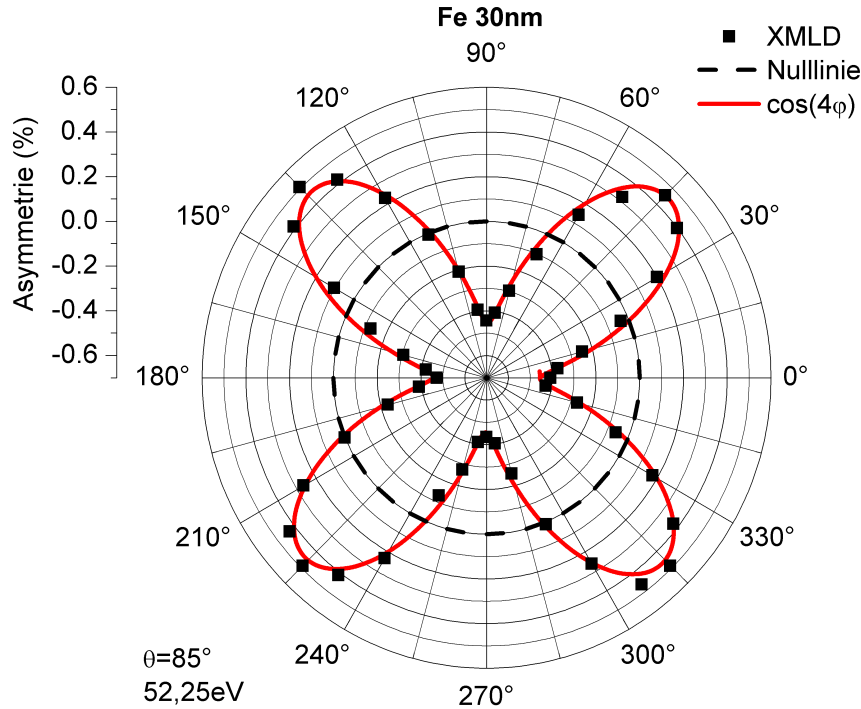
Die XMLD-Spektren für die unterschiedlichen Ausrichtungen des Kristalls sollen nun näher betrachtet werden. Das Spektrum für die magnetisch leichte  $\langle 100 \rangle$ -Achse des Fe bcc-Kristalls setzt sich aus mehreren Peaks bei den Energien 51,6 eV, 52,3 eV, 53,5 eV und 54,7 eV zusammen. Eine weitere schwächer ausgeprägte Struktur ist um etwa 60 eV zu finden. Für die Ausrichtung des E-Feldes parallel zur mittelschweren  $\langle 110 \rangle$ -Achse des Fe-Kristalls ergibt sich ein neues Spektrum, mit ausgeprägten Peaks an den Positionen 52,2 eV, 53,6 eV und 55,0 eV. Bis auf geringe Abweichungen liegen diese Peaks an den gleichen Positionen wie für die  $\langle 100 \rangle$ -Richtung, haben aber das Vorzeichen gewechselt. Der Peak bei 51,6 eV in  $\langle 100 \rangle$ -Richtung fehlt in dem Spektrum für die  $\langle 110 \rangle$ -Richtung komplett, der Grund hierfür wird in Kap. 4.6 detailliert erläutert. Die maximalen Werte der XMLD-Asymmetrie erreichen bis zu 0,7% und alle Spektren weisen deutliche, unterscheidbare Strukturen auf, die sich beginnend bei etwa 50,5 eV über den gesamten Energiebereich der Fe  $3p$ -Kanten bis etwa 61 eV erstrecken. Eine detaillierte Betrachtung des Ursprungs der Strukturen im Vergleich mit *ab initio* Rechnungen erfolgt in Kap. 4.6.





**Abbildung 4.13:** XMLD-Asymmetrie gemessen an einer 10 nm dünnen Fe-Schicht bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 85^\circ$ . Das Signal zeigt eine deutliche Veränderung bei Drehung des Kristalls bezüglich des E-Feld-Vektors des Lichts von  $\varphi = 0^\circ$  über  $\varphi = 45^\circ$  bis hin zu  $\varphi = 90^\circ$ .

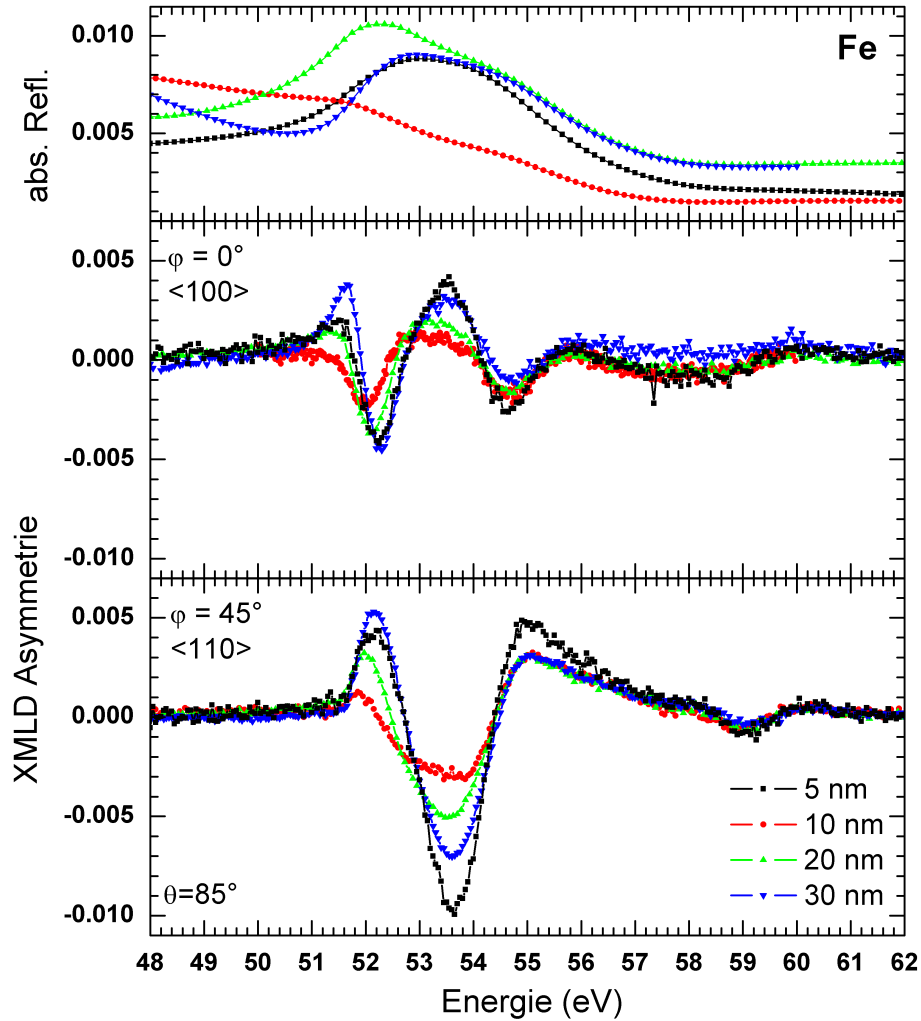
Zuvor soll der Einfluss der Kristallsymmetrie auf den XMLD näher betrachtet werden. In Abbildung 4.13 sind XMLD-Spektren für die dünnere 10 nm Fe-Probe aufgetragen. Analog zur dicken 30 nm Probe (Abb. 4.12) zeigen die XMLD-Spektren ebenfalls eine deutliche Anisotropie für verschiedene Orientierungen zwischen den Kristallachsen und dem E-Feld-Vektor des Lichts. Beginnend mit  $\mathbf{E} \parallel [100]$ , also dem Spektrum für die magnetisch leichte Richtung, wird die Probe wieder in  $\Delta\varphi = 15^\circ$  Schritten gedreht. Das mittlere Spektrum zeigt die XMLD-Asymmetrie für  $\mathbf{E} \parallel [110]$ . Das untere Spektrum wurde aufgenommen für  $\varphi = 90^\circ$ . Dies entspricht einer Orientierung des E-Feldes entlang der nächsten magnetisch leichten Achse, d.h.  $\mathbf{E} \parallel [010]$ . Wie es für die vierzählige Symmetrie des bcc-Kristalls zu erwarten ist, entspricht der Verlauf des XMLD-Signals für  $\varphi = 90^\circ$  wieder dem XMLD-Spektrum für  $\varphi = 0^\circ$ . Die Spektren für  $\varphi = 75^\circ$  und  $\varphi = 15^\circ$  sowie  $\varphi = 60^\circ$  und  $\varphi = 30^\circ$  müssen aus Symmetriegründen ebenfalls gleich sein, was auch beobachtet wird.



**Abbildung 4.14:** XMLD-Asymmetrie der 30 nm Fe-Probe bei 52,25 eV in Abhängigkeit des Winkels zwischen dem E-Feld-Vektor des Lichts und den Kristallachsen. Der Einfallswinkel betrug  $\theta = 85^\circ$ .

Um ein besseres Bild von der Abhängigkeit des XMLD von der Orientierung des Kristalls zu erhalten, wird nun die XMLD-Asymmetrie bei einer festen Energie und veränderlichem Kristallwinkel betrachtet. Dazu wurde die 30 nm Probe gewählt und die Energie auf 52,25 eV gesetzt (gestrichelte Linie in Abb. 4.12) da sich der Asymmetriewert für diese Energie stark mit der Kristallrichtung ändert, von etwa -0,5% für  $\mathbf{E} \parallel \langle 100 \rangle$  hin zu +0,5% für  $\mathbf{E} \parallel \langle 110 \rangle$ . Wird die XMLD-Asymmetrie bei dieser Energie nun über den Winkel aufgetragen, lässt sich sehr eindrucksvoll die vierzählige Symmetrie des Fe bcc-Kristalls demonstrieren. Dies ist in Abbildung 4.14 in einem Polardiagramm dargestellt. Für die Messung wurde der Kristall bei einer festen Energie von 52,25 eV in  $\Delta\varphi = 7,5^\circ$  Schritten von  $\varphi = 0^\circ$  hin zu  $\varphi = 360^\circ$  gedreht, wobei für jeden Winkel die XMLD-Asymmetrie gemessen wurde. Klar zu erkennen ist, dass sich der Kurvenverlauf jeweils nach  $\Delta\varphi = 90^\circ$  wiederholt. Die XMLD-Asymmetrie hat einen maximalen positiven Wert von +0,5% für  $\varphi = 45^\circ$ ,  $\varphi = 135^\circ$ ,  $\varphi = 225^\circ$  und  $\varphi = 315^\circ$ , dies entspricht der Ausrichtung des E-Feldes parallel zu den magnetisch mittelschweren Kristallachsen  $[110]$ ,  $[\bar{1}10]$ ,  $[\bar{1}\bar{1}0]$  und  $[1\bar{1}0]$ . Ein maximal negatives Asymmetrie-Signal findet sich in Richtung der magnetisch leichten Achsen für  $\varphi = 0^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $180^\circ$  und  $270^\circ$ . Die Nulllinie ist durch die gestrichelte Linie in Abb. 4.14 markiert. Der Verlauf des XMLD-Signals entspricht wie erwartet einem  $\cos(4\varphi)$ -Verlauf (rote Linie in Abb. 4.14). Die leichte Verdrehung bezüglich des Koordinatensystems ist durch eine nicht ideale Ausrichtung des Kristalls zu erklären. Diese Abweichung liegt aber mit etwa  $1\text{-}2^\circ$  im Bereich der Genauigkeit des experimentellen Aufbaus.

Um mögliche Einflüsse der Schichtdicke auf die XMLD-Spektren ausfindig zu machen, werden im Folgenden die Spektren aller vier Fe-Proben verglichen. Die XMLD-Spektren der Proben mit den Schichtdicken 5 nm, 10 nm, 20 nm und 30 nm sind in Abbildung 4.15 für die magnetisch

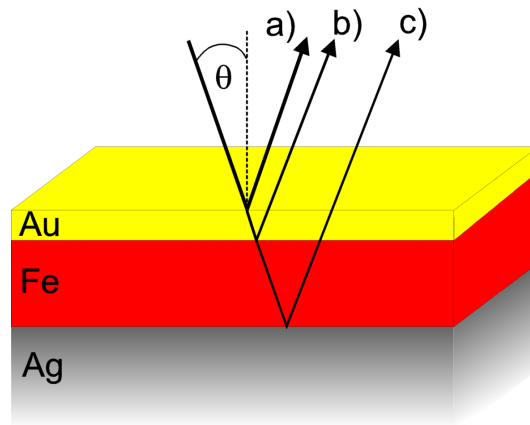


**Abbildung 4.15:** Oben: Reflexionsspektren der vier Fe-Proben unterschiedlicher Schichtdicke. Mitte & Unten: XMLD-Asymmetrie-Spektren bei  $\theta = 85^\circ$  Einfallswinkel für die magnetisch leichte und mittelschwere Achse.

leichte  $\langle 100 \rangle$ -Achse (Abb. 4.15 mitte) und die magnetisch mittelschwere  $\langle 110 \rangle$ -Achse (Abb. 4.15 unten) gezeigt. Zusätzlich sind im oberen Teil von Abb. 4.15 die Reflexionsspektren der einzelnen Proben dargestellt. Ein direkter Vergleich zeigt, dass sich die XMLD-Spektren für die verschiedenen Proben voneinander nur in der Höhe unterscheiden. Im Gegensatz zu den T-MOKE-Messungen bleibt aber die generelle Form der Spektren mit den zahlreichen Strukturen erhalten. Ein Vergleich der Peakwerte bei ca. 53,5 eV ergibt folgende Reihenfolge für die Stärke der XMLD-Asymmetrie: Die 5 nm Probe zeigt das stärkste Signal, gefolgt von der 30 nm Probe, der 20 nm Probe und der 10 nm Probe. Ein klarer Trend bezüglich der Schichtdicke allein ist somit nicht erkennbar. Es zeigt sich jedoch, dass die Unterschiede in den Spektren für Photonenenergien unterhalb der Fe  $3p$ -Kante bei 54 eV deutlich größer ausfallen als für Energien oberhalb.

Dies wurde bereits für die T-MOKE-Spektren beobachtet (Abb. 4.9) und ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass die Unterschiede in der Höhe der XMLD-Spektren ebenfalls auf Interferenz und nicht auf andere Ursachen zurückzuführen sind, wie z.B. die kristalline Qualität der

Proben oder Grenz- und Oberflächeneffekte. Interferenzeffekte treten vornehmlich für Energien unterhalb der  $3p$ -Kante (54 eV) auf, da hier die Fe-Schicht vom Licht gut durchdrungen wird. Oberhalb der  $3p$ -Kante nimmt die Eindringtiefe des Lichts stark ab. Dies führt zu einer Reduktion der zur Interferenz beitragenden Strahlen, welche an der Fe/Ag-Grenze reflektiert werden. Ein Vergleich mit den Reflexionsspektren in Abb. 4.15 zeigt allerdings nicht den für andere magneto-optische Effekte beobachteten Zusammenhang, wonach ein geringes Reflexionsvermögen mit einer Erhöhung des Asymmetrie-Signals einhergeht [46; 70; 138; 139; 140]. Wäre dies der Fall, müsste die 10 nm Probe das stärkste XMLD-Signal aufweisen. Eine Erklärung für dieses abweichende Verhalten liefert folgender Ansatz:

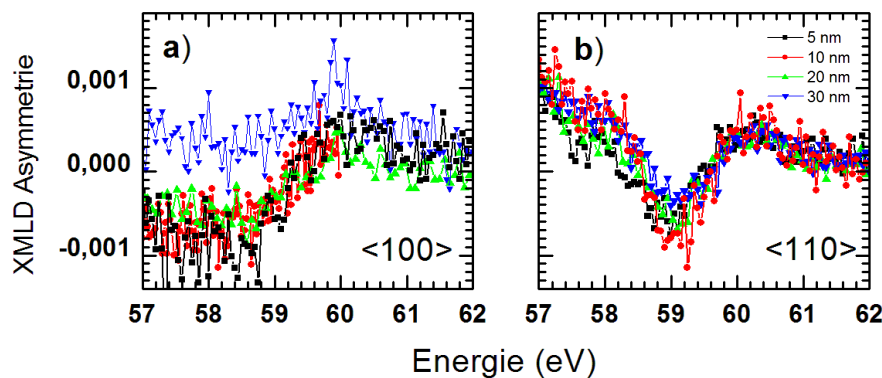


**Abbildung 4.16:** Schematische Darstellung des unter dem Winkel  $\theta$  an den verschiedenen Schichten der Probe reflektierten Strahls aufgeteilt in die Teilstrahlen a), b) und c).

Der reflektierte Strahl kann in drei Teilstrahlen a), b) und c) aufgeteilt werden (siehe Abb. 4.16), die miteinander interferieren können. Strahl a) wird an der Vakuum/Au-Grenzschicht reflektiert, Strahl b) an der Au/Fe-Grenzschicht und Strahl c) wird an der Fe/Ag-Grenzschicht reflektiert. Die magnetische Information des Fe ist dabei nur in den letzten beiden Strahlen enthalten. Die Wellenlänge des Lichts bei 54 eV beträgt etwa 23 nm. Für die 5 nm Probe interferieren die letzten beiden Strahlen konstruktiv. Dies folgt aus dem zurückgelegten Weglängenunterschied des Strahls c) von etwa 10 nm beim zweifachen Durchlauf der Fe-Schicht und einem  $180^\circ$ -Phasensprung, entsprechend  $\lambda/2 = 11,5$  nm, den Strahl b) bei Reflexion an der Fe/Au-Grenzschicht erfährt. Somit sind die Strahlen b) und c) beim Austritt aus der 5 nm Probe um etwa  $2\pi$  phasenverschoben.

Die gleiche Überlegung führt zu destruktiver Interferenz des zweiten und dritten Strahls für die 10 nm, die 20 nm und die 30 nm Probe. Aufgrund der Absorption von Strahl c) beim Durchlaufen der Fe-Schicht ist die Interferenz für die 30 nm Probe am schwächsten ausgeprägt, gefolgt von der 20 nm Probe. Für die dünne 10 nm Probe tritt die stärkste destruktive Interferenz auf. Demnach ist der Anteil der Strahlen, die die Information der Fe-Schicht enthalten und somit zum magnetischen Signal im reflektierten Licht beitragen für die 5 nm Probe am höchsten, gefolgt von der 30 nm Probe und der 20 nm Probe. Die 10 nm Probe zeigt das schwächste Signal, da hier hauptsächlich der direkt an der Au-Oberfläche reflektierte Strahl a) zum Gesamtsignal beiträgt. Genau dieses Verhalten kann in den experimentellen Spektren beobachtet werden.

Neben der unterschiedlichen Schichtdicke, welche die Interferenzeffekte verursacht, soll nun noch betrachtet werden, ob die Rauigkeit der Probe die XMLD-Spektren beeinflusst. Hierzu werden die aus den Anpassungsrechnungen ermittelten Werte genommen (Tabelle 4.1). Die Rauigkeitswerte sind für alle vier Proben sehr ähnlich, dennoch lässt sich im Vergleich mit den XMLD-Spektren ein Trend erkennen. Für die 10 nm Probe, welche das geringste XMLD-Signal zeigt, wurde in den Anpassungsrechnungen mit  $\sigma_{Fe} = 2,25$  nm die höchste Rauigkeit der Au/Fe-Grenzschicht ermittelt, für die 5 nm Probe, welche das stärkste XMLD-Signal zeigt, die geringste Rauigkeit mit  $\sigma_{Fe} = 1,20$  nm. Der Einfluss der Rauigkeit auf die Spektren würde jedoch vornehmlich für Energien oberhalb der Fe  $3p$ -Resonanz erwartet werden, wie es in Abschnitt 4.1 Abb. 4.5 dieses Kapitels gezeigt wurde. In Abb. 4.15 ist jedoch zu erkennen, dass die XMLD-Spektren für 10 nm, 20 nm und 30 nm Fe oberhalb der  $3p$ -Resonanz einen nahezu identischen Verlauf haben. Die Abweichung des Spektrums der 5 nm Probe kann wieder auf Interferenz zurückgeführt werden, da die dünne Fe-Schicht, trotz des erhöhten Absorptionsvermögens des Fe nach der  $3p$ -Resonanz, vom Licht durchdrungen werden kann. Ein Einfluss der Probenrauigkeit auf die Spektren kann somit nicht eindeutig festgestellt werden, so dass festgehalten werden kann, dass die Unterschiede in den XMLD-Spektren hauptsächlich durch Interferenzeffekte hervorgerufen werden.



**Abbildung 4.17:** Detailansicht der Strukturen im XMLD-Spektrum aus Abb. 4.15 für a) die magnetisch leichte Achse und b) die magnetisch mittelschwere Achse.

Schließlich soll noch eine Besonderheit des XMLD-Spektrums betrachtet werden. Abbildung 4.17 zeigt die schon zuvor angemerkte Struktur um 60 eV im Detail für die  $\langle 100 \rangle$ - und die  $\langle 110 \rangle$ -Achse. Zunächst fällt auf, dass die Strukturen, bis auf eine geringe Abweichung der 30 nm Probe, für alle Schichtdicken reproduzierbar sind und keine Abhängigkeit von der Schichtdicke zeigen. Nicht einmal die 5 nm Probe, welche aufgrund der geringen Schichtdicke, trotz des hohen Absorptionsvermögens der Fe-Schicht, Interferenzeffekte zeigen könnte. Hinzu kommt, dass die Strukturen für Energien größer 59 eV für beide Kristallrichtungen identisch sind. Dies, und die, verglichen mit den Hauptstrukturen um 54 eV geringen Asymmetriewerte von 0,1% lassen vermuten, dass es sich möglicherweise um einen Grenzflächeneffekt zwischen Fe und Au handelt. In Abschnitt 4.7 wird näher auf diese zusätzliche Struktur und ihren Ursprung eingegangen.

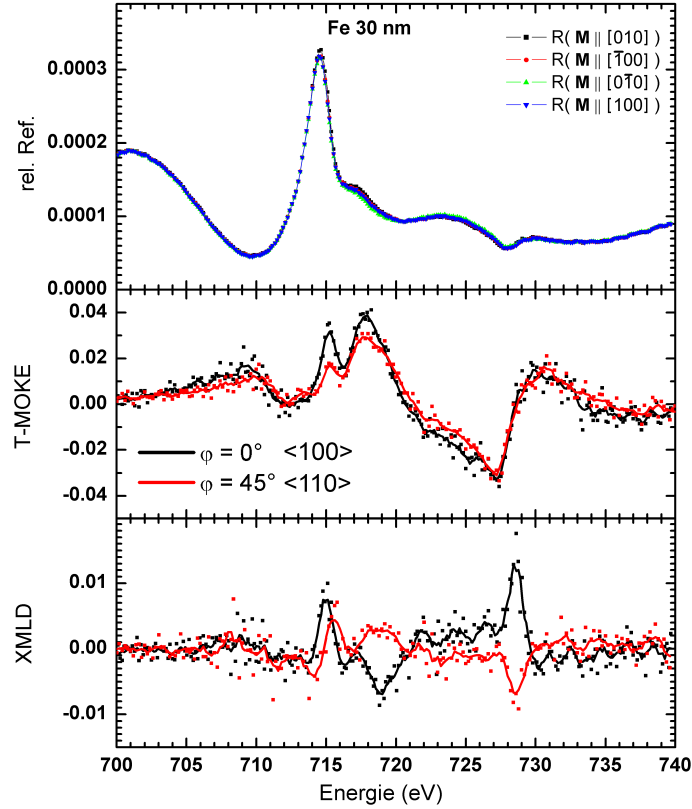
An diesem Punkt lassen sich bereits einige Zwischenergebnisse zusammenfassen. Im Gegensatz zu den zuvor betrachteten magneto-optischen Effekten T-MOKE und L-MOKE (Kapitel 4.2 und 4.3) zeigt der XMLD eine eindeutige Abhängigkeit von der Orientierung zwischen dem E-Feld, der Magnetisierung und den Kristallachsen, wobei das XMLD-Spektrum Änderungen um bis zu 100% erfährt. Die absolute Stärke der XMLD-Spektren ist zwar mit unter 1% um mehr als eine Größenordnung geringer als die absoluten Werte der T-MOKE-Spektren, jedoch konnten aufgrund des experimentellen Aufbaus deutliche XMLD-Asymmetrie-Spektren mit einer Genauigkeit von etwa  $\Delta A_{XMLD} = 0,02\%$  gemessen werden. Die Unterschiede in den Spektren, welche auf Interferenz zurückzuführen sind, drücken sich nur in der relativen Höhe der XMLD-Strukturen aus. Dagegen bleibt, im Gegensatz zum T-MOKE, die Form der XMLD-Spektren erhalten und diese lässt eindeutige Rückschlüsse auf die Kristallausrichtung zu. Zudem sind die Einflüsse von Interferenz deutlich schwächer als die durch die magnetokristalline Anisotropie bedingten Einflüsse auf die XMLD-Spektren. Damit eignet sich die XMLD-Reflexionsspektroskopie an den  $3p$ -Kanten hervorragend zur Untersuchung der kristallinen Anisotropie.

## 4.5 Anisotropie in XMLD an den $2p$ -Kanten

Im Folgenden werden die  $2p$ -Kanten von Fe betrachtet, um das Bild der XMLD-Messungen in Reflexion zu vervollständigen. Diese haben den Vorteil, dass die austausch-aufgespaltenen  $p_{1/2}$ - und  $p_{3/2}$ -Zustände durch die Spin-Bahn-Aufspaltung klar getrennt sind. Ein Nachteil ist jedoch das geringe Reflexionsvermögen an den  $2p$ -Kanten im Vergleich zu den  $3p$ -Kanten. Zwar existieren für die  $2p$ -Kanten von Eisen und Eisenoxiden bereits wenige XMLD-Spektren [11; 13; 14], diese wurden jedoch mittels *total electron yield* (TEY) gemessen und sind nicht mit den XMLD-Spektren dieser Arbeit zu vergleichen. Im Folgenden werden nun Messungen in Reflexion vorgestellt. Bisher gibt es nur eine Arbeit, die ein in Reflexion gemessenes XMLD-Spektrum zeigt [77]. Dieses wurde jedoch an einer polykristallinen Fe-Probe gemessen.

Die Methode der Reflexionsspektroskopie zur Detektion der Auswirkung magnetokristalliner Anisotropie in magneto-optischen Effekten wurde 2005 von Kleibert et al. an kristallinem Kobalt angewendet [141], hierbei wurde aber nicht XMLD sondern T-MOKE gemessen. Dabei wurden sehr geringe Änderungen in der T-MOKE-Asymmetrie von nur wenigen Prozent für verschiedene Kristallorientierungen beobachtet. Für XMLD an der  $2p$ -Kante ist hingegen eine weitaus stärkere Abhängigkeit des Asymmetrie-Signals von der Orientierung des E-Feldes im Kristall zu erwarten. Im Folgenden werden beide Effekte verglichen. Hierzu wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine simultane Messung von T-MOKE und XMLD an der Undulator-Beamline U55 [110] am Zentrum für Synchrotronstrahlung DELTA der TU Dortmund durchgeführt.

Die in Abbildung 4.18 dargestellten Messungen zeigen einen direkten Vergleich von T-MOKE und XMLD für  $\mathbf{E} \parallel \langle 100 \rangle$  ( $\varphi = 0^\circ$ ) und  $\mathbf{E} \parallel \langle 110 \rangle$  ( $\varphi = 45^\circ$ ). Die Messgeometrie ist identisch der Geometrie für die Messungen an den  $3p$ -Kanten. Es wurde mit p-polarisiertem Licht, bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 85^\circ$  gemessen. Aufgrund des geringen Reflexionsvermögens wurde ein Photomultiplier als Detektor eingesetzt. Die Messungen wurden an der 30 nm dicken Fe-Schicht mit der Experimentierkammer E.M.M.A. (siehe Kap. 3.5) durchgeführt.



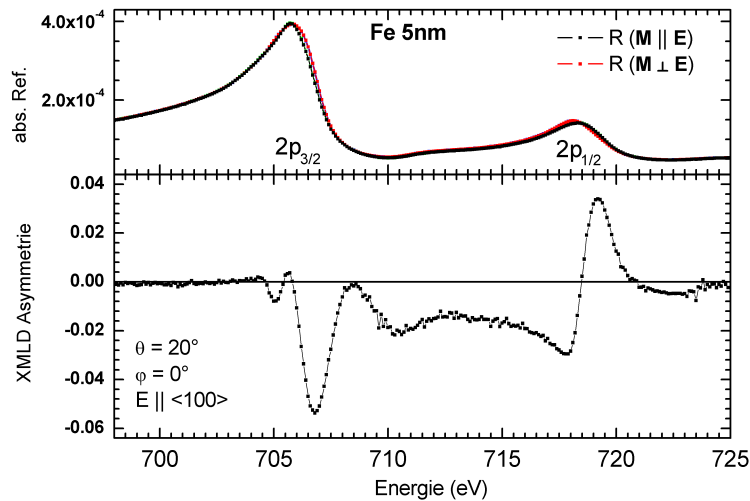
**Abbildung 4.18:** Oben: Relatives Reflexionsvermögen einer 30 nm Fe-Schicht bei  $\theta=85^\circ$  Einfallswinkel mit angelegten Magnetfeldern. Mitte: T-MOKE-Asymmetrie. Unten: XMLD-Asymmetrie.

Im oberen Teil von Abbildung 4.18 ist das relative Reflexionsvermögen der Probe aufgetragen. Klar zu erkennen sind die Fe  $2p_{3/2}$ - und die Fe  $2p_{1/2}$ -Kante bei etwa 715 eV und 730 eV. Der Offset von etwa 10 eV zu den Literaturwerten ist mit einer leichten Dejustage des Monochromators zu erklären und ist hier nicht weiter von Bedeutung. Gezeigt sind die insgesamt vier Reflexionsspektren für eine Probenmagnetisierung entlang der Kristallrichtungen [100],  $[0\bar{1}0]$ ,  $[\bar{1}00]$  und  $[010]$ , das E-Feld lag dabei parallel zur [100]-Richtung ( $\varphi = 0^\circ$ ). Aus diesen vier Kurven wurden mit den bekannten Gleichungen 2.34 und 2.41 die T-MOKE-Asymmetrie (mitte in Abb. 4.18) und die XMLD-Asymmetrie (unten in Abb. 4.18) berechnet.

Das T-MOKE-Spektrum für  $\varphi=0^\circ$  zeigt klare Strukturen über den gesamten Bereich der Fe  $2p$ -Kanten. Dabei erreicht das Spektrum Asymmetriewerte von bis zu 4%, mit zwei klaren Peaks an der  $2p_{3/2}$ -Kante und einer Doppelstruktur an der  $2p_{1/2}$ -Kante. Wird die Probe auf  $\varphi=45^\circ$  gedreht, sieht das T-MOKE-Spektrum ähnlich aus. Es zeigt sich lediglich eine Änderung in der Höhe des T-MOKE-Signals an den beiden Peaks an der  $2p_{3/2}$ -Kante und im Bereich oberhalb dieser Kante. Im unteren Teil von Abb. 4.18 ist die XMLD-Asymmetrie aufgetragen. Hier sind für  $\varphi=0^\circ$  ebenfalls deutliche Strukturen an beiden Fe-Kanten bei 715 eV, 719 eV und 728,5 eV erkennbar. Das Spektrum ändert sich jedoch deutlich für  $\varphi=45^\circ$ . Der Peak bei 715 eV schiebt leicht zu höheren Energien und die beiden Peaks bei 719 eV und 728,5 eV erfahren einen Vorzeichenwechsel. Dabei wird ein maximaler Wert für die XMLD-Asymmetrie von etwa 1,5% erreicht. Dieser Wert ist vergleichbar mit Werten, die an Fe in Absorption mittels TEY gemessen wurden [11]. Wie erwartet, zeigt also der XMLD eine wesentlich stärkere Abhängigkeit von der Ausrichtung des E-Feldes zu den Kristallachsen als T-MOKE.

Ein deutlicher Nachteil der hier verwendeten Messgeometrie ist das schlechte Signal-zu-Rausch-Verhältnis, welches auf das geringe Reflexionsvermögen der Probe an den Fe  $2p$ -Kanten für nahezu senkrechten Einfall zurückzuführen ist. Um diesen Nachteil zu umgehen, wurde für die nachfolgend vorgestellten Messungen eine alternative Geometrie bei streifendem Einfall ( $\theta = 20^\circ$ ) gewählt. Um die für die XMLD-Messungen notwendige gut definierte Orientierung von E-Feld und Kristallachsen beizubehalten, wurde s-polarisiertes Licht genutzt. Dadurch liegt der E-Feld-Vektor des Lichts für alle Einfallswinkel immer in der Probenoberfläche und kann somit über die azimutale Drehung der Probe parallel zur  $\langle 100 \rangle$ - und  $\langle 110 \rangle$ -Richtung eingestellt werden.

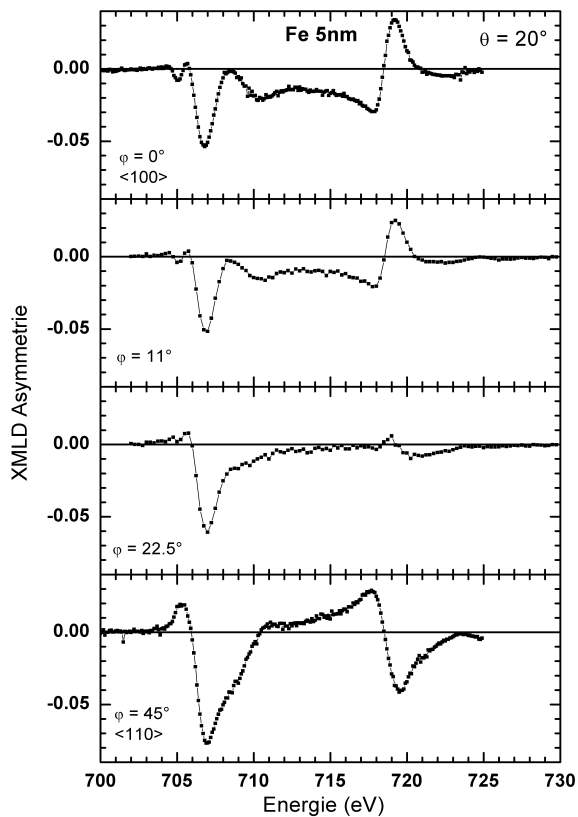
Die nun folgenden Messungen in der soeben beschriebenen Geometrie wurden mit dem BESSY-Polarimeter [119] (siehe Kap. 3.3) an der Undulator-Beamline UE56-2 PGM2 [113] am Berliner Elektronensynchrotron BESSY II durchgeführt. Für diese Messungen wurde die 5 nm Fe-Probe gewählt, da sie zum Zeitpunkt der Messungen im Vergleich zu den anderen Proben die geringste Zeit der Atmosphäre ausgesetzt war. Eine Oxidation der Probe konnte durch eine EDX-Analyse ausgeschlossen werden (siehe Kap. 3.6.1).



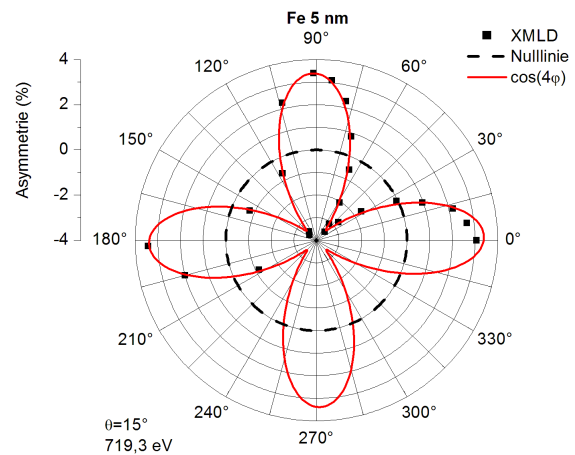
**Abbildung 4.19:** Reflexionsvermögen (oben) und XMLD-Asymmetrie (unten) der 5 nm Fe-Probe an den  $2p$ -Kanten bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 20^\circ$ . Das E-Feld des einfallenden s-polarisierten Lichts liegt parallel zur magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Richtung des Kristalls.

Abbildung 4.19 zeigt das Reflexionsspektrum für senkrechte und parallele Magnetisierung zum E-Feld (oben) und die daraus berechnete XMLD-Asymmetrie (unten). Die  $2p_{3/2}$ - und die  $2p_{1/2}$ -Kante des Fe sind deutlich zu erkennen. Das E-Feld des Lichts liegt parallel zur magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Achse. Das XMLD-Spektrum zeigt deutliche Strukturen und besteht an der  $2p_{3/2}$ -Kante aus einem großen Peak bei 706,75 eV welcher umgeben ist von zwei kleineren Strukturen bei ca. 705 eV und 710 eV und an der  $2p_{1/2}$ -Kante aus einer Doppelstruktur mit einem Minimum bei 717,75 eV und einem Maximum bei 719,25 eV. Diese Strukturen an den beiden  $2p$ -Kanten können, wie später gezeigt werden wird, direkt in Verbindung mit der elektronischen Struktur der Rumpfstände gebracht werden. Neben der deutlichen Trennung der Strukturen für die  $2p_{3/2}$ -Kante und die  $2p_{1/2}$ -Kante fällt im Vergleich mit den XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten zudem auf, dass sich die absoluten Werte der XMLD-Asymmetrie an den  $2p$ -Kanten im Bereich einiger Prozent bewegen, während die Werte an den  $3p$ -Kanten nur einige zehntel Prozent erreicht haben.





**Abbildung 4.20:** XMLD-Asymmetrie für die 5 nm Fe-Probe für verschiedene Ausrichtungen des E-Feldes parallel zur Probenoberfläche.



**Abbildung 4.21:** XMLD-Asymmetrie in Abhängigkeit des Winkels zwischen magnetisch leichter  $\langle 100 \rangle$ -Achse und dem E-Feld-Vektor des Lichts bei 719,3 eV und  $\theta = 20^\circ$  Einfallswinkel für s-polarisiertes Licht.

In Abbildung 4.20 sind analog zu den Messungen an den Fe  $3p$ -Kanten XMLD-Spektren für verschiedene Kristallorientierungen aufgetragen. Das obere Spektrum zeigt die XMLD-Asymmetrie für die Ausrichtung des E-Feldes parallel zur magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ -Richtung ( $\varphi = 0^\circ$ ), das untere Spektrum die XMLD-Asymmetrie für die Ausrichtung des E-Feldes parallel zur magnetisch mittelschweren  $\langle 110 \rangle$ -Richtung ( $\varphi = 45^\circ$ ) des Kristalls. Die anderen beiden Spektren zeigen Zwischenpositionen. Wie erwartet, unterscheiden sich die XMLD-Spektren für  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  deutlich. Die Doppelstruktur an der Fe  $2p_{1/2}$ -Kante bei etwa 718 eV wechselt das Vorzeichen, während an der Fe  $2p_{3/2}$ -Kante der zuvor beschriebene Hauptpeak bei 706,75 eV auf etwa 8% anwächst. Der kleine Peak an der niederenergetischen Seite des Hauptpeaks wechselt ebenfalls das Vorzeichen und an der höherenergetischen Seite bildet sich eine Schulter aus. Zudem unterscheiden sich die XMLD-Spektren an den  $2p$ -Kanten in einem weiteren Punkt von denen an den  $3p$ -Kanten. Während an den  $3p$ -Kanten alle Hauptstrukturen ihr Vorzeichen wechseln, wenn der Kristall von der  $\langle 100 \rangle$ - in die  $\langle 110 \rangle$ -Richtung gedreht wird, bleibt an der  $2p$ -Kante das Vorzeichen des Peaks bei 706,75 eV erhalten. Dies widerspricht den theoretischen Vorhersagen, wie später in Kap. 4.6 noch genauer erläutert wird.

Ebenso wie für die  $3p$ -Kanten zeigt sich im XMLD-Signal an den  $2p$ -Kanten die Kristallsymmetrie. Dies ist in Abb. 4.21 gezeigt. Ähnlich wie für die Messung an der  $3p$ -Kante der 30 nm Fe-Schicht ist deutlich die vierzählige Symmetrie zu erkennen. Die leichten Abweichungen der Maxima und Minima der Kurve von den Positionen  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  (und den entsprechenden weiteren Werten bei vierzähliger Symmetrie) ist auf eine nicht ideal eingestellte Winkelposition der Probe zurückzuführen. Die Abweichung von  $1,2^\circ$  liegt innerhalb der Genauigkeit, mit der der Probenwinkel eingestellt werden kann und hat keine signifikanten Auswirkungen auf die gemessenen XMLD-Spektren. Die scheinbare Drehung der in Abb. 4.21 dargestellten Messkurve um  $45^\circ$  gegenüber der Messkurve an der  $3p$ -Kante (Abb. 4.14) kommt dadurch zustande, dass die Messung für die  $2p$ -Kanten für eine Energie durchgeführt wurde, an der die XMLD-Asymmetrie bei  $\varphi = 0^\circ$  ein Maximum hat, wohingegen an der  $3p$ -Kante eine Energie gewählt wurde, bei welcher für  $\varphi = 0^\circ$  ein Minimum vorliegt.

Bemerkenswert dieser bei  $\theta = 20^\circ$  in Reflexion gemessenen XMLD-Spektren sind die absoluten Werte der XMLD-Asymmetrie im Vergleich mit Messungen in Absorption. Die Maximalwerte des XMLD-Signals übertreffen die in Absorption gemessenen Werte an Fe [11] um fast eine Größenordnung. Die Messungen an der 30 nm Probe, welche zu Beginn dieses Kapitels gezeigt wurden (Abb. 4.18), erreichen allerdings ebenfalls nur maximale Asymmetriewerte von etwa 1,5%. Erwartet wird die stärkste XMLD-Asymmetrie jedoch für senkrechten Lichteinfall [77]. Diese Abweichung gibt Anlass für eine systematische Untersuchung der Winkelabhängigkeit der XMLD-Asymmetrie in Reflexion. Dies ist jedoch nicht mehr Teil der vorliegenden Arbeit. Im nächsten Kapitel wird gezeigt werden, dass eine mögliche Erklärung für diese Abweichung Interferenzeffekte sein können.

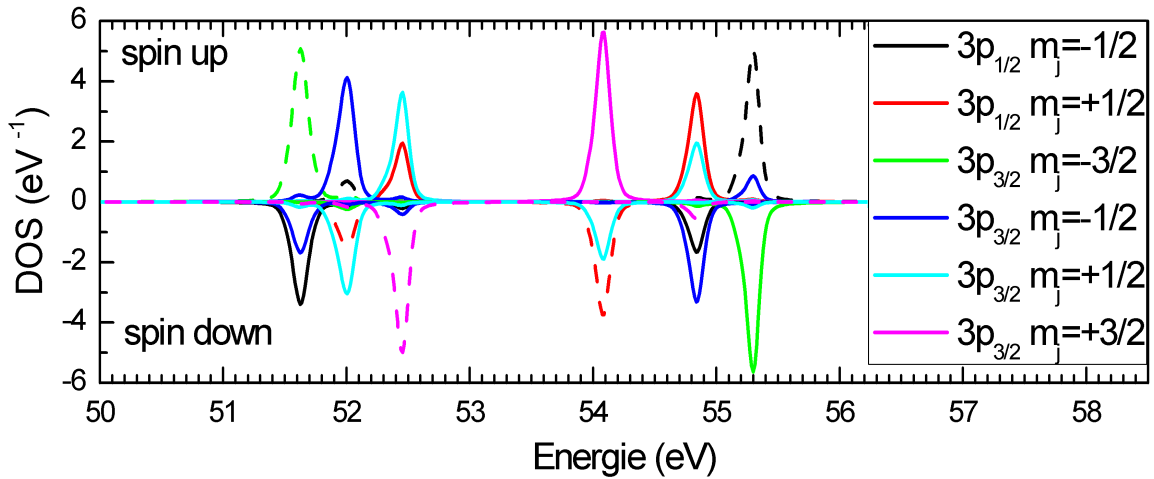
## 4.6 Vergleich mit *ab initio* Rechnungen

Die in den vorangegangenen Kapiteln experimentell ermittelten Spektren geben bereits einen guten Überblick über die Auswirkungen der Kristallorientierung auf magneto-optische Effekte. Eine analytische Beschreibung der Effekte, sowie der zugrundeliegenden Physik, erfordert jedoch eine tiefere Betrachtung. In diesem Kapitel wird sowohl ein Vergleich von *ab initio* Rechnungen (siehe Kap. 2.4) mit den experimentellen Spektren diskutiert, als auch Einflüsse der Rump fzustände und des Leitungsbandes auf die Messungen beleuchtet. Für die *ab initio* Berechnung der magneto-optischen Effekte und der elektronischen Struktur wurden die in Kap 2.4 beschriebenen Methoden verwendet. Im Folgenden werden die  $3p$ - und die  $2p$ -Kanten wieder getrennt betrachtet.

### 4.6.1 Fe $3p$ -Kanten

#### Betrachtung der elektronischen Struktur

Zuerst werden die den Schwerpunkt dieser Arbeit bildenden  $3p$ -Kanten betrachtet und ein Blick auf die berechnete elektronische Struktur geworfen, welche den magneto-optischen Berechnungen zugrunde liegt. Abbildung 4.22 zeigt die berechnete Zustandsdichte (DOS) der Fe  $3p$ -Niveaus [142]. Die Zustände sind durch die Spin-Orbit- und die Austauschwechselwirkung in sechs Zustände unterschiedlicher Quantenzahlen aufgespalten. Für die spätere Betrachtung der Übergänge ist vor allem der Gesamtdrehimpuls  $m_j$  der einzelnen Zustände interessant,

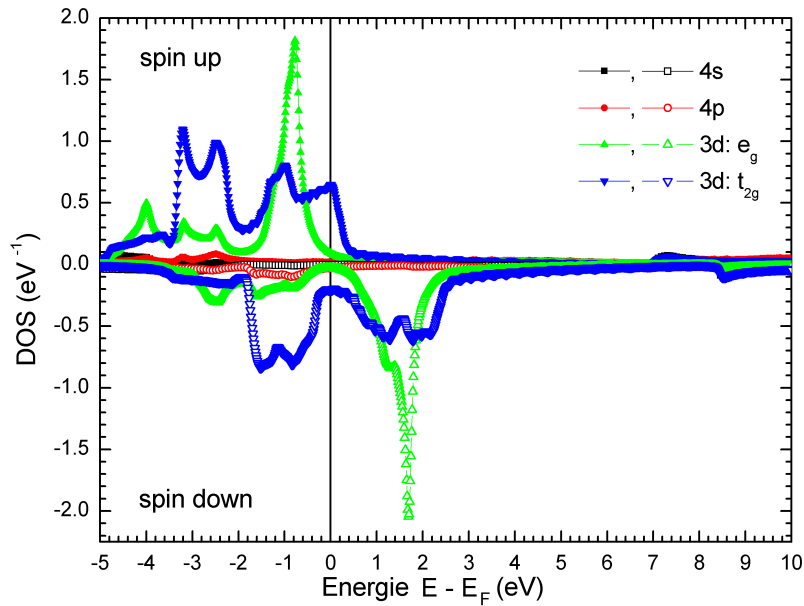


**Abbildung 4.22:** *Ab initio* berechnete Zustandsdichte der  $m_j$  aufgespaltenen Fe  $3p$ -Zustände [142].

da anhand dessen die über die Auswahlregeln definierten möglichen Übergänge bestimmt werden (siehe Abb. 2.4). Klar zu erkennen ist, dass die  $3p_{1/2}$ - und die  $3p_{3/2}$ -Zustände zum Einen sehr eng beieinander liegen und zum Anderen vermischen. Dies erschwert eine klare Zuordnung der Übergänge. Der Abstand der  $3p_{1/2}$ - und der  $3p_{3/2}$ -Schwerpunkte, also die Spin-Bahn-Aufspaltung, beträgt etwa 3 eV, die Aufspaltung der Zustände an den beiden  $3p$ -Kanten selbst, also die Austauschaufspaltung, beträgt in etwa 0,4 – 0,5 eV. Eine Ausnahme bildet der  $3p_{3/2}$ -Zustand mit  $m_j = +3/2$ . Der energetische Abstand dieses Zustands zu den anderen  $3p_{3/2}$ -Zuständen beträgt über 1,6 eV.

Die Zustände in Abb. 4.22 sind aufgeteilt in *spin up* und *spin down*. Eine Auffälligkeit ist die nicht verschwindende Zustandsdichte der  $3p_{3/2} m_j = -3/2$  und  $3p_{1/2} m_j = -1/2$  Zustände für *spin up* und der  $3p_{3/2} m_j = +3/2$  und  $3p_{1/2} m_j = +1/2$  für *spin down*. Da sich der  $3p_{3/2}$ -Zustand mit  $m_j = -3/2$  aus der Drehimpulsquantenzahl  $l = -1$  und der Spinquantenzahl  $s = -1/2$  bildet, müsste dieser in der Darstellung der *spin up* Zustände verschwinden. Die eben genannten Zustände sind durch gestrichelte Linien dargestellt. Eine nähere Betrachtung dieses scheinbaren Defizits hat ergeben, dass sich die nicht korrekte Wiedergabe der spin-projizierten  $3p$ -Zustandsdichte mit großer Wahrscheinlichkeit auf die graphische Darstellung beschränkt [98] und die Rechnungen hierdurch unbeeinflusst sind. Zudem werden nicht erlaubte Übergänge durch die Übergangsmatrixelemente ausgeschlossen.

Es wird später gezeigt werden, dass die *ab initio* berechneten XMLD-Spektren, welche auf den möglichen  $p \rightarrow d$  Übergängen beruhen das Experiment gut reproduzieren. Dies ist ein weiteres starkes Indiz dafür, dass die *ab initio* Rechnungen, insbesondere die Berechnung der möglichen elektronischen Übergänge (vgl. Kap 2.2.1 und 2.4), hierdurch nicht beeinträchtigt sind. Die in Abb. 4.22 gezeigten Bindungsenergien der  $3p$ -Zustände wurden um 1 eV zu höheren Energien hin verschoben. Der Wert 1 eV ergibt sich aus Vergleichen der berechneten mit den experimentellen Spektren. Eine energetische Verschiebung der Spektren ist üblich und spiegelt die Problematik von *ab initio* Rechnungen mit dem LSDA-Ansatz wieder, die Absolutwerte der Bindungsenergien nicht völlig korrekt wiederzugeben.

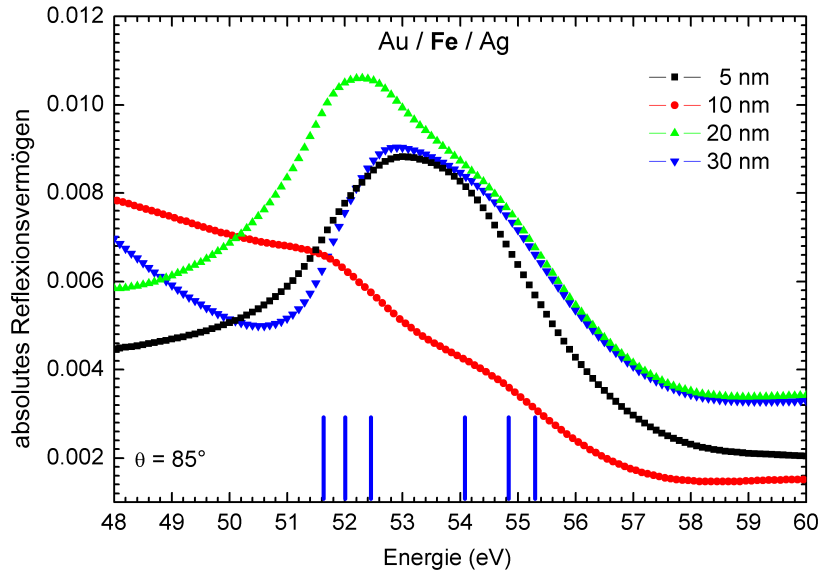


**Abbildung 4.23:** *Ab initio* berechnete Zustandsdichte des Leitungsbandes aufgeteilt in Beiträge der  $4s$ - und  $4p$ -Zustände und der  $e_g$  und  $t_{2g}$   $3d$ -Zustände [142].

Um später die Strukturen in den Spektren den entsprechenden Übergängen zuordnen zu können, muss auch die Zustandsdichte des Leitungsbandes bekannt sein, welche in Abbildung 4.23 dargestellt ist. Berechnet wurden die Beiträge der  $3d$ -,  $4p$ - und  $4s$ -Zustände [142]. Weiterhin ist die Zustandsdichte, welche über die gesamte Brillouinzone integriert wurde, aufgeteilt in Majoritäts-Spin (*spin up*) und Minoritäts-Spin (*spin down*). Die  $4p$ -Zustände sind für Dipolübergänge aus den  $3p$ -Niveaus verboten und werden nicht weiter betrachtet.  $3p \rightarrow 4s$  Übergänge sind zwar erlaubt, allerdings haben die Beiträge der  $4s$ -Zustände im Vergleich zu den  $3d$ -Zuständen eine vernachlässigbar geringe Dichte, so dass im Folgenden nur die  $3d$ -Zustände betrachtet werden. Diese sind in Abb. 4.23 in  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände (vgl. Abb. 2.11) aufgeteilt dargestellt.

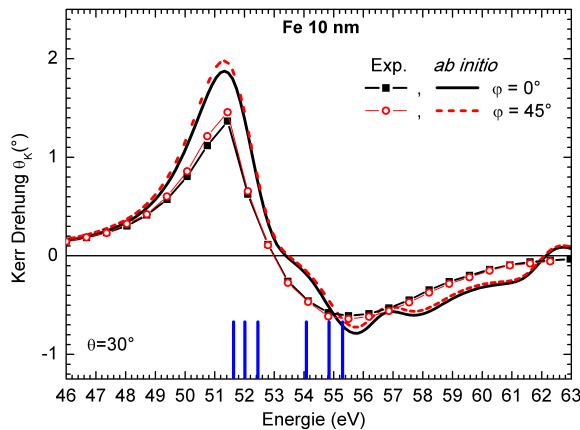
## Vergleich der spektralen Strukturen

Der Vergleich der *ab initio* Rechnungen mit den experimentellen Ergebnissen erfolgt in drei Schritten. Zuerst werden die energetischen Positionen in den Reflexionsspektren ohne Differenzierung der magnetischen Strukturen betrachtet. Danach werden die starken, linear mit der Magnetisierung skalierenden Effekte T-MOKE und L-MOKE betrachtet und zum Schluss der schwächer ausfallende, quadratisch in  $\mathbf{M}$  skalierende XMLD. Abb. 4.24 zeigt die Reflexionsspektren der Fe-Proben. Obwohl sich die Spektren in ihrer Intensität und ihrem Verlauf unterscheiden, sind deutliche Strukturen bei etwa 52 eV und 54,5 eV zu sehen. Ein Vergleich mit den in Abb. 4.24 als blaue vertikale Linien eingetragenen Positionen der  $3p$ -Zustände zeigt, dass diese genau an den Positionen der experimentellen Strukturen liegen. Somit kann die erste Struktur bei 52 eV den Übergängen aus den  $3p_{3/2}$ -Zuständen zugeordnet werden, während die Struktur bei etwa 54,5 eV hauptsächlich den Übergängen aus den  $3p_{1/2}$ -Zuständen zuzuordnen ist.

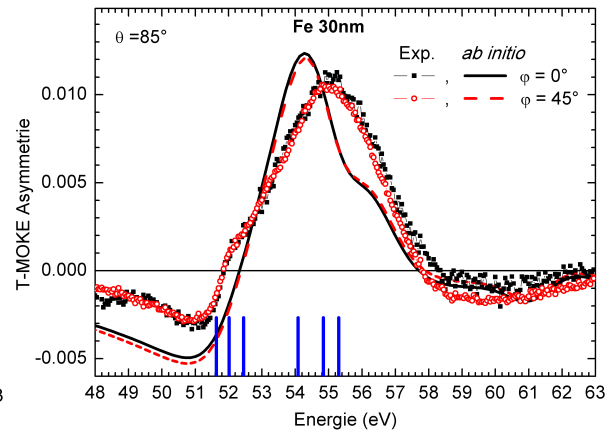


**Abbildung 4.24:** Vergleich der Positionen der  $3p$ -DOS mit den Reflexionsspektren.

Hierauf aufbauend werden nun zuerst die starken magneto-optischen Effekte, nämlich T-MOKE und die Kerr-Drehung des L-MOKE betrachtet und mit *ab initio* gerechneten Spektren [142] verglichen. Die Abbildungen 4.25 und 4.26 zeigen diese Spektren im Vergleich. Sowohl die Kerr-Drehung als auch die T-MOKE-Asymmetrie sind gut durch die Rechnungen reproduzierbar. Zu beachten ist, dass für den Vergleich ein T-MOKE-Spektrum gewählt wurde, welches gemessen bei  $\theta = 85^\circ$  simultan mit den XMLD-Spektren aufgenommen wurde.



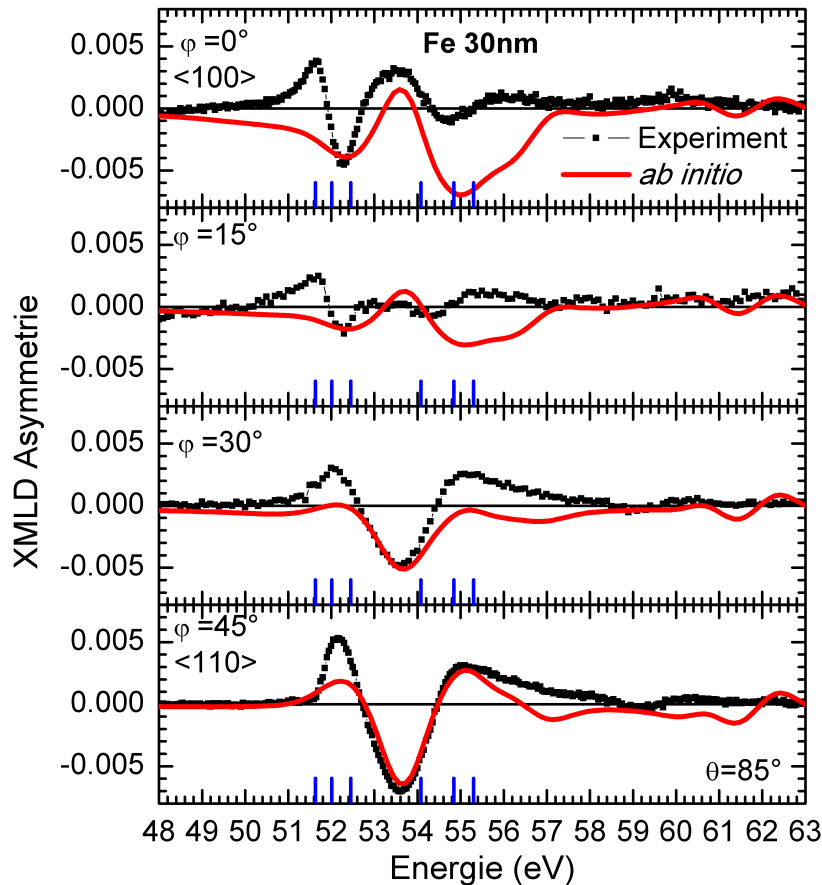
**Abbildung 4.25:** Vergleich der experimentellen Kerr-Drehung mit *ab initio* Rechnungen [142]. (Details siehe Text)



**Abbildung 4.26:** Vergleich der experimentellen T-MOKE-Spektren mit *ab initio* Rechnungen [142]. (Details siehe Text)

In beiden Abbildungen sind jeweils die Spektren für die magnetisch leichte  $\langle 100 \rangle$ -Richtung ( $\varphi = 0^\circ$ ) und für die magnetisch mittelschwere  $\langle 110 \rangle$ -Richtung ( $\varphi = 45^\circ$ ) dargestellt. Neben der guten Übereinstimmung des spektralen Verlaufs der T-MOKE- und L-MOKE-Spektren ist in den *ab initio* Rechnungen in Übereinstimmung zum Experiment ebenfalls nahezu keine Abhängigkeit der Spektren von der Orientierung der Kristallachsen zu  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{M}$  zu erkennen. Für die *ab initio* Spektren wurde eine empirisch ermittelte Linienverbreiterung von 2 eV

verwendet (vgl. Kap. 2.4). Für die Reflexionsspektren konnten bereits die Strukturen im Spektrum der  $3p_{1/2}$ - und der  $3p_{3/2}$ -Kante zugeordnet werden. Dies ist auch für die T-MOKE- und L-MOKE-Spektren möglich. Die experimentellen T-MOKE- und L-MOKE-Spektren weisen jeweils zwei markante Strukturen bei etwa 52 eV und 55 eV auf. Diese liegen an den berechneten Positionen der  $3p$ -Zustände. Die Abhängigkeit von der Kristallrichtung ist, so wie im Experiment sehr schwach ausgeprägt. Die Vertrauenswürdigkeit der *ab initio* Rechnungen ist also gegeben. Im Folgenden werden nun die in dieser Arbeit erstmalig an den  $3p$ -Kanten von einkristallinem Fe gemessenen XMLD-Spektren mit *ab initio* gerechneten Spektren verglichen.



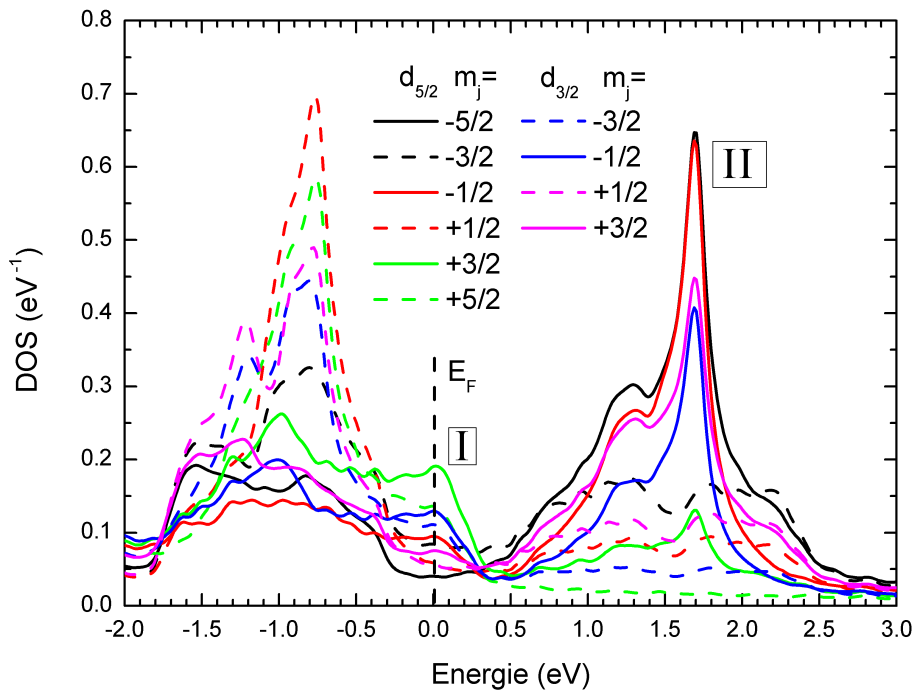
**Abbildung 4.27:** Experimentelle und *ab initio* gerechnete [142] XMLD-Spektren der 30 nm Fe-Probe

Die experimentellen XMLD-Spektren (Symbole in Abb. 4.27) zeigen einen weitaus komplexeren Verlauf als das T-MOKE-Spektrum oder das Kerr-Spektrum des L-MOKE, wodurch sie sich als hervorragendes Werkzeug zur Untersuchung des Einflusses der Kristallanisotropie qualifizieren. Trotz des komplexeren Verlaufs reproduzieren die *ab initio* gerechneten Spektren (rote Linien in Abb. 4.27 [142]) die experimentellen Spektren ebenfalls sehr gut. Für die magnetisch leichte  $\langle 100 \rangle$ -Achse weicht das theoretische Spektrum zwar etwas vom Experiment ab, die Positionen der Strukturen finden sich aber bei nahezu den gleichen Energien wieder wie im experimentellen Spektrum. Die Abweichung ist für  $\varphi = 15^\circ$  noch etwas größer. Dies ist aber dadurch zu erklären, dass die winkelabhängige Änderung des XMLD hier sehr groß ist (vgl. Abb. 4.14), wodurch bereits kleine Justagefehler einen großen Einfluss auf den spektralen Verlauf haben. Für  $\varphi = 30^\circ$  ist die Übereinstimmung von Experiment und Rechnung

wieder deutlich besser und für die magnetisch mittelschwere  $\langle 110 \rangle$ -Achse ( $\varphi = 45^\circ$ ) reproduziert die *ab initio* Rechnung das experimentelle Spektrum fast vollständig. Wie schon für die L-MOKE- und T-MOKE-Spektren gezeigt wurde, weisen auch die experimentellen XMLD-Spektren Strukturen an den Energien der berechneten  $3p$ -Zustände auf (blaue vertikale Linien in Abb. 4.27). Dies zeigt, dass die relativistischen *ab initio* Rechnungen unter Berücksichtigung der ähnlich starken Spin-Bahn- und Austauschspaltung an den  $3p$ -Kanten für Fe eine adäquate Beschreibung der elektronischen Zustände in Fe liefert.

## Zuordnung von spektralen Strukturen und elektronischen Übergängen

Im Folgenden soll der Ursprung der Strukturen in den XMLD-Spektren (Abb. 4.27) erarbeitet werden, d.h. eine Zuordnung von elektronischen Übergängen und den Strukturen in den XMLD-Spektren erfolgen. Dazu wird zunächst eine Übersicht der für die XMLD-Strukturen relevanten Übergänge erstellt. Die Strukturen in den XMLD-Spektren ergeben sich aus der Differenz der Reflexionsspektren für parallele bzw. senkrechte Ausrichtung von der Probenmagnetisierung zum E-Feld des Lichts. Daher müssen zuerst die einfachen Anregungsspektren der Übergänge aus den  $3p$ - in die  $3d$ -Zustände betrachtet werden. Diese lassen sich aus der berechneten Energie unter Berücksichtigung der Auswahlregeln ablesen.



**Abbildung 4.28:** Zustandsdichte der  $3d$ -Zustände aufgespalten nach der Gesamtdrehimpulsquantenzahl  $m_j$  [142]. (Details siehe Text)

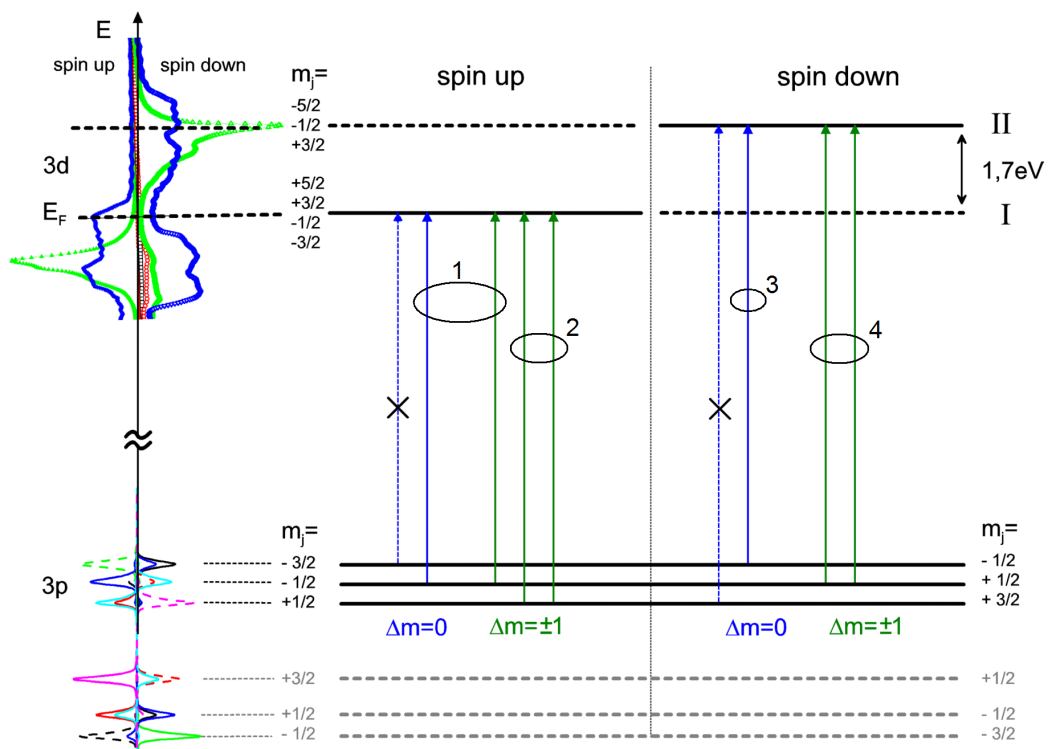
Die möglichen  $p \rightarrow d$  Übergänge hängen sowohl von der Gesamtdrehimpulsquantenzahl  $m_j$  der  $3p$ -Zustände als auch von  $m_j$  der unbesetzten  $3d$ -Zustände ab. Um die am XMLD beteiligten Übergänge zu identifizieren, sind daher in Abbildung 4.28 die  $3d$ -Zustände aufgeteilt nach ihrem Gesamtdrehimpuls  $m_j$  dargestellt. Da eine Zuordnung aller Übergänge per Hand schwierig ist, weil die Leitungsbandzustände sich über einen Energiebereich von etwa 2,5 eV

erstrecken, sollen hier nur zwei markante Bereiche in der DOS des Leitungsbands betrachtet werden. Dies sind die Zustände direkt an der Fermi-Kante (Markierung „I“ in Abb. 4.28) und die Zustände etwa 1,7 eV oberhalb der Fermi-Kante, wo ein Bereich mit sehr großer Zustandsdichte vorliegt (Markierung „II“ in Abb. 4.28).

Der Übersicht halber werden die möglichen Übergänge aus den Rumpfniveaus eingegrenzt. Eine Betrachtung der Zustandsdichte der  $3p$ -Rumpfniveaus (Abb. 4.22) zeigt, dass für eine Photonenenergie geringer als etwa 54 eV nur Übergänge aus den drei energetisch am schwächsten gebundenen  $3p$ -Zuständen ins Leitungsband in Frage kommen. Erst für größere Energien sind nach und nach Übergänge aus den tiefer gelegenen Zuständen ins Leitungsband möglich, da zuvor die Photonenenergie für eine Anregung aus diesen Zuständen nicht ausreicht.

Bevor nun versucht werden kann, die Übergänge zuzuordnen, muss noch die Spinpolarisation und die Gesamtdrehimpulsquantenzahl  $m_j$  der Leitungsbandzustände betrachtet werden. Wie aus den Abbildungen 4.23 und 4.28 ersichtlich ist, sind die Zustände in der Nähe der Fermi-Kante hauptsächlich *spin up* Zustände mit  $t_{2g}$ -Charakter, die nach Abb. 4.28 vorwiegend ein  $m_j$  von  $+3/2$ ,  $-1/2$ ,  $+5/2$  und  $-3/2$  haben. Das Maximum etwa 1,7 eV oberhalb der Fermi-Kante umfasst *spin down* Zustände mit  $e_g$ -Charakter. Diese haben hauptsächlich ein  $m_j$  von  $-5/2$ ,  $-1/2$  und  $+3/2$ .

Zunächst werden nun die Übergänge in die *spin up* Zustände mit  $t_{2g}$ -Charakter an der Fermi-Kante betrachtet. Die  $3d$ -Zustände mit der höchsten Zustandsdichte haben ein  $m_j$  von  $+3/2$ ,  $-1/2$ ,  $+5/2$  und  $-3/2$ . Die drei *spin up*  $3p$ -Zustände haben ein  $m_j$  von  $-3/2$ ,  $-1/2$ ,  $+1/2$ . Unter Berücksichtigung der Auswahlregeln (Gl. 2.31a bis 2.31c) ergeben sich folgende Übergänge (siehe Abb. 4.29):

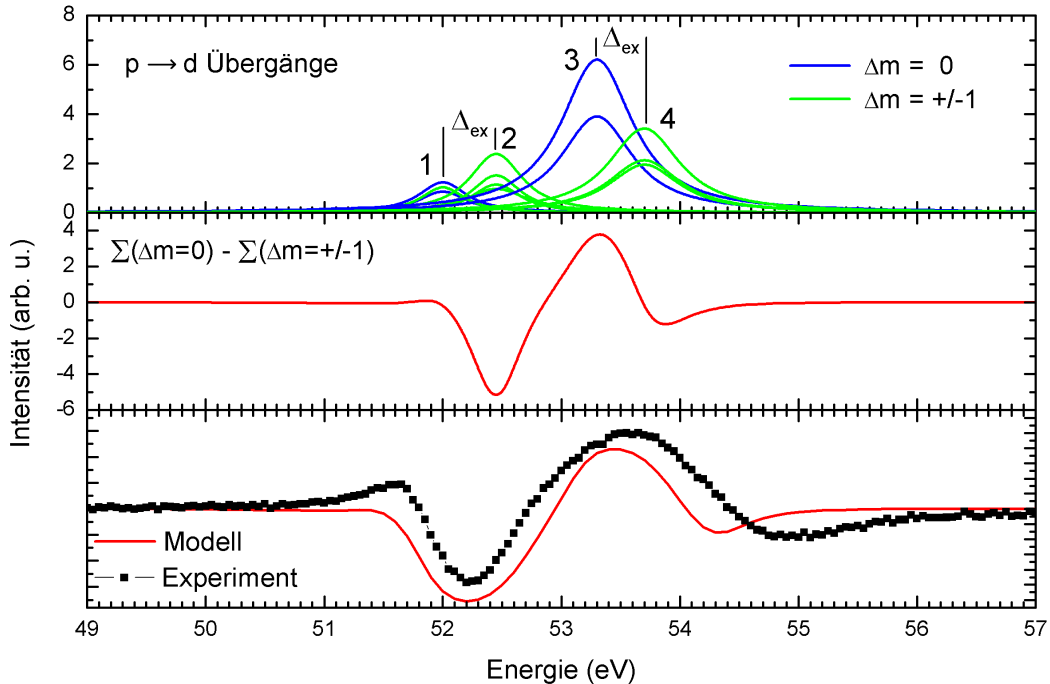


**Abbildung 4.29:** Schematische Darstellung der  $p \rightarrow d$  Übergänge in die  $3d$ -Zustände größter Dichte an den in Abb. 4.28 markierten Energien. (Details siehe Text)



Für parallel zum E-Feld ausgerichtete Magnetisierung ( $\Delta m = 0$ ) sind Übergänge aus den  $3p$ -Zuständen mit  $m_j = -3/2$  und  $m_j = -1/2$  möglich. Diese können in die  $3d$ -Zustände mit ebenfalls  $m_j = -3/2$  und  $m_j = -1/2$  angeregt werden. Für *spin up* Elektronen sollten jedoch keine Übergänge aus dem  $3p$ -Zustand mit  $m_j = -3/2$  existieren. Dieser Zustand spielt also keine Rolle und ist in Abb. 4.29 entsprechend markiert. Es bleibt daher nur der Übergang aus dem  $3p$ -Zustand mit  $m_j = -1/2$ . Für eine senkrechte Ausrichtung von  $\mathbf{M}$  und  $\mathbf{E}$  ( $\Delta m = \pm 1$ ) sind insgesamt drei Übergänge aus den  $3p$ -Zuständen in die  $3d$ -Zustände erlaubt. Die Elektronen werden hierbei von den  $3p$ -Zuständen mit  $m_j = -1/2$  und  $m_j = +1/2$  in die  $3d$ -Zustände mit  $m_j = -3/2$ ,  $m_j = -1/2$  und  $m_j = +3/2$  angeregt.

Für das Maximum in der Zustandsdichte 1,7 eV oberhalb der Fermi-Kante (Markierung „II“) soll nun eine analoge Überlegung durchgeführt werden. Hier existieren vorwiegend  $3d$ -Zustände mit einem  $m_j$  von  $-5/2$ ,  $-1/2$ ,  $+3/2$ . Die drei relevanten *spin down*  $3p$ -Zustände haben ein  $m_j$  von  $-1/2$ ,  $+1/2$ ,  $+3/2$ . Für  $\Delta m = 0$  sind Übergänge aus den  $3p$ -Zuständen mit  $m_j = -1/2$  und  $m_j = +3/2$  möglich, wobei der  $m_j = +3/2$ -Rump fzustand bei der Anregung in die *spin down* Zustände des  $3d$ -Bandes aus den weiter oben genannten Gründen nicht beiträgt. Die Übergänge für  $\Delta m = \pm 1$  können nur aus dem  $3p$ -Zuständen mit  $m_j = +1/2$  in die zwei  $3d$ -Zustände mit  $m_j = -1/2$  und  $m_j = +3/2$  erfolgen.



**Abbildung 4.30:** Oben: Übergänge aus den  $3p$ - in die  $3d$ -Zustände. Mitte: Differenz zur Bildung des XMLD-Signals. Unten: Vergleich des Modells mit dem Experiment. (Details siehe Text)

Nun werden die Übergänge, welche für die gleiche Photonenenergie auftreten, jeweils zusammengefasst (Markierungen 1, 2, 3 und 4 in Abb. 4.29). Um eine Übersicht über die einzelnen Übergänge zu erhalten, sind diese an den Positionen der jeweiligen Anregungsenergien im oberen Teil von Abb. 4.30 eingetragen. Um die Linienverbreiterung zu berücksichtigen, sind die Übergänge als Lorentzkurven dargestellt. Die Höhe und die Breite der Lorentzkurven wurden aus der Zustandsdichte der an den jeweiligen Übergängen beteiligten  $3p$ - und  $3d$ -Zustände und deren Halbwertsbreite abgeschätzt (siehe Abb. 4.22 und 4.28). Für eine quantitative Bestim-

mung der einzelnen Übergangswahrscheinlichkeiten müssen streng genommen die Übergangsmatrixelemente herangezogen werden (vgl. Kap. 2.2.1). Auf eine quantitative Betrachtung wird an dieser Stelle jedoch verzichtet, da bereits zuvor einige Näherungen gemacht wurden, wie z.B. die Beschränkung der beteiligten  $3p$ -Zustände. Vielmehr soll hier eine qualitative Betrachtung der Spektren erfolgen. Im Folgenden wird gezeigt, dass das hier verwendete Modell bereits zu einer guten Übereinstimmung mit dem experimentellen XMLD-Spektrum führt und auch weiterführende Überlegungen bezüglich der kristallinen Anisotropie zulässt.

Die Peaks für die einzelnen Übergänge (oben in Abb. 4.30) sind farblich aufgeteilt in Übergänge mit der Auswahlregel  $\Delta m = 0$  (Blau) und  $\Delta m = \pm 1$  (Grün). Um nun aus den einzelnen Übergängen ein XMLD-Spektrum zu generieren, muss die Differenz aus der Summe aller Übergänge mit der Auswahlregel  $\Delta m = 0$  und der Summe aller Übergänge mit der Auswahlregel  $\Delta m = \pm 1$  gebildet werden (siehe Kap. 2.2.5). Diese ist im mittleren Teil von Abb. 4.30 dargestellt. Das aus der Differenz der per Hand ermittelten Übergänge gebildete XMLD-Spektrum, im Folgenden Modellspektrum genannt, weist bereits deutliche Ähnlichkeit mit den experimentell ermittelten XMLD-Spektren aus Abb. 4.27 auf. Im unteren Teil von Abb. 4.30 ist schließlich das XMLD-Modellspektrum im direkten Vergleich mit dem Experiment zu sehen. Das gezeigte experimentelle Spektrum ist als Mittelwert aus den XMLD-Spektren für die Kristallrichtungen  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  gebildet worden. Dies ist für den Vergleich nötig, da das Modellspektrum aus den Übergängen für die über alle Kristallrichtungen aufsummierte Zustandsdichte gebildet wurde. Das Modellspektrum wurde zudem weiter geglättet, um eine zusätzliche Verbreiterung zu berücksichtigen, da für die Übergänge (oben in Abb. 4.30) nur die Halbwertsbreite der  $3p$ - und  $3d$ -Zustandsdichte angenommen wurde und mögliche weitere zur Verbreiterung beitragende Effekte in diesem Modell unberücksichtigt blieben. Es ist bemerkenswert, dass das Modell das experimentelle Spektrum nahezu perfekt nachbildet. Erst ab etwa 54 eV weicht das Modellspektrum vom experimentellen Spektrum ab. Dies ist auch zu erwarten, da hier weitere Übergänge aus den drei energetisch stärker gebundenen  $3p$ -Zuständen beitragen, welche im Modell der Übersicht halber nicht berücksichtigt wurden.

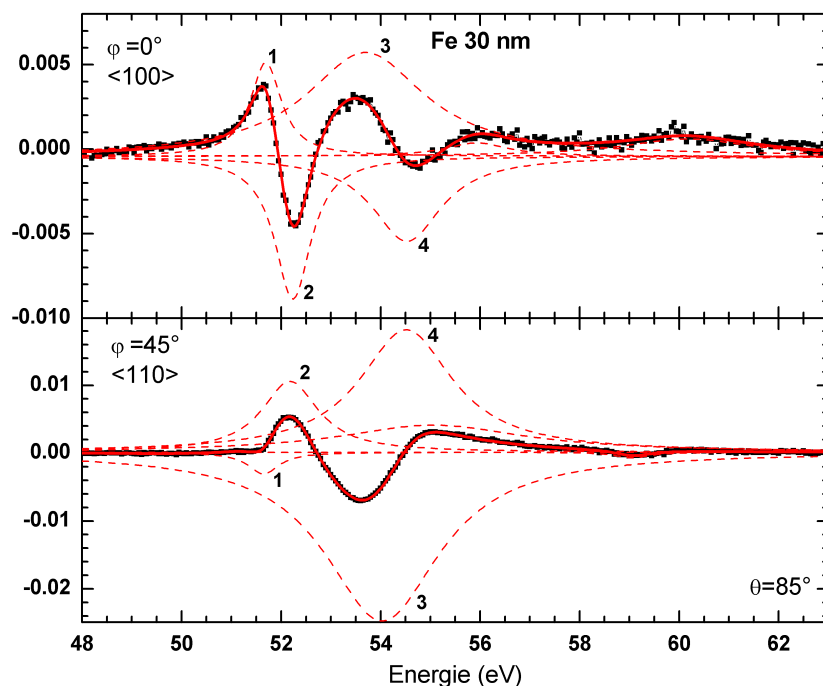
Die bisherigen Überlegungen haben die magnetokristalline Anisotropie außer Acht gelassen. Um eine Zuordnung der Übergänge für die jeweiligen Kristallrichtungen durchführen zu können, muss die Zustandsdichte des Leitungsbandes projiziert auf die jeweilige Kristallrichtung berechnet werden. Zudem müssen die einzelnen Übergangswahrscheinlichkeiten exakt berücksichtigt werden. Die Berechnung der auf die Kristallrichtungen projizierten DOS ist jedoch sehr aufwändig [98] und konnte im Rahmen dieser Arbeit noch nicht umgesetzt werden. Trotzdem kann mit der nachfolgenden Überlegung der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den XMLD qualitativ in das hier vorgestellte Modell einfließen:

Die Abhängigkeit des XMLD von der Kristallrichtung ist bedingt durch die unterschiedliche Verteilung der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände im Leitungsband. Für unterschiedliche Verteilung der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände entlang verschiedener Kristallrichtungen ändert sich die Stärke der einzelnen Übergänge. Dies entspricht einer Änderung in der Höhe und Breite der Lorentzkurven aus Abb. 4.30 (oben). Eine solche Veränderung in der Gewichtung der Lorentzkurven hat direkten Einfluss auf das aus den Übergängen gebildete Differenzspektrum, also den XMLD, wodurch sich für unterschiedliche Kristallrichtungen verschiedene Spektren ergeben.

An dem Modell lässt sich zudem noch ein weiterer wichtiger Punkt des XMLD erörtern, nämlich die Bedeutung der Austauschspaltung der Rump fzustände. Die Austauschspaltung  $\Delta_{ex}$  der  $3p$ -Zustände ist im oberen Teil von Abb. 4.30 eingezeichnet. Für eine verschwindende Austauschspaltung befänden sich die Übergänge 1 & 2, sowie 3 & 4 jeweils an der gleichen

energetischen Position. Je nach Gewichtung der einzelnen Übergänge heben sich diese bei der Differenzbildung gegenseitig auf, so dass das XMLD-Spektrum verschwindet. Dies ist in Übereinstimmung mit der Theorie von Kuneš und Oppeneer [65; 78; 109] (siehe auch Kap. 2.4 und Gl. 2.44).

Für einen qualitativen Vergleich des Modells mit dem Experiment sollen nun die einzelnen Peaks in den XMLD-Spektren näher betrachtet werden. Um die Positionen der Übergänge in den experimentellen XMLD-Spektren bestimmen zu können, wurden diese, wie auch im Modell, vereinfacht als Überlagerung mehrerer Lorentzkurven angenommen. Diesem Ansatz liegt die Idee zugrunde, dass die resonanten  $3p \rightarrow 3d$  Übergänge in den Reflexionsspektren durch die Lebensdauer der Zustände Lorentz-verbreitert sind. Demzufolge kann der resonante Anteil des Reflexionsspektrums durch eine Überlagerung von Lorentzfunktionen angepasst werden. Die Anpassung der einzelnen Reflexionsspektren erwies sich jedoch als schwierig, da der nicht-resonante Untergrund die Anpassung sehr stark beeinflusst. Daher wurde ein anderes Vorgehen gewählt, bei dem ausgenutzt wird, dass das XMLD-Spektrum aus der Differenz zweier Reflexionsspektren gebildet wird. Der nichtresonante Anteil, welcher bei der Anpassung der Reflexionsspektren problematisch war, wird hierbei eliminiert. Der verbleibende, von der Magnetisierung abhängige resonante Anteil der Spektren kann, wie auch im Modell, als Differenz von Lorentzkurven gesehen werden. Da die Differenz aus zwei Lorentzkurven wiederum eine Lorentzkurve ist, kann auch das XMLD-Spektrum selbst direkt durch Lorentzkurven angenähert werden. Die Normierung bei Bildung der Asymmetrie (siehe Gl. 2.41) hat auf die Positionen der Peaks einen vernachlässigbar geringen Einfluss. Bei diesem Verfahren hat sich empirisch gezeigt, dass ein Ansatz mit sechs Kurven das beste Ergebnis liefert. Es soll aber noch einmal betont werden, dass dies nur eine Näherung ist, um die Positionen der Übergänge besser bestimmen zu können.



**Abbildung 4.31:** Experimentell ermittelte XMLD-Spektren und Anpassung durch Lorentzkurven. (Details siehe Text)

In Abbildung 4.31 sind die experimentellen XMLD-Spektren (schwarze Symbole) für die magnetisch leichte ( $\mathbf{E} \parallel \langle 100 \rangle$ ) und die magnetisch mittelschwere ( $\mathbf{E} \parallel \langle 110 \rangle$ ) Richtung des 30 nm Fe-Kristalls aufgetragen. Die jeweils rote durchgezogene Linie zeigt die Anpassung der experimentellen Spektren als Überlagerung aus sechs separaten Lorentzkurven (gestrichelte Linien). Der Vorteil der Anpassung der Spektren durch Lorentzkurven wird bei Betrachtung des XMLD-Spektrums für  $\varphi = 45^\circ$  ersichtlich. Die Reproduktion des Spektrums durch die Lorentz-Anpassung zeigt, dass es einen Übergang bei 51,7 eV geben muss. Ohne diesen ist das experimentelle Spektrum nicht reproduzierbar. Ein Peak ist in den experimentellen Spektren aber nur für  $\varphi = 0^\circ$  zu erkennen, für das Spektrum bei  $\varphi = 45^\circ$  verschwindet dieser scheinbar, bedingt durch die Überlagerung der anderen Peaks. Würden die Positionen der Strukturen allein aus den experimentellen Spektren abgelesen werden, würde dieser erste Peak nicht auffallen. Erst die Anpassung durch Lorentzkurven macht diesen Peak sichtbar.

Peak-Nr.	$\varphi=0^\circ$		$\varphi=45^\circ$		3p-DOS
	Experiment	<i>ab initio</i>	Experiment	<i>ab initio</i>	
1	51,7 eV	-	51,6 eV	-	51,6 eV
2	52,2 eV	52,3 eV	52,2 eV	52,2 eV	52,0 eV
3	53,7 eV	53,6 eV	54,0 eV	53,6 eV	52,5 eV
4	54,5 eV	55,0 eV	54,5 eV	55,1 eV	54,1 eV
5	55,9 eV	56,1 eV	55,1 eV	56,2 eV	54,8 eV
6	60,2 eV	-	59,1 eV	57,1 eV	55,3 eV

**Tabelle 4.2:** Positionen der einzelnen XMLD-Strukturen aus der Lorentz-Anpassung und aus den *ab initio* Rechnungen, sowie die Positionen der 3p-Zustände.

Die so ermittelten Positionen der in Abb. 4.31 markierten Peaks und der Strukturen der *ab initio* Spektren aus Abb. 4.27 sind in Tabelle 4.2 in den Spalten 2 – 5 aufgetragen. Die Positionen der Strukturen aus den *ab initio* berechneten Spektren wurden ohne eine Lorentz-Anpassung direkt abgelesen und dienen hier nur dem groben Vergleich. Das Hauptaugenmerk soll auf den Positionen der experimentell ermittelten Strukturen liegen. Es fällt direkt auf, dass die Positionen der ersten vier Peaks für beide Kristallrichtungen fast gleich sind. Die Positionen der Peaks 5 und 6 weichen leicht voneinander ab, da die Spektren in diesem Bereich keine scharfen Strukturen mehr aufweisen, was eine exakte Bestimmung der Positionen erschwert. Dass die ersten vier gut ausgebildeten Peaks an nahezu den gleichen Positionen liegen, ist in Übereinstimmung mit vorherigen Überlegungen wonach die Unterschiede in den XMLD-Spektren auf die kristallrichtungsbedingten Unterschiede der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände zurückgeführt werden können.

In der letzten Spalte aus Tabelle 4.2 sind zum Vergleich die Positionen der berechneten 3p-Niveaus eingetragen. Diese können nicht direkt mit den Positionen der Peaks verglichen werden, sondern dienen dem Vergleich der energetischen Abstände. Im Modell wurde gezeigt, dass für die ersten 4 Peaks hauptsächlich Übergänge aus den ersten drei 3p-Zuständen beitragen und dass sich deren Austauschspaltung in den Abständen der Peaks 1 & 2, sowie 3 & 4 im experimentellen Spektrum widerspiegelt. Genau dies ist zu beobachten, sowohl der energetische Abstand der ersten beiden Peaks sowie der Peaks 3 & 4 entspricht in etwa der Austauschspaltung von ca. 0,5 eV.

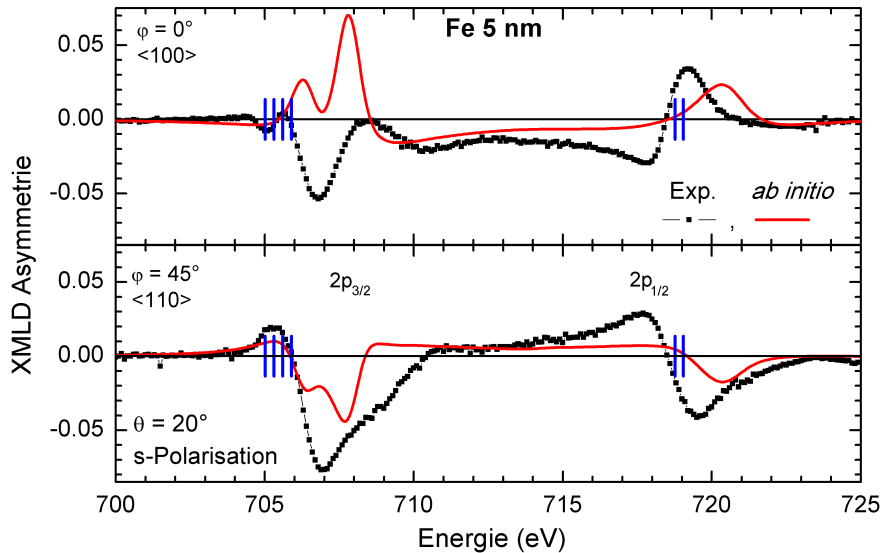
Als Zwischenergebnis lässt sich festhalten, dass die im Vergleich zu den T-MOKE- und L-MOKE-Spektren stark strukturierten XMLD-Spektren eine deutlich weitergehende Interpretation der Zuordnung der spektralen Strukturen zu den elektronischen Übergängen an den  $3p$ -Kanten möglich machen. Dabei finden sich Strukturen im Spektrum wieder, welche in ihrer energetischen Differenz direkt der Austauschaufspaltung der Rumpfzustände zugeordnet werden können.

Neben den oben beschriebenen Hauptstrukturen im XMLD-Spektrum gibt es, wie in Kapitel 4.4 erwähnt, noch eine weitere Doppelstruktur bei etwa 60 eV (siehe Abb. 4.17). Zum Abschluss dieses Kapitels soll auch diese nun näher betrachtet werden. Die händische Zuordnung der elektronischen Übergänge zu den Strukturen im XMLD-Spektrum wird mit zunehmender Energie schwieriger, da immer mehr mögliche Übergänge hinzukommen. Die Strukturen bei 60 eV liegen jedoch so weit oberhalb der Fermi-Kante, dass neue Überlegungen zu deren Ursprung gemacht werden können. Die experimentellen Spektren in Abb. 4.17 zeigen für beide Kristallrichtungen eine ansteigende Flanke von 59,0 eV bis 60,2 eV, mit einem Hub von etwa 0,1 – 0,15 %. Die Spektren für die beiden Kristallrichtungen unterscheiden sich nur unterhalb von 59 eV, oberhalb sind die Spektren identisch.

Eine mögliche Interpretation der Strukturen liefert die Zustandsdichte des Leitungsbandes (Abb. 4.23). Hier findet sich nach einem ausgedehnten Energiebereich ohne signifikante Strukturen im Abstand von etwa 8 eV oberhalb der Fermi-Kante ein Bereich, in dem die Zustandsdichte wieder ansteigt. Die an dieser Stelle zur DOS beitragenden Zustände sind hauptsächlich  $4s$ -Zustände und  $3d$ -Zustände mit  $t_{2g}$ -Charakter. Die Zustandsdichte der  $3d$   $t_{2g}$ -Zustände bei dieser Energie ist etwa sechs Mal geringer als an der Fermi-Kante.  $3d$ -Zustände mit  $e_g$ -Charakter tragen zwar auch bei, haben aber verglichen mit den  $t_{2g}$ -Zuständen eine dreimal geringere Zustandsdichte. Die Zustände haben sowohl *spin up* als auch *spin down* Charakter. Der Verlauf der Zustandsdichte für beide Spinrichtungen ist nahezu identisch, der energetische Unterschied beträgt jedoch etwa 1,2 eV. Dies entspricht genau dem Abstand der Doppelstruktur in den experimentellen Spektren (Abb. 4.17). Die Strukturen sind also möglicherweise diesen Zuständen im Leitungsband zuzurechnen. Da die Spektren oberhalb 59 eV keine Richtungsabhängigkeit erkennen lassen, liegt die Vermutung nahe, dass entweder die  $p \rightarrow s$  Übergänge die Asymmetrie verursachen oder aber der Einfluss des Kristallfeldes auf diese nur schwach gebundenen Elektronen vernachlässigbar klein ist. Eine weitere Möglichkeit diese Strukturen im XMLD-Spektrum zu erklären, ist eine in Au induzierte Spinpolarisation an der Au/Fe-Grenzschicht [143]. Die  $5d$ -Zustände von Au liegen bei 57,2 eV [144]. Es kann sich also auch um einen Grenzflächeneffekt durch induzierten Magnetismus in der Au-Schicht handeln. Für eine eindeutige Klärung sind Messungen an einer Fe-Probe mit einer anderen oder gar keinen Deckschicht nötig, welche in der vorliegenden Arbeit nicht durchgeführt wurden.

#### 4.6.2 Fe $2p$ -Kanten

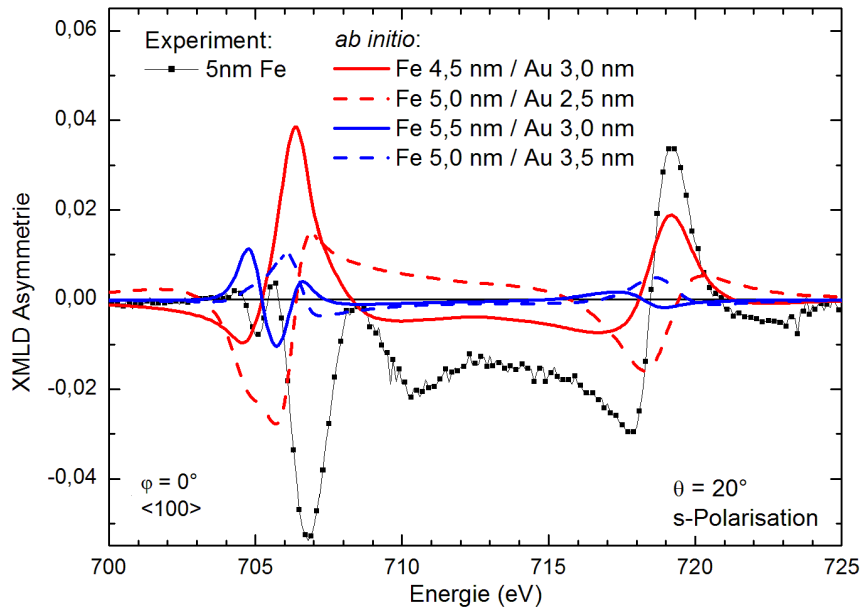
Auch für die Messung an den  $2p$ -Kanten der 5 nm Fe-Probe sollen nun die experimentellen XMLD-Spektren mit *ab initio* Rechnungen verglichen werden. Abb. 4.32 zeigt einen Vergleich von Theorie und Experiment der XMLD-Asymmetrie für  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$ . Es fällt direkt auf, dass die Übereinstimmung wesentlich schlechter ausfällt als an der  $3p$ -Kante. Für die Orientierung des E-Feldes parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Achse ( $\varphi = 45^\circ$ ) lässt sich der Verlauf des XMLD-Spektrums zwar grob reproduzieren (Abb. 4.32 unten), für die  $\langle 100 \rangle$ -Achse ( $\varphi = 0^\circ$ ) weicht das berechnete Spektrum aber stark vom Experiment ab (Abb. 4.32 oben).



**Abbildung 4.32:** Experimentelle XMLD-Spektren (Symbole) der Fe  $2p$ -Kante im Vergleich mit *ab initio* Rechnungen (Linien).

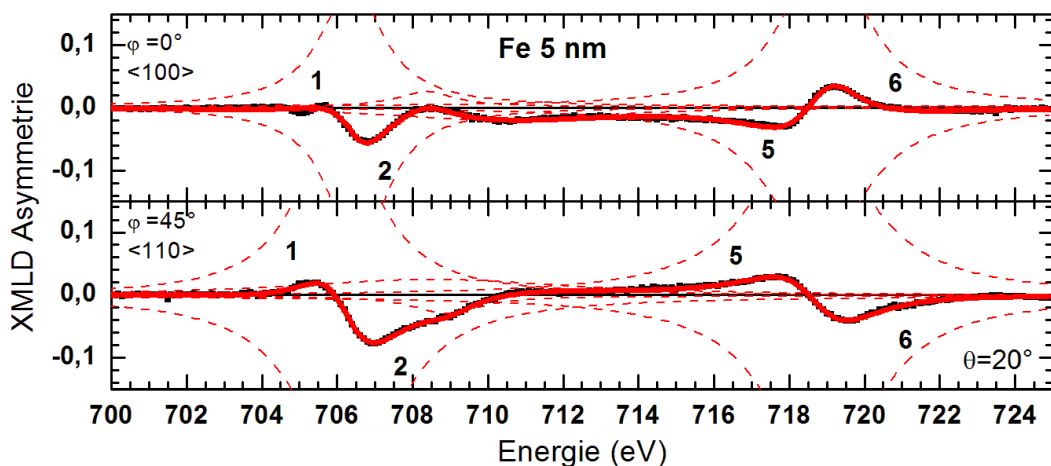
Die größte Auffälligkeit zeigt sich in den experimentellen Spektren an der  $2p_{3/2}$ -Kante. Während die Theorie ein Umklappen der XMLD-Strukturen mit dem Wechsel der Kristallrichtung an beiden Kanten vorhersagt, bleibt der Peak bei etwa 707 eV bis auf eine Änderung der Höhe unverändert. Lediglich der vorgelagerte Peak bei etwa 705 eV und die im Spektrum für  $\varphi = 45^\circ$  als Schulter erkennbare Struktur bei etwa 708,5 eV scheinen umzuklappen. Die Doppelstruktur an der  $2p_{1/2}$ -Kante verhält sich dagegen wie im theoretischen Spektrum, auch wenn die Position des Peaks leicht abweicht. Das Verhalten des experimentellen Spektrums deckt sich mit XMLD-Messungen in Reflexion an polykristallinem Fe aus Referenz [77], die einen einzelnen dominanten Peak bei 708 eV aufweisen. Eine Messung an polykristallinem Fe kann als Mittelung über alle Kristallachsen gesehen werden, dabei heben sich die Strukturen ab etwa 710 eV gegenseitig auf. Übrig bleibt ein das Spektrum dominierender Peak bei etwa 708 eV.

Eine Ursache für die schlechte Übereinstimmung zwischen *ab initio* Rechnungen und Experiment ist in Interferenzeffekten zu finden. Abbildung 4.33 zeigt *ab initio* berechnete XMLD-Spektren (Linien) für variierende Au- und Fe-Schichtdicke für die  $\langle 100 \rangle$ -Achse. Die Symbole zeigen das experimentelle Spektrum. Die Schichtdicken von Au und Fe wurden jeweils um  $-0,5$  nm (rote Linien) und  $+0,5$  nm (blaue Linien) verändert. Für den gewählten Einfallswinkel von  $\theta = 20^\circ$  bedeutet dies eine Weglängenänderung des Lichts im Material von etwa  $\pm 1,3$  nm und ist somit ähnlich groß wie die Wellenlänge. Diese beträgt bei 700 eV etwa 1,8 nm. Im Gegensatz zu den zuvor gezeigten experimentellen XMLD-Spektren für variierende Schichtdicke (siehe Abb. 4.15) an den  $3p$ -Kanten, bei denen die Änderung ebenfalls in der Größenordnung der Lichtwellenlänge liegt, zeigt sich für die  $2p$ -Kanten in den Rechnungen eine sehr starke Beeinflussung des XMLD-Signals. Die Spektren unterscheiden sich deutlich voneinander und es ist kein klarer Trend zu erkennen. Die Strukturen variieren über eine Größenordnung in der Höhe und wechseln sogar das Vorzeichen. Dies macht eine Berechnung der XMLD-Spektren in Reflexion an den  $2p$ -Kanten deutlich schwieriger und zeigt den entscheidenden Vorteil der  $3p$ -Kanten, an denen Interferenz eine fast vernachlässigbar geringe Rolle in den XMLD-Spektren spielt.



**Abbildung 4.33:** Vergleich *ab initio* gerechneter XMLD-Asymmetrie am Schichtsystem 3nm Au/ 5nm Fe/ 150nm Ag für leichte Variation der Fe- und Au-Schichtdicke.

Der Einfluss von Interferenz kann jedoch nicht den fehlenden Vorzeichenwechsel an der  $2p_{3/2}$ -Kante erklären. Hierfür konnte im Zuge dieser Arbeit keine abschließende Erklärung gefunden werden. Ein Einfluss von T-MOKE in den Spektren kann ausgeschlossen werden, da s-polarisiertes Licht verwendet wurde. Zudem wurde, wie auch für die Messungen an den  $3p$ -Kanten, ein möglicher Einfluss linearer magneto-optischer Effekte durch Mittelwertbildung für jeweils zwei Magnetisierungsrichtungen unterdrückt (siehe Gl. 2.40a und 2.40b). Wie später gezeigt wird, ist der fehlende Vorzeichenwechsel des XMLD an der  $2p_{3/2}$ -Kante auch bei Co und Ni zu beobachten. Dies wird in Kap. 7 noch einmal näher betrachtet.



**Abbildung 4.34:** Experimentell ermittelte XMLD-Spektren und Anpassung durch Lorentzkurven. (Details siehe Text)

Nun sollen die Positionen der Strukturen im XMLD-Spektrum an den  $2p$ -Kanten näher betrachtet werden. Dazu wurden analog zum Vorgehen an den  $3p$ -Kanten auch für die  $2p$ -Kanten die Spektren durch eine Überlagerung aus Lorentzkurven angeglichen (Abb. 4.34). Die Positionen der so ermittelten Peaks sind in Tabelle 4.3 eingetragen. In der letzten Spalte finden sich zum Vergleich der energetischen Abstände die berechneten Positionen der  $2p$ -Rumpfstände. Die Methode, die XMLD-Spektren durch Lorentzkurven anzupassen, erweist sich an der  $2p$ -Kante als schwieriger, zeigt aber dennoch eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Vor allem die gut separierte Doppelstruktur an der  $2p_{1/2}$ -Kante lässt sich für beide Kristallrichtungen sehr gut anpassen. Lediglich die Werte für Peak Nummer 4 und 5 liegen für  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  an unterschiedlichen Positionen und für  $\varphi = 0^\circ$  kann der erste Peak im experimentellen Spektrum nicht reproduziert werden.

Peak-Nr.	$\varphi=0^\circ$	$\varphi=45^\circ$	$2p$ -DOS
	Experiment		
1	706,4 eV	706,0 eV	705,02 eV
2	706,55 eV	706,3 eV	705,31 eV
3	708,35 eV	708,5 eV	705,61 eV
4	710,2 eV	708,9 eV	705,9 eV
5	718,6 eV	718,6 eV	718,77 eV
6	718,9 eV	718,9 eV	719,05 eV

**Tabelle 4.3:** Durch Lorentz-Anpassung ermittelte Positionen der einzelnen XMLD-Strukturen, sowie die berechneten Positionen der  $2p$ -Rumpfstände.

In Tabelle 4.3 sind die so ermittelten Positionen eingetragen. Es sind hier vor allem die Peak-Positionen des Spektrums für  $\varphi = 45^\circ$  zu beachten, da dieses deutlich besser als das Spektrum für  $\varphi = 0^\circ$  durch die Lorentzkurven reproduziert werden konnte. Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf den  $3p$ -Kanten liegt, soll an dieser Stelle auf eine detaillierte Betrachtung der Übergänge verzichtet werden. Es gelten jedoch die gleichen Überlegungen wie an den  $3p$ -Kanten. Demnach sollte sich in der energetischen Differenz der Strukturen in den experimentellen XMLD-Spektren neben der Spin-Bahn-Aufspaltung von 13,45 eV auch die Austauschspaltung der  $2p$ -Zustände wieder finden. Die Spin-Bahn-Aufspaltung lässt sich klar anhand der Trennung der  $2p_{1/2}$ - und  $2p_{3/2}$ -Zustände ausmachen, ist im Experiment aber mit etwa 12,5 eV geringer als der errechnete Wert. Die Austauschspaltung beträgt nach den *ab initio* Rechnungen etwa 0,3 eV. Wie auch schon an den  $3p$ -Kanten findet sich auch hier eine solche Differenz in den Positionen der Peaks im XMLD-Spektrum wieder. Sowohl die ersten beiden Peaks der Lorentz-Anpassung für  $\varphi = 45^\circ$  zeigen eine Differenz von 0,3 eV als auch die Doppelstruktur der  $2p_{1/2}$ -Kante. Genau wie für die XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten kann also auch in den Spektren der  $2p$ -Kanten die Energiedifferenz der austauschgespaltenen  $2p$ -Rumpfstände wiedergefunden werden.



## 4.7 Zusammenfassende Diskussion

In diesem Kapitel wurde erstmals die Abhängigkeit des magnetischen Röntgenlineardichroismus von der Orientierung zwischen dem E-Feld des einfallenden Lichts und den magnetischen Achsen des Kristalls an den Fe  $3p$ -Kanten demonstriert (siehe auch Referenz [145]). Dazu wurde die Methode der Reflexionsspektroskopie gewählt. Es konnte gezeigt werden, dass XMLD wesentlich besser als T-MOKE oder L-MOKE geeignet ist, den Einfluss der Kristallanisotropie zu untersuchen. XMLD zeigt eine deutliche Abhängigkeit des spektralen Verlaufs von der Kristallrichtung, wohingegen in den T-MOKE- und L-MOKE-Spektren an den  $3p$ -Kanten keine eindeutige Abhängigkeit des spektralen Verlaufs von den Kristallachsen gemessen werden konnte. Der Vorteil der XMLD-Spektroskopie gegenüber T-MOKE-Spektroskopie ist also die extrem hohe Empfindlichkeit auf die Ausrichtung der Kristallachsen bezüglich des E-Feldes des Lichts. Dabei erfahren die Spektren beim Wechsel zwischen der magnetisch leichten  $\langle 100 \rangle$ - und der magnetisch mittelschweren  $\langle 110 \rangle$ -Achse eine Änderung von bis zu 100%. Der Einfluss der magnetischen Symmetrie in den XMLD-Spektren konnte deutlich durch die Polardiagramme in den Abbildungen 4.14 und 4.21 veranschaulicht werden.

Auch an den  $2p$ -Kanten von Fe zeigt sich eine deutliche Abhängigkeit der XMLD-Spektren bezüglich der Orientierung des Kristalls. XMLD an der  $2p$ -Kante zeigt dabei eine um eine Größenordnung stärkere Asymmetrie als an der  $3p$ -Kante, wie es auch für andere magneto-optische Effekte beobachtet werden kann. Allerdings konnte kein vollständiges Umklappen der XMLD-Spektren gemessen werden, wie es aus den *ab initio* Rechnungen hervorgeht. Zudem zeigt sich, dass die XMLD-Spektren an den  $2p$ -Kanten im Gegensatz zu den  $3p$ -Kanten deutlich von Interferenzeffekten beeinflusst werden. Dies ist ein deutlicher Nachteil der XMLD-Reflexionsspektroskopie an den  $2p$ -Kanten verglichen mit den  $3p$ -Kanten. Ein Vorteil der Messungen an den  $2p$ -Kanten ist jedoch, dass die gemessenen XMLD-Asymmetrie mit s-polarisiertem Licht unter streifendem Einfall von  $\theta = 20^\circ$  große Werte von bis zu 8% ergeben hat. Dies ist insofern bemerkenswert, da Absorptionmessungen an Fe unter Berücksichtigung der magnetokristallinen Anisotropie des XMLD für senkrechten Lichteinfall mittels TEY nur Asymmetriewerte von 1,5% aufwiesen [11].

Weitere Messungen, welche die XMLD-Asymmetrie in Abhängigkeit der magnetokristallinen Anisotropie an reinem Fe untersuchen, sind in der Literatur nicht zu finden. Jedoch gibt es Messungen an Oxiden und polykristallinen Proben. An einer polykristallinen Fe<sub>20</sub>Co<sub>80</sub>-Probe konnte in Transmission von Kuneš et al. [78] XMLD an der Fe  $2p_{3/2}$ -Kante mit maximalen Werten von etwa 2,5% gemessen werden. Schwickert et al. [146] haben dünne kristalline Fe-Schichten mit einer starken uniaxialen Anisotropie und Dhesi et al. [63] ultradünne Fe-Schichten von 3 Monolagen untersucht. In beiden Fällen wurde jedoch nicht die Abhängigkeit des XMLD bezüglich der Kristallachsen gemessen. Dabei konnten jedoch Asymmetriewerte von etwa 3% [63] bzw. 7% [146] gemessen werden. Die Stärke der in dieser Arbeit in Reflexion gemessenen XMLD-Asymmetrie mit Maximalwerten von 8% ist also mit Werten aus Absorptionmessungen anderer Gruppen vergleichbar. Messungen an dem Antiferromagneten Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Hämatit) haben sogar noch höhere maximale Asymmetriewerte von bis zu 20% ergeben [76]. Solche Messungen an Oxiden können jedoch nicht direkt mit den in dieser Arbeit durchgeführten Messungen an bcc Fe verglichen werden, da sich die elektronische Struktur deutlich von reinem Fe unterscheidet. Dennoch zeigt dies, dass auch für den quadratisch in der Magnetisierung laufenden XMLD an den  $2p$ -Kanten sehr große Asymmetriewerte erreicht werden können.

Für die  $3p$ -Kanten gibt es bisher nur eine einzige Publikation des mit dem XMLD verwandten Schäfer-Hubert Effekts und ein qualitatives XMLD-Spektrum an polykristallinem Fe [80]. Die in dieser Arbeit erstmalig an den  $3p$ -Kanten von kristallinem Fe gemessenen XMLD-Spektren erweitern somit das Bild der magnetokristallinen Anisotropie des XMLD auf den Energiebereich des EUV. Anpassungsrechnungen an den  $3p$ -Kanten haben gezeigt, dass Rauigkeit und Interferenz einen starken Einfluss auf die Reflexionsspektren haben können. Auch für T-MOKE hat sich eine starke Abhängigkeit des Signals von der Schichtdicke gezeigt. Für die XMLD-Asymmetrie hat sich jedoch ergeben, dass der Einfluss von Interferenz wesentlich geringer als für T-MOKE ausfällt. Die XMLD-Spektren haben zwar eine Änderung in ihren Peakhöhen erfahren, sind aber im spektralen Verlauf weitestgehend identisch und eignen sich daher sehr gut zur Untersuchung der Kristallanisotropie im XMLD.

Die XMLD-Spektren weisen sowohl für die  $3p$ - als auch die  $2p$ -Kanten eine Vielzahl gut trennbarer Strukturen auf, was hilfreich für die Interpretation der Spektren und den Vergleich mit *ab initio* Rechnungen ist. Die experimentellen Spektren sind in dieser Arbeit mit *ab initio* Rechnungen verglichen worden, welche an der Universität Ostrava [142] durchgeführt wurden. Dabei konnten die XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten gut durch die *ab initio* berechneten Spektren reproduziert werden. Die berechneten Spektren stimmen sowohl im energetischen Verlauf als auch in der Abhängigkeit bezüglich der Kristallachsen sehr gut mit den experimentellen Spektren überein. Dies zeigt, dass die verwendeten theoretischen Methoden einer relativistischen Berechnung der elektronischen Struktur unter Berücksichtigung einer Spin-Bahn- und Austauschaufspaltung der  $3p$ -Zustände von gleicher Größenordnung die zugrundeliegende Physik gut beschreiben kann. Die XMLD-Spektren an den  $2p$ -Kanten sind im Gegensatz zu den Spektren der  $3p$ -Kanten schlechter durch die *ab initio* Rechnungen zu reproduzieren. Der Grund hierfür liegt jedoch nicht in der Berechnung der Bandstruktur. Vielmehr hat sich gezeigt, dass Interferenz einen sehr dominanten Einfluss auf die berechneten Spektren an den  $2p$ -Kanten hat.

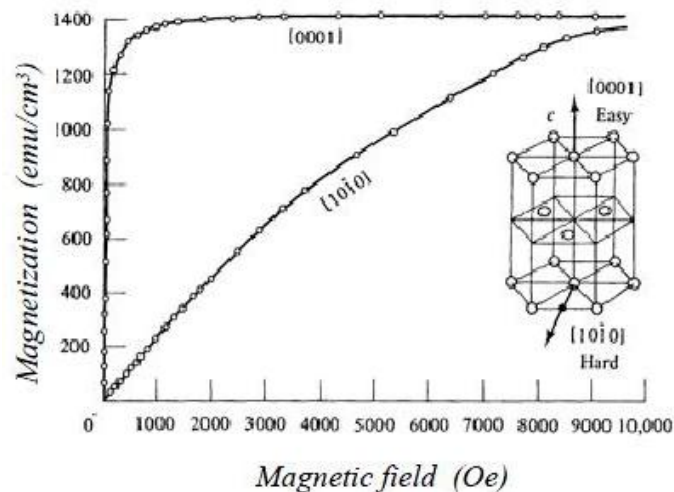
Abschließend lässt sich für Fe feststellen, dass die mit den in Kap. 2.4 genannten Methoden berechnete Zustandsdichte eine sehr gute Übereinstimmung mit den Strukturen der experimentell ermittelten XMLD-Spektren aufweist. Sowohl für die  $3p$ - als auch für die  $2p$ -Kanten konnten, durch eine differenzierte Betrachtung der Leitungsband- und Rump fzustände, die Strukturen in den XMLD-Spektren den möglichen  $p \rightarrow d$  Übergängen zugeordnet werden. Dabei konnte direkt der Zusammenhang zwischen der Austausch aufspaltung der Rump fzustände und den Strukturen in den XMLD-Spektren an der  $3p$ -Kante aufgezeigt werden. Auch in den XMLD-Spektren der  $2p$ -Kanten konnte die Austausch aufspaltung der Rump fzustände wiedergefunden werden. Dies ist eine weitere Bestätigung für die Richtigkeit der verwendeten Rechenmethoden.

# 5 Kobalt

Im Folgenden werden erstmals experimentelle XMLD-Spektren an Co vorgestellt. Da das Hauptaugenmerk der vorliegenden Arbeit aber auf den Fe-Proben liegt, werden die Messungen an Kobalt sehr kompakt diskutiert. Nach einer kurzen Darstellung der magnetischen Eigenschaften und des Reflexionsvermögens werden T-MOKE- und XMLD-Messungen betrachtet und mit *ab initio* gerechneten Spektren verglichen. Auch wenn die Kristallstruktur der in dieser Arbeit untersuchten Co-Probe nicht vollständig geklärt ist, wie in Kap. 3.6.2 bereits diskutiert wurde, können anhand der hier vorgestellten Messergebnisse einige wichtige Überlegungen bezüglich der Abhängigkeit des XMLD von der Kristallstruktur angestellt werden.

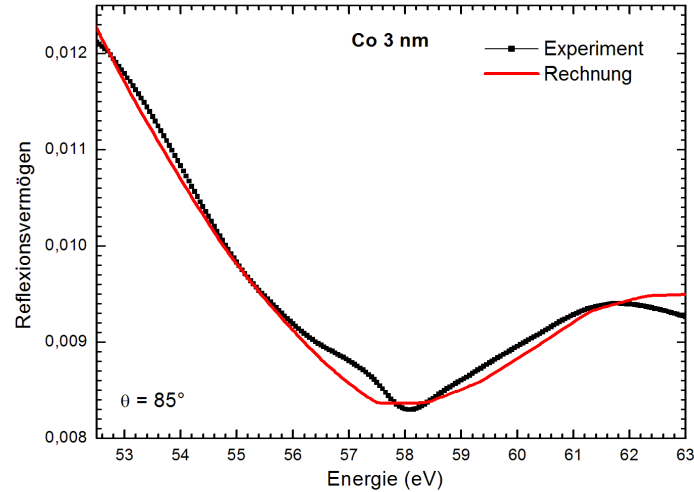
## 5.1 Magnetische Eigenschaften & Reflexionsvermögen

Zu Beginn soll ein Blick auf das Magnetisierungsverhalten und das Reflexionsvermögen der Co-Probe geworfen werden. Abbildung 5.1 zeigt das Magnetisierungsverhalten für einen hcp Volumenkristall [135]. Die leichte Richtung liegt entlang der c-Achse und ist bei ca. 100 mT in Sättigung. Um Co entlang der senkrecht dazu liegenden magnetisch schweren  $[10\bar{1}0]$ -Achse in Sättigung zu bringen, benötigt es etwa 1 T. Der experimentelle Aufbau dieser Arbeit liefert aber nur etwa 250 mT, so dass für eine hcp-Struktur nur eine teilweise Magnetisierung in Richtung der schweren Achse erfolgen kann.



**Abbildung 5.1:** Magnetisierungsverhalten von hcp Co für die magnetisch leichte und schwere Achse nach J. Honda und S. Kaja [135].

Für eine fcc-Struktur des Co stellt sich die Lage hingegen anders dar. In Kap. 3.6.2 wurde gezeigt, dass das Co nicht homogen über die Oberfläche der Probe verteilt ist, sondern eine Inselstruktur aufweist. Für fcc Co-Nanostrukturen von ähnlicher Größe, wie sie bei der hier verwendeten Probe vorliegen, wurde eine Sättigungsmagnetisierung im Bereich von 200 mT sowohl für die  $\langle 100 \rangle$ - als auch die  $\langle 110 \rangle$ -Achse ermittelt [147]. Dabei hat sich die  $\langle 100 \rangle$ -Achse als die magnetisch schwerere Achse herausgestellt, wie es auch für ausgedehnte dünne fcc Co-Filme beobachtet werden konnte [37]. Für fcc Co reicht das äußere Feld also aus, um die Probe in Sättigung zu bringen.



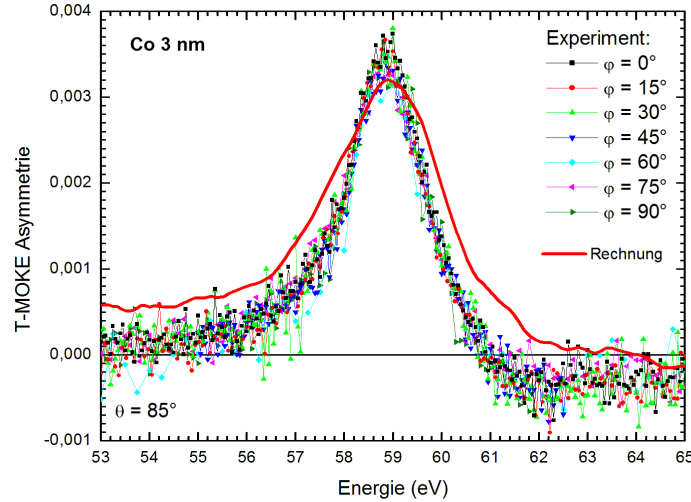
**Abbildung 5.2:** Gemessenes Reflexionsvermögen der Co-Probe (Symbole) und Anpassungsrechnung mit dem Programm ReMagX [86].

Das Reflexionsvermögen der Probe, sowie eine Anpassungsrechnung mit dem Programm ReMagX [86] sind in Abb. 5.2 gezeigt. Es fällt auf, dass in beiden Spektren ein an der Co  $3p$ -Kante (etwa 58 eV) erwarteter Peak nicht zu erkennen ist. Dies wird auf die dünne Co-Schichtdicke zurückgeführt. Das gemessene Reflexionsvermögen lässt sich mit Anpassungsrechnungen reproduzieren. Die Parameter in der Berechnung betragen für die Schichtdicken  $d_{Au} = 1,5$  nm,  $d_{Co} = 3,0$  nm und  $d_{Ag} = 150$  nm mit GaAs als Substrat und für die Rauigkeit  $\sigma_{Au} = 0,88$  nm,  $\sigma_{Co} = 3,0$  nm und  $\sigma_{Ag} = 3,3$  nm. Diese Werte sind in Übereinstimmung mit den gemessenen Werten (siehe Kap. 3.6.2). Für die Anpassungsrechnung muss jedoch berücksichtigt werden, dass die tatsächliche Topographie der Co-Inseln nicht in dem Programm ReMagX abgebildet werden kann. Die Anpassungsrechnung wurde daher zusätzlich mit einem Faktor 0,22 multipliziert, da nur ein Teil der Probe von Co bedeckt ist und die hohe Rauigkeit zu einer Überstrahlung der Diode führt (siehe Kap. 3.6.4).

## 5.2 Anisotropie in T-MOKE

Nun soll der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf T-MOKE-Messungen betrachtet werden. In einer vorangegangenen Arbeit von Kleibert et al. [141] konnte an den höherenergetischen  $2p$ -Kanten von Co ein leichter Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf die T-MOKE-Asymmetrie nachgewiesen werden. Wie auch schon für Fe, ist an den  $3p$ -Kanten des Co aber kein Einfluss der Orientierung zwischen elektrischem Feld und den Kristallachsen

auf den T-MOKE erkennbar. Im Gegensatz zu den  $2p$ -Kanten von Co [141] sind mögliche Einflüsse der magnetokristallinen Anisotropie an der Co  $3p$ -Kante zu gering, um sie mit der in der vorliegenden Arbeit zur Verfügung stehenden Auflösung detektieren zu können. Abbildung 5.3 zeigt T-MOKE-Spektren an den Co  $3p$ -Kanten bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 85^\circ$ . Beginnend bei einem als  $\varphi = 0^\circ$  definierten Winkel, bei dem das elektrische Feld des Lichts parallel zur Kante des GaAs-Substrats liegt, wurde die Probe in  $\Delta\varphi = 15^\circ$  Schritten gedreht, wobei für jeden Winkel ein T-MOKE-Spektrum aufgenommen wurde.



**Abbildung 5.3:** Gemessene T-MOKE-Asymmetrie (Symbole) bei  $\theta = 85^\circ$  für verschiedene Orientierungen von Kristallachsen und dem E-Feld innerhalb der Probenoberfläche und Anpassungsrechnung (Linie) [95].

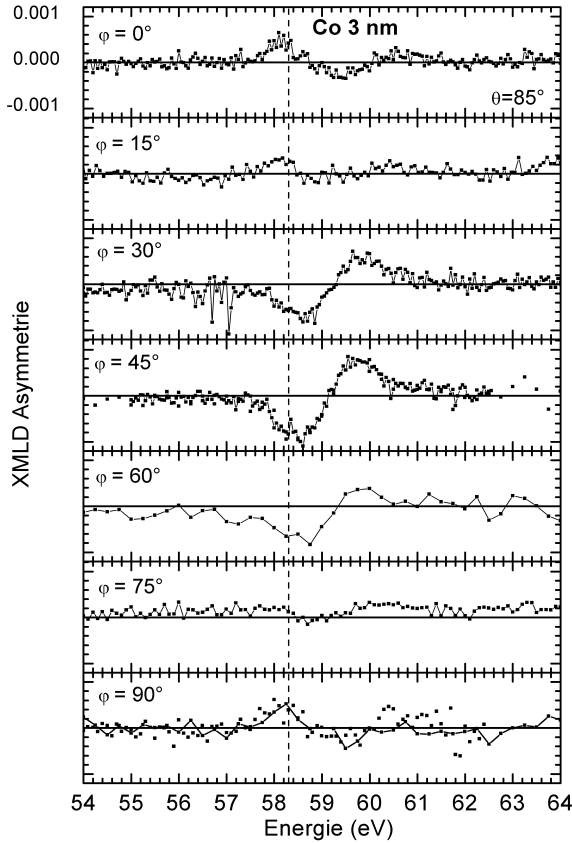
Die Spektren entsprechen dem erwarteten Verlauf, wie durch eine Anpassungsrechnung mit dem Programm Yeh-MOKE [95] gezeigt werden kann. Für die Anpassungsrechnung wurden experimentell ermittelte magneto-optische Konstanten für polykristallines Co von S. Valencia et al. [81] verwendet. Die Anpassungsrechnung wurde mit 0,4 multipliziert. Dieser Wert weicht von dem Wert welcher für die Anpassungsrechnung des Reflexionsspektrums verwendet wurde ab, da die Überstrahlung der Diode die Messung der T-MOKE-Asymmetrie im Gegensatz zum absoluten Reflexionsvermögen nicht beeinflusst (vgl. Kap 3.6.4).

Aus den in Abb. 5.3 gezeigten T-MOKE-Spektren lässt sich jedoch ein anderer Schluss ziehen: Die Übereinstimmung der Spektren für alle Kristallrichtungen zeigt, dass die Probe in jeder Richtung magnetisch gesättigt ist. Dies deutet auf eine fcc Struktur des Co hin. Eine Zwillings-hcp-Struktur, welche mit der c-Achse parallel zu Oberfläche der Probe liegt, könnte entlang der beiden um  $90^\circ$  zueinander gedrehten c-Achsen mit dem angelegten Feld von 250 mT nicht in Sättigung gebracht werden.

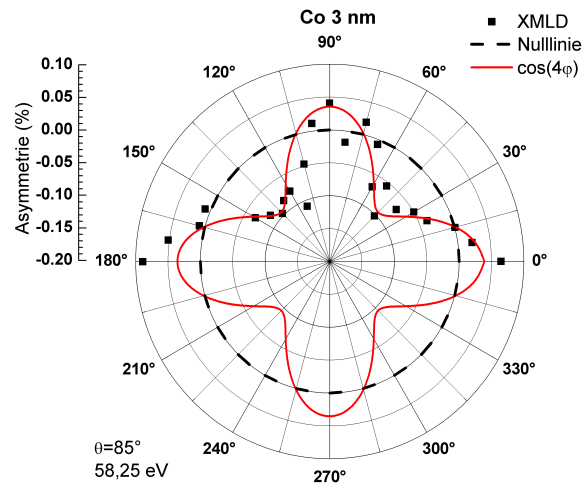
### 5.3 Anisotropie in XMLD an den $3p$ -Kanten

Im Folgenden wird gezeigt, dass die magnetokristalline Anisotropie des Co wie für Fe einen sehr starken Einfluss auf den XMLD hat. Die Messgeometrie für die XMLD-Messungen an den Co  $3p$ -Kanten ist identisch der Messgeometrie für die  $3p$ -Kanten der Fe-Proben, d.h. es wird mit p-polarisiertem Licht bei  $\theta = 85^\circ$  Einfallswinkel gemessen. Bei dieser Messgeometrie

liegt der E-Feld-Vektor nahezu parallel zur Probenoberfläche. Auch das Magnetfeld wurde parallel zur Probenoberfläche angelegt, wie es in Kap. 2.2.5 beschrieben ist. Die Messungen wurden ebenfalls mit dem BESSY-Polarimeter [119] an der Beamline U125-2-SGM2 des Berliner Synchrotrons BESSY II [112] durchgeführt. Die Magnetisierung der Proben erfolgte mit dem MiniMag (Kap. 3.4). Um ein ausreichendes Magnetfeld am Probenort zu gewährleisten, wurde der stärkere Magnetring, welcher ein Feld von  $B = 250$  mT erzeugt, verwendet.



**Abbildung 5.4:** XMLD-Asymmetrie der 3 nm Co-Probe für  $\theta = 85^\circ$ . Der Kristallwinkel wurde beginnend bei  $\varphi = 0^\circ$  (oben) in  $15^\circ$ -Schritten bis hin zu  $\varphi = 90^\circ$  (unten) gedreht.



**Abbildung 5.5:** Polare Darstellung der XMLD-Asymmetrie an der Co-Probe bei 58,25 eV (gestrichelte Linie in Abb. 5.4).

Abbildung 5.4 zeigt XMLD-Spektren an den Co  $3p$ -Kanten für verschiedene Winkel zwischen E-Feld und den Kristallachsen. Der Winkel  $\varphi = 0^\circ$  wurde so gewählt, dass das E-Feld parallel zur Probenkante liegt. Dies entspricht einer Ausrichtung des E-Feldes parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Richtung der Ag-Schicht, auf der das Co aufgewachsen wurde (siehe Kap. 3.6). Das XMLD-Spektrum für  $\varphi = 0^\circ$  (oben in Abb. 5.4) zeigt eine klare Doppelstruktur mit einem Maximum bei 58,2 eV und einem Minimum bei etwa 59,4 eV.

Für die anderen Spektren wurde die Probe jeweils in Schritten von  $\Delta\varphi = 15^\circ$  um die Oberflächennormale gedreht. Auch hier ist eine klare Änderung des Spektrums bei Drehung der Probe zu erkennen. Die Doppelstruktur wird schwächer für  $\varphi = 15^\circ$  und wechselt das Vorzeichen bei  $\varphi = 30^\circ$ . Für  $\varphi = 45^\circ$ , was einer Orientierung des E-Feldes parallel zur Probendiagonala-

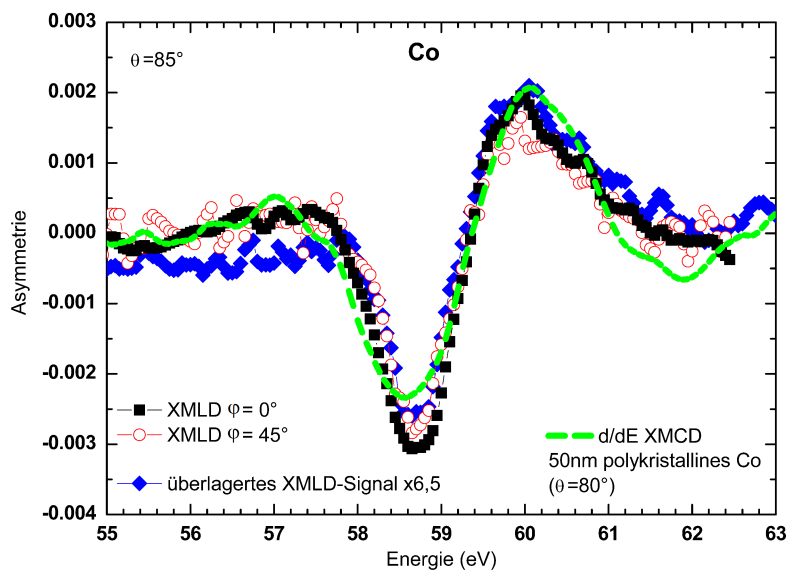
len entspricht, hat das XMLD-Spektrum die stärkste Änderung erfahren und zeigt nun eine Doppelstruktur mit einem Minimum bei 58,5 eV und einem Maximum bei etwa 59,8 eV. Die Strukturen für  $\varphi = 45^\circ$  haben, verglichen mit dem Spektrum für  $\varphi = 0^\circ$ , also nicht nur das Vorzeichen gewechselt, sondern sind auch energetisch zu höheren Werten hin verschoben. Der relative Abstand zwischen den Peaks bleibt mit ca. 1,2 eV jedoch erhalten. Zusätzlich zu der Verschiebung ist der maximale Hub der beiden Peaks von etwa 0,1% auf 0,2% angestiegen. Es kann also festgehalten werden, dass Co, ebenso wie Fe, gut unterscheidbare XMLD-Spektren für unterschiedliche Orientierungen des elektrischen Feldes zu den Kristallachsen zeigt.

Für eine weitere Drehung der Probe bis hin zu  $\varphi = 90^\circ$  geht der spektrale Verlauf des XMLD wieder in den für  $\varphi = 0^\circ$  gemessenen Verlauf über. Auch hier zeigt sich also eine vierzählige magnetische Symmetrie, welche durch ein Polardiagramm (Abb. 5.5) bestätigt wird. Dazu wurde die Probe bei einer festen Energie von 58,25 eV (gestrichelte Linie in Abb. 5.4) in  $\Delta\varphi = 7,5^\circ$  Schritten von  $\varphi = 0^\circ$  bis  $\varphi = 180^\circ$  um die Oberflächennormale gedreht, wobei für jede Position die XMLD-Asymmetrie gemessen wurde. Trotz des schlechteren Signal-zu-Rausch-Verhältnisses ergibt sich ein XMLD-Verlauf, welcher, wie auch für Fe, einer  $\cos(4\varphi)$ -Abhängigkeit folgt. Allerdings gibt es Abweichungen, die auf mögliche Unregelmäßigkeiten in der Kristallstruktur hindeuten können. Auf den REM-Aufnahmen dieser Co-Probe (Kap. 3.6.2) waren Strukturen mit scheinbar sechszähliger Symmetrie zu sehen. Wenn davon ausgegangen wird, dass diese sich auf dem vierzähligen Ag-Kristall in einer Zwillingsstruktur anordnen, da keine Vorzugsrichtung bzgl. der [100]- und [010]-Richtung gegeben ist, ergibt sich eine resultierende zwölfzählige Symmetrie. Ob dies, oder das schlechte Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Grund für die Abweichungen in dem polaren XMLD-Spektrum ist, kann nicht zweifelsfrei geklärt werden. Da die vierzählige Symmetrie aber ganz klar dominant ist, wird im Folgenden auf einen möglichen kleinen Beitrag einer anderen Kristallstruktur nicht weiter eingegangen.

## 5.4 XMLD an den $3p$ -Kanten von polykristallinem Co

Im Zuge der Messungen der XMLD-Asymmetrie an Co wurde eine zweite Probe mit einer Au-Pufferschicht anstatt einer Ag-Pufferschicht untersucht. Der Aufbau der Probe ist bis auf die Pufferschicht und die Co-Schichtdicke, die in diesem Fall 5 nm beträgt, identisch mit der zuvor vermessenen Co-Probe. Mittels LEED-Messungen konnte an der zweiten jedoch keine einkristalline Struktur nachgewiesen werden. Auch XMLD-Messungen haben keine Richtungsabhängigkeit gezeigt. Dies beweist, dass die Co-Schicht polykristallin ist. Dennoch zeigt die Probe ein XMLD-Signal, wie es auch aus der Theorie hervorgeht (vergleiche Kap. 2.2.5). Die XMLD-Asymmetrie ist in Abb. 5.6 für die Probenwinkel  $\varphi = 0^\circ$  (volle schwarze Symbole) und  $\varphi = 45^\circ$  (offene rote Symbole) dargestellt. Für beide Winkel wurden Spektren mit identischem Verlauf gemessen und weisen eine maximale XMLD-Asymmetrie von 0,3% auf.

Im Folgenden wird nun gezeigt, dass sich das XMLD-Spektrum der polykristallinen Probe aus den Spektren der vorwiegend einkristallinen Probe (siehe Abb. 5.4) reproduzieren lässt. Dazu wurde der Mittelwert aus den XMLD-Spektren für die Kristallrichtungen  $\varphi = 0^\circ$ ,  $\varphi = 15^\circ$ ,  $\varphi = 30^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  (siehe Abb. 5.4) gebildet. Das daraus resultierende Spektrum ist in Abbildung 5.6 durch die blauen Symbole dargestellt und reproduziert, nach einer Normierung der absoluten Werte, nahezu exakt den Verlauf der XMLD-Spektren der polykristallinen Probe.



**Abbildung 5.6:** Asymmetrie-Spektren für verschiedene Co-Proben. (Details siehe Text)

Das XMLD-Spektrum der polykristallinen Probe eignet sich noch für einen weiteren Vergleich. In Abb. 5.6 ist zusätzlich zu den drei XMLD-Spektren ein nach der Energie abgeleitetes XMCD-Spektrum einer 50 nm dicken polykristallinen Co-Probe qualitativ dargestellt (grüne Linie). Das dazugehörige XMCD-Spektrum (hier nicht gezeigt) wurde am Dortmunder Synchrotron DELTA mit der XMAPS-Experimentierkammer [72] (Kap. 3.2) gemessen. Das abgeleitete XMCD-Signal zeigt denselben Verlauf wie die XMLD-Spektren und bestätigt somit den theoretisch erwarteten Zusammenhang. Dieser besagt, dass sich für Proben mit sphärischer Kristallsymmetrie, wie es bei polykristallinen Proben der Fall ist, das XMLD-Signal wie die Ableitung des XMCD-Signals verhält (siehe Kap. 2.2.5 und Referenz [78]). Diese Beziehung zwischen XMCD und XMLD konnte hier erstmalig qualitativ an den  $3p$ -Kanten experimentell bestätigt werden.

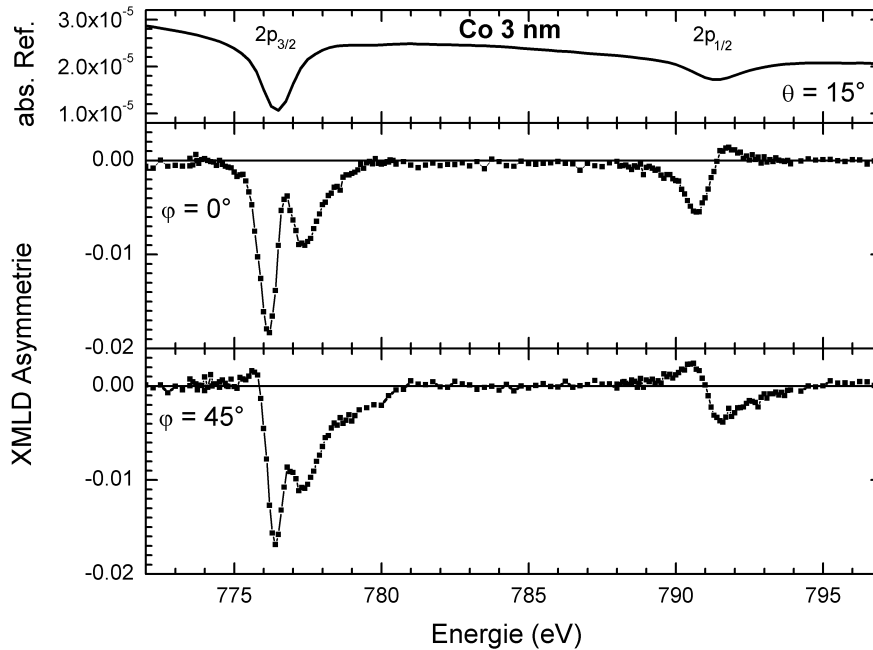
Die beiden oben angeführten Vergleiche zeigen sehr schön eine weitere Stärke der XMLD-Spektroskopie. Durch die starke Empfindlichkeit bezüglich der kristallinen Orientierung bietet sich durch XMLD-Messungen die Möglichkeit die kristalline Qualität von Proben bestimmen zu können. Dies ist zwar beschränkt auf magnetische Systeme, bietet aber gegenüber anderen Methoden, wie z.B. dem natürlichen Röntgenlineardichroismus (XNLD) [6], den Vorteil, dass auch Proben mit kubischer Kristallsymmetrie untersucht werden können. Dies ist mit herkömmlichen XNLD-Messungen nicht möglich. Zudem sind mittels Reflexionsspektroskopie auch Untersuchungen mehrere 10 nm tief vergrabener Schichten möglich, im Gegensatz zur Photoelektronenspektroskopie.

## 5.5 Anisotropie in XMLD an den $2p$ -Kanten

Um den experimentellen Teil dieses Kapitels abzuschließen, werden nun Messungen an den  $2p$ -Kanten von Co vorgestellt. Diese wurden an der Undulator-Beamline UE56-2 PGM2 [113] des BESSY II durchgeführt. Aufgrund des geringen Reflexionsvermögens an den  $2p$ -Kanten wurde die gleiche Geometrie wie schon für die Messungen an den Fe  $2p$ -Kanten verwendet, d.h.



s-polarisiertes Licht bei streifendem Einfall. Bevor die Messergebnisse diskutiert werden, ist zu erwähnen, dass für diese Messungen eine weitere Co-Probe verwendet wurde. Auch bei dieser Probe handelt es sich um eine 3 nm Co-Schicht, welche mittels MBE auf einer 150 nm dicken Ag-Schicht aufgebracht wurde und mit 3 nm Au zum Schutz vor Oxidation bedeckt wurde. Messungen im REM haben, im Gegensatz zu der Co-Probe, welche für die Messungen an den 3*p*-Kanten verwendet wurde, keine Inselstrukturen, sondern eine homogene Oberfläche gezeigt. Für die kristalline Struktur des Co auf der Ag-Schicht gelten jedoch die gleichen Überlegungen wie zuvor (siehe Kap. 3.6.2). Neben der Bestätigung der vierzähligen Symmetrie durch LEED-Messungen wurde auch ein Polardiagramm (hier nicht gezeigt) der XMLD-Asymmetrie, analog zu dem in Abb. 5.5, aufgenommen, welches ebenfalls eine vierzählige Symmetrie zeigt.



**Abbildung 5.7:** Reflexionsvermögen (oben) und XMLD-Asymmetrie für  $\varphi = 0^\circ$  (mitte) und  $\varphi = 45^\circ$  (unten) an den 2*p*-Kanten von Co.

Im oberen Teil von Abb. 5.7 ist das Reflexionsvermögen der Co-Probe gezeigt. Es fällt auf, dass bei den Energien der Co 2*p*<sub>1/2</sub>- und 2*p*<sub>3/2</sub>-Kante keine Peaks zu sehen sind, wie sie für Reflexionsspektren üblich sind, sondern Minima, wie sie normalerweise in Transmissionsspektren beobachtet werden. Ein ähnliches Verhalten konnte auch an der 3*p*-Kante beobachtet werden. Anpassungsrechnungen (hier nicht gezeigt) haben ergeben, dass es sich dabei um Interferenzeffekte handelt. Das Reflexionsspektrum variiert sehr stark mit sich ändernder Schichtdicke und Rauigkeit.

Die XMLD-Asymmetrie für die Probenwinkel  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  ist im mittleren bzw. unteren Teil von Abb. 5.7 dargestellt. Wie es auch schon für Fe beobachtet wurde, fällt auch hier das Asymmetriesignal für die 2*p*-Kanten um etwa eine Größenordnung stärker aus, als für die 3*p*-Kanten. Es lassen sich aber noch weitere Gemeinsamkeiten mit dem Verlauf des XMLD-Spektrums an den Fe 2*p*-Kanten finden. Zunächst ist das Spektrum an der 2*p*<sub>3/2</sub>-Kante deutlich stärker ausgeprägt als an der 2*p*<sub>1/2</sub>-Kante. Das XMLD-Signal an der 2*p*<sub>3/2</sub>-Kante besteht aus Strukturen bei 775,6 eV, 776,4 eV, 777,4 eV und etwa 778,5 eV. An der 2*p*<sub>1/2</sub>-Kante ist dagegen, wie für Fe, nur eine Doppelstruktur zu sehen.

Die deutlichste Gemeinsamkeit des XMLD an den  $2p$ -Kanten von Fe und Co ist das Verhalten des Spektrums, wenn die Probe um  $45^\circ$  gedreht wird. Die Strukturen an der  $2p_{3/2}$ -Kante ändern sich nur wenig, die beiden Peaks bei 776,4 eV und 777,4 eV bleiben bis auf eine Änderung in der Höhe nahezu unverändert. An der  $2p_{1/2}$ -Kante jedoch erfährt die sich dort befindende Doppelstruktur bei Drehung der Probe einen Vorzeichenwechsel und klappt um. Später wird gezeigt werden, dass dieses Verhalten ebenfalls an Ni zu beobachten ist. Eine Diskussion möglicher Ursachen findet in Kapitel 7 statt. Zunächst wird nun auf die für Co durchgeführten *ab initio* Rechnungen eingegangen.

## 5.6 Vergleich mit *ab initio* Rechnungen

Wie bereits in Kap. 3.6.2 erwähnt wurde, ist die kristalline Struktur der Co-Probe nicht eindeutig geklärt. Dies erschwert den Vergleich mit *ab initio* Rechnungen. Aus den vorherigen Überlegungen haben sich zwei mögliche Strukturen herauskristallisiert: die fcc-Struktur und die Zwillings-hcp-Struktur mit  $(11\bar{2}0)$ -Oberfläche.

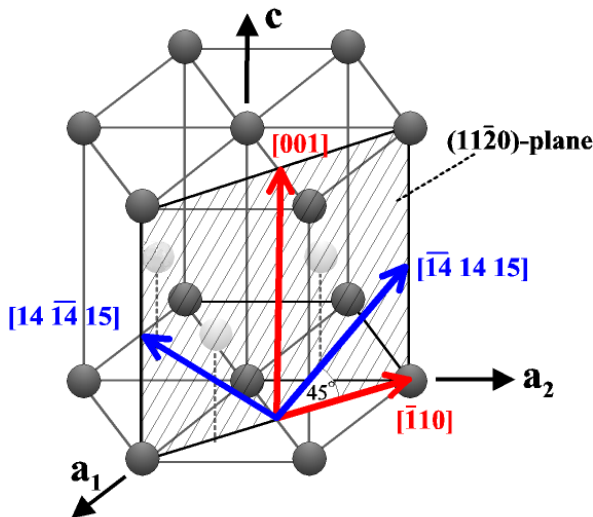


Abbildung 5.8: Magnetisierungsrichtungen der Probe innerhalb einer  $(11\bar{2}0)$ -Oberfläche.

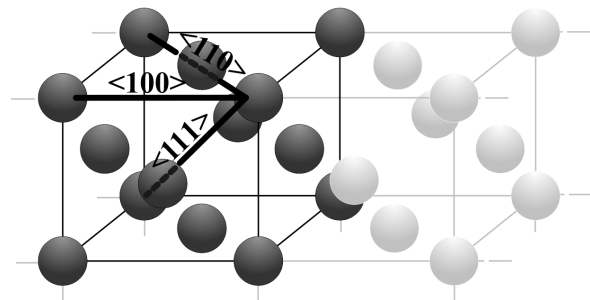
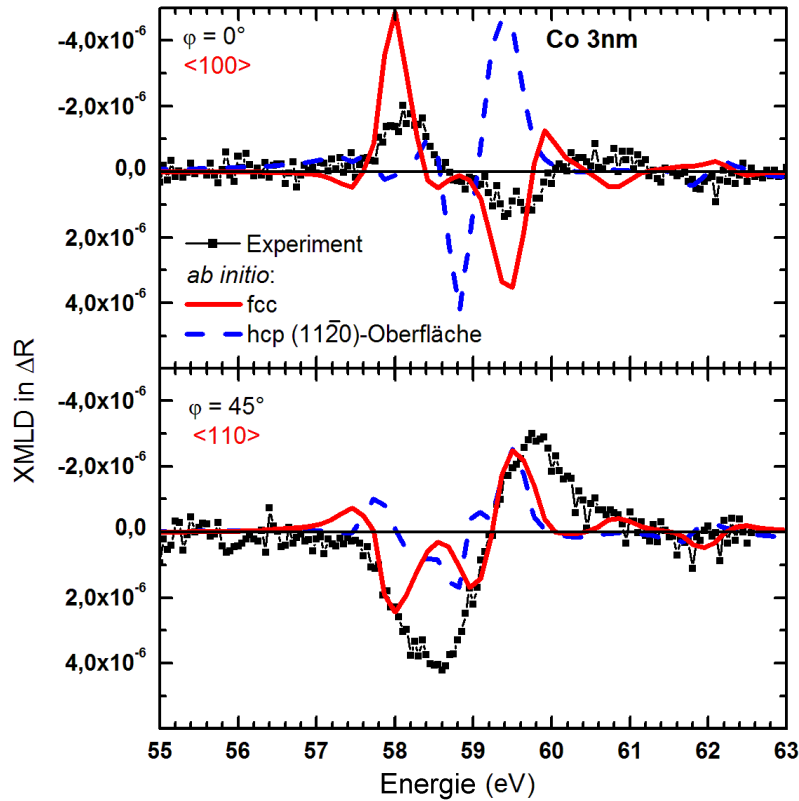


Abbildung 5.9: Struktur eines fcc-Kristalls.

In den Abbildungen 5.8 und 5.9 sind diese beiden Strukturen schematisch dargestellt. Da beide Strukturen in Frage kommen, wurden im Folgenden auch für beide Strukturen *ab initio* Rechnungen durchgeführt. Dazu wurden XMLD-Spektren für die beiden Kristallorientierungen  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  berechnet. Für die fcc-Struktur (Abb. 5.9) entspricht dies der  $\langle 100 \rangle$ - und  $\langle 111 \rangle$ -Richtung. Die Geometrie in der Zwillings-hcp-Struktur ist komplizierter, da sich zwei um  $90^\circ$  zueinander verdrehten Kristallorientierungen überlagern (vgl. Kap. 3.6.2). Hier sind die in Abb. 5.8 dargestellten Achsen  $[\bar{1}10]$ ,  $[001]$ ,  $[\bar{1}4\ 14\ 15]$  und  $[14\ \bar{1}4\ 15]$  von Interesse, wobei die Richtungen  $[\bar{1}4\ 14\ 15]$  und  $[14\ \bar{1}4\ 15]$  näherungsweise um  $45^\circ$  gegenüber den  $[\bar{1}10]$ - und  $[001]$ -Richtungen gedreht sind.

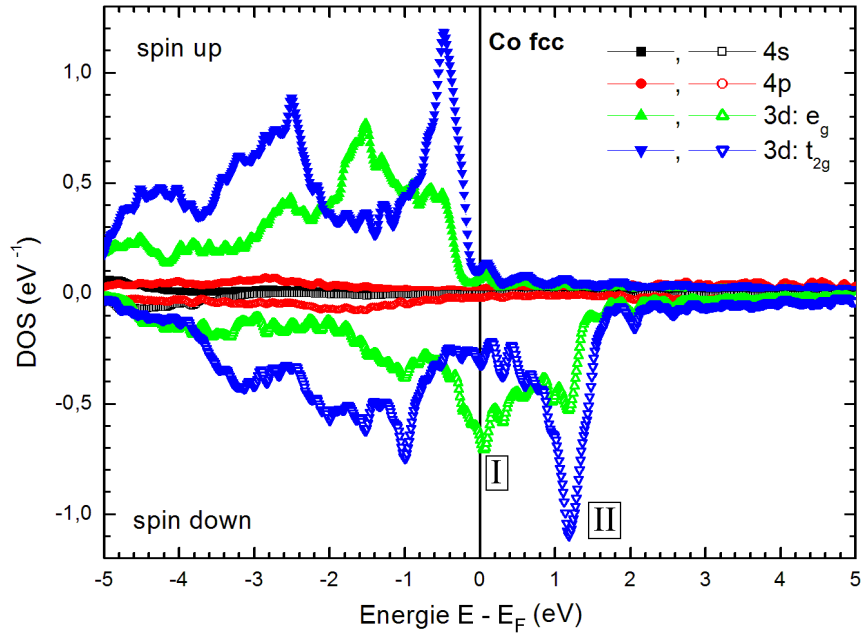
Zunächst wurden die XMLD-Spektren für die Ausrichtungen des E-Feldes parallel zu den Richtungen  $[\bar{1}10]$ ,  $[001]$ ,  $[\bar{1}\bar{4} 14 15]$ ,  $[14 \bar{1}\bar{4} 15]$  berechnet. Anschließend wurde der Mittelwert aus den Spektren für die beiden Richtungen  $[\bar{1}10]$  und  $[001]$ , sowie für die Richtungen  $[\bar{1}\bar{4} 14 15]$  und  $[14 \bar{1}\bar{4} 15]$  gebildet. Durch die Mittelwertbildung kann die Zwillings-hcp-Struktur in den *ab initio* Rechnungen abgebildet werden.



**Abbildung 5.10:** Vergleich von experimentellen und *ab initio* berechneten XMLD-Spektren an Co. (Details siehe Text).

Die Ergebnisse der *ab initio* Rechnungen für die fcc- und die zwillings-hcp-Kristallstruktur sind in Abb. 5.10 im direkten Vergleich mit dem Experiment dargestellt. Da es in diesem ersten Vergleich nur darum geht, den Verlauf der berechneten XMLD-Spektren für die beiden Kristallstrukturen zu identifizieren, wurde keine Linienverbreiterung in den Rechnungen berücksichtigt. Daher weisen die *ab initio* Spektren stark ausgeprägte Strukturen auf.

Der Vergleich der berechneten XMLD-Spektren für fcc Co (rote Linien) und hcp Co mit  $(11\bar{2}0)$ -Oberfläche (blaue gestrichelte Linien) zeigt, dass nur das Spektrum für den fcc-Kristall beim Wechsel von  $\varphi = 0^\circ$  nach  $\varphi = 45^\circ$  einen Vorzeichenwechsel in den XMLD-Strukturen erfährt. Im Spektrum für hcp Co mit  $(11\bar{2}0)$ -Oberfläche ändert sich zwar das Vorzeichen des vorgelagerten Peaks bei ca. 57,8 eV, die beiden Peaks bei 58,8 eV und 59,4 eV sind jedoch lediglich in ihrer Höhe verändert. Die Rechnung für einen fcc-Kristall beschreibt die experimentellen Ergebnisse also besser. Daher wurde für die nachfolgende detaillierte Betrachtung eine fcc-Struktur für die Rechnungen gewählt.

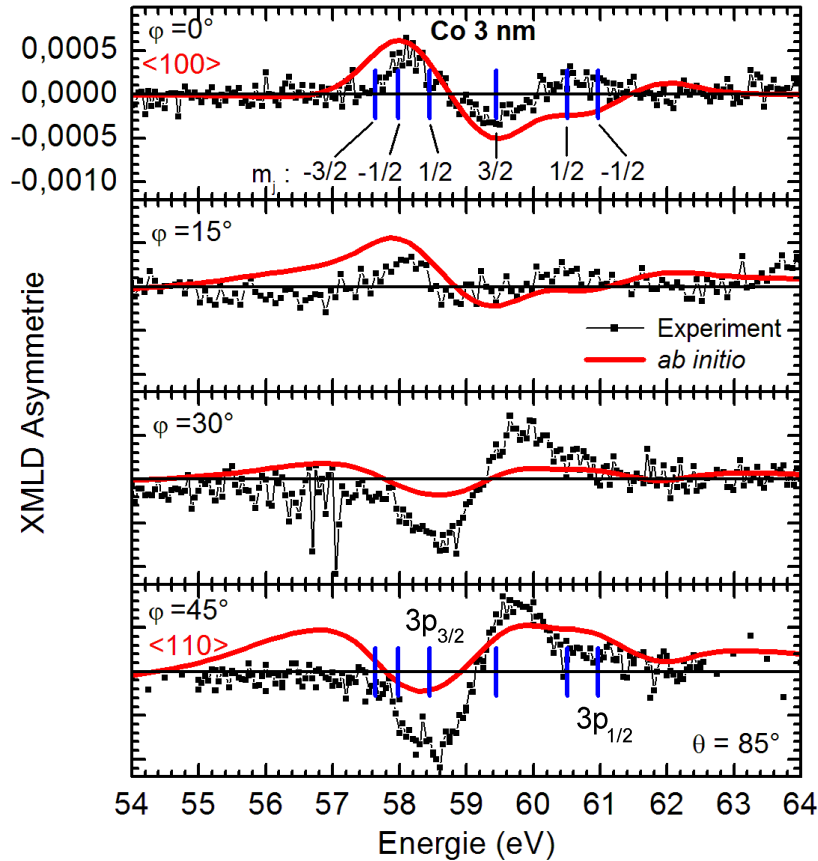


**Abbildung 5.11:** Berechnete Zustandsdichten im Leitungsband für Beiträge der 4s- und 4p-Zustände, sowie der 3d-Zustände mit  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Charakter für fcc Co [142].

Bevor nun der Vergleich von *ab initio* Rechnungen [142] und Experiment erfolgt, soll die Bandstruktur des Co betrachtet werden. Abbildung 5.11 zeigt die Zustandsdichte des Leitungsbandes aufgeteilt in Beiträge der  $s$ -,  $p$ -, und  $d$ -Zustände, berechnet für fcc Co. Die Austauschspaltung für *spin up* und *spin down* Elektronen beträgt etwa 1,7 eV. Im Folgenden werden nur die 3d-Zustände näher betrachtet. Diese sind in Abb. 5.11 aufgeteilt in Zustände mit  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Symmetrie. Ähnlich wie für die Fe-Bandstruktur, ist die Zustandsdichte der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände des Co 3d-Bandes ungleich verteilt. Während direkt an der Fermi-Kante die Zustandsdichte der  $e_g$ -Zustände höher ist (Markierung „I“ in Abb. 5.11), haben die  $t_{2g}$ -Zustände bei etwa 1,2 eV nach der Fermi-Kante ein Maximum in der Dichte (Markierung „II“ in Abb. 5.11).

Inwieweit daraus Rückschlüsse auf Strukturen der XMLD-Spektren gezogen werden können, wird später diskutiert. Zuvor sollen die *ab initio* berechneten Spektren mit den experimentellen Spektren verglichen werden. Abb. 5.12 zeigt die gemessenen und die berechneten XMLD-Spektren für  $\varphi = 0^\circ$ ,  $\varphi = 15^\circ$ ,  $\varphi = 30^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$ . In den Rechnungen wurde, wie für Fe, eine Linienverbreiterung von 2 eV angenommen, die Rauigkeit der Vakuum/Au-Grenzschicht betrug 3 nm. Für die nicht-resonante Absorption (siehe Kap. 2.4) wurden die empirisch ermittelten Parameter auf  $A = 0,4$  und  $E_0 = 40$  festgesetzt. Die Rechnungen reproduzieren die experimentellen Ergebnisse am Co zwar nicht so gut wie für die Fe-Proben, aber dennoch geben sie die Änderung der XMLD-Asymmetrie bezüglich der Orientierung von E-Feld und Kristallachsen weitestgehend korrekt wieder. Auch die Strukturen in den *ab initio* Spektren finden sich an den energetisch gleichen Positionen wie im Experiment.

Zusätzlich sind in Abb. 5.12 in den Spektren für  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  die berechneten Energien der Co 3p-Zustände (blaue vertikale Linien) samt Drehimpulsquantenzahl  $m_j$  dargestellt. Die berechnete Spin-Bahn-Aufspaltung der Zustände beträgt etwa 2,5 eV, die Austauschspaltung ca. 0,4 eV. Der  $3p_{3/2}$ -Zustand mit  $m_j = 3/2$  ist näher zu den  $3p_{1/2}$ -Zuständen hin

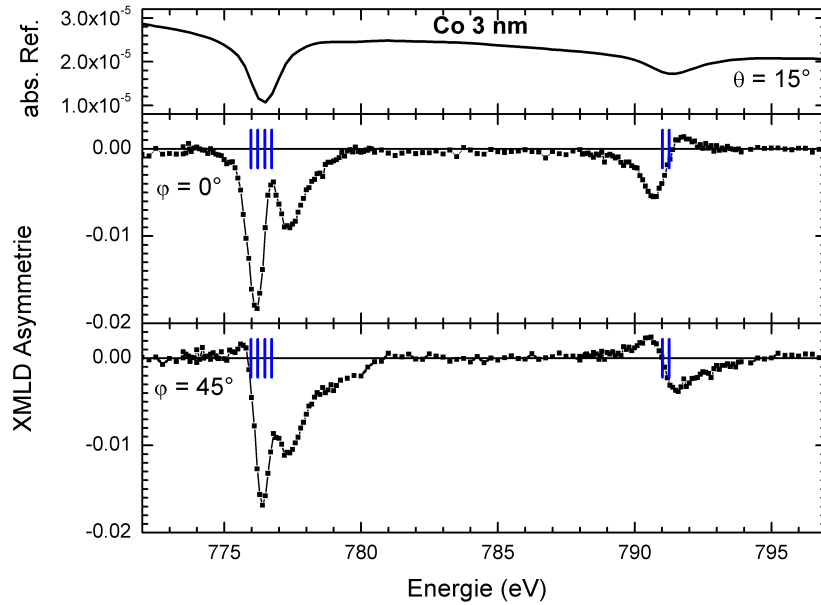


**Abbildung 5.12:** Vergleich von experimentellen und *ab initio* (fcc) berechneten XMLD-Spektren an Co. Im oberen und unteren Spektrum sind die Positionen der  $3p$ -Zustände markiert.

gerückt. Ein ähnliches Verhalten wurde schon für die  $3p$ -Zustände des Fe beobachtet. Die energetischen Positionen der einzelnen Rumpfniveaus liegen an den Positionen der Strukturen in den experimentellen und den berechneten Spektren. Auf den ersten Blick scheint also der erste Peak bei etwa 58,3 eV den ersten drei Rumpfniveaus und die zweite Struktur bei etwa 59,5 eV dem  $3p$ -Zustand mit  $m_j = 3/2$  zugeordnet werden zu können. Wie jedoch bereits in Kap. 4.6 erläutert wurde, ist ein Übergang aus dem Zustand mit  $m_j = 3/2$  in das Minoritätsband mit *spin down* nicht möglich, da dies die Auswahlregel  $\Delta s = 0$  verletzen würde. Die  $3p_{1/2}$ -Zustände können ebenfalls nicht zu dem Peak beitragen, da diese bei zu hohen Energien liegen. Auch ist der Abstand der beiden Strukturen im experimentellen Spektrum mit 1,2 eV zu groß, um mit der Austauschspaltung der Rumpfniveaus erklärt werden zu können. Eine Erklärung für die zweite Struktur muss also im Leitungsband zu finden sein. Bei Betrachtung der  $3d$ -Zustände (Abb. 5.11) fiel bereits auf, dass es zwei Bereiche mit erhöhter Zustandsdichte gibt, welche 1,2 eV auseinander liegen. Dies entspricht genau der energetischen Differenz der beiden Strukturen im experimentellen XMLD-Spektrum. Eine Erklärung für die Strukturen des Co XMLD-Spektrums lässt sich also in der Struktur des Leitungsbandes finden (Abb. 5.11). Eine ähnliche Zuordnung war schon für die Fe-Probe möglich, mit dem Unterschied, dass im Fe XMLD-Spektrum für die beiden Positionen im Leitungsband jeweils eine Doppelstruktur zu sehen war, während Co hier nur einen einfachen Peak zeigt.

Die obigen Überlegungen erklären zunächst nur die Positionen der Strukturen im XMLD-Spektrum. Um das Umklappen der Strukturen zu verstehen, muss die richtungsabhängige DOS betrachtet werden. Diese konnte im Rahmen dieser Arbeit aufgrund des hohen Aufwandes noch nicht berechnet werden, jedoch lässt sich auch anhand der gesamten Zustandsdichte eine mögliche Erklärung für das Umklappen der Strukturen finden:

Der XMLD ist proportional zur Änderung der Differenz der Zustandsdichte der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände (Gl. 2.44). In Abb. 5.11 ist zu erkennen, dass an den beiden markierten Positionen jeweils einer der beiden Zustände dominiert. Für die verschiedenen Kristallachsen sind die  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände in Gl. 2.44 unterschiedlich gewichtet. Daher ist zu erwarten, dass sich diese unterschiedliche Gewichtung an den beiden markierten Positionen im XMLD-Spektrum widerspiegelt. Dies ist in den experimentellen Spektren zu beobachten.



**Abbildung 5.13:** Spektren für die Co  $2p$ -Kanten und Positionen der berechneten  $2p$ -Zustände.

Abschließend werden nun die Messungen an den  $2p$ -Kanten betrachtet. Auf eine *ab initio* Berechnung der XMLD-Spektren an den  $2p$ -Kanten wurde an dieser Stelle verzichtet, da bereits an Fe gezeigt werden konnte, dass die Spektren klar von Interferenzeffekten dominiert werden. In Abb. 5.13 sind jedoch die berechneten Positionen der  $2p$ -Rumpfstufen in direktem Vergleich mit den experimentellen XMLD-Spektren gezeigt. Hier ist deutlich die Trennung zwischen den  $2p_{3/2}$ -Zuständen und den  $2p_{1/2}$ -Zuständen zu erkennen. Die Doppelstruktur kann eindeutig den  $2p_{1/2}$ -Zuständen zugeordnet werden, während die Strukturen zwischen 775 eV und 781 eV den  $2p_{3/2}$ -Zuständen zuzuordnen sind. Die berechnete Spin-Bahn-Aufspaltung von 14,85 eV stimmt gut mit dem experimentell ermittelten Wert von etwa 15 eV überein. Eine exakte Zuordnung der Zustände soll hier nicht durchgeführt werden, es fällt jedoch auf, dass die beiden Hauptpeaks an den  $2p_{3/2}$ -Kanten wie schon die Strukturen an den  $3p$ -Kanten ebenfalls etwa 1,2 eV auseinander liegen.

## 5.7 Zusammenfassende Diskussion

In diesem Kapitel wurden erstmals XMLD-Messungen an den  $3p$ -Kanten von kristallinem Co vorgestellt. Die Messungen konnten bestätigen, dass, wie auch für Fe, der Einfluss der kristallinen Anisotropie auf T-MOKE-Spektren an den  $3p$ -Kanten verschwindend gering ist, wohingegen der XMLD eine deutliche Abhängigkeit von der kristallinen Orientierung zeigt. Die maximalen Werte der XMLD-Asymmetrie an den  $3p$ -Kanten fallen mit nur 0,1% um etwa eine Größenordnung geringer aus als für Fe. Dies ist unter anderem auf die nur teilweise mit Co bedeckte Probenoberfläche zurückzuführen. Trotz dieser sehr geringen Werte konnten deutliche XMLD-Spektren gemessen werden. Dabei zeigen die Spektren an Co, verglichen mit Fe, eine etwas geringere Vielfalt an Strukturen. Der qualitative Verlauf der Co XMLD-Spektren konnte durch *ab initio* Rechnungen [142] gut nachgebildet werden. Die Kristallstruktur der Probe ist zwar nicht eindeutig geklärt, aber es konnte gezeigt werden, dass Rechnungen, in denen eine fcc-Struktur angenommen wurde, die beste Übereinstimmung mit dem Experiment gezeigt haben. Auch die Ergebnisse der T-MOKE-Messungen aus Kap. 5.2 deuten auf eine fcc-Struktur hin. Dennoch kann dies nur als Hinweis auf eine mögliche fcc-Struktur des Co gesehen werden, weswegen zukünftige Messungen an Proben mit eindeutig definierter Kristallstruktur erstrebenswert sind.

Auch an den  $2p$ -Kanten des Co konnten deutliche XMLD-Spektren beobachtet werden und es konnten die spektralen Strukturen zweifelsfrei den  $2p_{1/2}$ - und den  $2p_{3/2}$ -Zuständen des Co zugeordnet werden. Dabei wurde eine maximale XMLD-Asymmetrie von etwa 2% gemessen. Diese maximalen Werte sind mit Messungen an kristallinem Co von Schwickert et al. [146], Dhesi et al. [63] und Kuch et al. [148] vergleichbar, in diesen Arbeiten wurden jedoch keine Untersuchungen der spektralen Abhängigkeit des XMLD von der magnetokristallinen Anisotropie durchgeführt. Auch weisen die XMLD-Spektren in den genannten Arbeiten deutlich weniger Strukturen im spektralen Verlauf auf, verglichen mit den in dieser Arbeit gemessenen Spektren. Dies mag auf die kristalline Struktur der Proben zurückzuführen sein und bietet die Möglichkeit für zukünftige eingehendere Untersuchungen.

Aus den in dieser Arbeit erstmalig an den Co  $3p$ -Kanten gemessenen XMLD-Spektren können einige wichtige Eigenschaften und Anwendungsmöglichkeiten des XMLD aufgezeigt werden, wobei die beiden folgenden Schlüsse gezogen werden können:

- Es konnte gezeigt werden (Kap. 5.4), dass mittels XMLD auf die kristalline Qualität magnetischer Proben geschlossen werden kann. Dies erweitert die Möglichkeiten herkömmlicher XNLD-Spektroskopie, da mit XMLD-Spektroskopie auch Proben mit vierzähliger Kristallsymmetrie untersucht werden können.
- Die in Abb. 5.10 gezeigten Ergebnisse für fcc und hcp Co zeigen einen weiteren Aspekt des XMLD auf. Die *ab initio* Rechnungen haben gezeigt, dass sich die XMLD-Spektren unterschiedlicher Kristallstrukturen deutlich unterscheiden. Daher könnte XMLD-Reflexionsspektroskopie zur Bestimmung vergrabener kristalliner Strukturen dienen [149], was mit oberflächensensitiven Methoden, wie z.B. LEED, nicht möglich ist. Hierzu sind jedoch tiefere Untersuchungen an Proben mit gut definierter Kristallstruktur erforderlich.

Dies zeigt, dass neben der Anwendung des XMLD zur Erforschung des Zusammenhangs der kristallinen und elektronischen Struktur mit magnetischen Eigenschaften auch ein Anwendungsbezug in der Probencharakterisierung gegeben ist. Da die Reflexionsspektroskopie die

Möglichkeit bietet, mit einer Eindringtiefe von bis zu einigen 10 nm bis 100 nm auch vergrabene Schichten zu messen, sind elementselektive Untersuchungen der kristallinen Struktur von vergrabenen magnetischen Schichten und Multilayern möglich.

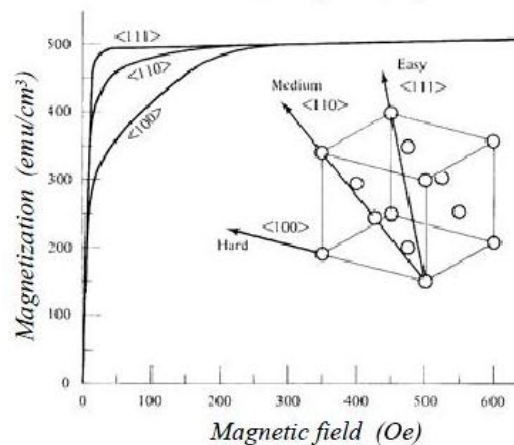


## 6 Nickel

Analog zu den Messungen an Fe wurden ebenfalls vier Ni-Proben mit den Schichtdicken 5 nm, 10 nm, 20 nm und 30 nm systematisch untersucht. Dennoch wird auch dieses Kapitel deutlich kürzer als das Fe-Kapitel gehalten, da die wesentlichen Prinzipien bereits am Fe erläutert wurden. Es werden hier erstmalig experimentelle XMLD-Spektren an reinen Ni-Schichten, sowohl an den  $3p$ -Kanten als auch an den  $2p$ -Kanten vorgestellt und anschließend mit *ab initio* Rechnungen verglichen.

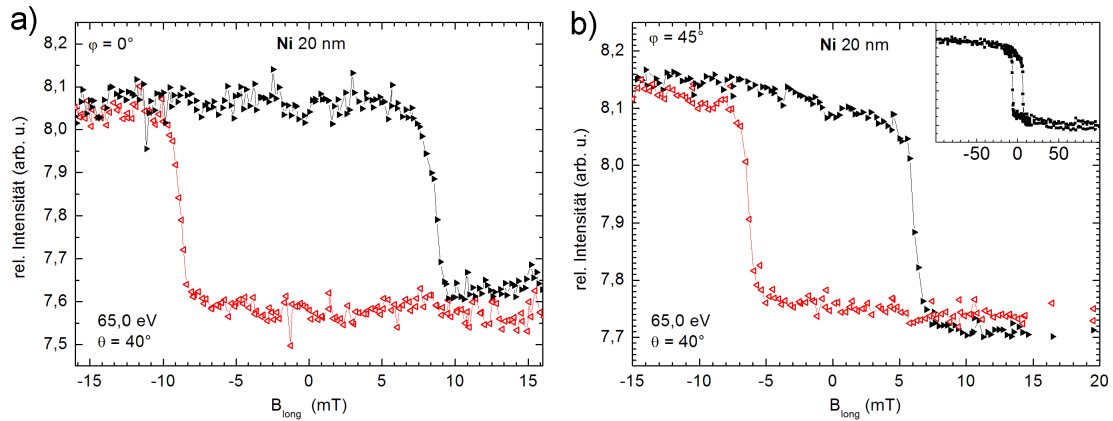
### 6.1 Magnetische Eigenschaften & Reflexionsvermögen

Vorweg werden die magnetischen Eigenschaften von Ni betrachtet. Ni in fcc-Struktur zeigt das in Abb. 6.1 dargestellte magnetische Verhalten bezüglich unterschiedlicher Orientierung eines äußeren Feldes zu den Kristallachsen. Im Gegensatz zu Fe liegt für einen ausgedehnten Ni-Kristall die magnetisch leichte Achse parallel der  $\langle 111 \rangle$ - und die magnetisch schwere Achse parallel der  $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Die magnetisch mittelschwere Achse liegt entlang der  $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Für dünne Ni-Schichten, wie sie hier untersucht werden, ändert sich das Magnetisierungsverhalten jedoch aufgrund des Einflusses der Formanisotropie (siehe Kap. 2.1.2), welche eine Magnetisierung parallel der Probenoberfläche bevorzugt.



**Abbildung 6.1:** Magnetisierungsverhalten von fcc Ni für die magnetisch leichte  $\langle 111 \rangle$ -, mittlere  $\langle 110 \rangle$ - und schwere  $\langle 100 \rangle$ - Achse nach J. Honda und S. Kaja [135].

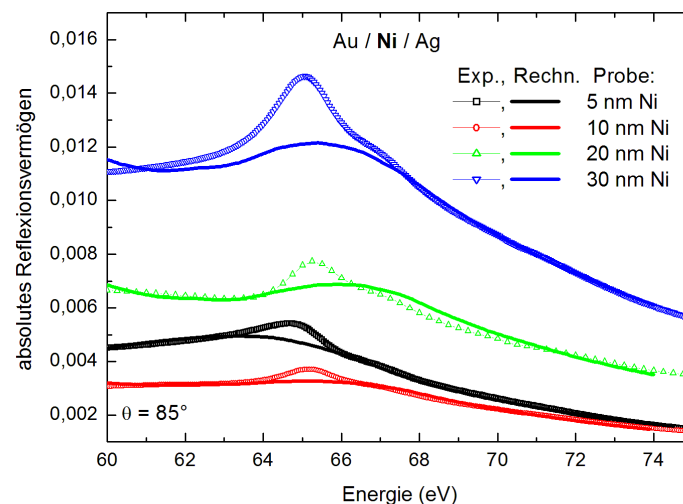
Zur Bestimmung der magnetischen Achsen wurden Hysteresemessungen unter Verwendung des XMCD (siehe Kap. 2.2.2) in Reflexion durchgeführt. Diese wurden am Dortmunder Synchrotron DELTA mit der XMAPS-Experimentierkammer [72] (Kap. 3.2) an der Beamline 12



**Abbildung 6.2:** Hysteresekurven der 20 nm Ni-Probe für a)  $\varphi = 0^\circ$  und b)  $\varphi = 45^\circ$ .

aufgenommen. Gemessen wurde das Reflexionsvermögen in Abhängigkeit des parallel zur Probenoberfläche und Einfallsebene angelegten externen Feldes. Abb. 6.2 zeigt die so gemessenen Hysteresekurven, wobei die Magnetisierung für  $\varphi = 0^\circ$  parallel zu den Probekanten und für  $\varphi = 45^\circ$  entlang der Probendiagonalen liegt.

Klar zu erkennen ist das unterschiedliche Magnetisierungsverhalten. Für eine Magnetisierung parallel der Probekanten (Abb. 6.2 a) ) folgt die Probenmagnetisierung dem äußeren Feld bei einer Koerzitivfeldstärke von 8 – 9 mT und geht beim Erreichen dieser sofort in Sättigung. Wird die Probe hingegen entlang der Flächendiagonalen magnetisiert (Abb. 6.2 b) ), zeigt die Probe eine Koerzitivfeldstärke von 6 – 7 mT, ist jedoch erst bei etwa 30 mT in Sättigung. Dies zeigt, dass die Probe für  $\varphi = 0^\circ$  entlang ihrer magnetisch leichteren Achse magnetisiert wird. Ein Vergleich mit Abb. 6.1 ergibt, dass der Ni Kristall also mit der  $\langle 110 \rangle$ -Achse parallel zu den Probekanten liegt, was auch die Überlegungen zum Kristallwachstum aus Kap. 3.6.3 bestätigt. Für die XMLD-Messungen an den Ni-Proben heißt das also, dass für einen Probenwinkel von  $\varphi = 0^\circ$  das E-Feld des Lichts und die Probenmagnetisierung parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Achse liegen und für einen Probenwinkel von  $\varphi = 45^\circ$  parallel zur  $\langle 100 \rangle$ -Achse ausgerichtet sind.

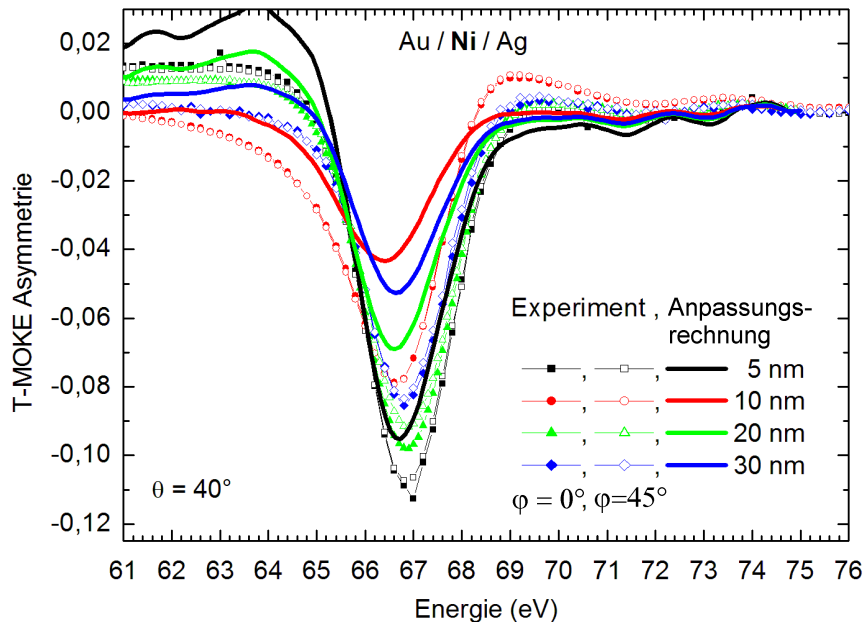


**Abbildung 6.3:** Gemessenes Reflexionsvermögen der Ni-Proben (Symbole) und Anpassungsrechnungen mit dem Programm ReMagX [86].

Bevor nun näher auf die magneto-optischen Effekte eingegangen wird, ist in Abb. 6.3 das absolute Reflexionsvermögen der Proben gezeigt. Dieses zeigt, wie erwartet, eine klare Abhängigkeit von der Ni-Schichtdicke. Die experimentellen Spektren (offene Symbole) können durch Anpassungsrechnungen (Linien) reproduziert werden. Die Ni-Strukturen bei etwa 65 eV und 67 eV sind in den Anpassungsrechnungen nicht so stark ausgeprägt wie im Experiment. Dies liegt möglicherweise an der Auflösung der für die Anpassungsrechnung verwendeten Datensätze [80], ist aber für die weiteren Überlegungen nicht von Bedeutung, da das Augenmerk dieser Arbeit auf der magnetokristallinen Anisotropie im XMLD liegt.

## 6.2 Anisotropie in T-MOKE

Zunächst wird wieder untersucht, ob die Kristallanisotropie einen messbaren Einfluss auf die T-MOKE-Spektren hat. In Abb. 6.4 sind die experimentellen T-MOKE-Spektren aller vier Proben jeweils für den Probenwinkel  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  dargestellt (Symbole). Die Höhe der maximalen T-MOKE-Asymmetrie ändert sich deutlich, ein linearer Trend bezüglich der Schichtdicke ist jedoch nicht zu erkennen. Die T-MOKE-Spektren können durch Anpassungsrechnungen mit dem Programm Yeh-MOKE [95] (Linien) sehr gut reproduziert werden. Dies ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass die Änderungen des T-MOKE primär auf optische Effekte, wie Interferenz zurückzuführen ist.

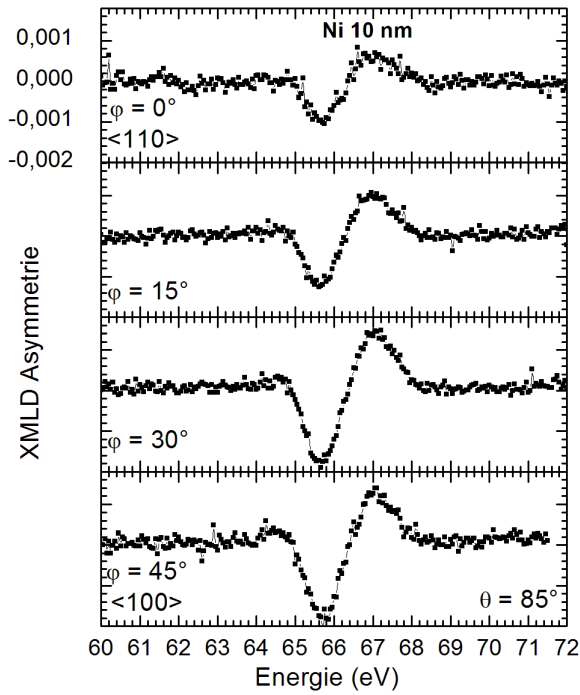


**Abbildung 6.4:** T-MOKE-Asymmetrie der Ni-Proben für die Probenwinkel  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  im Vergleich mit Anpassungsrechnungen [95].

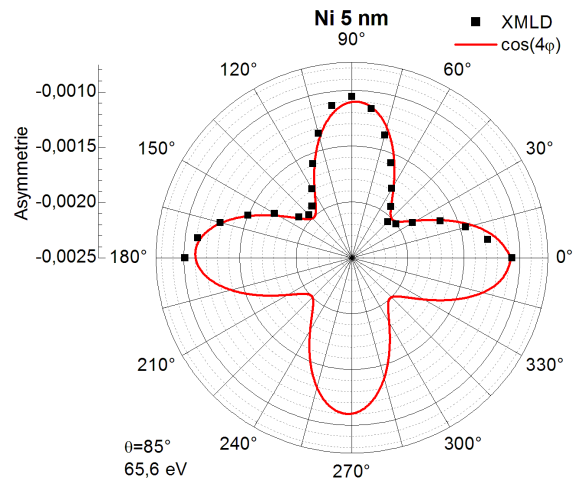
Genau wie für die an Fe und Co gemessenen T-MOKE-Spektren (vergleiche Abb. 4.8) ist keine klare spektrale Abhängigkeit des T-MOKE-Signals bezüglich der kristallinen Orientierung erkennbar. Es tritt lediglich eine kleine Änderung in der Höhe der Spektren auf. Diese Änderung zeigt keinen einheitlichen Trend bezüglich der Probenorientierung. Dies wurde bereits für Messungen an Fe beobachtet und lässt sich auf Interferenzeffekte, hervorgerufen durch Inhomogenitäten der Schichtdicken, zurückführen (siehe Kap. 4.2).

### 6.3 Anisotropie in XMLD an den 3p-Kanten

Im Folgenden werden die XMLD-Messungen betrachtet, welche wesentlich empfindlicher von der Probenorientierung abhängen. Die Messungen an den vier Ni-Proben wurden in der gleichen Geometrie wie die Messungen an Co und Fe durchgeführt, d.h. mit p-polarisiertem Licht bei  $\theta = 85^\circ$  Lichteinfall. Gemessen wurde an der Beamline U125-2-SGM2 [112] des Berliner Synchrotrons BESSY II mit dem BESSY-Polarimeter [119].



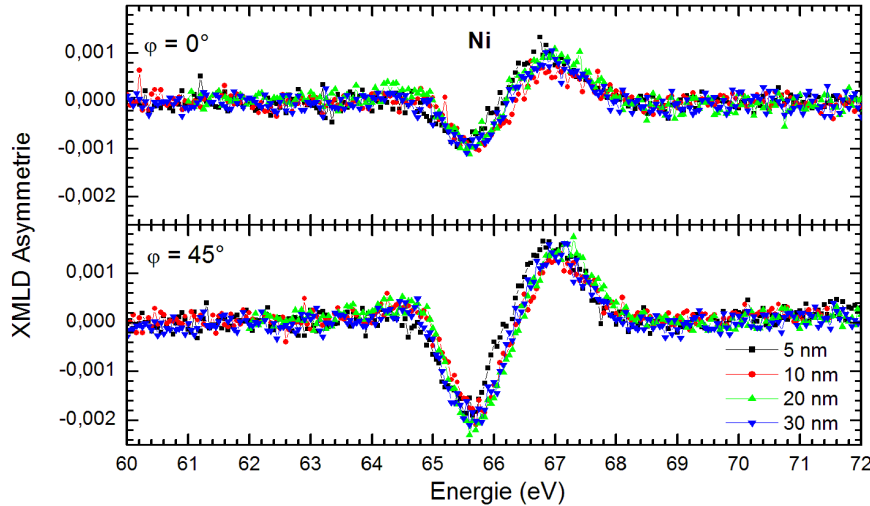
**Abbildung 6.5:** XMLD-Asymmetrie gemessen an der 10 nm Ni-Probe für  $\varphi = 0^\circ$ ,  $\varphi = 15^\circ$ ,  $\varphi = 30^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$ .



**Abbildung 6.6:** Polare Darstellung der XMLD-Asymmetrie der 5 nm Ni-Probe bei  $65,6 \text{ eV}$ .

In Abbildung 6.5 sind XMLD-Asymmetrie-Spektren für  $\varphi = 0^\circ$ ,  $\varphi = 15^\circ$ ,  $\varphi = 30^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  gezeigt. Gemessen wurden die Spektren an der 10 nm Probe. Es fällt sofort auf, dass sich der spektrale Verlauf nicht ändert, lediglich die Höhe der Asymmetrie variiert. Für alle vier Winkel zeigen die XMLD-Spektren eine Doppelstruktur mit einem Minimum bei etwa 65,6 eV und einem Maximum bei etwa 67 eV. Für  $\varphi = 45^\circ$  ist der Doppelstruktur ein weiteres schwach ausgeprägtes Maximum bei etwa 64,5 eV vorgelagert. Die maximalen Asymmetriewerte ändern sich von 0,1% für  $\varphi = 0^\circ$  auf etwa 0,2% für  $\varphi = 45^\circ$ . Der unveränderte spektrale Verlauf steht

im klaren Gegensatz zu den XMLD-Spektren der zuvor untersuchten Fe- und Co-Proben, bei denen ein Vorzeichenwechsel der Spektren beobachtet wurde. Anhand der Änderung der XMLD-Asymmetrie lässt sich dennoch eine klare Abhängigkeit vom Winkel zwischen E-Feld und den Kristallachsen feststellen. In Abb. 6.6 ist die Stärke der XMLD-Asymmetrie in Abhängigkeit des Kristallwinkels  $\varphi$  für die 5 nm Probe bei 65,6 eV gezeigt. Es ist eine deutliche vierzählige Symmetrie erkennbar, wie es für die Ni fcc-Struktur zu erwarten ist.



**Abbildung 6.7:** XMLD-Asymmetrie für  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  aller Ni-Proben im Vergleich.

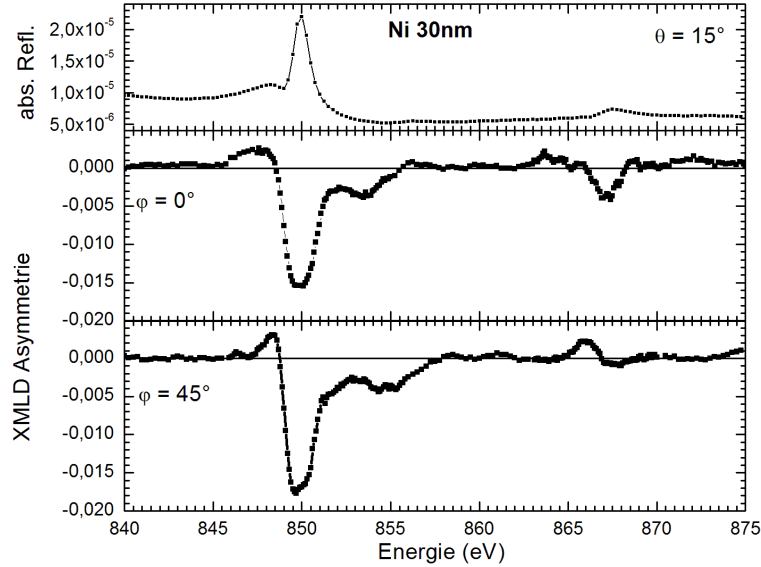
Es soll nun die Abhängigkeit der Schichtdicke auf die XMLD-Asymmetrie betrachtet werden. Die XMLD-Spektren aller vier Proben für die beiden Winkel  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$  sind in Abbildung 6.7 gezeigt. Auch hier ergibt sich eine Besonderheit: Die XMLD-Spektren aller vier Proben sind, innerhalb der Messgenauigkeit von  $\pm 0,02\%$ , identisch. Dies demonstriert eindrucksvoll, wie es auch schon für Fe beobachtet werden konnte, den geringen Einfluss von Interferenzeffekten auf das XMLD-Signal. Für die Ni XMLD-Spektren fällt der Einfluss sogar noch geringer aus als für die XMLD-Messungen an den Fe-Proben.

Da die XMLD-Spektren scheinbar von Interferenzeffekten unbeeinflusst sind, soll nun Anhand der Spektren der Einfluss von Rauigkeit auf den XMLD diskutiert werden. Die Rauigkeitswerte der einzelnen Proben sind in Kap. 3.6.4 aufgelistet. Die Probenrauigkeit reicht von  $\sigma_{rms} = 0,29$  nm für die 30 nm Ni-Probe bis hin zu  $\sigma_{rms} = 3,2$  nm für die 5 nm Ni-Probe. Trotz dieses Unterschieds von einer Größenordnung kann kein Einfluss der Rauigkeit in den XMLD-Spektren festgestellt werden. Dies ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass das XMLD-Signal hauptsächlich aus dem Volumen und nicht von den Grenzflächen stammt.

## 6.4 Anisotropie in XMLD an den 2p-Kanten

Zum Abschluss des experimentellen Teils sind im Folgenden erstmalig XMLD-Messungen an den 2p-Kanten von reinem Ni gezeigt. Auch hier wurde, wie für die Messungen an Fe und Co, s-polarisiertes Licht bei streifendem Einfall verwendet. Die Messungen sind an der Undulator-Beamline UE56-2 PGM2 [113] des BESSY durchgeführt worden. Für Fe und Co konnte bereits beobachtet werden, dass die Höhe der XMLD-Asymmetrie an den 2p-Kanten, verglichen mit

den  $3p$ -Kanten, um eine Größenordnung stärker ausfällt. Dies ist auch für Ni zu beobachten. Abb. 6.8 zeigt die XMLD-Spektren der Ni  $2p$ -Kanten für  $\varphi = 0^\circ$  (mitte) und  $\varphi = 45^\circ$  (unten), zusätzlich ist im oberen Teil der Abbildung das Reflexionsspektrum von Ni dargestellt. Deutlich zu erkennen sind die  $2p_{3/2}$ -Kante bei 850 eV und die  $2p_{1/2}$ -Kante bei 867,5 eV.



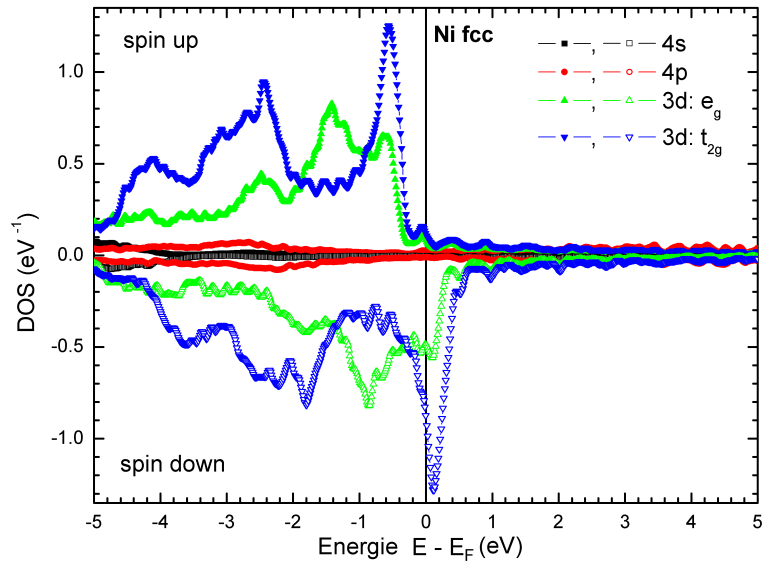
**Abbildung 6.8:** Reflexionsvermögen (oben) und XMLD-Asymmetrie für  $\varphi = 0^\circ$  (mitte) und  $\varphi = 45^\circ$  (unten) an den  $2p$ -Kanten, gemessen an der 30 nm Ni-Probe.

Für den spektralen Verlauf des XMLD zeigt sich das bekannte Bild, welches schon für Fe und Co beobachtet werden konnte: Das XMLD-Signal an der  $2p_{3/2}$ -Kante ändert sich kaum bei einer Drehung des Kristalls von  $\varphi = 0^\circ$  nach  $\varphi = 45^\circ$ . Lediglich die Höhe des Hauptpeaks sowie die diesem vor- und nachgelagerten Strukturen ändern sich leicht. Die deutlichste Änderung des XMLD-Spektrums findet an der  $2p_{1/2}$ -Kante statt, an dieser ändert sich das Vorzeichen der XMLD-Struktur. In Kapitel 7 findet ein ausführlicherer Vergleich der XMLD-Messungen an den  $2p$ -Kanten statt. Bevor dieses Kapitel abgeschlossen wird, werden nun die für Ni durchgeführten *ab initio* Rechnungen betrachtet.

## 6.5 Vergleich mit *ab initio* Rechnungen

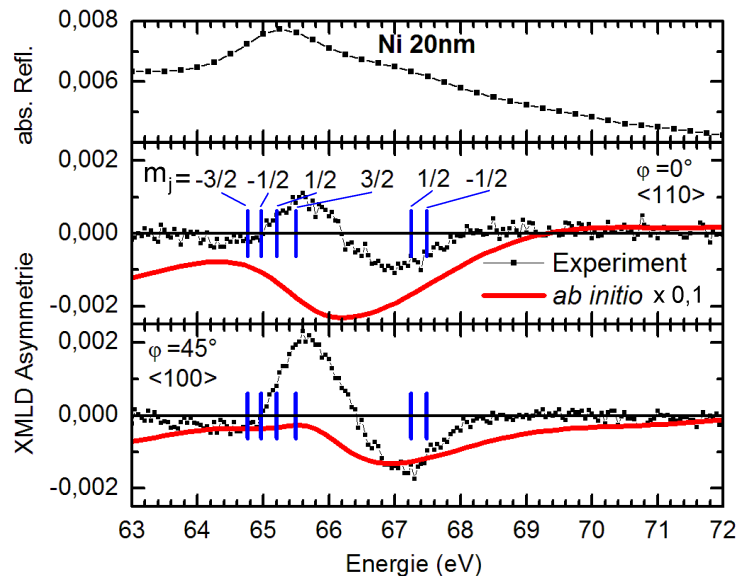
Die elektronische Struktur von Ni und die sich daraus ergebenden XMLD-Spektren wurden ebenfalls mit den in Kap. 2.4 beschriebenen Methoden berechnet [142]. Zunächst soll wieder die Zustandsdichte der unbesetzten Zustände im Leitungsband betrachtet werden, diese ist in Abb. 6.9 dargestellt. Die Zustandsdichte ist aufgeteilt in  $4s$ -,  $4p$ - und  $3d$ -Zustände, wobei die  $3d$ -Zustände in  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände unterteilt sind. Ein deutlicher Unterschied zu Fe und Co ist die sehr stark auf einen schmalen Bereich an der Fermi-Kante konzentrierte Zustandsdichte der unbesetzten Zustände. Dies führt zu den in Kap. 2.4 genannten Problemen für den hier verwendeten Ein-Elektronen-Ansatz.

Trotz dieses Defizits in dem angewendeten Modell wurden die XMLD-Spektren berechnet [142] und sollen im Folgenden diskutiert werden. In Abb. 6.10 sind die berechneten XMLD-Spektren



**Abbildung 6.9:** Berechnete Zustandsdichte des Leitungsbandes aufgeteilt in Beiträge der 4s- und 4p-Zustände sowie der 3d-Zustände mit  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Charakter für fcc Ni [142].

im Vergleich mit den experimentellen Spektren für die 20 nm Ni-Probe für  $\varphi = 0^\circ$  (mitte) und  $\varphi = 45^\circ$  (unten) gezeigt. Im oberen Teil der Abbildung ist das Reflexionsvermögen dargestellt. Es fällt sofort auf, dass die *ab initio* Rechnung die Ni XMLD-Spektren nur unzureichend reproduziert. Auch sind die *ab initio* berechneten Asymmetriewerte des XMLD um einen Faktor 10 zu groß, weshalb diese in Abb. 6.10 entsprechend verkleinert dargestellt wurden. Trotz dieser Abweichungen vom spektralen Verlauf der experimentellen Spektren zeigen die berechneten XMLD-Spektren, ähnlich dem Experiment, ebenfalls nur eine geringe Änderung des spektralen Verlaufs bei Drehung der Probe von  $\varphi = 0^\circ$  nach  $\varphi = 45^\circ$ .



**Abbildung 6.10:** Experimentelles Reflexionsvermögen und XMLD-Spektren im Vergleich mit *ab initio* Rechnungen [142]. (Details siehe Text)

Um dennoch einen Zusammenhang zwischen der elektronischen Struktur und den experimentellen Spektren herstellen zu können, sind die Positionen der Ni  $3p$ -Zustände in Abb. 6.10 eingetragen (blaue senkrechte Linien). Genau wie für Fe und Co finden sich die spektralen Strukturen sowohl im Reflexionsspektrum als auch in den XMLD-Spektren in etwa an den Positionen der Rumpfstufen wieder. Bei näherer Betrachtung ist jedoch keine klare Zuordnung der Strukturen im XMLD-Spektrum zu den  $p \rightarrow d$  Übergängen möglich. Die Doppelstruktur des experimentellen XMLD-Spektrums ist um etwa 1,3 eV getrennt, doch weder die Spin-Bahn-Aufspaltung der Rumpfstufen mit etwa 2,1 eV noch deren Austauschaufspaltung von etwa 0,25 eV zeigen eine solche energetische Differenz. Auch eine Betrachtung der  $3d$ -Zustandsdichte zeigt keine Strukturen, welche diese Doppelstruktur erklären können. Dies gibt Anlass zu der Überlegung ein anderes Modell zur Berechnung der Bandstruktur zu wählen, was jedoch nicht mehr Teil dieser Arbeit sein soll.

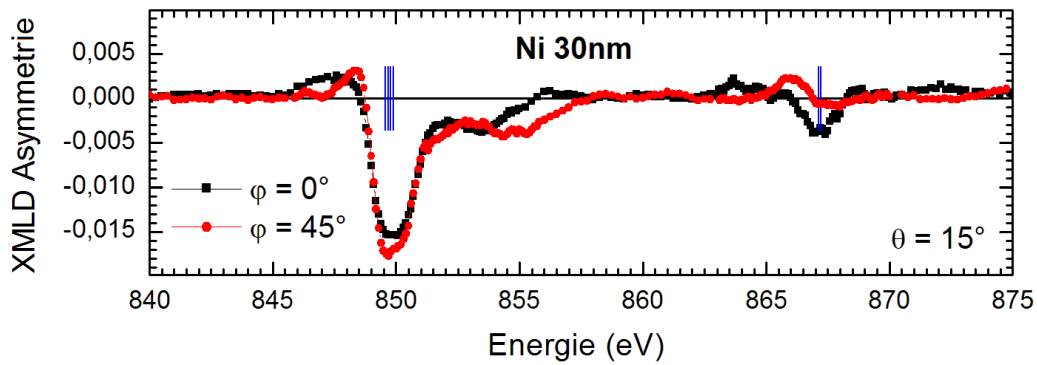


Abbildung 6.11: XMLD-Spektren an den Ni  $2p$ -Kanten und Positionen der  $2p$ -Zustände.

Abschließend sollen nun noch die XMLD-Spektren an den  $2p$ -Kanten von Ni betrachtet werden. In Abb. 6.11 sind die Positionen der Ni  $2p$ -Rumpfstufen im Vergleich mit den XMLD-Spektren gezeigt. Die Strukturen im XMLD-Spektrum bei 850 eV und die Strukturen bei etwa 867,5 eV können erwartungsgemäß den Spin-Bahn-aufgespaltenen  $2p_{3/2}$ - und  $2p_{1/2}$ -Zuständen zugeordnet werden. Der berechnete Wert der Spin-Bahn-Aufspaltung von  $\Delta_{SO} = 17,4$  eV stimmt mit dem experimentellen Wert von  $\Delta_{SO} \approx 17,25$  eV überein. Eine Zuordnung der Strukturen zur berechneten Austauschaufspaltung von  $\Delta_{ex} \approx 100$  meV, wie es für Fe gemacht werden konnte, ist hier jedoch nicht möglich. Es fällt zudem auf, dass die Änderung der XMLD-Spektren bei Drehung der Probe von  $\varphi = 0^\circ$  nach  $\varphi = 45^\circ$  noch geringer ausfällt als für Fe oder Co. Eine mögliche Erklärung wird in Kap. 7 diskutiert. Zuvor sollen aber die Erkenntnisse, welche an den Ni-Proben gewonnen werden konnten, im folgenden Abschnitt zusammengefasst werden.

## 6.6 Zusammenfassende Diskussion

In diesem Kapitel wurden erstmals XMLD-Messungen für reines Nickel vorgestellt, sowie der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf diese. Zudem wurde der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den technisch einfacher durchzuführenden T-MOKE untersucht. Wie sich auch schon für Fe gezeigt hat, ist T-MOKE an den  $3p$ -Kanten nahezu unbeeinflusst von der kristallinen Orientierung. Die XMLD-Spektren hingegen weisen eine deutliche Abhängigkeit von der Probenorientierung und der damit zusammenhängenden Orientierung zwischen



E-Feld, Probenmagnetisierung und Kristallachsen auf. Die maximal erreichten Asymmetriewerte sind mit 0,2% an den  $3p$ -Kanten und 1,8% an den  $2p$ -Kanten deutlich geringer als für Fe. Es hat sich zudem herausgestellt, dass der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf das XMLD-Signal wesentlich geringer ausfällt als für Fe und Co. An den Ni  $3p$ -Kanten ist dieser zwar zweifelsfrei festzustellen, ein Umklappen der XMLD-Spektren beim Wechsel der Kristallorientierung von einer magnetischen Achse zu einer anderen findet jedoch nicht statt. Auch für die  $2p$ -Kanten fällt der Einfluss der Kristallorientierung auf den XMLD deutlich schwächer aus als für Co oder Fe.

Ein ähnliches Verhalten, wonach sich das XMLD-Spektrum für die verschiedenen magnetischen Achsen lediglich in der Stärke ändert, ist in theoretischen Berechnungen von Kuneš und Oppeneer [65] für die Ni  $2p$ -Kanten zu finden. Demnach erfährt der XMLD für verschiedene Kristallorientierungen nur eine Änderung in der Höhe, wenn in den Rechnungen die Austauschspaltung der Rumpfstände vernachlässigt wird. Für die Ni  $2p_{1/2}$ -Zustände konnte in den experimentellen Spektren zwar ein Vorzeichenwechsel beobachtet werden, dies kann aber ein Hinweis darauf sein, dass für Ni die Austauschspaltung der Rumpfstände eine geringere Rolle für den Röntgenlineardichroismus spielt als für Fe und Co. Eine nähere Betrachtung dieses Zusammenhangs übersteigt jedoch den Umfang dieser Arbeit. Über die Unterschiede der XMLD-Spektren an Fe, Co und Ni findet im anschließenden Kapitel eine ausführlichere Diskussion statt. Für die experimentellen Spektren für reines Ni gibt es keine Vergleichsdaten in der Literatur, jedoch konnten Arenholz et al. [13] an den  $2p$ -Kanten von  $\text{Ni}^{2+}$  in  $\text{FeNi}_2\text{O}_4$  und  $\text{NiO}$  einen deutlich stärkeren Einfluss der kristallinen Anisotropie auf den Röntgenlineardichroismus mit Asymmetriewerten bis 5% messen. Diese Messungen können jedoch aufgrund der veränderten elektronischen Struktur nicht direkt mit den Messungen dieser Arbeit verglichen werden.

Ein weiterer Unterschied der Messungen an Ni, verglichen mit Fe, ist der Einfluss von Interferenzeffekten. Diese fallen in den XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten für Ni noch einmal deutlich geringer aus als für Fe. Während die T-MOKE-Spektren sich interferenzbedingt für variierende Schichtdicke ändern, zeigt der XMLD bei senkrechtem Einfall keine messbare Beeinflussung durch die Schichtdicke. Ähnlich verhält es sich mit der Rauigkeit der Proben. Selbst die Änderung der Rauigkeit um eine Größenordnung hat keinen Einfluss auf die gemessenen XMLD-Signale, ein Zeichen dafür, dass die hier gemessenen Signale aus dem Volumen der Probe stammen. Die Unempfindlichkeit gegenüber Interferenzeffekten und Rauigkeit zeigt deutlich, dass XMLD-Messungen bei senkrechtem Einfall an den  $3p$ -Kanten sehr stabil bezüglich Unregelmäßigkeiten der Proben sind.

Ein Vergleich der experimentellen XMLD-Spektren mit *ab initio* Rechnungen zeigt deutlich, dass das vereinfachte Ein-Elektronen-Modell, welches für Fe und Co gute Ergebnisse liefert, bei Ni an seine Grenzen stößt. Dies liegt an Korrelationseffekten in der elektronischen Struktur, welche für Ni deutlich stärker als für Fe oder Co ausfallen. Sowohl die Spektren selbst als auch der Trend beim Wechsel von der  $\langle 110 \rangle$ - zur  $\langle 100 \rangle$ -Richtung sind nicht reproduzierbar. Dies ist jedoch nicht weiter verwunderlich, da Probleme bei der Berechnung der Bandstruktur von Ni mittels LSDA bekannt sind [150]. Für Ni sind daher weiterführende Rechnungen nötig, für die beispielsweise der GGA-Ansatz gewählt werden könnte. Dies soll jedoch nicht mehr Teil dieser Arbeit sein.



## 7 Vergleich von Fe, Co und Ni

In diesem Kapitel sollen die Ergebnisse der experimentellen Messungen und der *ab initio* Rechnungen an Fe, Co und Ni verglichen werden, beginnend mit den experimentellen Unterschieden. Der Fokus wird dabei auf Fe und Ni liegen, da für Co nur eine Probe mit nicht sicher bekannter Kristallstruktur untersucht wurde.

	Fe		Ni	
$\mu$ ( $\mu_B/Atom$ )	2,216		0,616	
$K_1$ ( $\times 10^4 \frac{J}{m^3}$ )	4,2		-0,57	
	$\varphi = 0^\circ \langle 100 \rangle$	$\varphi = 45^\circ \langle 110 \rangle$	$\varphi = 0^\circ \langle 110 \rangle$	$\varphi = 45^\circ \langle 100 \rangle$
XMLD <sub>max</sub> (3p)	0,4%	-0,7%	-0,1%	-0,2%
XMLD <sub>max</sub> (2p)	-5%	-8%	-1,5%	-1,7%
T-MOKE <sub>max</sub> (3p)	-12%		-8,5%	

**Tabelle 7.1:** Magnetisches Moment [30], Anisotropie-Konstante [34] und Maximalwerte der magneto-optischen Asymmetrie für Fe und Ni.

In Tabelle 7.1 sind die experimentell ermittelten maximalen Werte der XMLD- und T-MOKE-Asymmetrie für Fe und Ni im Vergleich mit dem atomaren magnetischen Moment  $\mu$ , sowie der Anisotropiekonstante  $K_1$  gezeigt. Dabei wurden für die 3p-Kanten jeweils die Asymmetriewerte für die 30 nm Proben genommen, um mögliche Einflüsse von Interferenz zu reduzieren. Die Werte für die XMLD-Asymmetrie sind aufgeteilt in die Winkel  $\varphi = 0^\circ$  und  $\varphi = 45^\circ$ , wobei  $\varphi = 0^\circ$  für beide Proben die magnetisch leichtere Achse ist. Für Fe wurde die XMLD-Asymmetrie bei 53,5 eV genommen und für Ni bei 65,5 eV.

Zunächst sollen die 3p-Kanten betrachtet werden. Die magneto-optischen Effekte fallen für Fe, wie erwartet, deutlich stärker aus. Zudem ist für Fe ein Vorzeichenwechsel des spektralen Verlaufs zu beobachten, worauf weiter unten eingegangen wird. Auch an den 2p-Kanten fällt die XMLD-Asymmetrie für Fe ebenfalls deutlich stärker aus als für Ni, dabei zeigt Fe sowohl an den 3p- als auch an den 2p-Kanten eine um etwa einen Faktor 4 höhere Asymmetrie. Dies passt zu dem um den Faktor 4 stärkeren magnetischen Moment des Fe. Um einen eindeutigen Zusammenhang zwischen magnetischem Moment, Anisotropiekonstanten und der Stärke der XMLD-Asymmetrie herstellen zu können, sind jedoch umfangreichere Messungen nötig, welche es direkt erlauben, z.B. über Elementverbindungen das magnetische Moment zu variieren oder die magnetokristallinen Anisotropiekonstanten zu beeinflussen, wie sie z.B. von Dhesi et al. [63] durchgeführt wurden. An den hier durchgeführten Messungen ist jedoch zu beobachten, dass die XMLD-Asymmetrie sowohl für Fe als auch für Ni für die magnetisch schwerere Achse deutlich stärker ausfällt, als für die magnetisch leichtere Achse.

An den 3p-Kanten zeigt sich eine weitere Besonderheit des XMLD. Die Spektren für Fe, Co und Ni unterscheiden sich deutlich voneinander und zeigen einen komplexeren spektralen Verlauf, als beispielsweise die T-MOKE-Spektren. Zudem konnte an den 3p-Kanten keine signifikante

Beeinflussung der XMLD-Spektren durch Interferenz oder Probenrauigkeit festgestellt werden. Die somit gut definierten Spektren ermöglichen einen Vergleich mit der *ab initio* berechneten Bandstruktur und somit eine Interpretation der zugrundeliegenden Physik. Für Fe konnte so direkt der Zusammenhang zwischen Austauschaufspaltung und den Strukturen in den XMLD-Spektren aufgezeigt werden. Der Abstand der Strukturen in den XMLD-Spektren an den Fe  $3p$ -Kanten stimmt mit der berechneten Austauschaufspaltung der Rumpfstände überein. Auch zeigen sich in den XMLD-Spektren des Fe markante Strukturen der  $3d$ -Zustandsdichte. Für Co haben sich die XMLD-Spektren weniger stark ausgeprägt gezeigt. Zudem war aufgrund der nicht vollständig bedeckten Probenoberfläche das Signal-zu-Rausch-Verhältnis schlechter als bei den Messungen an Fe. Dies erschwert es energetisch gut aufgelöste Strukturen zu finden und deren energetischen Abstand direkt mit der Austausch- oder der Spin-Bahn-Aufspaltung der Rumpfstände in Verbindung bringen zu können, wie es für Fe gemacht wurde. Dennoch konnten sich in den Spektren Strukturen finden, welche den gleichen energetischen Abstand haben wie markante Punkte hoher Zustandsdichte im Leitungsband.

Für die Ni  $3p$ -Kante stellt sich die Lage wiederum anders dar. Hier findet, im Gegensatz zu Fe und Co, beim Wechsel der Orientierung des E-Feldes zwischen den magnetischen Achsen des Kristalls kein Vorzeichenwechsel der Spektren statt. Eine mögliche Erklärung für dieses abweichende Verhalten soll im Folgenden gegeben werden. Hierzu sollen zuerst die  $3p$ -Zustände betrachtet werden: Die Ni  $3p$ -Zustände unterscheiden sich von Fe und Co aufgrund der deutlichen Unterteilung in  $3p_{1/2}$ - und  $3p_{3/2}$ -Zustände. Für Fe und Co ist die Austauschaufspaltung für jeweils einen der  $3p_{3/2}$ -Zustände auffallend groß. Dies kann jedoch das abweichende Verhalten der XMLD-Spektren für Ni nicht erklären. Es muss daher auch ein Blick auf die Zustandsdichte des Leitungsbandes geworfen werden. Hier ist zu erkennen, worin der deutlichste Unterschied zwischen Fe, Co und Ni besteht (siehe Abb. 4.23, 5.11 und 6.9). Die Austauschaufspaltung des Leitungsbandes für Ni ist gering, was dazu führt, dass die unbesetzten Zustände auf einen energetisch sehr schmalen Bereich nahe der Fermi-Kante konzentriert sind. Sowohl die  $e_g$ - als auch die  $t_{2g}$ -Zustände sind für Ni auf diesen Bereich beschränkt und unterscheiden sich in ihrem energetischen Verlauf kaum voneinander. Für Fe und Co hingegen ist die Zustandsdichte der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände auf zwei Bereiche mit jeweils hoher Zustandsdichte aufgeteilt. In diesen beiden Bereichen sind die unbesetzten Zustände jeweils einmal vorwiegend  $e_g$ - und einmal vorwiegend  $t_{2g}$ -Zustände. Gleichung 2.44 zeigt, dass das XMLD-Signal von der Änderung der Differenz der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände abhängt. Für die verschiedenen Kristallachsen sind diese, bedingt durch die Vorfaktoren  $\alpha$  und  $\beta$ , unterschiedlich gewichtet. Zudem ist die Differenzbildung der  $e_g$ - und  $t_{2g}$ -Zustände für Fe und Co in den beiden zuvor genannten Bereichen gegenläufig. Für Ni hingegen gibt es nur einen eng begrenzten Bereich, in dem sich sowohl die  $e_g$ - als auch die  $t_{2g}$ -Zustände konzentrieren. Daher ist für Fe und Co ein komplexeres Verhalten in den XMLD-Spektren als für Ni zu erwarten. Für ein tiefergehendes Verständnis ist eine exakte Zuordnung der einzelnen Übergänge unter Berücksichtigung der Übergangsmatrixelemente notwendig. Dies liegt jedoch außerhalb des Umfangs dieser Arbeit, deren Schwerpunkt unter anderem auf dem erstmaligen Nachweis der magnetokristallinen Anisotropie des XMLD an den  $3p$ -Kanten der Übergangsmetalle und der Entwicklung eines geeigneten experimentellen Aufbaus lag.

Auf den in dieser Arbeit durchgeführten magneto-optischen Experimenten an den  $3p$ -Kanten von Fe, Co und Ni können zukünftige Arbeiten aufbauen, um den magnetischen Röntgenlineardichroismus noch eingehender zu untersuchen. Zudem können sich Eigenschaften, wie z.B. die starke elektronische Korrelation von Ni, zu Nutze gemacht werden, um weitere theoretische Modelle auf ihre Anwendbarkeit zu prüfen. In dieser Arbeit konnte bereits gezeigt

werden, dass mit dem in Kap. 4.6 an Fe angewendeten einfachen Modell die XMLD-Spektren qualitativ gut erklärt werden können und sich die Austauschspaltung der Rumpfstände in den XMLD-Spektren wiederfinden lässt. Eine Anwendung dieses Modells auf Co und Ni und eine quantitative Betrachtung der Spektren in zukünftigen Arbeiten kann Grundlage für ein noch detaillierteres Verständnis der quadratischen magneto-optischen Effekte, wie XMLD, sein. Hierzu ist es aber unter anderem notwendig die auf die Kristallrichtungen projizierte Zustandsdichte genau zu kennen. Auch müssen die möglichen Übergänge und die entsprechenden Übergangsmatrixelemente im Detail betrachtet werden.

An den  $2p$ -Kanten konnten die *ab initio* Rechnungen die XMLD-Spektren aufgrund starker Interferenzeffekte zwar nur unzureichend reproduzieren, dennoch kann anhand der experimentellen Ergebnisse eine Interpretation der zugrundeliegenden Physik erfolgen. Wie bereits erwähnt wurde, fällt für die  $2p$ -Kanten auf, dass die XMLD-Asymmetrie im Gegensatz zu den theoretischen Berechnungen an der  $2p_{3/2}$ -Kante weder für Fe noch für Co und Ni das Vorzeichen wechselt, lediglich die Höhe der Asymmetrie ändert sich. An der  $2p_{1/2}$ -Kante findet jedoch ein Umklappen des spektralen Verlaufs statt (siehe Abbildungen 4.20, 5.7 und 6.8). Dies zeigt, dass das hier verwendete theoretische Modell weiter optimiert werden muss. Es sollen an dieser Stelle einige Überlegungen angestellt werden, um das Verhalten des XMLD an den  $2p$ -Kanten zu erklären, wie bereits in Kapitel 4.6 erwähnt, kann ein ungewollter Einfluss von linearen magneto-optischen Effekten aufgrund der Mittelwertbildung für jeweils zwei entgegengesetzte Probenmagnetisierungen (siehe Gl. 2.40a und 2.40b) ausgeschlossen werden. Auch eine schlechte kristalline Qualität der Probe kommt nicht in Frage, da ansonsten auch an der  $2p_{1/2}$ -Kante ein ähnliches Verhalten zu erwarten wäre. Ebenfalls scheidet eine Oxidation der Probe aus, da für Oxide bereits gezeigt wurde, dass diese eine sehr deutliche kristalline Anisotropie sowohl an der  $2p_{1/2}$ - als auch an der  $2p_{3/2}$ -Kante aufweisen [12; 13; 14]. Eine Erklärung muss also in der elektronischen Struktur gesucht werden. Hierfür müssen sowohl die Leitungsbandzustände als auch die Rumpfstände betrachtet werden. An der  $2p_{3/2}$ -Kante sind aus den insgesamt vier Rumpfständen deutlich mehr Übergänge möglich als aus den zwei Rumpfständen der  $2p_{1/2}$ -Kante. Dies führt zu einem komplexeren spektralen Verlauf an der  $2p_{3/2}$ -Kante, was für alle drei Elemente beobachtet wird. An der  $2p_{1/2}$ -Kante gibt es nur Rumpfstände mit  $m_j = +1/2$  und  $m_j = -1/2$  und daher weniger mögliche Übergänge in das Leitungsband. Das unterschiedliche Verhalten des XMLD an der  $2p_{3/2}$ - und der  $2p_{1/2}$ -Kante ist daher möglicherweise in den Leitungsbandzuständen mit  $m_j = \pm 5/2$  zu finden. In diese Leitungsbandzustände können nur Elektronen aus Rumpfständen mit  $m_j = \pm 3/2$  angeregt werden, welche nur an der  $2p_{3/2}$ -Kante existieren. Dies erklärt jedoch nicht, warum dieses Verhalten nur an den  $2p$ -Kanten und nicht an den  $3p$ -Kanten zu beobachten ist. Ein signifikanter Unterschied der  $3p$ - und  $2p$ -Rumpfstände ist die an den  $2p$ -Kanten deutlich größere Spin-Bahn-Aufspaltung und damit klare energetische Trennung der  $2p_{1/2}$ - und  $2p_{3/2}$ -Zustände. An den  $3p$ -Kanten sind die Zustände weniger stark lokalisiert und vermischen. Daher ist es denkbar, dass ein ähnliches Verhalten des XMLD an der  $3p_{3/2}$ -Kante durch die Überlappung mit dem Spektrum der  $3p_{1/2}$ -Zustände in den XMLD-Spektren der  $3p$ -Kanten nicht auffällt.

Der fehlende Vorzeichenwechsel an der  $2p_{3/2}$ -Kante tritt systematisch bei allen drei Proben auf. Eine abschließende Erklärung konnte im Zuge dieser Arbeit jedoch nicht gefunden werden, zur Klärung sind weitere Messungen und Rechnungen nötig. Dabei ist für ein tiefergehendes Verständnis auch hier sowohl eine quantitative Betrachtung der einzelnen Übergänge sowie der auf die Kristallrichtungen projizierten Zustandsdichten der Rumpf- und Leitungsbandzustände notwendig. Auch wäre es von Interesse zu prüfen, ob sich die XMLD-Spektren in

mehrere Fundamentalspektren zerlegen lassen, wie es schon für Oxide gemacht wurde [12]. Denkbar wäre z.B. die Zerlegung der Spektren in einen winkelabhängigen und einen winkelnunabhängigen Teil. Dies soll jedoch nicht mehr Gegenstand der vorliegenden Arbeit sein.

Neben der analytischen Betrachtung der Übergänge, welche direkt an der berechneten Zustandsdichte durchgeführt wurde, konnten die experimentellen Spektren auch durch *ab initio* berechnete Spektren reproduziert werden. Vor allem für die in Reflexion gemessenen XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten hat sich die Übereinstimmung mit dem Experiment als sehr gut erwiesen. Es konnte gezeigt werden, dass mit den in dieser Arbeit verwendeten Ansätzen (siehe Kap. 2.4) die XMLD-Spektren für Fe sehr gut reproduziert werden können. Auch die Rechnungen für Co geben den spektralen Verlauf des XMLD gut wieder. Die Rechnungen für Ni fallen erwartungsgemäß etwas schlechter aus, da hier der Ein-Elektronen-Ansatz aufgrund der starken Korrelationseffekte nicht mehr so gut anwendbar ist [150]. Hier müssen andere theoretische Modelle genutzt werden, welche Korrelationseffekte berücksichtigen. Die gute Übereinstimmung der experimentellen Spektren für Fe und Co mit den *ab initio* berechneten Spektren ist jedoch bemerkenswert und zeigt, dass die auf LSDA basierenden *ab initio* Rechnungen der Bandstruktur an den  $3p$ -Kanten für Fe und Co gut anwendbar sind.

## 8 Zusammenfassung & Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden systematisch die ferromagnetischen Übergangsmetalle Fe, Co und Ni in kristalliner Form mittels magneto-optischer Reflexionsspektroskopie untersucht. Das Hauptaugenmerk lag dabei auf dem Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf die magneto-optischen Effekte an den  $3p$ -Kanten, welche mittels linear polarisierter Synchrotronstrahlung gemessen werden. Es konnte beobachtet werden, dass T-MOKE und die Kerr-Drehung in L-MOKE keine signifikante Beeinflussung durch die kristalline Orientierung der Probe zeigen. Vielmehr konnten an den dünnen Schichten, welche in dieser Arbeit untersucht wurden, deutliche Einflüsse von optischen Interferenzeffekten auf die T-MOKE-Asymmetrie-Spektren beobachtet werden.

Im Gegensatz hierzu ist der magnetische Röntgenlineardichroismus nur wenig bis gar nicht von Interferenzeffekten beeinflusst, zeigt sich jedoch äußerst sensitiv bezüglich der Kristallorientierung. Es konnten sowohl an den  $2p$ -Kanten als auch an den  $3p$ -Kanten deutliche XMLD-Spektren gemessen werden, welche in Abhängigkeit der Kristallorientierung Änderungen von bis zu 100% erfahren. Zudem zeigen die XMLD-Spektren, vor allem an Fe, deutlich mehr und besser separierte Strukturen als die T-MOKE-Spektren. Damit erweist sich der XMLD im Gegensatz zu T-MOKE oder L-MOKE als sehr gut geeignet, den Einfluss der Kristallorientierung auf die elektronische Struktur der Proben zu untersuchen. Zudem unterscheiden sich die XMLD-Spektren von Fe, Co und Ni in ihrem spektralen Verlauf deutlich voneinander. Die XMLD-Spektren von Co und Ni zeigen dabei weniger Strukturen als die Spektren von Fe, weisen jedoch ebenfalls eine eindeutige Abhängigkeit von der Orientierung des elektrischen Feldvektors und der Magnetisierung bezüglich der Kristallachsen auf. Dabei ist der Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf die XMLD-Spektren von Ni am geringsten, was die Unterschiede in der Bandstruktur widerspiegelt.

An den  $2p$ -Kanten konnten für Fe, Co und Ni ebenfalls deutliche XMLD-Spektren in Reflexion mit maximalen Asymmetriewerte von bis zu 8% gemessen werden. Die XMLD-Spektren zeigen an der  $2p_{3/2}$ -Kante für alle drei Elemente mehr Strukturen als an der  $2p_{1/2}$ -Kante. Dies kann direkt auf die Anzahl der entsprechenden Rumpfstände zurückgeführt werden. Die Reflexionsspektroskopie an den  $2p$ -Kanten ist jedoch mit Vorsicht anzuwenden, da Interferenzeffekte die Spektren stark beeinflussen können. *Ab initio* Rechnungen haben gezeigt, dass sich das XMLD-Spektrum von Fe interferenzbedingt nicht nur um fast eine Größenordnung in der Höhe, sondern sich im gesamten spektralen Verlauf verändert. Die magneto-optische Reflexionsspektroskopie hat sich aber als adäquates Mittel zur Untersuchung des XMLD an den  $3p$ -Kanten erwiesen. Das hohe Reflexionsvermögen der Proben an den  $3p$ -Kanten erlaubt, im Gegensatz zu den  $2p$ -Kanten, Messungen bei senkrechtem Lichteinfall. Auch ist der Messaufbau dieser *photon-in* – *photon-out* Spektroskopie unkompliziert, verglichen mit TEY-Messungen, da es keine Beeinflussung der Messung selbst durch die starken externen Magnetfelder gibt. Zudem ermöglicht es die große Eindringtiefe des Lichts von mehreren 10 nm zum Einem Proben *ex situ* zu präparieren und mit einer Schutzschicht zu versehen, und zum Anderen Volumeneffekte und vergrabene Strukturen zu untersuchen.

Neben dem Nachweis des Einflusses der magnetokristallinen Anisotropie auf XMLD-Spektren an den  $3p$ -Kanten, war ein weiteres Ziel dieser Arbeit der Vergleich von Experiment und *ab initio* Rechnung. Es konnte gezeigt werden, dass relativistische auf einem Ein-Elektronen-Ansatz basierende LSDA-Rechnungen sowohl den spektralen Verlauf als auch den Einfluss der magnetokristallinen Anisotropie auf den XMLD sehr gut für Fe und Co beschreiben. Für Ni weichen die Rechnungen vom Experiment ab, was mit den starken Korrelationseffekten in Ni erklärt werden kann. Dennoch können die hier verwendeten Methoden, für welche an den  $3p$ -Kanten die gleiche Größenordnung von Spin-Bahn- und Austauschspaltung beachtet werden muss, die zugrundeliegende Physik gut beschreiben. Anhand der berechneten Bandstruktur für Fe konnte die Austauschspaltung der Rumpfstände in direkten Zusammenhang mit den Strukturen in den XMLD-Spektren gebracht werden.

## Ausblick

Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse erweitern das Bild des magnetischen Röntgenlineardichroismus und dessen Beeinflussung durch die magnetokristalline Anisotropie auf den Energiebereich des EUV. Dieser Energiebereich eignet sich sehr gut zur Überprüfung verschiedener theoretischer Modelle, da Näherungen, die an den  $2p$ -Kanten der Übergangsmetalle gemacht werden können, an den  $3p$ -Kanten ihre Gültigkeit verlieren. Neben den im vorherigen Kapitel erwähnten Ansätzen für zukünftige Experimente sind für ein noch umfassenderes Verständnis des XMLD Messungen mit dem E-Feld entlang der  $\langle 111 \rangle$ -Richtungen der Kristalle erstrebenswert. Auch Messungen für unterschiedliche Einfallswinkel und an dickeren Proben würden den Einfluss von Interferenzeffekten auf den XMLD noch deutlicher klären können. Des Weiteren könnten temperaturabhängige Messungen des XMLD weitere Aufschlüsse auf das Magnetisierungsverhalten in Kristallen geben. Zudem sind weitere *ab initio* Rechnungen erforderlich, um die Diskrepanzen zwischen den theoretischen und experimentellen Spektren vor allem an den  $2p$ -Kanten weiter aufzuarbeiten. Auch theoretische Modelle in denen die elektronischen Korrelationseffekte stärker einfließen, könnten mit Hilfe der XMLD-Spektren von Ni oder anderen elektronisch stark korrelierten Systemen gut getestet werden.

Neben dem physikalischen Verständnis und der Überprüfung von Modellrechnungen ist die in diesem Energiebereich gut anwendbare Reflexionsspektroskopie eine vielversprechende Methode um magnetische Kristallstrukturen zu untersuchen. Im Gegensatz zu Standardmethoden, wie z.B. RHEED, LEED oder dem natürlichen Röntgenlineardichroismus, bietet XMLD einige wesentliche Vorteile: So können mittels XMLD in Reflexion elementselektiv „vergrabene“ Strukturen untersucht werden und z.B. in Multilayern die einzelnen Schichten näher betrachtet werden. Dabei können mit XMLD im Gegensatz zu XNLD auch Strukturen mit vierzähliger Symmetrie untersucht werden. Die hohe Eindringtiefe erlaubt es über den Einfallswinkel Tiefenprofile zu erstellen und auch industriell gefertigte Proben zu vermessen, da keine weitere Oberflächenbehandlung der Proben notwendig ist.

Ein weiterer physikalisch sehr interessanter Punkt sind zeitaufgelöste Messungen. Gepulste Lichtquellen, wie HHG-Quellen oder FELs, decken den Energiebereich des EUV ab. Damit eröffnen sich durch XMLD-Reflexionsspektroskopie an den  $3p$ -Kanten weitere Möglichkeiten für zukünftige Messungen zur Magnetisierungsdynamik. Neben den in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnissen bilden die hier vorgestellten Messungen somit eine solide Grundlage für weiterführende Experimente, wie beispielsweise zeitaufgelöste Messungen mit HHG- oder FEL-Quellen, sowie orts aufgelöste magnetische Röntgenmikroskopie.



# Abkürzungsverzeichnis

**AFM** *atomic force microscopy*, Rasterkraftmikroskopie

**bcc** *body centered cubic*, kubisch raumzentriert

**BESSY** Berliner Elektronenspeicherring-Gesellschaft für Synchrotronstrahlung

**DELTA** Dortmunder Elektronen Speicherring Anlage

**DFT** Dichtefunktionaltheorie

**DOS** *density of states*, Zustandsdichte

**E.M.M.A.** *Extended MiniMag Apparatus*

**EDX** *energy dispersive X-ray spectroscopy*, energiedispersive Röntgenspektroskopie

**EUV** Extremes Ultraviolett

**fcc** *face centered cubic*, kubisch flächenzentriert

**FEL** Freie-Elektronen-Laser

**GGA** *generalized gradient approximation*, Gradientennäherung

**hcp** *hexagonal close-packed*, hexagonal dichteste Kugelpackung

**HHG** *higher harmonic generation*

**LEED** *low energy electron diffraction*

**L-MOKE** Longitudinaler magneto-optischer Kerr-Effekt

**LSDA** *local spin density approximation*, Lokale-Spindichte-Näherung

**MAE** magnetokristalline Anisotropieenergie

**MBE** *molecular beam epitaxy*, Molekularstrahlepitaxie

**P-MOKE** Polarer magneto-optischer Kerr-Effekt

**REM** Rasterelektronenmikroskopie

**RHEED** *reflection high energy electron diffraction*

**SQUID** *superconducting quantum interference device*

**TEY** *total electron yield*

**T-MOKE** Transversaler magneto-optischer Kerr-Effekt

**UHV** Ultrahochvakuum

**UV** Ultraviolett

**XMAPS** *x-ray magneto-optical polarization spectroscopy*

**XMCD** *x-ray magnetic circular dichroism*, magnetischer Röntgenzirkulardichroismus

**XMLD** *x-ray magnetic linear dichroism*, magnetischer Röntgenlineardichroismus

**XNLD** *x-ray natural linear dichroism*, natürlicher Röntgenlineardichroismus

# Symbolverzeichnis

Im Folgenden sind die für diese Arbeit wichtigsten Symbole erklärt:

$\nabla$	Nabla-Operator
$\hbar$	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
$K$	Anisotropiekonstante
$c$	Lichtgeschwindigkeit
$\mu_0$	Permeabilitätskonstante
$\epsilon_0$	Dielektrizitätskonstante
$\lambda$	Lichtwellenlänge
$e$	Elektronenladung
$m_e$	Elektronenruhemasse
$\mu_B$	Bohr'sches Magneton
$\mu_s$	Spinmoment
$\mu_l$	Bahnmoment
$s$	Spinquantenzahl
$l$	Bahndrehimpulsquantenzahl
$j$	Gesamtdrehimpulsquantenzahl
$m, m_j$	magnetische Quantenzahl
$\mathbf{B}$	magnetische Flussdichte
$\mathbf{H}$	Magnetfeld
$\mathbf{E}, \mathbf{E}'$	E-Feld des Lichts vor und nach Wechselwirkung mit Materie
$\mathbf{e}, \mathbf{e}'$	Einheitsvektor des E-Feldes vor und nach Wechselwirkung mit Materie
$S_0 - S_3$	Stokes'sche Parameter
$I_0$	Intensität des einfallenden Lichts
$R$	Reflexionsvermögen
$\mathbf{r}$	Reflexionsmatrix
$r_{pp}$	Komponente der Reflexionsmatrix
$\Delta_{pp}$	Magnetisch veränderliche Komponente der Reflexionsmatrix
$\epsilon$	Dielektrizitätstensor
$\omega$	Kreisfrequenz des Lichts
$\mathbf{k}$	Wellenvektor
$k$	Wellenzahl
$\delta_0$	nicht-magnetische Komponente des Realteils des Brechungsindex
$\beta_0$	nicht-magnetische Komponente des Imaginärteils des Brechungsindex
$\Delta\delta$	magnetische Komponente des Realteils des Brechungsindex
$\Delta\beta$	magnetische Komponente des Imaginärteils des Brechungsindex
$E$	Energie
$E_F$	Fermi-Energie

$e_g, t_{2g}$	Orbitale der $3d$ -Zustände
$\Delta_{ex}$	Austauschspaltung
$\Delta_{SO}$	Spin-Bahn-Aufspaltung
$\theta, \theta_i$	Einfallswinkel gemessen zur Probenoberfläche
$\theta_t$	Brechungswinkel gemessen zur Probenoberfläche
$\varphi$	Winkel innerhalb der Probenoberfläche zwischen $\mathbf{E}$ und einer Kristallachse
$\alpha$	Winkel innerhalb der Probenoberfläche zwischen $\mathbf{E}$ und $\mathbf{M}$
(001)	Ebene im Kristall senkrecht zur [001]-Richtung
[100]	Kristallrichtung
$\langle 100 \rangle$	Richtung im Kristall und alle symmetrisch äquivalenten Richtungen
$\sigma_{rms}$	Mittlere Rauigkeit
$d$	Schichtdicke
$\theta_K$	Kerr-Drehung
$\epsilon_K$	Kerr-Elliptizität
$A_{XMCD}$	Asymmetrie in XMCD
$A_{T-MOKE}$	Asymmetrie in T-MOKE
$A_{XMLD}$	Asymmetrie in XMLD

# Literaturverzeichnis

- [1] E. du Trémolet de Lacheisserie, D. Gignoux, and M. Schlenker. *Magnetism: Materials and Applications*. Number Bd. 2 in Grenoble Sciences. Springer, 2005.
- [2] S. Blügel, T. Brückel, and C. M. Schneider. *Magnetism Goes Nano: Electron Correlations, Spin Transport, Molecular Magnetism*. Lecture manuscripts. Forschungszentrum, 2005.
- [3] S. Blügel, D. Bürgler, M. Morgenstern, C. M. Schneider, and R. Waser. *Spintronics: From GMR to Quantum Information*. Lecture manuscripts. Forschungszentrum, Zentralbibliothek, 2009.
- [4] G.C. Lombardi and G.E. Bianchi. *Spintronics: Materials, Applications, and Devices*. Nova Science Publishers, Incorporated, 2009.
- [5] J.B. Kortright, D.D. Awschalom, J. Stöhr, S.D. Bader, Y.U. Idzerda, S.S.P. Parkin, Ivan K. Schuller, and H.-C. Siegmann. Research frontiers in magnetic materials at soft X-ray synchrotron radiation facilities. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **207**(1–3):7 – 44, 1999.
- [6] J. Stöhr and H.C. Siegmann. *Magnetism*. Springer Series in Solid State Sciences, Berlin, Heidelberg, 2006.
- [7] K.H.J. Buschow. *Handbook of Magnetic Materials, Vol. 19*. North-Holland, Amsterdam, 2011.
- [8] S. Tanuma, C. J. Powell, and D. R. Penn. Calculations of electron inelastic mean free paths. IX. Data for 41 elemental solids over the 50 eV to 30 keV range. *Surface and Interface Analysis*, **43**(3):689–713, 2011.
- [9] P. M. Oppeneer, H.-Ch. Mertins, D. Abramsohn, A. Gaupp, W. Gudat, J. Kuneš, and C. M. Schneider. Buried antiferromagnetic films investigated by x-ray magneto-optical reflection spectroscopy. *Phys. Rev. B*, **67**:052401, Feb 2003.
- [10] Reiko Nakajima, J. Stöhr, and Y. U. Idzerda. Electron-yield saturation effects in *L*-edge x-ray magnetic circular dichroism spectra of Fe, Co, and Ni. *Phys. Rev. B*, **59**:6421–6429, Mar 1999.
- [11] Frithjof Nolting, Dominik Legut, Ján Rusz, Peter M. Oppeneer, Georg Woltersdorf, and Christian H. Back. Anisotropy of the  $L_{2,3}$  x-ray magnetic linear dichroism of Fe films on GaAs: Experiment and *ab initio* theory. *Phys. Rev. B*, **82**:184415, Nov 2010.
- [12] Elke Arenholz, Gerrit van der Laan, Rajesh V. Chopdekar, and Yuri Suzuki. Anisotropic x-ray magnetic linear dichroism at the Fe  $L_{2,3}$  edges in  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . *Phys. Rev. B*, **74**:094407, Sep 2006.

- [13] Elke Arenholz, Gerrit van der Laan, Rajesh V. Chopdekar, and Yuri Suzuki. Angle-Dependent  $\text{Ni}^{2+}$  X-Ray Magnetic Linear Dichroism: Interfacial Coupling Revisited. *Phys. Rev. Lett.*, **98**:197201, May 2007.
- [14] Gerrit van der Laan, Elke Arenholz, Rajesh V. Chopdekar, and Yuri Suzuki. Influence of crystal field on anisotropic x-ray magnetic linear dichroism at the  $\text{Co}^{2+}$   $L_{2,3}$  edges. *Phys. Rev. B*, **77**:064407, Feb 2008.
- [15] R. Berlasso, C. Dallera, F. Borgatti, C. Vozzi, G. Sansone, S. Stagira, M. Nisoli, G. Ghiringhelli, P. Villoresi, L. Poletto, M. Pascolini, S. Nannarone, S. De Silvestri, and L. Braicovich. High-order laser harmonics and synchrotron study of transition metals  $M_{2,3}$  edges. *Phys. Rev. B*, **73**:115101, Mar 2006.
- [16] E. Saldin, E.A. Schneidmiller, and V. Yurkov. *The Physics of Free Electron Lasers*. Advanced Texts in Physics. Springer, 2000.
- [17] D. Rudolf, C. La-O-Vorakiat, M. Battiato, R. Adam, J. M. Shaw, E. Turgut, P. Maldonado, S. Mathias, P. Grychtol, H. T. Nembach, T. J. Silva, M. Aeschlimann, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, C. M. Schneider, and P. M. Oppeneer. Ultrafast magnetization enhancement in metallic multilayers driven by superdiffusive spin current. *Nat. Commun.*, **3**:1037, 2012.
- [18] Stefan Mathias, Chan La-O-Vorakiat, Patrik Grychtol, Patrick Granitzka, Emrah Turgut, Justin M. Shaw, Roman Adam, Hans T. Nembach, Mark E. Siemens, Steffen Eich, Claus M. Schneider, Thomas J. Silva, Martin Aeschlimann, Margaret M. Murnane, and Henry C. Kapteyn. Probing the timescale of the exchange interaction in a ferromagnetic alloy. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **109**:4792 – 4797, March 2012.
- [19] Chan La-O-Vorakiat, Mark Siemens, Margaret M. Murnane, Henry C. Kapteyn, Stefan Mathias, Martin Aeschlimann, Patrik Grychtol, Roman Adam, Claus M. Schneider, Justin M. Shaw, Hans Nembach, and T. J. Silva. Ultrafast Demagnetization Dynamics at the  $M$  Edges of Magnetic Elements Observed Using a Tabletop High-Harmonic Soft X-Ray Source. *Phys. Rev. Lett.*, **103**:257402, Dec 2009.
- [20] C. Gutt, S. Streit-Nierobisch, L.-M. Stadler, B. Pfau, C. M. Günther, R. Könnecke, R. Frömter, A. Kobs, D. Stickler, H. P. Oepen, R. R. Fäustlin, R. Treusch, J. Feldhaus, E. Weckert, I. A. Vartanyants, M. Grunze, A. Rosenhahn, T. Wilhein, S. Eisebitt, and G. Grübel. Single-pulse resonant magnetic scattering using a soft x-ray free-electron laser. *Phys. Rev. B*, **81**:100401, Mar 2010.
- [21] B. Pfau, S. Schaffert, L. Müller, C. Gutt, A. Al-Shemmary, F. Büttner, R. Delaunay, S. Düsterer, S. Flewett, R. Frömter, J. Geilhufe, E. Guehrs, C. M. Günther, R. Hawaldar, M. Hille, N. Jaouen, A. Kobs, K. Li, J. Mohanty, H. Redlin, W. F. Schlotter, D. Stickler, R. Treusch, B. Vodungbo, M Kläui, H. P. Oepen, J. Lüning, G. Grübel, and S. Eisebitt. Ultrafast optical demagnetization manipulates nanoscale spin structure in domain walls. *Nat. Commun.*, **3**:1100, Oct 2012.
- [22] M. Kallmayer, P. Klaer, H. Schneider, G. Jakob, H. J. Elmers, D. Legut, and P. M. Oppeneer. Element-specific magnetic properties of  $\text{Co}_2(\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{Si}$  films probed by x-ray magnetic circular/linear dichroism. *Phys. Rev. B*, **84**:054448, Aug 2011.
- [23] S. Blügel, M. Giesen, B. Hillebrands, H. Hillmer, H. Ibach, R. Kassing, H. v. Löhneysen,

- P. Luger, J. Salbeck, U. Scherz, and L. K. Schilling, W. Thomas. *Bergmann Schäfer Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 6, Festkörper*. de Gruyter, Berlin, 2005.
- [24] W. Heisenberg. Zur Theorie des Ferromagnetismus. *Zeitschrift für Physik*, **49**(9-10):619–636, 1928.
- [25] J. Hubbard. Electron Correlations in Narrow Energy Bands. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, **276**(1365):238–257, 1963.
- [26] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth. A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, **240**(826):599–642, 1948.
- [27] S. Lundqvist and N. H. March (Eds.). *Theory of the Inhomogeneous Electron Gas*. Plenum Press, New York, 1983.
- [28] R. Zeller. *Vorlesungsmanuskripte - 24. IFF Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen*. Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [29] Shyue Ping Ong, Anubhav Jain, Geoffroy Hautier, Michael Kocher, Shreyas Cholia, Dan Gunter, David Bailey, David Skinner, Kristin A Persson, and Gerbrand Ceder. The Materials Project, 2011.
- [30] E. P. Wohlfarth. *Ferromagnetic Materials. A Handbook of the Properties of Magnetic Ordered Substances*. North-Holland, Amsterdam, 1980.
- [31] J. A. C. Bland, D. Pescia, and R. F. Willis. Ferromagnetic moments in metastable magnetic films by spin-polarized-neutron reflection. *Phys. Rev. Lett.*, **58**:1244–1247, Mar 1987.
- [32] S. Blügel. *Vorlesungsmanuskripte - 30. IFF Ferienkurs: Magnetische Schichtsysteme*. Forschungszentrum Jülich, 1999.
- [33] W. J. M. de Jonge, P. J. H. Bloemen, and F. J. A. den Broeder. *Ultrathin Magnetic Structures I*. editiert von K. H. J. Bland and B. Heinrich, Springer, Berlin, Heidelberg, 2005.
- [34] H. Ibach and H. Lüth. *Festkörperphysik Einführung in die Grundlagen*. Springer-Lehrbuch. Springer, 2009.
- [35] J. G. Goddard, J. anf Wright. Magnetic Anisotropy in Single Crystal Films of  $\beta$ -Cobalt. *Nature*, **202**:1322, June 1964.
- [36] B.D. Cullity and C.D. Graham. *Introduction to Magnetic Materials*. Wiley, 2011.
- [37] C. M. Schneider, P. Bressler, P. Schuster, J. Kirschner, J. J. de Miguel, and R. Miranda. Curie temperature of ultrathin films of fcc-cobalt epitaxially grown on atomically flat Cu(100) surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, **64**:1059–1062, Feb 1990.
- [38] S. Blügel. *Vorlesungsmanuskripte - 24. IFF Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen*. Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [39] B. Heinrich, Z. Celinski, J. F. Cochran, A. S. Arrott, and K. Myrtle. Magnetic anisotropies in single and multilayered structures (invited). *Journal of Applied Physics*, **70**(10):5769–5774, 1991.

- [40] P. Bruno. Magnetic surface anisotropy of cobalt and surface roughness effects within Neel's model. *Journal of Physics F: Metal Physics*, **18**(6):1291, 1988.
- [41] J. Clarke and A. I. Braginski. *The SQUID Handbook: Fundamentals and Technology of SQUIDS and SQUID Systems, Vol. I*. WILEY-VCH Verlag, Weinheim, 2004.
- [42] W. E. Gardner and T. F. Smith in. *Progress in Vacuum Microbalance Techniques, Vol. 9*. Heyden & Son Ltd., London, 1972.
- [43] S. Foner. Versatile and Sensitive Vibrating-Sample Magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, **30**(7):548–557, 1959.
- [44] J. M. Tonnerre, M. De Santis, S. Grenier, H. C. N. Tolentino, V. Langlais, E. Bontempi, M. García-Fernández, and U. Staub. Depth Magnetization Profile of a Perpendicular Exchange Coupled System by Soft-X-Ray Resonant Magnetic Reflectivity. *Phys. Rev. Lett.*, **100**:157202, Apr 2008.
- [45] Ki-Suk Lee, Sang-Koog Kim, and J. B. Kortright. Soft x-ray resonant magneto-optical Kerr effect as a depth-sensitive probe of magnetic heterogeneity: Its application to resolve helical spin structures using linear p polarization. *Journal of Applied Physics*, **96**(12):7414–7419, 2004.
- [46] J. B. Kortright and A. Fischer-Colbrie. Standing wave enhanced scattering in multilayer structures. *Journal of Applied Physics*, **61**(3):1130–1133, 1987.
- [47] J. D. Jackson. *Klassische Elektrodynamik, 4. Auflage*. de Gruyter, Berlin, 2006.
- [48] W. Demtröder. *Experimentalphysik 2 Elektrizität und Optik, 4. Auflage*. Springer, Berlin, 2006.
- [49] D. Pines. *Elementary Excitations in Solids: Lectures on Protons, Electrons, and Plasmons*. Advanced book classics. Advanced Book Program, Perseus Books, 1999.
- [50] H. G. Tompkins and E. A. Irene. *Handbook of Ellipsometry*. William Andrew Publishing, Springer, Norwich, Heidelberg, 2005.
- [51] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, and Doon Gibbs. X-Ray Resonance Exchange Scattering. *Phys. Rev. Lett.*, **61**:1245–1248, Sep 1988.
- [52] E. Hecht. *Optik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, München, 2005.
- [53] E. Hecht. Note on an Operational Definition of the Stokes Parameters. *American Journal of Physics*, **38**(9):1156–1158, 1970.
- [54] H. Müller. The foundation of optics. *J. Opt. Soc. Am.*, **15**:661, 1948.
- [55] J. Orear and E. Fermi. *Nuclear Physics: A Course Given by Enrico Fermi at the University of Chicago*. Midway reprint. University of Chicago Press, 1950.
- [56] P. A. M. Dirac. The Quantum Theory of the Emission and Absorption of Radiation. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, **114**(767):243–265, 1927.
- [57] H. A. Kramers and W. Heisenberg. Über die Streuung von Strahlung durch Atome. *Zeitschrift für Physik*, **31**:681–708, February 1925.



- [58] H. Ebert, J. Stöhr, S. S. P. Parkin, M. Samant, and A. Nilsson.  $L$ -edge x-ray absorption in fcc and bcc Cu metal: Comparison of experimental and first-principles theoretical results. *Phys. Rev. B*, **53**:16067–16073, Jun 1996.
- [59] Paolo Carra, B. T. Thole, Massimo Altarelli, and Xindong Wang. X-ray circular dichroism and local magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.*, **70**:694–697, Feb 1993.
- [60] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan. X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization. *Phys. Rev. Lett.*, **68**:1943–1946, Mar 1992.
- [61] C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H.-J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette. Experimental Confirmation of the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Sum Rules for Iron and Cobalt. *Phys. Rev. Lett.*, **75**:152–155, Jul 1995.
- [62] Sarnjeet S. Dhese, Gerrit van der Laan, Esther Dudzik, and Alexander B. Shick. Anisotropic Spin-Orbit Coupling and Magnetocrystalline Anisotropy in Vicinal Co Films. *Phys. Rev. Lett.*, **87**:067201, Jul 2001.
- [63] S. S. Dhese, G. van der Laan, and E. Dudzik. Determining element-specific magnetocrystalline anisotropies using x-ray magnetic linear dichroism. *Applied Physics Letters*, **80**(9):1613–1615, 2002.
- [64] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, and G. Materlik. Absorption of circularly polarized x rays in iron. *Phys. Rev. Lett.*, **58**:737–740, Feb 1987.
- [65] J. Kuneš and P. M. Oppeneer. Anisotropic x-ray magnetic linear dichroism at the  $L_{2,3}$  edges of cubic Fe, Co, and Ni: *Ab initio* calculations and model theory. *Phys. Rev. B*, **67**:024431, Jan 2003.
- [66] H.-Ch. Mertins, D. Abramssohn, A. Gaupp, F. Schäfers, W. Gudat, O. Zaharko, H. Grimmer, and P. M. Oppeneer. Resonant magnetic reflection coefficients at the Fe  $2p$  edge obtained with linearly and circularly polarized soft x rays. *Phys. Rev. B*, **66**:184404, Nov 2002.
- [67] British Association for the Advancement of Science. *Report of the British Association for the Advancement of Science.*, volume 46th Meeting (1876). London., 1877. <http://www.biodiversitylibrary.org/bibliography/2276>.
- [68] John Kerr. XLIII. On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet. *Philosophical Magazine Series 5*, **3**(19):321–343, 1877.
- [69] P. M. Oppeneer. *Handbook of Magnetic Materials, Vol13*. editiert von K. H. J. Buschow, Elsevier, München, 2001.
- [70] H.-Ch. Mertins, S. Valencia, D. Abramssohn, A. Gaupp, W. Gudat, and P. M. Oppeneer. X-ray Kerr rotation and ellipticity spectra at the  $2p$  edges of Fe, Co, and Ni. *Phys. Rev. B*, **69**:064407, Feb 2004.
- [71] H.-C. Mertins, S. Valencia, A. Gaupp, W. Gudat, P.M. Oppeneer, and C.M. Schneider. Magneto-optical polarization spectroscopy with soft X-rays. *Applied Physics A*, **80**(5):1011–1020, 2005.
- [72] M. F. Tesch, M. C. Gilbert, H.-Ch. Mertins, D. E. Bürgler, U. Berges, and C. M. Schneider. X-ray magneto-optical polarization spectroscopy: an analysis from the visible region to the x-ray regime. *Appl. Opt.*, **52**(18):4294–4310, Jun 2013.

- [73] J. B. Kortright and Sang-Koog Kim. Resonant magneto-optical properties of Fe near its  $2p$  levels: Measurement and applications. *Phys. Rev. B*, **62**:12216–12228, Nov 2000.
- [74] J. Kuneš, P. M. Oppeneer, H.-Ch. Mertins, F. Schäfers, A. Gaupp, W. Gudat, and P. Novák. X-ray Faraday effect at the  $L_{2,3}$  edges of Fe, Co, and Ni: Theory and experiment. *Phys. Rev. B*, **64**:174417, Oct 2001.
- [75] Gerrit van der Laan, Bernard T. Thole, George A. Sawatzky, Jeroen B. Goedkoop, John C. Fuggle, Jean-Marc Esteva, Ramesh Karnatak, J. P. Remeika, and Hanna A. Dabkowska. Experimental proof of magnetic x-ray dichroism. *Phys. Rev. B*, **34**:6529–6531, Nov 1986.
- [76] Pieter Kuiper, Barry G. Searle, Petra Rudolf, L. H. Tjeng, and C. T. Chen. X-ray magnetic dichroism of antiferromagnet  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ : The orientation of magnetic moments observed by Fe  $2p$  x-ray absorption spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, **70**:1549–1552, Mar 1993.
- [77] P. M. Oppeneer, H.Ch. Mertins, and O. Zaharko. Alternative geometries for the determination of x-ray magneto-optical coefficients. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **15**(45):7803, 2003.
- [78] J. Kuneš, P.M. Oppeneer, S. Valencia, D. Abramsohn, H.-Ch. Mertins, W. Gudat, M. Hecker, and C.M. Schneider. Understanding the XMLD and its magnetocrystalline anisotropy at the  $L_{2,3}$ -edges of  $3d$  transition metals. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **272–276**, Part 3(0):2146 – 2147, 2004. Proceedings of the International Conference on Magnetism (ICM 2003).
- [79] C.E. Mortimer and U. Müller. *Chemie: das Basiswissen der Chemie ; 126 Tabellen*. Thieme, 2007.
- [80] S. Valencia, A. Kleibert, A. Gaupp, J. Rusz, D. Legut, J. Bansmann, W. Gudat, and P. M. Oppeneer. Quadratic X-Ray Magneto-Optical Effect upon Reflection in a Near-Normal-Incidence Configuration at the  $M$  Edges of  $3d$ -Transition Metals. *Phys. Rev. Lett.*, **104**:187401, May 2010.
- [81] S Valencia, A Gaupp, W Gudat, H-Ch Mertins, P M Oppeneer, D Abramsohn, and C M Schneider. Faraday rotation spectra at shallow core levels:  $3p$  edges of Fe, Co, and Ni. *New Journal of Physics*, **8**(10):254, 2006.
- [82] H.-Ch. Mertins, O. Zaharko, A. Gaupp, F. Schäfers, D. Abramsohn, and H. Grimmer. Soft X-ray magneto-optical constants at the Fe  $2p$  edge determined by Bragg scattering and Faraday effect. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **240**(1–3):451 – 453, 2002. 4th International Symposium on Metallic Multilayers.
- [83] B.L. Henke, E.M. Gullikson, and J.C. Davis. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at  $E=50\text{-}30000$  eV,  $Z=1\text{-}92$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables Vol. 54 (no.2)*, pages 181–342, 1993.
- [84] H. A. Kramers. La diffusion de la lumiere par les atomes. *Atti Cong. Intern. Fisici, Como.*, **2**:545–557, 1927.
- [85] R. de L. Kronig. ON THE THEORY OF DISPERSION OF X-RAYS. *J. Opt. Soc. Am.*, **12**(6):547–556, Jun 1926.

- [86] S. Macke, E. Benckiser, E. Goering, and V. Hinkov. ReMagX. [www.remagx.org](http://www.remagx.org).
- [87] Sebastian Brück. *Magnetic resonant reflectometry on exchange bias systems*. PhD thesis, Universität Stuttgart, Holzgartenstr. 16, 70174 Stuttgart, 2009.
- [88] M. Harlander. Untersuchung über die Grenzflächenmagnetisierung an (FM) Kobalt- und (AFM) Eisen-Mangan-Schichten. diploma (thesis), Universität Stuttgart, 2005.
- [89] L. G. Parratt. Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays. *Phys. Rev.*, **95**:359–369, Jul 1954.
- [90] L. Nevot and P. Croce. Characterisation des surfaces par reflexion rasante de rayons X. Application a l'etude du polissage de quelques verres silicates. *Rev. Phys. Appl. (Paris)*, **15**(3):761–779, 1980.
- [91] J. Zak, E.R. Moog, C. Liu, and S.D. Bader. Universal approach to magneto-optics. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **89**(1–2):107 – 123, 1990.
- [92] J. Zak, E. R. Moog, C. Liu, and S. D. Bader. Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions. *Phys. Rev. B*, **43**:6423–6429, Mar 1991.
- [93] J. Zak, E. R. Moog, C. Liu, and S. D. Bader. Erratum: Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions. *Phys. Rev. B*, **46**:5883–5883, Sep 1992.
- [94] F. Schäfers and M. Krumrey. REFLEC: A Program to Calculate VUV/X-ray Optical Elements and Synchrotron Radiation Beamlines. *Tech. Rep. BESSY, TB*, **201**, 1996.
- [95] M. Buchmeier. A computer program to calculate the magneto-optic Kerr effect (MOKE) of magnetic multilayered samples. <http://hdl.handle.net/2128/2605>.
- [96] P. Yeh. Optics of anisotropic layered media: A new 4x4 matrix algebra. *Surface Science*, **96**(1-3):41–53, 1980.
- [97] S. Visnovsky. Optics of magnetic multilayers. *Czechoslovak Journal of Physics*, **41**(7):663–694, 1991.
- [98] Mündliche Mitteilung: Dr. D. Legut  
VSB - Technical University of Ostrava, 17. Listopadu 15, CZ-70833 Ostrava, Czech Republic.
- [99] Kooperationspartner an der Technischen Universität Ostrava: Dr. D. Legut und Dr. J. Hamrle  
VSB - Technical University of Ostrava, 17. Listopadu 15, CZ-70833 Ostrava, Czech Republic.
- [100] Kooperationspartner an der Universität Uppsala: Prof. Dr. P. M. Oppeneer  
Department of Physics and Astronomy, Uppsala University, P.O. Box 516, S-751 20 Uppsala, Sweden.
- [101] P. Blaha, K. Schwarz, G. K. H. Madsen, D. Kvasnicka, and J. Luitz. An Augmented Plane Wave + Local Orbitals Program for Calculating Crystal Properties, Techn. Univ. Wien, Austria, 2001.
- [102] J. P. Perdew and Y. Wang. Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy. *Phys. Rev. B*, **45**:13244, 1992.

- [103] C. Ambrosch-Draxl and O. J. Soto. Linear optical properties of solids within the full-potential linearized augmented planewave method. *Comput. Phys. Commun.*, **1**:175, 2006.
- [104] K. Postava, H. Sueki, M. Aoyama, T. Yamaguchi, K. Murakami, and Y. Igasaki. Doping effects on optical properties of epitaxial ZnO layers determined by spectroscopic ellipsometry. *Appl. Surf. Sci.*, **175**:543, 2001.
- [105] I. Ohlídal and F. Lukeš. Ellipsometric Parameters of Rough Surfaces and of a System Substrate-Thin Film with Rough Boundaries. *Opt. Acta*, **19**:817, 1972.
- [106] Mündliche Mitteilung: Dr. J. Hamrle  
VSB - Technical University of Ostrava, 17. Listopadu 15, CZ-70833 Ostrava, Czech Republic.
- [107] G. van der Laan and B. T. Thole. Strong magnetic x-ray dichroism in  $2p$  absorption spectra of  $3d$  transition-metal ions. *Phys. Rev. B*, **43**:13401–13411, Jun 1991.
- [108] Gerrit van der Laan. Magnetic Linear X-Ray Dichroism as a Probe of the Magnetocrystalline Anisotropy. *Phys. Rev. Lett.*, **82**:640–643, Jan 1999.
- [109] H.-Ch. Mertins, P. M. Oppeneer, J. Kuneš, A. Gaupp, D. Abramssohn, and F. Schäfers. Observation of the X-Ray Magneto-Optical Voigt Effect. *Phys. Rev. Lett.*, **87**:047401, Jul 2001.
- [110] U. Berges, S. Döring, and C. Westphal. PGM-Beamline at the Undulator U55 at DELTA. *AIP Conference Proceedings*, **879**(1):519–522, 2007.
- [111] U. Berges, S. Döring, and C. Westphal. TGM-Beamline at DELTA. *AIP conf. proc.*, **879**:583–586, 2007.
- [112] M. Martins, G. Kaindl, and N. Schwentner. Design of the high-resolution BUS XUV-beamline for BESSY II. *J. Elec. Spec. rel. Phen.*, **101-103**:965, 1999.
- [113] M. R. Weiss, K. J. S. Sawhney, R. Follath, H.-Ch. Mertins, F. Schäfers, W. Frentrup, A. Gaupp, M. Scheer, J. Bahrtdt, F. Senf, and W. Gudat. First results of the circularly polarized undulator beamline at BESSY II. *AIP Conference Proceedings*, **521**(1):134–137, 2000.
- [114] H. Wiedemann. *Synchrotron Radiation*. Advanced Texts in Physics. Springer, 2010.
- [115] E. Beaurepaire. *Magnetism: A Synchrotron Radiation Approach*. Lecture Notes in Physics. Springer, 2006.
- [116] W. Eberhardt. *Scattering Methods for Condensed Matter Research: Towards Novel Applications at Future Sources*. Lecture manuscripts of the 43rd Spring School of the Institute of Solid State Research. Forschungszentrum Jülich, 2012.
- [117] M. Gilbert, H.-Ch. Mertins, M. Tesch, O. Berges, Herbert Feilbach, and C. M. Schneider. TetraMag: A compact magnetizing device based on eight rotating permanent magnets. *Review of Scientific Instruments*, **83**(2):025109, 2012.
- [118] D.S. Kliger, J.W. Lewis, and C.E. Randall. *Polarized light in optics and spectroscopy*. Academic Press, 1990.

- [119] Franz Schäfers, Hans-Christoph Mertins, Andreas Gaupp, Wolfgang Gudat, Marcel Mer-  
tin, Ingo Packe, Frank Schmolla, Silvia Di Fonzo, Gérard Soullié, Werner Jark, Richard  
Walker, Xavier Le Cann, Ralf Nyholm, and Mikael Eriksson. Soft-X-Ray Polarimeter  
with Multilayer Optics: Complete Analysis of the Polarization State of Light. *Appl.*  
*Opt.*, **38**(19):4074–4088, Jul 1999.
- [120] D.E. Bürgler, C.M. Schmidt, J.A. Wolf, T.M. Schaub, and H.-J. Güntherodt. Ag films on  
FeGaAs(001): from clean surfaces to atomic Ga structures. *Surface Science*, **366**(2):295  
– 305, 1996.
- [121] D. E. Bürgler, C. M. Schmidt, D. M. Schaller, F. Meisinger, R. Hofer, and H.-J. Gün-  
therodt. Optimized epitaxial growth of Fe on Ag(001). *Phys. Rev. B*, **56**:4149–4158,  
Aug 1997.
- [122] Die Aufnahmen mit dem Rasterelektronenmikroskop, die EDX-Analysen sowie die  
Monte-Carlo-Simulation wurden im „Labor für Physik der Werkstoffe“ an der Fach-  
hochschule Münster von Dipl.-Ing. H. Uphoff durchgeführt.
- [123] Ch. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik, 14. Auflage*. Oldenbourg Wissenschafts-  
verlag GmbH, München, 2006.
- [124] W. Kleber, H.-J. Bautsch, and J. Bohm. *Einführung in die Kristallographie, 17. Auflage*.  
Verlag Technik Berlin, Berlin, 1990.
- [125] Mündliche Mitteilung: Dipl.-Ing. H. Uphoff  
Fachhochschule Münster, Stegerwaldstr. 39, 48565 Steinfurt.
- [126] Dominique Drouin, Alexandre Réal Couture, Dany Joly, Xavier Tastet, Vincent Aimez,  
and Raynald Gauvin. CASINO V2.42—A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for  
Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users. *Scanning*, **29**(3):92–101, 2007.
- [127] M. Buchmeier, R. Schreiber, D. E. Bürgler, and P. Grünberg. Inverse giant magnetore-  
sistance due to spin-dependent interface scattering in Fe/Cr/Au/Co. *EPL (Europhysics*  
*Letters)*, **63**(6):874, 2003.
- [128] Katharina Theis-Bröhl, Rainer Scheidt, Thomas Zeidler, Frank Schreiber, Hartmut  
Zabel, Thomas Mathieu, Christoph Mathieu, and Burkard Hillebrands. Magnetic  
exchange-coupling effects in asymmetric trilayer structures of MBE-grown Co/Cr/Fe.  
*Phys. Rev. B*, **53**:11613–11620, May 1996.
- [129] S. Oikawa, T. Kanno, S. Iwata, and S. Tsunashima. Structure and magnetic anisotropy  
in MBE-grown Au/Co/Au sandwich films on MgO substrate. *Journal of Magnetism and*  
*Magnetic Materials*, **156**(1–3):73 – 74, 1996. Proceedings of the Second International  
Symposium on Metallic Multilayers.
- [130] J.A.C. Bland, A.D. Johnson, R.D. Bateson, and H.J. Lauter. Magnetic properties of  
ultrathin Co/Ag(001) films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **104–107**,  
Part 3(0):1798 – 1800, 1992.
- [131] Mündliche Mitteilung: PD Dr. D. Bürgler  
Peter Grünberg Institut (PGI-6), Forschungszentrum Jülich GmbH, D-52425 Jülich,  
Germany.

- [132] K.H. Hellwege, H. Landolt, and R. Börnstein. *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik: Gesamtherausgabe*. Number 6, Gruppe III, in Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik: Gesamtherausgabe. Springer-Verlag, 1971.
- [133] Yasuhiro Kamada, Hitoshi Kasai, Toshiki Kingetsu, and Masahiko Yamamoto. Structure and Magnetic Properties of [Ag/Ni/Au] and [Au/Ni/Ag] Superlattices. *Journal of Magnetism Society of Japan*, **23**(1):581–583, Jan 1999.
- [134] Toshiki Kingetsu, Yasuhiro Kamada, and Masahiko Yamamoto. Epitaxial growth of binary and ternary metallic strained superlattices and their magnetic properties. *Science and Technology of Advanced Materials*, **2**(2):331, 2001.
- [135] J. Honda and S. Kaya. On the magnetisation of single crystals of iron. *Scientific Reports Tohoku University*, **15**:721, 1926.
- [136] M. Freiser. A survey of magneto-optic effects. *Magnetics, IEEE Transactions on*, **4**(2):152–161, Jun 1968.
- [137] Marc-Andreas Schroeder. *Magneto-optische Kerr-Effekte im VUV an Eisen und Eisen-systemen*. PhD thesis, Universität Hamburg, Von-Melle-Park 3, 20146 Hamburg, 2000.
- [138] S. Valencia, H.-Ch. Mertins, D. Abramsohn, A. Gaupp, W. Gudat, and P.M. Oppeneer. Interference effects in the X-ray Kerr rotation spectrum at the Fe 2*p* edge. *Physica B: Condensed Matter*, **345**(1–4):189 – 192, 2004. Proceedings of the Conference on Polarised Neutron and Synchrotron X-rays for Magnetism.
- [139] J. Geissler, E. Goering, M. Justen, F. Weigand, G. Schütz, J. Langer, D. Schmitz, H. Maletta, and R. Mattheis. Pt magnetization profile in a Pt/Co bilayer studied by resonant magnetic x-ray reflectometry. *Phys. Rev. B*, **65**:020405, Dec 2001.
- [140] M. F. Tesch. Aufbau und Charakterisierung eines Magnetfeldsensors und magneto-optische Kerrspektroskopie im sichtbaren und UV-Bereich an einer dünnen Co-Schicht. diploma thesis, University of Applied Sciences Münster, Stegerwaldstr. 39, 48565 Steinfurt, 2009.
- [141] A. Kleibert, V. Senz, J. Bansmann, and P. M. Oppeneer. Thickness dependence and magnetocrystalline anisotropy of the x-ray transverse magneto-optical Kerr effect at the Co 2*p* edges of ultrathin Co films on W(110). *Phys. Rev. B*, **72**:144404, Oct 2005.
- [142] Die *ab initio* Rechnungen wurden durchgeführt von Dr. D. Legut an der VSB - Technical University of Ostrava - 17. Listopadu 15, CZ-70833 Ostrava, Czech Republic.
- [143] M. Böhm and U. Krey. Subtle interface magnetism of Fe/Au multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **192**:27–34, February 1999.
- [144] J.C. Fuggle and N. Mårtensson. *Core Level Binding Energies in Metals*. Institute of Physics, Uppsala University: Fysiska Institutionen. Inst. of Physics, Univ., 1980.
- [145] M. F. Tesch, D. Legut, H.-Ch. Mertins, M. C. Gilbert, C. Jansing, J. Hamrle, J. Rusz, P. M. Oppeneer, D. E. Bürgler, C. M. Schneider, A. Gaupp, and U. Berges. Magneto-crystalline anisotropy in x-ray magnetic linear dichroism at the 3*p* edges of crystalline Fe thin films. *Phys. Rev. B*, **89**:140404(R), Apr 2014.

- [146] M. M. Schwickert, G. Y. Guo, M. A. Tomaz, W. L. O'Brien, and G. R. Harp. X-ray magnetic linear dichroism in absorption at the  $L$  edge of metallic Co, Fe, Cr, and V. *Phys. Rev. B*, **58**:R4289–R4292, Aug 1998.
- [147] H. M. Hwang, S. W. Shin, J. H. Kang, J. Lee, J. H. Lee, J. H. Song, J.-Y. Choi, H. H. Lee, and H. S. Lee. Fabrication of Epitaxial fcc Co/Cu Nanostructures/Si(001). *Journal of the Korean Physical Society*, **49**:1016–1019, 2006.
- [148] W. Kuch, F. Offi, L. I. Chelaru, J. Wang, K. Fukumoto, M. Kotsugi, J. Kirschner, and J. Kuneš. Huge magnetocrystalline anisotropy of x-ray linear dichroism observed on Co/FeMn bilayers. *Phys. Rev. B*, **75**:224406, Jun 2007.
- [149] D. Legut, M. F. Tesch, H.-Ch. Mertins, M. C. Gilbert, C. Jansing, D. E. Bürgler, C. M. Schneider, A. Gaupp, J. Hamrle, and P. M. Oppeneer. Influence of the crystal structure of thin Co films on X-ray magnetic linear dichroism—Comparison of ab initio theory and reflectometry experiments. *Journal of Applied Physics*, **115**(17):17E132, 2014.
- [150] W. Eberhardt and E. W. Plummer. Angle-resolved photoemission determination of the band structure and multielectron excitations in Ni. *Phys. Rev. B*, **21**:3245–3255, Apr 1980.





# Danksagung

Da diese Arbeit in ihrer jetzigen Form nur mit Unterstützung vieler anderer möglich war, möchte ich mich an dieser Stelle für die Unterstützung, die mir zuteil wurde bei all den Vielen, die mir beiseite standen, bedanken. Insbesondere geht mein Dank dabei an . . .

. . . Prof. Dr. Claus M. Schneider und Prof. Dr. Hans-Christoph Mertins, die diese Arbeit betreut haben und ohne die dieses ganze Unterfangen so nicht möglich gewesen wäre. Die Betreuung war vorbildlich, sowohl fachlich als auch außerfachlich.

. . . Prof. Dr. Peter M. Oppeneer für die Unterstützung in theoretischen Fragen und bei den im Rahmen dieser Arbeit entstandenen Veröffentlichungen.

. . . Dr. Dominik Legut für die ungezählten fruchtbaren Diskussionen und die Arbeit und die Zeit, die er in die *ab initio* Rechnungen investiert hat, die diese Arbeit erst abrunden. „Thanks man!“

. . . allen Kommilitonen und Kollegen an der Fachhochschule Münster, insbesondere Markus Gilbert, der mir während der Arbeit nicht nur bei Fachfragen, Konstruktion und Programmierung, sondern auch freundschaftlich zur Seite stand. Außerdem danke ich Holger Uphoff für die Messungen mit dem REM und die EDX-Analysen meiner Proben. Andreas Galle, der mir mit all den vielen Kleinigkeiten weiter geholfen hat, welche immer wieder angefallen sind. Zudem Christine Jansing und Prof. Dr. Heiko Timmers, die mich bei der Arbeit im Labor und am Synchrotron begleitet haben.

. . . die Mitarbeiter des Forschungszentrums Jülich, die mich während der Arbeit unterstützt haben. Vor allem an Dr. Daniel Bürgler, der nicht nur die Proben hergestellt, sondern auch mit viel Geduld meine vielen Fragen beantwortet hat. Auch bedanke ich mich bei Jürgen Lauer und Heinz Pfeifer, die mir in den technischen Fragen ihr Wissen weitergegeben haben.

. . . das Team vom DELTA, allen voran Dr. Ulf Berges, der mich bei meinen Messungen und bei technischen Problemen immer unterstützt hat. Und natürlich an Christoph Keutner, Dominique Handschak, Sven Döring und all den anderen, die neben einer helfenden Hand auch immer ein offenes Ohr für mich hatten.

. . . die Mitarbeiter beim BESSY. Ganz besonders an Dr. Andreas Gaupp, der mich nicht nur mit fachlichem, sondern auch mit unermüdlichem körperlichen Einsatz bei der Durchführung der Experimente am BESSY unterstützt hat. Auch danke ich Frank Siewert, der ohne zu zögern das Weißlichtinterferometer und das AFM zur Untersuchung der Oberflächenbeschaffenheit der Proben bereitgestellt hat.

. . . meine Familie, meine Freunde und besonders an meine Freundin. Ohne eure Unterstützung wäre die Zeit, in der ich diese Arbeit geschrieben habe, sicher doppelt so anstrengend und nur halb so schön gewesen.



## Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Dissertation eigenständig verfasst habe, sowie alle verwendeten Hilfsmittel angegeben und alle inhaltlich oder wörtlich übernommenen Stellen als solche gekennzeichnet habe.

---

Ort, Datum

---

Marc Tesch



# Veröffentlichungen

Nachfolgend finden sich die unten aufgelisteten, im Rahmen dieser Arbeit veröffentlichten Publikationen:

M. Gilbert, H.-Ch. Mertins, M. Tesch, O. Berges, H. Feilbach, C.M. Schneider,  
*Tetra Mag: A Compact Magnetization Device Based on Eight Rotating Permanent Magnets*,  
Rev. Sci. Instrum. **83**, 025109 (2012)

M. F. Tesch, M.C. Gilbert, H-Ch. Mertins, D.E. Bürgler, U. Berges, C.M. Schneider,  
*XMAPS: X-Ray Magneto-Optical Polarization Spectroscopy - an analysis from the visible region to the X-ray regime*, Appl. Opt. **52**, 4294 (2013)

D. Legut, M. F. Tesch, H.-Ch. Mertins, M. C. Gilbert, C. Jansing, D. E. Bürgler, C. M. Schneider, A. Gaupp, J. Hamrle, and P. M. Oppeneer,  
*Influence of the crystal structure of thin Co films on the X-Ray Magnetic Linear Dichroism - Comparison of ab initio theory and reflectometry experiments*, J. Appl.Phys. **115**, 17E132 (2014)

M. F. Tesch, D. Legut, H.-Ch. Mertins, M. C. Gilbert, C. Jansing, J. Hamrle, J. Ruzs, P. M. Oppeneer, D. E. Bürgler, C. M. Schneider, A. Gaupp, U. Berges,  
*Magnetocrystalline Anisotropy of X-ray Magnetic Linear Dichroism at the 3p Edges of Crystalline Fe Thin Films*, Phy Rev. B **89**, 140404(R) (2014)