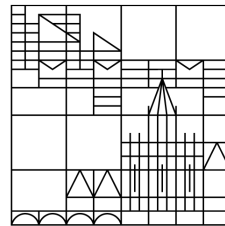


# Kohärente Pikosekundenkopplung der Spin- und Ladungsdynamiken in einem Antiferromagneten

Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades  
eines Doktors der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)  
vorgelegt von Moritz Cimander  
an der

Universität  
Konstanz



Mathematisch-Naturwissenschaftliche Sektion  
Fachbereich Physik

Tag der mündlichen Prüfung: 16. Mai 2025  
Erster Referent: Dr. Davide Bossini  
Zweiter Referent: Prof. Dr. Sebastian Gönnerwein

Konstanz, 2024





# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Magnetische Eigenschaften von Nickeloxid</b>	<b>5</b>
2.1. Magnetische und dynamische Eigenschaften des Antiferromagneten Nickeloxid . . . . .	5
2.1.1. Magnonen in Antiferromagneten . . . . .	6
2.1.2. Lichtstreuung an Magnonen und magneto-optische Effekte . .	8
2.1.3. Optische Erzeugung und Kontrolle kollektiver magnetischer Phänomene . . . . .	9
2.2. Optische und magnetische Eigenschaften von Nickeloxid . . . . .	11
2.2.1. Exziton-Magnon-Übergang . . . . .	12
2.2.2. Optische Charakterisierung von Nickeloxid . . . . .	13
<b>3. Experimenteller Aufbau zur optischen Erzeugung und Kontrolle hochfrequenter Magnonen bei kryogenen Temperaturen</b>	<b>17</b>
3.1. Anforderungen an den experimentellen Aufbau . . . . .	18
3.2. Aufbau zur zeitaufgelösten, magneto-optischen Ultrakurzzeitspektroskopie bei kryogenen Temperaturen . . . . .	19
3.3. Drei-Farben-Lasersystem . . . . .	20
3.3.1. Regenerativer Hochleistungs-Yb:KGW-Verstärker . . . . .	21
3.3.2. Zweistufiger optisch-parametrischer Verstärker Orpheus . . . .	24
3.3.3. Selbstkonzipierter einstufiger optisch-parametrischer Verstärker	25
3.4. Bestandteile des optischen Systems . . . . .	27
3.5. Detektionsmechanismen . . . . .	30
3.5.1. Magneto-optisches Detektionsschema . . . . .	31
3.5.2. Zeitaufgelöste balancierte Detektion differentieller Transmissionsänderungen . . . . .	34
3.5.3. Elektronische Präparation der Signalimpulse . . . . .	35
3.5.4. Analoger Trägerfrequenzverstärker . . . . .	38
3.5.5. Digitale Detektion . . . . .	39
<b>4. Zeitaufgelöste magneto-optische Experimente an Nickeloxid</b>	<b>45</b>
4.1. Datenanalyse . . . . .	46
4.2. Magnonen in Nickeloxid . . . . .	47
4.3. Abhängigkeit von der Anregewellenlänge . . . . .	48
4.4. Anregepolarisationsabhängigkeit . . . . .	51
4.5. Temperaturabhängigkeit der Spindynamiken . . . . .	53

<b>5. Kohärente Modulation der relativen Transmissionsänderung durch Magnonen</b>	<b>57</b>
5.1. Magnonen in differentieller Transmissionsänderung . . . . .	57
5.2. Zusammenhang zwischen der Amplitude der Spinoszillationen und der Anregefluenz . . . . .	59
5.3. Amplitude der induzierten Spindynamiken in Abhängigkeit der Proben-temperatur . . . . .	61
5.4. Abhängigkeit von der Abtastwellenlänge . . . . .	63
5.4.1. Spektrale und Amplitudenmodulation des Absorptionsspektrums . . . . .	66
5.4.2. Empirische Berechnung der Magnonamplituden . . . . .	69
<b>6. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>73</b>
<b>A. Anhang</b>	<b>77</b>
A.1. Cross-Nicol-Aufbau in Experiment . . . . .	77
A.2. Balancierte Rotationsdetektion . . . . .	78
A.3. Messgeometrie und Polarisationsterminologie . . . . .	79
A.4. Parameter der Abtastimpulse . . . . .	80
<b>B. Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>81</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>85</b>
<b>C. Publikationsliste</b>	<b>91</b>



# 1. Einleitung

Die Basis für die Speicherung und Auslese magnetischer Informationen der etablierten Technik basiert auf ferromagnetischen Materialien. Diese Technik beschränkt sich auf den Gigahertz-Frequenzbereich. Im Gegensatz dazu liegen die Eigenfrequenzen magnetischer Kollektivanregungen in antiferromagnetisch geordneten Medien im Terahertz-Bereich [Sat10a, Bos16, For24]. Die verschwindende makroskopische Magnetisierung [Née48] erhöht die Robustheit potenzieller Bauteile gegenüber externen elektromagnetischen Störfeldern [Ně18]. Viele antiferromagnetische Materialien sind Dielektrika und die Licht-Materie-Wechselwirkung läuft im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich in einem nicht-dissipativen Regime ab [Bos17].

Diese Vorteile erschweren zugleich die Untersuchung der Spindynamiken in Antiferromagneten mit etablierten Techniken [Kir10]. Die Entwicklung von Hochleistungs-Lasersystemen, die Impulse im Femtosekundenbereich emittieren [Sch88, Bru00], bietet einen Ausweg. Die kurzen Impulse ermöglichen die Erzeugung und Analyse hochfrequenter Dynamiken wie Phononen [Kam13] und Magnonen [Sat10a] in Festkörpern in der Zeitdomäne mit optischen Techniken. Eine effiziente Methode hierfür ist die Verwendung optischer Techniken zur Erzeugung und Untersuchung magnetischer Phänomene.

Die bisherigen Errungenschaften des Felds des ultraschnellen Magnetismus an antiferromagnetischen Materialien sind die erfolgreiche Erzeugung über resonante [Kam11] und nichtresonante Techniken [Sat10a] von Magnonen sowie die subzyklische Detektion ihrer Dynamik in der Zeitdomäne. Darüber hinaus wurde die Manipulation der Amplitude und der Phase von Magnonen im THz-Frequenzbereich von Bossini et al. [Bos16] demonstriert. Diese Veröffentlichungen zeigen auf, dass Antiferromagneten in Kombination mit ultraschneller Optik für spintronische Anwendungen geeignet sind.

Zwei noch zu beantwortende Fragen für die Entwicklung logischer Bauteile basierend auf Antiferromagneten sind der Transport von Informationen sowie das Auslesen derselben mit konventionellen elektronischen Bauteilen. Diese Arbeit liefert einen Beitrag zur Beantwortung der zweiten Frage.

Der erste Schritt ist die Konzeption eines kryogenen zeitaufgelösten magneto-optischen Anrege-Abfrage-Spektroskops mit einer zeitlichen Auflösung im Femtosekundenbereich und einer hohen spektralen Durchstimmbareit der Zentralwellenlängen der Laserimpulse. Die Implementierung balancierter Detektionsschemata sowohl für magneto-optische Messungen als auch für die Bestimmung der differentiellen Transmission gewährleistet die Detektion relativer Änderungen im Bereich von  $10^{-6}$ . Das

verwendete Material ist der dielektrische Antiferromagnet Nickeloxid. Dieser ist weder multiferroisch noch ferroelektrisch. Mit zwei Magnonmoden im Gigahertz- und im niedrigen Terahertz-Bereich und einer Bandlücke im ultravioletten Spektralbereich ist es ein geeigneter Kandidat für die Untersuchung der Kopplung von Spin- und Ladungsdynamiken auf der Pikosekunden-Zeitskala. Die Kontrolle der Proben-temperatur und die hohe spektrale Durchstimmbarkeit der Laserimpulse ermöglichen die Untersuchung verschiedener Abhängigkeiten der Kopplung. Zudem geht diese Forschungsarbeit die ersten Schritte in die Richtung eines mikroskopischen Verständnisses der Kopplung der Dynamiken des Spin- und des Ladungssystems.

**Kapitel 2** liefert einen Überblick über die theoretischen Grundlagen des Optomagnetismus sowie eine Beschreibung des untersuchten Antiferromagneten Nickeloxid. Darüber hinaus erfolgt die Untersuchung der optischen Eigenschaften von Nickeloxid. Abschnitt 2.1 liefert eine Übersicht über Magnonen in Antiferromagneten mit einem Fokus auf das untersuchte Materialsystem Nickeloxid und seine Dispersionsrelation. Darüber hinaus stellt es unterschiedliche Methoden der magneto-optischen Erzeugung kohärenter Spindynamiken vor. Der Fokus liegt hierbei insbesondere auf der materialspezifischen Erzeugung von Magnonen über einen gekoppelten Exziton-Magnon-Übergang [Bos21a]. Abschnitt 2.2 beschreibt die kristallographischen und magnetischen Eigenschaften von Nickeloxid. Der zweite Teil präsentiert die ersten optischen Charakterisierungen, wie das Absorptionsspektrum und die Domänenstruktur der untersuchten Nickeloxid-Einkristalle.

**Kapitel 3** präsentiert das selbstkonzipierte kryogene, zeitaufgelöste magneto-optische Anrege-Abfrage-Spektroskop. Abschnitt 3.1 formuliert die experimentellen Anforderungen an ein solches System. Abschnitt 3.2 gibt einen Überblick über die einzelnen Komponenten des Anrege-Abfrage-Spektroskops, auf die die folgenden Abschnitte genauer eingehen. Abschnitt 3.3 stellt das Drei-Farben-Femtosekunden-Lasersystem, bestehend aus einem regenerativen, mit Ytterbium dotierten Kalium-Gadolinium-Wolframat-Verstärker und zwei von ihm gepumpten optisch-parametrischen Verstärkern, vor. Ein präzise verfahrbarer Heliumflusskryostat kontrolliert die Proben-temperatur und positioniert die Probe im Fokus der Laserimpulse (Abschnitt 3.4). Abschnitt 3.5 stellt die balancierten Detektionsschemata für magneto-optische Effekte und die differentielle Transmissionsänderung vor. Darüber hinaus erklärt es die Verarbeitung und Konversion der Differenzsignale mithilfe eines Digitalisierers.

**Kapitel 4** stellt die zeitaufgelösten magneto-optischen Experimente an Nickeloxid vor. Das erste Ziel dieser Untersuchungen ist die Validierung des selbstkonzipierten experimentellen Aufbaus. Abschnitt 4.1 erläutert die Auswertung der Messdaten. Die Abschnitte 4.2, 4.3 und 4.4 reproduzieren hierfür die Erzeugung und Detektion kohärenter Spindynamiken der Magnonmoden von Nickeloxid aus [Sat10a], den Zusammenhang zwischen der Zentralwellenlänge der Anregewellenlänge und dem

Exziton-Magnon-Übergang [Bos21a] sowie die Abhängigkeit von der Polarisation der Anregeimpulse [Tzs17]. Die Untersuchung der Wellenlängenabhängigkeit des Übergangs liefert darüber hinaus die effizienteste Anregekonfiguration. Darüber hinaus beschäftigt sich Abschnitt 4.5 mit der Abhängigkeit der Magnonfrequenzen und den Amplituden der detektierten Dynamik.

**Kapitel 5** präsentiert die Erkenntnisse der zeitaufgelösten Experimente zur gekoppelten Pikosekunden-Dynamik des Spin- und des Ladungssystems Nickeloxids. Abschnitt 5.1 vergleicht die zeitabhängige Dynamik der differentiellen Transmission mit derjenigen des Spinsystems in monokristallinem Nickeloxid. Die folgenden Abschnitte charakterisieren die gefundene Kopplung weiter. Abschnitt 5.2 untersucht den Zusammenhang zwischen der Stärke der induzierten Dynamik und der Fluenz der Anregeimpulse und damit verbunden der kohärenten Population der Magnonen in Nickeloxid. Weiter betrachtet Abschnitt 5.3 die Abhängigkeit der Modulationsstärke der relativen differentiellen Transmissionsänderungen. Absatz 5.4 beleuchtet den Zusammenhang zwischen der Zentralwellenlänge und der Kopplung der induzierten Dynamiken des Spin- und des Ladungssystems. Zusätzlich erfolgt die Differenzierung unterschiedlicher Modulationsmechanismen wie der Amplituden- und der spektralen Modulation des Absorptionsspektrums des Nickeloxidkristalls. Dieser Abschnitt geht weiter auf die ersten Schritte zur Entwicklung eines mikroskopischen Verständnisses dieses Mechanismus. Dafür bestimmt Abschnitt 5.4 welche Verschiebung des Absorptionsspektrums einer Transmissionsänderung der Größe der Amplituden der induzierten Dynamik entspricht.

**Kapitel 6** fasst die Ergebnisse und die physikalischen Erkenntnisse zusammen und gibt einen Ausblick über weiterführende Untersuchungen der kohärenten Kopplung von Spin- und Ladungsdynamiken in Antiferromagneten sowie den Weg zu einem mikroskopischen Verständnis dieser Kopplung.



## 2. Magnetische Eigenschaften von Nickeloxid

Das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Material ist der dielektrische Antiferromagnet Nickeloxid (NiO). Dieses Kapitel führt die für das Verständnis der Messmethodiken und der Ergebnisse relevanten Grundlagen des Magnetismus ein. Der Schwerpunkt liegt hierbei auf der Klasse der Antiferromagneten und den damit verbundenen magneto-optischen Effekten. Zudem stellt es das Material NiO vor und führt erste Charakterisierungen durch.

Hierfür gibt Kapitel 2.1 eine Einführung in das Gebiet des Magnetismus und stellt die Klasse der Antiferromagneten vor. Weiter gibt es einen Überblick über die magneto-optischen Effekte für die Detektion und Erzeugung kollektiver magnetischer Anregungen, diese werden auch als Magnonen bezeichnet. Kapitel 2.1.1 skizziert die Herleitung der Dispersionsrelation von Magnonen für den Fall eines Heisenberg-Antiferromagneten. Absatz 2.1.2 gibt einen Einblick in die Lichtstreuung an Magnonen. Der Fokus liegt auf der inelastischen und nichtresonanten Streuung, da diese zur Erzeugung kohärenter Spinoszillationen verwendet werden kann. Das letzte Unterkapitel 2.1.3 diskutiert die resonante und nichtresonante Erzeugung von Magnonen.

Kapitel 2.2 beschreibt die optischen und magnetischen Eigenschaften des untersuchten Materials NiO. Das erste Unterkapitel 2.2.1 erklärt einen weiteren Mechanismus zur Erzeugung von Magnonen über einen gekoppelten Exziton-Magnon-Übergang in NiO. Der zweite Abschnitt 2.2.2 behandelt die optischen Eigenschaften, wie den spektralen Absorptionskoeffizienten und die Struktur der magnetischen Domänen der verwendeten Probe.

### 2.1. Magnetische und dynamische Eigenschaften des Antiferromagneten Nickeloxid

Dieses Kapitel beschränkt sich auf die für diese Arbeit relevanten Grundlagen und gibt diese in kurzer Form wieder. Eine ausführliche Beschreibung von Magnetismus im Allgemeinen liefern diverse Lehrbücher wie beispielsweise [Kit89, Sto06]. Das Kapitel ist angelehnt an [Rez19].

Magnetisch geordnete Materialien lassen sich in verschiedene Klassen unterteilen, die sich in ihren grundlegenden magnetischen Eigenschaften unterscheiden. Hier differenziert man zwischen Ferro-, Ferri- und Antiferromagneten (AFM). Im Gegensatz

zu den anderen zwei Klassen besitzt Letztere eine verschwindende makroskopische Magnetisierung  $\mathbf{M} = 0$ .  $\mathbf{M}$  ist die Summe aller magnetischen Momente in einem Medium. Im Fall von AFM mit einer Vorzugsrichtung (engl. easy-axis antiferromagnets) ordnen sich die Spins entlang einer Hauptachse an. Hierbei bilden sich zwei Untergitter mit jeweils entgegengesetzter Magnetisierung  $\mathbf{M}_A$  und  $\mathbf{M}_B$ . Die Spins der beiden Untergitter sind ferromagnetisch gekoppelt. Für die Gesamtmagnetisierung gilt damit  $\mathbf{M}_0 = \mathbf{M}_A + \mathbf{M}_B = 0$ . Neben dem ferromagnetischen Vektor  $\mathbf{M}$ , welcher der makroskopischen Magnetisierung entspricht, lässt sich der antiferromagnetische Vektor  $\mathbf{L}_0 = \mathbf{M}_A - \mathbf{M}_B$  definieren. Dieser wird auch als Néel-Vektor bezeichnet.

### 2.1.1. Magnonen in Antiferromagneten

Das Heisenberg-Modell ist ein quantenmechanisches Modell zur Beschreibung magnetischer Systeme. Für einen AFM mit einer Vorzugsrichtung ergibt sich folgender Hamilton-Operator

$$\hat{H} = J \sum_{i \in A} \sum_{j \in B} \hat{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{S}}_j + g\mu_B H_a \left( \sum_{i \in A} \hat{\mathbf{S}}_i^z - \sum_{j \in B} \hat{\mathbf{S}}_j^z \right). \quad (2.1)$$

Hierbei ist  $J$  die Austauschwechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn. Diese ist für AFM positiv.  $\hat{\mathbf{S}}_{i,j}$  sind die Spinoperatoren der einzelnen magnetischen Momente beider Untergitter  $A$  und  $B$ . Der gyromagnetische Faktor  $g$  oder Lande-Faktor ist der Proportionalitätsfaktor zwischen dem Spin und dem magnetischen Moment eines Teilchens und  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton. Das effektive Feld  $H_A$  berücksichtigt die Anisotropie, welche die Spins entlang einer Richtung orientiert. Hier wird diese ohne Beschränkung der Allgemeinheit als  $z$ -Richtung angenommen. Die entgegengesetzte Orientierung der beiden Untergitter wird durch die Subtraktion der Summen aller Spinoperatoren von  $A$  und  $B$  berücksichtigt.

Die Magnon-Dispersionsrelation beschreibt den Zusammenhang zwischen den Frequenzen der Spinoszillation und den Wellenvektoren  $k$  eines quantisierten Spinsystems. Sie lässt sich im Rahmen der linearen Spin-Wellen-Theorie aus diesem Hamilton-Operator bestimmen. Hierfür gilt es, den  $\hat{H}$  zu diagonalisieren. Diese Herleitung findet sich beispielsweise in [Kit89] oder [Sto06].

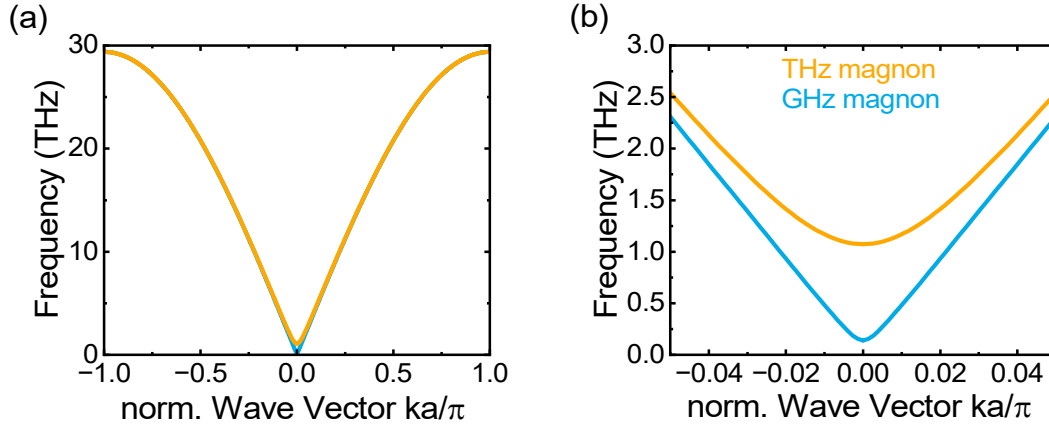
Im Gegensatz zu dem bisher betrachteten Fall besitzt Nickeloxid zwei Anisotropieachsen, siehe Kapitel 2.2. Daraus ergibt sich für die Dispersionsrelation folgende Formel [Rez19]

$$\omega_{\text{AFM,FM}}^2(k) = \gamma^2 \left[ H_{Az}^2 + 2H_E H_{Az} + H_{Ax} H_{Az} (1 \pm \gamma_k) + H_E^2 (1 - \gamma_k^2) \right]. \quad (2.2)$$

Hierbei ist  $\gamma = g\mu_B/\hbar$  das gyromagnetische Verhältnis mit dem gyromagnetischen Faktor  $g$  und dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum  $\hbar$ .  $H_{Az} = 11 \text{ mT}$  und  $H_{Ax} = 635 \text{ mT}$  sind die Anisotropiefelder und  $H_E = 968,4 \text{ T}$  ist das aus der Austauschwechselwirkung der nächsten Nachbarn resultierende Austauschfeld,

$\gamma_k = \cos(\pi k/2k_m)$  ist der Strukturfaktor unter Annahme einer sphärischen Brillouin-Zone mit  $k_m = \pi/a$  und dem Gitterparameter  $a$ .

Abbildung 2.1 (a) zeigt die Dispersionsrelation vom Zentrum bis zum Rand der Brillouin-Zone der zwei Magnonmoden am Beispiel von Nickeloxid. In den folgenden Kapiteln wird die hochfrequente Oszillation als THz-Magnon (orange) und die niederfrequente Mode (hellblau) GHz-Magnon bezeichnet. Die beiden Zweige unterscheiden sich in Gleichung 2.2 lediglich im dritten Term, welcher nur von den schwächeren Anisotropiefeldern und nicht von  $H_E$  abhängt. Da  $\gamma_k$  für große  $k_m$  gegen Null geht, sind die beiden Dispersionsrelationen insbesondere fern des Zentrums der Brillouin-Zone entartet.



**Abbildung 2.1.:** Dispersionsrelation der zwei Magnonmoden in Nickeloxid. In orange ist das THz- und in hellblau das GHz-Magnon dargestellt. (a) zeigt den Verlauf der Magnonfrequenzen in Abhängigkeit des normierten Wellenvektors  $k$  über die gesamte Brillouin-Zone und (b) einen Ausschnitt im Zentrum der Brillouin-Zone für kleine  $k \ll a/\pi$ . Die Formeln zur Bestimmung der Dispersionsrelation sind aus [Rez19] entnommen.

Für kleine Werte von  $k$  hebt sich diese Entartung auf und die beiden Magnonzweige spalten sich auf. Abbildung 2.1 (b) stellt den Bereich für kleine Wellenvektoren vergrößert dar. Für  $k = 0$  entsprechen die Frequenzen den der antiferromagnetischen Resonanzen (AFMR) von Nickeloxid mit

$$f_{\text{THz}} = \frac{1}{2\pi} \gamma \sqrt{2H_E(H_{Ax} + H_{Az})} = 1,07 \text{ THz} \quad (2.3)$$

$$f_{\text{GHz}} = \frac{1}{2\pi} \gamma \sqrt{2H_E H_{Az}} = 140 \text{ GHz} \quad (2.4)$$

[Rez19]. Die AFMR sind Resonanzen eines antiferromagnetischen Materials und beschreiben die Absorption elektromagnetischer Wellen bei den Resonanzfrequenzen. Diese Magnonmoden sind Gegenstand sämtlicher Untersuchungen, die in den Kapiteln 4 und 5 durchgeführt werden. Beide Moden lassen sich optisch anregen und detektieren [Sat10a]. Hierfür beschreibt Abschnitt 2.1.2 die Streuung von Licht an Magnonen.

### 2.1.2. Lichtstreuung an Magnonen und magneto-optische Effekte

Die formale Beschreibung der elastischen (Rayleigh-Streuung) und der inelastischen Lichtstreuung (Raman-Streuung) erfolgt über den Hamiltonian

$$\hat{H} = \sum_i \sum_j \epsilon_{ij}(\hat{\mathbf{S}}) E_i E_j^* \quad (2.5)$$

und ist angelehnt an [Bos17]. Hierbei ist  $\epsilon_{ij}$  der spinabhängige, dielektrische Tensor mit den kartesischen Indizes  $i$  und  $j$  und  $E$  ist die komplexe Komponente des elektrischen Felds des Lichts und  $E^*$  die komplex-konjugierte. Dieser komplexe Tensor beschreibt sowohl die Änderung der Eigenschaften des Lichts, herbeigeführt durch die Wechselwirkung mit einem magnetischen Material, als auch die Anregung von Magnonen. Um unterschiedliche Effekte klassifizieren zu können, kann  $\epsilon_{ij}$  nach dem Spinoperator in eine Potenzreihe entwickelt werden. Die ersten beiden Terme sind

$$\epsilon_{ij} = \epsilon_{ij,0} + \sum_\nu \sum_\gamma K_{ij}^\gamma \langle \hat{S}_\nu^\gamma \rangle + \sum_\nu \sum_{\gamma\delta} G_{ij}^{\gamma\delta} \langle \hat{S}_\nu^\gamma \rangle \langle \hat{S}_\nu^\delta \rangle \quad (2.6)$$

für ein Ion  $\nu$ . Der konstante erste Term beschreibt die Rayleigh-Lichtstreuung. Der Fokus liegt auf den Raman-Prozessen, weshalb dieser erste Term im Folgenden vernachlässigt wird. Der zweite Term beschreibt die lineare Wechselwirkung und entspricht dem inversen Faraday-Effekt, während der dritte die Wechselwirkung quadratisch im Spin den inversen Cotton-Mouton-Effekt beschreibt. Beide Terme beschreiben die Wechselwirkung zwischen Licht und einer einzelnen Magnonmode. Das entspricht dem optisch-induzierten Umklappen eines einzelnen Spins, der zur Erzeugung eines einzelnen Magnons führt, dies wird als Ein-Magnon-Streuung bezeichnet. Höhere Terme von  $\epsilon_{ij}$  beschreiben weitere Phänomene wie den Prozess der Zwei-Magnon-Streuung [Bos16]. Im Rahmen der nicht-dissipativen Näherung sind die Real- und Imaginärteile des hermiteschen, dielektrischen Tensors symmetrisch und antisymmetrisch unter Vertauschung der Indizes [Lan84]. Aus der Energieerhaltung unter Zeitumkehr folgt, dass die realen Komponenten gerade und die imaginären ungerade Funktionen des Spinoperators sind.

Die Analyse magnetischer Effekte lässt sich ebenfalls über den dielektrischen Tensor, Gleichung 2.6, beschreiben. Im Allgemeinen erfolgt die Bestimmung über die Änderung des Polarisationszustandes von Licht, welches mit der Probe wechselwirkt. So wirkt beispielsweise auf Licht, welches parallel zur Orientierung der Spins propagiert, eine magnetische zirkulare Doppelbrechung, welche gegeben ist über den Unterschied der Realteile der Brechungsindizes für rechts-  $n_r$  und links-zirkular polarisiertes  $n_l$  Licht

$$\Phi = \frac{\pi}{\lambda_0} \text{Re}(n_r - n_l) = \frac{\pi}{\lambda} \frac{\epsilon_{ij}^A}{\lambda_0 n} = \frac{\pi}{\lambda_0} \frac{K S^z}{n}, \quad (2.7)$$

mit der Vakuumwellenlänge des Lichts  $\lambda_0$ , dem Realteil des Brechungsindex  $n$  und den antisymmetrischen spinabhängigen Komponenten der asymmetrischen Anteile des dielektrischen Tensors  $\epsilon_{ij}^A$ . Sie können in Form der Spinkomponente  $S_z$  parallel zur Propagationsrichtung des Lichts und des Tensors  $K$  ausgedrückt werden. Die Geometrie, bei der die Orientierung der Spins parallel zur Propagationsrichtung des Lichts ist, wird ebenfalls als Faraday-Geometrie bezeichnet. Diese Interaktion nennt sich auch magnetische zirkulare Doppelbrechung.

Ist die Orientierung der Spins senkrecht zur Propagationsrichtung des Lichts, wird dies als Voigt-Geometrie bezeichnet. Die Änderung des Polarisationszustands erfolgt hier über die lineare magnetische Doppelbrechung, also über den Unterschied zwischen den Brechungsindizes für senkrechte  $n_{\parallel}$  und parallele  $n_{\perp}$  Polarisation des Lichts. Die Bezeichnung dieses Effekts ist Cotton-Mouton-Effekt und ist gegeben über

$$\Psi = \frac{\pi}{\lambda_0} \text{Re}(n_{\parallel} - n_{\perp}) = \frac{2\pi}{\lambda_0} \frac{\epsilon_{ij}^s}{n} = \frac{\pi}{\lambda_0} \frac{G(S^z)^2}{n}. \quad (2.8)$$

Hier steht  $\epsilon_{ij}^s$  für den symmetrischen Teil der spinabhängigen Komponenten des dielektrischen Tensors. Eine ausführliche Diskussion dieser Effekte findet sich in [Fer84, Kal15].

Das folgende Kapitel 2.1.3 liefert einen qualitativen Überblick über die resonante und nichtresonante Anregung von Magnonen am Beispiel von Nickeloxid.

### 2.1.3. Optische Erzeugung und Kontrolle kollektiver magnetischer Phänomene

Die Verwendung rein optischer Techniken zur Untersuchung und Kontrolle magnetischer Phänomene erlaubt den Zugang zu einem völlig neuen Zeit- und Frequenzbereich, der mit rein elektronischen Methoden nicht erschlossen werden kann. Dieser Abschnitt liefert einen Überblick über zwei unterschiedliche rein optische Anregemechanismen kohärenter Magnonen. Hierbei kann zwischen resonanten und nichtresonanten Prozessen unterschieden werden.

Die direkteste Option ist die ultraschnelle Kontrolle der Spins  $\mathbf{S}$  der Elektronen über einen optisch-induzierten Zeeman-Drehimpuls

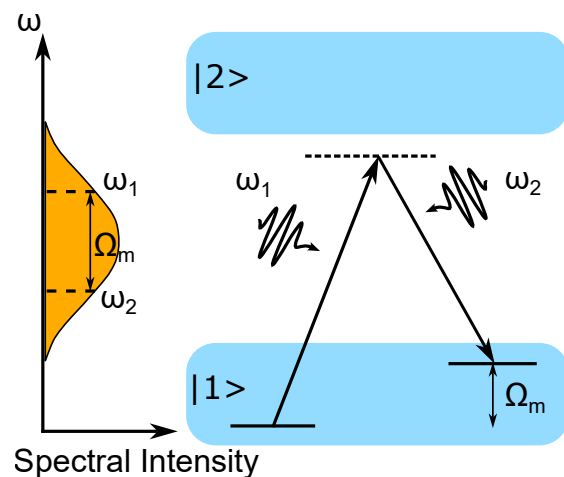
$$\mathbf{G} = \gamma \mathbf{S} \times \mathbf{B}(t). \quad (2.9)$$

Hierbei ist  $\gamma$  das gyromagnetische Verhältnis und  $\gamma \mathbf{S}$  entspricht einem magnetischen Moment.  $\mathbf{B}(t)$  ist das zeitabhängige magnetische Feld der Laserimpulse. Voraussetzung hierfür ist, dass die verwendete Laserquelle dieselbe Frequenz wie die des anzuregenden Magnons besitzt. Im Fall von antiferromagnetischen Materialien liegt diese oft im THz-Bereich [Sat10a, Bos16]. Die Erzeugung hochenergetischer Impulse in diesem Spektralbereich ist wesentlich aufwändiger als im Sichtbaren und nahen Infrarot, in denen es kommerzielle Systeme verschiedener Unternehmen gibt. Die erste Demonstration gelang Kampfrath et al. an dem Antiferromagneten NiO [Kam11].

Die indirekte Anregung erfolgt mit Strahlung im sichtbaren und nah-infraroten (VIS und NIR) Spektralbereich über einen Spin-Umkehr-Prozess, induziert durch das elektrische Feld des Lichts. Dies führt zu einer Änderung des Gesamtspins ( $\Delta S \neq 0$ ) und ist damit durch die Auswahlregeln elektronischer Dipolübergänge verboten, wodurch eine resonante Anregung nicht möglich ist. Im Gegensatz dazu ist die Anregung dieser Übergänge über den nicht-resonanten Prozess der Raman-Streuung möglich [Ell63]. Der Übertrag dieser Lichtstreuung mittels Spin-Bahn-Kopplung erlaubt die Erzeugung von Magnonen im Zentrum der Brillouin-Zone. Diese Art der Wechselwirkung wird auch als spontane Raman-Streuung bezeichnet.

Die Entwicklung der Lasertechnologie erlaubt die Anregung nicht nur über spontane, sondern ebenfalls über stimulierte spontane Emission [Eck62], welche in Abbildung 2.2 rechts skizziert ist. Hierbei wird ein Photon der Wellenlänge mit einer Frequenz  $\omega_1$  gestreut und regt ein Elektron auf ein virtuelles Niveau (gestrichelte Linie) an. Das System relaxiert über stimulierte Emission unter Verwendung eines zweiten Photons der Wellenlänge mit einer Frequenz von  $\omega_2 = \omega_1 - \Omega_m$ . Die Energiedifferenz entspricht dabei der Energie des erzeugten Magnons  $\Omega_m$ .

**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung der stimulierten Raman-Streuung. Der linke Teil zeigt in orange das Spektrum eines kurzen Laserimpulses, dessen Breite impulsive stimulierte Raman-Streuung erlaubt. Ein eintreffendes Photon  $\omega_1$  regt das System aus  $|1\rangle$  auf ein virtuelles Niveau an. Über stimulierte Emission durch ein zweites Photon  $\omega_2$  relaxiert das System, wodurch ein Magnon  $\Omega_m$  erzeugt wird. Die Abbildung ist angelehnt an [Kir10].

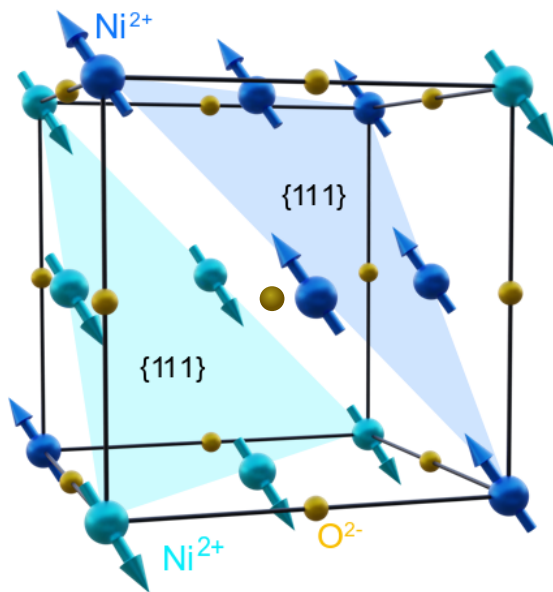


Ein limitierender Faktor der stimulierten Raman-Streuung ist die Wahl von  $\omega_2$ , die den Energiebereich für erzeugte Magnonen oder andere Anregungen einschränkt. Ultrakurze Laserimpulse bestehen aus einem breiten Spektrum unterschiedlicher Frequenzen, siehe Abbildung 2.2 links in orange und stellen dadurch ein Kontinuum an möglichen  $\omega_2$  bereit. Dies erlaubt theoretisch alle impulsiven stimulierten Raman-Streuprozesse, bei denen zu einem hochenergetischen Photon  $\omega_1$  ein  $\omega_2 = \omega_1 - \Omega_m$  enthalten ist. Dieser Prozess wird als impulsive stimulierte Raman-Streuung (ISRS) bezeichnet. Es gilt damit, je größer  $\Omega_m$ , desto breiter muss das Spektrum des Anregeimpulses sein. Dieses Kriterium lässt sich ebenfalls in der Zeitdomäne formulieren. Für eine kohärente Anregung muss der Anregeimpuls kürzer als die Periodendauer  $T_m = 1/\Omega_m$  sein [Kir10].

## 2.2. Optische und magnetische Eigenschaften von Nickeloxid

Aufgrund des einfachen Kristallgitters und der simplen Spinstruktur ist Nickeloxid (NiO) ein prototypischer antiferromagnetischer Isolator [Rez19]. Dieser zeichnet sich dadurch aus, dass er weder magnetoelektrisch noch multiferroisch ist. Dieses Kapitel beschreibt die magnetische und kristallografische Struktur von NiO und ist in Teilen angelehnt an [Tzs17] und [Rez19].

Nickeloxid besitzt in der paramagnetischen Phase oberhalb der Néel-Temperatur



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der Kristallstruktur von Nickeloxid. Die gelben Kugeln stellen die zweifach negativ geladenen Sauerstoffionen  $O^{2-}$  und die blauen beziehungsweise türkisen die zweifach positiv geladenen Nickelionen  $Ni^{2+}$  dar. Die Spins der  $Ni^{2+}$  ordnen sich in ferromagnetischen Schichten mit entgegengesetztem Vorzeichen (blau und türkise) an und bilden dadurch eine antiferromagnetische Struktur. Die Abbildung wurde entnommen und verändert aus [Gom21].

von  $T_N = 523$  K [Kon60] eine Natriumchlorid-Struktur mit der zugehörigen kristallographischen Symmetrie von  $m\bar{3}m$  und der energetisch niedrigste, erlaubte, elektrische Übergang liegt bei einer Energie von 4 eV [New59]. Dies entspricht einer Wellenlänge von  $\lambda = 310$  nm. Unterhalb von  $T_N$  bilden die  $Ni^{2+}$ -Ionen ferromagnetische Schichten, welche antiferromagnetisch aneinander koppeln und so eine wechselnde Spinorientierung aufweisen. Dies führt zu einer rhomboedrischen Verzerrung entlang der  $\langle 111 \rangle$ -Richtungen, welche einer Reduktion der Punktgruppe auf  $\bar{3}m$  entspricht. Abbildung 2.3 zeigt die Kristallstruktur von Nickeloxid mit den Spins der  $Ni^{2+}$ -Ionen. Die ferromagnetischen Schichten bilden sich je nach magnetischer Domäne entlang einer der  $\{111\}$ -Ebenen aus und sind je nach Vorzeichen in hell- oder dunkelblau dargestellt. Die für die Bildung der magnetischen Schichten verantwortliche Anisotropie ist entlang  $\langle 111 \rangle$  orientiert und zwingt die Spins über eine Reduktion der Punktsymmetrie in die Ebenen. Da die vier Orientierungen  $[111]$ ,  $[\bar{1}11]$ ,  $[1\bar{1}1]$ ,  $[\bar{1}\bar{1}1]$ , energetisch entartet sind, bilden sich vier sogenannte  $T_i$ -Domänen mit  $i \in \{0, 1, 2, 3\}$ . Jede dieser Domänen weist eine spezifische lineare Doppelbrechung auf, welche die Möglichkeit bietet, diese zu unterscheiden. Kapitel 2.2.2 beschreibt die in dieser Arbeit verwendete Technik.

Eine weitere senkrecht zu  $\langle 111 \rangle$  orientierte positive Anisotropie entlang von  $\langle 11\bar{2} \rangle$  forciert die Ausrichtung der  $\text{Ni}^{2+}$ -Ionen in drei Richtungen innerhalb der  $T$ -Domänen, welche als  $S_i$ -Domänen mit  $i \in \{1, 2, 3\}$  bezeichnet werden. Daraus ergeben sich insgesamt zwölf magnetische Domänen. Diese Domänen induzieren ebenfalls eine lineare Doppelbrechung, welche allerdings ungefähr zwei Größenordnungen kleiner ist als die der  $T$ -Domänen [Kon64]. Daher liegt der Fokus in den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten auf den  $T$ -Domänen.

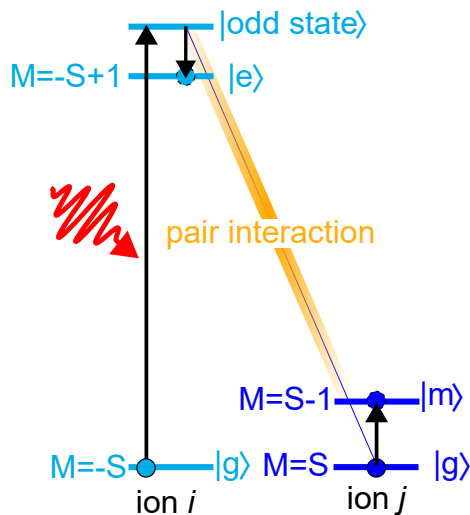
Mit Hilfe der Magnetisierungen  $\mathbf{M}_1(t)$  und  $\mathbf{M}_2(t)$  der zwei Untergitter lässt sich ein antiferromagnetischer Vektor  $\mathbf{L}(t) = \mathbf{M}_1(t) - \mathbf{M}_2(t)$  definieren. Das magnetische System besitzt zwei Magnonmoden, welche  $\mathbf{L}(t)$  modulieren. Bei der ersten oszillieren die Spins in den ferromagnetischen Schichten, diese sind in Abbildung 2.3 exemplarisch in blau dargestellt. Die Frequenz dieser Mode (GHz-Magnon) beträgt gemäß Gleichung 2.4  $f_{\text{GHz}} = 140$  GHz. Die zweite Mode (THz-Mode), bei der  $L(t)$  entlang des Normalenvektors  $\langle 111 \rangle$  oszilliert, hat nach Gleichung 2.4 eine Frequenz von  $f_{\text{THz}} = 1,07$  THz. Die Anregung über optische Methoden beider Moden wurde sowohl für den nichtresonanten [Sat10a] als auch den resonanten Fall [Kam11] demonstriert.

### 2.2.1. Exziton-Magnon-Übergang

Nickeloxid bietet neben der Anregung über ISRS, siehe Kapitel 2.1.3 und der resonanten Anregung [Kam11], die Möglichkeit, die hochfrequenten THz-Magnonen über einen gekoppelten Exziton-Magnon-Übergang (XM-Übergang) bei einer Wellenlänge von 1265 nm anzuregen [Bos21a]. Eine ausführliche Beschreibung und Charakterisierung dieses Mechanismus findet sich in [Bos21a, Bos21b]. Dieser Abschnitt orientiert sich an [Bos21a, Bos21b].

Der XM-Übergang nutzt den Umstand, dass Antiferromagneten zwei über die Austauschwechselwirkung gekoppelte Untergitter  $i$  und  $j$  besitzen [Tan65, Sel68, Sel67]. Dies erlaubt die optische Anregung eines normalerweise spin-verbotenen elektrischen Dipolübergangs (Exziton) mit einer Änderung des Spins von  $\Delta S_i = \pm 1$  über die synchrone Erzeugung eines Magnons mit  $\Delta S_j = \mp 1$ .

Abbildung 2.4 skizziert diesen Mechanismus. Ein Photon (rot) regt ein sich im Grundzustand  $|g\rangle$  befindendes Ion aus Untergitter  $i$  (hellblau) über einen elektronischen Dipolübergang in einen Zwischenzustand  $|\text{oddstate}\rangle$  mit entgegengesetzter Parität an. Da die Ionen beider Untergitter über die Austauschwechselwirkung verbunden sind, hat eine Änderung der elektronischen Besetzung von  $i$  einen Einfluss auf  $j$  (dunkelblau) im anderen Untergitter. Die Dauer dieser Interaktion wird hierbei über die Austauschwechselwirkung definiert. Anschließend geht  $j$  aus  $|g\rangle$  mit  $M = S$  in einen Zustand  $|m\rangle$  mit  $M = S - 1$  über. Da Magnonen Frenkel-Exzitonen sind, bei deren Erzeugung sich die  $z$ -Komponente des Spins um eine Einheit unterscheidet, führt die Population des Zustands  $|m\rangle$  zur Erzeugung eines Magnons [Sel68]. Aus der Spin-Erhaltung ( $\Delta S = 0$ ) folgt, dass der Endzustand  $|e\rangle$  von Ion  $i$  eine Änderung von  $\Delta S_i = +1$  aufweist.



**Abbildung 2.4:** Energieschema des Exziton-Magnon-Mechanismus zur Erzeugung kohärenter Magnonen. Ein eintreffendes Photon (rot) regt Ion  $i$  (hellblau) aus dem Grundzustand  $|g\rangle$  über einen elektrischen Dipolübergang in einen Zwischenzustand ungerader Parität an. Die Austauschwechselwirkung zwischen einem Ion  $i$  aus Untergitter und einem Ion  $j$  (dunkelblau) befördert  $j$  in den Zustand  $|m\rangle$  mit  $M = S - 1$  und erlaubt es  $i$  in den finalen Zustand  $|e\rangle$  mit  $M = S + 1$  überzugehen wobei parallel ein Magnon erzeugt wird.

Diese Kopplung ist im Absorptionsspektrum bis zu einer Temperatur von 100 K sichtbar und bietet eine effizientere Anregealternative zu ISRS. Kapitel 4.3 charakterisiert die AnregeWellenlängenabhängigkeit des XM-Übergangs und reproduziert damit die Ergebnisse aus [Bos21a]. Dies dient der Validierung des neu konzipierten experimentellen Aufbaus.

Für alle übrigen im Rahmen dieser Arbeit bei kryogenen Temperaturen durchgeführten Experimente dient der XM-Übergang als Anregemechanismus. Die Temperaturabhängigkeit der Amplitude der induzierten Dynamik der THz-Magnon-Mode zeigt das Verschwinden des XM-Übergangs bei einer Temperatur von ungefähr 100 K. Dieses Phänomen ist sowohl in den magneto-optischen Messungen (Abschnitt 4.5) als auch in der relativen, differentiellen Transmissionsänderung  $\Delta T/T$  (Abschnitt 5.3) sichtbar.

### 2.2.2. Optische Charakterisierung von Nickeloxid

Für magneto-optische Experimente ist die Kenntnis der optischen Absorption essentiell, um geeignete Spektralbereiche für die Anrege- und Abfrageimpulse wählen zu können. Die experimentelle Bestimmung der Transmissivität erfolgt unter Zuhilfenahme eines Charakterisierungsaufbaus, welcher im Rahmen der Bachelorarbeit von Felix Geist [Gei24] entwickelt wurde. Dieser ermöglicht die Messung der Transmissivität von Proben im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich. Die beiden wesentlichen Bestandteile sind ein für den Spektralbereich geeignetes Spektrometer und eine Weißlichtquelle. Das Siliziumspektrometer des Modells *ATP2400* des Unternehmens *Optosky*<sup>1</sup> besitzt einen Detektionsbereich von 180 nm bis 1100 nm. Eine ausführliche Beschreibung findet sich im zugehörigen Datenblatt [Inc15]. Die Lichtquelle ist eine Quartz-Wolfram-Halogenlampe und ist eine *SLS201L*-Lampe von

<sup>1</sup>Optosky (Xiamen) Photonics Inc.: <https://optosky.com/>

Thorlabs<sup>2</sup> mit einem Emissionsspektrum von 360 nm bis 2600 nm. Weitere Informationen finden sich in [Inc24].

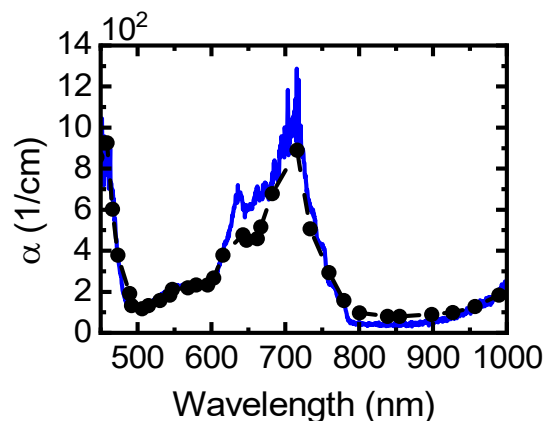
Die Bestimmung der relativen Transmission  $T(\lambda)$  erfolgt an einer 55  $\mu\text{m}$ -dicken Nickeloxid-Probe bei einer Temperatur von 10 K. Ein *MicrostatHe-R*-Flusskryostat des Unternehmens *Oxford Instruments*<sup>3</sup> gewährleistet die Messtemperatur der Probe. Die Berechnung des Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\lambda)$  erfolgt über das wie folgt formulierte Lambert-Beersche-Gesetz

$$I(d, \lambda) = I_0(\lambda) \cdot e^{-\alpha(\lambda) \cdot d}. \quad (2.10)$$

$d$  ist die Dicke der Probe und  $I_0(\lambda)$  die spektrale Intensität der Weißlichtquelle am Ort der Probe. Da es mit dem experimentellen Aufbau nicht möglich ist, die Reflexivität zu messen, wird deren Einfluss auf  $\alpha(\lambda)$  vernachlässigt. Messungen bei 77 K ergaben, dass sich die Reflexivität über einen Wellenlängenbereich von 410 nm bis 6  $\mu\text{m}$  konstant verhält [New59]. Aufgrund dessen vernachlässigt die folgende Betrachtung den Anteil der Reflexion.

Abbildung 2.5 zeigt in blau den so ermittelten Absorptionskoeffizienten in Abhängigkeit der Wellenlänge.

**Abbildung 2.5:** Die dunkelblaue Kurve zeigt den Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\lambda)$  von Nickeloxid bei einer Proben­temperatur von 10 K aufgetragen über der Wellenlänge. Die schwarze Kurve zeigt als Referenz  $\alpha(\lambda)$  aus [New59] aufgenommen bei 77 K.



Der schwarze Graph zeigt den Absorptionskoeffizienten aus [New59] gemessen an dünnen, mittels Halide-Zersetzung hergestellten NiO-Filmen bei einer Temperatur von 77 K. Die sehr gute Übereinstimmung beider Graphen, welche lediglich eine Abweichung bei etwa 650 nm aufweist, zeigt den marginalen Einfluss der Reflexivität auf die Transmissivität. Eine mögliche Ursache für diese Abweichung sind eine bei einer niedrigeren Temperatur von 10 K statt 77 K sichtbare Aufspaltung einzelner Absorptionslinien zwischen 600 nm und 700 nm. Weiter geht die transmittierte optische Leistung gegen Null. Dies kann zu einer Änderung der Form des Maximums führen. Die Absorptionsmaxima gehören zu unterschiedlichen verbotenen Intradband­übergängen der 3d-Orbitale der  $\text{Ni}^{2+}$ -Ionen. [New59] und [Fie01] liefern eine ausführliche Diskussion dieser Übergänge.

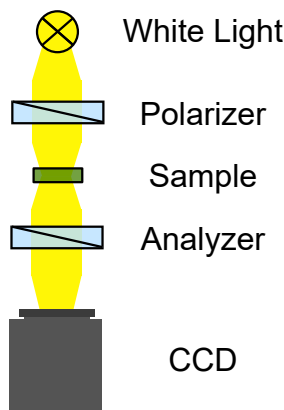
<sup>2</sup>Thorlabs Inc.: <https://www.thorlabs.com/>

<sup>3</sup>Oxford Instruments GmbH: <https://www.oxinst.com/>

Neben der Kenntnis der spektralen Absorptionseigenschaften der Probe ist die genaue Kenntnis der Struktur der magnetischen Domänen essentiell, um sicherzustellen, dass die zeitaufgelösten Messungen in einer einzelnen Domäne stattfinden. Eine Unterscheidung der Domänen ist bereits im vorherigen Abschnitt angesprochen worden. Mithilfe der durch die Domänen induzierten Doppelbrechung lassen sich diese optisch klar unterscheiden.

Eine Option für die qualitative Bestimmung der Doppelbrechung einer Probe ist ein sogenannter Cross-Nicol-Aufbau, wie er in [Sat10b] beschrieben wird. Abbildung 2.6 zeigt den schematischen Aufbau für ein solches Experiment. Diese sind eine Lichtquelle (White Light) einer Kamera (CCD) und zwei Polarisationsfiltern, die als Polarisator (Polarizer) und Analysator (Analyzer) dienen.

Der erste Polarisator polarisiert das einfallende Licht entlang seiner Polarisations-



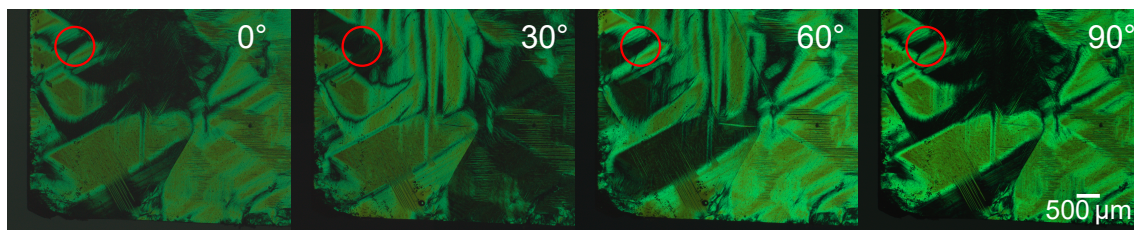
**Abbildung 2.6:** Schematische Darstellung eines Cross-Nicol-Systems. Ein Polarisator (Polarizer) polarisiert das Licht aus einer Weißlichtquelle (White Light), das anschließend die Probe (Sample) passiert. Der Analysator (Analyzer) filtert das transmittierte Licht, bevor es von einer CCD-Kamera (CCD) detektiert wird.

achse. Befindet sich der Analysator in einer Stellung senkrecht zur Polarisationsachse des Polarisators, kann kein Licht diese Kombination passieren und die CCD-Kamera detektiert keine Intensität, wie Licht, welches die Probe nicht transmittiert (Abbildung 2.7 unten) verdeutlicht. Bei der Untersuchung einer doppelbrechenden Probe rotiert diese die Polarisation des Lichts. Die Stärke der Rotation hängt dabei vom Winkel zwischen der Polarisationsachse des Lichts und der Hauptachse des Kristalls ab. In der gewählten Geometrie gilt: je heller die Stelle auf der Probe ist, desto größer ist die induzierte Polarisationsrotation.

Im Fall von NiO induzieren die einzelnen T-Domänen eine Polarisationsrotation über magnetische Doppelbrechung, die ihre Ursache in der rhomboedrischen Verzerrung hat. Die magnetische Doppelbrechung tritt zwischen den magnetischen Schichten in den  $\{111\}$ -Ebenen und den zugehörigen Normalenvektoren  $\langle 111 \rangle$  auf. Somit rotiert jede der vier Domänen die Polarisationsachse unterschiedlich stark, je nach Orientierung zwischen der Propagationsrichtung des Lichts und der Ebene der antiferromagnetischen Schichten.

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten NiO-Proben sind entlang der  $[111]$ -Ebene geschnitten. Das führt dazu, dass die Propagationsrichtung des Lichts für senkrechten Einfall parallel zu  $(111)$  ist und  $T_0$ -Domänen für jede Lichtpolarisation keine Rotation induzieren. Da alle anderen Domänen eine Winkelabhängigkeit in der In-

tensität der einfallenden Polarisation zeigen, lassen sich die  $T_0$ -Domänen von diesen klar unterscheiden.



**Abbildung 2.7.:** Polarisationsaufgelöste Mikroskopieaufnahmen gemessen mit einem Cross-Nicol-Schema. Der Polarisationswinkel (weiße Zahl) variiert von links nach rechts in Schritten von  $30^\circ$  zwischen  $0^\circ$  und  $90^\circ$ . Die Maßstabsleiste rechts entspricht einer Länge von  $500\ \mu\text{m}$ . Der rote Kreis markiert die Domäne in der die zeitaufgelösten optischen Experimente durchgeführt wurden.

Abbildung 2.7 zeigt eine  $50\ \mu\text{m}$ -dicke Nickeloxid-Probe, geschnitten entlang der (111)-Ebene, für verschiedene Einstellungen der Polarisator-Analysator-Kombination. Diese wird von rechts nach links in Schritten von  $30^\circ$  bis zu einem Winkel von  $90^\circ$  rotiert. Für eine bessere Übersicht stehen die Winkel, jeweils in der rechten Ecke in Weiß, bei den einzelnen Aufnahmen. Die Maßstabsleiste entspricht einer Distanz von  $500\ \mu\text{m}$ . Die Bilder entstanden mit einem modifizierten Lichtmikroskop des Typs *Axiolmager* des Unternehmens *Carl Zeiss AG*<sup>4</sup>. Das Mikroskop besitzt serienmäßig eine Lichtquelle, einen Analysator und eine Kamera. Als Polarisator dient ein Dünnschichtpolarisator, der zwischen Probe und Beleuchtung eingebracht wird. Die Einstellung der Orthogonalität der Polarisationsachsen zwischen Polarisator und Analysator erfolgt über das Minimieren der Strahlung, die an der Probe vorbeiläuft. Das Transmissionsfenster von NiO um eine Wellenlänge von  $550\ \text{nm}$ , siehe Abbildung 2.5, verursacht die grüne Färbung der Domänen, da NiO die roten und blauen Anteile deutlich stärker absorbiert. Der unterschiedliche Stärke der Polarisationsrotation der verschiedenen Domänen ist für die Polarisationswinkel klar zu erkennen. Die mit einem roten Kreis markierte  $T_0$ -Domäne lässt sich dadurch identifizieren, dass sie in allen Aufnahmen dunkel ist. Mit den Abmessungen von ungefähr  $500\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  eignet sie sich für die in den folgenden Kapiteln diskutierten Anrege-Abfrage-Experimenten.

<sup>4</sup>Carl Zeiss Microscopy Deutschland GmbH: <https://www.micro-shop.zeiss.com/de/de/>

### 3. Experimenteller Aufbau zur optischen Erzeugung und Kontrolle hochfrequenter Magnonen bei kryogenen Temperaturen

Dieses Kapitel stellt das Anrege-Abfrage-System mit einer zeitlichen Auflösung im Femtosekundenbereich vor, welches im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. Das System ist ein ideales Werkzeug zur Untersuchung ultraschneller magneto-optischer Phänomene fern des Gleichgewichts [Mai20, Sat10a]. Hierbei bringt der Anregeimpuls die Probe in den zu untersuchenden Zustand, welcher durch einen verzögerten Abfrageimpuls detektierbar ist. Die Demodulation der Anregeimpulse erlaubt den direkten Vergleich aufeinanderfolgender Abfrageimpulse der angeregten Probe und des Grundzustands und ermöglicht die Detektion kleinster Effekte. Die Variation der Zeitverzögerung zwischen beiden Laserimpulsen liefert die Femtosekundenzeitauflösung.

Der limitierende Faktor bezüglich der Zeitauflösung und damit einhergehend die höchstmögliche Detektionsfrequenz ist die spektrale Halbwertsbreite der Laserimpulse. Im Gegensatz dazu ist die spektrale Auflösung prinzipiell unabhängig von den Laserimpulsen und hängt lediglich vom verwendeten Detektor ab.

Aus den in Absatz 2.1.3 vorgestellten Anregemechanismen lassen sich unterschiedliche Anforderungen an das zeitaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskop ableiten. Kapitel 3.1 listet diese in Bezug auf die Laserimpulse für Anregung und Abfrage, die Umgebung der Probe sowie an die Detektion auf.

Das gesamte experimentelle System lässt sich in drei grundlegende Komponenten unterteilen: das Lasersystem, das optische System und die Detektion. Abschnitt 3.2 liefert einen kurzen Überblick über die einzelnen Teilbereiche und deren Verwendungszweck.

Das Lasersystem stellt die Femtosekunden-Anrege- und Abtastimpulse mit abstimmbaren Zentralwellenlängen bereit. Kapitel 3.3 beschreibt die Schlüsselkomponenten des optischen Systems in Form eines Yb:KGW-Festkörperlasers und der darauffolgenden optisch-parametrischen Verstärkung.

Der darauffolgende Abschnitt 3.4 liefert einen Überblick über das optische System und die drei Module: der optische Lichtzerhacker, verantwortlich für die Modulation der Amplitude der Anregeimpulse, eine variable Verzögerungsstrecke für die Änderung des zeitlichen Abstands zwischen den Anrege- und den Abtastimpulsen und einen Kryostaten für die Kontrolle der Proben temperatur. Ein in den Aufbau integrierbares Cross-Nicol-Schema ermöglicht die Positionierung der Strahlpositionen in Kombination mit dem Verfahren des Kryostaten.

Der Aufbau nutzt sowohl für magneto-optische als auch für Messungen der relativen Transmissionsänderung balancierte Detektionsschemata. In beiden Fällen erfolgt die Konversion der optischen in elektrische Signale mittels eines Paares balancierter Photodioden. Eine selbstgebaute Messelektronik streckt und verstärkt diese Spannungsimpulse. Die Bestimmung des induzierten Signals erfolgt über einen analogen Trägerfrequenzverstärker oder einen Digitalisierer. Kapitel 3.5 beschreibt die verwendeten Detektionsschemata, charakterisiert die Messelektronik, den Trägerfrequenzverstärker und den Digitalisierer. Weiter stellt es den selbstkonzipierten Messalgorithmus vor und charakterisiert und erläutert vorgenommene Optimierungsschritte.

### **3.1. Anforderungen an den experimentellen Aufbau**

Da ISRS ein nichtresonanter Prozess ist, sind hohe Anregefluenszen essentiell für eine effektive Erzeugung kohärenter Magnonen. Zur Vermeidung einer thermisch induzierten Zerstörung der Probe ist es essenziell, eine Anregewellenlänge im spektralen Transmissionsfenster des Festkörpers zu wählen. Daraus resultieren materialspezifische Spektralbereiche, welche für Anregeimpulse infrage kommen.

Aus dem Messschema lassen sich verschiedene Anforderungen an das System ableiten. Diese sind:

- Ultrakurze **Anregeimpulse** mit Spektren, mit geeigneter Zentralwellenlänge, welche die kohärente Anregung hochfrequenter Magnonen im Multi-THz-Spektralbereich ermöglichen. Zusätzlich ist eine hohe spektrale Durchstimmbarkeit über den sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich essentiell, um die optimalen Anregeimpulse für unterschiedliche Proben zu haben.
- Ultrakurze **Abtastimpulse** mit Impulsdauern im Femtosekundenbereich zur präzisen Dektektion ultraschneller Dynamiken von THz-Magnonen. Der zweite wichtige Faktor neben der Dauer ist die Möglichkeit, die Zentralwellenlänge über einen breiten Bereich durchzustimmen und damit die spektrale Abhängigkeit der induzierten Dynamiken zu untersuchen.

- **Femtosekunden-Zeitauflösung und Variation der Verzögerung:** Voraussetzung für die fs-Auflösung sind ultrakurze Laserimpulse, da deren Halbwertsbreite die zeitliche Auflösung limitiert. Eine variable Verzögerungsstrecke erlaubt die Variation des zeitlichen Abstands zwischen Abtast- und Anregeimpulsen. Darüber hinaus gibt sie die maximale Verzögerung im Bereich einiger ns vor.
- **Temperaturkontrolle:** Die Kontrolle der Proben temperatur über einen Bereich von wenigen Kelvin bis hin zu Raumtemperatur.
- **Detektion:** Effiziente Detektionsschemata, die kleinste Änderungen des Polarisationszustands des Abtaststrahls sowie die präzise Bestimmung induzierter Transmissions- oder Reflektionsänderungen auflösen können.

## 3.2. Aufbau zur zeitaufgelösten, magneto-optischen Ultrakurzzeitspektroskopie bei kryogenen Temperaturen

Dieses Kapitel stellt das konzipierte Anrege-Abfrage-Spektroskop vor. Das Gesamtsystem lässt sich in drei Module aufteilen, welche in Abbildung 3.1 dargestellt sind. Zunächst ist hier das Lasersystem, welches die Anrege- und Abfrageimpulse bereitstellt. Der optische Teil, siehe Kapitel 3.4 erfüllt mehrere Aufgaben. Diese sind die Interaktion der Impulse mit der Probe, die Kontrolle der Proben temperatur sowie die Variation der Zeitverzögerung zwischen Anregung und Abtasten und der Positionierung der Anrege- und Abtaststrahlen auf der Probe. Das Modul Detektion übernimmt sowohl die optische Detektion als auch die elektrische und digitale Weiterverarbeitung der induzierten Spannungen sowie die Bestimmung der induzierten Effekte.

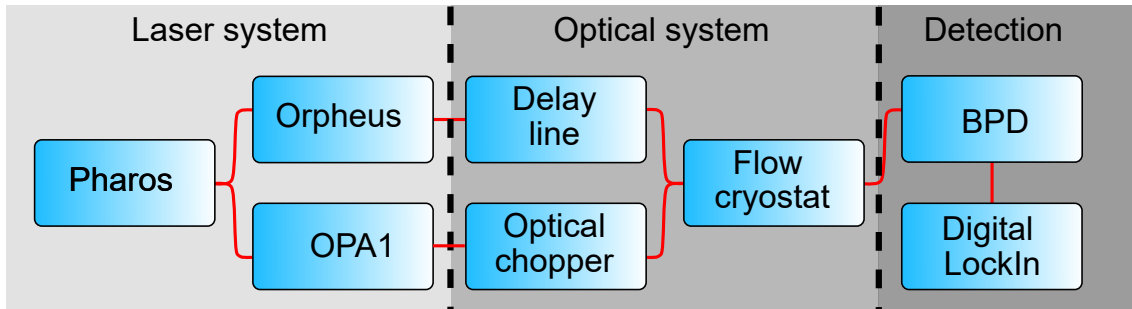
Das Herzstück des hybriden Lasersystems besteht aus dem kommerziell erhältlichen *PHAROS PH2* des Unternehmens *LIGHTCONVERSION*<sup>1</sup>, der als Laserquelle dient. Seine Ausgangsimpulse mit Impulsenergien bis zu 400  $\mu$ J werden auf 2 Pfade aufgeteilt. Der erste treibt ein kommerzielles, zweistufiges OPA-System zur Erzeugung ultrakurzer Abtastimpulse im nahen Infrarot. Der zweite Pfad unterteilt sich ein weiteres Mal. Einer der beiden Zweige beinhaltet eine selbstgebaute OPA-Stufe, welche zur Erzeugung der Anregeimpulse im nahen Infrarot dient. Der andere steht zur direkten Verfügung. Eine genauere Beschreibung erfolgt in Kapitel 3.3.

Die Abtastimpulse passieren eine variable Verzögerungsstrecke (engl.: Delay line), die für die Änderung der zeitlichen Verzögerung zwischen Anrege- und Abtastimpulsen zuständig ist. Ein optischer Lichtzerhacker (engl.: Optical chopper) demoduliert die Frequenz der Anregeimpulse im kHz-Taktbereich. Ein Flusskryostat (engl.: Flow

---

<sup>1</sup>Lightconversion: <https://lightcon.com/>

cryostat) des Unternehmens *Cryovac*<sup>2</sup> reguliert die Temperatur der Probe, auf die beide Impulszüge in nichtkollinearer Geometrie fokussiert werden.



**Abbildung 3.1.:** Schematische Skizze der einzelnen Komponenten des magneto-optischen Anrege-Abfrage-Spektroskops. Die drei Komponenten des Lasersystems sind ein *PHAROS*-Laser von *LIGHTCONVERSION*, sowie zwei optisch-parametrische Verstärker, einem Kommerziellen (*ORPHEUS*) und einem selbstgebauten (*OPA1*). Diese dienen zur Erzeugung der Abtast- und der Anrege-Impulse. Das optische System besteht aus einem optischen Lichtzerhacker (Optical chopper) einer variablen Verzögerungsstrecke (Delay line) und einem Flusskryostaten (Flow cryostat). Ein balancierter Photodetektor (BPD) misst, je nach Konfiguration, die Intensitäts- oder Polarisationsänderung des Abtaststrahls.

Der dritte Bereich spiegelt die Detektion wider. Ein Paar balancierter Photodioden ermöglicht die Detektion kleinster Polarisations- und Transmissionsänderungen. Dieser Abschnitt setzt sich aus dem balancierten Photodetektor (BPD) und dem Trägerfrequenzverstärker (Lock-In) oder dem digitalen Boxcar-Verstärker zusammen. Sie dienen dazu, die optischen Impulse in elektronische Signale zu übersetzen und zu formen. Kapitel 3.5 beschreibt die beiden balancierten Messgeometrien.

### 3.3. Drei-Farben-Lasersystem

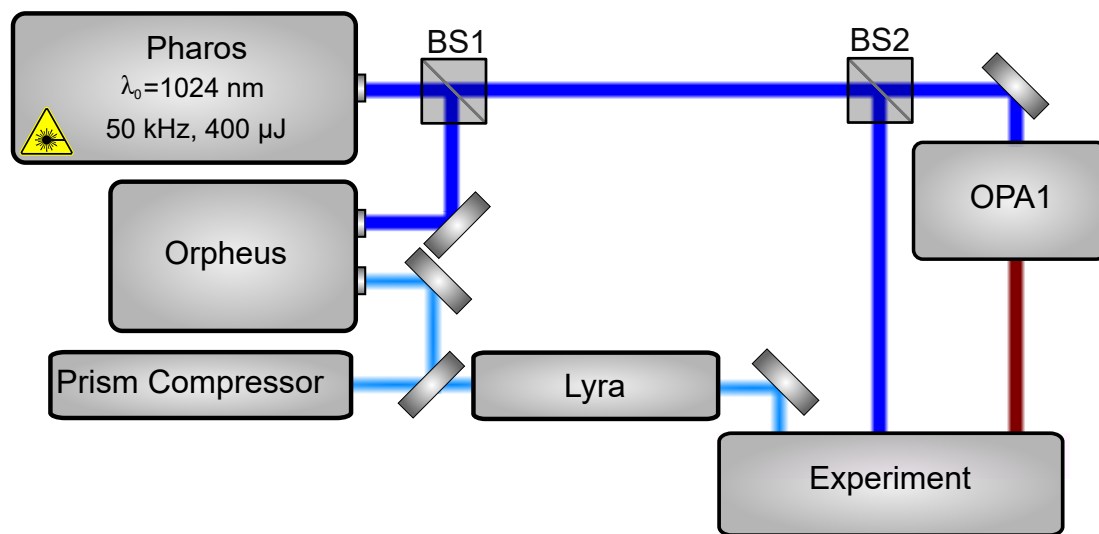
Das Lasersystem besteht, wie in Abbildung 3.2, im Wesentlichen aus drei Bestandteilen: der Laserquelle in Form eines kommerziellen, mit Ytterbium dotierten Kalium-Gadolinium-Wolframat-Verstärkers (*PHAROS*) und zwei optisch-parametrischen Verstärkern (*ORPHEUS* & *OPA1*).

Der *PHAROS* emittiert Strahlung der Wellenlänge 1024 nm mit einer Impulsenergie von 400  $\mu\text{J}$ , einer Repetitionsrate von 50 kHz und einer mittleren Leistung von 20 W. Abschnitt 3.3.1 liefert eine ausführlichere Charakterisierung des *PHAROS*. Das hier erzeugte Licht liefert die Leistung für die drei Arme des Systems. Ein erster Strahlteiler (BS1) reflektiert 280  $\mu\text{J}$ , die als Pumpleistung für den *ORPHEUS-F* dienen.

---

<sup>2</sup>CRYOVAC GmbH & Co. KG: <https://www.cryovac.de/1/>

Dieser besteht aus dem zweistufigen Verstärker mit einem Prismenkompressor, der je nach Konfiguration Strahlung zwischen 630 nm und 2700 nm emittiert. Für die weitere Modifikation stehen ein Prismenkompressor zur zeitlichen Kompression und eine Summenfrequenzeinheit (Lyra), die den Spektralbereich zu kürzeren Wellenlängen bis 315 nm erweitert. Kapitel 3.3.2 enthält eine ausführlichere Charakterisierung. Ein zweiter Strahlteiler (BS2) trennt die transmittierten 120  $\mu\text{J}$  in 30  $\mu\text{J}$ , die direkt zur Verfügung stehen, und 90  $\mu\text{J}$ , die als Pumpstrahlung für den zweiten optisch-parametrischen Verstärker (OPA1) genutzt werden. Dieser emittiert je nach Konfiguration Licht zwischen 1100 und 1400 nm, siehe Abschnitt 3.3.3. Die hohe spektrale Variabilität, die kurzen Impulsdauern, die mittleren Leistungen der drei Arme und die Option, alle sowohl als Anrege- als auch Abtastimpulse zu nutzen, bieten eine hohe Flexibilität des Systems.



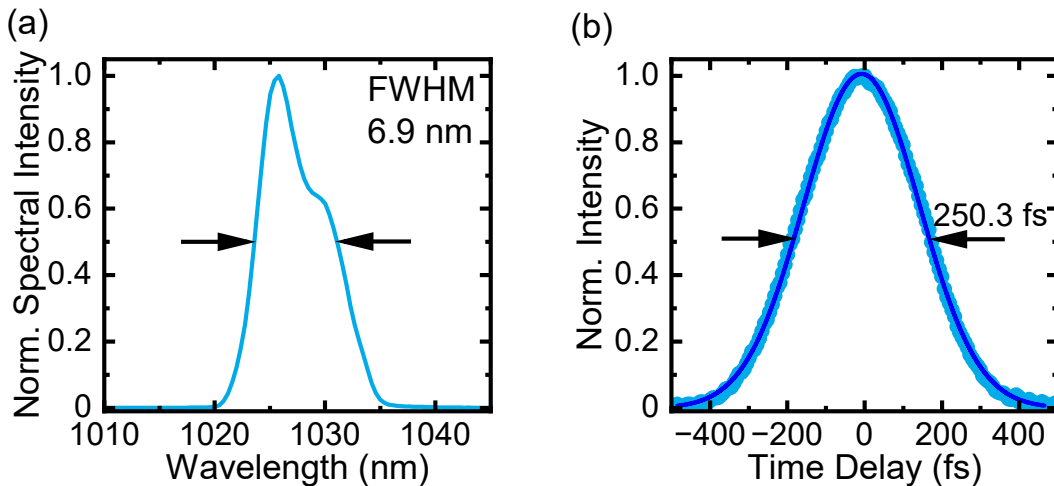
**Abbildung 3.2.:** Schematische Skizze des Drei-Farben-Lasersystems. Ein Strahlteiler (BS1) teilt die Pumpimpulse des kommerziellen Yb:KGW-Laser *PHAROS* auf. Dieser reflektiert 280  $\mu\text{J}$ , die als Pumpimpulse für den kommerziellen optisch-parametrischen Verstärker (*ORPHEUS*) dienen. Ein zweiter Strahlteiler (BS2) trennt den transmittierten Strahl in 30  $\mu\text{J}$ , die zur freien Verfügung stehen. Der andere Teil versorgt einen zweiten OPA (*OPA1*) mit der benötigten Pumpleistung. Je nach Konfiguration komprimiert eine Zwei-Prismen-Sequenz (*Prism Compressor*) die Ausgangsimpulse. Optional verdoppelt eine Summenfrequenzeinheit (*Lyra*) die emittierte Strahlung.

### 3.3.1. Regenerativer Hochleistungs-Yb:KGW-Verstärker

Wie bereits erwähnt, dient das kommerzielle Lasersystem *PHAROS PH2* des Unternehmens *LIGHTCONVERSION* als Laserquelle. Dieses System liefert Femtosekundenlaserimpulse mit einer Zentralwellenlänge von 1024 nm und einer mittleren optischen Leistung von 20 W, bei variabler Repetitionsrate im Bereich von 1 kHz bis 1 MHz.

Das aktive Medium ist ein mit Ytterbium dotierter Kalium-Gadolinium-Wolframat-Kristall (Yb:KGW-Kristall). Der Null-Phononenübergang (engl.: Zero-Phonon Transition) der Yb-Ionen liegt bei 980 nm, was in Verbindung mit einem Laserübergang bei 1024 nm zu einem geringen Quantendefekt führt. Der damit einhergehende geringe thermische Eintrag resultiert in der Vermeidung einer thermischen Linse und einer exzellenten Energieskalierbarkeit in den Multi-mJ-Bereich. Darüber hinaus zeichnen sich Yb-dotierte Lasermedien durch die Verfügbarkeit von kommerziell erhältlichen InGaAs-Pumpdioden aus [Zao06].

Innerhalb des Oszillators gewährleistet die Kerr-Linsen-Modenkopplung Femtosekundenimpulszüge mit einer Repetitionsrate von 76 MHz. Ein nachfolgender regenerativer Verstärker, ebenfalls mit einem diodengepumpten Yb:KGW-Kristall als Verstärkermedium, erhöht die Emissionsleistung auf bis zu 20 W. Um die damit verbundenen sehr hohen Spitzenintensitäten zu erreichen, wird das Verfahren der Chirped Pulse Amplification (CPA) verwendet [Str85]. Dieses Prinzip beruht auf der geeigneten Streckung der Eingangsimpulse auf Dauern von einigen Pikosekunden. Das vermeidet parasitäre Nichtlinearitäten während des Verstärkungsprozesses und maximiert die Verstärkungseffizienz. Der anschließende Kompressor verringert die Impulsdauer auf 257 fs, was dem Bandbreitenlimit der Yb:KGW-Emission entspricht. Eine Pockelszelle dient als aktives Schaltelement des regenerativen Verstärkers. Sie selektiert nicht nur, welche Impulse im Resonator Verstärkung erfahren, sondern reguliert ebenfalls die Auskopplung der verstärkten Impulse. Die Selektion erfolgt in Abhängigkeit von der angelegten Spannung und beruht auf dem Pockels-effekt.



**Abbildung 3.3.:** (a) zeigt das normierte Intensitätsspektrum des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers (*PHAROS*) bei einer Repetitionsrate von 50 kHz in Abhängigkeit der Wellenlänge. Die Zentralwellenlänge des Spektrums liegt bei 1026 nm mit einer vollen Halbwertsbreite von 6,9 nm. (b) stellt in hellblau die normierte Autokorrelation dar. Die über einen Gauß-Fit (dunkelblau) ermittelte Impulsdauer beträgt  $250,3 \pm 0,3$  fs.

Eine zweite Pockelszelle nach dem regenerativen Verstärker erlaubt eine weitere variable Reduktion der Repetitionsrate im Bereich von 1 MHz bis zum Einzelschussbetrieb, ohne den Betrieb des regenerativen Verstärkers zu ändern. Weitere technische Aspekte finden sich im zugehörigen Handbuch [LIG21].

Abbildung 3.3 (a) zeigt das normierte Emissionsspektrum des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers bei einer Repetitionsrate von 50 kHz. Die Zentralwellenlänge liegt bei 1026 nm und das Spektrum besitzt eine volle Halbwertsbreite (engl.: full-width half maximum; FWHM) von 6,9 nm. Eine Autokorrelationsmessung dient zur Bestimmung der Impulsdauer, diese ist in hellblau in Abbildung 3.3 (b) dargestellt. Die dunkelblaue Kurve zeigt die Kurvenanpassung mit der Gauß-Funktion

$$F(t) = a \cdot e^{-((t-b)/c)^2}. \quad (3.1)$$

Die Anpassungsparameter sind die Amplitude  $a$ , eine horizontale Verschiebung  $b$  und die Standardabweichung  $c$ . Die Impulsdauer und damit die volle Halbwertsbreite berechnet sich über  $FWHM = \sqrt{2 \ln(2)} \cdot c = 250,3 \pm 0,3$  fs. Aus der Repetitionsrate von 50 kHz folgt in Kombination mit der mittleren Leistung eine Impulsenergie von 400  $\mu$ J. Diese liefert die Anregeleistung für die zwei optisch-parametrischen Verstärker und stellt einen Teil der fundamentalen Laserstrahlung zur Verfügung.

Der zugrundeliegende nichtlineare Prozess der optisch-parametrischen Verstärkung ist der gleichnamige Prozess zweiter Ordnung. Hierbei sind drei unterschiedliche Impulse/Strahlen involviert. Diese werden als Signal-, Pump- und Idlerstrahl mit den zugehörigen Kreisfrequenzen  $\omega_s$ ,  $\omega_p$  und  $\omega_i$  bezeichnet. Die Pumpimpulse liefern die Energie für den Prozess und wechselwirken in nichtlinearen Medien mit den Signalimpulsen. Das Dreiwellenmischen führt dazu, dass die beteiligten Impulse Energie gemäß der Manley-Rowe-Beziehung  $dI/dz = 0$  austauschen können. Daraus ergibt sich

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i. \quad (3.2)$$

Neben der Energie- muss ebenfalls die Impulserhaltung

$$k_p = k_s + k_i \quad (3.3)$$

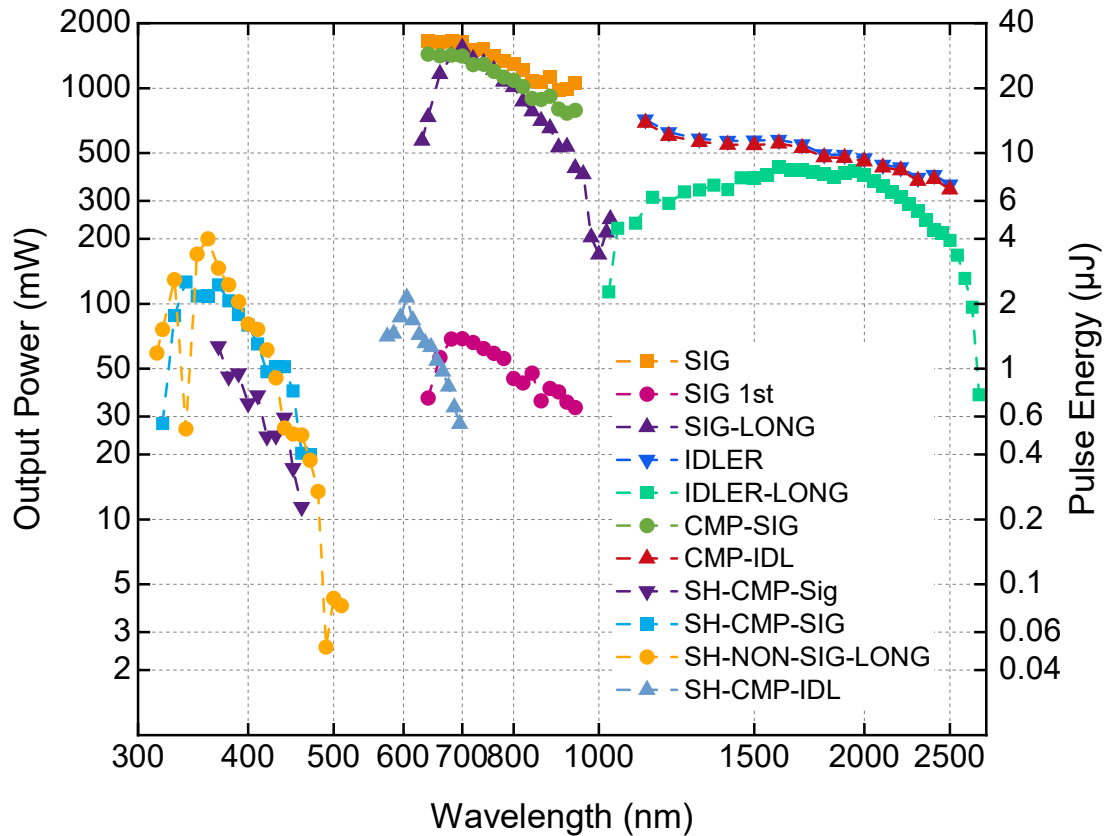
erfüllt sein, mit den Wellenvektoren  $k_i$  der einzelnen Strahlen. Da in isotropen Medien diese Bedingung aufgrund unterschiedlicher Brechungsindizes nie erfüllt sein kann, benötigt man anisotrope Medien. Diese erlauben es, über die Winkel zwischen Signal- und Idlerstrahl und den Achsen des nichtlinearen Kristalls die Frequenzen  $\omega_i$  und  $\omega_s$  auszuwählen.

Die Durchstimmbarkeit der Signalimpulse entstammt einem breiten Signalspektrum in Kombination mit der Impulserhaltung aus Gleichung 3.3. Eine ausführliche Diskussion optisch-parametrischer Verstärker liefert [Cer03] und [Bä22].

Die nächsten beiden Kapitel diskutieren die beiden OPAs.

### 3.3.2. Zweistufiger optisch-parametrischer Verstärker Orpheus

Der *ORPHEUS-F* besteht, wie in Abbildung 3.2 dargestellt, aus dem eigentlichen optisch-parametrischen Verstärker, einem Prismenkompressor (Prism Compressor) und einer Summenfrequenzeinheit (*Lyra*). Das Handbuch [LIG20b] gibt eine ausführliche Beschreibung und Charakterisierung des Systems.



**Abbildung 3.4.:** Emissionsleistungen verschiedener Konfigurationen des *Orpheus* aufgetragen über der Wellenlänge. Die rechte Achse zeigt die zugehörige Impulsenergie bei einer Repetitionsrate von 50 kHz. Die Abkürzungen werden im Text eingeführt.

Der *ORPHEUS-F* ist ein zweistufiger optisch-parametrischer Verstärker. Vorbereitend für die erste OPA-Stufe in nichtkollinearer Geometrie erzeugt ein Teil der Anregeleistung die Signalimpulse durch Weißlichtgeneration und ein anderer die Pumpimpulse durch Frequenzverdopplung auf 513 nm. Die mit der ersten Stufe erreichbaren Emissionsleistungen beziehungsweise Impulsenergien des Signals liegen im Bereich von 0,6 – 1,4 µJ und sind in Abbildung 3.4 in Magenta in Abhängigkeit der Zentralwellenlänge dargestellt.

Im Gegensatz zur ersten erfolgt die Verstärkung in der zweiten Stufe in kollinear Geometrie. Hierfür werden Signal- und Idlerimpulse mit den Pumpimpulsen in einen weiteren Kristall fokussiert. Ein Wellenlängenseparator trennt Idler- und Signalstrahlung.

Die Propagation durch normal-dispersive Medien führt zur Kompression der Idler-Impulse, da die OPA-Prozesse ihnen eine positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion aufprägen. Im nahinfraroten Spektralbereich der Signalimpulse zeigt sich eine optimale Kompression durch die Verwendung eines Prismenkompressors. Typische Impulsdauern der komprimierten Signalimpulse sind etwa 49 fs bei einer Wellenlänge von 700 nm.

Mit Idler- und Signalimpulsen lässt sich ein Spektralbereich von 640 nm bis 2,7  $\mu\text{m}$  abdecken. Abbildung 3.4 zeigt die dazugehörigen Emissionsleistungen in logarithmischer Skala. Hierbei sind die komprimierten Daten mit CMP gekennzeichnet.

Die Summenfrequenzeinheit in Form der *Lyra* erweitert den abdeckbaren Spektralbereich bis zu einer minimalen Wellenlänge von 315 nm. Sie besteht aus einem nicht-linearen Medium, montiert auf einem motorisierten, rotierbaren Halter. Dies erlaubt die bestmögliche Phasenanpassung für die unterschiedlichen Laserimpulse des OPAs. Die optischen Leistungen für die unterschiedlichen Kurven sind als orangene Punkte, hellblaue Quadrate und lila Dreiecke dargestellt. Das zugehörige Kürzel in der Legende von Abbildung 3.4 ist SH.

Aufgrund der verschiedenen Phasenanpassungsbedingungen optisch-parametrischer Prozesse unterscheiden sich die Polarisierungen je nach Konfiguration. Signal, Idler, Signal long, der komprimierte Idler und der komprimierte Signal haben jeweils vertikale Polarisation, während der spektral breite Idlerstrahl (IDLER-LONG) horizontal polarisiert ist. Im Gegensatz dazu ist die Polarisationsrichtung aller frequenzverdoppelten Impulszüge horizontal.

Der folgende Abschnitt gibt eine kurze Beschreibung des selbstkonzipierten optisch-parametrischen Verstärkers (OPA1) und liefert die wichtigsten Eckdaten.

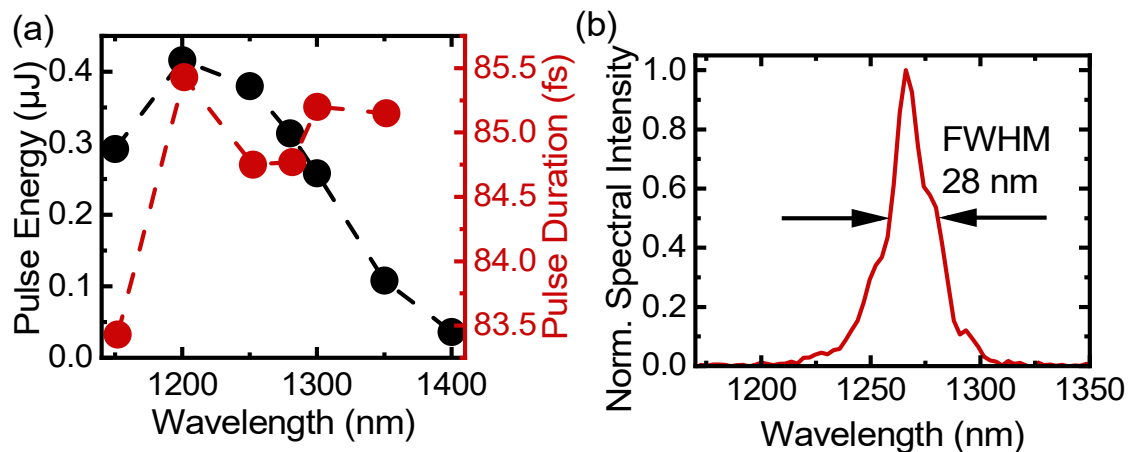
### 3.3.3. Selbstkonzipierter einstufiger optisch-parametrischer Verstärker

Dieser einstufige optisch-parametrische Verstärker stellt die Anregeimpulse im Bereich von 1100 nm bis 1400 nm bereit. Die Konzeption fand in Zusammenarbeit mit Julian Bär statt, und eine ausführliche Charakterisierung findet sich in [Bä22]. Die maximale mittlere Leistung liegt bei einer Wellenlänge von 1200 nm mit 22,5 mW und entspricht einer Impulsenergie von 0,45  $\mu\text{J}$ .

Analog zu OPA1 (Kapitel 3.3.2) dient die frequenzverdoppelte Strahlung des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers als Pumpquelle für den Dreiwellenmischprozess. Das verwendete nichtlineare Medium ist ein 2 mm-dicker Beta-Bariumboratkristall (BBO) mit einem Phasenanpassungswinkel von  $\Theta = 23,4^\circ$ . Die verwendeten Pumpimpulse besitzen eine Energie von 72  $\mu\text{J}$ . Die Impulsenergie der frequenzverdoppelten Strahlung beträgt 24  $\mu\text{J}$ . Als Signaleingangsimpuls kommt ein Kontinuum

von 1100 nm bis 1800 nm zum Einsatz. Dieses wird in einem 1 cm langen Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall ebenfalls aus Strahlung des regenerativen Verstärkers mit einer Impulsenergie von  $1,2 \mu\text{J}$  erzeugt. Der parametrische Prozess findet in einem zweiten BBO mit einer Dicke von 3 mm und einem Phasenanpassungswinkel von  $\Theta = 36^\circ$  statt.

Je nach Konfiguration lässt sich die Zentralwellenlänge der Signalimpulse durch die Rotation um die optische Achse des zweiten BBOs kontinuierlich durchstimmen, ohne den Emissionswinkel zu ändern. Dies erlaubt die Variation, ohne die Position der Impulse auf der Probe zu ändern und dadurch die Überlappung von Anregungs- und Abtaststrahlen zu ändern. Eine ausführliche Beschreibung und Charakterisierung dieses Prinzips findet sich in [Bä22]. Abbildung 3.5 (a) zeigt in schwarz die optischen Leistungen und in rot die zugehörigen Impulsdauern dieser Einstellung in Abhängigkeit der Emissionswellenlänge. Die maximale Leistung, gemessen mit einem thermischen Leistungsmessgerät bei 1200 nm beträgt  $22,5 \text{ mW}$  und fällt für längere Wellenlängen bis  $3,2 \text{ mW}$  ab.



**Abbildung 3.5.:** (a) Emissionsleistungen aufgetragen über die Zentralwellenlänge in schwarz und in rot die zugehörigen Impulsdauern. (b) zeigt die normierte spektrale Intensität für eine Zentralwellenlänge von 1265 nm. Die volle Halbwertsbreite beträgt 28 nm.

Im Gegensatz dazu ist die Impulsdauer nahezu unabhängig von der eingestellten Wellenlänge. Sie variiert für alle Zentralwellenlängen lediglich um 2,4 % zwischen 83 fs und 85 fs. Der kommerzielle Autokorrelator *GECCO* des Unternehmens *LIGHT-CONVERSION*<sup>3</sup> diente der Bestimmung aller Impulsdauern. [LIG20a] liefert eine ausführliche Beschreibung.

Alternativ besteht die Option, den OPA auf maximale Impulsenergie bei einer bestimmten Zentralwellenlänge zu optimieren und hierfür die spektrale Durchstimmbarkeit zu reduzieren. Abbildung 3.5 (b) zeigt exemplarisch ein Spektrum mit einer Zentralwellenlänge von 1265 nm. In dieser Konfiguration beträgt die maximale Impulsenergie  $530 \text{ nJ}$  und ist damit 20,5 % höher als in der durchstimmbaren Konfigu-

<sup>3</sup>Lightconversion: <https://lightcon.com/>

ration für  $\lambda_c = 1250$  nm bei einer Impulsdauer von 108 fs.

Das folgende Kapitel beschreibt das optische System, welches zwei der drei zur Verfügung stehenden Impulszüge derart präpariert, dass sie als Anrege- oder Abfrageimpulse für stroboskopische Experimente verwendet werden können.

### 3.4. Bestandteile des optischen Systems

Das Modul optisches System präpariert die Impulszüge aus dem Lasersystem, führt diese zur zu untersuchenden Probe, kontrolliert die Temperatur des Experiments und gewährleistet die Positionierung der Laserimpulse auf der Probe. Die drei zur Verfügung stehenden Impulszüge sind der fundamentale Ausgang des regenerativen Verstärkers, die Emission des selbstkonzipierten OPAs (OPA1) und die Ausgangsimpulse des *ORPHEUS-F*. Die Zentralwellenlänge des *PHAROS-PH2* beträgt 1026 nm bei einer Impulsenergie von 90  $\mu$ J. Die Emission des OPA1 mit Wellenlängen von 1150 nm bis 1400 nm besitzt Impulsenergien von einigen 100 nJ. Der *ORPHEUS-F* deckt einen Spektralbereich von 315 nm bis 2700 nm ab. Die maximal mögliche Impulsenergie ist 33,2  $\mu$ J. Abbildung 3.6 zeigt den schematischen Aufbau des optischen Systems, bestehend aus einer variablen Verzögerungsstrecke (engl.: Delay Line), variablen Abschwächern (AT) einem Lichtzerhacker (OC) und einem Flusskryostaten (engl.: Flow Cryostat).

Als variable Verzögerungsstrecke dient das Modell *M-531.DD1* des Unternehmens *Physikalische Instrumente*<sup>4</sup>. Die maximale Verfahrstrecke ist 306 mm bei einer minimalen Schrittweite von 0,2  $\mu$ m und einer maximalen Geschwindigkeit von 50  $\frac{\text{mm}}{\text{s}}$ . Die hohe Belastbarkeit von 1000 N erlaubt die Montage eines Retroreflektors von *New Spectra-Physics* mit einem Durchmesser von 63,5 mm auf der Verzögerungsstrecke. Da die auslaufenden Strahlen bei Retroreflektoren parallel zu den einfallenden sind, reduziert ihre Verwendung die Anzahl der Justagefreiheitsgrade und erhöht damit die Robustheit des Systems. Der große Durchmesser des Reflektors erlaubt es, in Kombination mit einem zweiten Retroreflektor, den Strahl zweimal über die Verzögerungsstrecke zu führen. Die so erreichbare maximale Weglängenvariation von 1202,4 mm entspricht einer Zeitverzögerung von 4 ns bei einer effektiven minimalen Schrittweite von 0,8  $\mu$ m und damit einer minimalen Variation der Zeitverzögerung von 2,7 fs. Die große Verfahrstrecke kann die mit der Wahl der Emissionswellenlänge des *Orpheus-F* verbundenen Distanzänderungen kompensieren oder zumindest die Konzeption von Kompensationsstrecken erleichtern. Dies erlaubt eine flexible Änderung der Zeitverzögerung.

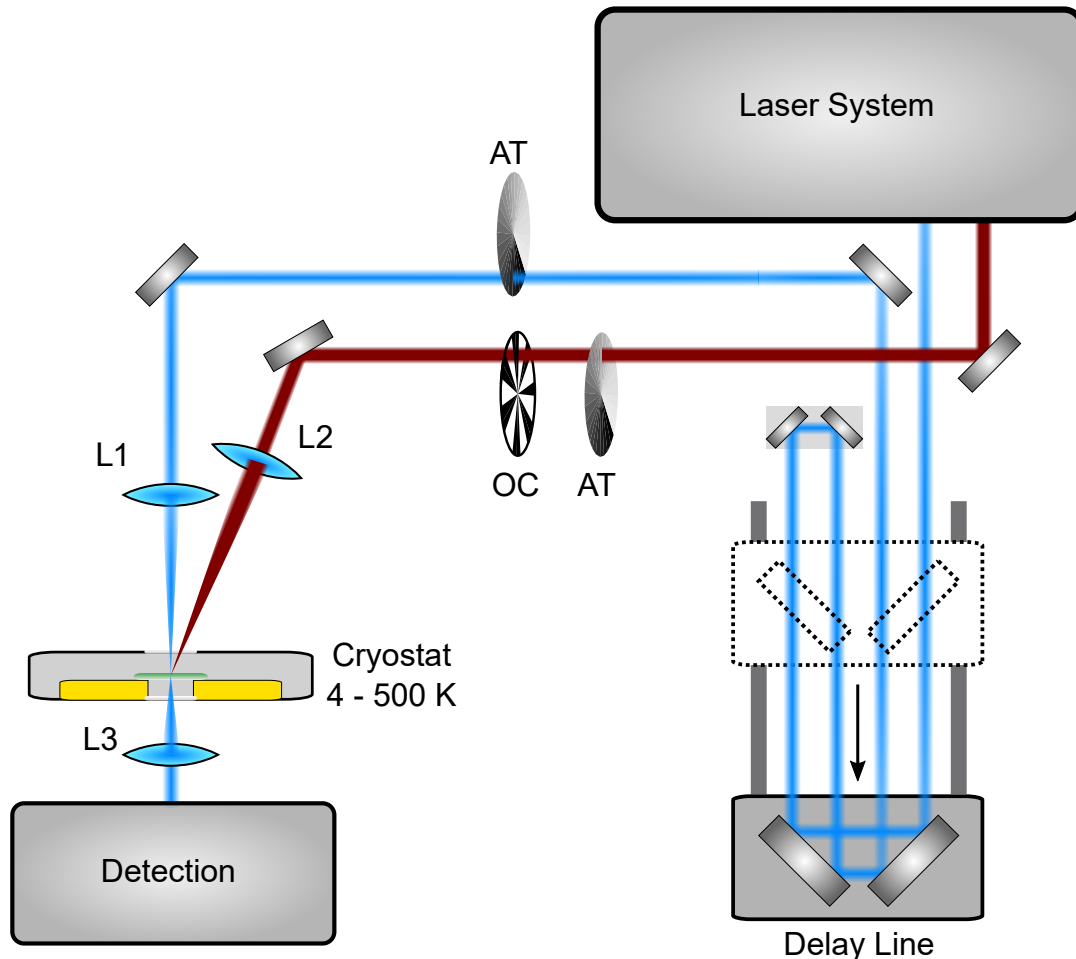
Zwei Abschwächer (AT) in Form kontinuierlich durchstimmbarer Neutraldichtefilter erlauben die präzise Anpassung der Impulsenergien beider Strahlen.

Ein optischer Lichtzerhacker des Modells *MC2000B* [Inc23] des Unternehmens *Thorlabs*<sup>5</sup> demoduliert die Frequenz der Anregeimpulse und liefert so die Voraussetzung für das differentielle Detektionsschema. Die maximale Frequenz beträgt mit einem

<sup>4</sup>Physik Instrumente (PI) SE & Co. KG: <https://www.physikinstrumente.de/de/>

<sup>5</sup>Thorlabs GmbH: <https://www.thorlabs.com/>

Blatt mit 100 Schlitzen 10 kHz und ist damit niedriger als die Repetitionsrate des Lasersystems von 50 kHz. Die größtmögliche Zerkackerfrequenz, welche die einlaufenden Laserimpulse vollständig durchlässt oder sie blockiert, ist damit 6,25 kHz. Das entspricht einer Abfolge von vier transmittierten und vier darauffolgenden blockierten Anregeimpulsen.



**Abbildung 3.6.:** Schemaskizze des optischen Systems. Das Lasersystem liefert die Anregeimpulse (rot) und die Abfrageimpulse (blau). Eine variable Verzögerungsstrecke (Delay Line) variiert die Ankunftszeit der Abtastimpulse relativ zu den Pumpimpulsen. Zwei Attenuatoren (AT) ermöglichen die stufenlose Abstimmung der Impulsenergien beider Strahlen. Ein optischer Lichtzerhacker (OC) demoduliert die Frequenz der Anregeimpulse mit einer Frequenz von 6,25 kHz. Zwei Linsen (L1 & L2) fokussieren beide Laserstrahlen auf die Probe, die sich einem Flusskryostaten (Cryostat) befindet, der die Temperaturvariation zwischen 4 und 500 K ermöglicht. Eine weitere Linse (L3) rekollimiert den Abtaststrahl, der anschließend in die Detektion läuft.

Polarisationsänderungen der Anrege- und der Abtaststrahlen können durch Einbringen von Wellenplatten ( $\lambda/2$  für die Polarisationsdrehung und  $\lambda/4$  für die Änderung

der Elliptizität) realisiert werden. Zwei Linsen fokussieren beide Impulszüge in nicht-kollinearer Geometrie auf die Probe. Hierbei ist darauf zu achten, dass der Fokus der Abtastimpulse kleiner ist als der der Anregeimpulse, um eine möglichst homogene Anregung über die komplette Fläche des Abtastfokus zu gewährleisten. Eine weitere Linse kollimiert die Abtastimpulse und führt diese in den Detektionsaufbau.

Ein weiterer zu berücksichtigender Faktor bei der Wahl der Fokusbildung ist die Stärke der Anregung. Diese ist beschrieben durch die Fluenz  $F$ , welche als Energie pro Fläche definiert ist. Die Querschnittsfläche eines Gaußstrahls ist gegeben als  $\pi d^2/8$  [Pas24]. Daraus ergibt sich für gaußförmige Laserimpulse eine Fluenz von

$$F = 8 \cdot E_{\text{pulse}} / (d_x \cdot d_y \cdot \pi) \quad (3.4)$$

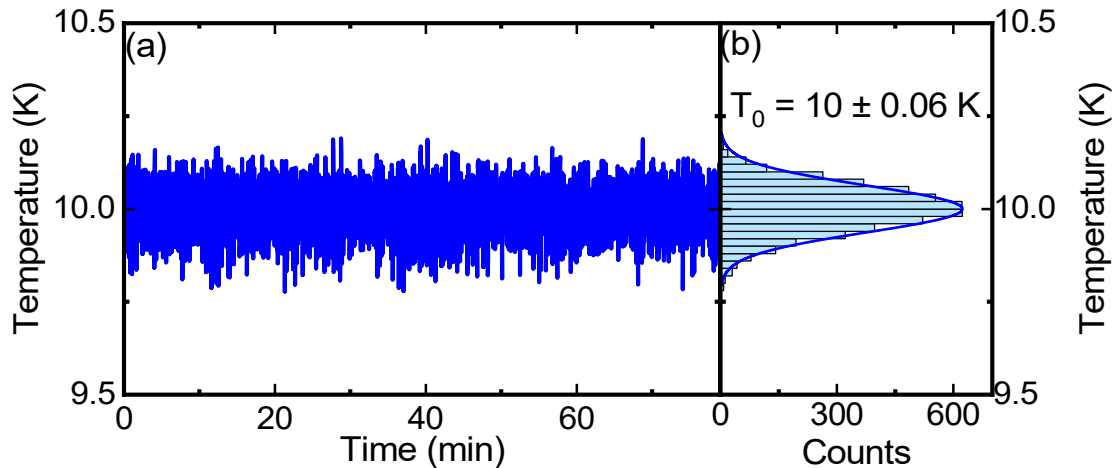
[Pas24]. Hierbei ist  $E_{\text{pulse}}$  die Energie pro Impuls,  $d_x$  und  $d_y$  sind die gaußschen Strahldurchmesser, definiert als der Abstand zwischen den Punkten, bei denen die Leistung auf  $1/e^2$  abgefallen ist. Die Verwendung des Durchmessers entlang beider Achsen erlaubt die Berücksichtigung etwaiger Elliptizitäten des Strahlprofils im Fokus.

Die Probe befindet sich in dem Flusskryostat *He-Konti* Kryostat des Typs *Micro* des Unternehmens *Cryovac*<sup>6</sup> [fTmCK20]. Im Rahmen dieser Arbeit wird eine Sonderanfertigung verwendet, die eine stehende Nutzung des Systems und so Messungen in Transmissionsgeometrie durch zwei Fenster in Vorder- und Rückseite ermöglicht. Das System erlaubt durch die Verwendung von flüssigem Helium (He) Temperaturen von bis zu 4 K. Ein Heizwiderstand bietet die Möglichkeit, den Probenhalter und die Probe bis zu einer Temperatur von 500 K zu erhitzen. Weitere Bestandteile sind eine Drehschieberpumpe Modell *V-VGD 10* [Gmb09] des Unternehmens *Elmo Rietschle*<sup>7</sup>, ein Magnetventil sowie einen Regler und einen Schwingungsdämpfer. Ein großer Vorteil ist das drucklose Abkühlen durch Einsetzen der Pumpe zwischen Kryostat und Rückführung. Dies reduziert den He-Verbrauch, da nicht vor jedem Abkühlvorgang ein Überdruck aufgebaut werden muss. Der Schwingungsdämpfer befindet sich zwischen dem Kryostaten und den beiden Pumpen und reduziert den Übertrag der Vibrationen auf den Kryostaten. Dies steigert die mechanische Stabilität des Gesamtsystems.

Die Kombination aus Magnetventil und der Temperaturkontrollereinheit erlaubt nicht nur die Messung der Temperatur des Probenhalters und damit der Probe, sondern auch die Kontrolle der Temperatur mit Hilfe eines PID-Regelkreises. Abbildung 3 7 (a) zeigt exemplarisch die Temperatur  $T_0$  mit eingestelltem Regelkreis über ein Intervall von 80 min. Teilabbildung (b) stellt die gemessenen Werte von  $T_0$  in Form eines Histogramms dar. Eine Funktionsanpassung mit einer Normalverteilung ergibt  $T_0 = 10,00 \pm 0,06$  K und damit eine Stabilität im Bereich von einigen 10 mK und ermöglicht so Messungen über einen langen Zeitraum. Das gewährleistet die Temperaturkontrolle der Probe.

<sup>6</sup>CRYOVAC GmbH & Co. KG: <https://www.cryovac.de/1/>

<sup>7</sup>Gardner Denver Deutschland GmbH: <https://www.elmorietschle.com/de-de/>



**Abbildung 3.7.:** (a) Temperatur des Kryostats in Abhängigkeit der Zeit. (b) Histogramm der gemessenen Temperaturen und einer Funktionanspannung mit einer Normalverteilung (dunkelblau). Der Mittelwert beträgt  $T_0 = 10,00 \pm 0,06 \text{ K}$ .

Bei einem Abkühlvorgang transferiert die Drehschieberpumpe das kalte Helium über den vollständig geöffneten Heber in den evakuierten Kryostaten. Wenn die Proben-temperatur auf 4,2 K gefallen ist, wird über das Nadelventil die Zieltemperatur eingestellt. Anschließend muss der PID-Regelkreis über den Regler eingelernt werden. Dies erfolgt über eine interne Funktion des Reglers, der die anschließende Stabilisierung der Proben-temperatur übernimmt.

Eine weitere Aufgabe ist die Änderung der Position der Anrege- und Abtaststrahlen auf der Probe, insbesondere um die Experimente innerhalb einer einzelnen Domäne durchführen zu können. Ein zweites Cross-Nicol-Schema, das die Domänen der eingebauten Probe und die Strahlposition visualisieren kann, stellt dies sicher. Anhang A.1 liefert eine ausführliche Beschreibung dieses Analyseaufbaus und zeigt die Implementierung in das Anrege-Abfrage-Spektroskop. Die Positionierung der Anrege- und Abtastfoki erfolgt über die Bewegung der Probe und damit des Kryostats über drei Mikrometerverschiebetische.

Das nächste Kapitel erklärt sowohl die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten optischen Detektionsmechanismen als auch die selbstentwickelte elektronische und digitale Messtechnik.

### 3.5. Detektionsmechanismen

Die Detektion lässt sich in drei Bereiche untergliedern. Erstens die verschiedenen optischen Detektionsschemata, zweitens die verarbeitende Elektronik und drittens die digitale Verarbeitung der Daten. Die folgenden zwei Abschnitte 3.5.1 und 3.5.2 erklären die optischen Detektionsschemata für magneto-optische Effekte und die transiente Transmissionsänderung. Das Letztere lässt sich analog für die Messung

von Reflektionsänderungen verwenden.

Absatz 3.5.3 stellt die elektronische Signalverarbeitung vor, welche die Spannungsimpulse der balancierten Detektoren streckt und verstärkt, um sie bestmöglich mit einem analogen Trägerfrequenzverstärker und einem Digitalisierer zu verarbeiten. Zusätzlich findet sich hier eine Beschreibung der Präparation der Auslöseimpulse für die verschiedenen elektronischen Bauteile.

Die Kapitel 3.5.4 und 3.5.5 erklären jeweils das Prinzip des Trägerfrequenzverstärkers sowie des Digitalisierers und beschreiben deren technische Integration in den Aufbau.

### 3.5.1. Magneto-optisches Detektionsschema

Das Prinzip der magneto-optischen Detektion beruht auf der Messung der photoinduzierten Änderung des Polarisationszustands der Abtastimpulse. Je nach magneto-optischem Effekt ändert die Interaktion der Abtastimpulse mit der Probe den Polarisationszustand der Abtastimpulse. Dies äußert sich in der Rotation der Polarisationsachse und/oder in der Änderung der Elliptizität. Das Detektionsprinzip beruht auf der Aufspaltung und anschließenden Detektion zweier Eigenpolarisationen des Abtaststrahls. Abbildung 3.8 skizziert dieses Detektionsschema für die balancierte Messung zeitaufgelöster magneto-optischer Phänomene. Hierbei treffen Anrege-(Pump) und Abtastimpulse (Probe) fokussiert auf die Probe. In den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten erfolgt dies über zwei Linsen in nichtkollinear Geometrie, da die Wahl beider Fokaldurchmesser unabhängig voneinander getroffen werden kann, ohne die Strahldurchmesser von Anrege- oder Abtaststrahlen ändern zu müssen. Die Zeitauflösung der Messungen gewährleistet die in Kapitel 3.4 beschriebene variable Verzögerungsstrecke, indem sie den zeitlichen Abstand  $\Delta t$  beider Impulse ändert. Die kleinste Schrittweite der Verzögerungsstrecke definiert jedoch nicht die zeitliche Auflösung der Messungen. Diese ist gegeben über die Impulsdauern der Anrege- und Abfrageimpulse. Das magnetische System der Probe (engl.: Sample) wird von den Anregeimpulsen stimuliert und interagiert mit den Abtastimpulsen. Anschließend kollimiert eine weitere Linse die Abtastimpulse, während der Anregestrahl blockiert wird.

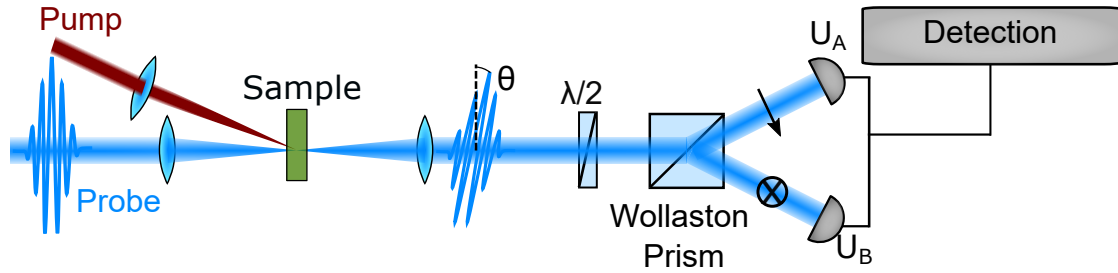
Die magneto-optische Wechselwirkung zwischen Licht und Materie äußert sich beispielsweise in der Rotation der Polarisationsebene der Abtaststrahlen um einen Winkel  $\theta$ . Ein Wollaston-Prisma (engl.: Wollaston Prism; WP) teilt die Abtastimpulse in seinen horizontalen und seinen vertikalen Anteil auf. Zwei Photodioden detektieren beide und wandeln sie jeweils in die Spannungen  $U_A$  und  $U_B$  um.

Die Summe aus Polarisationswinkel oder der Elliptizität der Abtastimpulse  $\theta$  und dem durch die Wellenplatte verursachten Versatz  $\theta_{\text{offset}}$  ist proportional zur Differenz der gemessenen Spannungen

$$\theta + \theta_{\text{offset}} \propto U_A - U_B \quad (3.5)$$

[Ma22]. Dank des stroboskopischen Detektionsschemas entspricht die optisch-induzierte Rotation  $\theta_{\text{ind}} = \theta_{\text{on}} - \theta_{\text{off}}$  der Differenz der Winkel mit und ohne Anregeimpul-

se. Die  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte erlaubt es, die Abtastpolarisation so zu drehen, dass die Differenz für den Fall ohne Anregung Null entspricht und damit die Detektion zu balancieren. Eine ausführlichere Behandlung der Rotationsdetektion findet sich im Anhang A.2. Das Einbringen einer  $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte in die Detektion erlaubt die Messung der photoinduzierten Elliptizität in Abhängigkeit der Verzögerungszeit zwischen beiden Impulsen.



**Abbildung 3.8.:** Skizze des balancierten magneto-optischen Detektionsschemas. Zwei Linsen fokussieren den Anrege- (rot) und Abtaststrahl (blau) auf die Probe (Sample). Eine weitere Linse rekollimiert die Abtastimpulse. Die Analyse des Polarisationszustands erfolgt über ein Wollaston-Prisma (Wollaston Prism), das die einfallenden Laserimpulse in zwei Eigenpolarisationen aufteilt. Zwei Photodioden detektieren beide Komponenten. Die Differenz aus  $U_A$  und  $U_B$  ist proportional zur Änderung der Abtastpolarisationsrichtung  $\Theta$ . Diese Differenzspannung wird elektronisch weiterverarbeitet und digitalisiert. Die  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte ( $\lambda/2$ ) erlaubt es die gemessene Leistung auf den Photodioden in Abwesenheit der Anregung zu balancieren.

Ein Vorteil balancierter Detektionsschemata ist das hervorragende Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Die Subtraktion eliminiert das Intensitätsrauschen der Laserimpulse. Die Rauschbeiträge bei der Detektion einer Größe setzen sich aus verschiedensten Beiträgen wie beispielsweise technischem, thermischem und Quantenrauschen zusammen. In erster Näherung besteht das gemessene Signal  $S$  pro Photodiode aus den folgenden Beiträgen

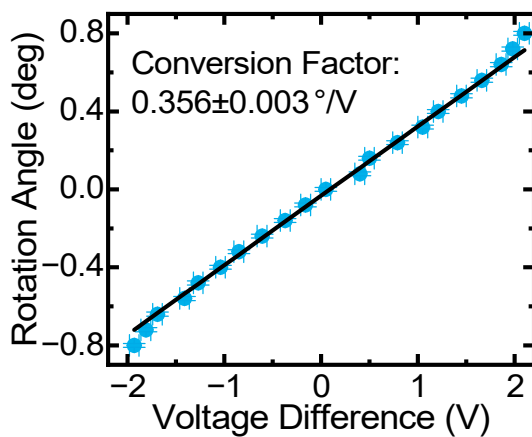
$$S \propto I_0 + \delta_T + \delta_{SN} + \Delta I. \quad (3.6)$$

Hierbei entspricht  $I_0$  der Intensität der Laserimpulse,  $\delta_T$  technischen Rauschteilen, dem Schrotrauschen  $\delta_{SN}$  und der in der Probe induzierten Intensitätsänderung  $\Delta I$ . Die Beiträge zum technischen Rauschen haben ihre Ursachen in der Lasergeometrie, Luftfluktuationen entlang des Strahlwegs und der Probe in Kombination mit Temperaturschwankungen. All diese Beiträge stellen korrelierte Rauschbeiträge dar, wodurch eine Eliminierung dieser Beiträge über geeignete Verfahren möglich ist. Eine Option hierfür ist die Verwendung eines balancierten Detektionsschemas. Das Differenzsignal hat die Form

$$S \propto (I_0 + \delta_T + \delta_{SN} + \Delta I) - (I_0 + \delta_T + \delta_{SN}) = \sqrt{2}\delta_{SN} + \Delta I \quad (3.7)$$

[Rie16]. Lediglich ein Beitrag des unkorrelierten Schrotrauschens bleibt bestehen. Der Vorfaktor  $\sqrt{2}$  folgt aus der gaußschen Fehlerfortpflanzung für unabhängige Größen. Eine ausführlichere Beschreibung der Rauschbeiträge und ihrer Unterdrückung findet sich in [Rie16].

Die Ermittlung des Proportionalitätsfaktors zwischen Spannungsdifferenz  $\Delta U$  und der Kalibration der Detektion erfolgt über die Rotation der Polarisation der Abtastimpulse um bekannte Winkeländerungen und die Messung des zugehörigen Werts von  $\Delta U$ . Die experimentelle Umsetzung erfolgt durch Blockieren des Anregestrahls und die Rotation mithilfe des  $\lambda/2$ -Wellenplättchens.



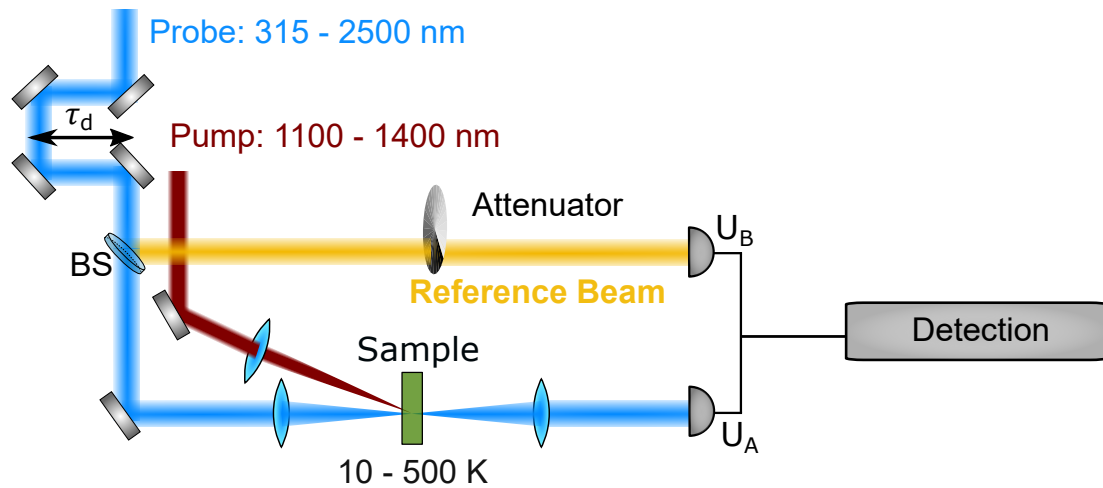
**Abbildung 3.9:** In blau ist der Rotationswinkel aufgetragen über der Differenzspannung zwischen den beiden Photodioden. Die gemessene Spannung pro Photodiode beträgt 200 mV bei einer Wellenlänge von 750 nm des auftreffenden Laserimpulses. Der über lineare Regression bestimmte Konversionsfaktor entspricht  $0,356 \pm 0,003 \frac{\circ}{\text{V}}$ .

Abbildung 3.9 zeigt in blau die eingestellten Winkel aufgetragen über der gemessenen Differenzspannung bei einer Abtastwellenlänge von 750 nm und einer Spannung pro Diode von  $U_{A/B} = 200 \text{ mV}$ . Für Spannungen, die betragsmäßig größer als 1,7 V sind, ist eine Abweichung des linearen Verhaltens zu beobachten. Die Ursache dafür ist der Verstärkungsgrad des balancierten Detektors. Eine ausführlichere Charakterisierung des balancierten Detektors und der zugehörigen Elektronik liefert Kapitel 3.5.3. Daher ist bei der Wahl der Abtastleistung darauf zu achten, dass die maximale zu erwartende Winkeländerung im linearen Bereich liegt. Eine Reduktion der Abtastleistung und damit der Spannung pro Photodiode passt den linearen Bereich an. Eine lineare Regression (schwarz) dieses Intervalls ergibt in diesem Fall einen Umrechnungsfaktor von  $0,356 \pm 0,003 \text{ } \frac{\circ}{\text{V}}$ . Ein Nachteil hierbei ist, dass die Proportionalitätskonstante für jede Konfiguration aus Diodenleistung und Abtastwellenlänge bestimmt werden muss. Da dieses Verfahren lediglich einige Minuten in Anspruch nimmt und sämtliche Abhängigkeiten von Wellenlänge und optischer Leistung auf den Photodioden berücksichtigt, wird es für sämtliche Experimente verwendet.

### 3.5.2. Zeitaufgelöste balancierte Detektion differentieller Transmissionsänderungen

Etablierte Methoden zur Messung der differentiellen Transmission sind die Messung mit einer einzelnen Photodiode und die Addition der Signale  $U_A$  und  $U_B$  der balancierten Detektion für Rotation, wie sie in Abschnitt 3.5.1 beschrieben wurde [Sat10a]. Das birgt den Vorteil einer synchronen Detektion von Transmissionsänderungen und der Polarisationsrotation beziehungsweise Elliptizität. Der Nachteil ist die Verdopplung der absoluten Rauschbeiträge durch die Addition beider Diodenspannungen.

Diese Arbeit nutzt zur Messung von Transmissionsänderungen ebenfalls ein balanciertes Detektionsschema. Das Prinzip beruht auf der Verwendung eines Referenzstrahls analog zu den in [Cho90] durchgeführten Reflexionsmessungen.



**Abbildung 3.10.:** Schemaskizze der balancierten Detektion mit einem Referenzstrahl (Reference Beam, orange). Ein Strahlteiler (BS) teilt den Abtaststrahl (blau) auf, sodass ein Anteil auf die Probe (Sample) fokussiert wird und der andere als Referenzstrahl fungiert. Eine Linse fokussiert die Anregeimpulse (rot) analog zum Abtastimpuls auf die Probe. Eine Photodiode ( $U_A$ ) detektiert die Abtastimpulse hinter der zu untersuchenden Probe. Eine zweite Photodiode ( $U_B$ ) detektiert die optische Intensität der Abtaststrahlung, die mit Hilfe eines Attenuators kontinuierlich angepasst werden kann.

Abbildung 3.10 skizziert dieses Konzept. Analog zu Abbildung 3.8 variiert die Verzögerungsstrecke den zeitlichen Abstand der Laserimpulse während der Messungen und zwei Linsen fokussieren die Abtast- (blau) und die Anregeimpulse (rot) auf die zu untersuchende Probe. Im Unterschied zur magneto-optischen Geometrie reflektiert ein Strahlteiler (BS) einen Teil der Abtastleistung vor der Probe. Dieser in orange dargestellte Impulszug dient als Referenzstrahl. Hierfür passiert er einen Attenuator, bevor er von einer der beiden Photodioden detektiert und in eine Spannung  $U_B$  transformiert wird. Der zweite Teil der Abtastimpulse wechselwirkt mit

der Probe. Die Strahlführung erfolgt über eine Linse analog zum magneto-optischen Messschema aus Abschnitt 3.5.1. Eine Rekollimationslinse bündelt die transmittierte Abtastleistung und eine zweite Photodiode detektiert diese und wandelt sie in die Spannung  $U_A$  um.

Die induzierte Transmissionsänderung  $\Delta T$  ist in diesem proportional zur Differenz der beiden Spannungen

$$\Delta T \propto U_A - U_B. \quad (3.8)$$

Im Gegensatz zum magneto-optischen Messprinzip findet keine Balancierung über eine Wellenplatte statt, sondern durch das Anpassen von  $U_B$  an  $U_A$  über die Regulation der optischen Leistung des Referenzstrahls. Diese erfolgt mit Hilfe des Attenuators im Referenzstrahlengang.

Um die relative Transmissionsänderung zu bestimmen, ist die Kenntnis der transmittierten Intensität ohne Anregestrahl  $T_0$  essentiell. Die relative Transmissionsänderung ergibt sich somit durch

$$\Delta T/T_0 = \frac{U_A - U_B}{T_0}. \quad (3.9)$$

Die Bestimmung von  $T_0$  erfolgt, indem Anrege- und Referenzimpulse blockiert werden und die, die Probe passierende Abtastintensität gemessen wird. Das Einbringen eines Abschwächers um einen konstanten und bekannten Faktor in den Strahlengang löst das Problem der Nichtlinearität der Detektion für große Differenzen  $U_A - U_B$ . Hier realisiert das ein Neutraldichtefilter, dessen Abschwächungsfaktor mit Hilfe eines thermischen Leistungsmessgeräts des Typs *S401C* [Inc18] des Unternehmens *Thorlabs*<sup>8</sup> bestimmt wird. Für eine Abtastwellenlänge von 750 nm ist dieser beispielsweise 91,55. Die balancierte Detektion steigert die Auflösung für das hier verwendete System von  $\Delta T/T_0 \approx 10^{-4}$  auf  $\Delta T/T_0 \approx 10^{-6}$  um zwei Größenordnungen.

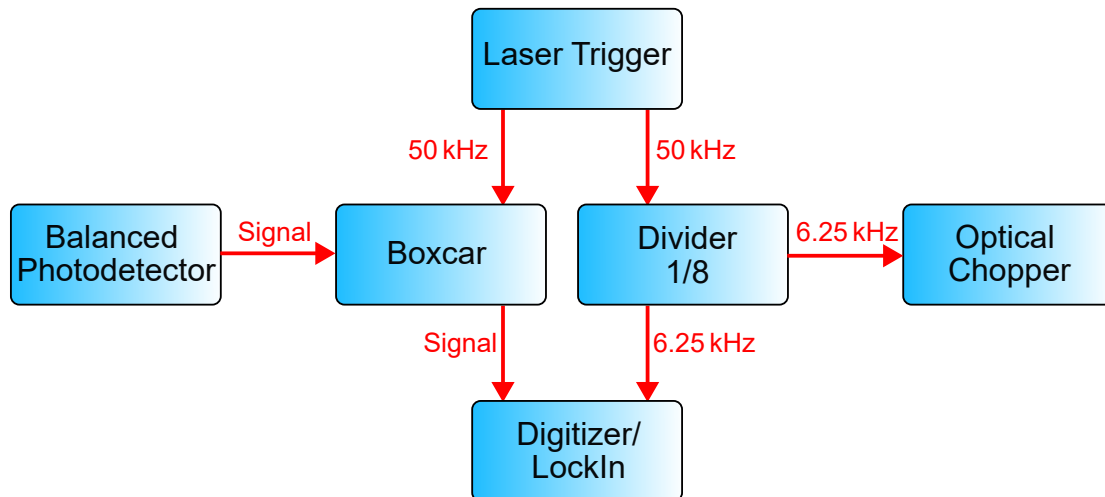
Das folgende Kapitel befasst sich mit der elektronischen Weiterverarbeitung der Differenzspannung und der Vorbereitung der elektrischen Auslöseimpulse für die einzelnen Bestandteile.

### 3.5.3. Elektronische Präparation der Signalimpulse

Die zwei wesentlichen Aufgaben der Messelektronik sind zum einen die Synchronisation der einzelnen Bestandteile und zum anderen die Formung der elektronischen Impulse, um diese optimal auswerten zu können. Das hier aufgebaute System besteht aus einer Kombination kommerzieller und selbstkonzipierter Komponenten. Abbildung 3.11 zeigt ihren schematischen Aufbau.

---

<sup>8</sup>Thorlabs GmbH: <https://www.thorlabs.com/>



**Abbildung 3.11.:** Schemaskizze der selbstkonzipierten Messelektronik. Ein Boxcar verbreitert und verstärkt das Differenzsignal aus dem balancierten Photodetektor (Balanced Photodetector). Die Synchronisation erfolgt über Triggerimpulse des *PHAROS*-Lasers mit einer Frequenz von 50 kHz. Ein Frequenzdividierer (Divider) reduziert die Frequenz des Auslösesignals um einen Faktor 8. Der 6,25 kHz-Impulszug löst sowohl den optischen Lichtzerhacker (Optical Chopper) als auch den Digitalisierer beziehungsweise den Trägerfrequenzverstärker (Digitizer/LockIn), der die Impulszüge aus dem Boxcar aufnimmt, aus.

Eine Photodiode innerhalb des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers liefert die elektrischen Hauptauslöser mit einer Frequenz von 50 kHz. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in [LIG21]. Wie bereits in den Kapiteln 3.5.1 und 3.5.2 erwähnt, erfolgt die Konversion optischer in elektrische Signale über einen balancierten Photodetektor. Die Wahl des Verstärkungsfaktors beeinträchtigt nicht nur die Messbandbreite, sondern auch die zeitliche Impulsform der Spannungsimpulse. Hier wird eine Verstärkung von  $10^4$  und damit eine Bandbreite von 45 MHz verwendet. Im Rahmen dieser Arbeit wird als balancierter Detektor entweder das Modell *PDB450A* oder das *PDB450C* des Unternehmens *Thorlabs*<sup>9</sup> verwendet. Beide besitzen eine variable Verstärkung und Bandbreite und unterscheiden sich lediglich in den verwendeten Photodioden und damit der detektierbaren Abtastwellenlänge. Der *PDB450A* nutzt Siliziumdioden und deckt den sichtbaren bis nahinfraroten Spektralbereich von 320 – 1000 nm ab. Der nahinfrarote Spektralbereich von 800 bis 1700 nm wird von *PDB450C*, ausgestattet mit Indiumgalliumarsenid-Dioden (InGaAs-Photodioden), erfasst. Beide Modelle verfügen über drei Ausgänge, jeweils einen Monitorausgang für die beiden Photodioden A und B und einen Ausgang für das verstärkte Differenzsignal (RF-Signal). Abbildung 3.12 zeigt dieses exemplarisch in schwarz. Der Einschub stellt eine Nahaufnahme dieses Signals dar. Die hier präsentierten Kurven wurden mit dem in Abschnitt 3.5.5 beschriebenen Digitalisierer verarbeitet. Aus der Samplingrate von 20 MHz ergibt sich ein zeitlicher Abstand zwischen zwei Datenpunkten von 50 ns. Dies schränkt die Zeitdauer gut auflösbarer Impulse auf Dauern

<sup>9</sup>Thorlabs GmbH: <https://www.thorlabs.com/>

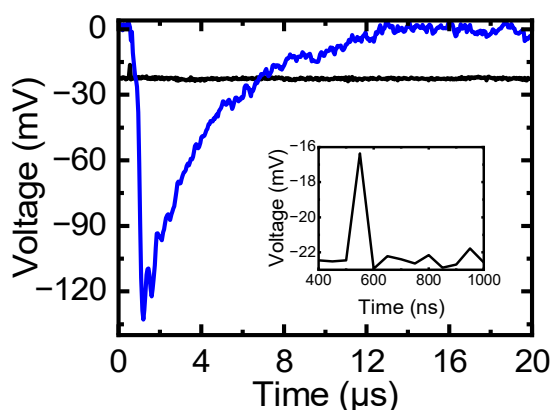
im  $\mu\text{s}$ -Bereich ein. Das mit dem Digitalisierer aufgenommene RF-Signal (Einschub Abbildung 3.12) verdeutlicht diesen Umstand.

Die drei Stellschrauben für eine optimale Detektion sind die Dauer und die Amplitude der elektrischen Impulse sowie die Wahl des Messbereichs. Der zeitliche Abstand zwischen zwei Spannungsimpulsen sowie die elektronische Abklingzeit limitiert die maximale Signaldauer. Diese beträgt  $20 \mu\text{s}$  bei einer Repetitionsrate von  $50 \text{ kHz}$ . Ein elektrisches Bauteil, welches diese drei Parameter beeinflussen kann, ist ein Boxcar-Integrator.

Dieses besteht aus einer Auswahlbrücke und einem elektrischen Verstärker. Die Auswahlbrücke integriert das einlaufende Signal über ein Zeitfenster von wenigen Nanosekunden und unterdrückt alles außerhalb dieses Fensters. Die Position der Box liegt hierbei relativ zu einem Auslöseimpulszug, bereitgestellt durch den regenerativen Yb:KGW-Verstärker. Im Anschluss wird das Signal auf ein Vielfaches verstärkt und zeitlich gestreckt.[Ins21] liefert eine ausführliche Erklärung dieser Bauteile.

Die blaue Kurve in Abbildung 3.12 stellt das verstärkte und gestreckte Signal der in schwarz dargestellten Differenzspannung dar. Im Vergleich zum weniger als  $50 \text{ ns}$  langen RF-Signal besitzt dieses eine volle Halbwertsbreite von etwa  $2 \mu\text{s}$  und fällt nach ungefähr  $13 \mu\text{s}$  vollständig ab. Damit sind Dauer und Abklingzeit kürzer als die inverse Repetitionsrate.

Je nach Detektionsschema laufen die so verarbeiteten Impulse in den Trägerfrequenz-



**Abbildung 3.12:** In schwarz ist das Spannungssignal des Differenzausgangs der balancierten Photodiode in Abhängigkeit der Zeit dargestellt. Blau zeigt das verstärkte und gestreckte Signal nach der Boxcar-Integration. Die Vergrößerung zeigt das Differenzsignal. Beide Kurven wurden mit dem Digitalisierer und einer Bandbreite von  $45 \text{ MHz}$  aufgenommen. Die unterschiedlichen Vorzeichen zwischen blauer und schwarzer Kurve resultieren aus der Balancierung beider Dioden.

Verstärker oder in den Digitalisierer. Im Gegensatz zu den elektrischen Bauteilen, welche die Spannungssignale verarbeiten, benötigen diese Auslöseimpulszüge die Modulationsfrequenz und nicht die Repetitionsrate des Lasersystems.

Die limitierenden Faktoren für die Wahl der Modulationsfrequenz sind zum einen die Repetitionsrate und zum anderen die maximale Frequenz des optischen Lichtzerhackers von  $10 \text{ kHz}$ . Ein selbstgebauter Dividierer, der die Frequenz des Spannungszuges um einen Faktor  $2^n$  reduzieren kann, bringt einen zweiten Auslöseimpulszug des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers mit einer Frequenz von  $50 \text{ kHz}$  um ein  $1/8$  auf eine Frequenz von  $6,25 \text{ kHz}$ . Zusätzlich teilt dieser die Auslöseimpulszüge auf zwei Ausgänge auf und verstärkt sie wieder auf eine Maximalspannung von  $5 \text{ V}$ . Der Erste der beiden  $6,25 \text{ kHz}$  Impulszüge synchronisiert den Lichtzerhacker mit den Laserimpulsen. Dies ist Voraussetzung für das stroboskopische Detektionssche-

ma und ergibt einen Abtastgrad von 50 %.

Der zweite 6,25 kHz-Auslöseimpulszug triggert den verwendeten Detektor. Hierfür stehen ein dualer Trägerfrequenzverstärker *SR830* des Unternehmens *Stanford Research Systems* und der selbstprogrammierte digitale Verstärker zur Verfügung. Die folgenden zwei Abschnitte 3.5.4 und 3.5.5 skizzieren diese verwendeten Messmethoden und erläutern die experimentelle Umsetzung in dem hier entwickelten Aufbau.

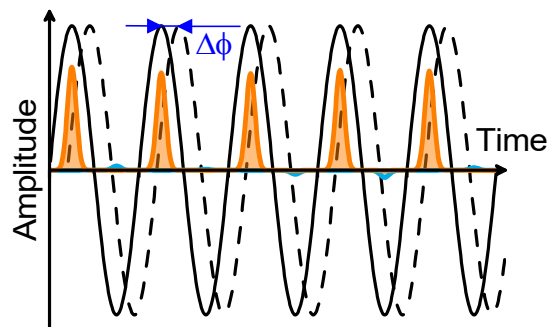
### 3.5.4. Analoger Trägerfrequenzverstärker

Dieser Absatz erläutert kurz das Prinzip eines Trägerfrequenzverstärkers. Eine ausführliche Beschreibung des Messprinzips liefert [Sys17, SRS11].

Hierbei handelt es sich um elektronische Bauteile, welche sich besonders gut für die Analyse schwacher, periodischer Signale eignen. Ihr Funktionsprinzip beruht auf der Multiplikation des Messsignals mit einem von ihnen selbst erzeugten sinusförmigen Referenzsignal. Seine Frequenz entspricht hierbei exakt der Modulationsfrequenz des Messsignals. Die Multiplikation von zwei oszillierenden Signalen erzeugt einen konstanten Term und einen, der mit doppelter Frequenz oszilliert. Das multiplizierte Signal passiert einen schmalbandigen Bandpassfilter, welcher nur den konstanten Term passieren lässt. Dadurch werden nicht nur Gleichspannungsstörungen, sondern auch periodische Signale mit Frequenzen, die nicht der Modulationsfrequenz entsprechen, unterdrückt.

Abbildung 3.13 zeigt in orange und blau ein moduliertes Messsignal. Die blaue Kurve stellt dabei den Fall ohne und die orange mit induzierter Anregung dar. Die Phase  $\Delta\phi$  des in schwarz dargestellten Referenzsignals lässt sich variieren und so mit der Modulation des zu untersuchenden Impulszuges synchronisieren.

**Abbildung 3.13:** Schematische Darstellung eines Referenzsignals in schwarz und gestricheltem schwarz mit einem Messsignal in blau und orange in Abhängigkeit der Zeit. Die beiden Referenzsignale sind um eine Phasenverschiebung  $\Delta\phi$  relativ zueinander verschoben.



Im Rahmen dieser Arbeit wird ein zweikanaliger Trägerfrequenzverstärker verwendet. Die Phase der Referenzsignale beider Kanäle  $X$  und  $Y$  ist um  $\pi/2$  gegeneinander verschoben. Dadurch verschiebt eine Variation der Phasenverschiebung lediglich das gemessene Signal von einem in den anderen Kanal und die Amplitude  $R = \sqrt{X^2 + Y^2}$  ist unabhängig von  $\Delta\phi$ .

### 3.5.5. Digitale Detektion

Die zweite Methode ist die Verwendung eines Digitalisierers, welcher die analogen Signale in digitale konvertiert. Im Vergleich zum im vorigen Kapitel beschriebenen Trägerfrequenzverstärker besteht die Möglichkeit, bis zu vier Signale anstelle eines einzelnen simultan zu detektieren. Weiter können einzelne Impulse aus dem Impulszug selektiv analysiert werden.

Der Digitalisierer digitalisiert nach Eintreffen eines Auslöseimpulses das einlaufende Spannungssignal für eine variable Integrationszeit  $\Delta T$ . Die so akquirierten Spannungsverläufe können im Anschluss verarbeitet werden, um das optisch induzierte Signal zu bestimmen. Dieses ist direkt proportional zur induzierten Spannungsdifferenz  $U_{\text{ind}}$  zwischen den Abtastimpulsen, die mit der angeregten Probe wechselwirken  $U_{\text{on}}$  und denen, die mit der relaxierten Probe interagieren  $U_{\text{off}}$ . Abbildung 3.14 zeigt in dunkelblau einen digitalisierten Impulszug in Abhängigkeit der Datenpunkte.

Der hier verwendete Digitalisierer ist eine Messkarte des Modells *M2P5926-x4* des Unternehmens *Spectrum Instrumentation GmbH*<sup>10</sup> mit vier Kanälen mit variablen Eingangswiderständen und einem zusätzlichen Eingang für Auslöseimpulse. Diese vier besitzen je nach Konfiguration einen dynamischen Bereich zwischen  $\pm 200$  mV und  $\pm 10$  V. Bei der Wahl des dynamischen Bereichs gilt: je größer die maximal messbare Spannung ist, desto niedriger ist dessen Auflösung. Daher ist darauf zu achten, dass dieser Grenzwert an die größten Spannungspulse angepasst ist. Die Ursache hierfür ist die endliche, diskrete Auflösung der digitalen Detektion. Die Variation des messbaren Spannungsbereichs erfolgt durch das Abschwächen/Verstärken des elektronischen Signals vor dem Digitalisierungsschritt. Die Übertragungsrate von der Messkarte auf den Computer beträgt  $700 \frac{\text{MB}}{\text{s}}$ . Die Abtastrate ist  $f_{\text{sample}} = 20 \frac{\text{MSample}}{\text{s}}$  und entspricht einer Zeitspanne zwischen zwei Datenpunkten von 50 ns. Die maximal messbare Modulationsfrequenz entspricht 10 MHz. Die Verzögerung zwischen dem Eintreffen des Auslöseimpulses und dem Beginn der Messung  $d_{\text{offset}}$  ist frei wählbar. Dies ermöglicht eine beliebige Wahl der Position des ersten Spannungsimpulses relativ zum Messstart. Der Abstand zwischen zwei Messsignalen  $d$  ergibt sich aus dem Verhältnis der Abtastrate des Digitalisierers und der Repetitionsrate des Lasers. In einem idealen System beträgt dieser Wert  $d = \frac{f_{\text{sample}}}{f_{\text{rep}}} = 400$  Datenpunkte.

Die hohe Abtastrate führt zu großen Datenmengen von ungefähr 11 MB für eine Integrationsdauer von 104,9 ms pro Verzögerungszeit und Kanal. Das führt zu erheblichen Verzögerungen bei der Datenübertragung und der -speicherung. Das bedingt eine erhöhte Messdauer. Dieses Problem lässt sich durch Datenverarbeitung bereits während der Messung kompensieren. Die drei wesentlichen Schritte dieses Prozesses sind die Bestimmung der Spannungsamplitude jedes Impulses, die Zuordnung zu Impulsen mit und ohne Anregung und die Ermittlung der induzierten Spannung.

Ein erster Schritt des Messprozesses ist die Bestimmung eines Amplitudenwerts eines jeden Impulses. Die Voraussetzung dafür ist die Kenntnis über die exakte Position der Maxima im digitalisierten Impulszug relativ zum Auslösesignal. Die zwei infrage kommenden Methoden sind die Definition eines Intervalls und das Bestimmen des

<sup>10</sup>Spectrum Instrumentation GmbH: <https://spectrum-instrumentation.com/>

Maximums innerhalb desselben sowie das Auslesen in einem fest definierten Abstand. Der Nachteil der ersten Variante ist, dass die Position des Maximums durch Intensitätsfluktuationen auf dem Signal variieren kann. Die zweite Methode ist hingegen robust gegenüber diesen Fluktuationen und wird daher verwendet.

Hierfür ist es essentiell, den Abstand zwischen zwei aufeinander folgenden Impulsen ausreichend genau zu kennen. Ist dies nicht erfüllt, führt das zu einer Verschiebung der Ausleseposition zum zugehörigen Spannungsimpuls und damit einer Reduktion der berechneten, induzierten Spannungsänderung. Die Ursachen dafür sind, dass die Repetitions- und Abtastrate in einem realen System marginal von den 50 kHz und von den  $f_{\text{sample}} = 20 \frac{M_{\text{Sample}}}{s}$  abweichen. Dies führt dazu, dass das Verhältnis  $d = \frac{f_{\text{sample}}}{f_{\text{rep}}} \neq 400$  Datenpunkte ist. Die Bestimmung des realen Abstands zwischen zwei Impulsen  $d_{\text{exp}}$  erfolgt über die Messung der induzierten Spannung pro Modulationszyklus  $U_{\text{ind,c}}$  für ein Messintervall. Falsche Werte von  $d_{\text{exp}}$  und der damit verbundenen Verschiebung des Auslesemaximums relativ zum Spannungsimpuls führen zu einer Änderung von  $U_{\text{ind,c}}$ . Die Berechnung eines Spannungswerts für jeden Modulationszyklus bestehend aus vier Impulsen mit Anregung und vier ohne Anregung erlaubt es, diesen Effekt für die experimentelle Bestimmung von  $d_{\text{exp}}$  zu nutzen. Ein zu großer oder zu kleiner Wert von  $d_{\text{exp}}$  führt zu einer Änderung von  $U_{\text{ind,c}}$  bei den Zyklen am Ende des Integrationsintervalls. Nun wird  $d_{\text{exp}}$  so lange variiert, bis sich  $U_{\text{ind,c}}$  über das gesamte Messintervall nicht mehr ändert. Für die Kombination des hier verwendeten Digitalisierers und des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers ist der experimentell bestimmte Wert der Datenpunkte pro Signalperiode

$$d_{\text{exp}} = \frac{f_{\text{sample}}}{f_{\text{rep}}} \approx 400,0052. \quad (3.10)$$

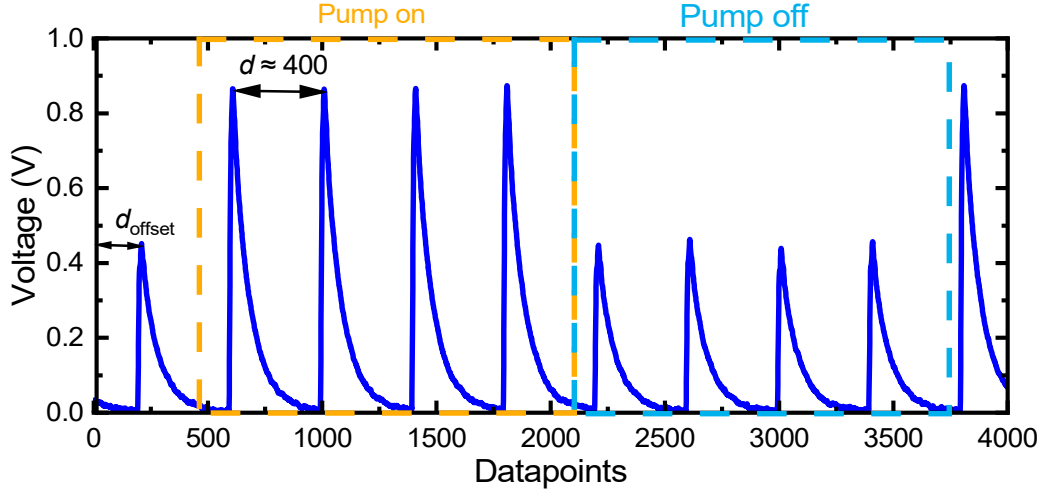
Dieser gewährleistet Messungen mit Integrationszeiten von bis zu 400 ms ohne Artefakte durch eine Verschiebung des Auslesepunkts.

Der Verarbeitungsprozess zur Berechnung eines Werts pro Zeitverzögerung lässt sich in drei verschiedene Schritte unterteilen. Für die Bestimmung der Spannung pro Impuls ist die Kenntnis der exakten Position essenziell, um einen Referenzwert zu erhalten. Die Position des Datenpunkts  $p_n$  des  $n$ -ten Spannungspulses ergibt sich folgendermaßen

$$p_n = d_{\text{offset}} + (n - 1) \cdot d_{\text{exp}}. \quad (3.11)$$

Dabei ist  $d_{\text{offset}}$  die Anzahl an Datenpunkten, die der Verzögerung zwischen dem Start der Messung und dem Referenzpunkt des ersten Impulses entspricht (Abbildung 3.14). Dies führt zu einer Variation der Position von  $\pm 1$  Datenpunkt. Die Spannungsamplitude eines Impulses ergibt sich durch das Auslesen eines einzelnen Punktes. Abbildung 3.15 zeigt eine exemplarische Nahaufnahme eines Maximums eines Spannungsimpulses. Das lokale Minimum um den Datenpunkt 108, markiert mit der vertikalen gestrichelten Linie, bietet eine optimale Position für die Bestimmung des Spannungswerts des Impulses, da die Differenz zwischen den benachbarten Werten minimal ist. Dadurch ist die Änderung des ermittelten Spannungswerts im

Falle einer Verschiebung der Ausleseposition um  $\pm 1$  minimal. Ein Maß für die experimentelle Überprüfung ist der Vergleich des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses für unterschiedliche Datenpunkte.



**Abbildung 3.14.:** Spannungsimpulszug nach dem Boxcar in Abhängigkeit der Messpunkte des Digitalisierers. Der Abstand zwischen zwei Spannungsimpulsen entspricht etwa  $d \approx 400$  Datenpunkten.  $d_{\text{offset}}$  ist der Abstand zwischen erstem und letztem Referenzpunkt. Die Impulse im orangenen gestrichelten Rechteck zeigen das Signal unter Anregung und im Hellblauen ohne Anregung.

In einem zweiten Schritt werden die ermittelten Werte jeweils Impulsen mit und ohne Anregung zugeteilt. Das orangene, gestrichelte Rechteck in Abbildung 3.14 zeigt ein Paket von vier Impulsen, die mit der angeregten Probe wechselwirken. Die entsprechende Spannung ist  $U_{\text{on}}$ . Die Impulse im hellblauen Rechteck entsprechen Signalen ohne Anregung und damit  $U_{\text{off}}$ . Dieser visuelle Unterschied dient der Identifikation der Spannungsimpulse mit und ohne Anregeimpulse.

Die Wahl von  $d_{\text{offset}}$  erlaubt es, den Impulszug relativ zum Auslöseimpuls so zu verschieben, dass die ersten vier Impulse  $U_{\text{on}}$  der angeregten Probe zugeordnet werden können. Diese Abfolge von acht Werten wiederholt sich kontinuierlich im gesamten Integrationszeitraum.

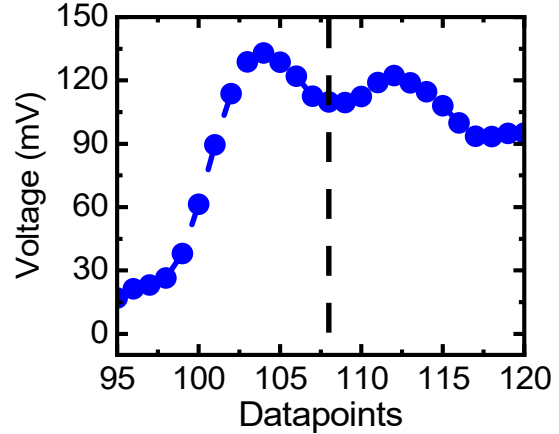
In einem dritten Schritt wird der Mittelwert über alle Werte von  $U_{\text{off}}$  und  $U_{\text{on}}$  gebildet

$$\langle U_i \rangle = \frac{1}{n} \sum_j U_{i,j}, \quad (3.12)$$

wobei  $n$  die Anzahl der Impulse beschreibt und  $i \in \{\text{on}, \text{off}\}$ . Das gemessene Signal entspricht der Differenz beider Werte zu einer bestimmten Verzögerung zwischen Anrege- und Abtastimpulsen.

Dieser Auslesealgorithmus reduziert die Datenmenge pro Zeitpunkt auf lediglich

**Abbildung 3.15:** Maximum eines digitalisierten Spannungssignals aufgetragen über der Nummer der zugehörigen Datenpunkte dargestellt in blau. Die schwarze gestrichelte Linie zeigt die Ausleseposition.



zwei relevante Zahlenwerte  $U_{\text{off}}$  und  $U_{\text{on}}$ . Die Standardfehler beider Größen dienen als Maß für die Stabilität und Genauigkeit des Digitalisierungsprozesses und der Fluktuationen innerhalb des Messintervalls.

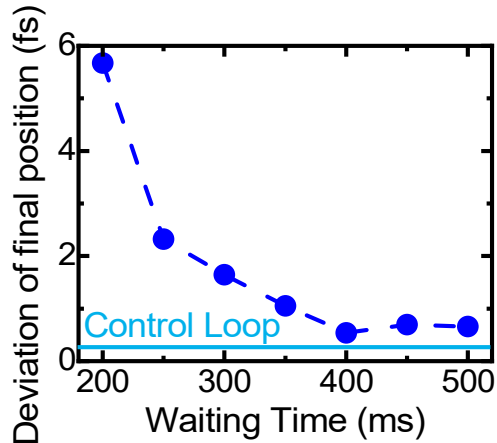
Bei der Wahl der Länge des Messintervalls gilt es, einen Kompromiss zwischen dem Unterdrücken langsamer Änderungen auf einer Zeitskala von einigen 100 ms und der Menge an Statistik zu finden. Die Mittelwertbildung zur Bestimmung der Spannungswerte, siehe Gleichung 3.12 ist anfällig für langsame Änderungen innerhalb des Messintervalls und bildet somit eine obere Grenze, gegeben durch das Rauschen des Systems. Weiter gilt in erster Näherung: je mehr Daten und damit verbunden mehr Statistik, desto besser das Verhältnis aus Signal und Rauschen (SNR). Hier gilt es zu beachten, dass das Schrotrauschen eine untere Grenze bildet, welche nicht unterschritten werden kann. Die in diesem System verwendete Integrationszeit für einen einzelnen gemittelten Spannungswert pro Verzögerungszeit ist 104,9 ms.

Bei dieser Integrationszeit benötigt die Messung eines Intervalls von  $-10$  ps bis 25 ps, einer Schrittweite von 100 fs und einer Verfahrgeschwindigkeit von 10 mm/s, ungefähr 7 min unter Verwendung der Messkarte. Ein wesentlicher Faktor für die Messdauer ist das Verfahren der Verzögerungsstrecke. Die vom Hersteller bereitgestellte Kontrollschleife benötigt pro Schritt zwischen 1 s und 4 s. Im Folgenden wird die Kontrollschleife durch eine definierte Wartezeit ersetzt. Als Maß für die Positionsgenauigkeit dient die mittlere Abweichung

$$\Delta t = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |t_i - t_{0,i}|. \quad (3.13)$$

von der Zielposition  $t_0$ . Hierbei ist  $N$  die Anzahl der gemessenen Zeitschritte. Die mittlere Abweichung von  $\Delta t$  beträgt bei einer Verfahrgeschwindigkeit von 10 mm/s und einer Schrittweite von 100 fs mit Kontrollschleife  $\Delta t = 0,27$  fs. Dieser Wert wurde für 300 aufeinanderfolgende Schritte ermittelt und entspricht der uniaxialen Genauigkeit bei doppeltem Durchlaufen aus [Ins20].

Abbildung 3.16 zeigt in dunkelblau die mittlere Abweichung der Zielposition in Abhängigkeit von der Wartedauer bei einer Verfahrgeschwindigkeit von 10 mm/s und einer Schrittweite von 100 fs. Als Referenz ist in hellblau  $\Delta t$  mit eingeschalteter



**Abbildung 3.16:** Der dunkelblaue Graph zeigt die mittlere Abweichung der Zielposition des Verzögerungstisches bei einer Schrittweite von 100 fs und einer Geschwindigkeit von 10 mm/s in Abhängigkeit der Zeit bis zur Positionsauslese. Die hellblaue Kurve zeigt die mittlere Abweichung bei Verwendung der Kontrollschleife.

Kontrollschleife dargestellt. Bis zu einer Wartezeit von 400 ms fällt  $\Delta t$  von 5,7 fs auf 0,54 fs und bleibt für längere Wartezeiten auf einem Niveau von 0,6 fs.  $\Delta t$  ist für 400 ms doppelt so groß wie für den Fall mit Kontrollschleife, die Abweichung relativ zur Schrittweite ist allerdings ebenfalls kleiner als 1%. Die in dieser Arbeit präsentierten Daten sind mit einzelnen Ausnahmen unter Verwendung einer Wartezeit von 400 ms anstelle der Kontrollschleife entstanden. Die experimentelle Prozedur besteht aus folgenden Schritten: der lineare Verschiebetisch bekommt den Befehl, eine Position anzufahren, nach 400 ms erfolgt das Auslesen der Position und es folgt die Bestimmung der zu messenden Größe, bevor die Verzögerungsstrecke die nächste Position anfährt. Das Abspeichern der ausgelesenen Positionen bietet eine direkte und einfache Überwachung möglicher größerer Abweichungen. Ein Nachteil dieses Prinzips ist, dass die optimale Wartezeit für jedes Paar aus Verfahrensgeschwindigkeit und Wartezeit neu bestimmt werden muss.

Eine zweite Option neben der Verkürzung der Dauer der Verfahrensschritte ist die Reduktion ihrer Anzahl. Die Implementierung erfolgt über mehrmalige Messungen bei gleicher Zeitverzögerung  $t_0$ . Diese beiden Maßnahmen reduzieren die Dauer für fünf Messungen über ein Intervall von  $[-5 \text{ ps}, 25 \text{ ps}]$  von ungefähr 58 min auf etwa 10 min um einen Faktor von ungefähr 6.

Das in der Arbeit aufgebaute und in diesem Kapitel beschriebene Anrege-Abfrage-Spektroskop erfüllt sämtliche Anforderungen, die in Kapitel 2.1.3 formuliert wurden. Es eignet sich daher für zeitaufgelöste Experimente an antiferromagnetischen Materialien.



## 4. Zeitaufgelöste magneto-optische Experimente an Nickeloxid

Dieses Kapitel diskutiert unterschiedliche zeitaufgelöste magneto-optische Messungen an dem Antiferromagneten Nickeloxid. Ein wesentliches Ziel hierbei ist die Reproduktion bereits bekannter Messungen, um die Funktionalität des in Kapitel 3 beschriebenen Aufbaus sicherzustellen. Zusätzliche Experimente, wie die Abhängigkeit von der Proben­temperatur, werden vorgestellt.

Kapitel 4.1 erklärt den Auswerteprozess zur Bestimmung der Amplituden und Frequenzen der Spindynamiken. Dieser nutzt die Datenanpassung durch zwei gedämpfte Oszillationen in der Zeitdomäne, um die experimentellen Parameter zu bestimmen. Die Validierung des zeitaufgelösten magneto-optischen experimentellen Aufbaus erfolgt über die Reproduktion der Ergebnisse von drei verschiedenen Publikationen über unterschiedliche Aspekte der optischen Anregung sowie der magneto-optischen Eigenschaften des Antiferromagnets Nickeloxid. Diese sind:

- [Sat10a] demonstriert die kohärente optische Anregung und magneto-optische Detektion hoch- und niederfrequenter Magnonen im Zentrum der Brillouin-Zone bei kryogenen Temperaturen. Kapitel 4.2 zeigt die Reproduktion der Daten unter ähnlichen experimentellen Bedingungen.
- [Bos21a] untersucht den Einfluss des in Kapitel 2.2.1 diskutierten XM-Übergang auf die extrahierten Amplituden der induzierten Dynamiken, insbesondere auf die des THz-Magnon-Mode. Kapitel 4.3 zeigt die Amplituden der THz-Oszillationen für Anregewellenlänge zwischen 1160 nm und 1340 nm. Die gezeigten Daten sind zusammen mit Julian Bär im Rahmen seiner Masterarbeit [Bä22] entstanden.
- [Tzs17] diskutiert die für die Anregung und Detektion verantwortlichen magneto-optischen Effekte. Unter anderem wird der Einfluss der Anregepolarisation auf das magneto-optische Signal untersucht. Diese Messungen werden sowohl für die nieder- als auch für die hochfrequente Magnon-Mode in Abschnitt 4.4 wiederholt.

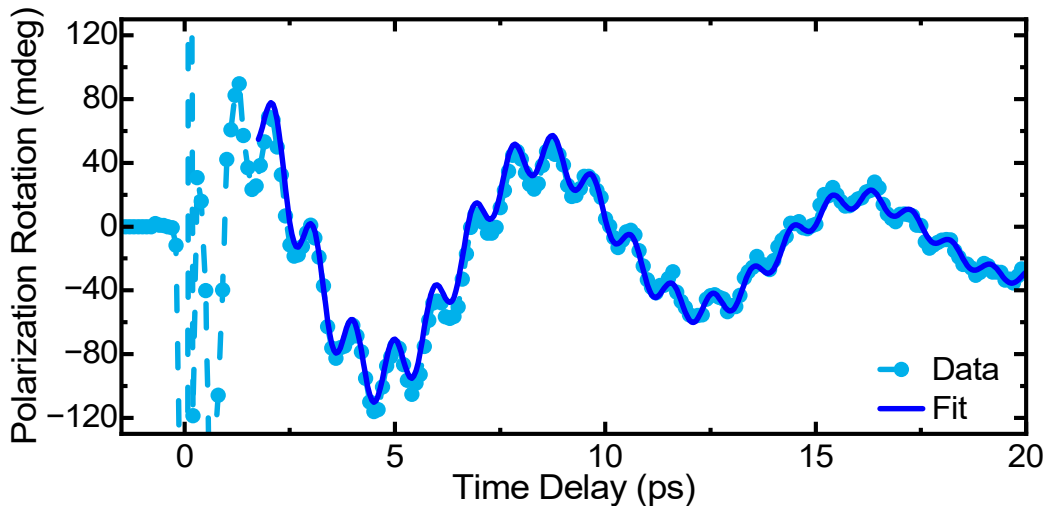
Der in den folgenden Kapiteln verwendete Mechanismus zur Erzeugung der Spindynamik ist die resonante Anregung des Exziton-Magnon-Übergangs (Abschnitt 2.2.1). Der Flusskryostat bietet hierbei die Möglichkeit, die Temperatur der Probe präzise zu kontrollieren. Abschnitt 4.5 behandelt die Abhängigkeit des magneto-optischen Signals von der Proben­temperatur.

## 4.1. Datenanalyse

Die quantitative Analyse der gemessenen magneto-optischen Signale erfolgt über eine Funktionsanpassung bestehend aus zwei gedämpften Oszillationen und einem konstanten Hintergrundsignal  $a$ . Daraus ergibt sich folgende Gleichung

$$F(t) = c + a_{\text{THz}} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{THz}}}} \sin(2\pi \cdot f_{\text{THz}}t + \varphi_{\text{THz}}) + a_{\text{GHz}} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{GHz}}}} \sin(2\pi \cdot f_{\text{GHz}}t + \varphi_{\text{GHz}}). \quad (4.1)$$

Dabei stehen  $a_{\text{THz}}$  und  $a_{\text{GHz}}$  für die Oszillationsamplituden beider Moden,  $\tau_{\text{THz}}$  und  $\tau_{\text{GHz}}$  die Lebensdauern sowie die Phasenverschiebungen  $\varphi_{\text{THz}}$  und  $\varphi_{\text{GHz}}$ .  $f_{\text{THz}}$  und  $f_{\text{GHz}}$  sind die Frequenzen der hoch- und der niederfrequenten Spindynamik und  $t$  ist die Verzögerungszeit. Sowohl die Oszillationsfrequenzen als auch die Lebensdauern werden im Voraus für die Funktionsanpassung festgelegt. Die Lebensdauer des Hintergrunds ist so groß im Vergleich zum Messintervall [0 ps, 25 ps], sodass diese für den Bereich der Anpassung von 2 ps bis 25 ps als konstant angenommen werden kann. Der Wert von  $a$  wird für jeden Datensatz bestimmt und entspricht dem Mittelwert der Messpunkte aus [20 ps, 25 ps]. Als Unsicherheit wird der Standardfehler verwendet. Die Wahl des Integrals minimiert im Gegensatz zu einem einzelnen Wert den Einfluss der Magnonen und insbesondere die der niederfrequenten GHz-Oszillationen auf die Bestimmung der horizontalen Verschiebung  $c$ . Damit reduziert sich die Zahl der freien Parameter auf die folgenden vier  $a_{\text{THz}}$ ,  $a_{\text{GHz}}$ ,  $\varphi_{\text{THz}}$  und  $\varphi_{\text{GHz}}$ .



**Abbildung 4.1.:** Der hellblaue Datensatz zeigt exemplarisch einen Datensatz der Polarisationsrotation aufgetragen über der Verzögerungszeit zwischen Anrege- und Abfrageimpulsen. In dunkelblau ist die zugehörige Funktionsanpassung bestehend aus zwei gedämpften Schwingungen dargestellt.

Der dunkelblaue Graph in Abbildung 4.1 zeigt die Funktionsanpassung exemplarisch für einen Datensatz der Polarisationsrotation in hellblau. Die Messung erfolgte bei einer Proben temperatur von 10 K, einer Anregezentralwellenlänge von 1265 nm und einer Zentralwellenlänge der Abtastimpulse von 750 nm. Die Polarisation der beiden Impulszüge ist linear und hat für die Anregung einen Winkel von  $0^\circ$  zur Strahlebene (p-polarisiert) und den Abtastimpuls  $30^\circ$ . Die Anregefluenz beträgt  $24,1 \text{ mJ/cm}^2$ . Um eine bessere Sichtbarkeit der THz-Oszillationen zu erzielen, werden in den folgenden Kapiteln einzelne Datensätze gezeigt, bei denen die Dynamik der niederfrequenten Magnon-Mode und der konstante Hintergrund subtrahiert wurden. Eine Funktionsanpassung mit

$$F_{\text{BG}}(t) = a + a_{\text{GHz}} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_{\text{GHz}}}} \sin(2 \cdot \pi f_{\text{GHz}} t + \varphi_{\text{GHz}}). \quad (4.2)$$

bestimmt die Beiträge des Hintergrunds und der niederfrequenten. Für den Fall, dass der exponentielle Abfall auf der Zeitskala der Messung einen Einfluss hat, wird die Gleichung um den Term  $a_{\text{BG}} \cdot \exp(-t/\tau_{\text{BG}})$  erweitert.

## 4.2. Magnonen in Nickeloxid

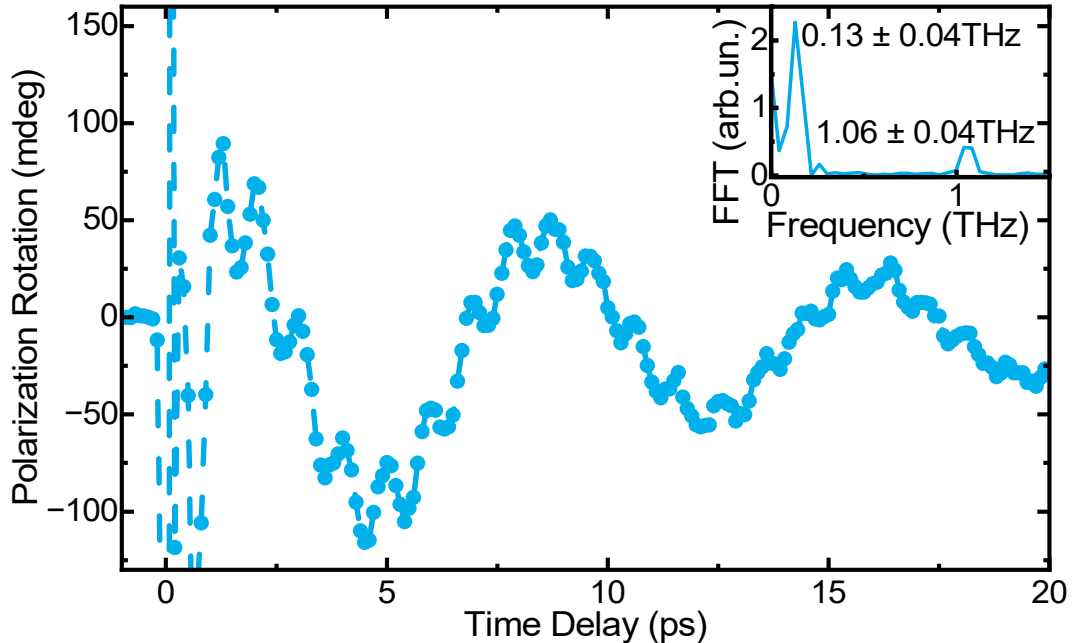
Ein erster Test für die Funktionalität des experimentellen Aufbaus ist die Erzeugung und Detektion kohärenter Magnonen in Nickeloxid bei kryogenen Temperaturen von 10 K und damit die Reproduktion der Messungen aus [Sat10a, Tzs17].

Analog zu den beiden Publikationen erfolgt die Magnonanregung über den in Abschnitt 2.2.1 beschriebenen Exziton-Magnon-Übergang. Die Zentralwellenlänge der Anregeimpulse entspricht dafür 1265 nm bei einer Impulsdauer von 108 fs und einer spektralen Halbwertsbreite von 32 nm. Die elektrische Feldkomponente der Anregeimpulse schwingt in der horizontalen Ebene (Abbildung A.3). Die Anregefluenz beträgt  $F = 24,1 \text{ mJ/cm}^2$ . Die Abtastimpulse besitzen eine Abtastwellenlänge von 750 nm mit einer Impulsdauer von 38,5 fs und einer Bandbreite von 28 nm. Die Polarisationsachse des Abtaststrahls ist um  $150^\circ$  rotiert relativ zur Anregepolarisation. Als Probe dient ein  $50 \mu\text{m}$  dünner, in [111]-Richtung geschnittener NiO-Einkristall. Die Temperatur der Probe ist 10 K. Die Messung findet auf der in rot markierten Domäne in Abbildung 2.7 statt.

Das verwendete Detektionsschema besteht aus der balancierten, magneto-optischen Detektion in Kombination mit dem in Kapitel 3.5.5 beschriebenen Digitalisierer.

Abbildung 4.2 zeigt in dunkelblau die Polarisationsrotation der Abtastimpulse in Abhängigkeit der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abtastrahlen. Nach dem Überlapp sind zwei Oszillationen erkennbar. Der Einsatz in Abbildung 4.2 zeigt die schnelle Fouriertransformation (engl.: fast Fourier transformation; FFT) der Daten für Zeitverzögerungen größer als 2 ps. Die spektrale Signatur bei  $1,06 \pm 0,01 \text{ THz}$  kann der hochfrequenten Magnonmode mit einer Frequenz von  $1,07 \text{ THz}$  [Sat10a] zugeordnet werden. Das zweite, niederfrequente Maximum der schnellen Fourier-Transformation liegt bei  $130 \pm 40 \text{ GHz}$  und entspricht der Frequenz der niederfrequenten Magnonmode [Sat10a].

Eine Analyse mit einer Funktionsanpassung in der Zeitdomäne liefert für die beiden Frequenzen  $f_{\text{THz}} = 1,060 \pm 0,001 \text{ THz}$  und  $f_{\text{GHz}} = 134 \pm 2 \text{ GHz}$ . Die verwendete Anpassungsfunktion ist Gleichung 4.1, mit den freien Parametern  $f_i$ ,  $\varphi_i$  und  $a_i$  mit  $i \in \{\text{THz}, \text{GHz}\}$ . Die zugehörigen Unsicherheiten der extrahierten Parameter sind die aus der Funktionsanpassung bestimmten Standardfehler.



**Abbildung 4.2.:** Polarisationsrotation in Abhängigkeit der Zeitverzögerung bei einer Proben temperatur von 10 K und resonanter Anregung. Der Einschub zeigt die schnelle Fouriertransformation. Die ermittelte Frequenz der hochfrequenten Oszillation ist  $1,06 \pm 0,01 \text{ THz}$  und die der niederfrequenten beträgt  $130 \pm 40 \text{ GHz}$ .

Sowohl die mit der schnellen Fourier-Transformation bestimmten als auch die über die Funktionsanpassung ermittelte Frequenz des hochfrequenten Magnons sind in Übereinstimmung mit [Sat10a]. Die niederfrequente Oszillation liegt ebenfalls im Bereich der Werte aus [Sat10a] und weicht lediglich um 3% ab.

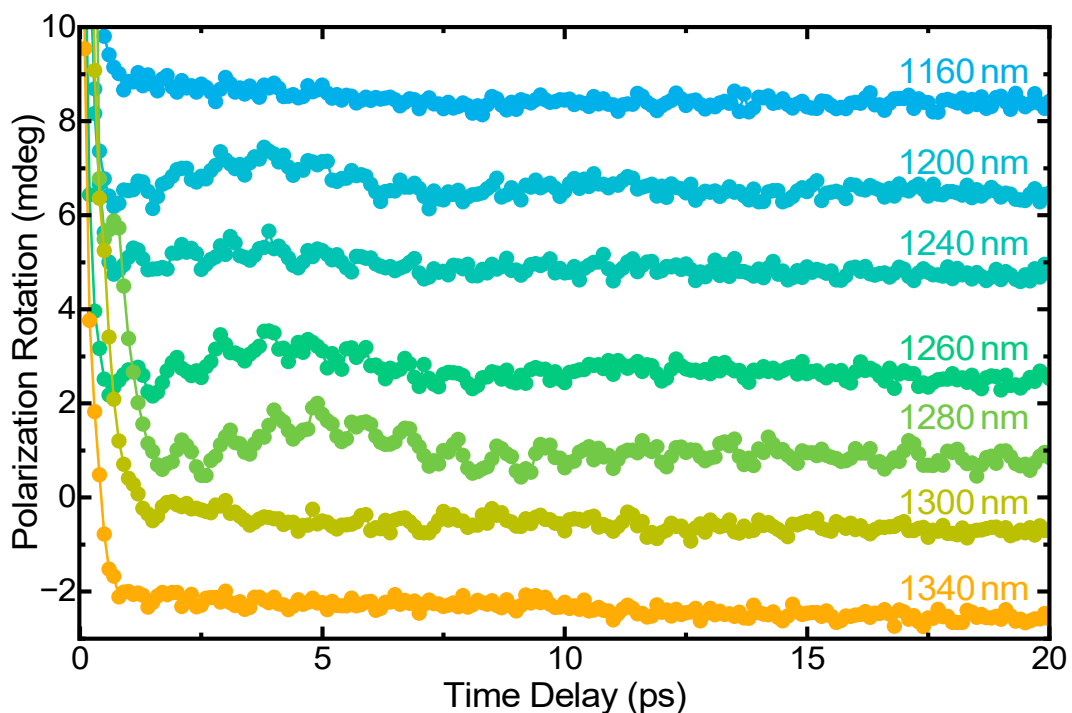
Die Möglichkeit der Erzeugung und Detektion der Magnonen und der damit verbundenen Reproduktion der Ergebnisse von [Sat10a] demonstriert die Funktionalität des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Aufbaus (Kapitel 3).

### 4.3. Abhängigkeit von der Anregewellenlänge

Der in Kapitel 2.2.1 beschriebene XM-Übergang lässt sich nutzen, um Spindynamiken in NiO optisch anzuregen [Bos21a]. Die spektrale Variation im Bereich des

XM-Übergangs erfüllt zwei Aufgaben. Einerseits überprüft sie nochmals den experimentellen Aufbau durch die Reproduktion der Ergebnisse aus [Bos21a]. Andererseits identifiziert sie die effizienteste Anregewellenlänge für Spindynamiken in Nickeloxid. Die in diesem Abschnitt gezeigten Daten sind im Rahmen der Masterarbeit von Julian Bär [Bä22] entstanden und wurden dort bereits präsentiert.

Die in [Bos21a] verwendete Probe ist ein 100  $\mu\text{m}$ -dünner entlang der [111]-Ebene geschnittener NiO-Einkristall. Die Variation der Anregungswellenlänge erfolgte zwischen ungefähr 1170 nm und etwa 1350 nm, bei einer gleichbleibenden Anregefluenz von 10  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  und einer Abtastwellenlänge von 800 nm. Die Probertemperatur betrug 77 K, sodass sich Nickeloxid in der vollständig kompensierten antiferromagnetischen Phase befindet ( $T_N = 525 \text{ K}$  [New59]).



**Abbildung 4.3.:** Induzierte Polarisationsrotation der Abtastimpulse ( $\lambda = 1026 \text{ nm}$ ) in Abhängigkeit der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abtastimpulsen für verschiedene Anregewellenlängen zwischen 1160 nm und 1340 nm. Eine Verschiebung der einzelnen Graphen entlang der y-Achse sorgt für eine bessere Übersichtlichkeit.

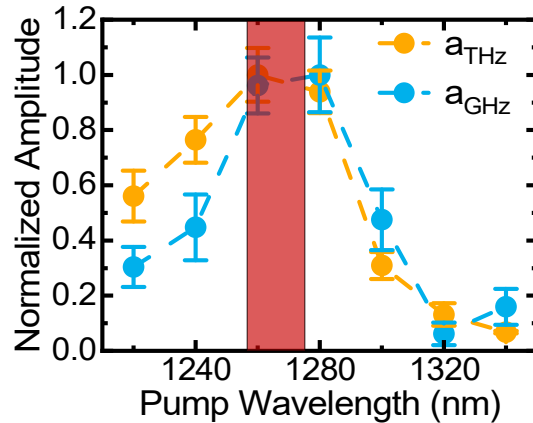
In dieser Forschungsarbeit stellt der OPA1 (Kapitel 3.3.3) die Anregeimpulse mit Zentralwellenlängen zwischen 1160 nm und 1340 nm und einer Fluenz von 10  $\text{mJ}/\text{cm}^2$  bereit. Als Abfragestrahl dient die Fundamentale des regenerativen Yb:KGW-Verstärkers mit einer Zentralwellenlänge von 1026 nm. Das verwendete Detektionsschema ist eine Kombination aus balancierter magneto-optischer Detektion, siehe Kapitel 3.5.1 und dem analogen Trägerfrequenzverstärker, siehe Abschnitt 3.5.4. Die verwendete Probe ist ein 33  $\mu\text{m}$ -dünner in [111] geschnittener NiO-Einkristall bei einer

Temperatur von 10 K.

Abbildung 4.3 zeigt die durch den XM-Übergang induzierten Spindynamiken für unterschiedliche Anregewellenlängen in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Für 1160 nm (blau) und 1340 nm (orange) sind keine Oszillationen erkennbar, während sowohl die GHz- als auch die THz-Mode für 1260 nm und 1280 nm maximal sind.

Die weitergehende Auswertung erfolgt über die Kurvenanpassung anhand Gleichung

**Abbildung 4.4:** Auf das jeweilige Maximum normierte Amplitude der Dynamik des hochfrequenten  $a_{\text{THz}}$  in orange und die der niederfrequenten Dynamik  $a_{\text{GHz}}$  in hellblau aufgetragen über der Anregewellenlänge. Die Unsicherheit der Amplitude entspricht dem Standardfehler der Funktionsanpassung. Das rote Rechteck zeigt die spektrale Bandbreite des Anregeimpulses.



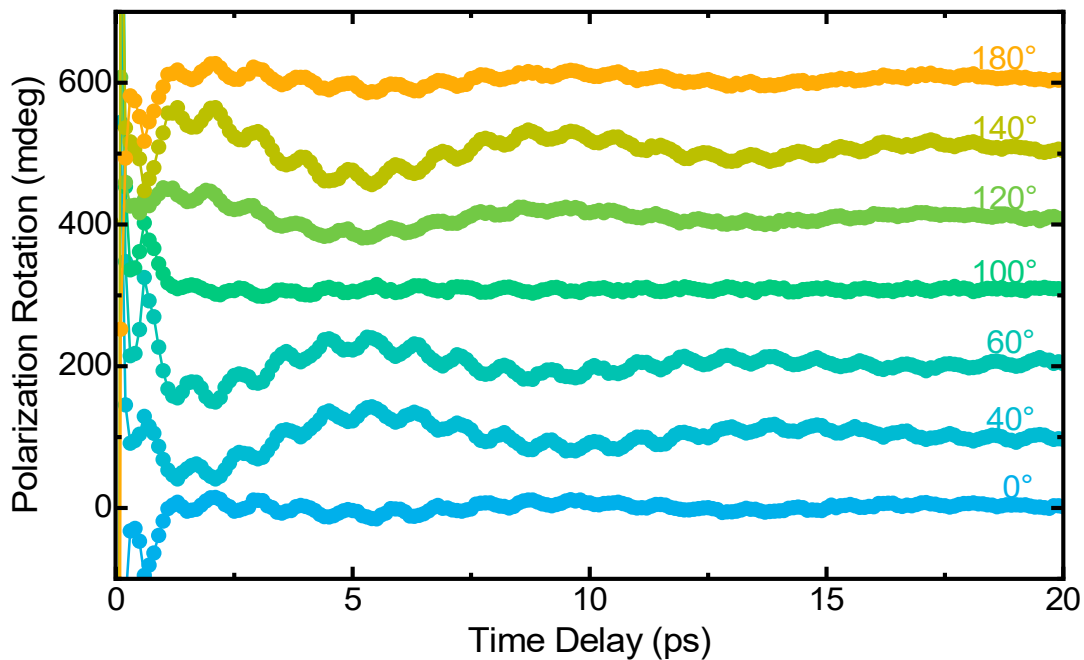
4.1. Abbildung 4.4 zeigt die so ermittelten, normierten Werte für die Magnonamplituden  $a_{\text{THz}}$  in orange und  $a_{\text{GHz}}$  in hellblau in Abhängigkeit der Zentralwellenlänge der Anregeimpulse. In beiden Fällen liegt das Maximum zwischen 1260 nm und 1280 nm, das mit der spektralen Position des XM-Übergangs übereinstimmt [Bos21a]. Die höchste Amplitude der hochfrequenten Dynamik bei einer Anregewellenlänge von  $\lambda_{\text{Pump}} = 1265$  nm beträgt  $a_{\text{THz}} = 0,36 \pm 0,10$  mdeg. Für  $\lambda_{\text{Pump}}$  fern des XM-Übergangs zeigen sich keine Anzeichen kohärenter Magnonen. Obwohl das GHz-Magnon nicht über den XM-Übergang angeregt wird, ist dieses dennoch in den Messungen zu sehen und zeigt ebenfalls eine Abhängigkeit der Anregewellenlänge. Die GHz-Mode lässt sich innerhalb einer einzelnen  $T$ -Domäne lediglich über den ISRS-Prozess anregen [Bos21a]. Die maximale Amplitude ist  $a_{\text{GHz}} = 0,65 \pm 0,14$  mdeg bei einer Anregewellenlänge von 1280 nm. Dies widerspricht dem Umstand, dass  $a_{\text{GHz}}$  innerhalb einer einzelnen antiferromagnetischen Domäne für Anregewellenlängen unterhalb der Bandlücke unabhängig von  $\lambda_{\text{Pump}}$  ist [Bos14]. Eine mögliche Erklärung dieses Zusammenhangs ist die Kopplung über eine nichtlineare magnetoelastische Wechselwirkung zwischen der THz-Mode und der Domänenwandmode [Gom21]. Dies ist gleichzusetzen mit der Tatsache, dass die Messungen nicht wie angenommen innerhalb einer einzelnen Domäne stattgefunden haben, sondern in einem Multi- $T$ -Domänen-Zustand.

Insbesondere der Verlauf von  $a_{\text{THz}}$  entspricht dem in [Bos21a] beobachteten Verhalten und bestätigt erneut die Funktionalität des selbstkonzipierten Aufbaus. Das in Abbildung 4.4 eingezeichnete rote Rechteck stellt die volle Halbwertsbreite der Anregeimpulse für eine Zentralwellenlänge von 1265 nm dar. Diese beträgt 19,2 nm. Diese Konfiguration wird in sämtlichen folgenden Messungen, bei denen über den

XM-Übergang angeregt wird, als Anregewellenlänge verwendet, da  $a_{\text{THz}}$  im Bereich zwischen 1260 nm und 1280 nm maximal ist.

## 4.4. Anregepolarisationsabhängigkeit

Im Folgenden wird der Einfluss der Polarisation der Anregeimpulse auf die Amplituden des GHz- und des THz-Magnons untersucht und damit die Ergebnisse von Tzschaschel et al. [Tzs17] reproduziert.

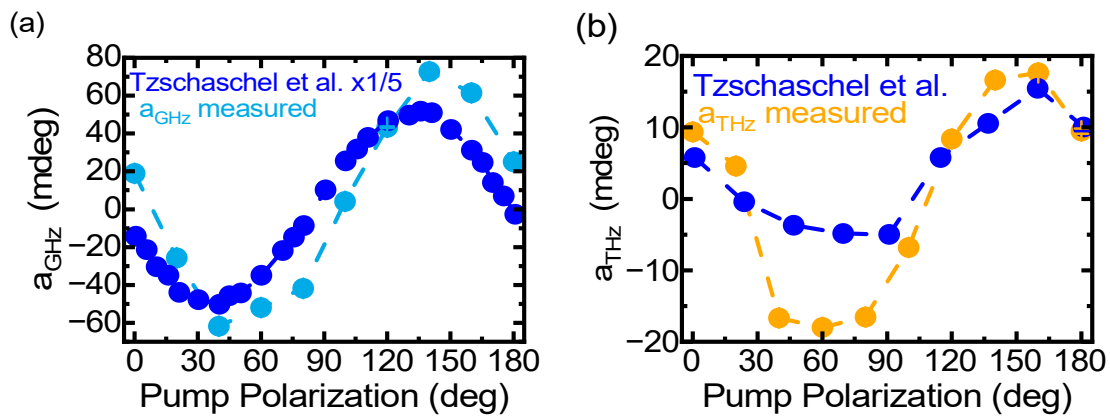


**Abbildung 4.5.:** Induzierte Polarisationsrotation aufgetragen über der Verzögerungszeit für verschiedene Anregepolarisationen von  $0^\circ$  bis  $180^\circ$  von blau nach orange. Für eine bessere Übersichtlichkeit sind die Kurven vertikal verschoben. Die Proben temperatur beträgt 10 K.

Die Erzeugung der Magnonen erfolgt analog zur Literatur über den XM-Übergang mit linear polarisierten Anregeimpulsen bei einer Zentralwellenlänge von 1265 nm. Diese werden durch den in Kapitel 3.3.3 beschriebenen OPA bereitgestellt. Die verwendete Anregefluenz beträgt  $24,1 \text{ mJ/cm}^2$ . Die Abtastimpulse besitzen eine Zentralwellenlänge von 750 nm und sind im Gegensatz zu [Tzs17] linear polarisiert. Die elektrische Feldkomponente der Anregeimpulse schwingt in der horizontalen Ebene. Die verwendete Probe ist ein entlang [111] geschnittener NiO-Einkristall mit einer Dicke von  $50 \mu\text{m}$ . Die Proben temperatur beträgt 10 K. Das Detektionsschema besteht aus der balancierten Detektion für magneto-optische Effekte (Kapitel 3.5.1) und dem Digitalisierer (Kapitel 3.5.5).

Abbildung 4.5 zeigt eine Auswahl der Graphen der gemessenen Polarisationsrotation in Abhängigkeit der Verzögerungszeit für unterschiedliche Anregepolarisationen. Diese wird zwischen  $0^\circ$  in Blau und  $180^\circ$  in Orange in Schritten von  $30^\circ$  variiert.  $0^\circ$  entspricht der Polarisationssebene in horizontaler Richtung (Anhang A.3).

Die Graphen in Abbildung 4.5 zeigen zwei Oszillationen, die den beiden Magnonen zugeordnet werden können. Die Spindynamik des THz-Magnons ist in allen Graphen beobachtbar und wechselt ihr Vorzeichen. Man erkennt, dass sich das Vorzeichen der Amplitude zwischen  $0^\circ$  und  $40^\circ$  und zwischen  $100^\circ$  und  $120^\circ$  ändert. Die niederfrequente Oszillation ändert ebenfalls das Vorzeichen zwischen  $0^\circ$  und  $40^\circ$  und zwischen  $100^\circ$  und  $120^\circ$ .



**Abbildung 4.6.:** Magnonamplituden in Abhängigkeit der Anregepolarisation. (a) zeigt in hellblau die experimentell bestimmten Amplituden des GHz-Magnon. In Dunkelblau sind die Werte aus [Tzs17] dargestellt. Für eine bessere Vergleichbarkeit des Verlaufs wurden diese um  $90^\circ$  verschoben und durch einen Faktor fünf dividiert. (b) stellt in orange den bestimmten Wert von  $a_{\text{THz}}$  dar und zeigt in blau ebenfalls die Ergebnisse aus [Tzs17]. Diese wurden um einen Wert von  $+60^\circ$  verschoben.

Die quantitative Analyse erfolgt ebenfalls über eine Kurvenanpassung mit Gleichung 4.1. Für eine bessere Anschaulichkeit werden die Werte der Amplituden mit denen für die Phasenverschiebung folgendermaßen kombiniert

$$a_i = a_{i,\text{fit}} \cdot \cos(\varphi_{i,\text{fit}}). \quad (4.3)$$

Der Index  $i$  steht hier für das GHz- oder das THz-Magnon-Mode. Abbildung 4.6 (a) zeigt in hellblau die so bestimmten Amplituden des GHz-Magnons aufgetragen über die Anregepolarisation. Diese folgen einem sinusförmigen Verlauf mit einer Periodizität von  $180^\circ$  und einer maximalen Amplitude von  $72,7 \pm 0,6$  mdeg für einen Winkel der Anregepolarisation von  $140^\circ$ . Als Unsicherheiten dienen die Standardfehler aus der Funktionsanpassung. Diese sind so klein, dass sie fast vollständig hinter den Punkten liegen. Der dunkelblaue Graph zeigt die GHz-Amplituden aus Tzschaschel et al. [Tzs17]. Die Multiplikation mit einem Faktor von  $1/5$  und die Verschiebung

um  $90^\circ$  sorgen für eine bessere Vergleichbarkeit der Verläufe. In beiden Fällen ergibt sich für die Amplituden der Zusammenhang

$$a_{\text{GHz}} \propto \sin(2 \cdot (\alpha + \delta)), \quad (4.4)$$

mit dem Anregepolarisationswinkel  $\alpha$  (Anhang A.3) und einer Phasenverschiebung  $\delta$ . Zum einen besteht die Möglichkeit eines Vorzeichenwechsels durch die Balancierung der magneto-optischen Detektion (Anhang A.2). Das entspricht einer Phasenverschiebung von  $90^\circ$ . Zum anderen führt die unterschiedliche Verteilung der  $S$ -Domänen innerhalb des untersuchten Kristallvolumens zu einer Phasenverschiebung  $\delta$  [Tzs17].

Abbildung 4.6 (b) zeigt in dunkelblau den Verlauf der THz-Amplituden aus [Tzs17] in Abhängigkeit der Anregepolarisation. Die experimentell bestimmten Werte sind in orange dargestellt. Die maximale Amplitude liegt mit einem Wert von  $a_{\text{THz}} = 18,0 \pm 0,6$  mdeg bei einem Anregepolarisationswinkel von  $60^\circ$ . Die angegebenen Unsicherheiten entsprechen, analog zur kohärenten Spindynamik der GHz-Magnon-Mode, dem Standardfehler des Parameters  $a_{\text{THz}}$  der Funktionsanpassung. Die Verschiebung des dunkelblauen Graphen um  $60^\circ$  entlang der x-Achse dient der besseren Vergleichbarkeit des Verlaufs beider Graphen. Die Abhängigkeit des THz-Magnons genügt ebenfalls dem in Gleichung 4.4 skizzierten Verhalten.

Die Übereinstimmung der Verläufe der Amplituden beider Spindynamiken in Abhängigkeit der Anregepolarisation mit dem Verlauf aus [Tzs17] bestätigt ein drittes Mal die Funktionalität des zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskops. Die Abweichungen der Magnonamplituden haben ihre Ursache in den unterschiedlichen experimentellen Parametern wie beispielsweise der Anregefluenz, den Impulsdauern und der Probendicke. Die Phasenverschiebungen haben, wie bereits erwähnt, ihre Ursache in der Verteilung der  $S$ -Domänen innerhalb des Probenvolumens.

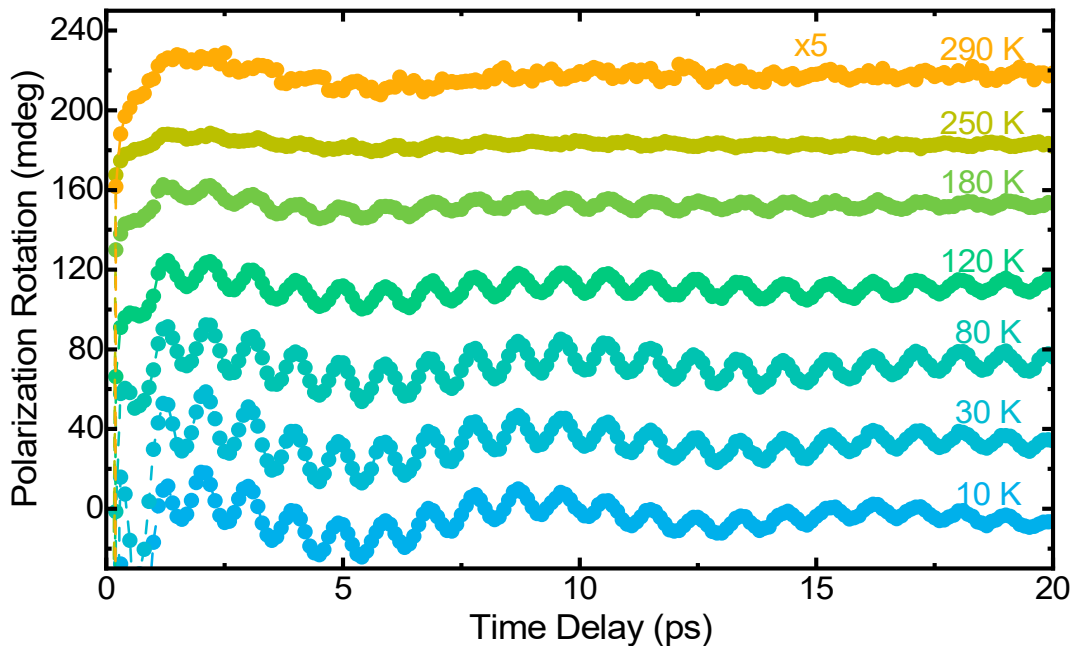
Die im Vergleich zu den in Abbildung 4.4 gezeigten Daten größeren Magnonamplituden haben mehrere Ursachen. Die hier verwendete Probe ist mit  $50 \mu\text{m}$  dicker und damit die Wechselwirkungslänge größer als die in Kapitel 4.3. Weiter ist die Anregefluenz ungefähr einen Faktor 2,5 größer.

## 4.5. Temperaturabhängigkeit der Spindynamiken

Dieses Kapitel untersucht die Magnonmoden in Abhängigkeit von der Probertemperatur. Um das bestmögliche Signal zu erhalten, findet die Anregung über den XM-Übergang statt. Das Spektrum der Anregeimpulse ist daher um  $1265 \text{ nm}$  zentriert mit einer spektralen Bandbreite von  $32 \text{ nm}$  und einer Impulsdauer von  $108 \text{ fs}$ . Die Impulse sind linear p-polarisiert und die Anregefluenz beträgt  $24,1 \text{ mJ/cm}^2$ . Die Zentralwellenlänge der Abtastimpulse entspricht  $750 \text{ nm}$ , mit einer Bandbreite von  $28 \text{ nm}$  und einer Impulsdauer von  $38,5 \text{ fs}$ . Die Abtastfluenz ist erheblich niedriger als die der Anregeimpulse. Die Abtaststrahlen sind ebenfalls p-polarisiert.

Die Detektion besteht aus der balancierten magneto-optischen Detektion (Abschnitt 3.5.1) und dem Digitalisierer. Die untersuchte Probe ist ein entlang der  $[111]$ -Ebene geschnittener NiO-Einkristall mit einer Dicke von  $50\ \mu\text{m}$ . Die Messungen erfolgen in der in Abbildung 2.7 rot markierten  $T_0$ -Domäne.

Der PID-Regelkreis der Temperaturkontrolleinheit des Kryostats (Abschnitt 3.4) kontrolliert und variiert in Kombination mit dem Heizwiderstand die Proben temperatur zwischen  $10\ \text{K}$  und  $290\ \text{K}$ . Die Messung der Datensätze erfolgt von niedrigen zu hohen Temperaturen. Abbildung 4.7 zeigt eine Auswahl der detektierten Polarisationsrotationen in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung. Der bei Raumtemperatur ( $290\ \text{K}$ ) ermittelte Graph ist um einen Faktor fünf vergrößert.

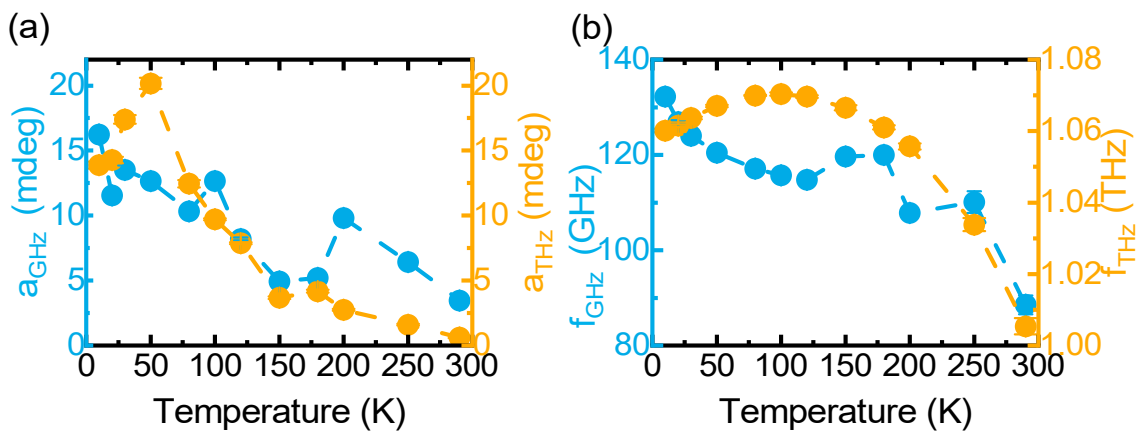


**Abbildung 4.7.:** Polarisationsrotation in Abhängigkeit der Zeitverzögerung für verschiedene Proben temperaturen verschoben in vertikaler Richtung zwischen  $10\ \text{K}$  in blau und  $290\ \text{K}$  in orange. Das Signal bei  $290\ \text{K}$  ist für eine bessere Sichtbarkeit um einen Faktor fünf vergrößert.

Die kohärente Spindynamik der Magnonmoden ist für alle Proben temperaturen sichtbar, wobei die Amplituden beider Moden mit steigender Temperatur abnehmen.  $a_{\text{GHz}}$  und  $a_{\text{THz}}$  sind bis zu einer Temperatur von  $80\ \text{K}$  konstant und nehmen für höhere Temperaturen ab. Die Kurvenanpassung mit zwei gedämpften Oszillationen (Gleichung 4.1) liefert eine quantitative Analyse der Amplituden  $a_{\text{GHz}}$  und  $a_{\text{THz}}$ . Die Frequenzen von Spinwellen ändern sich mit der Temperatur und es gilt für Hauptachsenantiferromagneten: je höher die Temperatur, desto niedriger sind die Oszillationsfrequenzen [Nag69b]. Nickeloxid ist im Gegensatz dazu kein Hauptachsen-AFM, sondern ein Easy-Plane-AFM. Die temperaturabhängige Änderung der Frequenzen lässt sich durch das Hinzufügen von  $f_{\text{GHz}}$  und  $f_{\text{THz}}$  zu den freien Parametern be-

rücksichtigen.

Abbildung 4.8 (a) zeigt die extrahierten Amplituden des GHz-Magnons in blau und die des THz-Magnons in orange in Abhängigkeit von der Proben­temperatur.  $a_{\text{GHz}}$  zeigt bis auf die Datensätze bei 150 K und 180 K eine lineare Reduktion der Oszillationsamplitude. Das Maximum bei 10 K ist von  $17,0 \pm 0,2$  mdeg und der minimale Wert von  $3,9 \pm 0,1$  mdeg bei einer Temperatur von 290 K. Die Amplitude verkleinert sich damit um einen Faktor von ungefähr 4,3 über den untersuchten Temperaturbereich. Eine mögliche Ursache für die Abweichung der Amplituden bei den Temperaturen von 150 K und 180 K vom linearen Verlauf ist die thermische Expansion der Probe bei steigenden Temperaturen. Dadurch ändert sich die untersuchte Position auf der Probe.



**Abbildung 4.8.:** (a) Oszillationsamplituden in Abhängigkeit der Proben­temperatur. Der hellblaue Graph zeigt die Amplituden des GHz- und die orangene die des THz-Magnons. Eine Funktionsanpassung liefert die jeweiligen Werte. (b) zeigt die über die Funktionsanpassung bestimmten Magnonfrequenzen. Hierbei stellt der blaue Datensatz  $f_{\text{GHz}}$  und der orangene  $f_{\text{THz}}$  dar.

Der hellblaue Datensatz des THz-Magnons besitzt ein Maximum bei  $T = 50$  K mit  $a_{\text{THz}} = 20,1 \pm 0,2$  mdeg. Die minimale Amplitude bei Raumtemperatur ist  $a_{\text{THz}} = 0,70 \pm 0,05$  mdeg. Ursachen für die Reduktion der Amplituden sind unter anderem die Abnahme der Magnetisierung der Untergitter mit steigender Temperatur [Nag69a]. Eine mögliche Ursache für den Anstieg der Amplitude bis zu einer Proben­temperatur von 50 K ist die Temperaturabhängigkeit des Dielektrischen Tensors in Gleichung 2.6. Da dieses Phänomen lediglich für das THz-Magnon sichtbar ist, kann ein Zusammenhang mit dem XM-Übergang nicht ausgeschlossen werden. Für eine Überprüfung benötigt es weitere Untersuchungen, welche im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt wurden.

Abbildung 4.8 (b) zeigt die extrahierten Frequenzen des hochfrequenten Magnons (orange) und der niederfrequenten Spinoszillation (hellblau) aufgetragen über der Temperatur. Die Energien und damit auch die Frequenzen sinken für Magnonen für

Antiferromagneten mit einer Hauptachse für steigende Temperaturen [Nag69b]. Das trifft auf die extrahierte Frequenz des GHz-Magnons zu, mit einer maximalen Frequenz von  $132 \pm 4$  GHz bei der niedrigsten Temperatur von 10 K und der niedrigsten Frequenz von  $89 \pm 2$  GHz bei 290 K. Das Maximum der hochfrequenten Oszillation liegt im Gegensatz dazu bei  $1,070 \pm 0,004$  THz bei 100 K. Um die genaue Ursache hierfür zu finden, werden weitergehende Untersuchungen benötigt.

Die in diesem Kapitel präsentierten Datensätze demonstrieren die Funktionalität des zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskops. Die temperaturabhängigen Messungen zeigen, dass sowohl die Amplituden als auch die Frequenzen der Magnonen mit steigender Temperatur abnehmen. Selbst bei Raumtemperatur und den damit verbundenen inkohärenten Störeffekten wie der Magnon-Phonon-Streuung [Boz20] und der thermischen Besetzung der Magnonmoden erkennt man die Spindynamik deutlich. Das demonstriert die hohe Sensitivität des entwickelten experimentellen Aufbaus. Das folgende Kapitel 5 überträgt die, an diesen Messungen optimierte Detektion auf die Untersuchung der relativen Transmissionsänderung in Nickeloxid.

## 5. Kohärente Modulation der relativen Transmissionsänderung durch Magnonen

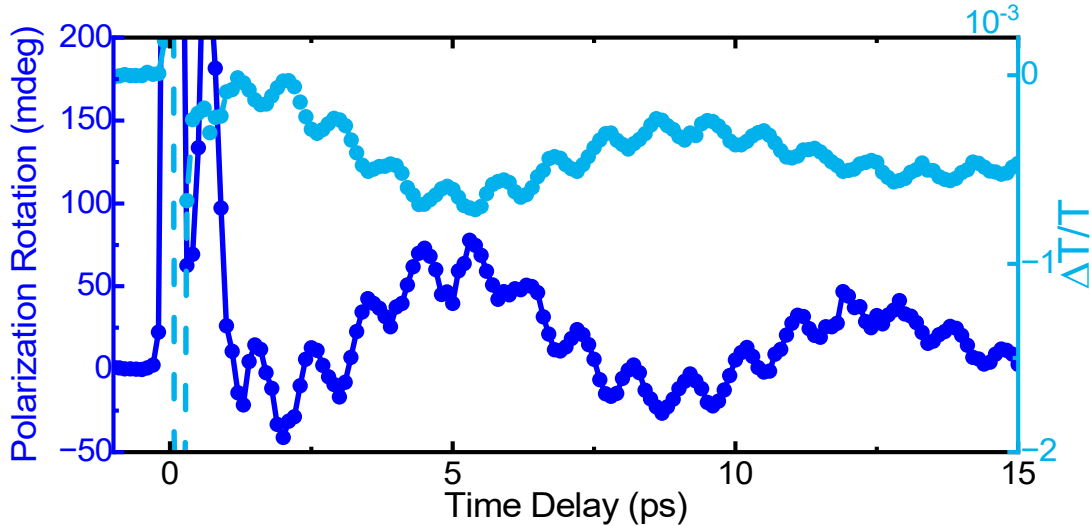
Ein wichtiger Baustein in der Spintronik ist die Konversion der Informationen des Spinsystems in auslesbare elektronische Informationen. Diese lassen sich im Anschluss mit der etablierten, herkömmlichen Elektrotechnik verarbeiten. Eine intrinsische Modulation des Ladungssystems durch das Spinsystem bietet eine schnelle, effiziente und verlustfreie Konversion von Informationen.

Ein erster Schritt zur Untersuchung dieser Kopplung ist die Messung der differentiellen Transmission. Hierfür wiederholt man das in Kapitel 4.2 beschriebene Experiment, wobei man die magneto-optische Detektion durch einen Aufbau der differentiellen Transmissionsänderung ersetzt. Dieses Experiment wurde ohne das balancierte Schema bereits in [Sat10a] durchgeführt und zeigte keine Modulation der Transmission. Die gesteigerte Auflösung der balancierten Detektion von etwa  $\Delta T/T \approx 10^{-4}$  auf etwa  $\Delta T/T \approx 10^{-6}$  um ungefähr zwei Größenordnungen erlaubt die Detektion kleinster Änderungen und so die Messung etwaiger zeitabhängiger Transmissionsänderungen.

### 5.1. Magnonen in differentieller Transmissionsänderung

Dieses Kapitel zeigt die Daten des bereits in Kapitel 4.2 für die magneto-optischen Effekte gezeigten Experiments mit denselben Parametern. Die Anregung erfolgt über den XM-Übergang und damit einer Zentralwellenlänge des Anregestrahls von 1265 nm. Die Impulsdauer beträgt 108 fs bei einer spektralen Bandbreite von 32 nm und einer Fluenz von  $F = 24,1 \text{ mJ/cm}^2$ . Die Anregeimpulse sind horizontal und damit parallel zur Strahlenebene polarisiert. Die Abtastimpulse haben eine Zentralwellenlänge von 750 nm mit Impulsdauern von 38,5 fs bei einer Bandbreite von 28 nm und ihre Polarisation ist im Vergleich zur Anregepolarisation um  $150^\circ$  rotiert. Die Nickeloxid-Probe ist dieselbe wie bei den Polarisationsrotationsmessungen in Kapitel 4 mit einer Dicke von  $50 \mu\text{m}$ , geschnitten entlang der [111]-Ebene. Die

für die  $\Delta T/T$ -Messungen verwendete experimentelle Konfiguration ist die balancierte Detektion für Transmissionsänderungen (Abschnitt 3.5.2) mit dem Digitalisierer (Abschnitt 3.5.5). Die Temperatur der Probe beträgt 10 K.

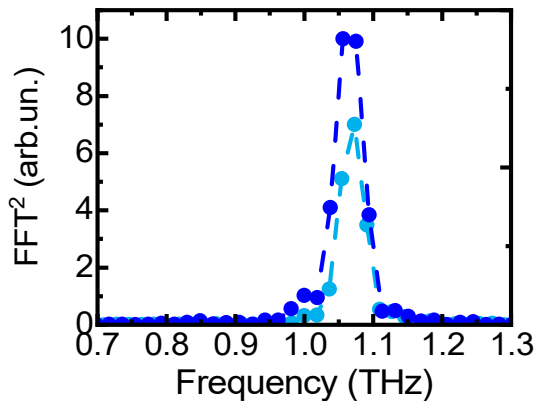


**Abbildung 5.1.:** In Dunkelblau ist die Polarisationsrotation aufgetragen über der Zeitverzögerung. Der hellblaue Graph zeigt die relative Transmissionsänderung in Abhängigkeit der Zeitverzögerung. Die Temperatur der NiO-Probe beträgt 10 K.

Abbildung 5.1 zeigt in dunkelblau die magneto-optisch induzierte Polarisationsrotation in Abhängigkeit der Zeitverzögerung. Für positive Verzögerungen sind sowohl das THz- als auch das GHz-Magnon deutlich erkennbar. Der hellblaue Graph zeigt die gemessene relative Transmissionsänderung. Dieser Datensatz zeigt ebenfalls eine hochfrequente und eine niederfrequente Oszillation. Die Bestätigung der Magnonfrequenzen erfolgt für beide Schwingungen über eine Funktionsanpassung mit Gleichung 4.1 und einer schnellen Fourier-Transformation für die hochfrequente Mode. Da die Datensätze nur wenige Perioden des GHz-Magnon erfassen, eignet sich die schnelle Fouriertransformation nicht für eine exakte Bestimmung der niederfrequenten Magnonfrequenz.

Abbildung 5.2 zeigt das quadrierte Ergebnis der schnellen Fourier-Transformation im Bereich um die Frequenz des THz-Magnons von 1,07 THz [Sat10a]. Der dunkelblaue Graph zeigt das  $\text{FFT}^2$  der Polarisationsrotationsmessung und der hellblaue zeigt die schnelle Fouriertransformation der relativen Transmissionsänderung. Die daraus ermittelten Frequenzen sind für die Rotation  $1,06 \pm 0,01$  THz und für  $\Delta T/T$   $1,07 \pm 0,01$  THz. Hier wird die Schrittweite der schnellen Fourier-Transformation als Unsicherheit genutzt. Die Funktionsanpassung liefert für  $\Delta T/T$  Werte für die beiden Frequenzen von  $f_{\text{THz}} = 1,070 \pm 0,007$  THz und von  $f_{\text{GHz}} = 124,7 \pm 0,4$  GHz. Insbesondere die gute Übereinstimmung der Frequenzen des THz-Magnons in  $\Delta T/T$  mit den aus der Literatur bekannten Werten und denen der Polarisationsrotation demonstriert die kohärente Modulation der relativen Transmissionsänderung durch

Magnonen in dem prototypischen Antiferromagneten Nickeloxid.



**Abbildung 5.2:** Quadrat der schnellen Fouriertransformation der in Abbildung 5.1 gezeigten Graphen der Polarisationsrotation (dunkelblau) und der relativen Transmissionsänderung (hellblau) im Bereich des THz-Magnons. Die ermittelten Frequenzen liegen bei  $1,06 \pm 0,01$  THz für die Polarisationsrotation und in  $\Delta T/T$  bei  $1,07 \pm 0,02$  THz. Die Unsicherheiten ergeben sich aus der Abtastfrequenz.

## 5.2. Zusammenhang zwischen der Amplitude der Spinoszillationen und der Anregefluenz

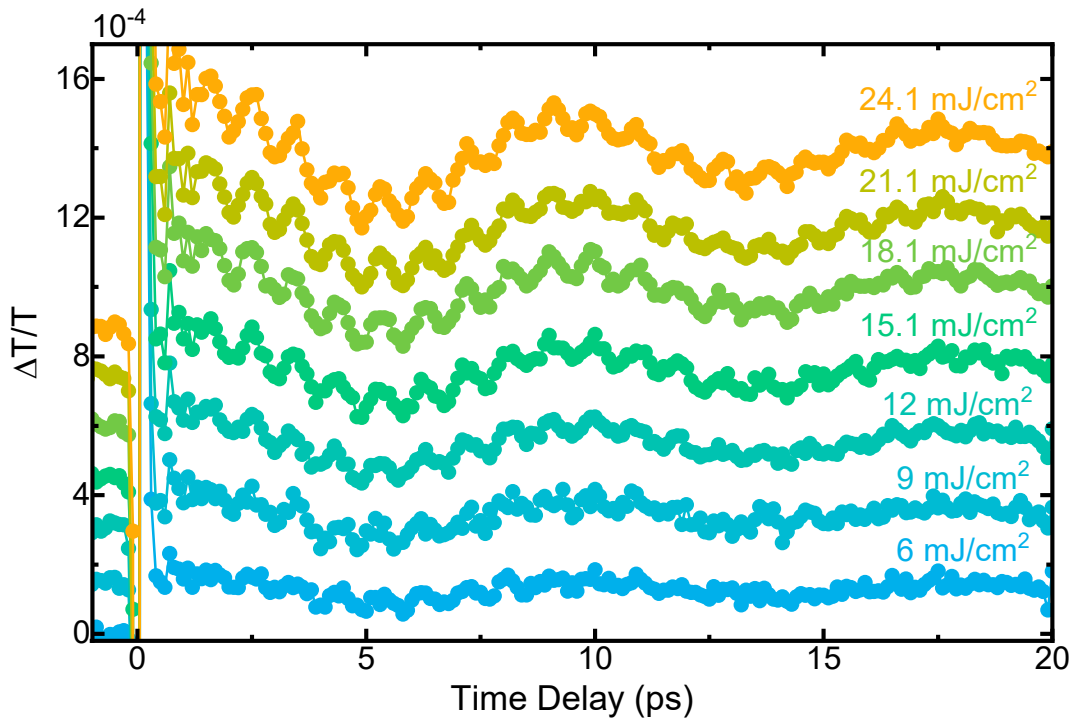
Dieses Kapitel untersucht den Zusammenhang zwischen der optischen Anregefluenz und der zeitlichen Amplitude der beiden Spinoszillationen. Die Stärke der erzeugten Spindynamik ist im Fall der Anregung über impulsive stimulierte Raman-Streuung proportional zur Anregefluenz. Derselbe Zusammenhang gilt für die Erzeugung kohärenter Spindynamiken über den XM-Übergang und der Fluenz.

Der selbstkonzipierte optisch-parametrische Verstärker liefert für dieses Experiment die Anregeimpulse bei einer Zentralwellenlänge von 1265 nm, einer spektralen Bandbreite 32 nm und einer Impulsdauer von 108 fs. Die Variation der Anregefluenz erfolgt über einen variablen Abschwächer im Anregezweig. Der zweite OPA *ORPHEUS* erzeugt die Abtastimpulse zentriert um eine Wellenlänge von 750 nm mit einer Bandbreite von 28 nm und einer Impulsdauer von 38,5 fs. Sowohl die Anregeimpulse als auch die Abtastimpulse sind linear polarisiert. Die elektrische Feldkomponente der Abtastimpulse schwingt in horizontaler Richtung (p-Polarisation). Die Anregepolarisationsebene ist im Vergleich dazu um  $120^\circ$  verkippt.

Die Probertemperatur liegt bei 10 K und die untersuchte Probe ist ein 50  $\mu\text{m}$  dicker NiO-Einkristall. Abbildung 2.7 zeigt dessen magnetische Domänenstruktur. Die Experimente erfolgten in der rot markierten  $T_0$ -Domäne.

Der Digitalisierer verarbeitet die mit der balancierten Detektion differentieller Transmissionsänderungen gemessenen Datensätze. Die Charakterisierung der Fluenzabhängigkeit erfolgt hierbei von niedrigen zu hohen Anregefluenzen. Abbildung 5.3 zeigt die differentielle Transmissionsänderung für unterschiedliche Anregefluenzen in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Die Steigerung der Fluenz erfolgt in Schritten von  $3 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  von 6 (hellblau) bis  $24,1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$  (orange). Sowohl die hoch- als auch die niederfrequente Oszillation sind in allen Datensätzen sichtbar, wobei die

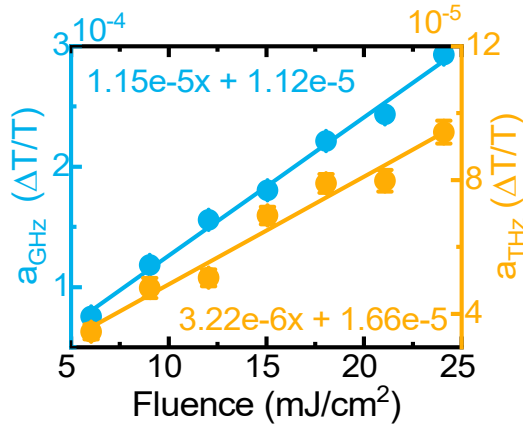
Amplituden mit steigender Anregefluenz zunehmen.



**Abbildung 5.3.:** Relative Transmissionsänderungen aufgetragen über der Zeitverzögerung für verschiedene Anregefluenzen zwischen  $6 \text{ mJ/cm}^2$  (blau) und  $24,1 \text{ mJ/cm}^2$  (orange). Die einzelnen Graphen sind vertikal gegeneinander verschoben.

Die Quantisierung der Zunahme erfolgt über eine Funktionsanpassung in der Zeitdomäne mit Gleichung 4.1. Die ermittelten Frequenzen entsprechen den beiden Magnonfrequenzen. Die Hochfrequenten liegen im Bereich zwischen  $1,070 \pm 0,001 \text{ THz}$  und  $1,073 \pm 0,003 \text{ THz}$  für die unterschiedlichen Anregefluenzen im Bereich der hochfrequenten Magnon-Frequenz. Dasselbe gilt für die niederfrequenten Oszillationen, welche zwischen  $120 \pm 1 \text{ GHz}$  und  $124 \pm 1 \text{ GHz}$  liegen.

Neben den Oszillationsfrequenzen liefert die Funktionsanpassung Werte für die Amplituden beider Modulationen. Diese sind in Abbildung 5.4 in Abhängigkeit der Anregefluenzen dargestellt. Die hellblauen Punkte zeigen die ermittelten Amplituden des GHz-Magnons. Die zugehörigen nur schwer sichtbaren Unsicherheiten entsprechen den Standardfehlern der Funktionsanpassung. Eine lineare Regression (hellblaue Linie) liefert eine Steigung von  $(1,15 \pm 0,04) \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{mJ}$ . Die Unsicherheit entspricht dem Standardfehler der linearen Regression. Die Funktion weist eine vertikale Verschiebung von  $(1,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-5}$  auf. Da es ohne eine kohärente Anregung keine kohärenten Magnonen gibt, ist diese Verschiebung physikalisch nicht sinnvoll und wird im Folgenden nicht weiter betrachtet. Die Funktionsanpassung berücksichtigt diese Verschiebung über den konstanten Faktor  $c$  in Gleichung 4.1.



**Abbildung 5.4:** Magnonamplituden des GHz- (blau) und des THz-Magnons (orange) in Abhängigkeit der Anregungsfluenz. Die Bestimmung der Amplituden erfolgt über eine Funktionsanpassung an die in Abbildung 5.3 gezeigten Datensätze. Die aus der Anpassung generierten Standardfehler dienen als Unsicherheiten. Lineare Regressionen zeigen den linearen Zusammenhang zwischen Fluenz und den Magnonamplituden.

Der orangefarbenen Punkte entsprechen den Amplituden der induzierten THz-Magnon-Modulation für unterschiedliche Fluenzen. Eine lineare Regression ergibt eine Proportionalitätskonstante zwischen der Anregungsfluenz und den Amplituden der hochfrequenten Modulation von  $(3,2 \pm 0,3) \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{mJ}$ . Die lineare Anpassung ist ebenfalls um einen Wert von  $(1,7 \pm 0,3) \cdot 10^{-6}$  vertikal verschoben.

Die Anzahl erzeugter kohärenter Magnonen sowohl für ISRS [Gri08] als auch für die resonante Erzeugung von Exzitonen und damit verbunden die Erzeugung kohärenter Spindynamiken über den XM-Übergang [Boy20]. Damit folgt aus der linearen Proportionalität der Stärke der kohärenten Modulation der differentiellen Transmission mit der Anregungsfluenz, dass diese proportional zur Besetzungszahl der jeweiligen Magnonmode ist.

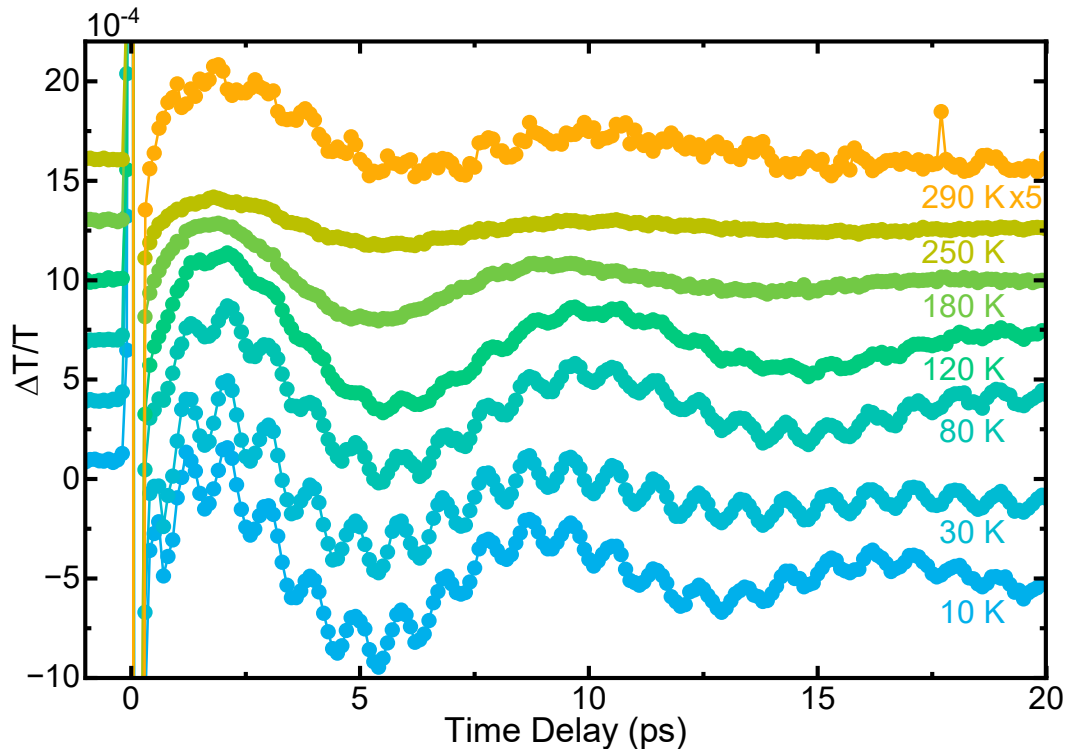
### 5.3. Amplitude der induzierten Spindynamiken in Abhängigkeit der Probertemperatur

Die Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der induzierten Dynamik in der differentiellen Transmission erfolgt äquivalent zur Messung der Temperaturabhängigkeit der Magnonen (Abschnitt 4.5). Der einzige Unterschied liegt im verwendeten Detektionsschema.

Die Anregungspulse sind zentriert um 1265 nm mit einer Bandbreite von 32 nm und einer Impulsdauer von 108 fs. Die Anregungsfluenz beträgt  $24,1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ . Die Zentralwellenlänge der Abtastimpulse liegt bei 750 nm mit Impulsdauern von 38,5 fs und einer spektralen Bandbreite von 28 nm. Die verwendete Probe ist ein senkrecht zur [111]-Achse geschnittener Nickeloxid-Einkristall mit einer Dicke von  $50 \mu\text{m}$ . Die Messungen erfolgen in der in Abbildung 2.7 rot markierten  $T_0$ -Domäne.

Die Aufnahme der einzelnen Datensätze erfolgt von der niedrigsten Temperatur von 10 K aufsteigend bis zur höchsten Temperatur von 290 K. Für eine bessere Vergleichbarkeit wurden die Messungen der differentiellen Transmission und der Polarisationsrotation direkt nacheinander für die einzelnen Temperaturen aufgenommen.

Abbildung 5.5 zeigt eine Auswahl der gemessenen differentiellen Transmission in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung zwischen den Anrege- und den Abtastimpulsen bei verschiedenen Probertemperaturen. Der bei 290 K aufgenommene Datensatz (orange) ist aufgrund der kleinen Modulationsamplituden um einen Faktor fünf vergrößert dargestellt.



**Abbildung 5.5.:** Relative Transmissionsänderung aufgetragen über der Zeit für verschiedene Probertemperaturen von 10 K bis 290 K. Die Subtraktion des Hintergrunds und der niederfrequenten Oszillation erhöhen die Sichtbarkeit der hochfrequenten Magnon-Mode. Für eine bessere Visualität der Oszillationen wurde der Graph für eine Temperatur von 290 K mit einem Faktor fünf multipliziert.

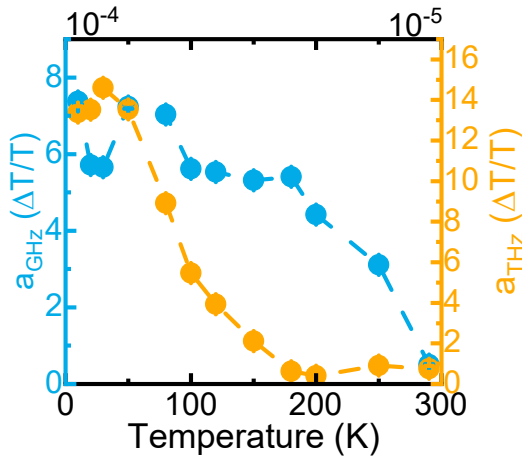
Unabhängig von der Probertemperatur weisen alle Graphen zwei eindeutige Eigenmoden auf. Die hochfrequente Oszillation lässt sich dem hochfrequenten Magnon mit einer Frequenz von 1,07 THz und die niederfrequente Dynamik lässt sich dem niederfrequenten Magnon zuordnen. Sowohl die Amplitude der niederfrequenten als auch die der hochfrequenten Spindynamik sinkt für steigende Temperaturen.

Die quantitative Analyse erfolgt über eine Funktionsanpassung mit Gleichung 4.1 in der Zeitdomäne. Abbildung 5.6 zeigt die so ermittelten Werte in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Unsicherheit ergibt sich aus dem Standardfehler der einzelnen Anpassungsparameter. Die Amplitude der induzierten GHz-Dynamik ist in blau und die THz-Dynamik in orange dargestellt.

Die maximale Amplitude der niederfrequenten Spindynamik beträgt  $(7,37 \pm 0,06) \cdot 10^{-4}$  bei einer Temperatur von 10 K und der kleinste bestimmte Wert bei 290 K ist

mit  $(5,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-5}$  ungefähr um einen Faktor 14,5 kleiner. Die Reduktion der Amplitude in der differentiellen Transmission ist somit etwa 3,5-mal größer als die im magneto-optischen Signal.

Für höhere Temperaturen sinkt die extrahierte Amplitude des THz-Modulation



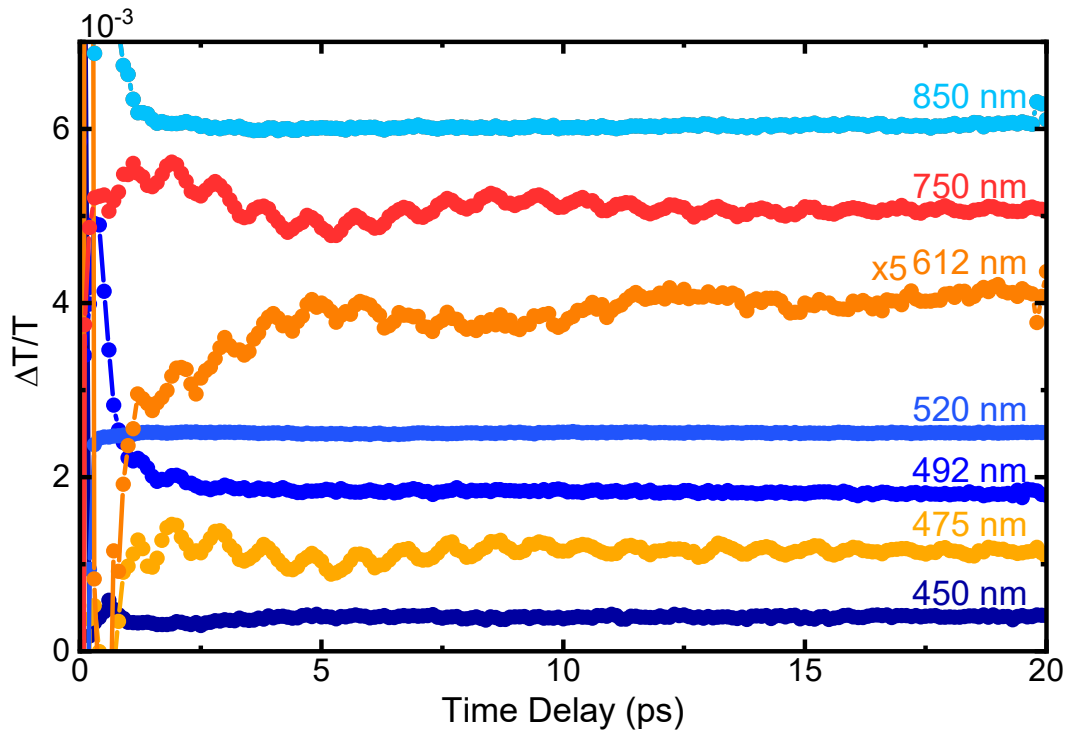
**Abbildung 5.6:** Magnonamplituden in Abhängigkeit der Proben­temperatur. Der hellblaue Graph zeigt, die über eine Funktionsanpassung in der Zeitdomäne, bestimmte Amplitude der Modulation durch die niederfrequenten Magnonen. Die orangefarbene Kurve zeigt die temperaturabhängige Amplitude der hochfrequenten Spindynamik.

ebenfalls. Ihr Maximum liegt analog zu den Rotationsdaten nicht bei der niedrigsten Temperatur, sondern bei 30 K mit einem Wert von  $(1,46 \pm 0,03) \cdot 10^{-4}$ . Die Verschiebung des Maximums tritt ebenfalls in den extrahierten Daten der hochfrequenten magneto-optischen Amplitude auf. Sie hat ihre Ursache vermutlich im Exziton-Magnon-Übergang. Um diesen Umstand weiter zu untersuchen, bedarf es weiterer Nachforschungen, die in dieser Arbeit nicht durchgeführt werden. Die kleinste extrahierte Amplitude liegt bei einer Temperatur von 200 K mit einer Amplitude von  $(4 \pm 1) \cdot 10^{-6}$ . Bei 290 K ist die extrahierte Amplitude mit  $(7 \pm 2) \cdot 10^{-6}$  nur unwesentlich größer. Eine mögliche Ursache ist die thermische Ausdehnung der Probe mit zunehmender Temperatur und damit verbunden eine Änderung des untersuchten Probenvolumens. Die kleinste extrahierte Amplitude ist etwa einen Faktor 36,5 kleiner als die maximale. Die Diskrepanz zwischen magneto-optischer Detektion (Faktor 20 zwischen maximaler und minimaler Amplitude) ist die Temperaturabhängigkeit in  $\Delta T/T$  etwa 1,5 so groß wie bei der magneto-optischen Temperaturabhängigkeit. Zusammenfassend gilt, dass die Modulation der differentiellen Transmission durch kohärente Spindynamiken bei Raumtemperatur beobachtbar ist. Der Grad der Reduktion der extrahierten Amplituden unterscheidet sich, sowohl für die beiden Magnonen als auch zwischen den Reduktionsfaktoren des magneto-optischen Signals (Abschnitt 4.5) und des Signals in der differentiellen Transmission.

## 5.4. Abhängigkeit von der Abtastwellenlänge

Weiter gilt es, den Zusammenhang zwischen der kohärenten Modulation und dem untersuchten Spektralbereich zu untersuchen. Dies erfolgt über die Variation der Abtastwellenlänge im sichtbaren und nah-infraroten Spektralbereich.

Das Messschema für alle untersuchten Abtastwellenlängen besteht aus dem balancierten Schema zur Messung von  $\Delta T/T$  (Abschnitt 3.5.2) sowie dem Digitalisierer (Abschnitt 3.5.5). Die Erzeugung der Magnonen erfolgt über den XM-Übergang mit denselben Anregeimpulsen wie im vorigen Abschnitt 5.1. Die Zentralwellenlänge des Anregespektrums liegt bei 1265 nm und die Bandbreite ist 28 nm. Die Impulsdauer der Anregeimpulse beträgt 108 fs, welche p-polarisiert sind. Die Parameter der unterschiedlichen Abtastimpulse sind in Anhang A.4 aufgelistet.

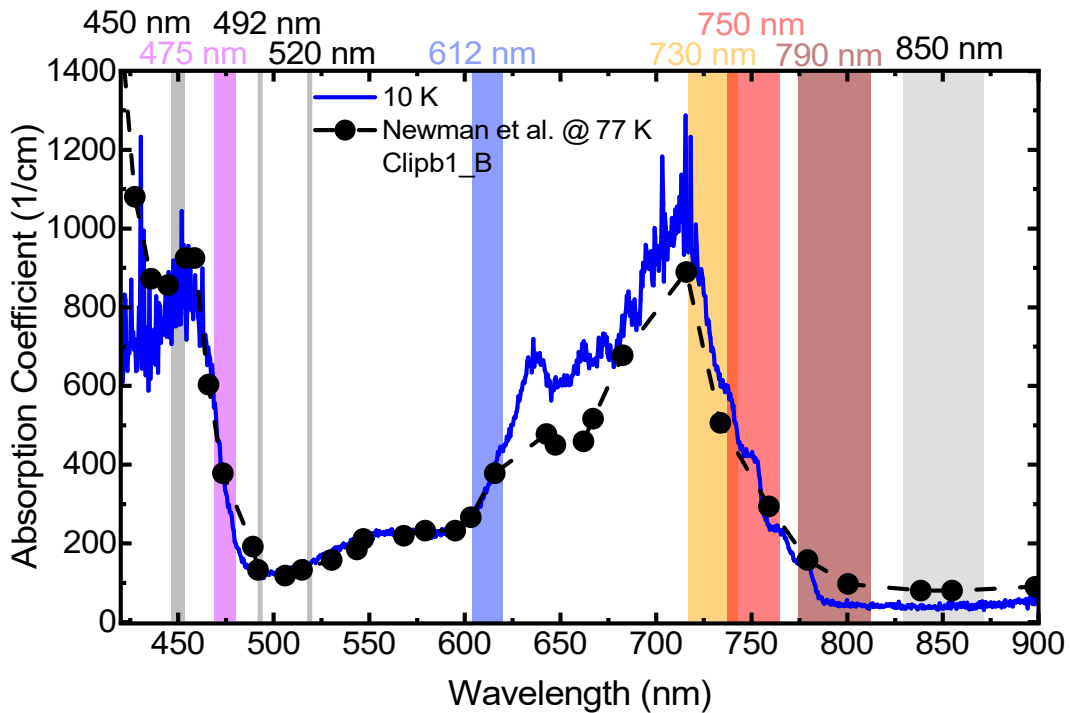


**Abbildung 5.7.:** Relative Transmissionsänderungen in Abhängigkeit der Zeitverzögerung für verschiedene Abtastwellenlängen. Sämtliche in Blautönen dargestellten Graphen mit den Zentralwellenlängen bei 450 nm, 492 nm, 520 nm und 850 nm zeigen keine Oszillationen. Im Gegensatz dazu zeigen die in Rot- und Orangetönen dargestellten Graphen eine deutliche Modulation durch die AFM-Magnonen. Die mittleren Wellenlängen sind 475 nm, 612 nm und 750 nm. Der orangene Graph ist um einen Faktor fünf vergrößert.

Abbildung 5.7 zeigt eine Auswahl der Messungen von  $\Delta T/T$  aufgetragen über der Verzögerungszeit. Für alle Messungen bis auf den Graphen bei einer Abtastwellenlänge von 450 nm wurde eine 50  $\mu\text{m}$  dicke entlang der (111)-Ebene geschnittene Probe verwendet. Aufgrund der starken Absorption im Spektralbereich um 450 nm fand die Messung an einem lediglich 33  $\mu\text{m}$  dicken NiO-Kristall statt. Die Graphen lassen sich in zwei Kategorien unterteilen. Die, bei denen eine periodische Modulation sichtbar ist, sind in Rot- und Orangetönen dargestellt. Ihre Anregeimpulse besitzen Zentralwellenlängen von 475 nm, 612 nm und 750 nm. Die Datensätze ohne sichtbare Oszillation sind in blau abgebildet und die Zentralwellenlängen der Abtastimpulse liegen bei 450 nm, 492 nm, 520 nm und 850 nm. Aufgrund des schwachen

Signals ist der Datensatz bei 612 nm Abtastwellenlänge um einen Faktor fünf vergrößert.

Für ein besseres Verständnis dieser Abhängigkeiten ist die Kenntnis des Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\lambda)$  essentiell. Abbildung 5.8 zeigt in dunkelblau den  $\alpha(\lambda)$  von Nickeloxid bei einer Temperatur von 10 K in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Kapitel 2.2.2 beschreibt, wie dieser gemessen und bestimmt wurde. Der schwarze Graph zeigt als Referenz den bei 77 K bestimmten Absorptionskoeffizienten aus [New59].



**Abbildung 5.8.:** Die dunkelblaue Kurve zeigt den bereits in Kapitel 2.2.2 diskutierten Absorptionskoeffizienten von NiO bei einer Temperatur von 10 K und in schwarz Absorptionskoeffizienten aus [New59] bei 77 K. Die farbigen Rechtecke zeigen die Abtastwellenlängen, bei denen Magnonen beobachtbar sind, während die Grauen für Abtastspektren stehen bei denen keine kohärenten Spinwellen detektierbar sind. Die Breite der Rechtecke zeigt die spektrale Bandbreite der verwendeten Abtastimpulse.

Die transparenten Rechtecke stellen die Bandbreiten der unterschiedlichen Abtastimpulse dar. Bei den in Farbe dargestellten Wellenlängen ist die Beobachtung der kohärenten Magnonen möglich. Während die grauen für Zentralwellenlängen ohne eindeutig sichtbare Oszillationen stehen.

Es fällt auf, dass die Magnonen nur für Abtastimpulse sichtbar sind, bei denen das Absorptionsspektrum nicht flach ist. Das folgende Kapitel 5.4.1 stellt einige einfache geometrische Überlegungen zur Modulation von Absorptionslinien an.

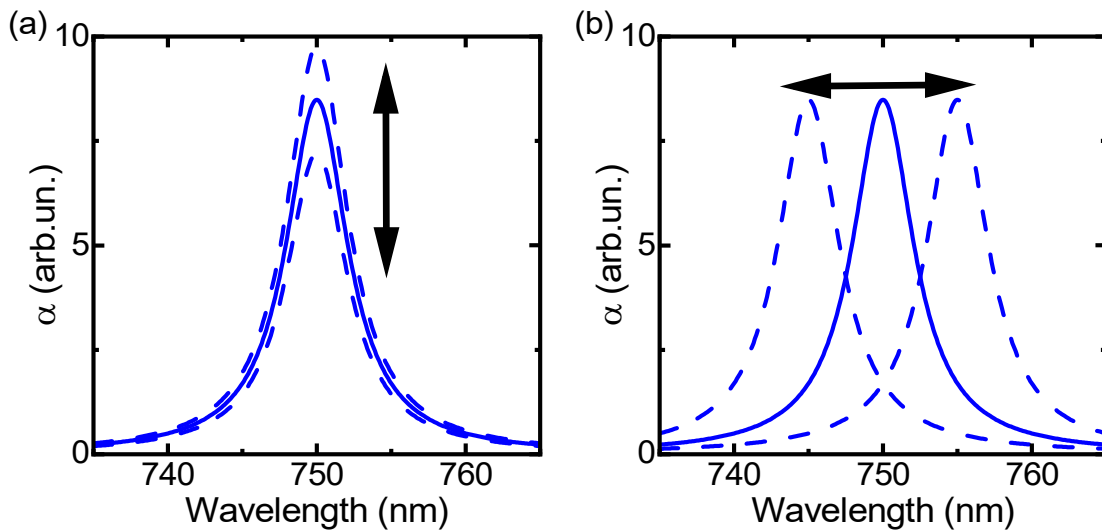
### 5.4.1. Spektrale und Amplitudenmodulation des Absorptionsspektrums

Im Wesentlichen lassen sich die Möglichkeiten für die Modulation der Transmission in zwei Arten unterteilen, die Amplituden- und die Wellenlängenmodulation. Im Fall einer Modulation der Amplitude gibt es zwei Möglichkeiten, den spektralen Absorptionskoeffizienten  $\alpha_0(\lambda)$  zu modifizieren. Zum einen die Addition eines zeitabhängigen Faktors  $\alpha_{\text{mod}}(t)$  und zum anderen die Multiplikation mit einem Faktor  $(1 + \alpha_{\text{mod}}(t))$ . Dies lässt sich folgendermaßen ausdrücken:

$$\alpha(\lambda, t) = \alpha_0(\lambda) + \alpha_{\text{mod}}(t) \quad (5.1)$$

$$\alpha(\lambda, t) = \alpha_0(\lambda) \cdot (1 + \alpha_{\text{mod}}(t)). \quad (5.2)$$

Das Szenario der Addition würde eine Modulation des Absorptionskoeffizienten über das gesamte Spektrum unabhängig vom Wert von  $\alpha_0(\lambda)$  bedeuten. Im Gegensatz dazu ist die Änderung von  $\alpha(\lambda, t)$  im in Gleichung 5.2 beschriebenen Szenario größer in stark absorbierenden Spektralbereichen als in Bereichen schwacher Absorption. Das kann ausgeschlossen werden, da bei den Abtastwellenlängen 492 nm, 520 nm und 850 nm keine Magnonen beobachtbar sind.



**Abbildung 5.9.:** Schemaskizze verschiedener spektraler Modulationsoptionen. Die blauen Kurven zeigen den Absorptionskoeffizienten fiktiver Absorptionslinien in Abhängigkeit der Wellenlänge. (a) zeigt das Szenario der Amplituden- und (b) der Wellenlängenvariation. sowohl die gestrichelten Linien als auch die Pfeile symbolisieren die Oszillation der Absorptionslinie.

Abbildung 5.9 (a) zeigt die zeitabhängige Modifikation über einen Multiplikator einer fiktiven gaußförmigen Absorptionslinie zentriert um 750 nm. Es ist direkt ersichtlich, dass die Modulationsstärke der spektralen Anteile mit niedrigem  $\alpha_0(\lambda)$ ,

beispielsweise bei 740 nm, klein ist.

Im Gegensatz dazu ist die absolute Änderung der Absorption für große Absorptionskoeffizienten deutlich stärker. Für den Fall dieses Szenarios müssten bei 450 nm in Abbildung 5.7 im dunkelblauen Graph deutliche Oszillationen sichtbar sein. Da dies nicht der Fall ist, obwohl der Absorptionskoeffizient bei 450 nm etwa  $\alpha_0(\lambda) \approx 800 \text{ 1/cm}$  beträgt, kann dieser Fall ebenfalls ausgeschlossen werden.

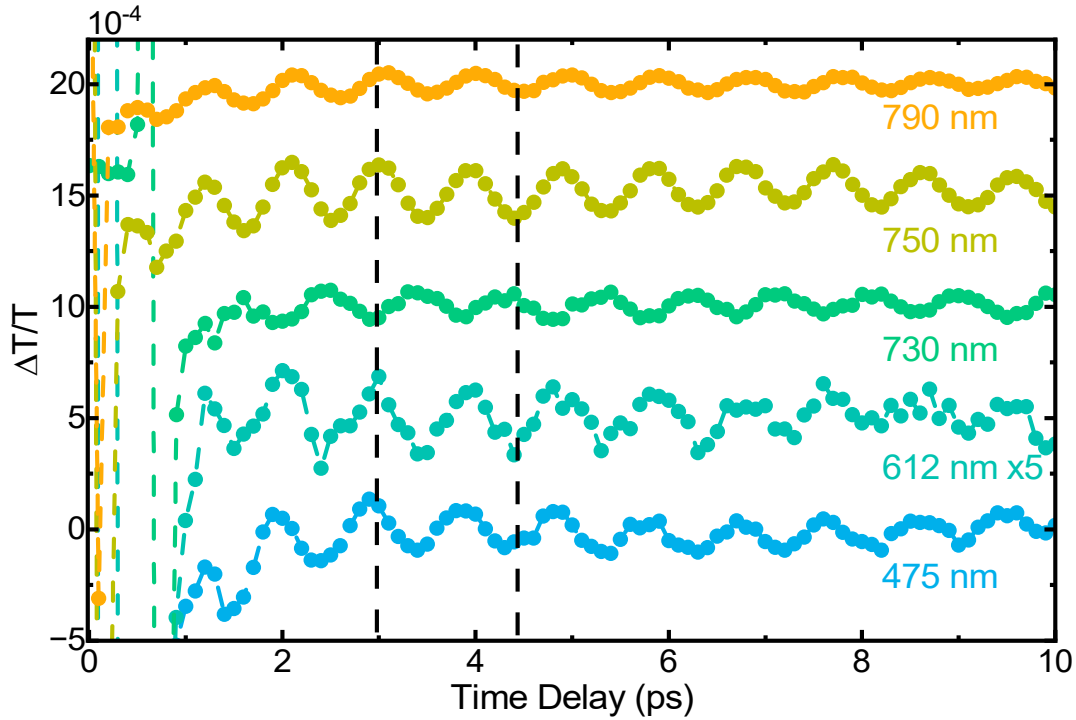
Abbildung 5.9 (b) stellt das Szenario einer spektralen Modulation einer Absorptionslinie zentriert um 750 nm dar. Hierbei verschiebt sich entweder das ganze Absorptionsspektrum spektral oder einzelne Linien, wie in Abbildung 5.9 (b) schematisch dargestellt. Das Absorptionsmaximum oszilliert hierbei um seine Nullposition von 750 nm. Dies lässt sich beschreiben über

$$\alpha(\lambda, t) = \alpha(\lambda + \lambda_{\text{mod}}(t)). \quad (5.3)$$

Hierbei ist  $\lambda_{\text{mod}}(t)$  die zeitabhängige, spektrale Verschiebung. Bewegt sich die Absorptionslinie zu längeren Wellenlängen, steigt  $\alpha(\lambda, t)$  für Wellenlängen auf der rechten und damit fallenden Flanke. Während die Absorption für Wellenlängen auf der linken, steigenden Flanke geringer wird. Bei einer Verschiebung zu kürzeren  $\lambda$  verhält sich der Absorptionskoeffizient genau entgegengesetzt.

Dieses Szenario führt dazu, dass die Modulation des Spektrums nur in Bereichen detektierbar ist, bei denen das Spektrum nicht flach ist. Dies entspricht der Beobachtung aus Kapitel 5.4.

Für die spektrale Modulation kommen unterschiedliche Mechanismen in Frage. Zum einen besteht die Möglichkeit der Verschiebung einzelner spektraler Anteile unabhängig voneinander und zum anderen die Verschiebung des kompletten Spektrums. Im zweiten Fall folgt, dass die Oszillation für Abtastimpulse auf fallenden Flanken über das gesamte Spektrum in Phase ist. Die Datensätze mit den Wellenlängen 475 nm, 730 nm, 750 nm und 790 nm befinden sich auf den beiden fallenden Flanken des Absorptionsspektrums (Abbildung 5.8). Lediglich die Messung mit einer Zentralwellenlänge 612 nm liegt auf einer ansteigenden Flanke. Oszilliert das komplette Absorptionsspektrum, muss diese Schwingung um einen Faktor von  $\pi$  zu den anderen phasenverschoben sein. Abbildung 5.9 liefert eine anschauliche Erklärung der Phasenverschiebung zwischen steigenden und fallenden Flanken bei der Verschiebung des Absorptionsspektrums. Bewegt sich die Linie zu kleineren Wellenlängen, steigt die Absorption auf der steigenden Flanke, während sie an der fallenden Flanke kleiner wird. Im Fall einer Verschiebung zu großen Wellenlängen verhält sich die Änderung der Absorption exakt entgegengesetzt dazu. Daraus folgt, dass ein an der fallenden Flanke gemessenes Maximum einem Minimum an der steigenden Flanke entspricht und diese für eine Oszillation des Spektrums phasenverschoben sind.



**Abbildung 5.10.:** Differentielle Transmission in Abhängigkeit der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abtastimpulsen für verschiedene Abtastwellenlängen. Die Subtraktion des Hintergrunds und der niederfrequenten Oszillation dient der besseren Vergleichbarkeit der Modulation durch kohärente THz-Magnonen. Der grüne Graph mit der Zentralwellenlänge von 612 nm ist aufgrund der niedrigen Amplituden mit einem Faktor 5 multipliziert.

Die Subtraktion des elektronischen Hintergrunds und der niederfrequenten Modulation steigert die Sichtbarkeit der Phasen der hochfrequenten Oszillationen. Dies erfolgt über eine Funktionsanpassung in der Zeitdomäne mit Gleichung 4.2 und der anschließenden Subtraktion der ermittelten Kurve. Abbildung 5.10 zeigt die Graphen für die Abtastwellenlängen, bei denen eine kohärente Modulation beobachtbar ist, ohne den Hintergrund und die Oszillation der niederfrequenten Magnon-Mode. Die Oszillationen für die Abtastwellenlängen 475 nm, 750 nm, 790 nm und 612 nm sind in Phase. Da 612 nm im Gegensatz zu den anderen Wellenlängen auf einer steigenden Flanke liegt, widerspricht das dem Szenario, dass das gesamte Absorptionsspektrum oszilliert. Zudem ist die induzierte Dynamik im 730 nm um  $\pi$  phasenverschoben zu 750 nm und 790 nm, obwohl die drei Datensätze auf derselben fallenden Flanke im Absorptionsspektrum liegen. Daraus folgt, dass die Modulation einzelner Absorptionslinien unabhängig voneinander ist.

### 5.4.2. Empirische Berechnung der Magnonamplituden

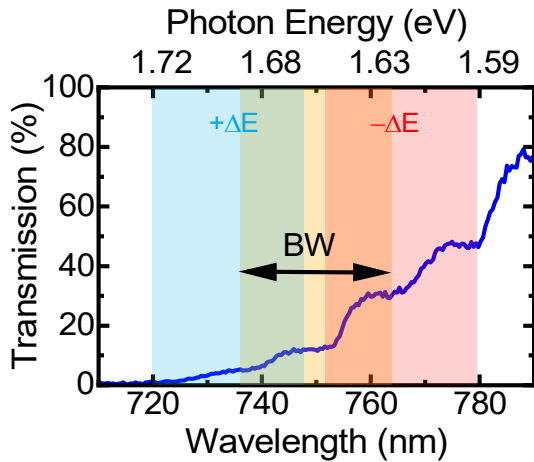
Dieser Abschnitt untersucht den Zusammenhang zwischen der extrahierten THz-Amplitude und der Stärke der optisch induzierten Verschiebung des Transmissionsspektrums. Die Berechnung der durch die spektrale Modulation induzierten Änderung der differentiellen Transmission erfolgt über die Differenz des Mittelwerts der verschobenen Transmissionsspektren. Der berücksichtigte Spektralbereich entspricht der spektralen Bandbreite der jeweiligen Abtastimpulse.

Die verwendete Transmissionsmessung wurde bereits für die Bestimmung des Absorptionskoeffizienten von Nickeloxid (Abbildung 2.5) verwendet. Die untersuchte Probe ist ein 55  $\mu\text{m}$  dicker NiO-Einkristall. Die Proben temperatur beträgt 10 K. Die Berechnung der mittleren Transmission  $\bar{T}(\lambda_{\text{center}})$  über die Bandbreite (engl.: band width;  $BW$ ) der Abtastimpulse

$$\bar{T}(\lambda_{\text{center}}) = \frac{1}{BW} \int_{\lambda_{\text{center}} - BW/2}^{\lambda_{\text{center}} + BW/2} T(\lambda) d\lambda \quad (5.4)$$

anstatt eines einzelnen Werts bei der Zentralwellenlänge  $\lambda_{\text{center}}$  der Abtastimpulse berücksichtigt ihre endliche Breite. Abbildung 5.11 zeigt das Transmissionsspektrum  $T(\lambda)$  zentriert um 750 nm in Abhängigkeit der Wellenlänge  $\lambda$ . Die obere horizontale Achse zeigt die entsprechende Photonenenergie.

Das blaue Rechteck zeigt den Bereich des Transmissionsspektrums, mit dem die



**Abbildung 5.11:** Schemaskizze zur Berechnung der relativen Transmissionsänderung  $\Delta T/T$  für eine Verschiebung des Spektrums  $\Delta E$ . Die dunkelblaue Kurve zeigt die Transmission eines 55  $\mu\text{m}$  dicken NiO-Kristalls bei 10 K aufgetragen über der Wellenlänge. Die obere horizontale Achse zeigt die den Wellenlängen entsprechenden Photonenenergien. Das gelbe Rechteck zeigt die Bandbreite des Abtaststrahls für eine Zentralwellenlänge von 750 nm. Das blaue und das rote Rechteck stellen den Bereich des Transmissionsspektrums dar, mit dem die Abtastimpulse für ein um  $+\Delta E$  (blau) und für  $-\Delta E$  (rot) verschobenes Transmissionsspektrum wechselwirken.

Abtastimpulse bei einer Verschiebung des Absorptionsspektrums um eine Energie von  $+\Delta E$  wechselwirkt. Respektive dazu zeigt das rote Rechteck das Szenario bei einer Verschiebung um eine Energie von  $-\Delta E$ . Die Verschiebung um eine Energie anstelle einer Wellenlänge hat den Vorteil, dass sie über das gesamte untersuchte Spektrum von  $\lambda = 450$  nm bis zu  $\lambda = 850$  nm konstant bleibt und sich nicht ändert.

Die Amplitude der Transmission  $T_{\text{calc}}$  für eine Verschiebung um  $\Delta E$  ist

$$T_{\text{calc}}(\lambda_{\text{center}}) = \frac{1}{2} \left| \bar{T}(\lambda_{\text{center}} + \Delta E) - \bar{T}(\lambda_{\text{center}} - \Delta E) \right|. \quad (5.5)$$

Die Verschiebung um  $+\Delta E$  und  $-\Delta E$  berücksichtigt einen möglicherweise asymmetrischen Verlauf des Transmissionsspektrums um die jeweilige Zentralwellenlänge. Der kleinste Wert für  $\Delta E$  ergibt sich aus der Auflösung des gemessenen Spektrums, mit 0,5 nm. Das entspricht einer Verschiebung von 2,9 meV bei 475 nm und 0,9 meV bei 850 nm. Das Interpolieren der Daten ermöglicht kleinere Verschiebungen des Transmissionsspektrums.

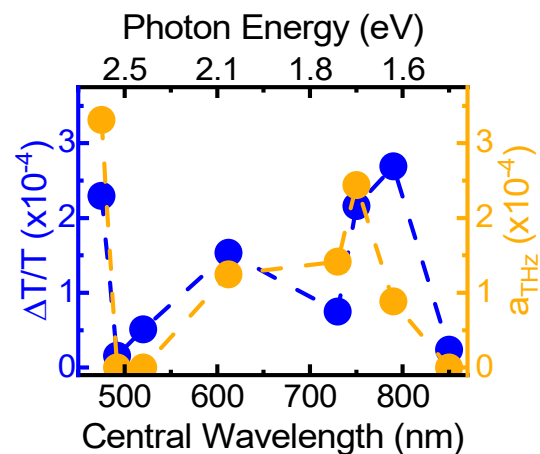
Das Glätten des gemessenen Transmissionsspektrums (dunkelblaue Linie in Abbildung 5.11) reduziert das Rauschen des Spektrums und damit den Einfluss auf die berechnete Transmissionsänderung. Der verwendete Verfahren ist ein Savitzky-Golay-Filter [Whi24].

Für eine induzierte Verschiebung des Transmissionsspektrums von  $\Delta E = \pm 0,1$  meV ergeben sich Werte für die induzierte Transmissionsänderung in derselben Größenordnung wie die beobachtete, kohärente Modulation der experimentell bestimmten Werte (Abbildung 5.10). Die für die Berechnung verwendeten spektralen Bandbreiten finden sich in Tabelle A.1. Der blaue Graph in Abbildung 5.12 zeigt die berechneten Transmissionsänderungen aufgetragen über den Zentralwellenlängen der Abtastimpulse. Die ermittelten Werte liegen in der Größenordnung von  $\Delta T/T \approx 10^{-4}$  und damit im Bereich der Amplituden der differentiellen Transmissionsmessungen  $a_{\text{THz}}$ .

Der orangene Datensatz zeigt die Beträge der über eine Funktionsanpassung in der Zeitdomäne mit Gleichung 4.1 bestimmten Oszillationsamplituden  $a_{\text{THz}}$ . Für die Zentralwellenlängen 492 nm, 520 nm und 850 nm ist keine Oszillation beobachtbar und  $a_{\text{THz}}$  wird jeweils auf Null gesetzt.

Die Übereinstimmung der Amplituden der berechneten mit den aus den gemessenen

**Abbildung 5.12:** Der dunkelblaue Graph zeigt die Transmissionsänderung induziert durch die Verschiebung des Transmissionsspektrums um  $\Delta E = \pm 0,1$  meV aufgetragen über der Zentralwellenlänge der Abtastimpulse. Der Wert von  $\Delta T/T$  ergibt sich aus der Differenz der transmittierten Abtastspektren durch das zu höheren und niedrigeren Energien verschobenen Transmissionsspektrum. Der orangene Graph zeigt die über eine Funktionsanpassung in der Zeitdomäne bestimmten Amplituden  $a_{\text{THz}}$ . Für die Zentralwellenlängen ohne sichtbare Oszillation wird  $a_{\text{THz}}$  null gesetzt.



Daten extrahierten Amplituden ist bei den Zentralwellenlängen 612 nm und 750 nm

sehr gut. Für andere  $\lambda_{\text{center}}$  ist die Diskrepanz größer. Bei 475 nm und 730 nm ist der experimentell bestimmte Wert von  $a_{\text{THz}}$  größer als der über die Verschiebung bestimmte Wert. Für 790 nm ist die über die Verschiebung bestimmte Transmissionsänderung größer als die gemessene.

Diese Unterschiede lassen den Schluss zu, dass die Modulation des Absorptionsspektrums nicht über den gesamten Spektralbereich konstant ist. Das liefert ein weiteres Indiz, dass die kohärente Spindynamik die einzelnen Absorptionslinien moduliert und nicht das gesamte Spektrum.

Ein erster Schritt zur Optimierung dieser Berechnung ist die Berücksichtigung der tatsächlichen spektralen Intensität der Abtastimpulse anstelle der konstanten Gewichtung über die gesamte Halbwertsbreite der Abtastimpulse. Die in diesem Abschnitt durchgeführten Kalkulationen können den Anfang auf dem Weg zu einem mikroskopischen Verständnis der Kopplung der Spin- und Ladungsdynamiken bilden.



## 6. Zusammenfassung und Ausblick

Die Ziele dieser Forschungsarbeit sind zum einen die Konzeption eines zeitaufgelösten kryogenen Anrege-Abfrage-Spektroskops, zum anderen der experimentelle Nachweis und die weitergehende Untersuchung der kohärenten Pikosekunden-Kopplung der Spin- und der Ladungsdynamiken in einem Antiferromagneten. Der experimentelle Aufbau bietet die Möglichkeit der Detektion unterschiedlicher optischer und magneto-optischer Effekte. Die Verwendung balancierter Detektionsschemata für magneto-optische Phänomene sowie zur Untersuchung differentieller Transmissionsänderungen erlaubt die Detektion kohärenter optisch induzierter Phänomene des Spin- und Ladungssystems auf Femtosekunden-Zeitskalen. Der Fokus in dieser Forschungsarbeit liegt auf der Untersuchung der Kopplung von Spin- und Ladungsdynamiken im Antiferromagneten Nickeloxid.

Die Zusammenfassung präsentiert zu Beginn die Erkenntnisse der einzelnen Kapitel. Im Anschluss folgt eine kurze Zusammenfassung der Forschungsergebnisse zur Pikosekunden-Kopplung der Spin- und Ladungsdynamik im Antiferromagneten Nickeloxid. Abschließend gibt das Kapitel einen Ausblick zu weitergehenden Untersuchungen.

Der erste Teil des **Kapitels 2** liefert einen kurzen Überblick über die relevanten Eigenschaften antiferromagnetischer Materialien mit einem Fokus auf Magnonen und deren Dispersionsrelation. Weiterhin betrachtet es die Lichtstreuung an Magnonen und liefert eine Beschreibung magneto-optischer Effekte, welche die Grundlage der optischen Detektion kohärenter Spindynamiken bilden. Zudem erfolgt die Diskussion verschiedener rein optischer Anregemechanismen für Magnonen. Diese sind die resonante Anregung und die impulsive stimulierte Raman-Streuung. Die zweite Hälfte dieses Kapitels beleuchtet das in dieser Arbeit untersuchte Material, den einfach-geschichteten Antiferromagneten Nickeloxid. Es erläutert dessen kristallographischen und die magnetischen Eigenschaften. Hierbei erfolgt eine Diskussion eines dritten, materialspezifischen Anregungsmechanismus über einen gekoppelten Exziton-Magnon-Übergang. Abschließend erfolgt die optische Charakterisierung der Transmissionseigenschaften sowie der antiferromagnetischen Domänenstruktur von NiO.

**Kapitel 3** befasst sich mit dem in dieser Forschungsarbeit konzipierten kryogenen, zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskop. Zu Beginn werden die Anforderungen an das System formuliert, die dieses für die Experimente an Nickeloxid erfüllen muss.

Im Anschluss erfolgt die Beschreibung und Charakterisierung der einzelnen Bauteile sowie deren Aufgaben. Das System lässt sich in drei unterschiedliche Bestandteile mit jeweils eigenen Aufgabenbereichen unterteilen. Das Lasersystem ist verantwortlich für die Bereitstellung der Anrege- und Abfrageimpulse mit Impulsdauern im Femtosekundenbereich und einer hohen spektralen Durchstimbarkeit. Diese besteht aus einem regenerativen Yb:KGW-Verstärker, der die Pumpleistung für zwei optisch-parametrische Verstärker liefert. Der damit abdeckbare Spektralbereich erstreckt sich von Wellenlängen von 315 nm bis hin zu 2600 nm. Die Demodulation der Anregfrequenz, die präzise Positionierung der Probe sowie die Kontrolle der Probertemperatur zwischen 4 K und 500 K erfolgt über einen He-Flusskryostaten. Der letzte Bestandteil ist die Detektion. Dieser Abschnitt präsentiert balancierte Detektionsschemata für die Messung magneto-optischer Effekte und die Bestimmung differentieller Transmissionsänderungen mit einer Auflösung von  $\Delta T/T \approx 10^{-6}$ . Die Konversion der Spannungssignale erfolgt mit einem Digitalisierer. Weiter beschreibt dieses Kapitel den selbstprogrammierten, verwendeten Auslesealgorithmus, der auf das kHz-Lasersystem zugeschnitten ist.

Ein wichtiger Schritt bei der Konzeption eines neuen experimentellen Aufbaus ist die Überprüfung der Funktionalität. Diese Aufgabe erfüllt **Kapitel 4** über die Reproduktion unterschiedlicher magneto-optischer Messungen an Nickeloxid. Die erste ist die Erzeugung kohärenter Magnonen über den XM-Übergang und deren Detektion. Die hierbei untersuchten Magnonmoden im Zentrum der Brillouin-Zone besitzen Frequenzen von 1,07 THz und 140 GHz. Der zweite ist der Zusammenhang zwischen Amplituden der induzierten Dynamik und der Zentralwellenlänge der Anregeimpulse im Bereich um den Exziton-Magnon-Übergang. Der dritte ist die Abhängigkeit der Amplituden der angeregten Spindynamik von der Anregepolarisation. Darüber hinaus beleuchtet dieses Kapitel den Zusammenhang zwischen der Amplitude und der Frequenz der induzierten Spindynamik und der Probertemperatur. Im Allgemeinen sinkt sowohl die Amplitude als auch die Frequenz von Magnonen für steigende Temperaturen. Die gemessenen Daten widersprechen diesem Zusammenhang für den Fall des hochfrequenten Magnons. Für das Verständnis dieser Beobachtung bedarf es weiterer Untersuchungen.

**Kapitel 5** demonstriert erstmals die kohärente Modulation der differentiellen Transmission durch kohärente Spindynamiken in einem dielektrischen, nicht multiferroischen Antiferromagneten und damit eine Kopplung des Spin- und des Ladungssystems auf der Pikosekunden-Zeitskala. Das hierfür durchgeführte Experiment ist die Messung der differentiellen Transmissionsänderung von Nickeloxid mit einer Temperatur von 10 K bei über den XM-Übergang angeregten Magnonen. Die Oszillationsamplituden liegen je nach Konfiguration zwischen  $1 \cdot 10^{-4}$  bis zu einigen  $10^{-6}$  relativer Transmissionsänderung und sind damit nur über die balancierte Detektion messbar. Hierbei lassen sich in der Zeitdomäne zwei Oszillationen mit den bereits in den magneto-optischen Experimenten gemessenen Frequenzen beobachten. In einem nächsten Schritt wird die Abhängigkeit der Oszillationsamplituden von der Anrege-

fluenz untersucht. Die lineare Proportionalität lässt darauf schließen, dass die Modulation der differentiellen Transmission proportional zur Besetzungszahl der kohärenten Magnonen ist. Weiter betrachtet dieses Kapitel den Zusammenhang zwischen den Amplituden der induzierten Oszillationen und der Proben temperatur. Sowohl die nieder- als auch die hochfrequente Oszillation sind bei Raumtemperatur beobachtbar. Das bedeutet, dass der Kopplungsmechanismus selbst bei hohen Temperaturen von 290 K existiert und damit unabhängig vom XM-Übergang ist. Der letzte Abschnitt dieses Kapitels befasst sich durch die Variation der Zentralwellenlängen der Abtastimpulse zwischen 450 nm bis 850 nm mit der spektralen Abhängigkeit der kohärenten Modulation der differentiellen Transmission. Aus dieser Untersuchung folgt, dass die kohärente Modulation des Absorptionsspektrums nur beobachtbar ist, wenn der abgetastete Bereich des Absorptionsspektrums nicht flach ist. Daraus folgt, dass die Transmission spektral und nicht in ihrer Amplitude moduliert wird. Weitergehende Untersuchungen der Phase der hochfrequenten Modulation ergeben, dass nicht das gesamte Spektrum, sondern die Energien einzelner Übergänge moduliert werden. Ein numerisches Modell zur Bestimmung der Transmissionsänderung durch die Verschiebung des Transmissionsspektrums ergibt eine Übereinstimmung der Amplitude der hochfrequenten Oszillation mit einer spektralen Verschiebung in der Größenordnung von  $\Delta E = 0,1 \text{ meV}$  für eine Abtastwellenlänge von 750 nm.

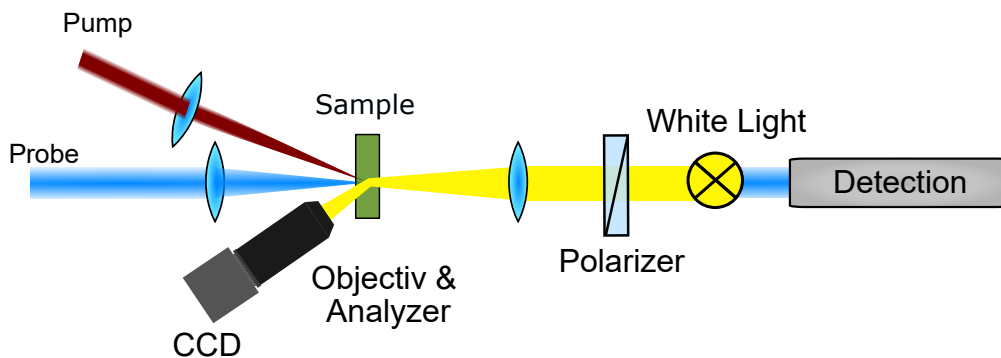
Der experimentelle Nachweis einer kohärenten Kopplung von Spin- und Ladungsdynamiken in einem nicht magnetoelektrischen und nicht multiferroischen Antiferromagneten ist ein wichtiger Schritt hin zu spintronischen Bauelementen aus Antiferromagneten und insbesondere hin zu einer Kopplung mit konventioneller Elektronik und damit verbundenen logischen Bauteilen mit Schaltfrequenzen im THz-Frequenzbereich. Der Umstand, dass die Modulation der differentiellen Transmission selbst bei Raumtemperatur detektierbar ist, ist ein weiterer Vorteil für eventuelle Anwendungen. Über diese Forschungsarbeit hinaus gilt es, die Berechnung der Transmissionsänderung durch das Verschieben des Transmissionsspektrums zu verfeinern. Ein erster Schritt ist die Berücksichtigung der spektralen Intensitäten und der damit verbundenen Gewichtung der Transmissionsänderungen innerhalb des abgetasteten Spektrums. Weiter gilt es, aus diesen Erkenntnissen ein mikroskopisches Verständnis dieses Mechanismus zu erlangen und zu verstehen, inwiefern dieser auf andere antiferromagnetische Materialien übertragbar ist.



# A. Anhang

## A.1. Cross-Nicol-Aufbau in Experiment

Der zweite Cross-Nicol-Aufbau ist direkt um den Kryostat in die Probe integriert und erlaubt, die Domänenstruktur der Probe und die Position des Anrege- und Abtastfokus simultan zu messen. Abbildung A.1 zeigt diesen schematisch.



**Abbildung A.1.:** Schemaskizze des in das Anrege-Abfrage-Spektroskop integrierten zweifachen Cross-Nicol-Aufbaus. Eine ausführliche Beschreibung der einzelnen Komponenten findet sich im Fließtext.

Die Beleuchtung erfolgt durch eine gewöhnliche Taschenlampe (White Light, gelb) die mit einem Polarisator (Polarizer) in den Strahlengang zwischen der Probe und der Detektion eingebracht wird. Ein Objektiv des Typs von *VZM 1000 Zoomobjektiv* von *Edmund Optics Ltd* kollimiert (Objektiv) das Weißlicht und fokussiert es auf eine CCD-Kamera (CCD) des Modells *BFS-UR-63S4M: 6.3 MP* von *FLIR*. Als Analysator (Analyzer) fungiert ein in das Objektiv eingebauter Dünnschichtpolarisator. Die rückseitige Beleuchtung erlaubt es, das Weißlicht sowie die Anrege- und die Abfrageimpulse gleichzeitig auf die Probe treffen zu lassen. Dadurch ist es möglich, die Strahlposition und die magnetischen Domänen gleichzeitig zu sehen. Dies erlaubt es, die Probe mit dem Kryostaten so zu verfahren, dass sich der räumliche Überlapp der Abtast- und Anregeimpulse in der gewünschten  $T_0$ -Domäne befindet. Die balancierte Detektion erfüllt für die Visualisierung der Domänen keine Rolle

und ist lediglich in Abbildung A.1 um die Position der Weißlichtquelle zu verdeutlichen.

## A.2. Balancierte Rotationsdetektion

Dieser Abschnitt liefert eine Bestimmung der optischen Leistung pro Diode für den Fall der balancierten Detektion für Rotationsänderungen. Abbildung 3.8 zeigt den schematischen Aufbau. Der folgende Absatz ist angelehnt an [Bos15].

Das Wollaston-Prisma teilt einlaufende Strahlung in ihre Anteile mit horizontaler und vertikaler Orientierung der elektrischen Feldamplitude. Diode A detektiert hierbei den Anteil der Abtastimpulse mit horizontal orientierter elektrischer Feldamplitude und Diode B den Anteil der vertikal ausgerichteten Anteile. Für einen Polarisationswinkel von  $\beta = 45^\circ$  der einlaufenden Abtastimpulse gilt für die gemessenen Leistungen

$$I_A \propto E_A^2 = [E \sin(\pi/4)]^2 \quad (\text{A.1})$$

$$I_B \propto E_B^2 = [E \cos(\pi/4)]^2. \quad (\text{A.2})$$

Hierbei ist  $E$  das elektrische Feld der Abtastimpulse. Für  $\beta = 45^\circ$  gilt für das Differenzsignal  $S_{A-B} \propto I_A - I_B = 0$  und die Detektion ist balanciert. Eine induzierte Rotation  $\gamma$  der Abtastpolarisation führt zu

$$E_A = E \sin(\pi/4 + \gamma) \quad (\text{A.3})$$

$$E_B = E \cos(\pi/4 + \gamma). \quad (\text{A.4})$$

Für den Großteil der Messungen ist  $\beta \neq 45^\circ$ . Daraus resultiert für das Differenzsignal

$$S_{A-B} \propto [E \sin(\pi/4 + \gamma)]^2 - [E \cos(\pi/4 + \gamma)]^2 = E^2 \sin^2(2\gamma) \approx 2E^2\gamma. \quad (\text{A.5})$$

Die Abschätzung gilt für kleine Winkel  $\gamma$ . Die in dieser Arbeit untersuchten Phänomene besitzen maximal Amplituden im Bereich einiger 10 mdeg und diese Anforderung ist damit erfüllt.

Ist der Winkel zwischen der Abtastpolarisation und der Hauptachse  $\neq 45^\circ$  gibt es zwei Möglichkeiten, die Detektion zu balancieren. Die erste ist eine Rotation der gesamten Detektion so, dass die Abtastpolarisation in einem Winkel von  $45^\circ$  relativ zu den Hauptachsen des Wollaston-Prismas steht. Die zweite ist die Verwendung einer  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte. Im Rahmen dieser Arbeit wird die zweite Variante verwendet. Das  $\lambda/2$ -Wellenplättchen rotiert die Polarisation um einen Winkel  $\kappa = 2\rho$ , mit dem Winkel zwischen Hauptachse der Wellenplatte und dem Polarisationswinkel des eintreffenden Strahls  $\rho$  [Hec18]. Damit ergeben sich vier Positionen der Verzögerungsplatte, für die die Detektion balanciert ist. Diese sind jeweils um einen Winkel

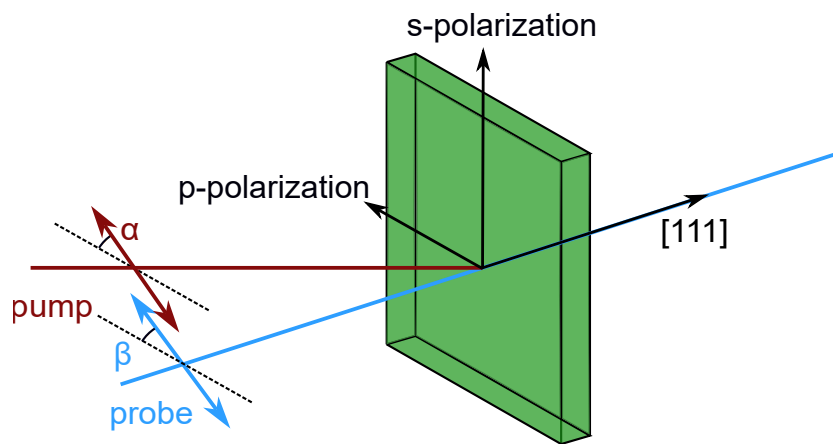
von  $\pi$  phasenverschoben. Gilt für den ersten Winkel  $\rho_1$ , für den die Detektion balanciert ist, ist die Gleichung A.5, ist der nächste Winkel  $\rho_2 = \rho_1 + \pi/4$ . Für das Differenzsignal folgt

$$S_{A-B} \propto [E \sin(3\pi/4 + \gamma)]^2 - [E \cos(3\pi/4 + \gamma)]^2 = -E^2 \sin^2(2\gamma) \approx -2E^2\gamma \quad (\text{A.6})$$

und das Vorzeichen des induzierten Signals ändert sich. Daher ist es essentiell, alle Experimente mit derselben Einstellung des Wellenplättchens durchzuführen.

### A.3. Messgeometrie und Polarisationsterminologie

In sämtlichen Messungen der zeitabhängigen Polarisationsrotation und der relativen Transmissionsänderung treffen die Abtastimpulse senkrecht auf die Probe. Dies entspricht der  $[111]$ -Richtung für die verwendeten NiO-Einkristalle. Abbildung A.2 stellt den Strahlweg der Abtastpulse schematisch in blau dar. Der Doppelpfeil zeigt die Abtastpolarisation, die um einen Winkel  $\beta$  gegenüber der Strahlebene verkippt ist. Analog hierzu zeigt der rote Doppelpfeil die Anregepolarisation, welche einen Winkel  $\alpha$  relativ zur Strahlebene hat.



**Abbildung A.2.:** Schematische Darstellung der Anrege- (rot) und Abtaststrahlen (blau) und der Probe mit den Polarisationen der Lichtimpulse. Die Abtastimpulse treffen senkrecht entlang der  $[111]$ -Achse auf die Probe. Die Doppelpfeile symbolisieren die Polarisationsrichtung beider Impulszüge.

Allgemein gilt, dass optische Impulse, deren Polarisation in der Strahlebene liegen, als p-polarisiert bezeichnet werden. s-polarisiert bezeichnet Licht mit einer Polarisation senkrecht relativ zur Strahlebene.

Für alle, in dieser Arbeit präsentierten Datensätze entspricht der Polarisationswinkel von  $\alpha = 0$  deg und  $\beta = 0$  deg p-polarisierten Strahlen.

## A.4. Parameter der Abtastimpulse

Die folgende Tabelle listet die Parameter der unterschiedlichen Abtastimpulse wie die spektralen Bandbreiten, die Impulsdauern und ihre Polarisation auf. Sowohl die Bandbreiten als auch die Impulsdauern entsprechen jeweils den vollen Halbwertsbreiten.

Abtastwellenlänge	Bandbreite	Impulsdauer	Polarisation
450 nm	8,9 nm	23 fs*	p-polarisiert
475 nm	2,9 nm	80 fs	p-polarisiert
492 nm	11 nm	125 fs	p-polarisiert
520 nm	3,4 nm	136,5 fs*	p-polarisiert
612 nm	14 nm	52 fs	p-polarisiert
730 nm	25 nm	46,2 fs	p-polarisiert
750 nm	28 nm	38,5 fs	p-polarisiert
790 nm	32 nm	39,7 fs	p-polarisiert
850 nm	44 nm	34,2 fs	p-polarisiert

**Tabelle A.1.:** Parameter verschiedener Abtastimpulse bei unterschiedlichen Zentralwellenlängen.

Die mit \* markierte Impulsdauer bei einer Wellenlänge von 450 nm wurde nicht direkt bestimmt, sondern über den Zusammenhang  $\tau_{\text{SHG}} = \frac{\tau_{\text{fund}}}{\sqrt{2}}$  bestimmt [Wei09]. Die Impulsdauer bei 900 nm ist entsprechend 32,6 fs.

## B. Abkürzungsverzeichnis

AFM	=	Antiferromagnet
AFMR	=	Antiferromagnetische Resonanz
AT	=	Attenuator
BBO	=	Betaboriumborat
BPD	=	Balacierter Photodetektor
BS	=	Strahlteiler
BW	=	Bandbreite
CPA	=	Chirped Pulse Amplification
$\Delta T/T$	=	relative, differentielle Transmissionsänderung
FFT	=	schnelle Fourier-Transformation
FWHM	=	volle Halbwertsbreite
ISRS	=	impulsive stimulierte Raman-Streuung
MO	=	Magneto-optisch
NIR	=	nah-infrarot
NiO	=	Nickeloxid
OC	=	Optischer Lichtzerhacker
OPA	=	optisch-parametrischer Verstärker
RF-Signal	=	Differenzsignal
SNR	=	Signal-zu-Rausch-Verhältnis
VIS	=	sichtbar
WP	=	Wollaston Prisma
XM	=	Exziton-Magnon
Yb:KGW	=	Ytterbium dotierter Kalium-Gadolinium-Wolframat-Kristall



# Abbildungsverzeichnis

2.1.	Dispersionsrelation von Nickeloxid . . . . .	7
2.2.	Schemaskizze Raman-Streuung . . . . .	10
2.3.	Kristallstruktur Nickeloxid . . . . .	11
2.4.	Energieschema Exziton-Magnon-Anregemechanismus . . . . .	13
2.5.	Absorptionskoeffizient Nickeloxid . . . . .	14
2.6.	Schemaskizze Cross-Nicol-Geometrie . . . . .	15
2.7.	Domänen in NiO . . . . .	16
3.1.	Schematische Aufbauskizze . . . . .	20
3.2.	Skizze Lasersystem . . . . .	21
3.3.	Spektrum und Autokorrelation des Yb:KGW-Lasers . . . . .	22
3.4.	Orpheus Ausgangsleistung . . . . .	24
3.5.	Leistungen und Impulsdauern OPA1 . . . . .	26
3.6.	Schemaskizze des optischen Systems . . . . .	28
3.7.	Temperaturstabilität Kryostat . . . . .	30
3.8.	Schema magneto-optische Detektion . . . . .	32
3.9.	Kalibration Rotationsmessungen . . . . .	33
3.10.	Schema balancierte Detektion Transmissionsänderung . . . . .	34
3.11.	Schema der Messelektronik . . . . .	36
3.12.	Signale Boxcar-Integrator . . . . .	37
3.13.	Funktionskizze Trägerfrequenzverstärker . . . . .	38
3.14.	Digitalisierte Spannungsimpulse aufgenommen mit dem Digitalisierer . . . . .	41
3.15.	Digitalisierte Impulsform . . . . .	42
3.16.	Anfahrgenauigkeit der Verzögerungsstrecke . . . . .	43
4.1.	Funktionsanpassung in der Zeitdomäne . . . . .	46
4.2.	Magneto-optische Messung in NiO . . . . .	48
4.3.	Anregewellenlängenabhängigkeit . . . . .	49
4.4.	Magnonamplituden in Abhängigkeit der Anregewellenlänge . . . . .	50
4.5.	Anregepolarisationsabhängigkeit bei 1265 nm Anregewellenlänge . . . . .	51
4.6.	Oszillationsamplituden für unterschiedliche Anregewellenlängen um 1265 nm . . . . .	52
4.7.	Zeitliche Verläufe der magneto-optischen Messungen für unterschiedliche Temperaturen . . . . .	54
4.8.	Extrahierte Frequenzen und Amplituden der magneto-optischen Datensätze in Abhängigkeit der Temperatur . . . . .	55
5.1.	Vergleich der magneto-optischen und der $\Delta T/T$ -Dynamiken . . . . .	58

---

5.2. Fouriertransformation des $\Delta T/T$ - und des magneto-optischen Signals de THz-Magnon-Mode . . . . .	59
5.3. Abtastpolarisationsabhängigkeit bei 1265 nm Abtastwellenlänge . . . . .	60
5.4. Fluenzabhängigkeit der Magnonamplitude in $\Delta T/T$ . . . . .	61
5.5. Zeitliche Verläufe von $\Delta T/T$ für unterschiedliche Temperaturen . . . . .	62
5.6. Temperaturabhängigkeit der Amplitude der Magnonen in $\Delta T/T$ . . . . .	63
5.7. $\Delta T/T$ für verschiedene Abtastwellenlängen . . . . .	64
5.8. Absorptionsspektrum mit Abtastwellenlängen . . . . .	65
5.9. Schemaskizze spektrale vs. Amplitudenmodulation . . . . .	66
5.10. Differentielle Transmissionsänderung für verschiedene Abtastwellen- längen ohne Hintergrund und niederfrequente Osziillation . . . . .	68
5.11. Schemaskizze zur Berechnung der Stärke der Modulation aus dem Transmissionsspektrum . . . . .	69
5.12. Extrahierte THz-Amplituden und berechnete Transmissionsänderung	70
A.1. Skizze des in das System integrierten Cross-Nicol Aufbaus . . . . .	77
A.2. Skizze zur Polarisation von Anrege- und Abtaststrahlen . . . . .	79

# Literaturverzeichnis

- [Bos14] D. Bossini, A. M. Kalashnikova, R. V. Pisarev, Th. Rasing und A. V. Kimel, *Controlling coherent and incoherent spin dynamics by steering the photoinduced energy flow*, Phys. Rev. B **89**, 060405 (2014).
- [Bos15] Davide Bossini, *Femtosecond Optical Excitation of Spins in Antiferromagnetic fluorides - An opto-magnetiv journey from the center to the edge of the Brillouin zone*, Dissertation, Universität Konstanz, 2015.
- [Bos16] D. Bossini, S. Dal Conte, Y. Hashimoto, A. Secchi, R. V. Pisarev, Th. Rasing, G. Cerullo und A. V. Kimel, *Macrospin dynamics in antiferromagnets triggered by sub-20 femtosecond injection of nanomagnons*, Nature Communications **7**, 2041-1723 (2016).
- [Bos17] D Bossini und Th Rasing, *Femtosecond optomagnetism in dielectric antiferromagnets*, Physica Scripta **92**, 024002 (2017).
- [Bos21a] D. Bossini, M. Pancaldi, L. Soumah, M. Basini, F. Mertens, M. Cinchetti, T. Satoh, O. Gomonay und S. Bonetti, *Ultrafast Amplification and Nonlinear Magnetoelastic Coupling of Coherent Magnon Modes in an Antiferromagnet*, Phys. Rev. Lett. **127**, 077202 (2021).
- [Bos21b] D. Bossini, M. Pancaldi, L. Soumah, M. Basini, F. Mertens, M. Cinchetti, T. Satoh, O. Gomonay und S. Bonetti, *Ultrafast Amplification and Nonlinear Magnetoelastic Coupling of Coherent Magnon Modes in an Antiferromagnet*, Phys. Rev. Lett. **127**, 077202 (2021), Supplementary Material C.
- [Boy20] Robert W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 4. ed., Academic Press, INC, 2020.
- [Boz20] D. A. Bozhko, V. I. Vasyuchka, A. V. Chumak und A. A. Serga, *Magnon-phonon interactions in magnon spintronics (Review article)*, Low Temperature Physics **46**, 383-399 (2020).
- [Bru00] F. Brunner, G. J. Spühler, J. Aus der Au, L. Krainer, F. Morier-Genoud, R. Paschotta, N. Lichtenstein, S. Weiss, C. Harder, A. A. Lagatsky, A. Abdolvand, N. V. Kuleshov und U. Keller, *Diode-pumped femtosecond Yb:KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser with 1.1-W average power*, Opt. Lett. **25**, 1119–1121 (2000).

- [Bä22] Julian Bär, *Entwicklung eines spektral durchstimmbaren, kryogenen Anrege-Abfrageaufbaus für zeitaufgelöste magneto-optische Experimente auf der Femtosekunden-Zeitskala*, Diplomarbeit, Universität Konstanz, 2022.
- [Cer03] Giulio Cerullo und Sandro De Silvestri, *Ultrafast optical parametric amplifiers*, Review of Scientific Instruments **74**, 1-18 (2003).
- [Cho90] G. C. Cho, W. Kütt und H. Kurz, *Subpicosecond time-resolved coherent-phonon oscillations in GaAs*, Phys. Rev. Lett. **65**, 764–766 (1990).
- [Eck62] Gisela Eckhardt, R. W. Hellwarth, F. J. McClung, S. E. Schwarz, D. Weiner und E. J. Woodbury, *Stimulated Raman Scattering From Organic Liquids*, Phys. Rev. Lett. **9**, 455–457 (1962).
- [Ell63] R.J. Elliott und R. Loudon, *The possible observation of electronic Raman transitions in crystals*, Physics Letters **3**, 189-191 (1963).
- [Fer84] J Ferre und G A Gehring, *Linear optical birefringence of magnetic crystals*, Reports on Progress in Physics **47**, 513 (1984).
- [Fie01] M. Fiebig, D. Fröhlich, Th. Lottermoser, V. V. Pavlov, R. V. Pisarev und H.-J Weber, *Second Harmonic Generation in the Centrosymmetric Antiferromagnet NiO*, Phys. Rev. Lett. **87**, 137202 (2001).
- [For24] F. Formisano, T. T. Gareev, D. I. Khusyainov, A. E. Fedianin, R. M. Dubrovin, P. P. Syrnikov, D. Afanasiev, R. V. Pisarev, A. M. Kalashnikova, J. H. Mentink und A. V. Kimel, *Coherent THz spin dynamics in antiferromagnets beyond the approximation of the Néel vector*, APL Materials **12**, 011105 (2024).
- [fTmCK20] Cryovac Gesellschaft für Tieftemperaturtechnik mbH Co. KG, *General Operating Instructions Konti Cryostat Type Micro*.
- [Gei24] Felix Geist, *Charakterisierung eines Aufbaus zur optischen Charakterisierung magnetischer Materialien im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich*, Diplomarbeit, Universität Konstanz, 2024.
- [Gmb09] Gardner Dnver Schopfheim GmbH, *Original Operating Instructions V-VGD V-VGD 10 / 15*.
- [Gom21] O. Gomonay und Bossini D., *Linear and nonlinear spin dynamics in multi-domain magnetoelastic antiferromagnets*, Journal of Physics D: Applied Physics **54**, 374004 (2021).
- [Gri08] V. N. Gridnev, *Phenomenological theory for coherent magnon generation through impulsive stimulated Raman scattering*, Phys. Rev. B **77**, 094426 (2008).

- [Hec18] Eugene Hecht, *Optik*, 7. ed., De Gruyter, 2018.
- [Inc15] Optosky Photonics Inc, *Ultra-thin micro-optic spectrometer, ATRP2400 Data sheet*.
- [Inc18] Thorlabs Inc, *Thermal Power Sensor Head with Background Compensation*.
- [Inc23] Thorlabs Inc, *MC2000B, MC2000B-EC Optical Chopper User Guide*.
- [Inc24] Thorlabs Inc, *SLS201L(/M) Stabilized Tungsten Light Source User Guide*.
- [Ins20] Physik Instrumente, *High-Precision Linear Stage*.
- [Ins21] Zurich Instruments, *White Paper: Principles of Boxcar Averaging*.
- [Kal15] A M Kalashnikova, A V Kimel und R V Pisarev, *Ultrafast optomagnatism*, *Physics-Uspekhi* **58**, 969 (2015).
- [Kam11] Tobias Kampfrath, Alexander Sell, Gregor Klatt, Alexej Pashkin, Sebastian Mährlein, Thomas Dekorsy, Martin Wolf, Manfred Fiebig, Alfred Leitenstorfer und Rupert Huber, *Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves*, *Nature Photonics* **5**, 31-34 (2011).
- [Kam13] T. Kampfrath, K. Tanaka und K. Nelson, *Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients*, *Nature Photon* **7**, 680-690 (2013).
- [Kir10] Andrei Kirilyuk, Alexey V. Kimel und Theo Rasing, *Ultrafast optical manipulation of magnetic order*, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731–2784 (2010).
- [Kit89] Charles Kittel und Fong C. Y., *Quantentheorie der Festkörper*, R. Oldenbourg Verlag GmbH, 1989.
- [Kon60] Hisamoto Kondoh, *Antiferromagnetic Resonance in NiO in Far-infrared Region*, *Journal of the Physical Society of Japan* **15**, 1970-1975 (1960).
- [Kon64] Hisamoto Kondoh und Tadao Takeda, *Observation of Antiferromagnetic Domains in Nickel Oxide*, *Journal of the Physical Society of Japan* **19**, 2041-2051 (1964).
- [Lan84] L. D. Landau und E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of continuous media*, 8. ed., Pergamon Press, 1984.
- [LIG20a] LIGHTCONVERSION, *Gecco Scanning Autocorrelator USER'S MANUAL*.
- [LIG20b] LIGHTCONVERSION, *Orpheus-F High Power Optical Amplifier*.

- [LIG21] LIGHTCONVERSION, *PHAROS-PH2 Femtosecond Laser System, USER MANUAL*.
- [Ma22] Junying Ma, Feng Gu, Ying Xu, Jiaming Le, Fanlong Zeng, Yizheng Wu und Chuanshan Tian, *Improving the sensitivity of DC magneto-optical Kerr effect measurement to 107rad/Hz*, Chinese Optics Letters **20**, 111201 (2022).
- [Mai20] Margherita Maiuri, Marco Garavelli und Giulio Cerullo, *Ultrafast Spectroscopy: State of the Art and Open Challenges*, Journal of the American Chemical Society **142**, 3-15 (2020), PMID: 31800225.
- [Nag69a] Ojiro Nagai, *Theory of Temperature-Dependent Magnon Energies in Antiferromagnets*, Phys. Rev. **180**, 557–561 (1969).
- [Nag69b] Ojiro Nagai und Toshijiro Tanaka, *Temperature-Dependent Magnon-Energy Theory of FeF<sub>2</sub> and MnF<sub>2</sub>*, Phys. Rev. **188**, 821–830 (1969).
- [Née48] L Néel und Proprietes Magnetiques Des Ferrites-Ferrimagnetisme Et, *Antiferromagnetisme*, Annales de Physique, vol. 3, 1948, p. 137.
- [New59] R. Newman und R. M. Chrenko, *Optical Properties of Nickel Oxide*, Phys. Rev. **114**, 1507–1513 (1959).
- [Ně18] P. Němec, M. Fiebig, T: Kampfrath und Kimel A.V., *Antiferromagnetic opto-spintronics*, Nature Phys **14**, 1745-2481 (2018).
- [Pas24] R. Paschotta, *Fluence*, RP Photonics Encyclopedia, Nov 2024, Available online at <https://www.rp-photonics.com/fluence.html>.
- [Rez19] Sergio M. Rezende, Antonio Azevedo und Roberto L. Rodríguez-Suárez, *Introduction to antiferromagnetic magnons*, Journal of Applied Physics **126**, 151101 (2019).
- [Rie16] Claudius Riek, *Subzyklen-Quantenelektrodynamik*, Dissertation, Universität Konstanz, 2016.
- [Sat10a] Takuya Satoh, Sung-Jin Cho, Ryugo Iida, Tsutomu Shimura, Kazuo Kuroda, Hiroaki Ueda, Yutaka Ueda, B. A. Ivanov, Franco Nori und Manfred Fiebig, *Spin Oscillations in Antiferromagnetic NiO Triggered by Circularly Polarized Light*, Phys. Rev. Lett. **105**, 077402 (2010).
- [Sat10b] Takuya Satoh, Sung-Jin Cho, Tsutomu Shimura, Kazuo Kuroda, Hiroaki Ueda, Yutaka Ueda und Manfred Fiebig, *Photoinduced transient Faraday rotation in NiO*, J. Opt. Soc. Am. B **27**, 1421–1424 (2010).
- [Sch88] P. A. Schulz, M. J. Lagasse, R. W. Schoenlein und J. G. Fujimoto, *Femtosecond Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> injection seeded laser*, Annual Meeting Optical Society of America, Optica Publishing Group, 1988, p. MEE2.

- [Sel67] D. D. Sell, R. L. Greene und Robert M. White, *Optical Exciton-Magnon Absorption in  $MnF_2$* , Phys. Rev. **158**, 489–510 (1967).
- [Sel68] D. D. Sell, *Review of Magnon-Sideband Experiments*, Journal of Applied Physics **39**, 1030-1035 (1968).
- [SRS11] Inc Stanford Research Systems, *MODEL SR830 DSP Lock-In Amplifier*.
- [Sto06] Joachim Stoehr und Hanns Christoph Siegmann, *Magnetism : from fundamentals to nanoscale dynamics*, Springer, 2006.
- [Str85] Donna Strickland und Gerard Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications **55**, 447-449 (1985).
- [Sys17] Stanford Research Systems, *Bentham Instruments Ltd*.
- [Tan65] Yukito Tanabe, Tôru Moriya und Satoru Sugano, *Magnon-Induced Electric Dipole Transition Moment*, Phys. Rev. Lett. **15**, 1023–1025 (1965).
- [Tzs17] Christian Tzschaschel, Kensuke Otani, Ryugo Iida, Tsutomu Shimura, Hiroaki Ueda, Stefan Günther, Manfred Fiebig und Takuya Satoh, *Ultrafast optical excitation of coherent magnons in antiferromagnetic  $NiO$* , Phys. Rev. B **95**, 174407 (2017).
- [Wei09] Andrew Weiner, *Ultrafast Optics*, 1. ed., Wiley, 2009.
- [Whi24] E. T. Whittaker und G. Robinson, *The Calculus of Observations*, 1. ed., Balckie and Son Limited, 1924.
- [Zao06] Y. Zaouter, J. Didierjean, F. Balembois, G. Lucas Leclin, F. Druon, P. Georges, J. Petit, P. Goldner und B. Viana, *47-fs diode-pumped  $Yb^{3+}:CaGdAlO_4$  laser*, Opt. Lett. **31**, 119–121 (2006).



## C. Publikationsliste

### Veröffentlichungen in referierten Fachzeitschriften

Diese Auflistung umfasst alle Publikationen, die im Rahmen dieser Forschungsarbeit entstanden sind.

- S. R. Hutter, P. Sterk, S. Haller, M. Cimander, and A. Leitenstorfer: *1 PHz of Coherent Bandwidth and Resulting Capabilities Enabled by High-Order Dispersion Control in a Nonlinear Fiber Device* (submitted)
- P. Fischer, J. Bär, M. Cimander, L. Feuerer, V. Wiechert, O. Tereshchenko, A. Leitenstorfer, and D. Bossini: *Revealing the Microscopic Mechanism of Displacive Excitation of Coherent Phonons in a Bulk Rashba Semiconductor* (submitted)
- M. Hagner, P. Sulzer, A. Liehl, M. Cimander, H. Kempf, A. Bitzer, A. Herter, and A. Leitenstorfer: *Ultrabroadband suppression of mid-infrared reflection losses of a layered semiconductor by nanopatterning with a focused ion beam*, Opt. Express **29**, 33632-33641 (2021)

### Konferenzbeiträge in Form von Vorträgen und Postern

- M. Cimander, J. Baer, V. Wiechert, A. Leitenstorfer and D. Bossini: *Femtosecond Coupling of Spin and Charge Dynamics in Antiferromagnets*, Poster, Magnetofon (18.-22. Juli 2022)
- M. Cimander, V. Wiechert, J. Bär, and D. Bossini: *Femtosecond coupled spin and charge dynamics in an antiferromagnet*, Vortrag MA 16.4, DPG Frühjahrstagung 2024 Berlin, (17.-22. März 2024)
- M. Cimander, V. Wiechert, J. Bär, M. Mrotzek, T. Satoh, G. S. Uhrig and D. Bossini: *Femtosecond Coupling of Spin and Charge Dynamics in an Antiferromagnet* Poster Th-P-04, MORIS2024, York, England (28.5.-31.6.2024)
- P. Fischer, J. Bär, M. Cimander, V. Wiechert, A. Leitenstorfer, and D. Bossini: *Time-Domain Coherent Phononics in a Rashba Material*, Vortrag HL 8.2, DPG Frühjahrstagung 2024 Berlin, (17.-22. März 2024)
- V. Wiechert, J. Bär, M. Cimander, M. Mrotzek, and D. Bossini: *Spatiotemporal magnon propagation dynamics in ultrathin iron garnets*, Vortrag MA 16.4, DPG Frühjahrstagung 2024 Berlin, (17.-22. März 2024)

- V. Wiechert, M. Cimander, W. Hanchen, W. Legrand, P. Gambardella, D. Bossini: *Spatiotemporal magnon propagation in ultrathin iron garnets*, Spins, Waves, and Interactions, Greifswald, (27.-29. August 2024)

# Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei allen bedanken, die mich während meiner Promotion begleitet und unterstützt haben. Insbesondere gilt mein Dank:

- **Dr. Davide Bossini** für die Betreuung und die Möglichkeit in seiner Gruppe promovieren zu können. Der Aufbau eines eigenen Labors und die spannenden Einblicke in den für mich neuen Bereich des ultraschnellen Magnetismus waren fachlich und persönlich eine große Bereicherung.
- **Prof. Sebastian Gönnenwein** für die freundliche Übernahme des Zweitgutachtens und des Prüfungsreferenten meiner mündlichen Verteidigung.
- Prof. **Wolfgang Belzig** für die Übernahme des Vorsitzes meiner mündlichen Verteidigung.
- **Julian Bär, Maurus Mrotzek, Leon Roob** und **Felix Geist**, die mich im Rahmen ihrer Abschlussarbeiten unterstützt haben.
- Für die angenehme Zeit und Zusammenarbeit mit meinem langjährigen Labor- und Bürokollegen **Volker Wiechert** und die gemeinsamen fachlichen Diskussionen. Weiter viel Erfolg im Labor.
- Die Korrekturleser: **Julian Bär, Volker Wiechert, Christoph Schönfeld, Ines Schönegg, Anton Lüders, Elias Hils** und **Matthias Bärnin**.
- **Christian Beschle** und **Stefan Eggert** für die tatkräftige Unterstützung in Form verschiedenster mechanischer und elektronischer Herausforderungen.
- **Ute Hentzen** und **Katja Schuler** bei der Bewältigung bürokratischer Hürden im Promotionsalltag.
- Dem ganzen **Lehrstuhl Leitenstorfer** für die exzellente Zusammenarbeit und das kollegiale Miteinander, welches den Arbeitsalltag am Lehrstuhl prägt.
- Meinen Freunden und Studienkollegen für die Studienzeit, den Kaffeepausen und angeregten Diskussionen, die die Motivation stets hochgehalten haben.
- Danke an meine Eltern **Dorit** und **Dieter Cimander**, für die ständige Unterstützung jeder Art während meines gesamten Studiums und der Promotion.
- Zuletzt ein großes Dankeschön an meine Freundin **Ines Schönegg**, dafür dass sie in jeder Lebenssituation an meiner Seite steht.



### 3. Fachbereich Physik

#### Eidesstattliche Versicherung gem. § 6 der Promotionsordnung der Universität Konstanz (Anlage 1 Promotionsordnung)

1. Bei der eingereichten Dissertation zu dem Thema

Kohärente Pikosekundenkopplung der Spin- und Ladungsdynamiken in einem  
Antiferromagneten

handelt es sich um meine eigenständig erbrachte Leistung.

2.  Ich habe nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt und mich keiner unzulässigen Hilfe Dritter bedient. Insbesondere habe ich wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommene Inhalte als solche kenntlich gemacht.
- Falls ich textgenerierende KI-Tools als Hilfsmittel verwendet habe, ist mir bewusst, dass ich allein für die inhaltliche Richtigkeit von KI generierten Textpassagen und die Kennzeichnung von Formulierungen und Ideen anderer Personen gemäß den Grundsätzen der guten wissenschaftlichen Praxis verantwortlich bin.
3.  Die Arbeit oder Teile davon habe ich wie folgt/bislang nicht<sup>1</sup> an einer Hochschule des In- oder Auslands als Bestandteil einer Prüfungs- oder Qualifikationsleistung vorgelegt.

Titel der Arbeit:

Hochschule und Jahr:

Art der Prüfungs- oder Qualifikationsleistung:

4.  Die Richtigkeit der vorstehenden Erklärungen bestätige ich.
5.  Die Bedeutung der eidesstattlichen Versicherung und die strafrechtlichen Folgen einer unrichtigen oder unvollständigen eidesstattlichen Versicherung sind mir bekannt.

Ich versichere an Eides statt, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit erkläre und nichts verschwiegen habe.

Konstanz den 14.12.2024



Ort und Datum

(Unterschrift)

<sup>1</sup> Nicht Zutreffendes streichen. Bei Bejahung sind anzugeben: der Titel der andernorts vorgelegten Arbeit, die Hochschule, das Jahr der Vorlage und die Art der Prüfungs- oder Qualifikationsleistung