

Aberrationskorrigierte Photoemissionsmikroskopie an magnetischen Systemen: Von statischer Charakterisierung zu zeitaufgelöster Abbildung

Florian Nickel



Forschungszentrum Jülich GmbH Peter Grünberg Institut (PGI) Elektronische Eigenschaften (PGI-6)

# Aberrationskorrigierte Photoemissionsmikroskopie an magnetischen Systemen: Von statischer Charakterisierung zu zeitaufgelöster Abbildung

Florian Nickel

Schriften des Forschungszentrums Jülich Reihe Schlüsseltechnologien / Key Technologies Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek. Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten sind im Internet über http://dnb.d-nb.de abrufbar.

Herausgeber Forschungszentrum Jülich GmbH

und Vertrieb: Zentralbibliothek, Verlag

52425 Jülich

Tel.: +49 2461 61-5368 Fax: +49 2461 61-6103

 $\hbox{E-Mail:} \ \ zb-publikation@fz-juelich.de$ 

www.fz-juelich.de/zb

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2013

Schriften des Forschungszentrums Jülich Reihe Schlüsseltechnologien / Key Technologies, Band / Volume 75

D 464 (Diss., Duisburg, Univ., 2013)

ISSN 1866-1807 ISBN 978-3-89336-913-3

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL) unter www.fz-juelich.de/zb/juwel

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

# Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und ohne fremde Hilfe verfasst habe. Ferner habe ich außer den angegebenen Quellen keine anderen Quellen und Hilfsmittel benutzt. Die dem Sinn oder Wortlaut nach entnommenen Textpassagen oder Abbildungen habe ich in jedem Einzelfall kenntlich gemacht. Dieser Dissertation geht weder ein erfolgloser Promotionsversuch voraus, noch wurde sie in einem weiteren Promotionsverfahren eingereicht. Abgesehen von den angegebenen Publikationen sind die Ergebnisse dieser Dissertation unveröffentlicht. Diese Dissertation, die den Doktorgrad "Dr. rer. nat." anstrebt, wurde von Prof. Dr. C. M. Schneider betreut.

Berlin, den 28. Juni 2013

Florian Nickel

# Zusammenfassung

Dieser Arbeit zielt auf die Realisierung zeitaufgelöster magnetischer Abbildung in einem energiegefilterten und aberrationskorrigierten Photoemissionsmikroskop (TRACX-PEEM) ab.

Um die Leistungsfähigkeit der neuesten Generation Photoemissionsmikroskope im Routinebetrieb zu nutzen, erfolgte die experimentelle Bestimmung der Aberrationskoeffizienten  $C_3$ ,  $C_c$  des Linsensystems. Der Parameterraum des Tetrodenspiegels wurde anschließend auf die ermittelten Aberrationen angepasst, so dass dem Experiment eine automatische und startenergieabhängige Aberrationskorrektur zur Verfügung steht.

Zur effizienteren Nutzung der Synchrotronstrahlung wurde ein neuer zeitauflösender Betriebsmodus entwickelt, welcher in seiner Anwendung kompatibel zu Energiefilterung und Aberrationskorrektur eines PEEM ist. Die Entwicklungen beinhalten einen Probenhalter zur Anregung eines Probensystems mit Magnetfeldpulsen bis zu 10 mT innerhalb 1 ns. Darüber hinaus wurde ein neuartiges Ablenkungssystem entwickelt, welches die Blockierung der elektronenoptischen Achse innerhalb einiger Nanosekunden erlaubt. Das System involviert eine elektrostatische Ablenkelektrode als zusätzliches elektronenoptisches Element, innerhalb eines magnetischen Sektorfeldes. Der Betriebsmodus erlaubt die Durchführung zeitaufgelöster Experimente, mit einzelnen isolierten Bunchen des Füllmusters.

Es wurde eine neue Methode zur direkten Messung des Anregungspulses während zeitaufgelöster Experimente entwickelt. Diese basiert auf zeit- und ortsaufgelöster Sekundärelektronen-Spektroskopie. Die Methode quantifiziert dabei das zeitlich veränderliche Sekundärelektronen-Emissionsspektrum einer Mikrostripline und erlaubt die Analyse von Form und Amplitude des Anregungspules.

In dieser Arbeit wurden erste magnetodynamische Messungen in einem neuartigen aberrationskorrigierten PEEM durchgeführt. Die Messungen erfolgten an mikrostrukturierten Proben der Legierung Permalloy. Mit der neu entwickelten TRACX-PEEM Methode wurde deren zeitliches Ansprechen auf der Picosekunden-Zeitskala untersucht. Zur Überprüfung und Interpretation der magnetodynamischen Messungen wurden mikromagnetische Simulationen durchgeführt.

## **Abstract**

This thesis aims at realizing time-resolved magnetic-imaging in an energy-filtered and aberration-corrected photoemission microscope (TRACX-PEEM).

To routinely make use of higher lateral resolution in conjunction with improved transmission of the latest generation PEEM, the aberration coefficients  $C_3$ ,  $C_c$  of the electron lenses had to be measured experimentally. The phase space of the tetrode mirror-corrector was further on adapted to the determined lens aberrations in order to employ fully automatic and start-energy dependent aberration tracking.

For efficient use of the synchrotron radiation a new time-resolving mode of operation was developed preserving energy-filtering and aberration-correction of the PEEM. The developments consist of a sample holder for excitation of a sample with a magnetic field up to 10 mT within 1 ns. Furthermore, a novel type of deflection gating was developed, to block the electron optical axis within a few nanoseconds. The system involves an electrostatic deflection electrode, as an additional electron-optical element, incorporated in a magnetic prism sector. The new operation mode enables time-resolved experiments using isolated bunches of the filling-pattern.

To directly measure the excitation pulse during time-resolved experiments, a new method based on time- and spatially resolved secondary electron spectroscopy is developed. The method allows for quantifying the time-dependent secondary-electron spectra of a microstripline and further analysis of amplitude and shape of the excitation pulse.

Within this thesis, magnetodynamic measurements using a novel type of aberration-corrected PEEM were performed for the first time. The measurements were carried out on microstructured Permalloy samples. The magnetodynamic response of the latter was explored on the picosecond time-scale exploiting the newly developed TRACX-PEEM method. For additional survey and interpretation of the experiments, micromagnetic simulations were performed.

# Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung	1						
2	The	Theoretische Grundlagen							
	2.1	Stoner-Modell	7						
	2.2	Anisotropie	9						
	2.3	Domänen	12						
	2.4	Magnetisierungsdynamik	14						
3	Ехр	erimentelle Methoden	17						
	3.1	Erzeugung polarisierter Synchrotronstrahlung	17						
	3.2	Magnetischer Röntgenzirkulardichroismus	20						
	3.3	Elektronenoptische Immersionslinsenmikroskopie	23						
		3.3.1 Optische Eigenschaften	24						
		3.3.2 Ausgewählte Abbildungsmodi	31						
	3.4	Die Anrege-Abfrage-Technik	33						
4	Abe	errationskorrigiertes PEEM/LEEM an Beamline UE56/1-SGM	35						
	4.1	Das FE-LEEM P90 AC	35						
	4.2	Der Aberrationskorrektor (Teil I)	40						
	4.3	Experimentelle Bestimmung der Aberrationskoeffizienten	41						
		4.3.1 Messung von $C_c$	41						
		4.3.2 Messung von $C_3$	45						
	4.4	Der Aberrationskorrektor (Teil II)	47						
	4.5	Auflösung	47						
5	Met	chodische Entwicklungen	51						
	5.1	TRACX-PEEM	51						
	5.2	Gating-System	54						
	5.3	Probabalter	62						

### Inhaltsverzeichnis

	6	Direkte Messung des Anregungspulses	67	
	7	Magnetisierungsdynamik von magnetischen Mikrostrukturen		
		7.1 Domänenkonfiguration einer $10\mu m \cdot 6\mu m$ Ellipsenstruktur	73	
		7.2 Vortex-Gyration einer $6\mu m \cdot 6\mu m$ Rechteckstruktur	76	
		7.3 Zukünftige Herausforderungen	79	
	8	Zusammenfassung und Ausblick	81	
Literaturverzeichnis				
	Danksagung			
	Curriculum Vitae			
	Veröffentlichungen			

# 1 Einleitung

Die Entwicklung des Personal Computers Ende der 1970er und sein kommerzieller Vertrieb Anfang der 1980er Jahre [1] begründete zusammen mit der Überschreitung einer kritischen Masse von Nutzern des Internets den Übergang vom Industrie- in das Informationszeitalter unserer heutigen Gesellschaft. Treibend für den Einzug informationstechnologischer Geräte in das Alltagsleben war die technische Möglichkeit große Datenmenge in kurzer Zeit zu prozessieren und zu speichern. Innovationen entsprangen dabei einem völlig neuen Wissenschaftsfeld, der Spintronik oder Spinelektronik [2]. Während konventionelle Elektronik lediglich die Elektronenladung als Freiheitsgrad nutzt, basiert Spintronik auf dem Freiheitsgrad des Elektronenspins zur Speicherung eines Bits, der Darstellung einer Booleschen Variablen oder der Kopplung an ein externes Magnetfeld. Um den Spin als Informationsträger zu nutzen, werden Materialien benötigt, die bei Raumtemperatur eine Spinpolarisation aufweisen. Unter allen Elementen erfüllen nur die Übergangsmetalle Eisen (Fe), Kobalt (Co) und Nickel (Ni) dieses Kriterium. Materialien der Spintronik bestehen daher aus diesen drei Elementen, ihren Verbindungen und Legierungen.

Start des Erfolges der Spintronik war der kommerzielle Einsatz sogenannter Spin-Ventile als Festplattenlesekopf. Diese basieren auf dem Riesen-Magnetowiderstand (giant magnetoresistance, GMR) [3, 4] für dessen Entdeckung Peter Grünberg und Albert Fert mit dem Nobelpreis 2007 geehrt wurden. Der GMR-Effekt tritt in Systemen auf, in denen zwei ferromagnetische Schichten durch eine nanometerdicke, metallische, nichtferromagnetische Schicht getrennt sind. Fließt ein Strom durch die Struktur und die Magnetisierung beider Schichten ist parallel ausgerichtet, befindet sich das Ventil in einem "offenen" Zustand mit niedrigem ohmschen Widerstand. Ist die Magnetisierung antiparallel ausgerichtet, liegt ein "geschlossener" Zustand mit hohem Widerstand vor. Zwischen beiden Zuständen kann eine relative Änderung des Widerstandes um 23% erreicht werden [5]. Die erste Generation dieser Sensoren stellte ab 1997 die Standardtechnik zum Auslesen magnetischer Bits auf einer Festplatte dar und wurde 2005 abgelöst von neuartigen, effizienteren magnetic tunnel junction (MTJ) Sensoren.

Heutzutage zeigt die Spintronik eine Vielzahl zukünftiger Generationen von Anwendungen auf. Neben dem *Racetrack Memory* [6] und dem *magnetic random access memory* (MRAM) [7] zur Speicherung von Information, existieren mit dem Spin-Ventil-Transistor [8] und magnetischen Logik-Elementen [9, 10] zur Prozessierung von Daten neue Wege und Lösungen, welche teilweise bereits heute kommerziell vertrieben werden [11].

Um die Effizienz der Anwendungen zu steigern, muss im Fall der Speicherung auf eine zunehmende Verkleinerung der Bitgröße abgestellt werden, welche in heutigen Festplatten bereits eine typische Größe von etwa 20 nm [12] besitzt. Ein alternatives Konzept besteht beispielsweise in der Nutzung magnetischer Nanopartikel als Bit [13], welche eine Größe von wenigen Nanometern erreichen [14]. Aufgrund des superparamagnetischen Limits weisen Nanopartikel unterhalb einer kritischen Größe, bedingt durch thermische Effekte, keinen zeitlich stabilen Grundzustand auf. Eine Umgehung dieser Einschränkung kann durch höhere magnetische Anisotropie erreicht werden, welche beispielsweise mit Hilfe gekoppelter Systeme induziert wird [15].

Die Möglichkeit ein Bit zu speichern oder zu prozessieren basiert im Kern auf der Manipulation von Spins auf einer charakteristischen Zeitskala. Die Manipulation kann dabei durch ein externes Magnetfeld, spinpolarisierte Ströme oder ultrakurze Laserpulse induziert werden. Im Material selbst verlaufen dabei Prozesse höchst unterschiedlicher Zeitskalen: Die Verschiebung von Domänenwänden auf Milli- und Nanosekunden-Zeitskala [16], die Bewegung von Vortizes [17] oder Präzessionsbewegung der Magnetisierung [18] auf Picosekunden-Zeitskala oder die ultraschnelle Entmagnetisierung durch Laserpulse [19] auf Femtosekunden-Zeitskala. Für die Innovation neuer Anwendungen ist das Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Phänomene auf allen beteiligten Zeitund Längenskalen daher von essentieller Bedeutung. Im Fall anwendungsnaher Mehrschichtsysteme ist darüber hinaus eine Unterscheidung des Verhaltens aller beteiligten Schichten und deren Elementen notwendig.

Neben wissenschaftlicher Neugierde war die Entdeckung der grundlegenden physikalischen Phänomene getrieben von einer kontinuierlichen Entwicklung präparativer und experimenteller Methoden. Erst die Entwicklung der Molekularstrahlepitaxie (MBE) [20] ermöglichte die Präparation ultradünner epitaktischer Schichtsysteme. Deren Untersuchung führte zu Entdeckungen wie der Zwischenschicht-Austauschkopplung [21] und daraus resultierend dem GMR-Effekt. Ebenfalls erlangten bereits vorher bekann-

te Phänomene wie der *Tunnel-Magnetowiderstand* (tunneling magnetoresistance, TMR) [22, 23] oder *Austausch-Anisotropie* [24, 25] eine neue Bedeutung im Kontext dünner magnetischer Filme und deren Anwendung.

Eine große Herausforderung in der experimentellen Untersuchung von magnetischen Systemen ist die Abbildung der magnetischen Struktur. Während die ersten Experimente basierend auf magneto-optischem Kerr-Effekt (MOKE) [26, 27] durchgeführt wurden, offenbarte sich schnell der Nachteil in der begrenzten Auflösung durch die Wellenlänge des Lichtes. Die Technik lässt bei den in der Spintronik relevanten Mehrschichtsystemen darüberhinaus keine Unterscheidung der magnetischen Strukturen einzelner Schichten durch ihre Elemente zu. Der Schlüssel lag im Zusammentreffen der elektronenoptischen Abbildung mittels Photoemissions-Elektronenmikroskopie (PEEM) und dem Einsatz polarisierter Synchrotronstrahlung.

Die kontinuierliche Verfügbarkeit von Synchrotronstrahlung ermöglichte eine elementspezifische Untersuchung von Systemen unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung. Die Entdeckung des magnetischen Röntgenzirkulardichroismus (x-ray magnetic circular dichroism, XMCD) durch SCHÜTZ et. al. [28] oder des magnetischen Röntgenlinear-dichroismus (x-ray magnetic linear dichroism, XMLD) durch VAN DER LAAN et. al. [29] lieferte erstmals die Möglichkeit elementselektiv die Magnetisierungsrichtung und -achse von Ferro- und Antiferromagneten zu untersuchen.

Photoemissionsmikroskopie als elektronenoptische, abbildende Technik war zwar schon seit den grundlegenden Arbeiten von Brüche [30] in den 1930er Jahren bekannt, erlangte allerdings erst durch die Einführung des Ultrahochvakuum ( $p < 10^{-8}$  mbar) durch Telieps & Bauer [31] Relevanz als Methode in der Oberflächenanalytik. Durch die Verfügbarkeit von kommerziellen Geräten folgten rasch synchrotronbasierte Experimente zur elementselektiven Untersuchung mikromagnetischer Domänenkonfiguration durch Stöhr et al. [32]. Magnetische Mehrschichtsysteme offenbarten beispielsweise die antiparallele Kopplung einer Cr Monolage auf einem epitaktischen Fe Film (Schneider et al. [33]) oder den Einfluss der Zwischenschicht-Austauschkopplung auf die Magnetisierungsrichtung innerhalb eines Fe/Cr/Co Systems (Kuch et al. [34]). Nolting et. al. und Ohldag et al. nutzen PEEM zur Untersuchung der Ausrichtung ferromagnetischer zu antiferromagnetischen Spins [35, 36] durch die Kombination von XMCD und XMLD.

Durch die gepulste Zeitstruktur von Synchrotronlicht erfolgten erste wegbereitende zeitauf-

#### 1 Einleitung

gelöste (time-resolved, TR-) PEEM Experimente durch KRASYUK et. al. [37] und VOGEL et. al. [38], wonach sich die Methode an einer Vielzahl von Synchrotronquellen [39, 40] etablierte. Weitere methodische Entwicklungen führten zu einer Zeitauflösung im unteren Picosekundenbereich [41] durch spezielle Füllmuster des Synchrotrons, sowie der Untersuchung komplexer, gekoppelter, magnetischer Heteroschichten [42].

Innerhalb der letzten 15 Jahre wurde in der Photoemissionsmikroskopie ein dramatischer Durchbruch erzielt aufgrund der erfolgreichen Realisierung der Aberrationskorrektur mit elektronenoptischen Spiegeln. Bereits 1947 von Scherzer [43] vorgeschlagen, gelang die experimentelle Umsetzung erst 1997 von Rempfer et al. [44], wenn auch mit einem die Freiheitsgrade zur Korrektur betreffenden limitiertem System. Ein verbesserter Tetroden-Spiegel zur unabhängigen Korrektur sphärischer und chromatischer Aberration wurde von Preikzas & Rose vorgeschlagen [45]. Dessen experimentelle Umsetzung sowie die Demonstration seiner Korrektur erfolgte innerhalb des SMART-Projektes von Schmidt et al. [46]. Gleichzeitig startete bei IBM die Entwicklung eines aberrationskorrigierten und energiegefilterten PEEM/LEEM Instrumentes mit Fokus auf einem möglichst einfachen optischen Design [47]. Beide Instrumente sind seit 2010 kommerziell erhältlich [48, 49] und liefern durch ihre optische Konstruktion eine um etwa eine Größenordnung verbesserte laterale Auflösung einhergehend mit höherer Transmission gegenüber Standartinstrumenten.

Eine neue Generation aberrationskorrigierter Photoemissionsmikroskope (AC-PEEM) stellt ideale Voraussetzungen bereit, die Grenzen bisheriger TR-PEEM Experimente hin zu kürzeren Längen- und Zeitskalen zu verschieben. Erstmals weist PEEM unter Nutzung von Synchrotronstrahlung eine theoretische laterale Endauflösung von 3,5 nm auf [50]. Die Auflösung der Geräte fällt damit zusammen mit der magnetischen Austauschlänge der in der Spintronik essentiellen Elemente Co, Ni, und Fe, so dass die Methode erstmals eine vollständige Aufklärung der magnetischen Struktur neuartiger Materialien zulässt. Mit dem Ziel ein Experiment für zeitaufgelöste Photoemissionsmikroskopie zu optimieren, wurde 2010 ein energiegefiltertes und aberrationskorrigiertes PEEM/LEEM an dem FZ Jülich Weichröntgenstrahlrohr UE56/1-SGM des Berliner Elektronenspeicherrings BESSY II installiert. Das Instrument ist das erste kommerzielle und, neben dem SMART-Prototypengerät, das einzige aberrationskorrigierte PEEM an einem Synchrotron. Das Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung und Implementierung eines neuen Betriebsmodus zur Durchführung synchrotronbasierter zeitaufgelöster aberrationskorrigierter X-PEEM Experimente (TRACX-PEEM). Darüberhinaus beschäftigt

sich diese Arbeit mit der Magnetisierungsdynamik von Mikrostrukturen. Zur Untersuchung des magnetischen Ansprechens wurden diese durch zwei inverse Magnetfeldpulse unterschiedlicher Amplitude angeregt. Die Untersuchungen wurden an der in der Spintronik wichtigen Legierung  $Ni_{81}Fe_{19}$  durchgeführt.

Diese Arbeit gliedert sich wie folgt:

Kapitel 2 beschreibt theoretische Grundlagen des Ferromagnetismus der 3d-Übergangsmetalle. Diese sind notwendig zum Verständnis und zur Interpretation der in dieser Arbeit experimentell erhaltenen Ergebnisse. Darüberhinaus wird auf die wirkenden Energiebeiträge eingegangen, welche die Form magnetischer Domänen in Strukturen der Mikrometerskala verantworten. Abschliessend wird in diesem Kapitel eine Bewegungsgleichung des lokalen Magnetisierungsvektors einer Probe eingeführt, welche die Beschreibung und Interpretation der in dieser Arbeit durchgeführten zeitabhängigen Experimente ermöglicht.

Kapitel 3 fasst alle in dieser Arbeit benutzten experimentellen Methoden zusammen. Neben der Erzeugung von Synchrotronstrahlung wird der XMCD-Effekt beschrieben. Letzterer dient als Kontrastmechanismus zur Quantifizierung der Magnetisierungsrichtung der in dieser Arbeit untersuchten Proben. Diese wurden mit der Technik der Photoemissionsmikroskopie abgebildet, welche beschrieben sowie Grundlagen eines zeitauflösenden Abbildungsmodus aufgezeigt werden.

Die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurden mit einem neuartigen, aberrationskorrigierten und energiegefiltertem Photoemissionsmikroskop durchgeführt. Kapitel 4 legt die experimentelle Bestimmung der Aberrationskoeffizienten des Systems dar.

Zur Durchführung der zeitaufgelösten Experiment musste eine wesentliche Erweiterung des Mikroskops entwickelt und implementiert werden. Kapitel 5 beschreibt die Entwicklung eines Probenhalters zur Anregung einer Probe mit Magnetfeldpulsen der Länge von 1 ns. Darüberhinaus wurde zum effizienteren Nutzen der Synchrotronstrahlung ein Ablenkungssystem entwickelt, dessen Konstruktion, Implementierung und Anwendung ebenfalls dargestellt wird.

Das Energiefiltersystem des benutzten Mikroskops lässt eine direkte Messung des Anregungspulses bei zeitaufgelösten Messungen zu. Kapitel 6 beschreibt die neuartige Mess-

#### 1 Einleitung

methode sowie Ergebnisse.

Kapitel 7 beschreibt die Untersuchung des magnetodynamischen Ansprechens von Permalloy ( $Ni_{81}Fe_{19}$ ) Mikrostrukturen auf einen bipolaren Anregungspuls. Der Fokus liegt dabei auf der erfolgreichen Umsetzung eines neuartigen zeitauflösenden, aberrationskorrigierten und energiegefilterten Betriebsmodus. Die experimentellen Daten werden mit durchgeführten Simulationen verglichen. Dabei wird die Gültigkeit des in Kapitel 6 beschriebenen Messverfahrens verifiziert.

In Kapitel 8 erfolgt eine Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse sowie der Ausblick auf zukünftige Experimente.

# 2 Theoretische Grundlagen

Das vorliegende Kapitel beschreibt die physikalischen Grundlagen zum Verständnis des in dieser Arbeit untersuchten Zeitverhaltens ferromagnetischer Einzel- und Heteroschichten. Zunächst erfolgt eine kurze Einführung des Ferromagnetimus der 3d-Übergangsmetalle im Rahmen des Stoner-Modells. Darauf folgend werden innerhalb der mikromagnetischen Kontinuumstheorie die wirkenden Energiebeiträge (Anisotropien), sofern in dieser Arbeit von Belang, aufgestellt. Diese bestimmen ursächlich die in dieser Arbeit untersuchten mikromagnetischen Dömänenformationen. Abschließend erfolgt die Beschreibung magnetodynamischer Prozesse anhand der Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung.

#### 2.1 Stoner-Modell

Die Beobachtung zeigt, dass die 3d-Übergangsmetalle Fe, Co und Ni bei Raumtemperatur eine spontane ferromagnetische Ordnung aufweisen. Die Ursache liegt im quantenmechanischen Effekt der Austausch-Wechselwirkung im Zusammenspiel mit der Zustandsdichte an der Fermikante. Aufgrund des PAULI-Prinzipes dürfen Elektronen gleichen Spins nicht denselben quantenmechanischen Zustand einnehmen. Als Konsequenz erfolgt die Besetzung von Zuständen höherer kinetischer Energie. Gleichzeitig verursachen Symmetrieeigenschaften der Gesamtwellenfunktion eine Verringerung der Coulombenergie. Eine parallele Spinkonfiguration ist demnach energetisch günstiger, falls die Reduzierung von Coulombenergie größer als der Anstieg von kinetischer Energie bei der Parallelstellung ist.

Die experimentell ermittelten nicht-ganzzahligen magnetischen Momente (Fe =  $2,22\mu_B$ ; Co =  $1,715\mu_B$ ; Ni =  $0,605\mu_B$  [51]) lassen sich nicht durch ein Modell stark lokalisierter Momente im Atom erklären. Vielmehr liefern sie einen ersten Hinweis auf Band-Magnetismus durch spontan spinaufgespaltene Bänder. Das einfachste Modell zur Beschreibung des Band-Ferromagnetismus ist das Stoner-Modell [52]. Die im Folgenden durchgeführte Beschreibung folgt Blundell [53].

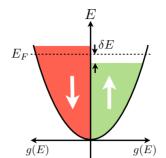


Abbildung 2.1 – Schematische Darstellung der spontan spinaufgespaltenen Zustandsdichte eines Metalls.

Abbildung 2.1 illustriert das Szenario, in dem eine geringe Anzahl an Spin +1/2 Elektronen ihren Spin nach -1/2 drehen. Damit einhergehend ist, aufgrund der freien Zustände der Zustandsdichte g(E), eine Änderung ihrer Energie von  $E_f - \delta E$  zu  $E_f + \delta E$ . Die Anzahl der um den Energiebetrag  $\delta E$  verschobenen Elektronen ist dabei  $\frac{g(E_F)}{2}\delta E$ , so dass die Erhöhung der kinetischen Energie

$$\Delta E_{kin} = \frac{1}{2}g(E_F)(\delta E)^2 \tag{2.1.1}$$

beträgt. Dies ist für das System zunächst ein nicht favorisierter Zustand. Der Energiegewinn durch die Reduzierung des Überlapps der Wellenfunktionen stellt die Änderung der potentiellen Energie des Systems dar. Durch eine Erhöhung des mittleren Abstandes der Elektronen mit parallelem Spin (Austauschloch) wird die Coulombenergie reduziert. Mit Hilfe des Stoner-Parameters I als Maß für die Coulombenergie folgt:

$$\Delta E_{pot} = -\frac{1}{2}I(g(E_F)\delta E)^2 \tag{2.1.2}$$

Die Änderung  $\Delta E$  der Gesamtenergie ist damit:

$$\Delta E = \Delta E_{kin} + \Delta E_{pot} \tag{2.1.3}$$

$$= \frac{1}{2}g(E_F)(\delta E)^2 (1 - Ig(E_F))$$
 (2.1.4)

Spontaner Ferromagnetismus ist demnach möglich wenn  $\Delta E < 0$  erfüllt ist, so dass

$$Ig(E_F) \ge 1 \tag{2.1.5}$$

gilt. Dieser formale Zusammenhang ist als Stoner-Kriterium bekannt. Für den Fall der

3d-Metalle gilt für die Austauschwechselwirkung  $I \approx 1\,\mathrm{eV}$  [51]. Das Auftreten spontaner ferromagnetische Ordnung erfordert daher starke Coulombwechselwirkung einhergehend mit einer hohen Zustandsdichte an der Fermikante. Dies ist für die Elemente Fe, Co und Ni erfüllt, jedoch nicht für Cu.

Im nächsten Abschnitt erfolgt die formale Beschreibung der wirkenden mikromagnetischen Energiebeiträge. Dazu ist die Kenntnis der in der Austauschwechselwirkung gespeicherten Energie innerhalb der Kontinuumsnäherung hilfreich. Der Hamiltonian des Zwei-Spin-Systems lässt sich im Heisenberg-Formalismus auf den Festkörper mit n Atomen erweitern. Dabei wird gemäß  $\mathcal{H} = \sum_{ij} J_{ij} \mathcal{S}^i \mathcal{S}^j$  über alle nächste Nachbarn (i,j) und deren korrespondierendes Austauschintegral  $J_{ij}$  summiert. Die Annahme klassischer Spins in Kleinwinkelnäherung  $\mathcal{S}^i \mathcal{S}^j \approx \mathcal{S}^2 \cdot \Phi_{i,j}$  und die Einführung eines reduzierten magnetischen Momentes  $\vec{m}$ , welches sich als Richtungscosinus der Spins am Gitterpunkt  $\vec{r}_{ij}$  interpretieren lässt, führt zu:

$$E_{Aus} = JS^2 \sum_{ij} \left( (\vec{r}_{i,j} \cdot \nabla) \, \vec{m} \right)^2 \tag{2.1.6}$$

Schließlich wird durch Vernachlässigung der periodischen Gitterstruktur die Summe über einzelne lokalisierte Momente in eine Integration über das Kristallvolumen überführt:

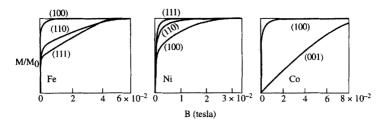
$$E_{Aus} = A \int_{V} (\nabla m_x)^2 + (\nabla m_y)^2 + (\nabla m_z)^2 dV$$
 (2.1.7)

Das Austauschintegral J wird hierbei durch einen materialspezifischen Parameter A ersetzt [54]. Dieser ist die sogenannte exchange stiffness in Einheiten  $J/m^3$ .

## 2.2 Anisotropie

Das Experiment zeigt, dass sich die Magnetisierung eines Kristalls in bestimmte Richtungen leichter, in andere schwerer, ausrichten lässt. Abbildung 2.2 veranschaulicht den Sachverhalt am Beispiel von einkristallinem Fe, Co und Ni [55, 56, 57]. Folglich existieren in jeder Probe eine (oder mehrere) Vorzugsrichtungen.

Die Ausrichtung der Magnetisierung, ohne externes Magnetfeld, entlang einer Vorzugsrichtung, ist verbunden mit der Minimierung der freien Energie. Lokale Minima der freien Energie werden als leichte, lokale Maxima als schwere Achse bezeichnet. Stöhr & Siegmann [51] folgend ist Anisotropie definiert als die benötigte Energie  $E_{Ani}$ , die Magneti-



**Abbildung 2.2** – Magnetisierung von Fe, Co und Ni Einkristallen für verschiedene Richtungen in einem externen Magnetfeld aus [53].

sierung von einer leichten in eine harte Achse zu drehen. Bei Umkehr der Magnetisierung darf die Energie keine Änderung erfahren, so dass sich ein formaler Zusammenhang

$$E_{Ani} = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + \dots {(2.2.1)}$$

als Reihenentwicklung gerader Terme aufstellen lässt. Hierbei beschreiben  $K_i$  spezifische Anisotropiekonstanten der Dimension  $J/m^3$  und  $\theta$  den Winkel zwischen Magnetisierung und weicher Achse. Die Anisotropie übt demnach ein Drehmoment  $T_{Ani} = \partial E_{Ani}/\partial \theta \approx 2K_1 \cos \theta \sin \theta$  auf die Magnetisierung aus.

Phänomenologisch kann die magnetische Anisotropie einem effektiven magnetischen Feld  $H_{Ani}$  zugeordnet werden. Letzteres ist definiert als das Feld, welches ein zur Anisotropie identisches Drehmoment  $T_{ani} = \mu_0 \vec{M} \times \vec{H} = \mu_0 M H \sin \theta$  ausübt. Da der Anisotropiebeitrag  $K_1$  typischerweise sehr viel größer ist als die Beiträge höherer Ordnung, folgt für das magnetische Anisotropiefeld in erster Näherung:

$$H_{Ani} = \frac{2K_1}{\mu_0 M} \cos \theta \tag{2.2.2}$$

Die Austauschlänge

$$l_{Aus} = \sqrt{\frac{A}{K_1}} \tag{2.2.3}$$

definiert dabei eine charakteristische Länge des Systems, unterhalb derer die atomare Austausch-Wechselwirkung typische magnetostatische Felder dominiert. Anschaulich ist es die Längeneinheit, innerhalb der eine durch die Anisotropie  $K_1$  bestimmte Magnetisierung ihre Richtung wechseln kann.

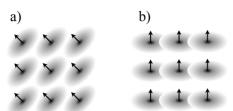


Abbildung 2.3 – Schematische Darstellung der magnetokristallinen Anisotropie.

Die Anisotropie im Festkörper der 3d-Übergangsmetallen setzt sich aus zwei verschiedenen Beiträgen zusammen. Diese haben völlig unterschiedliche mikroskopische Ursachen und sollen daher im Folgenden getrennt diskutiert werden.

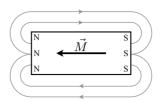
Magnetokristalline Anisotropie begründet sich physikalisch in der Spin-Orbit-Kopplung. Nach VAN VLECK [58] koppelt dadurch ein isotropes Spin-Moment an ein anisotropes Kristallgitter. Abbildung 2.3 illustriert den Sachverhalt schematisch nach BERGMANN & SCHÄFER [59]. Das elektronische System im Festkörper strebt nach einem energetisch günstigen Zustand durch Minimierung des Überlapps der Ortswellenfunktionen. Die Orbitale richten sich demnach entlang bestimmten Vorzugsrichtungen aus. Durch Spin-Orbit-Kopplung folgt der Spin und damit einhergehend die makroskopische Magnetisierung der Ausrichtung der Orbitale. Der Spin-Orbit-Hamiltonian  $\mathcal{H} = \zeta(r)\mathcal{L}\cdot\mathcal{S}$  mit der Kopplungskonstanten  $\zeta(r)$  liefert die in der Kopplung gespeicherte Energie. Die magnetokristalline Anisotropie ist definiert als Energiedifferenz der Beiträge bei Ausrichtung entlang weicher und harter Achse:

$$E_{MKA} = \sum_{hart} \zeta(r) \mathcal{L} \cdot \mathcal{S} - \sum_{weich} \zeta(r) \mathcal{L} \cdot \mathcal{S}$$
(2.2.4)

Aufgrund des kleinen orbitalen magnetischen Moments der 3d-Übergangsmetalle Fe, Co und Ni trägt die magnetokristalline Anisotropie lediglich einen geringen Beitrag von  $10-100\,\mathrm{meV}$  pro Atom zur Gesamtenergie bei [51].

Formanisotropie begründet sich in der Minimierung des von der lokalen Magnetisierung selbst verursachten Streufeldes. Die Quellen und Senken der Magnetisierung repräsentieren dabei magnetische Ladungen an der Strukturgrenze, welche ursächlich für das Streufeld wirken. Abbildung 2.4 veranschaulicht den Sachverhalt schematisch. HUBERT & SCHÄFER [60] folgend lässt sich das von der Divergenz der Magnetisierung  $\vec{M}$ 

Abbildung 2.4 – Schematische Darstellung des Streufeldes eines unidirektional magnetisierten Rechteck-Elementes.



verursachte Streufeld  $\vec{H}_F$  gemäß

$$\nabla \vec{H}_F = -\nabla \left(\frac{\vec{M}}{\mu_0}\right) \tag{2.2.5}$$

formulieren. Die Energie einer magnetischen Probe in ihrem Streufeld ist daher gegeben als:

$$E_F = \frac{1}{2}\mu_0 \int_{Raym} \vec{H}_F^2 dV = -\frac{1}{2}\mu_0 \int_{Probe} \vec{H}_F \cdot \vec{M} dV$$
 (2.2.6)

Das Streufeld ist ferner über einen symmetrischen Entmagnetisierungstensor mit der Magnetisierung verknüpft:  $\vec{H}_F = \mathcal{N}\vec{M}$ . Im einfachen Fall eines unendlich ausgedehnten dünnen Films sind alle Tensorelemente  $N_{k,l} \equiv 0$  mit Ausnahme von  $N_{3,3} = 1$ . Der Energiebeitrag der Formanisotropie folgt nach Gleichung 2.2.6 zu

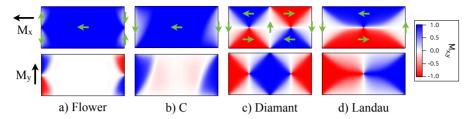
$$E_F = -\frac{1}{2}\mu_0 V \vec{H}_F \cdot \vec{M} = -\frac{1}{2}\mu_0 V M_S^2 \cos^2 \theta.$$
 (2.2.7)

Hierin beschreibt  $\theta$  den Winkel zur Oberflächennormalen sowie  $\frac{\mu_0 M_S^2}{2} = K_F$  die Formanisotropiekonstante. Aus der Winkelabhängigkeit folgend nimmt das System einen energieminimierten Zustand ein, wenn die Magnetisierung in der Oberflächenebene ausgerichtet ist.

Verallgemeinert kann für den Fall ausgedehnter dünner Filme zusammengefasst werden, dass magnetokristalline Anisotropie eine out-of-plane und Formanisotropie eine in-plane Magnetisierung anstrebt [51].

#### 2.3 Domänen

Die freie Energie einer ferromagnetischen Einzelschicht ist gegeben durch die in den letzten Abschnitten beschriebenen Austausch- und Anisotropieterme. In einem externen



**Abbildung 2.5** – Exemplarische Domänenmuster einer  $1\mu$ m·2 $\mu$ m·5nm Permalloy-Struktur simuliert mit OOMMF [61]. a) Flower-Zustand mit  $E_{tot}=1392$  J/m³. b) C-Zustand mit  $E_{tot}=1168$  J/m³. c) Diamant-Zustand mit  $E_{tot}=1050$  J/m³. d) Vortex-Zustand mit  $E_{tot}=879$  J/m³.

Magnetfeld der Energie  $E_{Zee}$  folgt als formaler Zusammenhang der freien Energie des Gesamtsystems:

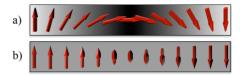
$$E_{tot} = E_{Aus} + E_{MkA} + E_F + E_{Zee} \tag{2.3.1}$$

$$= \int_{V} \left( A \cdot (\nabla \vec{m})^{2} + f_{MkA} - \frac{\mu_{0}}{2} \vec{H}_{F} \cdot \vec{M} + \mu_{0} \vec{H}_{ext} \cdot \vec{M} \right) dV$$
 (2.3.2)

Ein Gleichgewichtszustand  $\vec{M}(\vec{r})$  der Magnetisierung folgt aus der Minimierung der Gesamtenergie und resultiert, abhängig der Startbedingungen, in einem relativen Minimum von  $E_{tot}$ .

Abbildung 2.5 zeigt exemplarisch einige simulierte Domänenmuster einer  $1\mu m \cdot 2\mu m \cdot 5$ nm Permalloy-Struktur. Die Rechnungen wurden mit dem mikromagnetischen Simulationsprogramm OOMMF (object oriented micromagnetic framework) [61] durchgeführt. Die verschiedenen Domänenzustände stellen stabile Gleichgewichtszuständ dar und repräsentieren lokale Minima von Gleichung 2.3.1. Die Simulationen wurden mit einer Zellgröße von 5 nm durchgeführt, wobei die komplette Struktur durch Erhöhen der Zeemanenergie quasistatisch auf ein definiertes Niveau gesättigt und anschließend relaxiert wurde. Die beiden hochenergetischen Zustände (Flower und C) stellen dabei remanente Zustände dar, in denen der Großteil der Struktur in eine Richtung magnetisiert ist. Die niederenergetischen Domänenformationen (Diamant und Landau) sind makroskopisch nicht magnetisiert und stellen sogenannte flux-closure-Formationen dar. Die Magnetisierungrichtung ihrer Domänen beschreibt eine kontinuierliche Rotation innerhalb der Struktur.

**Abbildung 2.6** – NÉEL-Wand (a) und BLOCH-Wand (b) eines in-plane magnetisierten dünnen Films.



Der Übergang zweier Domänen erfolgt entweder durch eine in-plane (NÉEL-Wand) oder out-of-plane (BLOCH-Wand) Rotation. Abbildung 2.6 veranschaulicht beide Möglichkeiten. In dünnen Filmen mit hoher Formanisotropie, welche in dieser Arbeit untersucht werden, sind Néel-Wände der energetisch favorisierte Zustand. Ihre charakteristische Länge ist analog zur Austauschlänge gegeben durch die Formanisotropiekonstante gemäß

$$l_N = \sqrt{\frac{2A}{\mu_0 M_S^2}} \tag{2.3.3}$$

und liegt im Fall der 3d-Übergangsmetalle in der Größenordnung von 10 Nanometern.

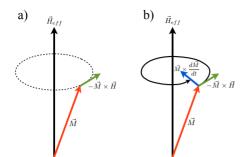
### 2.4 Magnetisierungsdynamik

Ein magnetisches Moment  $\vec{\mu}$  erfährt in einem homogenen Magnetfeld  $\vec{H}$  ein Drehmoment gemäß  $\vec{T} = \vec{\mu} \times \vec{H}$ . Mit dem Drehmoment als zeitlicher Ableitung des Drehimpulses  $\frac{d\vec{L}}{dt} = \vec{T}$  sowie  $\vec{\mu} = \gamma_0 \vec{L}$ , mit dem gyromagnetischen Verhältnis  $\gamma_0$ , folgt die Bewegungsgleichung:

$$\frac{d\vec{\mu}}{dt} = \gamma_0 \left( \vec{\mu} \times \vec{H} \right) \tag{2.4.1}$$

Im Festkörper wird das lokale magnetische Moment durch die makroskopische Magnetisierungsrichtung der Probe  $\mu_0 \vec{M}$  ersetzt. Darüberhinaus beschreibt ein externes Magnetfeld nicht mehr die alleinige Ursache für ein wirkendes Drehmoment. Vielmehr müssen alle im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Anisotropiebeiträge berücksichtigt werden. Das effektive im Festkörper wirkende Magnetfeld ist gegeben als negative partielle Ableitung der freien Energiedichte nach der Magnetisierung:

$$\mu_0 \vec{H}_{eff} = -\frac{\partial f(\vec{M})}{\partial \vec{M}} \tag{2.4.2}$$



**Abbildung 2.7** – Illustration der Präzessionsbewegung der Magnetisierung  $\vec{M}$  um ein effektives Feld  $\vec{H}_{eff}$ . Ohne (a) und mit (b) Dämpfung.

Daraus folgt die als Bloch-Gleichung bekannte Bewegungsgleichung ohne Relaxation:

$$\frac{d\vec{M}(t)}{dt} = -\mu_0 \gamma_0 \left( \vec{M}(t) \times \vec{H}(t) \right) \tag{2.4.3}$$

Gleichung 2.4.3 beschreibt die Präzessionsbewegung der Magnetisierung um ein effektives magnetisches Feld. Abbildung 2.7 a) illustriert den Sachverhalt schematisch. Die Magnetisierung richtet sich in diesem Fall niemals parallel zum wirkenden Feld aus. Dies ist gleichbedeutend mit einer bis in alle Zeiten andauernden Präzessionsbewegung und widersprüchlich zur experimentellen Beobachtung, wonach sich die Magnetisierung im Feld innerhalb weniger Nanosekunden in einen Gleichgewichtszustand ausrichten kann. Um das Abklingen der Präzessionsbewegung zu beschreiben, kann ein zusätzlicher dämpfender Term eingeführt werden. Dieser ist proportional zur zeitlichen Änderung der Magnetisierung und skaliert mit dem phänomenologischen Dämpfungsfaktor  $\alpha$  gemäß:

$$\vec{H}_d = -\alpha \frac{1}{\gamma_0 \mu_0 M_S} \frac{d\vec{M}(t)}{dt} \tag{2.4.4}$$

Einsetzen in Gleichung 2.4.3 führt zur bekannten Gilbert-Gleichung:

$$\frac{d\vec{M}(t)}{dt} = -\mu_0 \gamma_0 \left( \vec{M}(t) \times \vec{H}(t) \right) + \frac{\alpha}{M_S} \left( \vec{M}(t) \times \frac{\vec{M}(t)}{dt} \right)$$
 (2.4.5)

Abbildung 2.7 b) zeigt die Präzessionsbewegung der Magnetisierung nach Gleichung 2.4.5. Die Magnetisierung relaxiert aufgrund des Dämpfungsterms in endlicher Zeit in einen Zustand parallel zum effektiven Magnetfeld.

2 Theoretische Grundlagen

# 3 Experimentelle Methoden

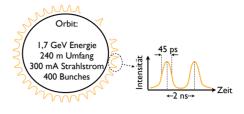
Das vorliegende Kapitel beschreibt die in dieser Arbeit verwendeten experimentellen Methoden. Beginnend mit einer kurzen Zusammenfassung der Erzeugung polarisierter Synchrotronstrahlung wird der XMCD-Effekt eingeführt. Anschließend wir die Technik der Immersionslinsenmikroskopie kurz umrissen, bevor mit der Anrege-Abfrage-Technik eine Methode gezeigt wird, welche die Basis für ein synchrotronbasiertes zeitaufgelöstes Experiment darstellt.

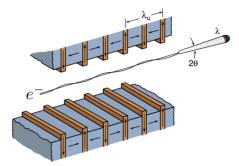
### 3.1 Erzeugung polarisierter Synchrotronstrahlung

Die klassische Elektrodynamik zeigt, dass beschleunigte, geladene Teilchen Strahlung emittieren [62]. Ein Teilchen, welches durch Zentripetalbeschleunigung  $\vec{a}$  auf eine Kreisbahn von Radius r gezwungen wird, zirkuliert dort gleichförmig mit einer zur Beschleunigung senkrechten Geschwindigkeit  $\vec{v}$ . Für Geschwindigkeiten im klassischen Grenzfall strahlt dieses mit einer torusförmigen Dipolcharakteristik  $\propto sin^2\Theta$  ab. Hierin ist  $\Theta$  der Abstrahlwinkel zur Beschleunigung  $\vec{a}$ . Für Geschwindigkeiten  $v \approx c$  beschreibt die Strahlungscharakteristik eine scharfe Keule in Richtung  $\vec{v}$ . Die gesamte Strahlungsleistung wird dabei im Winkel  $\Theta = 2/\gamma$  mit  $\gamma = 1/\sqrt{(1-v^2/c^2)}$  emittiert, wobei das energetische Spektrum der erzeugten Strahlung durch  $\omega = 3v\gamma^3/r$  gegeben ist. Dieser Effekt wird zur Erzeugung von Synchrotronstrahlung ausgenutzt.

Historisch betrachtet, wurde Synchrotronstrahlung zunächst als unerwünschter Energieverlust bei Speicherringen der Teilchenphysik wahrgenommen. Eine anfänglich parasitäre Nutzung der erzeugten Strahlung in den 1970er Jahren zeigte rasch einen immensen Nutzen als experimentelle Methode in einer Vielzahl von naturwissenschaftlichen Disziplinen, aber auch Medizin [63], Kunst [64] und Archäologie [65]. Heutzutage existieren weltweit eine Vielzahl von Speicherringen, die speziell für die experimentelle Nutzung der Synchrotronstrahlung optimiert sind. Im Berliner Elektronenspeichering und Synchrotron BESSY II [66] werden relativistische Elektronen einer Energie von 1,7 GeV durch 32 Dipolmagnete auf eine geschlossene Bahn gezwungen. Der Orbit beschreibt in

Abbildung 3.1 – Schematische Darstellung der Zeitstruktur der im Speichering zirkulierenden Elektronenpakete am Beispiel von BESSY II.





**Abbildung 3.2** – Schematische Darstellung der Elektronenbahn im Undulator mit Strahlungskeule des Synchrotronlichtes aus [67].

diesem Fall ein als Kreis anzunäherndes Vieleck. Zur Kompensation der abgestrahlten Leistung werden über eine Kavität Mikrowellen von typischerweise 500 MHz in den Ring eingekoppelt. Diese beschleunigt zirkulierende Elektronen auf ihre Sollenergie und besitzt eine fokussierende Eigenschaft zum Punkt maximaler Änderung der Radiowelle in jeder Periode. Wie in Abbildung 3.1 dargestellt durchlaufen Elektronen den Orbit daher in Paketen (engl. Bunch) [67]. Die einzelnen Bunche sind dabei um jeweils 2 ns getrennt, wobei ihr abgestrahltes Licht näherungsweise einen GAUSS-förmigen Puls von etwa 50 ps Länge beschreibt.

Einen Meilenstein in der experimentellen Nutzung stellt der Einsatz sogenannter Insertion Devices in den geraden Driftstrecken zwischen zwei Strahlführungsmagneten dar. Zur Erzeugung von Röntgenstrahlung hoher Brillianz, einer zur Charakterisierung von Intensität und Emissionswinkel eingeführten Größe, durchläuft der Elektronenstrahl hierbei eine periodisch angeordnete Magnetstruktur. Eine heutzutage vielfältig verwendete Technik ist der Einsatz eines Undulators (siehe Abbildung 3.2). Interferenz, der in jeder Periode identisch erzeugten Strahlung, führt dabei zu einer monochromeren Strahlung höherer Intensität. Das in einen Winkel  $\Theta = 1/\gamma \sqrt{n}$  emittierte Spektrum

$$n\lambda = \frac{\lambda_U}{2\gamma^2} \left( 1 + \frac{K^2}{2} + \gamma^2 \theta^2 \right) \qquad (n = 1, 2, 3...)$$
 (3.1.1)

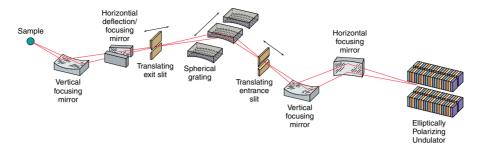


Abbildung 3.3 - Schematischer Aufbau eines Strahlrohres aus [67].

stellt dabei eine Überlagerung mehrerer Harmonischer schmaler Energiebreite, aber hoher Spitzenintensität, dar. Die Energie der Harmonischen ist aufgrund von  $K \propto B$  durch Veränderung der Magnetfeldstärke variabel. Bei Teilchenenergien im GeV Bereich und korrespondierenden Umlaufgeschwindigkeiten von wenigen m/s unterhalb Lichtgeschwindigkeit ergibt sich ein Abstrahlwinkel in der Größenordung von 0,1 mrad.

Zur Untersuchung magnetischer Effekte ist die Variabilität der Polarisation der emittierten Strahlung von großer Bedeutung. Die Polarisation  $\sigma$  ist aufgrund von Drehimpulserhaltung verknüpft mit dem Drehimpuls  $\vec{L}$  der emittierenden Elektronen. Zeigt  $\vec{L}$  senkrecht aus der Ebene des Orbits, ist die Projektion des Vektors zur Bahn des Elektrons identisch Null. Von dort emittierte Strahlung ist linear polarisiert. Strahlung emittiert von Elektronen über oder unterhalb der Kreisebene weist eine endliche Projektion auf, so dass ein entprechender Drehimpuls auf das Photon übertragen wird. Eine Verschiebung der Pole um eine halbe Periodenlänge legt die sinusförmige Flugbahn der Elektronen parallel, oder senkrecht, zur Kreisebene. Eine Verschiebung um eine Viertel Periodenlänge erzeugt eine Schraubenbahn um die Undulatorachse. Durch Überlagerung von horizontal und vertikal polarisierter Strahlung mit einem induzierten Phasenunterschied von  $\pi/2$  wird zirkular polarisierte Strahlung emittiert.

Um die im Undulator erzeugte Strahlung dem Experiment zugänglich zu machen, wird diese über eine geeignete Optik, dem sogenannten Strahlrohr (engl. Beamline), weitergeleitet. Abbildung 3.3 zeigt einen typischen Aufbau eines Weichröntgenstrahrohres schematisch. Zur Selektion eines Energiespektrums wird die Strahlung an einem Gitter im sogenannten Monochromator gebeugt und räumlich dispergiert. Durch eine Schlitzblende vor dem Experiment kann so ein scharfes Energieband selektiert werden. Durch

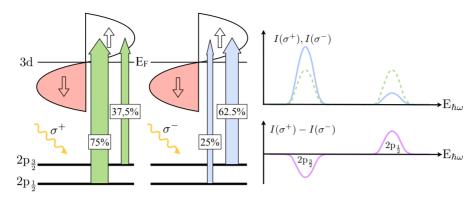


Abbildung 3.4 – Röntgenabsorption an den L-Kanten mit zirkular polarisiertem Licht. Die unterschiedlichen Übergangswahrscheinichkeiten repräsentieren den XMCD-Effekt.

eine weitere Kombination von fokussierenden Spiegeln wird die Synchrotronstrahlung auf der Probe in einen Bereich kleiner  $100\mu \text{m} \cdot 100\mu \text{m}$  fokussiert.

### 3.2 Magnetischer Röntgenzirkulardichroismus

Das Wort Dichroismus stammt aus dem Griechischen und bedeutet Zweifarbigkeit. Im optischen Spektralbereich beschreibt es die Eigenschaft von Kristallen ihre Farbe zu ändern, wenn sie mit Licht unterschiedlicher Polarisation oder Winkel beleuchtet werden und ist Ursache optischer Anisotropie des Kristalls. Dichroismus tritt ebenfalls bei Anregung mit Röntgenstrahlung auf. Liegt die Symmetriebrechung als Ursache des Dichroismus dabei in magnetischen Eigenschaften der Probe, wie beispielsweise spontanem Ferromagnetismus, spricht man von magnetischem Zirkulardichroismus (x-ray magnetic circular dichroism, XMCD). XMCD wurde 1975 von ERSKINE & STERN theoretisch vorhergesagt [68] und 1987 von SCHÜTZ et al. experimentell nachgewiesen [28].

Der XMCD-Effekt beruht auf der Abfrage von Spin- und Bahnpolarisation der unbesetzten Zustände oberhalb der Fermienergie, durch Anregung von Elektronen aus kernnahen Niveaus. Notwendigerweise muss für die Ausbildung des Effekts in einer Probe ein spin- oder orbitalpolarisierter elektronischer Übergang sowie eine austauschaufgespaltene Zustandsdichte vorliegen. Dieser Sachverhalt ist für die in dieser Arbeit betrachteten  $2p \to 3d$  Übergänge erfüllt und in Abbildung 3.4 dargestellt.

Die quantenmechanische Essenz der Röntgenabsorption ist gegeben durch FERMIS Goldene Regel. Diese beschreibt die Übergangswahrscheinlichkeit aus einem initialen Zustand  $|i\rangle$  zum Endzustand  $|f\rangle$  mit den Bindungsenergien  $(E_i)$ ,  $(E_f)$ :

$$P_{i \to f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f|H|i \rangle|^2 \delta(E_i - E_f - h\nu)$$
(3.2.1)

Das Übergangsmatrixelement  $M_{i\to f}=< f|H|i>$  ist hierin bestimmt durch die Wellenfunktionen des Anfangs- und Endzustandes sowie im allgemeinsten Fall dem Hamiltonoperator des Systems, während die Delta-Funktion Energieerhaltung während des Emissionsprozesses sichert. Bei niedrigem Photonenfluss auf die Probe kann der Operator H innerhalb linearer Antworttheorie genähert werden. Mit dem Wellen-  $(\vec{k})$  und Polarisationsvektor  $(\vec{\epsilon})$  des Photons sowie dem Impulsoperator  $\vec{p}$  des Elektrons im Festkörper folgt:

$$M_{i \to f} = \langle f \mid \vec{p} \cdot \epsilon e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \mid i \rangle \tag{3.2.2}$$

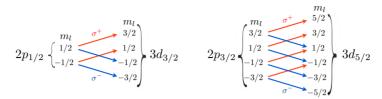
Bei Photoemission mit Weichröntgenstrahlung im Energiebereich von  $\hbar\omega \leq 1000\,eV$ , beziehungsweise  $\lambda=1.2\,nm$ , aus einer 2p-Schale mit  $|\vec{r}|\simeq 0,01\,nm$  Bohrschem Elektronenradius-Äquivalent kann durch Gültigkeit von  $|\vec{r}|\ll \lambda/2\pi$  die sogenannte Dipol-Näherung angewandt werden. Diese behandelt die elektromagnetische Welle als konstant über den Bereich der absorbierenden Atomschale. Es folgt das Matrixelement

$$M_{i \to f} = A < f \mid \vec{p} \cdot \epsilon \mid i > \tag{3.2.3}$$

mit  $A=4\pi^2\alpha_f\hbar\omega$  und SOMMERFELDS Feinstrukturkonstante  $\alpha_f$ . Unter Berücksichtigung der Anregung mit polarisierter Strahlung kann das Matrixelement als Produkt von Radial-, Winkel- und Spinteil formuliert werden.

$$M_{i \to f} = \langle n'l|r|nc\rangle \langle lm_l|\epsilon|cm_c\rangle \delta(m'_e, m_s) \tag{3.2.4}$$

Wie zu sehen ist, erlaubt der Spinteil lediglich Übergänge, bei denen die Spinquantenzahl erhalten ist. Der Radialteil genügt dabei der Normierungsbedingung  $\int_0^\infty ...dr = 1$  und weist eine starke Lokalisierung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons in der Nähe zum Atomkern auf. Diese Lokalisierung bedingt die Elementselektivität als fundamentalen Aspekt von Röntgenabsorption. Die Polarisationsabhängigkeit des Übergangs wird allein bestimmt durch den Winkelanteil, dessen Matrixelement mathematisch durch die sogenannten Kugelflächenfunktionen  $Y_{lm}$  beschrieben wird. Durch Letztere wird das



**Abbildung 3.5** – Nach Dipolregeln erlaubte Übergänge der 2p-Elektronen in das 3d-Band  $(m_i = \pm 1)$  bei zirkularer Polarisation.

Matrixelement nur für bestimmte Kombinationen  $l_f, l_i, m_f, m_i$  einen Wert ungleich Null annehmen, welches die Basis der bekannten Dipolauswahlregeln darstellt. Letztere sind in allgemeiner Form für das Bahnmoment von Thole et al. [69] und den Spin von Carra et al. [70] hergeleitet worden. In Dipolnäherung vereinfachen sich die Auswahlregeln zu:

$$\Delta L = \pm 1 \tag{3.2.5}$$

$$\Delta m_l = 0, \pm 1 \tag{3.2.6}$$

Folglich sind für Anregungen der 2p-Elektronen in das 3d-Band ( $\Delta L = +1$ ) lediglich die in Abbildung 3.5 gezeigten Übergänge erlaubt. Dabei gilt für zirkular rechts polarisierte Strahlung ( $\sigma^+$ )  $m_i = 1$  sowie für zirkular links polarisierte Strahlung ( $\sigma^-$ )  $m_i = -1$ .

Nach Gewichtung der Spin-Orbit-gekoppelten Zielzustände mit Hilfe der entsprechenden Clebsch-Gordon-Koeffizienten können diese durch die ungekoppelten Basiszustände ausgedrückt werden. Dies erlaubt schließlich die Berechnung der in Abbildung 3.4 aufgelisteten Übergangswahrscheinlichkeiten. Zusammenfassend werden mit zirkular rechts (links) polarisierter Röntgenstrahlung an der  $2p_{1/2}$  Kante  $75\,\%$  Spin  $\downarrow$  ( $37,5\,\%$  Spin  $\uparrow$ ) Elektronen sowie an der  $2p_{3/2}$  Kante  $25\,\%$  Spin  $\downarrow$  ( $62,5\,\%$  Spin  $\uparrow$ ) Elektronen angeregt. Die resultierende Anzahl angeregter Elektronen, welche die experimentell messbare Intensität repräsentiert, ist abhängig von der Population im jeweiligen Spin-Orbit-aufgespaltenen Ausgangsniveau. Die daraus resultierenden Intensitäten des Überganges an beiden Kanten sind ebenfalls in Abbildung 3.4 dargestellt. Deren Differenz

$$\Delta I = I(\sigma^{-}) - I(\sigma^{+}) \tag{3.2.7}$$

stellt den XMCD-Effekt dar.

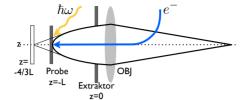


Abbildung 3.6 – Prinzip der Kathodenlinse. Die Probe (Kathode) befindet sich in einem Abstand von 1.5 - 3 mm zur Frontfläche (Extraktor) der Objektivlinse (OBJ). Durch eine negative Spannung der Probe von 10 kV/mm wird ein elektrostatisches Immersionsfeld erzeugt.

#### 3.3 Elektronenoptische Immersionslinsenmikroskopie

Elektronenoptische Immersionslinsenmikroskopie begründet sich auf einer in den 1930er Jahren publizierten Methode von Brüche [30, 71]. Dieser beschreibt eine Versuchsanordnung, welche mit Hilfe einer einzelnen magnetische Linse die laterale Intensitätsverteilung I(x,y) von Photoelektronen aus einer Zinkplatte auf einen Phosphorschirm abbildet. Um die Abbildungseigenschaften des Apparates zu verbessern, adaptierte Brüche den in der Lichtmikroskopie angewendeten Einsatz eines Immersionsfluids mit hohem Brechungsindex zwischen Probe und Objektiv in Form eines elektrostatischen, beschleunigenden Feldes. Dieser prinzipielle Aufbau ist bis in die heutige Generation von Elektronenmikroskopen erhalten und wird in Form der in Abbildung 3.6 gezeigten Kathodenlinse technisch realisiert. Die Probe als Elektronenemitter (Kathode) befindet sich in einem Abstand  $L = 1, 5 \dots 3 \,\mathrm{mm}$  zu der geerdeten Front (Extraktor) der Objektivlinse (OBJ). Durch Anlegen einer probenseitig negativen Spannung U von typischerweise 10 kV/mm wird ein starkes elektrostatisches Immersionsfeld erzeugt. Elektronen, welche mit einer Startenergie  $E_0$  aus der Probe emittiert werden, beschleunigen so vor Eintritt in die Objektivlinse auf eine Driftenergie  $E = E_0 + eU$ . Dies verringert die relative Energiebreite  $E_0/E$  der Elektronen und reduziert so den Einfluss elektronenoptischer Imperfektionen auf Trajektorien von Elektronen. Die Probe ist ein fester Bestandteil der Immersionslinse, welche so eine Kombination aus mindestens drei Elementen (Probe, Extraktor, Objektivlinse) darstellt [31, 72]. Ergänzend zur Kathodenlinse besteht der grundsätzliche Aufbau eines elektronenoptischen Immersionsmikroskops aus einer Projektiv-Optik, welche das von der Objektivlinse erzeugte Bild vergrößert und auf einen Detektor abbildet. Letzterer ist im einfachsten Fall ein Leuchtschirm, der das elektronenoptische Bild über Phosphoreszenz in ein lichtopisches Bild umwandelt.

Heutzutage werden Elektronenmikroskope in einer Vielzahl von Bereichen in Wissenschaft und Forschung sowie Industrie eingesetzt und hinsichtlich ihres Anwendungsgebietes optimiert. Dabei ist zwischen scannenden und parallelen Abbildungsverfahren

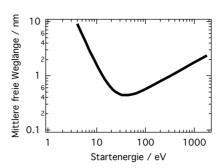


Abbildung 3.7 – Mittlere freie Weglänge inelastisch gestreuter Elektronen im Festkörper nach Seah und Dench [73].

sowie der verwendeten Elektronenenergie zu unterscheiden. Die wichtigsten Vertreter sind TEM (transmission electron microscope), STEM (scanning transmission electron microscope), PEEM (photoemission electron microscope), LEEM (low energy electron microscope) und SEM (scanning electron microscope). Alle Instrumente stellen eine abbildende Technik dar, wobei das Bild bei scannenden Verfahren durch Abrastern der Probe mit einem stark fokussierten Elektronenstrahl entsteht, während die übrigen Verfahren eine Quelle in Größe des Gesichtsfeldes benutzen. Letztere werden daher auch als parallele Techniken bezeichnet. Während (S)TEM aufgrund der hohen Elektronenenergie im Bereich von 100 keV bis 1 MeV eine volumensensitive Technik darstellt, wird das Bild bei PEEM/LEEM durch niederenergetische Elektronen (<100 eV) geformt. Aufgrund deren kurzer freier Weglänge im Festkörper [73] ist die Informationstiefe auf den oberflächennahen Bereich bis etwa 10 nm begrenzt (siehe Abbildung 3.7). LEEM [74] und PEEM [75] stellen die in dieser Arbeit verwendete Technik dar. In einem PEEM-Experiment wird die Probe meist unter streifendem Einfall mit Photonen beleuchtet. Das Bild wird so von Photoelektronen geformt. In einem LEEM-Experiment wird die Probe mit monochromatischen, kollimierten Elektronen beleuchtet. Nach inelastischer oder elastischer Streuung an der Probe werden die rückreflektierten Elektronen durch die Optik abgebildet. Die Elektronen durchlaufen dabei die Objektivlinse doppelt, was einen Strahlteiler erfordert, der die zur Probe einlaufenden sowie reflektierten Elektronen separiert. Aufgrund der ähnlichen elektronenoptischen Anforderungen werden LEEM und PEEM oft in einem Instrument vereint, obwohl die in 3.3.2 detailliert beschriebenen Kontrastmechanismen zur Bildentstehung grundsätzlich verschieden sind.

#### 3.3.1 Optische Eigenschaften

Innerhalb dieses Abschnittes werden die wichtigsten optischen Eigenschaften eines elektronenoptischen Immersionsmikroskopes dargelegt. Die Beschreibung erfolgt mit Hilfe

GAUSSscher Optik in paraxialer Näherung. Obwohl diese alle formalen Zusammenhänge zur experimentellen Bestimmung der Aberrationskoeffizienten des Mikroskopes liefert, ist ihre Gültigkeit hinsichtlich der Berechnung absoluter Größen wie Auflösung oder Aperturen beschränkt. Eine ausführliche Diskussion der Abbildungseigenschaften des in dieser Arbeit verwendeten Mikroskopes im *Contrast-Transfer-Function-Formalismus* ist bei Schramm in [50, 76] zu finden.

Kathodenlinse Ein allgemeiner formaler Zusammenhang der Abbildungsfehler der Kathodenlinse ist bei Krivanek [77] zu finden. Da Abbildungsfehler wie Defokus, Tilt, Koma etc. auf eine fehlerhafte Justage zurückzuführen sind und Astigmatismus üblicherweise korrigiert werden kann, stellen die ersten Ordnungen sphärischer und chromatischer Aberration die bedeutenden Limits der erreichbaren lateralen Auflösung dar.

Sphärische Aberration beschreibt die Abweichung zum idealen Gaussschen Strahlengang bei Elektronen welche die Optik unter einem Winkel  $\alpha$  zur optischen Achse passieren. Abbildung 3.9 a) veranschaulicht den Sachverhalt bei einer Linse. Aus einem identischen Punkt der Gegenstandsebene mit unterschiedlichen Winkeln emittierte Elektronen erfahren unterschiedliche Brechung und daher einen Versatz  $\delta_S$  in der Gaussschen Bildebene. Letzterer wird als Reihenentwicklung beschrieben durch

$$\delta_s = C_0 \alpha + C_3 \alpha^3 + C_5 \alpha^5 + \dots {(3.3.1)}$$

mit dem Fehlfokus der Linse  $C_0$  sowie sphärischer Aberration dritter und fünfter Ordnung  $C_3, C_5$ . Chromatische Aberration beschreibt den durch Chromatizität  $\Delta E$  verursachten Versatz  $\delta_c$  der vom gleichen Punkt ausgehenden Elektronen. Gemäß

$$\delta_c = C_c \epsilon \alpha + C_{cc} \epsilon^2 \alpha + C_{3c} \epsilon \alpha^3 + \dots \tag{3.3.2}$$

ist der Abstand in der Bildebene proportional zur relativen Energiebreite  $\epsilon = \Delta E/E$  der Elektronen.

Der oben beschriebene Aufbau der Kathodenlinse enthält drei verschiedene bildformende Elemente. Das elektrostatische Immersionsfeld, das magnetische Feld der Objektivlinse sowie die Apertur des Extraktors. Letztere bestimmt den Abstand -4/3L des von der Objektivlinse wahrgenommenen virtuellen Bildes [78], trägt aber lediglich vernachlässigbar zu Aberrationen bei [79]. Die resultierenden Aberrationen müssen demnach

als Linearkombination des elektrostatischen und magnetischen Beitrages gemäß

$$C_3 = C_{3m} + C_{3e} (3.3.3)$$

$$C_c = C_{cm} + C_{ce} \tag{3.3.4}$$

beschrieben werden. Lenc & Müllerova [80] folgend sind die elektrostatischen Beiträge der Aberrationen des Bildes dabei energieabhängig und für  $E/E_0 \gg 1$  gegeben als:

$$C_{ce} = -C_{3e} = -L\sqrt{\frac{E}{E_0}} \tag{3.3.5}$$

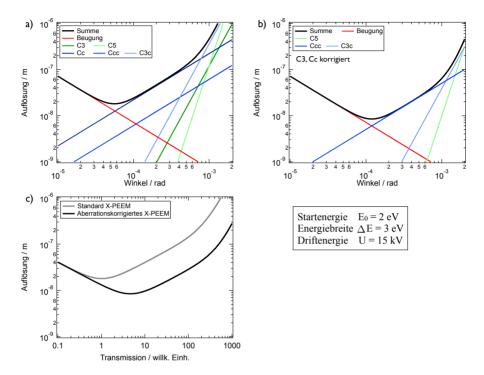
Die Durchführung eines Experiments zur Klärung einer physikalischen Fragestellung drängt durch die Suche nach der geeigneten Technik zwangsläufig die Frage auf, welche laterale Auflösung mit PEEM oder LEEM erreichbar ist. In einem idealen Mikroskop wird ein punktförmiger Gegenstand in eine punktförmige Abbildung überführt. Reale Mikroskope hingegen bilden ein Objekt mit den oben diskutierten Abbildungsfehlern ab. Aberrationen verursachen dabei die Abbildung eines punktförmigen Gegenstandes in einen Kreis endlichen Durchmessers der Bildebene. Darüberhinaus stellt die Kontrastapertur in Kombination mit der DE BROGLIE Wellenlänge  $\lambda$  des Elektrons eine bedeutende Einschränkung durch Beugungseffekte dar. Mit der Beugungsunschärfe  $\delta_B=0.61\lambda/\sin\alpha$  des Elektrons lässt sich eine resultierende Punktauflösung als Gausssche Entwicklung  $r=\sqrt{\delta_B^2+\delta_s^2+\delta_c^2}$  der Unschärfekreise in der Bildebene formulieren. Für in-Fokus-Bedingung  $C_0=0$  folgt damit als formaler Zusammenhang zwischen erreichbarer lateraler Auflösung sowie Austrittswinkel  $\alpha$  und relativer Energiebreite  $\Delta E/E$  der Elektronen:

$$r = \left[ \left( \frac{0.61 \,\lambda}{\alpha} \right) + \left( \frac{C_3 \alpha^3}{2} \right)^2 + \left( C_5 \alpha^5 \right)^2 + \left( C_c \frac{\Delta E}{E} \alpha \right)^2 + \left( C_{cc} \left( \frac{\Delta E}{E} \right)^2 \alpha \right)^2 + \left( C_{3c} \frac{\Delta E}{E} \alpha^3 \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}$$

$$(3.3.6)$$

Die Terme  $C_3$  und  $C_c$  beschreiben die in Abbildung 3.9 illustrierte sphärische und chromatische Aberration. Weitere Beiträge mit  $C_5$  und  $C_{cc}$ ,  $C_{3c}$  entsprechen Aberrationen höherer Ordnung, die ebenfalls signifikant beitragen. In einem Linsensystem sind die Aberrationen der einzelnen Linsen additiv, multiplizieren sich jedoch mit einem Faktor  $\frac{1}{M^n}$ . M stellt hierbei die Vergrößerung der vorhergehenden Linse dar, wobei n=4 für sphärische und n=2 für chromatische Aberration gilt. Die Aberrationen des Gesamt-

systems sind daher maßgeblich bestimmt durch die Kathodenlinse, während Transferund Projektivlinsen nur vernachlässigbaren Einfluss haben.



**Abbildung 3.8** – Erreichbare Auflösung nach Gleichung 3.3.6. Berechnet für  $E_0=2\,\mathrm{eV}$ ,  $\Delta E=3\,\mathrm{eV}$  und  $U=15\,\mathrm{kV}$  (typisch für X-PEEM). Graph a) zeigt den unkorrigierten Fall mit einer erreichbaren lateralen Auflösung von etwa 18 nm. In b) ist der korrigierter Fall mit  $C_3$ , Cc=0 gezeigt. Die erreichbare laterale Auflösung beträgt 8,5 nm. Graph c) veranschaulicht die Auflösung für unkorrigiertes und korrigiertes X-PEEM in Abhängigkeit der Transmission. Letztere ist auf ihren Wert im unkorrigierten Fall normiert. Bei Aberrationskorrigiertem X-PEEM ergibt sich durch den größeren Akzeptanzwinkel bei optimaler Abbildung eine etwa 4.5-fach höhere Transmission.

Abbildung 3.8 stellt Berechnungen von Gleichung 3.3.6 grafisch dar. Die Rechnung erfolgte für Elektronen, welche die Probe mit einer energetischen Breite  $\Delta E = 3\,\mathrm{eV}$  und Startenergie  $E_0 = 2\,\mathrm{eV}$  verlassen, sowie mit 15 kV beschleunigt werden. Darüber hinaus wurden realistische Werte der Koeffizienten  $C_i$  aus [47] zugrunde gelegt. Das Szenario entspricht der in dieser Arbeit hauptsächlich durchgeführten Abbildung einer Probe mit den

niederenergetischen Sekundärelektronen des Emissionspektrums bei Röntgenabsorption (X-PEEM). An dieser Stelle soll zunächst nur auf Abbildung 3.8 a) eingegangen werden. Die erreichbare Auflösung als Summe der beitragenden Terme zeigt deutlich ein Minimum. Der korrespondierende Akzeptanzwinkel stellt die Größe der im Experiment zu verwendenden Apertur für eine bestmögliche Abbildung dar. Bei der energetischen Breite der Sekundärelektronen von einigen Elektronenvolt ist die Auflösungsbegrenzung durch den Beitrag der chromatischen Aberration bestimmt. Eine Verringerung der Energiebreite kann bei PEEM durch den Einsatz eines Energiefilters erfolgen. Dieser begrenzt durch Einschränkung des Emissionsspektrums signifikant den zur Verfügung stehenden Fluss und erfordert eine erhebliche Verlängerung der Aquisitionszeit zur Datenaufnahme. Dieser Sachverhalt verdeutlicht die immense elektronenoptische Herausforderung bei hochauflösendem X-PEEM. Bei LEEM ist durch die Emissionscharakteristik des Kaltkathoden Feldemitters einer Elektronenkanone eine Energiebreite von lediglich 0,25 eV gegeben. Der Einfluss von chromatische Aberration wird dadurch vernachlässigbar, so dass die Auflösungsbegrenzung lediglich durch Beugung und sphärische Aberration bestimmt ist. Es ist aus Abbildung 3.8 a) leicht ersichtlich, dass sich mit LEEM leicht laterale Auflösungen im unteren Nanometerbereich erzielen lassen.

Aberrationskorrektur Wenige Jahre nach den wegweisenden Experimenten von Brüche formulierte Scherzer ein theoretisches Limit für die Auflösungsfähigkeit elektronenoptischer Linsen [81]: Die chromatische und sphärische Aberration eines Elektronenmikroskopes sind immer positiv unter der Bedingung radialsymmetrischer Linsen, realen Bildern, Raumladungsfreiheit sowie statischen Feldern deren Potentiale und ihre Ableitung kontinuierlich sind. Dieses Theorem begründet die Unmöglichkeit eines elektronenoptischen Achromaten und damit die Korrektur sphärischer und chromatischer Aberration durch Linsen unabhängig ihres Typs oder Geometrie. Ausschließlich durch Verletzung einzelner Bedingungen des Theorems ist es möglich  $C_3$  und  $C_c$  zu korrigieren [43]. Tabelle 3.1 zeigt eine Übersicht über experimentell bestätigte Methoden zur Korrektur von  $C_3$ und  $C_c$ . Von den Methoden konnten sich lediglich elektromagnetische Multipole sowie Elektronenspiegel in kommerziell erhältlichen Geräten durchsetzten. Andere Methoden zeigten zwar teilweise Korrektur von  $C_3$  und  $C_c$ , erfordern jedoch immensen technischen Aufwand [87, 86] oder weisen lediglich eingeschränkte Praktikabilität auf [85, 84]. Bei PEEM und LEEM ist aufgrund der Driftenergie von einigen kV in der Säule der Einsatz eines elektrostatischen Spiegels möglich. Deren Funktionsweise und Wirkung soll im Folgenden kurz umrissen werden. Die Beschreibung erfolgt ähnlich wie bei REMP-FER et al. [44]. Abbildung 3.9 illustriert die unterschiedliche Wirkung eines fokussie-

Ref.	Methode	Verletzte Bedingung	Korrektur
[82]	Multipol-Kombination	zylind. Symmetrie	$C_3 + C_c$
[83]	Wien-Filter	zylind. Symmetrie	$C_c$
[84]	Elektrostat. Gitter/Folien	Raumladungsfreiheit	$C_3 + C_c$
[85]	Moving-Focus	stat. Felder	$C_3 + C_c$
[86]	Zeitabh. Linsen	stat. Felder	$C_3 + C_c$
[87]	Energieinversion	stat. Felder	$C_c$
[44]	Elektronenspiegel	reale Bilder	$C_3 + C_c$

**Tabelle 3.1** – Experimentell bestätigte Methoden zur Aberrationskorrektur mit nach Scherzers Theorem verletzten Bedingungen.

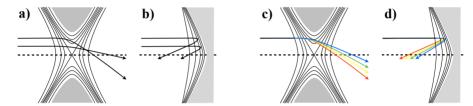


Abbildung 3.9 – Sphärische und chromatische Aberration einer Elektronenlinse (a,c) und eines Elektronenspiegels (b,d). Die Laufzeitunterschiede im fokussierenden Feld sind ursächlich für eine Verschiebung des Fokus entlang der optischen Achse. Dabei zeigen Linsen und Spiegel Aberrationen unterschiedlicher Vorzeichen.

renden elektrostatischen Feldes auf ein transmittiertes sowie reflektiertes Elektron. Die dargestellten Elektroden formen ein rotationssymetrisches, fokussierendes Feld, dessen Äquipotentialflächen als schwarze Linien eingezeichnet sind. Diese formen einen Potentialberg, der hineinfliegende Elektronen abbremst und herausfliegende beschleunigt. Im Fall einer Linse wird das Elektrodenpotential  $\Phi$  so gewählt, dass Elektronen mit Driftenergie  $E_{\rm Drift}=eU_{\rm Drift}$  diesen überwinden können, so dass  $\Phi < eU$  gilt. Um Eigenschaften eines Elektronenspiegels darzustellen muss ein Potential  $\Phi > eU$  gewählt werden, so dass Elektronen auf der ansteigenden Flanke des Potentialberges reflektiert werden. Beim Durchgang eines Elektrons durch das elektrische Feld übt dieses eine fokussierende Kraft proportional zum Abstand zur optischen Achse aus. Eine längere Verweilzeit im Feld bewirkt daher eine stärkere Fokussierung. Abbildung 3.9 zeigt die Ursache von sphärischer Aberration einer Linse a) und eines Spiegels b). Im Fall einer Linse müssen ferner der optischen Achse einfliegende Elektronen sowohl eine längere Strecke im Feld zurücklegen als auch den Potentialberg höher erklimmen wie achsennahe Elektronen. Dies verursacht eine längere Verweildauer im fokussierenden Feld einhergehend

mit stärkerer Fokussierung. Als Konsequenz zeigen achsenferne Elektronen eine kürzere, achsennahe Elektronen eine längere Fokuslänge. Diese Eigenschaft wird als unterkorrigierte sphärische Aberration bezeichnet. Die sphärische Aberration im Fall des Elektronenspiegels erschließt sich aus einer ähnlichen Überlegung. Wie in Abbildung 3.9 b) dargestellt, werden unabhängig des Abstands zur optischen Achse Elektronen an der gleichen Äquipotentialfläche reflektiert. Durch die Form des elektrostatischen Feldes legen achsenferne Elektronen eine kürzere Strecke zur identischen Potentialfläche zurück als achsennahe Elektronen. Als Konsequenz werden Erstere durch ihre kürzere Verweildauer schwächer fokussiert und offenbaren eine größere Fokuslänge als achsennahe Elektronen. Die sphärische Aberration eines Elektronenspiegels verhält sich nach dieser Überlegung genau invers zu der der Elektronenlinse und wird daher als überkorrigierte sphärische Aberration bezeichnet. Abbildung 3.9 c) und d) zeigen Trajektorien energetisch verschiedener Elektronen im transmittierenden Feld einer Linse c) und reflektierenden Feld eines Spiegels d). Im elektrostatischen Feld der Linse erfahren höherenergetische Elektronen durch ihre größere Geschwindigkeit eine zeitlich kürzere Ablenkung. Durch das weniger effektiv wirkende fokussierende Feld zeigen Elektronen eine größere Fokuslänge je höher ihre Energie ist (unterkorrigierte chromatische Aberration). Im reflektierenden Feld eines Spiegels erklimmen Elektronen den Potentialberg bis ihre kinetische Energie vollständig abgebaut ist. Höherenergetische Elektronen erfahren dadurch länger die fokussierende Eigenschaft des Feldes. Als Konsequenz weisen die Elektronen eine Fokuslänge auf, welche mit höherer Energie abnimmt (überkorrigierte chromatische Aberration). Die hier dargelegte Argumentation kann identisch für magnetische Linsen erfolgen. Bei Transmission des fokussierenden magnetischen Feldes einer Linse erfahren Elektronen eine Rotation. Die Umwandlung von kinetischer Energie in Rotationsenergie führt zu einer kleineren Projektion des Geschwindigkeitsvektors auf die optische Achse. Dieser verantwortet eine unterschiedliche Verweildauer im fokussierenden Feld sowie Aberrationen wie oben beschrieben.

Elektronenoptische Spiegel bestehend aus einer einzelnen reflektierenden Elektrode können aufgrund ihrer mangelnden Freiheitsgrade zu einer bestimmten Fokallänge jeweils eine Kombination von  $C_3$ ,  $C_c$  korrigieren. Um unabhängig von der Fokallänge und unabhängig voneinander  $C_3$  und  $C_c$  einzustellen, werden drei Freiheitsgrade benötigt. Dies begründete die Entwicklung des Tetroden-Spiegel von Preikszas & Rose [45]. Der Tetroden-Spiegel verändert die Elektronentrajektorien bereits beim Einlaufen in die reflektierende Elektrode, unterscheidet sich jedoch in der prinzipiellen Funktionsweise nicht von obiger Ausführung.

Ein Mikroskop wird als korrigiert bezeichnet, wenn die Aberrationen des Spiegels und der Objektivlinse in Summe Null ergeben. Das Mikroskop weist demnach keine sphärische oder chromatische Aberration auf, wenn die Koeffizienten der Kathodenlinse und des Spiegels den Relationen

$$-C_3^{\rm Sp} = M^4 C_3 \tag{3.3.7}$$

$$-C_c^{\mathrm{Sp}} = M^2 C_c \tag{3.3.8}$$

genügen. M stellt hier die Vergrößerung der Bildebene des Spiegels dar. Kapitel 4.3 dieser Arbeit setzt sich mit der experimentellen Bestimmung der Aberrationskoeffizienten  $C_3$ ,  $C_c$  der Linsen sowie ihrer Korrektur auseinander.

Abschließend soll erneut Abbildung 3.8 diskutiert werden. Graph b) veranschaulicht das beschriebene X-PEEM Szenario für den aberrationskorrigierten Fall. Die Terme  $C_3$ ,  $C_c$  aus Gleichung 3.3.6 sind jetzt identisch Null, so dass auflösungsbegrenzend die Terme  $C_{cc}$  und für große Winkel  $C_{3c}$ ,  $C_5$  wirken. An dieser Stelle ist zu beachten, dass teilweise auch Terme höherer Ordnung korrigiert werden, die einzelnen Beiträge demnach nicht identisch zu a) sind. Abbildung 3.8 c) vergleicht den korrigierten und unkorrigierten Fall in Abhängigkeit der Transmission. In Kleinwinkelnäherung ist die Fläche der Blendenöffnung proportional zum Quadrat des Akzeptanzwinkels. Die Transmission im Optimum des unkorrigierten Fall wurde auf eins normiert. Es ist anhand der Graphen leicht zu erkennen, dass im korrigierten Fall eine Verbesserung der lateralen Auflösung einhergeht mit einem Zuwachs an Transmission. Aberrationskorrektur erlaubt es ferner, durch geschickte Wahl der Blende, die Transmission des Instrumentes weiter zu erhöhen bei gleicher Auflösung wie im unkorrigierten Fall.

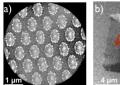
#### 3.3.2 Ausgewählte Abbildungsmodi

**Schwellenphotoemission** beschreibt die Anregung von schwach gebundenen Valenzelektronen über das Vakuumniveau. Der Emissionsprozess genügt dabei der Photoeffektgleichung [88]:

$$E_{\rm kin} = \hbar\omega - \Phi - E_{\rm Bindung} \tag{3.3.9}$$

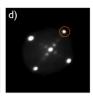
Die Austrittsarbeit  $\Phi$  im Festkörper liegt abhängig von atomarer Bindung sowie kristallographischer Ordnung im Bereich von 2 eV bis 5 eV [89]. Bei einer Photonenenergie

#### 3 Experimentelle Methoden











**Abbildung 3.10** – Ausgewählte Abbildungsmodi mit PEEM und LEEM. UV-PEEM (a), XMCD-PEEM (b), MEM-LEEM (c), LEED (d), Dunkelfeld LEEM (e)

von  $\hbar\omega=4.9\,\mathrm{eV}$ , wie beispielsweise einer Quecksilber-Kurzbogenlampe, wird lediglich ein sehr schmales Band von Elektronenenergien emittiert. Die Photoemissionsintensität ist dadurch primär bestimmt durch die lokale Variation der Austrittsarbeit der Probe. In der Anwesenheit von topografischen Merkmalen auf der Probe ist ein zusätzlicher sekundärer Kontrast sichtbar, welcher durch topografisch induzierte lokale Verzerrungen des elektrostatischen Immersionsfeldes hervorgerufen wird [90]. Abbildung 3.10 a) illustriert topografischen Kontrast am Rand sowie Austrittsarbeitkontrast innerhalb von La $_{0.7}\mathrm{Sr}_{0.3}\mathrm{MnO}_3$ -Nanostrukturen.

X-PEEM bezeichnet Photoemissionsmikroskopie mit Röntgenstrahlung (X-Ray). Durch Einstellen der Photonenenergie  $\hbar\omega$  auf eine charakteristische Absorptionskante des zu untersuchenden Elementes erfolgt eine elementspezifische Anregung eines kernnahen Niveaus in die freien Zustände der Zustandsdichte. Bei Weichröntgenabsorption wird die entstandene Innerschalenvakanz durch einen Augerprozess wieder aufgefüllt. Die dabei entstehenden hochenergetischen Augerelektronen induzieren durch inelastische Streuprozesse im Festkörper eine Sekundärelektronenkaskade, welche über das Vakuumniveau emittiert und durch PEEM abgebildet wird. Da der Start des Prozesses ausgeht vom Energieübertrag in der Abregung eines schwachgebundenen Elektrons in ein kernnahes Niveau, trägt ebenfalls die Sekundärelektronenkaskade diese charakteristische Information, in Form ihrer Intensität, beziehungsweise Gesamtanzahl an Elektronen.

Durch Auswählen eines dichroischen Überganges im Absorptionsprozess kann durch den XMCD-Effekt zusätzlich Information über magnetische Eigenschaften gewonnen werden. Eine quantifizierte Messung des XMCD ist dabei die normierte Differenz zweier mit unterschiedlicher Helizität ( $\sigma^+, \sigma^-$ ) aufgenommer Bilder, die sogenannte Asymmetrie:

$$A = \frac{I(\sigma^{+}) - I(\sigma^{-})}{I(\sigma^{+}) + I(\sigma^{-})}$$

$$(3.3.10)$$

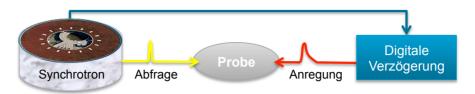
Die Asymmetrie ist proportional zum Winkel  $\phi=\angle(\vec{k},\vec{M})$  zwischen k-Vektor des einfallenden Synchrotronlichtes und lokaler Magnetisierungsrichtung der Probe. Demnach kann gemäß  $A \propto \cos \phi$  der Winkel des lokalen Magnetisierungsvektors  $\vec{M}$  zur Einfallsrichtung k des Synchrotronlichtes bestimmt werden. Abbildung 3.10 b) illustriert die Asymmetrie der Fe L3-Kante einer Permalloy-Mikrostruktur.

**LEEM** bezeichnet die Abbildung einer Probe mit niederenergetischen, monochromen und kollimierten Elektronen. LEEM erforscht die Zustandsdichte oberhalb der Fermikante.

Abbildung 3.10 a) zeigt Stufenkanten einer sauberen Ru(0001) Oberfläche abgebildet mit niederenergetischen Elektronen. Die Probenpotential wird dabei so eingestellt, dass Elektronen niemals die Probe erreichen, sondern einige nm vor der Oberfläche reflektiert werden. Die resultierende Abbildung der Probe wird als mirror electron microscopy (MEM) bezeichnet. Die Methode ist sensitiv auf Topografie und Austrittsarbeitsvariationen auf der Probenoberfläche. Durch die bei LEEM niedrige Elektronenenergie (0-100 eV) erfahren Elektronen, welche in den Festkörper eindringen, niederenergetische Elektronenbeugung (low energy electron diffraction, LEED). Das zu 2,8 eV entsprechende Beugungsbild einer Si(001) (2×1) Oberflächenrekonstruktion [91] ist in 3.10 d) dargestellt. Das LEED-Bild zeigt vier halbzahlige Reflexe um den (0,0) Primärreflex, welche paarweise zu  $(2\times1)$ oder  $(1 \times 2)$  Rekonstruktionen korrespondieren. Bei Hellfeld-LEEM wird lediglich der (0,0)-Reflex zur Abbildung der Probe benutzt, während die Intensität übriger Reflexe durch eine Kontrastblende geblockt wird. Bei Dunkelfeld kann jeder Reflex außer (0.0) zur Abbildung herangezogen werden. Dadurch können Bereiche der Probe identifiziert werden, welche zum jeweiligen LEED-Reflex beitragen. Abbildung 3.10 e) zeigt das Dunkelfeldbild des rot markierten halbzahligen LEED-Reflexes. Dunkelfeld-LEEM ist sensitiv auf Struktur und Symmetrie einer Oberfläche.

# 3.4 Die Anrege-Abfrage-Technik

Die inhärente Zeitstruktur der Synchrotronstrahlung ermöglicht die Durchführung von zeitauflösenden Experimenten. Ein vielfach genutztes Messverfahren stellt dabei die Anrege-Abfrage-Technik (engl. pump-probe) dar. Abbildung 3.11 illustriert das Verfahren schematisch. Solche Experimente basieren auf der zeitlichen Verschiebung  $\Delta t$  zweier periodischer, phasen-synchronisierter Signale. Dabei dient eines der Anregung und eines der Messung des zu untersuchenden Systems. Bei Variation des zeitliches Versatzes



 ${\bf Abbildung~3.11}-{\bf Schematische~Darstellung~eines~synchrotronbasierten~Anrege-Abfrage-Messverfahrens}.$ 

beider Signale können so zu definierten Zeitpunkten Messungen vom Ansprechen des Systems auf die Anregung durchgeführt werden. Durch eine hinreichend große Anzahl an Messpunkten lässt sich die vollständige Reaktion des Systems abbilden. Die Akquisition der Messdaten erfolgt dann über  $10^8-10^9$  Zyklen, so dass lediglich reversible Prozesse abgebildet werden können. Innerhalb des Verfahrens stellt die Periodenlänge  $t_{krit}$  des Abfragesignals ein zu berücksichtigendes Limit dar. Demnach kann lediglich das Verhalten des Systems im Zeitraum  $0 \le \Delta t \le t_{krit}$  abgebildet werden. Durch eine Unterdrückung von Abfragepulsen und gleichzeitige Anpassung der Anregungsfrequenz können mit schaltbaren Detektoren auch längere Zeitskalen abgetastet werden. Der Verlust an Statistik bedingt durch den reduzierten Photonenfluss stellt jedoch eine immense Herausforderung an das Experiment dar.

Die erreichbare Zeitauflösung innerhalb des Verfahrens ist gegeben durch die zeitliche Länge der Synchrotronpulse. Diese liegen typischerweise in der Größenordung von 10 ps, wobei spezielle Füllmuster Pulslängen von wenigen ps erreichen [66]. Diese Zeitauflösung ermöglicht Messungen im Frequenzbereich bis etwa 100 GHz welcher mit Präzessionsfrequenzen ferromagnetischer Systeme zusammenfällt. Letztere sind verantwortlich für die Geschwindigkeit mikromagnetisch reversibler Prozesse und stellen die untere Grenze der beteiligten Zeitskala dar.

# 4 Aberrationskorrigiertes PEEM/LEEM an Beamline UE56/1-SGM

Ein Teil dieser Arbeit war der Inbetriebnahme des PEEM/LEEM als permanentes Experiment am Weichröntgenstrahlrohr UE56/1-SGM gewidmet. Den wichtigsten Meilenstein repräsentiert dabei die experimentelle Bestimmung der Aberrationskoeffizienten  $C_s$  und  $C_c$  des Elektronenoptik. Diese konnten ermittelt und in periphere Software eingepflegt werden. Bei zukünftigen Experimenten steht dadurch eine automatische Aberrationsund Fokusverfolgung zur Verfügung. Das vorliegende Kapitel fasst die verwendeten Methoden und experimentell ermittelten Parameter zusammen.

#### 4.1 Das FE-LEEM P90 AC

Ein ausführliche und detaillierte Beschreibung der Elektronenoptik ist bei TROMP in [47] zu finden. In [92] wird vom gleichen Autor die grundlegende Justageroutine beschrieben, deren Durchführung Voraussetzung für alle in dieser Arbeit durchgeführten Messungen ist. An dieser Stelle soll lediglich eine kurze Übersicht der relevanten Geräteeigenschaften gegeben werden.

Abbildung 4.1 illustriert die wichtigsten optischen Komponenten. Das LEEM verwendet zwei magnetische Strahlteiler (Prismen). Während das erste zur Trennung des zur Probe einlaufenden Elektronenstrahls und reflektierter bildgebender Elektronen dient, separiert das zweite das einlaufende und reflektierte Bild des Aberrationskorrektors. Die Theorie zeigt, dass Prismen Eigenschaften einer runden Linse zeigen, insbesondere frei von Astigmatismus sind und im hier diskutierten Instrument als 1:1 Transferlinse wirken [93]. Aufgrund des Designs des vorliegenden Mikroskopes halten Bild- und Gegenstandsebene (gestrichelte Box) ein Beugungsbild, wobei sich in der Prismenmitte ein virtuelles Realbild der Vergrößerung M befindet. Durch die Eigenschaften einer Prismenhälfte als  $90^{\circ}$ -Ablenker beschreiben die Elektronentrajektorien innerhalb des magnetischen Sektorfeldes annähernd einen Viertelkreis. Geometrische Überlegungen zeigen, dass die Vergrößerung des Realbildes auf der Diagonalen des Sektorfeldes  $M' = M/\sqrt{2}$  beträgt [92]

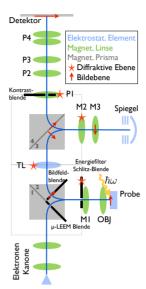


Abbildung 4.1 – Schematische Darstellung der wichtigsten elektronenoptischen Komponenten des SPECS FE-LEEM P90 AC nach [47].

(und Referenzen darin).

Im Instrument steht eine Kaltkathoden-Feldemitter-Elektronenkanone zur Verfügung. Diese emittiert Elektronen einer Energiebreite  $\Delta E=0,25\,\mathrm{eV}$  und erlaubt durch eine geeignete Optik Fokussierung, Kollimation und Stigmation der Elektronenstrahls. Der Emitter wird auf einem Potential von  $+15\,\mathrm{kV}$  betrieben, welches die Driftenergie G der elektronenoptischen Säule bestimmt. Durch die erste Primenhälfte wird der Elektronenstrahl um 90° abgelenkt und in die Objektivsäule transferiert. Ein negatives Probenpotential von etwa -15 kV bremst einlaufende Elektronen ab. Abhängig der Potentialdifferenz erfolgt sofortige Reflektion der Elektronen oder Wechselwirkung mit der Probe. Die Potentialdifferenz zwischen Probe und Emitter stellt hierbei die Startenergie  $E_0$  der Probe dar und beträgt typischereise 0 - 100 eV.

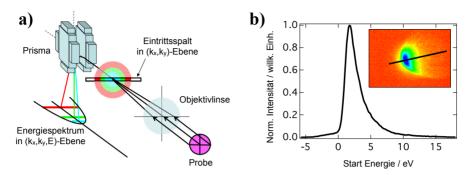
Die Emission von Elektronen aus der Probe aufgrund des photoelektrischen Effektes oder Streuung von Elektronen erzeugt ein Abbild der Probe. Bildgebende Elektronen werden vom Immersionsfeld der Kathodenlinse wieder auf Driftenergie beschleunigt. Das Bild wird von der Objektiv- und nachfolgenden Transferlinse vergrößert und in die Prismenebenen abgebildet. In der Eingangsebene des Prismas entsteht ein Beugungsbild der Probe, in der Prismenmitte ein virtuelles Realbild mit Vergrößerung M=38.

Durch die zentrale Kombination von zweiter und dritter Prismenhälfte sowie elektrostatischer Transferlinse (ET) wird das Beugungsbild der Probe von der Eingangsebene der zweiten Prismenhälfte in die Ausgangsebene (M2) der dritten transferiert. Das Realbild wird durch ET von Zentrum zu Zentrum beider Prismenhälften und von M2 in M3 abgebildet. Um dem Akzeptanzbereich des Korrektors zu genügen, verkleinert M2 das virtuelle Bild der Prismenmitte um einen Faktor 4, so dass in M3 eine Vergrößerung M=8,5 vorliegt. M3 ist gleichzeitig Gegenstands- und Bildebene des Korrektors. Letzterer eliminiert durch seine Eigenschaften die Bildfehler  $C_3, C_c$  der bisherigen Linsen und reflektiert ein korrigiertes Bild zurück in M3, welches von M2 sowie der letzten Prismenhälfte in die Projektivsäule transferiert wird. Das reflektierte Beugungsbild wird dabei in die Ausgangsebene P1 abgebildet.

Die nachfolgenden Projektivlinsen, deren letzte als rotationsfreies Dublett ausgeführt sind, dienen ausschliesslich der Vergrößerung. Durch vollständige An- oder Abregung von P2 kann zwischen der Abbildung von Realraum- oder Beugungsebene gewechselt werden. Das elektronenoptische Bild wird auf eine kommerzielle Vielkanalplatte mit Phosphorschirm abgebildet. Letzterer wird mit einer slow scan CCD-Kamera abgebildet.

Zusätzlich zu den als Linsen wirkenden optischen Komponenten stehen elektrostatische Deflektoren und Oktupolstigmatoren zur Verfügung. Von ihnen besitzen lediglich drei Relevanz in der täglichen Arbeit. Zur Stigmierung des Beugungsbildes steht in der Elektronenkanone ein Stigmator zur Verfügung. Ein Weiterer zur Stigmierung des Realbildes befindet sich in der Eintrittsebene von Prismenhälfte zwei. Bei der Durchführung von LEEM-Experimenten mit Dunkel- oder Hellfeldkontrast sollte der entsprechende LEED-Reflex die Optik auf der optischen Achse passieren um gleichbleibende Abbildungseigenschaften zu gewährleisten. Aus diesem Grund wird der einlaufende Elektronenstrahl bereits vor der ersten Prismenälfte verkippt. Dafür steht in der Elektronenkanone ebenfalls ein x,y-Deflektor zur Verfügung.

Blenden und Justagehilfen Wie in Kapitel 3 gezeigt wurde, ist für die Optimierung der Abbildungseigenschaften eines Kathodenlinsenmikroskopes mindestens eine Blende zur Einschränkung des Akzeptanzwinkels  $\alpha$  erforderlich. Im hier diskutierten Gerät ist diese in P1 platziert. Mit Hilfe einer Linearverstellung lassen sich Blenden der Größe  $50\,\mu\text{m}$ ,  $20\,\mu\text{m}$  und  $10\,\mu\text{m}$  auf der optischen Achse platzieren. Die  $50\,\mu\text{m}$  Blende stellt den für LEEM-Experimente optimalen Akzeptanzwinkel sicher. Darüberhinaus stehen



**Abbildung 4.2** – Schema der prinzipiellen Funktionsweise des Energiefiltersystem aus [94] in a). Exemplarische Aufnahme der  $(k_x, E_0)$ -Ebene mit Linienprofil entlang der  $E_0$ -Achse in b).

beleuchtungsseitig mehrere Blenden in der ersten Prismendiagonale zur Verfügung. Diese schränken den Elektronenstrahl bis zu einem Bereich von 200 nm referenziert auf die Probenoberfläche ein. Dies ermöglicht ortsaufgelöstes LEED ( $\mu$ -LEED) und wurden für die nachfolgend beschriebene Messung der sphärischen Aberration verwendet. Zur Justage der Bildebenen und ihrer im nächsten Abschnitt beschriebenen Kalibration stehen an verschiedenen Positionen Gitter mit definierter Wabengröße zur Verfügung. In den Diagonalen der Prismenhälften zwei und drei, sowie in der Bildebene M3 des Korrektors lassen sich diese bei Bedarf im Strahlengang platzieren.

**Energiefilter** Das Energiefiltersystem nutzt die magnetischen Prismen als energiedispersives Element wobei Energieselektion durch eine k-Raum-Apertur erfolgt. Das komplette System ist in [94] detailliert beschrieben und in Abbildung 4.2 a) schematisch dargestellt.

Bei PEEM wird wie vorhergehend beschrieben ein Beugungsbild der Probe in die Eintrittsebene der zweiten Prismenhälfte abgebildet. Diese Ebene enthält die radialsymmetrische Winkelverteilung  $(k_x, k_y)$  der bildgebenden Elektronen. Unter Voraussetzung isotroper Photoemission stellt die Winkelverteilung konzentrische Kreise mit Radius  $R \propto E_0$  dar. Durch Platzieren einer Schlitzapertur in der Eingangsebene wird die Winkelverteilung auf  $(k_x, k_y = konst.)$  eingeschränkt. Durch Gleichgewicht der auf ein Elektron wirkenden Lorentz- und Zentripetalkraft durchlaufen Elektronen größerer Energie das Sektorfeld auf größeren Radii. In der ausgangsseitigen Ebene des Prismas zeigt sich da-

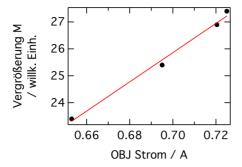


Abbildung 4.3 – Vergrößerung der OBJ-Linse in Abhängigkeit ihres Anregungsstromes. Die Vergrößerung ist in die Prismendiagonale referenziert und soll M=26.9 betragen.

durch eine lineare Dispersion  $D(E_0)\approx 6\,\mu\mathrm{m\,eV^{-1}}$  bei einer Driftenergie von 15 kV. Die lineare Dispersion des Prismas überführt die eingangsseitige Winkelverteilung in eine parabelförmige  $(k_x,E_0)$ -Verteilung mit  $k_y=\mathrm{konst.}$  Deren Ordinatenachse repräsentiert die Startenenergie der bildgebenden Elektronen. Zur energiegefilterten Abbildung einer Probe wird die Kontrastapertur entlang der  $E_0$ -Achse positioniert. Die Energiebreite  $\Delta E$  der bildgebenden Sekundärelektronen ist dabei abhängig von der Größe der Apertur, ihre mittlere Startenergie  $E_0$  von ihrer Position. Abbildung 4.2 b) zeigt eine Aufnahme der  $(k_x,E_0)$  Ebene sowie das korrespondierende Linienprofil parallel zur  $E_0$ -Achse. Bei den hier gezeigten Daten erfolgte Photoemission durch Weichröntgenstrahlung. Der Graph in Abbildung 4.2 b) zeigt daher das durch  $I(E_0) \propto E_0/(E_0+\omega)^4$  [95] beschriebene Emissionsspektrum niederenergetischer Sekundärelektronen.

Das Energiefiltersystem bietet durch den Einsatz einer Realraumblende die Möglichkeit ortsaufgelöst Mikrospektroskopie durchzuführen. Um den Bildbereich zu begrenzen, stehen in der Diagonale von MP2 Aperturen der Größen  $2,6\,\mu\mathrm{m},~11,2\,\mu\mathrm{m},~18,6\,\mu\mathrm{m}$  und  $27,9\,\mu\mathrm{m}$  (referenziert auf Probenoberfläche) zur Verfügung. Das Kapitel 5 beschreibt die Adaption und Erweiterung des Energiefiltersystems zur Bunch-Selektion für Synchrotron basierte Pump-Probe Experimente. Darüberhinaus wird in Kapitel 6 ein neu entwickeltes Messverfahren vorgestellt um mit ortsaufgelöster Mikrospektroskopie den Anregungspuls in zeitaufgelösten Experimenten auszumessen.

Kalibrierung der Bildebenen Wie in Kapitel 3 gezeigt wurde, sind Aberrationen von Linsen über die Vergrößerung ihrer Bildebene verknüpft. Für die Korrektur der Objektivlinsenaberrationen durch den Korrektor ist demnach genaue Kenntnis der Vergrößerung in ihrer jeweiligen Bildebene unabdingbar. Die Kalibration der Objektivlinsenvergrößerung erfolgte mit Hilfe einer Planotec Siliziumprobe mit lithografisch struktu-

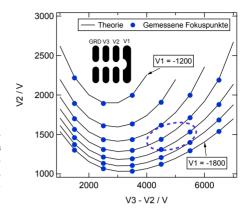


Abbildung 4.4 – Phasenraum des Tetrodenspiegels. Der Graph zeigt *in-Fokus*-Werte V2 des Spiegels in Abhängigkeit von V3-V2 für verschiedene V1. Letztere sind direkt verknüpft mit den sphärischen und chromatischen Aberrationskoeffizienten des Spiegels.

riertem  $(9,87\pm0,05)\mu\mathrm{m}$  Gitter sowie TEM-Netzchen mit 63,5  $\mu\mathrm{m}$  Gitterabstand. Durch Abgleichen beider Strukturen konnte die Objektivlinsenvergrößerung in Abhängigkeit ihres Anregungsstromes kalibriert werden. Abbildung 4.3 zeigt Resultate der Messung grafisch. Mittels linearer Ausgleichsrechung wurden für eine nominelle Vergrößerung der Objektivlinse von M=26,9 folgende Linsenströme bestimmt:

$$OBJ = 0,720 A$$
 (4.1.1)

$$TL = 0.718 A$$
 (4.1.2)

Durch Abbildung der Referenzgitter der Prismendiagonale sowie der Bildebene M3 wurde in letzterer eine Vergrößerung von M=8.5 verifiziert.

# 4.2 Der Aberrationskorrektor (Teil I)

Das P90 Mikroskop verwendet einen elektronenoptischen Spiegel zur simultanen und unabhängigen Korrektur von sphärischer und chromatischer Aberration, dessen schematischer Aufbau innerhalb Abbildung 4.4 gezeigt ist. Das Design des Spiegels als Tetrode involviert vier Elektroden von denen die erste auf Säulenpotential, die übrigen auf kaskadierten Potentialen betrieben werden. Dadurch stehen drei Freiheitsgrade zur Verfügung. Ray-Tracing-Rechnungen [47] zeigen, dass in erster Ordnung sphärische Aberration  $C_s^S$  durch die Potentialdifferenz V3-V2 sowie chromatische Aberration  $C_c^S$  durch das Potential V1 bestimmt wird. Die Fokuslänge des Spiegels ist durch das Potential V2 festgelegt, wobei erstere nicht unabhängig der gewählten Aberrationskoeffizienten ist. Der Phasenraum des Spiegels ist demnach gegeben durch die darstellbaren Aberrationskoeffizienten

 $C_3^S \propto (V3-V2)$  und  $C_c^S \propto V1$  bei einer bestimmten Fokuslänge V2. Da die Koeffizienten nicht direkt ausgemessen werden können, erfolgte die experimentelle Bestimmung des Spiegelfokus V2 bei festen Werten von V3-V2 und V1. Dazu wurde in einem LEEM-Experiment der Fokus des Spiegels variiert bis die in M3 befindlichen Netzchen scharf abgebildet werden. Experimentell erhaltene Werte, sowie der Vergleich zur Theorie, sind in Abbildung 4.4 dargestellt. Die experimentell ermittelten Werte zeigen eine exzellente Übereinstimmung zur Theorie. In den folgenden Messungen kann daher von der korrekten Funktionsweise des Korrektors ausgegangen werden. Insbesondere die Darstellung der Aberrationskoeffizienten erfolgt, wie aus der Theorie vorhergesagt.

In Abschnitt 4.4 werden die zur Aberrationskorrektur experimentell ermittelten Koeffizienten  $C_3^S$ ,  $C_c^S$  in Spannungen des Phasendiagramms überführt. Dazu müssen zunächst die Aberrationen der Objektivlinse bestimmt werden, wie im Folgenden dargelegt.

### 4.3 Experimentelle Bestimmung der Aberrationskoeffizienten

Einhergehend mit der Entwicklung erster Prototypengeräte wurden verschiedene Methoden zur experimentellen Bestimmung der Aberrationskoeffizienten eingeführt. Eine erste simultane Messung von  $C_3$ ,  $C_c$  wurde von Marchetto und Schmidt durchgeführt [96, 46]. Die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen folgen Tromp [92].

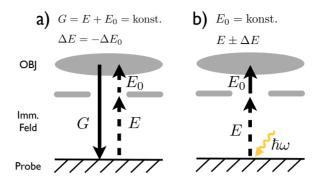
#### 4.3.1 Messung von $C_c$

Eine Verschiebung des Fokus entlang der optischen Achse kann prinzipiell durch Veränderung der Chromatizität der bildgebenden Elektronen und Nachfokussierung des Bildes ausgemessen werden. Die Bildverschiebung  $\delta_I$  durch eine Änderung des Anregungsstromes der Objektivlinse ist nach [46] gegeben durch

$$\delta_I = 2\beta(M+1)s\alpha \frac{\Delta I}{I} \tag{4.3.1}$$

mit der Objektivlinsenvergrößerung M, Bildweite s, sowie der relativen Änderung des Linsenstromes  $\Delta I/I$  und einem linsenabhängigen geometrischen Faktor  $\beta \approx 1$ . Die korrespondierende Bildverschiebung durch chromatische Aberration ist nach Gleichung 3.3.6 gegeben durch  $\delta_c = C_c \frac{\Delta E}{E} \alpha^2$ . Dies liefert mit Ansatz  $\delta_I = -\delta_c$  einen formalen Zusammenhang zwischen  $\Delta I$  und  $C_c$ .

Abbildung 4.5 – Szenario zur Messung von  $C_{ce}$  mit LEEM (a) und  $C_{cm}$  mit PEEM (b). Die wirkenden Potentiale sind schematisch als Vektoren dargestellt, wobei gestrichelte Pfeile veränderliche Größe darstellen.



Eine Kathodenlinse stellt wie in Abschnitt 3.3 beschrieben eine Kombination von elektrostatischem Immersionsfeld sowie magnetischer Objektivlinse dar, deren kombinierte chromatische Aberration sich als  $C_c = C_{cm} + C_{ce}$  formulieren lässt. Wie im Folgenden zu sehen ist, muss bei der Wahl der experimentellen Methode zur Bestimmung von  $C_c$  penibel zwischen unterschiedlichen Beiträgen unterschieden werden. Eine Messung der kombinierten Aberration  $C_c$  wäre prinzipiell durchführbar in einem LEEM-Experiment mit veränderlicher Driftenergie oder energiegefiltertem X-PEEM. Beide Varianten erwiesen sich als nicht praktikabel, da aufwendige Justage oder langwierige Belichtungsreihen durchgeführt werden müssten. Die hier durchgeführte Messung basiert auf der in [92] dargelegten Methode,  $C_{cm}$  und  $C_{ce}$  in zwei unabhängigen Messungen zu bestimmen.

Bei einem typischen LEEM-Experiment wird das Potential der Elektronenkanone  $\Phi_{Gun}$  festgehalten, wobei die Startenergie  $E_0$  der bildgebenden Elektronen über Variation des Probenpotentials eingestellt wird. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 4.5 a) dargestellt. Dabei gilt  $e\Phi_{Gun}=(E+E_0)=$  konst., so dass bildgebende Elektronen in das Magnetfeld der Objektivlinse mit konstanter Energie eindringen. Eine so durchgeführte Messung der Fokusverschiebung ist demnach lediglich sensitiv auf den elektrostatischen Beitrag  $C_{ce}$ . In einem Hg-PEEM Experiment wird typischerweise ein schmalbandiges Spektrum einer mittleren Startenergie  $E_0=$  konst. emittiert. Bei geringer Variation des Probenpotentials ( $\Delta E/E\ll 1$ ) ändern sich die Trajektorien der Elektronen im Immersionsfeld nicht, jedoch deren Eintrittsenergie im Feld der Objektivlinse. Dieses Szenario ist daher lediglich sensitiv auf den Beitrag  $C_{cm}$  der magnetischen Objektivlinse. Durch den Einsatz eines Elektronenspiegels erfährt die kombinierte chromatische Objektivlinsenaberration einen negativen Beitrag  $-C_c^S$ , so dass  $C_c=C_{cm}+C_{ce}-C_c^S$  gilt. Aufgrund der konstanten Elektronenergie im Korrektor im vorhergehend diskutierten LEEM-Szenario wird

leicht ersichtlich, dass  $-C_c^S$  nur im PEEM-Szenario messbar sein wird.

Der oben aufgezeigte Ansatz  $\delta_I = -\delta_c$  liefert nach länglicher Rechnung [92] einen formalen Zusammenhang von  $\Delta I$  und  $E_0$  sowie  $\Delta I$  und  $\Delta E$ . Für das vorhergehend diskutierte PEEM-Szenario folgt

$$I = I_0 + a \cdot \Delta E \tag{4.3.2}$$

als Beitrag der magnetischen Objektivlinse sowie

$$I = I_0 + c \cdot \sqrt{E_0} \tag{4.3.3}$$

als startenergie<br/>abhängiger Beitrag der Immersionsfeldes. Die Steigung von I ist dabei proportional zu den jeweiligen Aberrationskoeffizienten, so dass für eine vollständige Korrektur von chromatischer Aberration  $C_{cm} + C_{ce} - C_c^S = 0$  bei beliebigem, aber festem,  $E_0$  für die ersten Ableitungen  $\partial I/\partial \Delta E = -\partial I/\partial E_0$  gelten muss.

Abbildung 4.6 zeigt die gemessenen Daten für beide diskutierten Szenarien. Abbildung 4.6 a) veranschaulicht den in-Fokus-Objektivlinsenstrom in Abhängigkeit der Startenergie  $E_0$ . Die Ausgleichsrechnung wurde mit Gleichung 4.3.3 durchgeführt und liefert den Parameter  $c=0,3966\,\mathrm{mA/eV^{\frac{1}{2}}}$ . Im diskutierten PEEM-Szenario erfolgten mehrere Messungen des Fokus abhängig des Immersionsfeldes  $E\pm\Delta E$  für verschiedene Spiegelkoeffizienten  $C_c^S$ . Die nach linearer Regressionsrechnung gemäß Gleichung 4.3.2 erhaltene Steigung wurde in Abbildung 4.6 c) gegen den jeweiligen Koeffizienten  $C_c^S$  aufgetragen. Eine abermalige Ausgleichsrechnung mit  $S=S_0+b\cdot C_c^S$  ergibt  $S_0=0,0329\,\mathrm{mA/eV}$  sowie  $b=-0,0186\,\mathrm{mA/(eV\,m)}$ .

Zur vollständigen Korrektur der chromatischen Objektivlinsenaberration müssen die zu den Koeffizienten proportionalen Ableitungen b,c in Summe Null ergeben. Mit Ansatz  $c/2\sqrt{E_0} + S_0 + b \cdot C_c^S = 0$  folgt:

$$C_c^S = 0,0515 \,\mathrm{m} + 10,66 \,\mathrm{m/eV}^{\frac{1}{2}} \sqrt{E_0}$$
 (4.3.4)

 $C_c^S$  stellt damit den zur vollständigen Kompensation der chromatischen Objektivlinsenaberration  $C_c$  einzustellenden Koeffizienten des Spiegels dar. Abbildung 4.7 zeigt einen Plot der experimentell bestimmten Gleichung 4.3.4 im Vergleich zur aus Raytracing-Rechnungen bekannten Theoriekurve [92]. Die Messung zeigt eine sehr gute

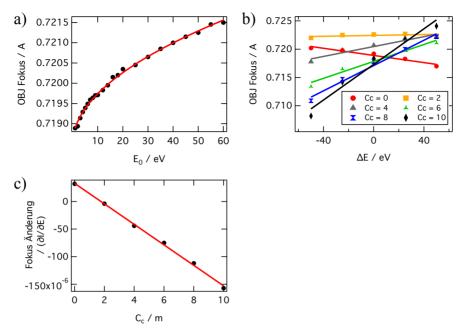
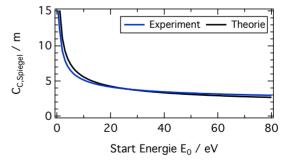
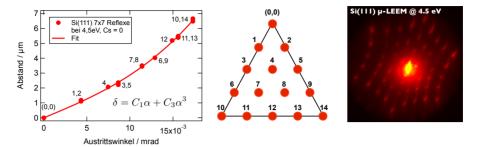


Abbildung 4.6 – Messung der chromatischen Objektivlinsenaberrationen  $C_{ce}, C_{cm}$ . a) zeigt die Änderung des Objektivlinsenstromes in Abhängigkeit der Startenergie innerhalb des im Text diskutierten LEEM-Szenarios. Die Ausgleichsrechnung erfolgte mit  $I=I_0+c\cdot\sqrt{E_0}$  und zeigt exzellente Übereinstimmung. Der Objektivlinsenstrom abhängig zum Immersionsfeld  $E\pm\Delta E$  ist in b) gezeigt. Die Messung im PEEM-Szenario erfolgte für verschiedene Spiegelkoeffizienten  $C_c$  wobei jeweils eine lineare Regression mit  $I=I_0+a\cdot\Delta E$  durchgeführt wurde. Deren Ableitung a, abhängig der den Messungen zugrunde liegenden Spiegelkoeffizienten  $C_c$ , ist in c) gezeigt. Der Fit erfolgte mit  $S=S_0+b\cdot C_c$ .

Abbildung 4.7 – Startenergieabhängiger chromatischer Aberrationskoeffizient  $C_c^S$  des Spiegels zur Kompensation der kombinierten chromatischen Aberration der Objektivlinse.





**Abbildung 4.8** – Radialer Abstand von Bildern der  $\mu$ -LEEM Apertur in der überfokussierten Abbildung in Abhängigkeit ihrer Austrittswinkel aus Si(111) (7×7) Rekonstruktion. Nichtlineare Ausgleichsrechnung liefert den sphärischen Aberrationskoeffizienten  $C_3 = (0,455 \pm 0,025)$  m der Kathodenlinse bei  $E_0 = 4,5$  eV.

Übereinstimmung mit der Theorie.

#### 4.3.2 Messung von $C_3$

Ein elegantes Verfahren zur Minimierung von Abbildungsfehlern basiert auf der Abbildung von kaustischen Flächen [97, 98] und wurde für die Messung der sphärischen Aberration von Tromp adaptiert [99]. Dieses nutzt Beugungsreflexe einer Si(111) (7×7) Oberflächenrekonstruktion [100]. Letztere korrespondieren zu verschiedenen, wohlbekannten Autrittswinkeln des Bildes aus der Probe. Die Probe wird mit LEEM abgebildet, wobei der Elektronenstrahl beleuchtungsseitig durch den Einsatz einer μ-LEED-Apertur auf 200 nm begrenzt wird. Bei in den Messungen verwendeten Gesichtsfeldern von etwa  $20\,\mu\mathrm{m}$  ist dies als punktförmige Quelle zu nähern. In einem idealen Mikroskop erscheint das Bild im Fokus als Superposition aller beitragenden Beugungswinkel in einem Punkt. Unterliegen einzelne Beiträge sphärischer Aberration, erfahren sie einen nichtlinearen Versatz  $\delta = C_1 \alpha + C_3 \alpha^3$  in der Gaussschen Bildebene. Defokussieren des Bildes separiert alle einzelne Beiträge in einer überfokussierten Ebene. Diese Abbildung wurde für die Messung benutzt. Zur Bestimmung von  $C_3$  wurde der radiale Abstand aller Beugungsordnungen abhängig ihres Austrittswinkels aufgetragen. Das Ergebnis einer exemplarischen Messung bei  $E_0 = 4,5\,\mathrm{eV}$  ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Durch nichtlineare Ausgleichsrechnung kann der sphärische Aberrationskoeffizient  $C_3 = (0,455 \pm 0,025) \,\mathrm{m}$ entnommen werden. Die vorhergehend beschriebene Messung wurde für verschiedene Startenergien durchgeführt. Über die Vergrößerung  $M^4 = 5220$  lassen sich die energieabhängigen  $C_3$  in Koeffizienten des Korrektors überführen, welche die sphärische Aber-

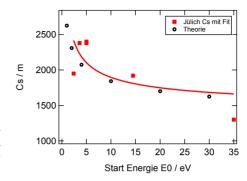
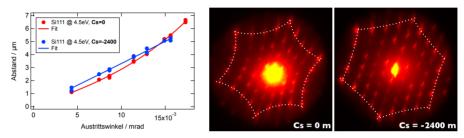


Abbildung 4.9 – Startenergieabhängiger Aberrationskoeffizient des Spiegels zur Kompensation der gemessenen sphärischen Aberration der Objektivlinse.

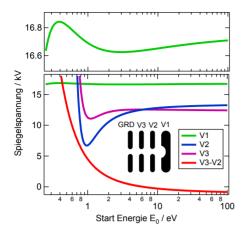


**Abbildung 4.10** – Radialer Abstand von Bildern der Mikrodiffraktionsapertur in der überfokussierten Abbildung bei identischen Austrittswinkeln einer Si(111) (7 × 7) Rekonstruktion. Die Messung wurde ohne  $(C_S=0\,\mathrm{m})$  und mit  $(C_S=2400\,\mathrm{m})$  Aberrationskorrektur durchgeführt.

ration der Objektivlinse korrigieren. Ein Fit mit  $C_3=a+b/\sqrt{E_0}$  folgt zu dem formalen Zusammenhang:

$$C_3^S = -1394.9 \,\mathrm{m} - 12.9 \,\mathrm{m} \cdot \sqrt{15000 \,\mathrm{eV}/E_0}$$
 (4.3.5)

Zur Überprüfung wurde die bei  $E_0=4,5\,\mathrm{eV}$  durchgeführte Messung mit eingeschaltetem Korrektor wiederholt. Letzterer wurde dazu auf einen Wert  $C_s=M^4\cdot 0,45\,\mathrm{m}\approx 2400\,\mathrm{m}$  eingestellt. Abbildung 4.10 zeigt die vorhergehende sowie erneute Messung mit Korrektor. Die korrespondierenden Bilder zeigen qualitativ einen enormen Unterschied. Bei eingeschaltetem Korrektor ist eindeutig der lineare Anteil des Defokus dominierend. Die Ausgleichsrechnung liefert für den korrigierten Fall  $C_3=(0,026\pm0,046)\,\mathrm{m}$ . Im Rahmen der experimentellen Genauigkeit ist  $C_3$  nicht mehr messbar und kann daher als korrigiert angesehen werden.



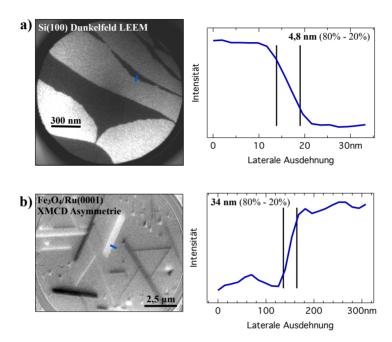
**Abbildung 4.11** – Startenergieabhängige Spannungen der Korrektorelektroden aus Gleichung 4.3.4 und 4.3.5. Berechnet für  $E=15\,\mathrm{kV}$  und nominellem Spiegelfokus  $f^S=74\mathrm{V}$ .

## 4.4 Der Aberrationskorrektor (Teil II)

Aus Gleichungen 4.3.4 und 4.3.5 ergibt sich für jede Startenergie  $E_0 > 0$  genau eine Kombination von  $C_c^S$  und  $C_3^S$  bei der alle Linsenaberrationen erster Ordnung vollständig korrigiert werden. Die Koeffizienten stellen nach Abschnitt 4.2 exakt ein Wertepaar [V1, (V3 - V2)] der Spiegelspannungen dar. Für die Implementierung einer automatischen Nachführung der Koeffizienten können korrespondierende Spannungswerte durch Polynome fünfter Ordnung dargestellt werden [92]. Dazu wurden Gleichungen 4.3.4 und 4.3.5 in die periphere Steuersoftware implementiert. Abbildung 4.11 zeigt die korrespondierenden Spannungswerte für den nominellen experimentellen Fokus des Mikroskops.

# 4.5 Auflösung

Die bisher erzielte höchste laterale Auflösung beträgt 2 nm mit LEEM [47] sowie 18 nm mit X-PEEM [101]. Abbildung 4.12 illustriert die in dieser Arbeit erreichte Auflösung für LEEM und X-PEEM. Die Bestimmung der lateralen Auflösung erfolgte bei LEEM mit Hilfe des Dunkelfeldbildes einer Si(100) Probe in  $(2 \times 1)$  Rekonstruktion (siehe 4.12 a). Zur Bestimmung der routinemäßig erreichten Auflösung mit X-PEEM wurde magnetischer Kontrast anhand der XMCD-Asymmetrie herangezogen. Abbildung 4.12 b) zeigt den magnetischen Kontrast von Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-Nanodrähten einer Dicke von wenigen Monolagen. Diese wurden *in-situ* mittels Molekularstrahlepitaxie unter Sauerstoffpartialdruck  $(1 \cdot 10^{-6} \, \text{mbar})$  auf eine einkristalline Ru(0001) Oberfläche deponiert. Die Bestimmung der lateralen Auflösung erfolgte in beiden Experimenten anhand des 20 % bis 80 % Kan-



**Abbildung 4.12** – Messung der routinemäßig erreichten Auflösung des Mikroskopes mit Dunkelfeld (a) und XMCD (b) Kontrast. Zum Zeitpunkt beider Messungen war das LEEM/PEEM an eine Beamline sowie externe Präparationskammer angeflanscht.

tenhubs einer Stelle großer Kontraständerung. Der Auswertung lassen sich die Werte 4,8 nm für LEEM sowie 34 nm für X-PEEM entnehmen, wobei letzterer mit der bei diesem Gesichtsfeld erreichbaren Auflösung des Detektorsystems zuammenfällt. Die gemessenen Werte zeigen eine um einen Faktor zwei geringere laterale Auflösung wie oben genannte Bestmarken und sollen im Folgenden kritisch kommentiert werden.

Das LEEM/PEEM System ist an Beamline UE56/1-SGM auf einem Granitsockel mit aktivem Dämpfungssystem installiert. Vibrationen, welche durch periphere Verkabelung oder Pumpen eingekoppelt werden, können so bestmöglich reduziert, jedoch nicht vollständig vermieden werden. Insbesondere UHV-Verbindungen zum Strahlrohr sowie einer externen Präparationskammer sind Quellen für eingekoppelte Schwingungen, für die Durchführung von Experimenten jedoch notwendig.

Bedingt durch die große Intensität der Elektronenkanone liegt die Akquisationszeit eines Bildes während LEEM Experimenten in der Größenordnung von einer Sekunde. Als Einflüsse, welche die Bildqualität verringern, sind hier insbesondere Schwingungen im Frequenzbereich einiger hundert Hertz zu nennen. Diese werden hauptsächlich mechanisch von Turbomolekularpumpen oder akustisch vom Umgebungslärm in der Experimentierhalle des Synchrotrons eingekoppelt. Darüber hinaus zeigen starke elektromagnetische Felder benachbarter Experimente eine Verschlechterung der elektronenoptischen Abbildung.

Die magnetische Abbildung mit PEEM unter Nutzung von Sychrotronstrahlung erfolgt mit einer vergleichsweise geringen Photonenintensität, welche durch Intensität und Größe des Strahlrohrfokus vorgegeben ist. Der zur Verfügung stehende Photonenfluss auf die Probe, einhergehend mit Bildkontrasten im Bereich weniger Prozent, erfordert eine signifikante Verlängerung der Akquisationszeit um ausreichende Statistik zu generieren. Typischerweise werden Bilder über eine gesamte Aufnahmedauer von einigen Minuten gemittelt. Die erreichbare laterale Auflösung ist in diesen Experimenten stark an die mechanische und thermische Stabilität des Probenmanipulators gekoppelt. Eine abermalige Erhöhung der Anforderungen stellen zeitaufgelöste Experimente dar, bei denen lediglich einzelne Bunche des Synchrotronlichtes zur Abbildung genutzt werden. Bei synchrotronbasierten Experimenten kann aufgrund der begrenzten Photonenintensität das nutzbare Gesichtsfeld nicht beliebig klein gewählt werden. Der derzeitige Fokus von Strahlrohr UE56/1-SGM weist eine Größe von etwa  $40 \cdot 40 \mu m^2$  auf. Einhergehend mit der zur Verfügung stehenden Photonenintensität limitiert dieser Sachverhalt das kleinstmöglich

#### 4 Aberrationskorrigiertes PEEM/LEEM an Beamline UE56/1-SGM

nutzbare Gesichtsfeld auf etwa  $10\,\mu\mathrm{m}$ . Bei diesen Experimenten ist die laterale Auflösung daher nicht mehr primär von der Güte der Elektronenoptik oder Probe abhängig, sondern wird bestimmt durch das Zusammenspiel von Gesichtsfeld und Detektorauflösung. Letztere wird bestimmt durch die Anzahl Kanäle des Vielkanalverstärkers sowie Kameraeinstellungen.

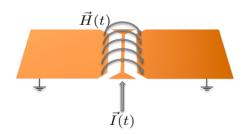
Zur Bewältigung der angesprochenen Limitierungen werden zwei Erweiterungen des Experiments installiert werden. Im Juli 2013 erfolgt die Installation eines neuen Probenmanipulators. Dieser wird mechanisch an der Objektivlinse des Mikroskops befestigt, so dass unterschiedliche Einkopplungen von Schwingungen zwischen Linsensystem und Probe ausgeschlossen werden. Der Manipulator bietet darüberhinaus eine erweiterte  $\mu$ -Metall-Abschirmung der Probe, um elektromagnetische Einflüsse auf niederenergetische Elektronen zu minimieren. Außerdem steht zukünftig ein Rotationsfreiheitsgrad zur Verfügung, der insbesondere zur Optimierung des magnetischen Kontrastes einhergehend mit einer Verbesserung des Signal-Untergrund-Verhältnis von Bedeutung ist. Als zweite Erweiterung wird eine neue Refokussieroptik des Strahlrohres entwickelt werden, deren Fokusgröße und Stabilität auf die Anforderungen eines aberrationskorrigierten PEEM angepasst ist. Durch Verkleinerung des Fokus auf etwa  $15 \cdot 15 \mu m^2$ , wird eine Erhöhung der Photonenintensität um eine Größenordnung angestrebt.

# 5 Methodische Entwicklungen

Ein wesentlicher Teil dieser Arbeit wurde der Entwicklung und Implementierung eines zeitauflösenden Betriebsmodus des P90 Mikroskops gewidmet. Die Entwicklung zeichnet das Mikroskop als bisher einziges aberrationskorrigiertes PEEM zur Durchführung zeitauflösender Experimente mit Weichröntgen-Synchrotronstrahlung aus (engl.: timeresolved, aberration-corrected x-PEEM, TRACX-PEEM). Die in diesem Kapitel dargelegten methodischen Entwicklungen sind in F. Nickel et. al., Time-resolved magnetic imaging in an aberration-corrected, energy-filtered photoemission electron microscope, Ultramicroscopy (2013), http://dx.doi.org/10.1016/j.ultramic.2013.03.005 veröffentlicht.

#### 5.1 TRACX-PEEM

Ein stroboskopisches PEEM-Experiment erfordert, wie in Abschnitt 3.4 dargelegt, eine periodische Anregung und Abtastung der Probe mit zeitlicher Variation der Verzögerungszeit zwischen beiden Signalen. Die Anregung eines magnetischen Schichtsystems erfolgt durch das OERSTED-Feld eines stromdurchflossenen Leiters, welcher auf mikroskopischer Größenskala meist durch einen lithografisch präparierten, koplanaren Wellenleiter dargestellt wird (s. Abbildung 5.1). Dieser besteht aus einer schmalen metallischen Leiterbahn zwischen zwei ausgedehnten metallischen Grundflächen auf einem Isolator- oder Halbleitersubstrat. Die Impedanz des Systems ist bestimmt durch die Geometrie des Wellenleiters und der Dielektrizitätskonstante des Substrates. Um Dispersion des Strompulses innerhalb des Leiters zu vermeiden, muss die Impedanz auf 50  $\Omega$  angepasst werden. Bei



**Abbildung 5.1** – Schematische Darstellung eines koplanaren Wellenleiters. Ein durch den Strompuls  $\vec{I}(t)$  erzeugtes OERSTEDT-Feld  $\vec{H}(t)$  weist in der Mitte des Wellenleiters lediglich inplane-Komponenten auf.

optimaler Anpassung sind Frequenzen bis in den THz-Bereich übertragbar. In einem koplanaren Wellenleiter werden transversale und longitudinale Magnetfeldkomponenten erzeugt [102]. Durch Kurzschluss der Grundflächen werden die longitudinalen Beiträge unterdrückt. Das erzeugte Magnetfeld weist in der Mitte der Wellenleiteroberfläche lediglich in-plane-Komponenten auf. Insbesondere für magnetodynamische Messungen ist eine wohldefinierte Richtung des Anregungspulses unabdingbar. Das experimentell zu untersuchende System wird daher ebenfalls lithografisch in der Mitte des Wellenleiters aufgebracht. Im Rahmen dieser Arbeit wurden typischerweise 15  $\mu$ m breite Wellenleiter aus Gold (300 nm) auf GaAs-Substrate präpariert.

Die Einspeisung eines Strompulses in den Wellenleiter erfolgt im einfachsten Fall mit Hilfe eines elektronischen Pulsgenerators. Im verwendeten Mikroskop wird die Probe auf negativer Hochspannung betrieben. Die Schaltung eines schnellen Strompulses erfolgt in diesem Fall durch einen optischen Schalter. Letzteren kann ein ebenfalls lithografisch präparierter Auston-Switch [103] oder eine kommerzielle Photodiode darstellen. Erstere können extrem kurze Pulse auf Femtosekunden-Zeitskala erzeugen [104], weisen jedoch Einschränkungen im maximal durchlässigen Strom auf. Kommerzielle Avalanche-Photodioden (APD) erreichen Pulslängen von etwa 500 ps bei wesentlich geringeren Einschränkungen bezüglich Disperion und Stromstärke. Aufgrund der Zeitskala von einigen Nanosekunden der in dieser Arbeit adressierten physikalischen Fragestellung erfolgte die Schaltung mit APDs.

Bei synchrotronbasierten Experimenten in einem stroboskopischen Verfahren ist die Repetitionsrate des Synchrotrons eine kritische Größe. Diese muss langsam genug sein, um innerhalb einer Periode dem zu untersuchenden System die Relaxation in seinen Grundzustand zu ermöglichen. Die meisten Synchrotrons arbeiten mit Kavitätsfrequenzen von 500 MHz, respektive einer Periodenlänge von 2 ns. Dies ist für die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen zu schnell. Das Berliner Synchrotron BESSY II stellt für zeitaufgelöste Experimente einen isolierten Single Bunch innerhalb einer Lücke von 100 ns im Füllmuster zur Verfügung (s. Abbildung 5.6 d)), welcher mit einer Repetitionsrate von 1,25 MHz wiederholt wird. Innerhalb des Experiments kann dieser zur Abbildung der zeitlich veränderlichen Größe genutzt werden, wobei alle übrigen durch einen geeigneten Detektor geblockt werden. Neben der zeitlichen Leistungsfähigkeit zum Selektieren des geeigneten Bunches, stellt die geringe Intensität des Single Bunch den Selektionsmechanismus vor eine Herausforderung. Seit der Inbetriebnahme des Top-up-Modus im August 2012 wird der Speichering mit einem Strahlstrom von konstant 280 mA betrie-

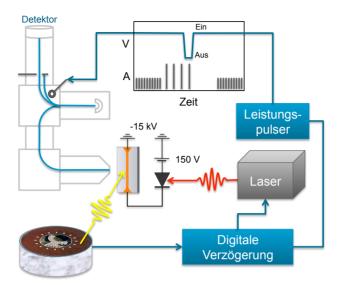


Abbildung 5.2 – Schematischer Aufbau des zeitauflösenden Betriebsmodus.

ben, wovon 10 mA im Single Bunch gehalten werden. Für eine Messgenauigkeit, welche die Auflösung von Messgrößen im Bereich weniger Prozent erlaubt, ist die unerwünschte Strahlintensität detektorseitig um mindestens vier Größenordnungen zu reduzieren. Prinzipiell existieren zwei Möglichkeiten, einen selektiven Detektor zu implementieren. Erstere involviert das MCP-Phosphorschirm-System des Mikroskops. Die Kennlinie eines Vielkanalverstärkers verläuft exponentiell, wobei eine Verdoppelung der Verstärkung typischerweise durch einen Spannungshub von 50 V erfolgt. Schnelles An- und Ausschalten liefert demnach ausreichende Unterdrückung ab einem Spannunghub von etwa 400 V auf einer Betriebsspannung von etwa 1 kV. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein System zur Schaltung des MCP mit 1,25 MHz getestet. Die Kapazität des Vielkanalverstärkers bedingt bei ausreichendem Spannungshub einen Leistungseingang von etwa 600 W. Die Messungen zeigten eine erhebliche Verschlechterung der Detektorkörnigkeit sowie des Rauschens. Bezüglich der immensen Anforderungen der Abbildungseigenschaften des Detektorsystem bei aberrationskorrigiertem X-PEEM wurde eine alternative Methode benötigt. Diese stellt als prinzipielle zweite Möglichkeit den Einsatz eines elektronenoptischen Elements zur Bunchselektion innerhalb der optischen Säule dar.

Der schematische Aufbau des zeitauflösenden Experiments ist in Abbildung 5.2 gezeigt. Photoemission erfolgt durch eine gepulste Synchrotronquelle mit Strahlung im Weichröntgenbereich. Das Probensystem bestehend aus koplanarem Wellenleiter sowie APD befindet sich im UHV, wobei die Spannungsversorgung über die Probenbühne des Mikroskopes erfolgt. Zum Starten der periodischen Anregung wird eine ps-Laserdiode benutzt. Diese ist über einen digitalen Verzögerungsgenerator an das Synchrotron-Referenzsignal gekoppelt. Die Beleuchtung der APD mit gepulster Laserstrahlung im sichtbaren roten Spektralbereich erfolgt durch standard UHV-Fenster. Bei der Durchführung des Experimentes wird der Start der Laserdiode schrittweise gegenüber dem Referenzsignal zurückversetzt. Dies erlaubt die Abbildung der Probe zu verschiedenen Zeitpunkten des Ansprechverhaltens nach dem Anregungspuls. Das Gatingsystem ist ebenfalls zum Referenzsignal gekoppelt und blockiert alle unerwünschten Synchrotronpulse mittels Apertur.

Nach der Vorstellung des generellen Aufbaus soll in den folgenden beiden Abschnitten detailliert auf die Leistungsfähigkeit der entwickelten Komponenten eingegangen werden.

## 5.2 Gating-System

Das entwickelte Gating-System nutzt ein zusätzliches elektronenoptisches Element, um die Funktionsweise des Energiefilters zur Bunchselektion zu adaptieren. Dieser Deflektor lenkt die vollständige Sekundärelektronenverteilung der bildgebenden Photoelektronen in der Beugungsebene ab (Deflektor AN-Zustand). In Konsequenz können keine, oder lediglich eine vernachlässigbare Anzahl Photoelektronen die Kontrastapertur passieren und zu einem Bild beitragen. Das Lösen der Ablenkung zu einem definierten Zeitpunkt (Deflektor AUS-Zustand) erlaubt Elektronen die Kontrastapertur auf ihrem originalen, nicht manipulierten Weg zu passieren. Ein in der Stärke der Ablenkung definierbarer und reproduzierbarer Ablenkungsvorgang der Sekundärelektronenparabel erlaubt dabei weiterhin die Energiefilterung in der dispersiven Ebene mittels Kontrastapertur. Das elektronenoptische Design des P90-Mikroskops stellt mit der Bildebene des letzten magnetischen Sektorfeldes eine geeignete Position für eine solche Ablenkungselektrode zur Verfügung. Diese stellt bereits eine aberrationskorrigierte Ebene hinter dem Korrektor dar und beeinflusst daher nicht dessen Funktionsweise. Abbildung 5.3 zeigt schematisch die Elektronentrajektorien im Bereich des installierten Bunch-Selektors. Der Tetrodenspiegel reflektiert ein aberrationskorrigiertes elektronenoptisches Bild, welches vom magnetischen Sektorfeld um 90° abgelenkt in die Projektivsäule des Mikroskopes transferiert wird. Die Trajektorien der bildgebenden Photoelektronen werden dabei durch

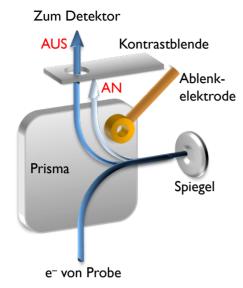


Abbildung 5.3 – Schematische Darstellung der Elektronentrajektorien im magnetischen Sektor bei Nutzung des Gating-Systems. Ein zusätzlicher elektronen-optischen Ablenker ermöglicht MHz-Schalten zwischen zwei definierten Zuständen. Im AN-Zustand (heller Pfeil) werden Photoelektronen von der Apertur geblockt, während diese im AUS-Zustand (dunkler Pfeil) die Apertur passieren und zum Bild beitragen.

die Position der Kontrastapertur entlang der dispersiven Ebene des Prismas festgelegt. In Abbildung 5.3 sind die zu 0 eV Startenergie entsprechenden Trajektorien für den abgelenkten (AN, heller Pfeil), sowie unmanipulierten (AUS, dunkler Pfeil) Betriebsmodus des Ablenkungssystems dargestellt. Im Fall des AN-Zustands des Deflektors wird die Elektronenverteilung zu kleineren Radien hin abgelenkt. In diesem Betriebsmodus kann lediglich ein kleiner Bruchteil der hochenergetischen Photoelektronen die Apertur passieren, während die niederenergetische Sekundärelektronen vollständig geblockt werden. Durch den äußerst geringen Anteil von energetisch höheren Elektronen ist das Ablenkungssystem in der Lage eine sehr effektives "Abschalten" der Gesamtintensität durchzuführen.

Um abzuschätzen, ob Photoelektronen einer kinetischen Energie  $U_0$  von 15 keV ausreichend abgelenkt werden können, wird die Ablenkungselektrode durch das einfache Modell einer elektrostatisch geladenen Platte von Länge L und Feld E approximiert. Photoelektronen, welche ein senkrecht wirkendes elektrostatisches Ablenkungsfeld passieren sind demnach einer Kraft senkrecht zu ihrer Flugbahn ausgesetzt, wobei die resultierende Ablenkung  $\Delta x$  nach [105] gegeben ist durch

$$\Delta x = \frac{EL^2}{4U_0}. ag{5.2.1}$$

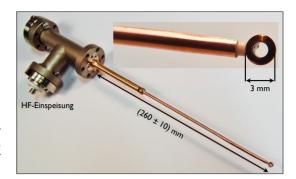


Abbildung 5.4 – Foto der vollständig zusammengebauten, kompakten Ablenkeinheit vor Einbau in das Mikroskop.

Für bestmögliche Effizienz des Ablenkungssystems ist es notwendig, eine elongierte Ablenkungselektrode zu verwenden. Die Abhängigkeit der resultierenden Ablenkung zur zweiten Potenz der Elektrodenlänge ermöglicht es, notwendige Ablenkungsspannungen und damit verbundene Ströme klein zu halten, welche einen erheblichen Einfluss auf die Stabilität des kompletten Systems haben. Letztere stellt ein bedeutsames Limit an verwendbare Spannungen dar, da ein Übersprechen auf empfindliche elektronenoptische Komponenten des Mikroskops durch den Leistungseingang während eines MHz Ein/Ausschaltvorgangs unbedingt zu vermeiden ist.

Abbildung 5.4 zeigt eine Fotografie der vollständig zusammengebauten, kompakten Ablenkeinheit. Wie vorhergehend beschrieben, ist ein präzises und reproduzierbares Umschalten der Sekundärelektronenintensität in der dispersiven Ebene absolut erforderlich. Dieses Schaltverhalten einer Ablenkungselektrode kann nur mit einem definierten Nullpunkt des anliegenden Spannungspulses erreicht werden. Die Ablenkungselektrode ist daher mittels einer Keramik isoliert auf einem Unterstützungsstab angebracht. Der eigentliche Schaltpuls wird so auf einer zusätzlichen Gleichspannung in die Elektrode eingespeist, so dass eine bestmögliche Pulsdefinition während des Messvorgangs über mehrere Millionen Repetitionen gewährleistet ist. Für eine störungsfreie Übertragung des Schaltpulses wird ein UHV-taugliches, Kapton-isoliertes Koaxialkabel verwendet, welches innerhalb des Führungsstabs verlegt ist. Zur Einspeisung des elektronischen Signales wird ein isolierter SMA UHV-Adapter verwendet. Alle im Prisma befindlichen Komponenten sind aus hochgradig polierter, nicht magnetischer Bronze gefertigt. Die Ablenkungselektrode ist zusätzlich graphitiert, um Aufladungen zu vermeiden und ein Oberflächenpotential ähnlich der Mikroskopsäule bereitzustellen. Die komplette Ablenkungseinheit ist mit Hilfe eines 3-Wege-Manipulators an das Prisma angeflanscht, welcher die Positionierung der

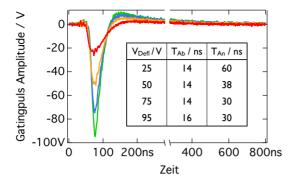


Abbildung 5.5 – Eingespeiste Ablenkungspulse einer Periode von 800 ns. Die Tabelle präsentiert Anstiegs- und Abfallzeiten in Form der 90 prozentigen Amplitudenvariation des Signals.

Elektrode innerhalb des Prismas mit Mikrometergenauigkeit gewährleistet. Eine entwickelte Elektronik speist das Ablenkungssystem mit 0-100 V Spannungspulsen erdfrei auf einer 0-20 V Gleichspannung für die Ausrichtung auf der optischen Achse. Die Elektronik ist phasensynchronisiert mit dem vom Synchrotron zur Verfügung gestellten Referenzsignal (1.25 MHz TTL) über einen digitalen Pulsgenerator. Letzterer erlaubt ebenfalls die zeitliche Variation zwischen Referenz und Ablenkungspuls. Die erreichbare Phasenstabilität des elektrischen Systems liegt im Bereich von einigen Picosekunden und ist für die folgenden Betrachtungen daher vernachlässigbar.

Wie der Beschreibung des bei BESSY zur Verfügung stehenden Füllmusters zu entnehmen ist, sind Zeitfenster von einigen 10 ns erforderlich um den Hybridbunch zu selektieren. Wie Abbildung 5.5 zeigt, stellt dieses Zeitverhalten keine Herausforderung an die entwickelte Elektronik dar. Die Tabelle innerhalb 5.5 führt die gemessenen Anstiegsund Abfallzeiten des eingespeisten Ablenkungspulses in Form der 90 prozentigen Amplitudenvariation auf. Das Schalten in den AUS-Zustand erfolgt innerhalb von 16 ns unabhängig der des gewählten Spannungshubes. Zurückschalten in den AN-Zustand des Systems ist abhängig der Amplitude innerhalb von 60 ns bis 30 ns möglich.

Die Integration des zusätzlichen elektronenoptischen Elementes in die tägliche Justageroutine des Mikroskops erfolgt gemäß der folgenden Prozedur in zwei Schritten:

- 1. Einrichtung der Position der Ablenkungseinheit in der Realraum Ebene des Magnetischen Sektorfeldes.
- 2. Einstellung der Ablenkungsspannung um Bunch-Selektion zu erreichen *und* die Sekundärelektronenverteilung der selektierten Photoelektronen auf der optischen Achse einzurichten.

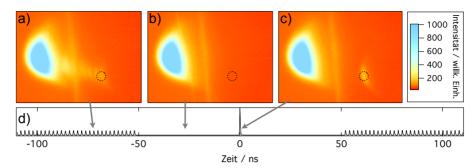


Abbildung 5.6 – k-Raum Bilder der Kontrastaperturebene. Der Ablenkungspuls ist auf drei charakteristischen Bereichen des Synchrotron-Füllmusters platziert. Multibunche (a), Bunchlücke (b) und Hybrid-Bunch (c). Für zeitaufgelöste Messungen wird das Gating System wie in (c) eingestellt. Die Konstrastapertur zur Selektion des gewünschten Bunch befindet sich dabei auf der optischen Achse und ist als gestrichelter Kreis eingezeichnet.

Schritt 1 wird typischerweise durchgeführt, während die zu untersuchende Probe im größten Gesichtsfeld (300µm) abgebildet wird. Die Ablenkeinheit wird so als Schatten in der Bildebene des Mikroskops wahrgenommen und zu einer Position nahe der optische Achse bzw. Strukturen justiert. Bei Experimenten typische Gesichtsfelder (<  $20\mu\mathrm{m}$ ) werden so nicht beschränkt, aber maximale Effizienz der Ablenkung ist gewährleistet. Eine Annäherung an die zu untersuchenden Strukturen kann dabei solange erfolgen, wie keine Beeinträchtigung der Abbildungsleistung durch Ladungseffekte verzeichnet wird. Für die Einstellung von Gatingspannungen in Schritt 2 der Routine ist es notwendig, die energiedispersive Ebene der Kontrastapertur abzubilden. Durch Auswählen einer ausreichend hohen Gatingpuls-Amplitude zeigt sich ein in Abbildung 5.6 gezeigtes Bild, je nach zeitlicher Position des Spannungspulses im Füllmuster des Synchrotrons. Im Fall von (a) ist der Gatingpuls auf dem Ende des Multibunchzuges platziert. Dies korrespondiert zu einer Zeit im Füllmuster von etwa -50 ns (s. Abb. 5.6). Die von der steigenden Flanke des Ablenkungspulses eingeschlossenen Bunche des Füllmusters erzeugen mehrere Elektronenparabeln geringer Intensität. Der Abstand zweier aufeinanderfolgender Parabeln ist hierin gegeben durch die Kavitätsfrequenz des Synchrotrons von 500 MHz, beziehungsweise 2 ns. Die zeitliche Verzögerung zwischen zwei Bunchen ist als deutliche räumliche Trennung in der dispersiven Ebene sichtbar. Dieses Muster kann zur Unterscheidung von Ende und mittlerem Bereich des Pulszuges dienen. Sollte der Gatingpuls mittig auf den Multibunchen platziert sein, wäre keine deutliche Trennung der Energieparabeln sichtbar. Aufgrund unterschiedlich stark steigender oder abfallender Flanke wäre das Füllmuster deutlich verschmiert zu sehen. Das Ende des Pulsezuges weist jedoch auch auf die Position der Bunchlücke im Füllmuster hin. Der in (b) gezeigte Fall entspricht einer Zeit von -50 ns bis 0 ns und weist keine separierte Elektronenparabel auf. Lediglich die Summe aller im Füllmuster vorhandenen Bunche ist als Überlagerung sichtbar, abgelenkt durch die gewählte, konstante Gatingspannung. Ist das Zeitfenster des Ablenkungspulses direkt über dem isolierten Hybrid-Bunch platziert, zeigt sich eine dispersive Ebene gemäß (c) (0 ns). Eine einzelne Parabel von größerer Intensität als in (a) ist deutlich räumlich getrennt sichtbar. Wenn diese Einstellung gefunden ist, wird die Gleichspannung des Gatingsystems benutzt, um eine Feinjustage der ausgewählten Hybridbunch-Parabel auf die optische Achse durchzuführen. Schlussendlich wird die Kontrastapertur auf der optischen Achse platziert, um die gewünschte Selektion der bildgebenden Photoelektronen durchzuführen. Die Postion der Kontrastapertur auf der optischen Achse ist in Abbildung 5.6 (a-c) als gestrichelter Kreis eingezeichnet. Das System ist nun im optimalen Betriebsmodus um effektiv Photoelektronen, erzeugt von Bunchen mit unerwünschtem Zeitschema, auszufiltern.

Im Folgenden soll die Leistungsfähigkeit des entwickelten Gatingsystems charakterisiert werden. Nach der Implementierung in das Mikroskop wurden Messungen von Zeitverhalten, Unterdrückung und Bildqualität des Systems in ersten, nicht zeitaufgelösten, Experimenten durchgeführt. Die Charakterisierung des Systems erfolgte an einer Fe-Mehrschichtsystem, welches lithografisch mikrostrukturiert wurde. Das Photoemissions-experiment wurde an der L3-Absorptionskante von Fe durchgeführt, wobei das PEEM mit Energiefilter- sowie Kontrastapertureinstellungen korrespondierend zu 3 eV Sekundärelektronen Bandbreite betrieben wurde.

Zunächst wurde das integrierte Photoemissionssignal der Probe bei gleichzeitiger Abtastung des Synchrotron-Füllmusters durch den Gatingpuls gemessen. Hierzu wurde der zeitliche Versatz der in Abbildung 5.5 gezeigten Ablenkungspulse, gegenüber dem Synchrotronreferenzsignal variiert und pro Intervall ein Bild einer Mikrostruktur aufgenommen. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 5.7 gezeigt und repräsentiert das Zeitverhalten des Systems. Für  $t=20\,\mathrm{ns}$  ist der Ablenkungspuls offensichtlich in der Bunchlücke des Füllmusters platziert, so dass kein Photoemissionssignal messbar ist. Durch Verkürzen der Verzögerungszeit, wird das Zeitfenster des Gatingsystems über den isolierten Hybridbunch geschoben. Das Maximum des gemessenen Signals zum willkürlich als t=0 definierten Zeitpunkt stellt hier die Position des Hybridbunches im Füllmuster dar. In dieser Einstellung lässt das System ausschließlich Elektronen,

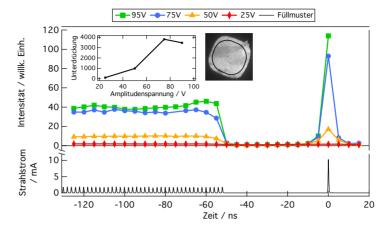
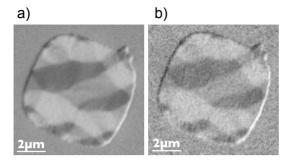


Abbildung 5.7 – Zeitverhalten des Ablenkungssystems. Der Hauptgraph präsentiert das integrierte Photomissionssignal einer ausgewählten Mikrostruktur, welches auf die mittlere Intensität in der Bunchlücke normiert wurde. Ebenfalls dargestellt sind die zur Auswertung genutzte Integrationsfläche sowie das berechnete Unterdrückungsverhältnis.

welche vom Hybridbunch emittiert wurden, zum Detektor des Mikroskops passieren. Dies stellt den gewünschten Betriebsmodus bei zukünftigen zeitaufgelösten Messungen dar. Bei weiterem Verkürzen der Verzögerung tritt der Ablenkungspuls abermals in die Lücke des Füllmusters ein. Das messbare Signal fällt auf einen Wert entsprechend der ersten Hälfte der symmetrischen Lücke des Füllmusters ab, bevor das Zeitfenster des Gatingsystems bei etwa  $t=50\,\mathrm{ns}$  in den Pulszug der Multibunche hineingeschoben wird. Wie vorhergehend bei Abbildung 5.6 beschrieben, kann durch die Flankensteilheit des Ablenkungspulses lediglich ein Multibunch direkt unter der Kontrastapertur platziert werden. Die an dieser Stelle gemessene Intensität ist daher deutlich geringer als beim isolierten Hybridbunch, obwohl die vom Zeitfenster des Gatingpulses eingeschlossenen Multibunche in der Gesamtintensität höher sind. Eine zeitliche Trennung von Multibunchen, mit der hier durchgeführten Messmethode, wäre bei einer höheren Abtastrate und kleineren Apertur jedoch möglich.

Der Unterdrückungsfaktor des Systems repräsentiert einen Faktor, um welchen Photoelektronen, die von 1 mA Multibunchstrahlstrom emittiert werden, gegenüber den von 1 mA Hybridbunchstrahlstrom emittierten abgeschwächt werden. Die ermittelten Ergebnisse sind bereits in Abbildung 5.7 gezeigt und lassen sich wie folgt aus den zu-



**Abbildung 5.8** – XMCD Asymmetrie einer  $(6 \cdot 6\mu)m^2$  Struktur an der Fe L3 Kante. Die Bilder sind aufgenommen mit dem vollständigen Füllmuster (a) sowie nur mit dem Singlebunch bei Nutzung des Ablenkungssystems (b).

grunde liegenden Bildern ermitteln. Nach Integration des Photoemissionssignals einer einzelnen Mikrostruktur wurden der gemittelte Kamera- und MCP-Dunkelstrom subtrahiert und das Signal auf die mittlere Intensität in der Bunchlücke ( $t=-40\,\mathrm{ns}$  bis  $t=-20\,\mathrm{ns}$ ) normiert. In Konsequenz stellt die von Hybridbunch ( $t=0\,\mathrm{ns}$ ) emittierte Intensität das Signal-Untergrund-Verhältnis (SUV) des Gatingsystems dar. Um einen Unterdrückungsfaktor S des Systems zu berechnen, muss aufgrund von Touschek-Effekten [106] das den Messungen zugrunde liegende und zeitlich veränderliche Verhältnis ( $I_{ges}-I_{HB}$ ) =  $I_{HB}$  von Multi- $I_{MB}$  zu Hybridbunchintensität  $I_{HB}$  berücksichtigt werden. Der zu bestimmende Unterdrückungsfaktor folgt daraus zu  $S=I_{HB}$ ·SUV und ist innerhalb von Abbildung 5.7 dargestellt. Mit steigender Amplitude des Ablenkungspuls nähert sich die Unterdrückung des Gatingsystems einem konstanten Bereich > 3000 für Ablenkungsspannungen > 75 V. In diesem Bereich ist der Unterdrückungsfaktor lediglich bestimmt durch die zeitliche Variation von  $I_{HB}$  und repräsentiert den optimalen Arbeitspunkt des Systems.

Eine quantitative Analyse der erreichbaren Bildqualität bei Nutzung des Gatingsystems erfolgt anhand der in Abbildung 5.8 gezeigten XMCD-Bilder. Um eine bestmögliche Vergleichbarkeit zwischen Gating- und Standardmodus zu gewährleisten, wurde auf eine Variation der Detektoreinstellungen verzichtet. Um trotzdem eine annähernd vergleichbare Füllung des CCD-Chips der Kamera zu erreichen, wurde die Belichtungszeit von 0,5 s im Standardmodus auf 12 s im Gatingmodus angehoben. Bei der Akquisition der XMCD-Bilder wurde über jeweils 50 Bilder pro Helizität gemittelt. Die im Folgenden beschriebene Bildanalyse ist auf den zugrundeliegenden Durchschnittsbildern durchgeführt. Alle Bilder enthalten Rauschen statistisch unkorrelierter Ereignisse beschrieben durch Poisson-Statistik [107]. Hierin ist die durchschnittliche Intensität plus Standardabweichung durch  $n + \sqrt{n}$ , sowie das Signal-Rausch-Verhältnis durch  $SRV = \frac{1}{\sqrt{n}}$ 

gegeben. Für eine detailierte Bildanalyse wurden fünf Domänen mit unterschiedlichen Grauwerten ausgewählt und die durchschnittliche Intensität  $I_{ges}, I_{HB}$  sowie Standardabweichung  $\sigma_{ges}, \sigma_{HB}$  berechnet. Mit einem der jeweiligen Messung zugrundeliegenden Faktor  $T_{ges}, T_{HB}$ ,welcher Integrationszeiten sowie Intensitätsverhältnisse repräsentiert, kann ein konstanter Skalierungsfaktor  $\epsilon = \frac{I_{ges}}{I_{HB}} \cdot \frac{T_{ges}}{T_{HB}} = 1,86$  eingeführt werden. Durch die Faktoren  $\epsilon$  und  $\sqrt{\epsilon}$  können die im Gatingmodus aufgenommenen Bilder auf dieselbe Intensität skaliert werden wie die im Standardmodus aufgenommenen. Es erfolgt somit eine Normierung der Bilder auf identischen Photonenfluss. Nach abschließender Normierung beider Intensitäten auf 1 folgt:

$$I_{qes} = 1 \pm 0.031 \tag{5.2.2}$$

$$I_{HB} = 1 \pm 0.062 \tag{5.2.3}$$

Die Standardabweichung stellt hierbei das Maß für die Güte der Bildqualität beider Betriebsmodi dar. Die Analyse zeigt, dass die erreichte Bildqualität im Gating-Betriebsmodus auf einem exzellenten Niveau von 6 % Rauschen liegt. Da alle weiteren Parameter des Experiments während der Messung unverändert blieben, ist das verstärkte Bildrauschen direkt dem Einsatz des Gatingsystems geschuldet. Es ist daher von Interesse, welche zusätzliche Belichtungszeit  $\Delta t$  benötigt wird, um den höheren Rauschanteil zu kompensieren. Gemäß

$$\frac{\sigma_{HB}}{I_{HB}} \cdot \frac{\sqrt{t}}{t} = \frac{\sigma_{ges}}{I_{ges}} \tag{5.2.4}$$

folgt t=1.41 beziehungsweise  $\Delta t=41\%$ . Die Rechnung zeigt, dass ein vom Gatingsystem verursachtes Bildrauschen in Höhe von 3% von einer 41% längeren Belichtungszeit kompensiert werden kann. Unter diesen Bedingungen kann bei gleicher Singlebunchintensität mit Gating die gleiche Bildqualität erreicht werden wie im Standard-Betriebsmodus.

#### 5.3 Probenhalter

Der zweite wichtige Bestandteil im Pump-Probe-Experiment ist die elektrische Anregung der Probe. Im vorliegenden Fall bestimmen periphere Geräte eine vollständige Integration innerhalb des Probenhalters. Dazu wurde der originale Probenhalter [48] weiterentwickelt, um ihn den Anforderungen eines zeitaufgelösten Experiments anzupassen. Um Kompatibilität zu einer Standardprobenbühne zu gewährleisten, wurde eine komplett im Probenhalter integrierte Hochfrequenzelektronik entwickelt. Letztere erlaubt die Erzeu-

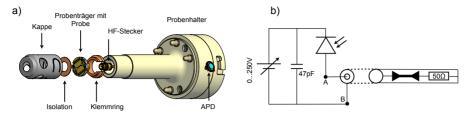
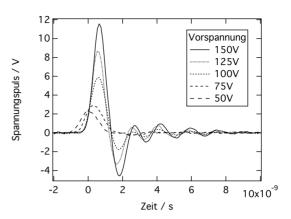
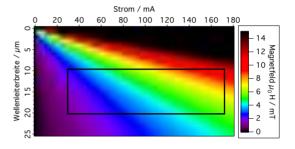


Abbildung 5.9 – Mechanisches (a) und elektronisches (b) Design des Probenhalters.

gung von Nanosekundenpulsen direkt im Ultrahochvakuumbereich. Diese Lösung folgt einer Idee von RAABE [40, 108] mittels einer schnellen Photodiode einen Gleichstrom ein- und auszuschalten. Zur Vorspannung des optischen Schalters wurde ein Kanal der Probenbühne mit einem digitalen Netzgerät ausgestattet. Dieses wurde in die Hochspannungselektronik des Mikroskops integriert und liefert eine variable Spannung bis zu 250 V auf dem Potential der Probe von 15 kV. Abbildung 5.9 präsentiert den entwickelten Probenhalter sowie die integrierte Hochfrequenzelektronik. Die Probe, mit lithografisch präpariertem koplanarem Wellenleiter, wird in einen hochfrequenzkompatiblen Probenträger eingesetzt und mittels Bond-Drähten elektrisch kontaktiert. Um die Probe und periphere Elektronik vor Überschlägen zum Extraktor zu schützen, wird der Probenträger in einer hochpolierten Probenkappe eingesetzt und festgeklemmt. Elektronische Isolierung von Wellenleiter und Grundpotential wird dabei durch einen Kapton-Ring zwischen Probe und Kappe gewährleistet. Die Pulserzeugung erfolgt mit einer kommerziell erhältlichen Silizium APD vom Typ S2383 der Firma Hamamatsu [109]. Diese wird mit Hilfe einer Picosekunden-Laserdiode (600 nm, 100 mW) getriggert. Um thermischen Input in den Wellenleiter zu minimieren wird das System mit einer Frequenz von 1,25 MHz getriggert. Um den an der Photodiode erzeugten Hochfrequenzpuls zum Probenträger zu führen, werden Teflon-Koaxialkabel sowie koaxiale Stecker benutzt. Impedanzmessungen zeigten eine geringe Fehlanpassung des Systems durch Impedanzen peripherer Leitungen. Dies konnte mit Hilfe eines 47 pF -Kondensators weitgehend kompensiert werden. Nach dem Durchgang des Anregungspulses wird das Signal in einem in-Vakuum  $50\,\Omega$ -Abschlusswiderstand terminiert. Reflexionsmesungen eines komplett aufgebauten Probenhalters mit Probe zeigten einen näherungsweise konstanten Verlust von 10 % über einen Frequenzbereich von 200 MHz bis 2,5 GHz. Dies stellt eine sehr gute Impedanzanpassung dar. Abbildung 5.10 zeigt eine typische Kurvenschar von Anregungspulsen, die mit der hier vorgestellten Methode erzeugt werden können. Die Pulsspannung wurAbbildung 5.10 – Spannungspulse einer Hamamatsu Avalanche Diode S2383. Die Messung erfolgte in der Konfiguration von Abb. 5.9 an Punkten A,B. Die erforderliche Amplitude kann durch die Dioden Vorspannung gewählt werden. Parallel zum Wellenleiter gemessene Pulse zeigen eine maximale Amplitude von 11,5 V mit einer in sehr guter Näherung konstanten Breite von 1 ns FWHM. Die Messung zeigt die charakteristische bipolare Pulsform durch Ladungsträgerrückfluss in der Diode.

Abbildung 5.11 – Berechnetes inplane-Magnetfeld auf der Oberfläche eines koplanaren Wellenleiters von 200 nm Dicke. Die Berechnung erfolgte anhand numerischer Integration des Geetzes von BIOT-SAVART. Die Simulation wurde für experimentell typische Breiten  $(10-20\mu\mathrm{m})$  des Wellenleiters sowie den zu Abb. 5.10 entsprechenden Strömen durchgeführt. Der Arbeitsbereich des hier vorgestellten Probenhalters ist durch einen schwarzen Rahmen eingezeichnet.





de hierbei an den in Abbildung 5.9 eingezeichneten Punkten A, B elektronisch gemessen. Da bei dem verwendeten System eine gute Impedanzanpassung vorliegt, kann zur Abschätzung des Stromes der funktionale Zusammenhang  $U=R\cdot I$  näherungsweise herangezogen werden. R ist hierin gegeben durch den Widerstand von Wellenleiter und Abschlusswiderstand und beträgt im schlechtesten gemessenen Fall  $\approx 65\,\Omega$ . Die Abbildung 5.10 zu entnehmenden 11,5 V Spitzenspannung liefert einen maximalen Strom von 175 mA. Für die Interpretation magnetodynamischer Experimente ist es von äußerster Wichtigkeit, das vom Anregungspuls erzeugte Magnetfeld zu kennen. Letzteres kann bei Kenntnis des Stromes unter Berücksichtigung der Breite des Wellenleiters durch numerische Integration des Gesetztes von BIOT-SAVART errechnet werden. Abbildung 5.11 stellt Berechnungen des *in-plane-*Magnetfeldes für verschiedene Wellenleiterbreiten und Ströme gegenüber. Die Rechnungen wurden ausgeführt für Breiten von 0  $\mu$ m bis 25  $\mu$ m bei einer Dicke von 200 nm sowie Strömen von 0 mA bis 180 mA. Der Arbeitsbereich des

in dieser Arbeit entwickelten Systems ist durch die schwarze Box gekennzeichnet. Die Rechnungen zeigen, dass mit dem hier vorgestellten Aufbau Magnetfelder bis  $10\,\mathrm{mT}$  zur Anregung magnetischer Mikrostrukturen erzeugt werden können.

5 Methodische Entwicklungen

## 6 Direkte Messung des Anregungspulses

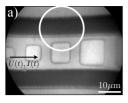
Zur Interpretation magnetodynamischer Messungen ist die genaue Kenntnis des Anregungspulses erforderlich. Dieses Kapitel stellt eine neue Methode vor, den Anregungspuls mittels zeitaufgelöster Sekundärelektronen-Spektroskopie auszumessen. Das Verfahren nutzt dazu den Energiefilter des Mikroskops im TRACX-PEEM-Betriebsmodus. Dies ermöglicht die zeitaufgelöste Abbildung des Sekundärelektronenspektrums der aus der Probe emittierten Photoelektronen.

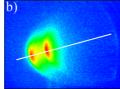
Um nachfolgend eine Bestimmung des magnetischen Anregungspulses aus der Startenergievariation durchzuführen, soll zunächst kurz auf elektrische Eigenschaften des Probensystems eingegangen werden. Die Impedanz des Wellenleiters ist durch seine Geometrie, sowie die dielektrischen Eigenschaften des Substrates bestimmt. Das Design des Wellenleiters erfolgte mit einem Simulationsprogramm [110] zur bestmöglichen Impedanzanpassung auf  $Z=50\Omega$ . Im Fall des Wellenleiters kann somit von einer bestmöglichen Reduzierung des komplexen Impedanzanteils ausgegangen werden. Eine Abschätzung des Einfluss des Probenhalters und insbesondere der Bond-Verbindungen zur Probe erfolgte durch Reflexionsmessungen. Im Frequenzbereich von 200 MHz bis 2,5 GHz zeigten die Messungen lediglich vernachlässigbare Verluste <10~% der eingespeisten Amplitude.

Die durch einen Anregungspuls erzeugte Veränderung des Probenpotentials des Wellenleiters resultiert in einer Verschiebung der (k,E)-Parabel korrespondierender Photoelektronen. Aufgrund der elektrischen Güte des Probensystems soll in erster Näherung durch das Ohmsche Gesetz  $I(t) = \Delta E_0(t)/eR$  eine Verknüpfung von Startenergieänderung  $\Delta E_0(t)$  und Anregungsstrom I(t) hergestellt werden. Für den formalen Zusammenhang zwischen Änderung der Startenergie und Anregungspuls B(t) folgt:

$$B(t) = \mu_0 K \frac{\Delta E_0(t)}{eR} \tag{6.0.1}$$

Hierin ist R der Realteil der Impedanz des Wellenleiters und K eine aus der Integration von BIOT-SAVART resultierende Konstante, welche alle geometrischen Parameter des





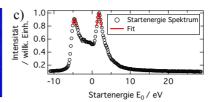
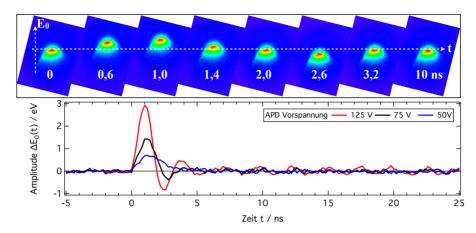


Abbildung 6.1 – Ortsaufgelöste Sekundärelektronen Spektroskopie. a) X-PEEM Abbildung von koplanarem Wellenleiters und Grundfläche der Probe. Der weiße Kreis verdeutlicht die Position der Bildfeldblende während der Messung. b) Superposition der korrespondierenden (k,E)-Parabeln von Photoelektronen aus Wellenleiter und Grund. Das eingezeichnete Linienprofil ist in c) dargestellt und zeigt einen Unterschied der Startenergie von etwa 6 eV.

#### Wellenleiters repräsentiert.

Im Folgenden soll zunächst anhand Abbildung 6.1 das Messverfahren beschrieben werden. Zur Verdeutlichung des Effektes wurde die Bildfeldblende derart einjustiert, dass sowohl Photoelektronen des Wellenleiters als auch der Grundfläche den Energiefilter passieren. Das Sekundärelektronenspektrum enthält demnach energetische Information aus beiden Bereichen der Probe. Die Gesamtintensität des korrespondierenden Spektrums ist gegeben durch die von der Bildfeldblende eingeschlossene Fläche. Da die Austrittsarbeit der Probe während der Messung konstant bleibt, ist das Spektrum lediglich abhängig von der Startenergie der emittierten Photoelektronen, beziehungsweise dem lokalen Potential der Probe.

Erfährt die Stripline eine Veränderung  $\Delta U$  ihres Potentials, beispielsweise durch einen Anregungspuls, erfahren die aus ihr emittierten Photoelektronen eine Änderung ihrer Startenergie gemäß  $\Delta E_0 = E_0 + \Delta U$ . Da der Puls lediglich in den Wellenleiter eingespeist wird, bleibt das Potential der Grundfläche unverändert, ebenso wie die Startenergie ihrer Photoelektronen. Die k-Raum-Abbildung des Photoelektronenspektrums offenbart demnach zwei energetisch separierte Spektren, welche um den Betrag  $\Delta U$  verschoben sind. Dies ist in Abbildung 6.1 b) dargestellt. Die Aufnahme korrespondiert zu einem Zeitpunkt, in dem der Anregungspuls eine maximale Spannungsamplitude aufweist. Das resultierende Spektrum als Linienprofil parallel zur Energieachse lässt sich als Superposition zweier Einzelspektren interpretieren und ist in Abbildung 6.1 c) abgebildet. Die Maxima beider Spektren zeigen eine Differenz der Startenergie von etwa 6 eV zwischen Wellenleiter und Grundfläche. Dies stellt die zum Zeitpunkt t in den Wellenleiter einge-



**Abbildung 6.2** – Ausgewählte Zeitpunkte der (k, E)-Serie und aus Fitprozedur resultierendes Profil des Anregungspulses.

speiste Spannungsamplitude  $\Delta U(t)$  des Anregungspulses dar.

Um die vollständige Spannungsamplitude des Anregungspulses abzutasten, wurde im Folgenden eine stroboskopische k-Raum-Zeitserie in Intervallen von 100 ps aufgenommen. Abbildung 6.2 illustriert exemplarische Zeitpunkte. Zur Bestimmung des zeitlichen Verlaufes wurde eine auf den Wellenleiter beschränkte Messung herangezogen. Die Startenergievariation  $\Delta E_0(t)$  zwischen Wellenleiter und Grund wurde durch Fit des  $> 80\,\%$  Amplitudenbereichs mit einer Gausskurve ermittelt und gegen die Zeit aufgetragen. Das resultierende Profil der Spannungsamplitude des Anregungspulses ist in ebenfalls in Abbildung 6.2 dargestellt. Die Messdaten des hier vorgestellten Verfahrens zeigen eine sehr gute Reproduktion der mit Oszilloskop ex-situ parallel zur Stripline gemessenen Pulsform.

Das gesamte Verfahren wurde routinemäßig vor jeder magnetodynamischen Messung durchgeführt. Für maximale Amplitudenvariation des Spektrums, resultierend in einer hohen Genauigkeit der Fits, wurde ein schmalbandiger Energiefilter  $(0,5\,\mathrm{eV})$  benutzt. Die Aufnahme der Bilder erfolgte typischerweise mit einer Integrationszeit von 1 s. Durch die stark lokalisierte Intensität in der k-Raum-Ebene des Mikroskopes kann dabei auf eine Mittelung verzichtet werden. Das stroboskopische Messverfahren wurde üblicherweise mit Intervallen von  $100\,\mathrm{ps}$  durchgeführt, wobei der Puls über einen Bereich von  $30\,\mathrm{ns}$ 

#### 6 Direkte Messung des Anregungspulses

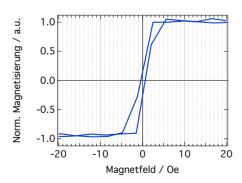
abgetastet wurde. Die komplette Messung läuft im Routinebetrieb automatisiert und benötigt etwa 5 Minuten zur Bildaufnahme mit sofortiger Berechnung und Ausgabe des Pulsprofiles.

Die im nächsten Kapitel beschriebenen magnetodynamischen Messungen zeigen exzellente Übereinstimmung zu Simulationen, bei denen die mit diesem Verfahren ermittelten Pulsprofile zugrunde gelegt wurden. Die Gültigkeit der Interpretation, der im nächsten Kapitel beschriebenen Experimente zur Magnetisierungsdynamik mit Hilfe des hier vorgestellten Verfahren, ist damit gezeigt.

## 7 Magnetisierungsdynamik von magnetischen Mikrostrukturen

Die ersten zeitaufgelösten Messungen wurden an weichmagnetischen Permalloy (Ni $_{81}$ Fe $_{19}$ ) Mikrostrukturen durchgeführt. Deren Präparation erfolgte in einem zweischrittigen Verfahren. Wellenleiter und Mikrostrukturen wurden nacheinander mit Hilfe optischer Lithografie strukturiert und das korrespondierende Schichtsystem per Magnetronsputtertechnik abgeschieden. Das Sputtern des Schichtsystems erfolgte unter Hochvakuum (Basidruck:  $7 \cdot 10^{-7}$  mbar, Argonpartialdruck:  $1 \cdot 10^{-3}$  mbar, Argonfluss: 10 sccm) bei Raumtemperatur. Während die Präparation des Wellenleiters auf das Substrat im Forschungszentrum Jülich durchgeführt wurde, erfolgte die anschließende Abscheidung eines Ta  $(2\,\mathrm{nm})$  / Py  $(10\,\mathrm{nm})$  / Ta  $(5\,\mathrm{nm})$  Schichtsystems im Leibnizinstitut für Festkörperund Werkstoffforschung in Dresden. Die Ta-Pufferschicht sichert eine gute Adhäsion des Schichtsystems sowie Schutz vor Oxidation. Das komplette Probensystem wurde auf GaAs(100)-Substrate aufgebracht.

Die für zeitaufgelöste PEEM-Experimente benutzen Proben wurden routinemäßig mittels magnetooptischem Kerr-Effekt charakterisiert. Abbildung 7.1 zeigt ihr quasistatisches Schaltverhalten. Die Hysterese zeigt eine sehr niedrige Koerzivität des Schichtsystems ( $< 0.1 \,\mathrm{mT}$ ). In mikrostrukturierten Proben führt diese Eigenschaft zu einem



**Abbildung 7.1** – MOKE-Hysterese eines kontinuierlichen Films des Py-Schichtsystems. Das System zeigt eine Koerzivität von < 1 Oe.

wohldefinierten Grundzustand. Dieser ist in kreisförmiger Geometrie ein Vortex und in quadratischen Strukturen ein Landaumuster. Beide stellen flux-closure-Domänenmuster dar und weisen demnach nahezu kein äußeres Streufeld auf. Die Anregung aus dem Grundzustand kann bei diesen Strukturen bereits mit sehr geringen Magnetfeldern erfolgen. Es ist darüberhinaus nach der Anregung von einer reproduzierbaren Relaxation in ihren Grundzustand auszugehen.

Zusätzlich zu experimentellen Messungen wurden mikromagnetische Simulationen mit Hilfe der frei verfügbaren OOMMF Software [61] durchgeführt. Nach Diskretisierung der Probengeometrie in quadratische Einheitszellen löst die Software die Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung für den Magnetisierungsvektor jeder simulierten Zelle. In der Simulation wurden mit einer Sättigungsmagnetisierung von  $S=8,6\cdot10^5 A/m$  und der Austauschkonstanten  $A = 1, 3 \cdot 10^{-11} J/m$  Standardmaterialparameter von Permalloy gewählt. Nach Definition der magnetischen Austauschlänge über  $L = \sqrt{2A/S^2\mu_0}$  folgt aus den Materialparametern eine Austauschlänge von etwa 5,2 nm. Reales Permalloy besitzt typischerweise eine äußerst geringe uniaxiale Anisotropie, so dass diese in den Simulationen vernachlässigt wurde. In mikromagnetischen Simulationen wird üblicherweise eine Zellgröße zwischen L/2 und 2L gewählt [111]. Die hier durchgeführten Rechnungen erfolgten mit einer magnetischen Einheitszelle von (8.8) nm<sup>2</sup>. Es ist daher davon auszugehen, dass die Simulationen die magnetische Struktur hinreichend genau beschreiben. Für den in der Simulation verwendeten phänomenologischen Gilbert-Dämpfungsparameter wurde ein realistischer Wert von  $\alpha = 0,01$  herangezogen. Die simulierte Struktur besitzt identische laterale Dimensionen wie die experimentell untersuchte.

Der experimentell ermittelte Anregungspuls wurde im Folgenden mit einer Linearkombination zweier GAUSSkurven angenähert. Die Ausgleichsrechnung lieferte den formalen Zusammenhang

$$B(t) = 1,36 \,\mathrm{mT} \cdot \exp\left[-\left(\frac{t-1,5\,\mathrm{ns}}{0,7\,\mathrm{ns}}\right)^2\right] - 0,42 \,\mathrm{mT} \cdot \exp\left[-\left(\frac{t-3,2\,\mathrm{ns}}{0,6\,\mathrm{ns}}\right)^2\right] \ (7.0.1)$$

für das zeitabhängige Magnetfeld des Anregungspulses. Innerhalb der Simulation wurde dieser in Intervallen von 40 ps durchlaufen. Die simulierte Zeitauflösung ist daher vergleichbar mit der experimentell erreichbaren.

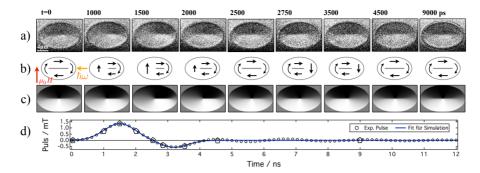


Abbildung 7.2 – Ausgewählte Zeitpunkte des magnetischen Ansprechens einer  $10\mu m \cdot 6\mu m$  ellipsenförmigen Struktur entlang eines bipolaren Anregungspulses. (a) zeigt ausgewählte experimentell ermittelten XMCD-Bilder der Zeitserie entlang des in (d) dargestellten Anregungspulses. (b) skizziert die im zeitlichen Verlauf vorliegende Richtung des lokalen Magnetisierungsvektors in verschiedenen Bereichen der Struktur. (c) präsentiert die mikromagnetische Simulation zu korrespondierenden Zeitpunkten des Experiments

#### 7.1 Domänenkonfiguration einer $10\mu m \cdot 6\mu m$ Ellipsenstruktur

Zunächst wurde eine Zeitserie des magnetischen Ansprechens einer ellipsenförmigen  $10\mu m \cdot 6\mu m$  Struktur aufgenommen. Der Zeitnullpunkt wurde willkürlich festgelegt auf einen Zeitpunkt  $t_0$  vor der initialen Anregung, so dass das Maximum des Anregungspulses bei  $t=1,5\,\mathrm{ns}$  festliegt. Ausgehend von  $t_0$  wurden XMCD-Bilder an der Fe L3-Absorptionskante aufgenommen. Dabei wurden pro Helizität 20 Bilder á 12 s gemittelt. Die Zeitserie wurde in Intervallen von 250 ps aufgenommen. Abbildung 7.2 fasst ausgewählte Zeitpunkte der Serie zusammen. Das XMCD-Bild des Grundzustands bei t=0ns zeigt einen Vortex-Zustand. Zur Verringerung des Streufeldes verläuft die lokale Magnetisierung der Struktur am Rand stets parallel zur Strukturgrenze. Die daraus resultierende Singularität im Zentrum der Struktur liegt in ihrer lateralen Ausdehnung jedoch unterhalb der experimentell erreichten lateralen Auflösung. Ihre Position ist daher nur der Simulation zu entnehmen. Innerhalb der Domänenkonfiguration ist keine Substruktur erkennbar. Es liegen daher keine Schwankungen der magnetokristallinen Anisotropie vor, so dass von einem vernachlässigbaren Einfluss ausgegangen werden kann. Das zeitabhängige Ansprechen der Konfiguration auf einen externen magnetischen Anregungspuls ist daher bestimmt aus Gleichgewicht von Zeeman- und Streufeldenergie.

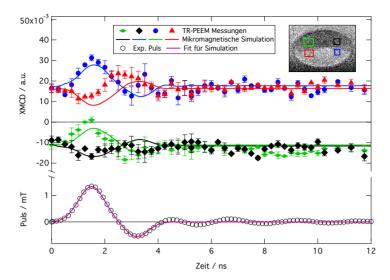
Durch die Anregung des externen Magnetfeldes erfahren lokale Magnetisierungsvektoren,

die eine Komponente senkrecht zum Feld aufweisen, ein Drehmoment  $\vec{T} = \mu_0 V \vec{M} \times \vec{H}$ . Unmittelbar bei Einsetzen des Pulses  $(t=1\,\mathrm{ns})$  drehen diese Domänen der Probe in Richtung des externen Feldes. Die energetisch ungünstige Konfiguration der Magnetisierung antiparallel zum Anregungsfeld wird damit reduziert. Eine maximale Auslenkung aus dem Grundzustand ist auf dem Pulsmaximum bei  $t=1,5\,\mathrm{ns}$  erreicht. Entlang der abfallenden Flanke des Anregungspulses  $(t=1,5-2,5\,\mathrm{ns})$  dominiert das Entmagnetisierungsfeld das effektive wirkende Feld aus externer Anregung und Anisotropietermen. Das Streufeld wirkt dabei entgegengesetzt zur lokalen Magnetisierung. Auf der fallenden Flanke wird daher ein in der Streufeldminimierung begründetes Drehmoment auf die Magnetisierung ausgeübt, das eine Domänenkonfiguration identisch zum Grundzustand anstrebt.

KAISER et al. zeigten in einem ähnliche Experiment die Relaxation einer Py-Struktur in ihren Grundzustand nach ca. 2,5 ns [112]. Die Anregung erfolgte dabei durch einen unipolaren Puls vergleichbarer Stärke und Länge der abfallenden Flanke von etwa 1 ns. Die verzögerte Relaxation tritt im Zusammenhang mit der Ausbildung sogenannter bucklingstate-Zustände (Streifenzustände) auf [113], welche lokal das Demagnetisierungsfeld minimieren. Diese Zustände können hier nicht beobachtet werden.

Ab  $t=2,5\,\mathrm{ns}$  wirkt durch den negativen Teil des bipolaren Anregungspulses ein durch das externe Magnetfeld induziertes Drehmoment. Dieses ist gleichgerichtet zum vorhergehend die Bewegung dominierenden Entmagnetisierungsfeld. Die lokale Magnetisierung wird daher über den Grundzustand hinaus ausgelenkt, so dass bei  $t=3,5\,\mathrm{ns}$  eine zweite extremale Konfiguration vorliegt. Durch abermalige Verringerung der Zeemanenergie aufgrund des abklingenden Anregungspulses relaxiert die Magnetisierung durch den Beitrag des Entmagnetisierungsfeldes in ihren anfänglichen Grundzustand bei  $t=4,5\,\mathrm{ns}$ . Im weiteren Verlauf der Messung ist keine Änderung zu beobachten.

Das simulierte magnetische Ansprechen zeigt eine hervorragende Übereinstimmung zu den experimentell ermittelten XMCD-Daten. Dabei konnte das oben erläuterte zeitabhängige Verhalten der lokalen Magnetisierung den experimentell beobachteten Verlauf reproduzieren. Der Simulation ist ferner zu entnehmen, dass der Vortex der Domänenkonfiguration lediglich sehr gering auf den magnetischen Anregungspuls reagiert. Diese Features der ellipsenförmigen Struktur liegen unterhalb der experimentell erzielten Auflösung, so dass für die experimentelle Untersuchung der Vortexbewegung im nächsten Abschnitt eine geeignetere Mikrostruktur gewählt wurde.



**Abbildung 7.3** – Zeitlicher Verlauf der XMCD-Asymmetrie vier ausgewählter Bereiche der Mikrostruktur. Der Graph zeigt experimentell ermittelte sowie simulierte Daten des Ansprechens auf einen bipolaren Anregungspuls.

Zusätzlich zur qualitativen Analyse des zeitlichen Verhaltens der gesamten mikromagnetischen Domänenkonfiguration erfolgte eine quantitative Analyse der Domänengrauwerte. Die XMCD-Asymmetrie ist dabei gemäß  $A \propto \cos(\Phi)$  proportional zum Winkel  $\Phi$  zwischen lokalem Magnetisierungsvektor  $\vec{M}$  und Einfallsrichtung des Synchrotronlichtes  $\vec{k}$ . Die XMCD-Daten wurde zum Ausgleichen der vom Strahlrohrfokus verursachten inhomogenen Bildhelligkeit auf einen nicht-linearen Untergrund normiert. Dazu wurden nichtmagnetische Bereiche des Bildes mit einem in der Bildebene zweidimensionalen Polynom gefittet sowie anschliessend die mittlere Intensität der Bereiche als Fehler des XMCD-Signales herangezogen. Zur Vergleichbarkeit der experimentell erhaltenen Daten mit der Simulation, wurden letztere in ihren maximalen Grauwerten auf die Extrema der experimentellen Daten skaliert. Das XMCD-Signal wurde über vier lokale Bereiche der Probe integriert. Diese repräsentieren die maximale Auslenkung der lokalen Magnetisierung auf beiden Maxima des Anregungspulses. Die Bereiche wurden mit identischer Position in die Auswertung der simulierten Daten übernommen. Das Ergebnis der Auswertung ist in Abbildung 7.3 dargestellt.

Im Grundzustand weisen alle vier Bereichen aus Symmetriegründen eine mittlere Magnetisierungsrichtung von näherungsweise  $\Phi=45^\circ$  auf. Entlang des steigenden initialen Anregungspulses zeigen die XMCD-Grauwerte der Bereiche rot und grün (Dreieck, Raute) eine Verringerung der Asymmetrie. Dies entspricht einer Rotation der lokalen Magnetisierung in eine Richtung senkrecht zu  $\vec{k}$ . In beiden Bereichen liegt auf dem Maximum des initialen Pulses ein Winkel  $\Phi\approx90^\circ$  vor. Gleichzeitig drehen sich die ursprünglich mit antiparalleler Komponente zur Anregung ausgerichteten Bereiche schwarz und blau (Quadrat, Kreis) in extremale Aymmetriewerte entsprechend einem Winkel  $\Phi\approx180^\circ$  (Quadrat) und  $\Phi\approx0^\circ$  (Kreis). Im weiteren zeitlichen Verlauf erfolgt eine Umkehr der Asymmetrie über ihren jeweiligen Grundzustandswert sowie die anschließende Relaxation in das Ausgangsniveau. Die experimentell ermittelte XMCD-Asymmetrie sowie die Simulation reproduzieren dabei den zeitlichen Verlauf des Anregungspulses, so dass von einer pulsgetriebenen Dynamik ausgegangen werden kann.

#### 7.2 Vortex-Gyration einer $6\mu m \cdot 6\mu m$ Rechteckstruktur

In flux-closure-Domänenformationen existiert mindestens eine Singularität der Austauschenergiedichte, welche als Vortex bezeichnet wird [60]. Der lokale Magnetisierungsvektor besitzt an dieser Stelle lediglich Komponenten senkrecht zur Probenoberfläche. Die Dynamik des Vortex umfasst Schaltprozesse innerhalb etwa 50 ps [114] sowie die Gyration des Vortex auf einer Zeitskala von mehreren Nanosekunden. Letztere ist analytisch beschrieben von Thiele [115]. Demnach wirkt eine gyromagnetische Kraft  $\vec{F}_g \propto \vec{g} \times \vec{v}$  senkrecht zur Geschwindigkeit eines Vortex mit Polarität  $\vec{g}$ , welche ursächlich für die Relaxation des Vortex auf einer spiralförmigen Trajektorie ist. Die Frequenz der Bewegung liegt in der Größenordnung von 100 MHz und ist nach Guslienko et al. bestimmt durch das Verhältnis von Breite / Dicke der Struktur [116]. Während die Gyration bereits mit verschiedenen Methoden unabhängig voneinander abgebildet wurde [39, 117], existieren verschiedene Beobachtungen der initialen Auslenkung aufgrund unterschiedlicher Natur des Anregungspulses. Choe et al. berichten über eine parallele oder antiparallele Auslenkung zum Anregungsfeld [39] während Raabe et al. mit identischer Methode eine senkrechte Auslenkung bestätigten [40].

Im Folgenden soll das Ansprechen des Vortex in einer quadratischen  $6\mu m \cdot 6\mu m$  Struktur untersucht werden. Dazu wurde, wie im vorhergehenden Abschnitt, eine Zeitserie von XMCD-Bildern an der Fe L3-Absorptionskante, entlang eines bipolaren Anregungspulses, aufgenommen. Das zeitliche Ansprechen der Struktur folgt nahezu identisch zur

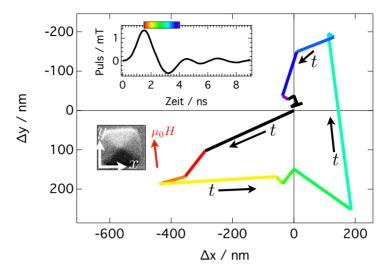


Abbildung 7.4 – Durch Bildbearbeitung erhaltene Vortexbewegung der untersuchten Quadratstruktur. Das Farbschema illustriert des zeitlichen Verlauf der Bewegung entlang des Anregungspulses. Startend auf dem Maximum des initialen Pulses bei 1,5 ns (rot) bis zum Ende des bipolaren Pulses bei 4 ns (lila) repräsentiert jeder Zeitschritt 0,25 ns. Der zeitliche Verlauf ist außerdem durch Pfeile der Beschriftung t gekennzeichnet. Die Abbildung der Mikrostruktur veranschaulicht die Lage des Koordinatensystems. Die Richtung des initialen MAgnetfeldes ist durch einen roten Pfeil der Beschriftung  $\mu_0 H$  gekennzeichnet.

vorhergehend beschriebenen Ellipsenstruktur, so dass an dieser Stelle keine detaillierte Beschreibung erfolgen soll. Die Struktur zeigt im Grundzustand eine Landau-Domänenformation bestehend aus 4 identischen, dreieckigen Domänen (siehe Abbildung 7.5 a), 0 ns). Obwohl die laterale Audehnung des Vortex kleiner als die experimentell erreichte Auflösung ist, lässt sich seine Position näherungsweise anhand des Zusammenschlusses der 4 Domänengrenzen bestimmen, sofern das Anregungsfeld viel kleiner ist als die Sättigungsmagnetisierung. Dies ist im durchgeführten Experiment der Fall. Im Weiteren wurden die experimentell ermittelten XMCD-Daten durch Bildbearbeitung mediangefiltert und anschießend ein Kantenfindungsalgorithmus angewendet. Die resultierende Breite der Kanten übersteigt die Genauigkeit der Bildregistrierung oder experimentellen Auflösung und beträgt etwa 100 nm. Bei den folgenden experimentellen Daten soll daher ein lateraler Fehler von  $\pm 50$  nm zugrunde gelegt werden.

Abbildung 7.4 veranschaulicht die durch Bildbearbeitung erhaltene Trajektorie des Vor-

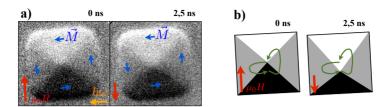


Abbildung 7.5 – Ausgewählte Zeitpunkte des magnetischen Ansprechens einer  $6\mu m \cdot 6\mu m$  Struktur entlang eines bipolaren Anregungspulses. a) Experimentell erhaltenen XMCD Bilder des Grundzustandes  $(t=0\,\mathrm{ns})$  sowie des Zustandes zwischen beiden Anregungspulsen  $(t=2,5\,\mathrm{ns})$ . b) Schematische Darstellung von a) zur besseren Veranschaulichung der Domänengrenzen sowie Vortexposition. Die von beiden Anregungspulsen induzierte Bewegung ist als grüner Pfeil eingezeichnet. Die lokale Magnetisierungsrichtung, das Anregungsfeld und die Einfalssrichtung des Lichtes sind als Pfeile  $\vec{M}$ ,  $\mu_0 H$  und  $\hbar \omega$  markiert.

tex. Entlang der steigenden Flanke des initialen Anregungspulses beschreibt der Vortex eine Bewegung in negative x-Richtung. Dies ist eine initiale Ablenkung senkrecht zur Anregung identisch zu Messungen von RAABE et al. [40]. Die Bewegung des Vortex, sowie dessen Geschwindigkeit  $\vec{v}$  ist dabei induziert durch die Verkleinerung der energetisch ungünstigen antiparallelen Domäne. Thiele folgend wirkt auf dem Maximum (t = 1, 5 ns) der initialen Anregung eine senkrecht zur Geschwindigkeit wirkende Kraft. Diese verursacht eine Ausweichbewegung zu größerer y-Ablenkung sowie den Übergang auf eine spiralförmige Trajektorie . Der Vortex der untersuchten Struktur folgt dieser, bis zu einem Zwischenzustand bei  $t=2,5\,\mathrm{ns}$ . Letzterer stellt den Nulldurchgang zwischen initialem und entgegengerichtetem zweiten Anregungspuls dar. Der Vortex befindet sich zu diesem Zeitpunkt an einem vom Grundzustand verschiedenen Punkt bei etwa  $x = 0, y = 200 \,\mathrm{nm}$  (siehe auch Abbildung 7.5 a), 2,5 ns). Zu diesem Zeitpunkt setzt der zweite Anregungspuls ein, welcher erneut eine Auslenkung verursacht. Diese verläuft zu einer extremalen x-Ablenkung von  $x=200\,\mathrm{nm}$ . Einhergehend mit einer größeren Geschwindigkeit, welche sich aus der bereits initialisierten Bewegung sowie neuer Anregung zusammensetzt, erfährt der Vortex nun eine stärkere Ausweichbewegung in negative y-Richtung bis etwa  $y = 180 \,\mathrm{nm}$ . Dies stellt einen in y-Auslenkung extremalen Zeitpunkt bei  $t = 2,75 \,\mathrm{ns}$  dar. Im weiteren Verlauf relaxiert die Struktur in ihren Grundzustand, der ab etwa 4 ns im Rahmen der experimentellen Genauigkeit eingenommen ist.

Zur Verdeutlichung der zusammengesetzten Bewegung ist diese ausgehend vom diskutierten Grund- und Zwischenzustand in Abbildung 7.5 illustriert. Der Grundzustand ohne externem Anregungsfeld bei  $t=0\,\mathrm{ns}$  zeigt ein Landaumuster in Form vier sym-

metrischer, dreieckiger Domänen. Im Fall des Zwischenzustandes bei  $t=2,5\,\mathrm{ns}$ , welcher den Nulldurchgang des Feldes repräsentiert ( $\mu_0H=0$ ), liegt ebenfalls ein Landaumuster vor. Dieses zeigt jedoch eine Auslenkung des Vortex hin zur Domäne, welche antiparallel zu einfallendem Licht orientiert ist. Ausgehend von diesen Zuständen induzieren beide Anregungspulse eine Ablenkung senkrecht zum externen Magnetfeld mit anschließender Ausweichbewegung auf eine spiralförmige Trajektorie. Die Superposition beider illustrierter Bewegungen folgt in guter Genauigkeit der in Abbildung 7.4 gezeigten, experimentell gemessenen, Bahn des Vortex.

#### 7.3 Zukünftige Herausforderungen

Innerhalb dieser Arbeit wurden bereits Anstrengungen unternommen zukünftige Materialien der Spintronik zu untersuchen. Beispielsweise steht das zwischenschicht-austauschgekoppelte System Fe/Ru/Ni derzeit im Kontext der ultraschnellen Spindiffusion zur Diskussion [118]. In dieser Arbeit wurde eine  $8\mu m \cdot 8\mu m$  Struktur des Systems AlO(2 nm) / Ni(3 nm) / Ru(1 nm) / Fe(5 nm) auf ihr magnetodynamisches Ansprechen untersucht.

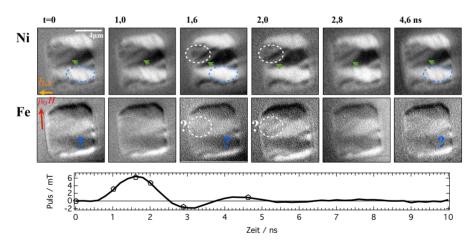


Abbildung 7.6 – Ausgewählte Zeitpunkte des magnetischen Ansprechens einer  $8\mu m \cdot 8\mu m$  Struktur des Systems AlO $(2 \,\mathrm{nm})/\mathrm{Ni}(3 \,\mathrm{nm})/\mathrm{Ru}(1 \,\mathrm{nm})/\mathrm{Fe}(5 \,\mathrm{nm})$ . Das Anregungsfeld und die Einfallsrichtung des Lichtes sind als Pfeile  $\vec{M}$ ,  $\mu_0 H$  und  $\hbar \omega$  markiert. Änderungen der lokalen Magnetisierung welche in der Ni-Schicht identifiziert wurden, aufgrund mangelnder Statistik jedoch nicht innerhalb der Fe-Schicht, sind mit grünen, weißen und blauen Elementen gekennzeichnet.

#### 7 Magnetisierungsdynamik von magnetischen Mikrostrukturen

Ausgewählte Zeitpunkte der elementselektiven Messung der XMCD-Asymmetrie an Fe und Ni L<sub>3</sub>-Absorptionskanten sind in Abbildung 7.6 dargestellt. Die Struktur zeigt bereits im Grundzustand ein kompliziertes Domänenmuster. Dieses weist lokale Domänen einer lateralen Ausdehnung im Bereich von wenigen 100 nm auf. Darüber hinaus ist eine geringe Änderung des Magnetisierungsvektors einhergehend mit sehr kleinen Variationen des Grauwertes zu beobachten. Die Abbildung dieser Strukturen stellt wie in Abschnitt 4.5 beschrieben immense Herausforderungen sowohl an laterale Auflösung als auch an notwendige Statistik, beziehungsweise Photonenintensität. Innerhalb der untersuchten Ni-Schicht konnte ein Ansprechen in Form von Domänenwandbewegung (grüner Pfeil), schnellem Umklappen der lokalen Magnetisierung (weiße Ellipse) sowie der Gleichrichtung von Streifenzuständen (blaue Ellipse) beobachtet werden. Für den Fall der 6 nm unterhalb der Oberfläche liegenden Fe-Schicht erlaubt die der Messung zugrunde liegende Statistik keine Aussage über eine kohärente oder inkohärente Bewegung der korrespondierenden Domänen. Das Experiment demonstriert damit die Notwendigkeit einer angepassten Refokussieroptik des Strahlrohres, für die zukünftige Aufklärung der grundlegenden physikalischen Prozesse innerhalb gekoppelter Mikro- und Nanostrukturen.

## 8 Zusammenfassung und Ausblick

Gegenstand dieser Arbeit ist die zeitaufgelöste magnetische Abbildung mit energiegefilterter und aberrationskorrigierter Photoemissiosmikroskopie (TRACX-PEEM). Innerhalb dieser Arbeit wird zum ersten Mal die Zeitstruktur von Synchrotronstrahlung mit
der Leistungsfähigkeit neuartiger aberrationskorrigierter PEEMs zur Durchführung magnetodynamischer Experimente verbunden. Diese Arbeit bildet die Basis für Experimente auf kürzerer Längen- oder Zeitskala als mit bisheriger, konventioneller, TR-PEEMMethodik. Die durchgeführten Untersuchungen sind daher wegbereitend für zukünftige
Untersuchungen des Zeitverhalten magnetischer Nanoelemente.

Um die Leistungsfähigkeit der neusten Generation Photoemissionsmikroskope im Routinebetrieb zu nutzen, erfolgte die experimentelle Bestimmung der startenergieabhängigen Aberrationskoeffizienten  $C_3$ ,  $C_c$  des Linsensystems. In einem LEEM-Experiment konnte mit Hilfe der Si(111) (7×7) Oberflächenrekonstruktion die sphärische Aberration ausgemessen werden. In einem kombinierten UV-PEEM- und MEM/LEEM-Experiment wurden die magnetischen und elektrostatischen Beiträge der chromatischen Aberration bestimmt. Um die Funktion des Tetrodenspiegels gemäß Theorie zu verifizieren wurde eine Fokus-Kurvenschar aufgenommen. Der Parameterraum des Aberrationskorrektors wurde anschließend auf die experimentell ermittelten Linsenaberrationen angepasst. Die Korrektur der Linsenaberrationen wurde verifiziert und mit aus Ray-Tracing-Rechnungen bekannten Theoriewerten verglichen. Im Rahmen der Messgenauigkeit des Experimentes zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung zur Theorie. Die zur Aberrationskorrektur notwendigen Parameter der Elektronenoptik wurden in periphere Software eingepflegt. Zukünftigen Nutzern steht damit eine automatische, startenergieabhängige Aberrationskorrektur zur Verfügung.

Zur effizienteren Nutzung der Synchrotronstrahlung wurde ein neuer zeitauflösender Betriebsmodus entwickelt. Dieser ist in seiner Anwendung kompatibel zu Energiefilterung und Aberrationskorrektur des benutzten Photoemissionsmikroskopes. Der Betriebsmodus erlaubt dadurch die Durchführung von zeitaufgelösten PEEM-Experimenten mit

höherer Transmission sowie lateraler Auflösung als bisherige Methodik zulässt. Die Entwicklungen beinhalten einen erdfrei auf -15 kV betriebenen Probenhalter. Letzterer erlaubt die Anregung eines Probensystems mit Magnetfeldpulsen bis zu 10 mT innerhalb 1 ns. Der Probenhalter erzeugt im Ultrahochvakuum durch einen optischen Schalter gepulste Ströme, welche durch eine Mikrostripline in Magnetfelder umgewandelt werden. Als optischen Schalter werden kommerzielle Avalanche-Photodioden verwendet. Diese vereinen eine hohe Zuverlässigkeit, perfekte Reproduzierbarkeit der Pulsform sowie Langzeitstabilität. Die Trennung von Probe und Schalter erlaubt, im Gegensatz zu lithografisch präparierten Auston-Schaltern, einen seperaten Austausch beider Komponenten. Die Ein- und Ausschaltung der APD erfolgt durch eine konventionelle Picosekunden-Laserdiode, welche eine bisher nicht erreichte Anwendungsfreundlichkeit ermöglicht. Als weitere Komponente wurde ein neuartiges quasi-elektrostatisches Ablenkungssystem entwickelt. Das System involviert eine elektrostatische Ablenkelektrode als zusätzliches elektronenoptisches Element. Schnelles Schalten der Elektrode erlaubt die Blockierung der elektronenoptischen Achse innerhalb einiger Nanosekunden. Dieses Ablenkungssystem erlaubt die Abbildung der Probe mit einzelnen, im Füllmuster zeitlich separierten Bunchen. Mit Hilfe der Ablenkungseinheit können so zeitaufgelöste synchrotronbasierte pump-probe-Experimente im regulär zur Verfügung stehenden Füllmuster des Synchrotrons durchgeführt werden.

Es wurde eine neue Methode zur direkten Messung des Anregungspulses während zeitaufgelöster Experimente entwickelt. Diese basiert auf zeit- und ortsaufgelöster, Sekundärelektronen-Spektroskopie. Die Methode quantifiziert dabei das zeitlich veränderliche Sekundärelektronen Emissionsspektrum der Mikrostripline und erlaubt eine Analyse von Form und Intensität des Anregungspules.

In dieser Arbeit wurden erste magnetodynamische Messungen in einem neuartigen aberrationskorrigierten PEEM durchgeführt. Die Messungen erfolgten an der Legierung Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>, welche aufgrund ihrer niedrigen Permeabilität von besonderem Interesse in der Spintronik ist. Zur Durchführung der Messung wurden Mikrostrukturen mittels Magnetronsputtertechnik und optischer Lithografie auf einem koplanaren Wellenleiter präpariert. Deren quasistatisches Schaltverhalten wurde mittels magnetooptischem Kerr-Effekt charakterisiert und eine sehr niedrige Koerzivität festgestellt. Daraufhin wurde mit der neu entwickelten TRACX-PEEM-Methode das zeitliche Ansprechen auf der Picosekunden-Zeitskala untersucht. Die Mikrostrukturen wurden dazu mit einem bipolaren Magnetfeldpuls angeregt. Letzterer wird durch zwei entgegengesetzte Magnetfeld-

pulse der Länge von 1 ns im zeitlichen Abstand von etwa 2 ns beschrieben. In einem ersten Experiment wurde die Domänenkonfiguration einer ellipsenförmigen Struktur untersucht. Die Messungen zeigten ein instantanes Ansprechen der lokalen Magnetisierung auf den Anregungspuls. Die magnetische Konfiguration nimmt auf beiden Maxima des Anregungspulses dabei einen extremalen Zustand ein. Diese Messungen wurden anhand mikromagnetischer Simulationen mit der Software OOMMF überprüft. In letzterer wurden der experimentell gemessene Anregungspuls zugrunde gelegt und das Ansprechen einer identischen Struktur simuliert. Innerhalb der Simulation konnten die experimentell bestimmten Merkmale des magnetodynamischen Ansprechens reproduziert werden. In einem zweiten Experiment wurde die Vortex-Bewegung einer quadratischen Struktur untersucht. Die Trajektorie des Vortex entlang des bipolaren Anregungspulses wurde durch Bildbearbeitung ermittelt. Die vollständige Bewegung kann näherungsweise durch eine spiralförmige Trajektorie beschrieben werden und setzt sich aus zwei aufeinanderfolgenden Bewegungen zusammen. Auf beiden Pulsen der bipolaren Anregung erfolgt eine senkrechte Ausweichbewegung sowie der Übergang in eine Kreisbewegung, welche nach Abklingen der Anregung in ihren Grundzustand relaxiert.

Innerhalb der in dieser Arbeit unternommenen Anstrengungen zur Etablierung einer mächtigeren zeit- und ortsaufgelösten Methodik, wurden einige Herausforderungen an zukünftige Experimente identifiziert.

Ein limitierender Faktor bisheriger Untersuchungen magnetischer Dynamik mit Synchrotronstrahlung ist die erreichbare Zeitauflösung von etwa 45 ps, welche durch das BESSY II Hybridbunch-Füllmuster vorgegeben ist. Zur Adressierung schneller, dynamischer Prozesse stellt BESSY II mit dem low-alpha-Modus bereits ein Füllmuster bereit, welches eine Zeitauflösung von 1-2 Picosecunden ermöglicht [66]. Dies konnte aufgrund seiner niedrigen Gesamtintensität, bei abbildenden Techniken, bisher nur eingeschränkt verwendet werden. Der Verlust an Photonenfluss, respektive Statistik, kann durch bessere Transmissionseigenschaften des aberrationskorrigierten PEEM vollständig kompensiert werden. Bei den innerhalb Kapitel 7 durchgeführten Untersuchungen zur Vortexdynamik, ermöglicht ein routinemäßiger Betrieb des TRACX-PEEM im low-alpha-Modus beispielsweise die Abbildung von Vortex-Schaltprozessen. In der Spintronik sind gekoppelte Schichtsysteme sowie das Verständnis der zugrundeliegenden magnetodynamischen Phänomene von generellem Interesse. Das Zwischenschicht-austauschgekoppelte Modellsystem Fe/Ru/Ni steht derzeitig im Kontext der ultraschnellen Spindiffusion zur Diskussion, als Material zukünftiger, energieoptimierter Nanoelektronik [118]. Die beteiligten

#### 8 Zusammenfassung und Ausblick

Prozesse, etwa die spin-abhängige Remagnetisierung auf einer Zeitskala von einigen 10 ps, wären mit der entwickelten Methodik adressierbar.

Die Untersuchung von Nanostrukturen mit X-PEEM stellt die bisherige Verwendung konventioneller Multichannelplate-Detektoren (MCP) in Frage. Heutige bildgebende MCP weisen, über ihren Durchmesser, typischerweise 300 Kanäle auf. Eine bestmögliche laterale Auflösung bei X-PEEM von 3,5 nm kann demnach erst bei Gesichtsfeldern unterhalb 1,05  $\mu$ m Durchmesser aufgelöst werden. Dies stellt eine immense Herausforderung an Stabilität und Größe des, vom Strahlrohr-Refokussierspiegel erzeugten, Fokus dar. Für eine völlige Ausnutzung der elektronenoptischen Leistung eines AC-PEEM werden daher alternative Detektoren höherer Pixeldichte benötigt. Eine moderate Verbesserung bietet der 512 px auflösende Medipix 2 Detektor [119]. Hochauflösende bildgebende Detektoren fehlen bis jetzt, und müssen Gegenstand zukünftiger Entwicklungen sein.

Es ist anerkannt, dass bei X-PEEM eine Verschlechterung der lateralen Auflösung sowie eine Verbreiterung des Emissionsspektrums durch Boersch & Loeffler Effekte [120] hervorgerufen wird. Dies ist Ursache der enormen Spitzenintensität kurzer Synchrotronpulse und unabhängig voneinander von Locatelli und Schmidt experimentell bestätigt [121, 101]. Bei BESSY II wird der Effekt insbesondere durch den intensiven Singlebunch innerhalb des Hybridbunch-Füllmusters hervorgerufen. Um die optische Leistungsfähigkeit eines AC-PEEM bei zeitaufgelösten Experimenten vollständig nutzbar zu machen, ist die Einführung von alternativen Füllmustern notwendig. Diese müssen zwingend die Strahlintensität auf mehrere, für zeitaufgelöste Experimente isolierte, Bunche aufteilen.

- [1] S. Wozniak, iWoz: Wie ich den Personal Computer erfand und Apple mitgründete., Deutscher Taschenbuchverlag, 2008.
- [2] S. Blügel, D. Bürgeler, M. Morgenstern, C. Schneider, and R. Waser, Editoren, 40th IFF Springschool 2009: Spintronics - From GMR to Quantum Information, Forschungszentrum Jülich GmbH, 2009.
- [3] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange, Phys. Rev. B 39, 4828 (1989).
- [4] M. Baibich et al., Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [5] W. Egelhoff, P. Chen, C. Powell, M. Stiles, and R. McMichael, Optimizing the giant magnetoresistance of symmetric and bottom spin valves, J. Appl. Phys. 79, 5277 (1996).
- [6] S. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas, Magnetic Domain-Wall Racetrack Memory, Science 320, 190 (2008).
- [7] W. Gallagher and S. Parkin, Development of the magnetic tunnel junction MRAM at IBM: from first junctions to a 16-Mb MRAM demonstrator chip, IBM J. Res. Dev. 50, 5 (2006).
- [8] R. Jansen, The spin-valve transistor: a review and outlook, J. Phys. D: Appl. Phys. 36, R286 (2003).
- [9] R. Cowburn and M. Welland, Room Temperature Magnetic Quantum Cellular Automata, Science 287, 1466 (2000).
- [10] D. Allwood et al., Magnetic Domain-Wall Logic, Science 309, 1688 (2005).
- [11] EVERSPIN Technologies, Inc., www.everspin.com (2013).

- [12] A. Berger, Technology of hard disk drives, in 40th IFF Springschool 2009: Spintronics From GMR to Quantum Information, 2009.
- [13] A. Moser et al., Magnetic recording: advancing into the future, J. Phys. D: Appl. Phys. **35**, R157 (2002).
- [14] S. Sun, C. Murray, D. Weller, L. Folks, and A. Moser, Monodisperse FePt Nanoparticles and Ferromagnetic FePt Nanocrystal Superlattices, Science 287, 1989 (2000).
- [15] V. Skumryev et al., Beating the superparamagnetic limit with exchange bias, Nature 423, 850 (2003).
- [16] D. Allwood, G. Xiong, and R. Cowburn, Writing and erasing data in magnetic domain wall logic systems, J. Appl. Phys. 100, 123908 (2006).
- [17] R. Hertel and C. Schneider, Exchange explosions: Magnetization dynamics during vortex-antivortex annihilation, Phys. Rev. Lett. 97, 177202 (2006).
- [18] T. Gerrits, H. van den Berg, J. Hohlfeld, L. Bär, and T. Rasing, Ultrafast precessional magnetization reversal by picosecond magnetic field pulse shaping, Nature 418, 509 (2002).
- [19] C. Stamm et al., Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel, Nature Materials 6, 740 (2007).
- [20] M. Panish, Molecular Beam Epitaxy, Science 23, 916 (1980).
- [21] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. Brodsky, and H. Sowers, Layered Magnetic Structures: Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers, Phys. Rev. Lett. 57, 2442 (1986).
- [22] M. Julierre, Tunneling between ferromagnetic films, Phys. Lett. A 54, 225 (1975).
- [23] J. Moodera, L. Kinder, T. Wong, and R. Meservey, Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions, Phys. Rev. Lett. 74, 3273 (1995).
- [24] W. Meiklejohn and C. Bean, New Magnetic Anisotropy, Phys. Rev. 102, 1413 (1956).
- [25] J. Nogués and I. Schuller, Exchange bias, J. Magn. Magn. Mat. 192, 203 (1999).

- [26] J. Kranz and A. Hubert, Die Möglichkeiten der Kerr-Technik zur Beobachtung magnetischer Bereiche, Z. angew. Phys. 15, 220 (1963).
- [27] F. Schmidt, W. Rave, and A. Hubert, Enhancement of magneto-optical observation by digital image processing, IEEE Trans. Magn. 21, 1596 (1985).
- [28] G. Schütz et al., Absorption of Circularly Polarized X Rays in Iron, Phys. Rev. Lett. 58, 737 (1987).
- [29] G. van der Laan, B. Thole, and G. Sawatzky, Experimental proof of magnetic x-ray dichroism, Phys. Rev. B 34, 6529 (1986).
- [30] E. Brüche, Elektronenmikroskopische Abbildung mit lichtelektrischen Elektronen, Zeitschrift für Physik A 86, 448 (1933).
- [31] W. Telieps and E. Bauer, An analytical reflection and emission UHV surface Electron Microscope, Ultramicroscopy (1985).
- [32] J. Stöhr et al., Element-Specific Magnetic Microscopy with Circularly Polarized X-Rays, Science 259, 658 (1993).
- [33] C. M. Schneider et al., Element specific imaging of magnetic domains in multicomponent thin film systems, J. Magn. Magn. Mat. 162, 7 (1996).
- [34] W. Kuch et al., Element-Selective Magnetic Imaging in Exchange-Coupled Systems by Magnetic Photoemission Microscopy, Surf. Rev. Lett. 5, 1241 (1998).
- [35] F. Nolting et al., Direct observation of the alignement of ferromagnetic spins by antiferromagnetic spins, Nature 405, 767 (2000).
- [36] H. Ohldag et al., Spin Reorientation at the Antiferromagnetic NiO(001) Surface in Response to an Adjacent Ferromagnet, Phys. Rev. Lett. 86, 2879 (2001).
- [37] A. Krasyuk et al., Time-resolved photoemission electron microscopy of magnetic field and magnetization changes, App. Phys. A 76, 863 (2003).
- [38] J. Vogel, W. Kuch, M. Bonfim, J. Camarero, and Y. Pennec, Time-resolved magnetic domain imaging by x-ray photoemission electron microscopy, Appl. Phys. Lett. 82, 2299 (2003).
- [39] S.-B. Choe et al., Vortex Core-Criven Magnetization Dynamics, Science 304, 420 (2004).

- [40] J. Raabe et al., Quantitative Analysis of Magnetic Excitations in Landau Flux-Closure Structures Using Synchrotron-Radiation Microscopy, Phys. Rev. Lett. 94, 217204 (2005).
- [41] A. Krasyuk et al., Self-trapping of magnetic oscillation modes in landau fluxclosure structures, Phys. Rev. Lett. **95**, 207201 (2005).
- [42] A. Kaiser, Magnetization Dynamics in Magnetically Coupled Heterostructures, Dissertation, Universität Duisburg-Essen, 2009.
- [43] O. Scherzer, Sphärische und chromatische Korrektur von Elektronen-Linsen, Optik 2, 114 (1947).
- [44] G. Rempfer, D. Desloge, W. Skoszylas, and O. Griffith, Simultaneous Correction of Spherical and Chromatic Aberrations with an Electron Mirror: An Electron Optical Achromat, Microscopy and Microanalysis 3, 14 (1997).
- [45] D. Preikszas and H. Rose, Correction properties of electron mirrors, J. Electron Microscopy (Tokyo) 46, 1 (1997).
- [46] T. Schmidt et al., Double aberration correction in a low-energy electron microscope, Ultramicroscopy 110, 1358 (2010).
- [47] R. Tromp, A new aberration-corrected, energy-filtered LEEM/PEEM instrument. I. Principles and design, Ultramicroscopy 110, 852 (2010).
- [48] SPECS Surface Nano Analysis GmbH, www.specs.com (2013).
- [49] ELMITEC Elektronenmikroskopie GmbH, www.elmitec.de (2013).
- [50] S. Schramm, A. Pang, M. Altman, and R.M.Tromp, A Contrast Transfer Function approach for image calculations in standard and aberration-corrected LEEM and PEEM, Ultramicroscopy 115, 88 (2012).
- [51] J. Stöhr and H. Siegmann, Magnetism From Fundamentals to Nanoscale Dynamics, Springer, 2006.
- [52] E. C. Stoner, Collective Electron Ferromagnetism, Proc. R. Soc. Lond. A 165, 372 (1938).
- [53] S. Blundell, Magnetism in Condensed Matter, Oxford University Press, 2011.

- [54] L. Landau and E. Lifshitz, On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies., Phys. Z. Sowjetunion 8, 153 (1935).
- [55] K. Honda and S. Kaya, On the magnetization of single crystals of iron., Sci. Rep. Tohoku Imp. Univ. 15, 721 (1926).
- [56] S. Kaya, On the magnetization of single crystals of nickel., Sci. Rep. Tohoku Imp. Univ. 17, 639 (1928).
- [57] S. Kaya, On the magnetization of single crystals of cobalt., Sci. Rep. Tohoku Imp. Univ. 17, 1158 (1928).
- [58] J. H. van Vleck, On the Anisotropy of Cubic Ferromagnetic Crystals, Phys. Rev. 52, 1178 (1937).
- [59] L. Bergmann and C. Schäfer, Experimentalphysik 6 Festkörper, de Gruyter, 2005.
- [60] A. Hubert and R. Schäfer, Magnetic Domains, Springer Berlin, 2000.
- [61] M. J. Donahue and D. G. Porter, Oommf user's guide, in *Interagency Report NISTIR 6379*. National Institute of Standards and Technology, 1999.
- [62] J. Jackson, Classical Electrodynamics, Willey, 1998.
- [63] P. Suortti and W. Thomlinson, Medical applications of synchrotron radiation, Phys. Med. Biol. 48, R1 (2003).
- [64] P. Ball, The hidden van Gogh, Nature 454, 563 (2008).
- [65] E. Pantos, X-rays for Archaeology, Kapitel 3, Springer, 2005.
- [66] Helmholtzzentrum Berlin, BESSY II, http://www.helmholtz-berlin.de/ (2013).
- [67] D. Attwood, Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and Applications, Cambridge University Press, 2007.
- [68] J. Erskine and E. Stern, Calculation of the M23 magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel, Phys. Rev. B 12, 5016 (1975).
- [69] 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 (1992).
- [70] P. Carra, B. Thole, M. Altarelli, and X. Wang, X-Ray Circular Dichroism and Local Magnetic Fields, Phys. Rev. Lett. 70, 694 (1993).

- [71] E. Brüche, Bemerkung über die Erreichung hoher Auflösungen mit dem elektronenoptischen Immersionsobjektiv, Zeitschrift für Physik 92, 462 (1934).
- [72] L. Veneklasen, The continuing development of lowenergy electron microscopy for characterizing surfaces, Rev. Sci. Instr. 63, 5513 (1992).
- [73] M. Seah and W. Dench, Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces: A Standard Data Base for Electron Inelastic Mean Free Paths in Solids, Surf. Int. Analy. 1, 2 (1979).
- [74] E. Bauer, Low energy electron microscopy, Rep. Prog. Phys. 57, 895 (1994).
- [75] C. Schneider and G. Schönhense, Investigating surface magnetism by means of photoexcitation electron emission microscopy, Rep. Prog. Phys. 65, 1785 (2002).
- [76] S. Schramm, S. van der Molen, and R. Tromp, Intrinic Instability of Aberration-Corrected Electron Microscopes, Phys. Rev. Lett. 109, 163901 (2012).
- [77] O. Krivanek, N. Dellby, and M. Murfitt, Handbook of Charged Particle Optics, Kapitel 12, CRC Press, 2009.
- [78] C. Davisson and C. Calbrick, Electron Lenses, Phys. Rev. 42, 580 (1932).
- [79] Y. Wang, M. Lai, and Z. Shao, On the optical properties of an electrostatic retarding field lens, J. Vac. Sci. Technol. A 11, 406 (1993).
- [80] M. Lenc and I. Müllerová, Electron optical properties of a cathode lens, Ultramicroscopy 41, 411 (1992).
- [81] O. Scherzer, Über einige Fehler von Elektronenlinsen, Zeitschrift für Physik 101, 593 (1936).
- [82] B. Kabius et al., Aberration correction within the TEAM project, J. Electron Microscopy (Tokyo) 58, 147 (2009).
- [83] H. Rose, Inhomogenous Wien filter as a corrector compensating for the chromatic and spherical aberration of low voltage elektron microscopes, Optik 84, 91 (1990).
- [84] M. Hibino and S. Maruse, Correction of the Spherical Aberration of a Magnetic Lens with a Foil Lens, J. Electron Microscopy (Tokyo) 25, 229 (1976).
- [85] T. Koshikawa et al., A new aberration correction method for photoemission electron microscopy by means of moving focus, J. Phys.: Condens. Matter 17, 1371 (2005).

- [86] L. Oldfield, Microwave cavities as electron lenses, Dissertation, University of Cambridge, 1973.
- [87] G. Schönhense and H. Spiecker, Correction of chromatic and spherical aberration in electron microscopy utilizing the time tructure of pulsed excitation sources, J. Vac. Sci. Technol. B 20, 2526 (2002).
- [88] A. Einstein, Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt, Annalen der Physik 322, 132 (1905).
- [89] H. Michelson, The work function of the elements an its periodicity, J. Appl. Phys. 48, 4729 (1977).
- [90] J. Stöhr and S. Anders, X-ray spectro-microscopy of complex materials and surfaces, IBM J. Res. Dev. 44, 535 (2000).
- [91] R. Tromp, R. Hamers, and J. Demuth, Si(001) Dimer Structure Observed with Scanning Tunneling Microscopy, Phys. Rev. Lett. 55, 1303 (1985).
- [92] R. Tromp, J. Hannon, A. Berghaus, and O. Schaff, A new aberration-corrected, energy-filtered LEEM/PEEM instrument II. Operation and results, Ultramicroscopy 127, 25 (2013).
- [93] V. Kolarik, M. Mankos, and L. Veneklasen, Close packed prsm arrays for electron microscopy, Optik 87, 1 (1991).
- [94] R. Tromp et al., A simple energy filter for low energy electron microscopy/photoelectron emission microscopy instruments, J. Phys.: Condens. Matter 21, 13 (2009).
- [95] J. Feng, H. Padmore, D. Wei, S. Anders, and Y. Wu, Modeling the acceleration field and objective lens for an aberration corrected photoemission electron microscope, Rev. Sci. Instr. 73, 1514 (2002).
- [96] H. Marchetto, High-resolution spectro-microscopic investigations of organic thin film growth, Dissertation, Freie Universität Berlin, 2006.
- [97] K. Kimoto, K. Ishizuka, N. Tanaka, and Y. Matsui, Practical procedure for comafree alignement using caustic figure, Ultramicroscopy 96, 219 (2003).
- [98] Q. X. ad T.A. Lograsso, A rapid method to correct objective lens astigmatism in a TEM, Ultramicroscopy 109, 287 (2009).

- [99] R. Tromp, Characterization of the cathode objective lens by Real-Space Microspot Low Energy Electron Diffraction, Ultramicroscopy (accepted) (2013).
- [100] R. Schlier and H. Farnsworth, Structure and Adsorption Characteristics of Clean Surfaces of Germanium and Silicon, J. Chem. Phys. 30, 917 (1959).
- [101] T. Schmidt, A. Sala, H. Marchetto, and H.-J. Freund, First experimental proof for aberration correction in XPEEM: Resolution transmission enhancement, and limitation by space charge effects, Ultramicroscopy 126, 23 (2013).
- [102] M. Griebel, Ultraschnelle Ladungsträgerdynamik in LTG-GaAs und ErAs:GaAs-Übergittern - Grundlagen und Anwendungen, Dissertation, Universität Stuttgart, 2002.
- [103] D. Auston, Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon, Appl. Phys. Lett. 26, 101 (1975).
- [104] R. Adam et al., Fabrication and subpicosecond optical response of low-temperaturegrown GaAs freestanding photoconductive devices, Appl. Phys. Lett. 81, 3485 (2002).
- [105] W. Demtröder, Experimentalphysik 2 Elektrizität und Optik, Springer Berlin, 1995.
- [106] C. Bernadini et al., Lifetime and beamsize in a storage ring, Phys. Rev. Lett. 10, 407 (1963).
- [107] S. Poisson, Recherches sur la probabilié de judgements, Bachelier, Paris, 1837.
- [108] C. Quitmann et al., Measuring magnetic excitations in microstructures using x-ray microscopy, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 588, 494 (2008).
- [109] Hamamatsu Photonics, www.hamamatsu.com (2013).
- [110] Coplanar Waveguide Calculator, http://www1.sphere.ne.jp/i-lab/ilab/tool/cpw\_e.htm (2013).
- [111] J. K. Ha, R. Hertel, and J. Kirschner, Micromagnetic study of magnetic configurations in submicron permalloy disks, Phys. Rev. B 67, 224432 (2003).
- [112] A. Kaiser, C. Wiemann, S. Cramm, and C. Schneider, Influence of magnetocrystalline anisotropy on the magnetization dynamics of magnetic microstructures, J. Phys.: Condens. Matter 21, 314008 (2009).

- [113] S. K. Decker and C. Tsang, Magnetoresistive response of small permalloy features, IEEE Trans. Magn. 16, 643 (1980).
- [114] R. Hertel, S. Gliga, M. Fähnle, and C. Schneider, Ultrafast nanomagnetic toggle switching of vortex cores, Phys. Rev. Lett. 98, 117201 (2007).
- [115] A. Thiele, Steady-State Motion of Magnetic Domains, Phys. Rev. Lett. 30, 230 (1973).
- [116] K. Y. Guslienko, B. Ivanov, V. Novosad, Y. Otani, and H. Shima, Eigenfrequencies of vortex state excitations in magnetic submicron-size disks, J. Appl. Phys. 91, 8037 (2002).
- [117] M. Bolte et al., Time-Resolved X-Ray Microscopy of Spin-Torque-Induced Magnetic Vortex Gyration, Phys. Rev. Lett. 100, 176601 (2008).
- [118] D. Rudolf et al., Ultrafast magnetization enhancement in metallic multilayers driven by superdiffusive spin current, Nature Communications 3, 1037 (2012).
- [119] R. van Gastel et al., Medipix 2 detector applied to low energy electron micriscopy, Ultramicroscopy 110, 33 (2009).
- [120] P. Kruit and J. Knauer, Space charge and statistical coulomb effects, in *Handbook of Charge Particle Optics*, Seiten 275–318, 1997.
- [121] A. Locatelli, T. Mentes, M. Nino, and E. Bauer, Image blur and energy broadening effects in XPEEM, Ultramicroscopy 111, 1447 (2011).

## **Danksagung**

Ich danke Herrn **Prof. Dr. Claus M. Schneider** für meine Stelle und die Möglichkeit diese Arbeit im PGI-6 durchzuführen, für die vertrauensvolle Zusammenarbeit und seine Diskussionsbereitschaft.

Herrn **Prof. Dr. Frithjof Nolting** gebührt mein Dank für die Übernahme des Koreferates.

Dr. Ingo Krug danke ich für die sorgfältige Korrektur der Arbeit und viele fachliche Diskussionen, welche bei mir stets ein tieferes Verständnis der Thematik hervorriefen.

Bei **Daniel Gottlob** und **Hatice Doganay** bedanke ich mich für die Übernahme zahlreicher Tag- und Nachtschichten während meiner Messzeiten sowie für die entspannte Arbeitsatmosphäre in unserer Gruppe.

**Dr. Stefan Cramm** danke ich für zahlreiche fachliche und nicht-fachliche Diskussionen zwischen Pizza und Pils, die einen nicht zu unterschätzenden Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit leisteten.

**Dr. Alexander Kaiser** danke ich für seinen schnellen, hilfreichen und unkomplizierten Support in allen Fragen rund um's TRACX-PEEM.

Den Herren **Heinz Pfeifer** und **Konrad Bickmann** danke ich für ihre Begeisterungsfähigkeit für die verwegensten elektronischen und UHV-technischen Ideen. Nicht zuletzt ihre herausragende fachliche Kompetenz haben große Teile dieser Arbeit ermöglicht.

Ebenso bedanken möchte ich mich bei Jürgen Lauer, Bernd Küpper, Franz-Josef Köhne und Thomas Jansen für ihren stetigen technischen Support.

Dr. Roman Adam gebührt Dank für zahlreiche gemeinsame Tage der Justage des zi-

ckigen Ti:Saphir Oszillators.

Dr. Denys Makarov und Gungun Lin danke ich für die spontane Kollaboration.

René Borowski, Mirka Grates und Mona Nonn gebührt Dank für meine Einweisung in die sichere Arbeit im Reinraum, Hilfe und Antwort auf alle Fragen zur optischen Litho sowie die Herstellung zahlreicher Lithografie-Masken.

Bei **Dr. Oliver Schaff** und **Dr. Andreas Berghaus** bedanke ich mich für die zahlreichen gemeinsamen Spätschichten und die Einweihung in die geheimsten Kniffe zum Justieren des AC-LEEMs.

Dem ganzen BESSY Team und insbesondere Helmut Pfau und Francois Talon möchte ich danken für permanenten Support unserer Gruppe von Beamline UE56/1-SGM. Ebenso waren die mechanische Werkstatt unter Leitung von Torsten Wagner und die Elektronikwerkstatt unter Leitung von Gert Meyer eine unverzichtbare Hilfe bei allen Notfällen während des Messbetriebes.

Den Kollegen vom PGI-6 danke ich für die herzliche Aufnahme in die Kaffeerunde während der kurzen, unregelmäßigen Besuche im Forschungszentrum. Insbesondere **Denis Rudolf** und **Christian Weier** gebührt Dank für ihre Hilfe bei der Probenherstellung und -charakterisierung in Jülich.

Meinen Eltern **Andreas** und **Sabine Nickel** danke ich für ihren Rückhalt und ihre Unterstützung und dafür, dass sie mir diese lange Ausbildung ermöglicht haben.

Meine Frau **Anja** musste sicherlich die größten Opportunitätskosten dieser Arbeit übernehmen. Danke!

### **Curriculum Vitae**

#### Persönliche Daten

Name: Florian Nickel Geburtsdatum: 25. Juni 1984

Geburtsort: Hagen Familienstand: verheiratet

e-mail: fl.nickel@fz-juelich.de

#### Beruf

Juni 2013 Einreichung der Dissertation zum Dr. rer. nat.

Titel: Aberrationskorrigierte Photoemissionsmikroskopie an magnetischen Systemen: Von statischer Charakterisierung

zu zeitaufgelöster Abbildung Universität Duisburg-Essen

Feb. 2010 - Juni 2013 Wissenschaftlicher Mitarbeiter

Peter-Grünberg-Institut 6, Forschungszentrum Jülich

#### Ausbildung

Nov. 2009 Diplomarbeit

Titel: Photoemissionsmikroskopie an magnetischen Systemen:

Erste Messungen bei DELTA

Okt. 2004 - Nov. 2009 Physikstudium

Technische Universität Dortmund

Sept. 2003 - Juni 2004 Zivildienst

GVS Herdecke

Juli 1994 - Juni 2003 Abitur

Geschwister-Scholl-Gymnasium Wetter(Ruhr)

Juli 1990 - Juni 1994 Grundschule

Gemeinschaftsgrundschule Wetter-Wengern

## Veröffentlichungen

#### Publikationen in referierten Fachzeitschriften

- D. Meier, I.P. Krug, Y. Kumagai, A. Cano, Z. Yan, F. Nickel, D. Gottlob, H. Doganay, J. Orenstein, E. Bourret, C.M. Schneider, M. Mostovoy, N.A. Spaldin, and R. Ramesh, *Electrostatics at improper ferroelectric domain walls*, Nature Nanotechnology (2013) in review
- F. Nickel, D.M. Gottlob, I.P. Krug, H. Doganay, S. Cramm, A.M. Kaiser, G. Lin, D. Makarov, O.G. Schmidt, and C.M. Schneider, *Time-resolved magnetic imaging in an aberration corrected, energy-filtered photoemission electron microscope*, Ultramicroscopy (2013), in press
- A.M. Kaiser, C. Schöppner, F.M. Römer, C. Hassel, C. Wiemann, S. Cramm, F. Nickel, P. Grychtol, C. Tieg, J. Lindner, and C.M. Schneider, Nano and picosecond magnetization dynamics of weakly cupled CoFe/Cr/NiFe trilayers studied by a multitechnique approach, Phys. Rev. B 84 (2011) 134406

### Konferenzbeiträge

- F. Nickel, I.P. Krug, A.K. Schmid, A.M. Kaiser, S.Cramm, C. Wiemann, A. Quesada, O. Schaff, A. Berghaus, and C.M. Schneider, *Commissioning of the new aberration-corrected, energy-filtered PEEM/LEEM endstation at BESSY*, LEEM-PEEM 7, New York, USA, 8.-13. August 2010
- F. Nickel, I.P. Krug, A.K. Schmid, A.M. Kaiser, S.Cramm, C. Wiemann, A. Quesada, O. Schaff, A. Berghaus, and C.M. Schneider, *Commissioning of the new aberration-corrected, energy-filtered PEEM/LEEM endstation at BESSY*, IMC-17, Rio de Janeiro, Brasilien, 19.-24. September 2010

- I.P. Krug, F. Nickel, O. Schaff, A. Berghaus, A.K. Schmid, D.M. Gottlob, A. Quesada, S. Cramm, and C.M. Schneider, A new endstation for time-resolved nanospectroscopy the aberration-corrected LEEM/PEEM at UE65-1 SGM, BESSY User Meeting, Berlin, Deutschland, 9.-10. Dezember 2010
- F. Nickel, I.P. Krug, O. Schaff, A.M. Kaiser, D. Gottlob, S.Cramm, R.M. Tromp, and C.M. Schneider, *The Jülich TRACX-PEEM @ BESSY II A state-of-the-art user-facility for time-resolved magnetism research.*, Frühjahrstagung der DPG, Dresden, Deutschland, 13.-18. März 2011
- C.M. Schneider, M. Patt, V. Feyer, C. Wiemann, I.P. Krug, F. Nickel, D. Gottlob, and S. Cramm, *Photoelectron Spectronanoscopy Opportunities and Challenges*, Internat. Symposium of Synchrotron Radiation in Natural Science, Krakau, Polen, 20.-25. Mai 2012
- I.P. Krug, I. Vrejoiu, A. Morelli, F. Nickel, D. Gottlob, H. Doganay, N. Barrett, J. Wang, and C.M. Schneider, Ferroeletrically induced valency change in multiferroic Pb-TiO3/La0.7Sr0.3MnO3/BaTiO3 nanotructure arrays, LEEM-PEEM 8, Hong-Kong, 11.-15. November 2012
- F. Nickel, I.P. Krug, D.M. Gottlob, A.M. Kaiser, D. Makarov, G. Lin, S. Cramm, H. Doganay, O.G. Schmidt, and C.M. Schneider, *Time-resolved Magnetic Imaging in an Energy-Filtered, Aberration-corrected Photoemision Electron Microscope*, BESSY User Meeting, Berlin, Deutschland, 12.-14. Dezember 2012
- D.M. Gottlob, I.P. Krug, F. Nickel, H. Doganay, S. Cramm, and C.M. Schneider, On the micromagnetic origin of the spin-reorientation transition in NixPd1-x alloys, BESSY User Meeting, Berlin, Deutschland, 12.-14. Dezember 2012
- F. Nickel, I.P. Krug, D.M. Gottlob, A.M. Kaiser, D. Makarov, G. Lin, S. Cramm, H. Doganay, O.G. Schmidt, and C.M. Schneider, *Time-resolved Magnetic Imaging in an Energy-Filtered, Aberration-corrected Photoemision Electron Microscope*, Frühjahrstagung der DPG, Regensburg, Deutschland, 10.-15. März 2013
- H. Doganay, I.P. Krug, J. Schubert, D.M. Gottlob, F. Nickel, S. Cramm, and C.M. Schneider, XAS Studies on All-Oxide Ferromagnetic/Ferroelectric Heterosystems: Sr-

TiO3(001)/La0.7Sr0.3MnO3/BaTiO3,Frühjahrstagung der DPG, Regensburg, Deutschland, 10.-15. März 2013

I.P. Krug, I. Vrejoiu, A. Morelli, F. Nickel, D.M. Gottlob, H. Doganay, R. Laskowski, N. Barrett, J. Wang, and C.M. Schneider, *Tunable ferroelectric imprint and Mn valency in PbTiO3 /La0.7Sr0.3MnO3 nanostructures*, Frühjahrstagung der DPG, Regensburg, Deutschland, 10.-15. März 2013

D.M. Gottlob, I.P. Krug, F. Nickel, H. Doganay, S. Cramm, and C.M. Schneider, *On the micromagnetic origin of the spin-reorientation transition in NixPd1-x alloys*, Frühjahrstagung der DPG, Regensburg, Deutschland, 10.-15. März 2013

#### Band / Volume 63

#### **Neutron Scattering**

Lectures of the JCNS Laboratory Course held at Forschungszentrum Jülich and the research reactor FRM II of TU Munich

edited by Th. Brückel, G. Heger, D. Richter, G. Roth and R. Zorn (2013), ca 350 pages

ISBN: 978-3-89336-880-8

#### Band / Volume 64

#### **Neutron Scattering**

Experiment Manuals of the JCNS Laborator Course held at Forschungszentrum Jülich and the research reactorFRM II of TU Munich

edited by Th. Brückel, G. Heger, D. Richter, G. Roth and R. Zorn (2013),

ca. 150 pages

ISBN: 978-3-89336-881-5

#### Band / Volume 65

#### Solutions of Exercises in "An Introduction to Dynamics of Colloids"

J. K. G. Dhont, K. Kang (2013), 143 pp

ISBN: 978-3-89336-882-2

#### Band / Volume 66

# Strukturelle und chemische Charakterisierung von selbst-assemblierten Monolagen organischer Moleküle auf Oberflächen

M. Müller (2013), 168 pp ISBN: 978-3-89336-883-9

#### Band / Volume 67

# Adsorption of (hetero-)organic Phthalocyanine and PTCDA thin films on Ag(111)

C. Kleimann (2013), iv, 149 pp ISBN: 978-3-89336-888-4

#### Band / Volume 68

## High-energy high-momentum surface spin waves of ultrathin epitaxial 3d transition metal films

R. Jayaraman (2013), ix, 135 pp ISBN: 978-3-89336-890-7

#### Band / Volume 69

### Magnetic Oxide Heterostructures: EuO on Cubic Oxides and on Silicon

C. Caspers (2013), xiii, 153 pp ISBN: 978-3-89336-891-4 Band / Volume 70

## Femtosecond Spin Dynamics in Magnetic Multilayers Employing High Harmonics of Laser Radiation

D. Rudolf (2013), vi, 121 pp ISBN: 978-3-89336-894-5

Band / Volume 71

# Development and application of a massively parallel KKR Green function method for large scale systems

A. R. Thieß (2013), ii, 173 pp ISBN: 978-3-89336-906-5

Band / Volume 72

# Conformational Dynamics of Calmodulin and Ribosome-Nascent Chain Complexes Studied by Time-Resolved Fluorescence Anisotropy

P. Lamprou (2013), 182 pp ISBN: 978-3-89336-907-2

Band / Volume 73

#### Stereoselective synthesis of vicinal diols with enzymatic cascade reactions

J. Kulig (2013), XV, 177 pp ISBN: 978-3-89336-911-9

Band / Volume 74

#### **Computing Solids**

#### Models, ab-initio methods and supercomputing

Lecture Notes of the 45<sup>th</sup> IFF Spring School 2014

March 10 - 21, 2014 Jülich, Germany

ed. by S. Blügel, N. Helbig, V. Meden, D. Wortmann (2014), ca. 1000 pp

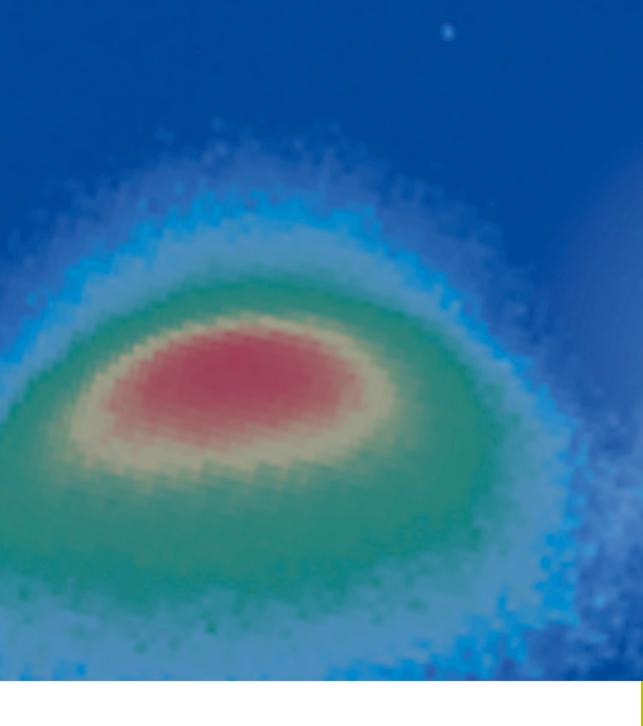
ISBN: 978-3-89336-912-6

Band / Volume 75

# Aberrationskorrigierte Photoemissionsmikroskopie an magnetischen Systemen: Von statischer Charakterisierung zu zeitaufgelöster Abbildung

F. Nickel (2013), x, 99 pp ISBN: 978-3-89336-913-3

Weitere Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich unter http://www.zb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp



Schlüsseltechnologien / Key Technologies Band / Volume 75 ISBN 978-3-89336-913-3

