

# Zeitaufgelöste Vektor-Mikroskopie und Polarimetrie

---

Der Fakultät für Physik  
Universität Duisburg-Essen  
vorgelegte

## Dissertation

zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

von

**David Peter Janoschka**

geboren in Tarnowitz (Polen)

*Gutachter:*

Prof. Dr. Frank-J. Meyer zu Heringdorf  
Universität Duisburg-Essen

Prof. Dr. Harald Gießen  
Universität Stuttgart

Einreichung am: 18.04.2023

Disputation am : 19.10.2023

**David Peter Janoschka**

*Zeitaufgelöste Vektor-Mikroskopie und Polarimetrie*

Einreichung am: 18.04.2023

Disputation am : 19.10.2023

# Erklärung

Hiermit versicher ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Alle wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen habe ich als solche gekennzeichnet.

**David Peter Janoschka**

*Duisburg, 18.04.2023*



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2. Einordnung in den Stand der Forschung</b>	<b>5</b>
2.1. Einführung in die Plasmonik . . . . .	5
2.1.1. Dispersionsrelation eines Oberflächenplasmon-Polaritons . . . . .	6
2.1.2. Anregung eines Oberflächenplasmon-Polaritons . . . . .	10
2.2. Abbildung von Plasmonen . . . . .	11
2.2.1. Photoemissions-Elektronenmikroskopie . . . . .	12
2.2.2. Zeitaufgelöste Experimente . . . . .	16
2.3. Inbetriebnahme des Detektors . . . . .	20
2.3.1. Strategien zur Korrektur der Detektorantwortfunktion . . . . .	22
2.3.2. Vergleich des F216 Detektors mit einer Vielkanalplatte-CCD-Kamera-Kombination . . . . .	24
2.4. Nichtlineare Photoemission mit Oberflächenplasmon-Polaritonen . . . . .	29
2.4.1. Photoemission . . . . .	29
2.4.2. Nichtlineare Emission aus Photo- und Plasmoemission . . . . .	32
2.4.3. Probenpräparation . . . . .	37
2.4.4. Archimedische Spiralen . . . . .	40
<b>3. Rekonstruktion von Feldern</b>	<b>45</b>
3.1. Rekonstruktion einer Ebenen Welle . . . . .	46
3.2. Eigenschaften von polarisiertem Licht . . . . .	51
3.3. Optischer Aufbau für die Vektor-Mikroskopie . . . . .	56
3.4. Einschränkungen optischer Komponenten . . . . .	58
<b>4. Rekonstruktion eines Skyrmion-Gitters</b>	<b>63</b>
4.1. Einführung Topologie . . . . .	63

4.2.	Probendesign Skyrmion . . . . .	65
4.3.	Rekonstruktion eines Skyrmions und der topologischen Größen . . . . .	66
4.4.	Technische Herausforderungen . . . . .	72
<b>5.</b>	<b>Rekonstruktion topologischer Felder</b>	<b>75</b>
5.1.	Bestimmung der lokalen Topologie . . . . .	76
5.2.	Probendesign Meron und Meron-Paar . . . . .	82
5.3.	Vektor-Interferometer für die Vektor-Polarimetrie . . . . .	84
5.3.1.	Verbessertes Vektor-Interferometer . . . . .	86
5.3.2.	Stabilität der Vektor-Interferometer . . . . .	88
5.4.	Analyse der Vektor-Polarimetrie . . . . .	91
5.4.1.	Vorbereitung der experimentellen Daten für die Analyse . . . . .	94
5.4.2.	Bestimmung der Phase für den Jones-Vektor . . . . .	97
5.4.3.	Extraktion des dynamischen Signals und Bestimmung der Feldkomponenten . . . . .	100
5.4.4.	Rekonstruktion der Felder aus den experimentellen Daten . . . . .	102
5.4.5.	Darstellung der Felder . . . . .	104
5.5.	Analyse der Topologie am Meron und Meron-Paar . . . . .	111
5.5.1.	Bestimmung der zweidimensionalen Topologie . . . . .	114
5.5.2.	Bestimmung der dreidimensionalen Topologie . . . . .	117
<b>6.</b>	<b>Diskussion und Ausblick</b>	<b>129</b>
<b>7.</b>	<b>Literatur</b>	<b>135</b>
<b>A.</b>	<b>Berechnung der Jones-Vektoren</b>	<b>151</b>
<b>B.</b>	<b>Danksagung</b>	<b>159</b>



# Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Vermessung der Feldstruktur von Oberflächenplasmon-Polaritonen (SPPs) an Gold-Vakuum Grenzflächen und der Untersuchung ihrer topologischen Eigenschaften. Mittels der in dieser Arbeit entwickelten Vektor-Mikroskopie ist es gelungen, diese elektromagnetischen Felder in 3D zu rekonstruieren. Mit der erreichten sub-Wellenlängen Ortsauflösung und der sub-Femtosekunden Zeitauflösung ist es möglich, die Dynamik von SPP-Feldern zu untersuchen.

Ausgenutzt wird, dass in einem Anrege-Abfrage-Experiment zunächst ein SPP angeregt wird und die Projektion des SPP-Feldes auf die Polarisation des Abfrage-Pulses detektiert wird. Mit zwei orthogonal polarisierten Abfrage-Pulsen zur gleichen Anregung kann demnach das elektrische Feld in der Ebene eindeutig bestimmt werden. Die fehlende Komponente, die aus der Ebene zeigt, wird über die Maxwell-Gleichung bestimmt.

Das Grundprinzip der Vektor-Mikroskopie wird zunächst an einem ebenen SPP-Wellenpaket veranschaulicht. In dieser Arbeit liegt der Fokus jedoch auf topologischen Strukturen. Zunächst wird an einer modifizierten hexagonalen Anrege-Struktur mit einer verschobenen Seite ein Skyrmion-Gitter im elektrischen Feld erzeugt. Für dieses Skyrmion-Gitter wird eine Windungszahl bzw. Skyrmion-Zahl ermittelt, die zwischen 1 und  $-1$  schwingt.

Topologisch stabile Quasipartikel sind nicht im oszillierenden elektrischen Feld zu finden, jedoch können diese im Spin-Drehimpuls (SAM) erzeugt werden. Die Rekonstruktion des SAMs hat jedoch deutlich höhere Anforderungen an Stabilität und Präzision im Experiment, sodass die Vektor-Mikroskopie zur Vektor-Polarimetrie erweitert wurde. Die Erweiterung beinhaltet eine verbesserte Stabilisierung und ein neues Messprinzip mit mehr Abfrage-Polarisationen deren relative Phasen zusätzlich gemessen wurde. Mit der Vektor-Polarimetrie konnte durch lineare Anregung unterschiedlicher archimedischer Spiralen ein plasmonisches Meron und ein Meron-Paar im SAM erzeugt werden.

Aus dem SAM konnten weitere topologische Größen extrahiert werden. Zunächst ist es gelungen die Euler-Poincaré Charakteristik in 2D zu verifizieren und darüber hinaus eine eindeutige Zuordnung von C-Punkten und Amplituden-Vortizes vorzunehmen. In einer lokalen Betrachtung auf und innerhalb der ermittelten L-Linien ist es gelungen die Chern-Zahl auf unterschiedlichen Wegen zu bestimmen. Zu einer festen Verzögerungszeit konnte aus der Änderung des Azimuts entlang einer L-Linie die Chern-Zahl von  $C = 1/2$  für das Meron und  $C = 1$  für das Meron-Paar belegt werden. Durch die Zeitauflösung im Experiment konnte anschließend aus der Integration der Quasipartikeldichte die zeitliche Stabilität von Meron und Meron-Paar bestimmt werden.

# Summary

The present work focuses on the measurement of the field structure of surface plasmon polaritons at gold-vacuum interfaces and the study of their topological properties. Using the vector microscopy developed in this work, it is possible to reconstruct the electromagnetic fields in 3D. With the achieved sub-wavelength spatial resolution and sub-femtosecond time resolution, it is possible to study the dynamics of surface plasmon-polariton fields.

Exploited is that in a pump-probe experiment, a surface plasmon polariton is first excited and the projection of the surface plasmon polariton field onto the polarization of the probe pulse is detected. Thus, with two orthogonal probe pulses and the same excitation, the in-plane field can be uniquely determined. The missing out-of-plane component is determined via Maxwell's equation.

The basic principle of vector microscopy is first illustrated on a plane surface plasmon wave packet. In this work, however, the focus is on topological structures. First, a skyrmion lattice is generated in the electric field on a modified hexagonal excitation structure with one side shifted. In this skyrmion lattice, a winding- or skyrmion number oscillating between 1 and  $-1$  is determined.

Topologically stable quasiparticles can not be found in the oscillating electric field, but they can be created in spin angular momentum (SAM). However, the reconstruction of the SAM has much higher requirements for stability and precision in the experiment, so vector microscopy has been extended to vector polarimetry. The upgrade includes improved stabilization and a new measurement principle with more probe polarizations whose relative phase was additionally measured. With vector polarimetry, plasmonic meron and a meron pair could be created in the SAM by linear excitation of different archimedean spirals.

Additional topological quantities can be extracted from the SAM. First, the Euler-Poincaré characteristic in 2D can be verified and, moreover, C-points and amplitude vortices can be uniquely assigned. In a local observation on and within the determined L-lines, it has been possible to determine the Chern number in different ways. In the first step, the Chern number of  $C = 1/2$  for the meron and  $C = 1$  for the meron pair at a fixed time-delay could be occupied from the change of azimuth along an L-line. By the time resolution in the experiment, the temporal stability of the meron and meron pair could then be determined from the integration of the quasiparticle density.



## Motivation

Die Untersuchung von Objekten und Phänomenen, die mit dem bloßen Auge nicht sichtbar sind, ist seit einigen Jahrhunderten im Interesse der Wissenschaft. Einfache Linsen sind seit der Antike bekannt und ermöglichten es Objekte vergrößert darzustellen. Der Feinschliff von Glaslinsen um 1600 in den Niederlanden führte schließlich zur Entwicklung des ersten Mikroskops. Seither werden Mikroskope stetig weiterentwickelt, jedoch stoßen sie an eine physikalische Grenze. Die Auflösung, mit der Objekte optisch vermessen werden können, ist durch das Abbe-Limit (beleuchtete passive Objekte) [1], beziehungsweise das Rayleigh-Kriterium (selbstleuchtende aktive Objekte) [2, 3] begrenzt. Für die Untersuchung von Objekten und Phänomenen unterhalb dieses Limits, kann demnach nicht einfach Licht mit einer Wellenlänge in derselben Größenordnung genutzt werden. Dies gilt auch für die Untersuchung von elektromagnetischen Feldern wie die der Oberflächenplasmon-Polaritonen und deren Eigenschaften. Erst durch das Ausnutzen der optischen Nahfeld Überhöhung (SNOM[4], PEEM [5], ATR [6], CL [7], PINEM [8], EELS [9]) war es möglich Größen unterhalb des Abbe-Rayleigh-Limits zu untersuchen. Die zahlreichen Methoden, die dafür entwickelt wurden, werden in Kapitel 2.2 skizziert.

In den letzten Jahrzehnten konzentrieren sich die Felder der Nanophotonik und Plasmonik bereits darauf Feldeigenschaften zu untersuchen und nutzbar zu machen. Dabei kann mit den meisten Methoden jedoch nur die Stärke der Felder untersucht werden, nicht aber deren Vektornatur. Vielversprechende Ansätze zum Vermessen der Vektoreigenschaften gibt es mit dem optischen Rasternahfeldmikroskop (engl. *scanning near field optical microscopy*, kurz SNOM). Hier wird eine Spitze mit Apertur genutzt, um die Felder polarisations-sensitiv zu vermessen [10–12]. Jedoch hat diese Methode den Nachteil, dass die Probe gerastert werden muss. Kürzlich wurde in der Gruppe von Prof. Dr. Guy Bartal eine neue Methode vorgestellt [13]. In der nichtlinearen optischen Nahfeldmikro-

skopie (engl. *nonlinear near-field optical Microscopy*, kurz NNOM) wird der nichtlineare Prozess der Vier-Wellen-Mischung ausgenutzt, um Felder mit 150 nm Auflösung in Echtzeit rein optisch zu vermessen. In dieser Arbeit wird die neuentwickelte Methode der Vektor-Mikroskopie zum Vermessen von elektromagnetischen Feldern auf der Oberfläche präsentiert (Kap. 5.3).

In der Vektor-Mikroskopie können auch komplizierte Felder rekonstruiert werden. Von besonderem Interesse sind dabei auch Feldkonfigurationen die physikalische Eigenschaften innehaben. So können spezielle Anregungs-Geometrien genutzt werden, die plasmonische Felder erzeugen, die topologische Quasipartikel und deren Eigenschaften imitieren. Da die Topologie in elektromagnetischen Feldern ein Teilgebiet der Topologie ist, soll auch das Interesse an der Topologie zunächst einmal motiviert werden.

Topologie beschäftigt sich damit wie Eigenschaften von Objekten durch Verformung erhalten bleiben, sodass sich ein Objekt homotop zu einem anderen umwandeln lässt. Ein bekanntes Beispiel ist hier die Analogie eines Torus mit einer Henkeltasse. Anders formuliert beschäftigt sich die Topologie mit der Klassifizierung von Objekten mit der gleichen Anzahl an Defekten.

Die ersten Schritte in der Topologie sind auf Euler zurückzuführen, der sich mit dem Königsberger Brücken Problem (1736) beschäftigte [14]. Dabei sind vier Stadtteile über sieben Brücken verbunden und es sollte jede Brücke genau einmal passiert werden. Die Verallgemeinerung dieses Problems zu Knoten, Kanten und Flächen schrieb Euler 1750 im Euler Polyedersatz nieder und publizierte die dazugehörige Veröffentlichung *Elementa doctrinae solidorum* 1758 [15]. Lange Zeit unbekannt war, dass Descartes mehr als 100 Jahre zuvor schon einen ähnlichen unveröffentlichten Ansatz verfolgte [16, 17]. Jedoch war es Poincaré, der mit zahlreichen Arbeiten [18–22] um 1900 dafür sorgte, dass die Topologie als eigenes Feld in der Mathematik etabliert wurde. So erweiterte Poincaré den Polyedersatz zur Euler-Poincaré-Charakteristik. Flächen kann dabei eine ganzzahlige topologische Invariante zugeordnet werden, sodass sie in Gruppen mit gleicher Euler-Poincaré-Charakteristik gemäß ihrer Topologie sortiert werden. Im Poincaré-Hopf Theorem konnte Hopf dies 1927 auf Vektorfelder in n-dimensionalen Mannigfaltigkeiten erweitern [23]. Eine ausführlichere inhaltliche Auseinandersetzung mit der Euler-Poincaré-Charakteristik ist auch in dieser Arbeit (Kap. 5.1) zu finden. Dass topologische Phänomene auch in der Physik eine Rolle spielen wird jedoch erst seit dem 20sten Jahrhundert näher untersucht [24]. Die wichtigsten Arbeiten waren die von Dirac's magnetischen Monopolen 1931 [25], der Aharonov-Bohm Effekt 1959 [26, 27], die Bewegung von Wirbeln in Supraleitern 1965 [28] und der Quan-

tum Hall Effekt in 1980 [29]. Auch heute ist die Topologie in der Physik noch ein großes Thema. Gerade im Bereich des Magnetismus sind Skyrmionen und deren Eigenschaften und Anwendungen noch aktuell [30–42].

Folglich kann auch in elektrischen Feldern nach topologischen Eigenschaften gesucht werden. Pionierarbeiten zur Topologie in elektromagnetischen Feldern stammen von Nye *et al.* [43], die in beliebig gearteten Feldern auf einer Oberfläche topologisch invariante Größen fanden. Es wäre demnach erstrebenswert eine Methode zu haben, die es ermöglicht unbekannte oder komplizierte Felder zu charakterisieren und aus den gewonnenen Feldinformationen topologische Eigenschaften zu extrahieren. Die Vektor-Mikroskopie stellt sich hierfür als geeignete Methode heraus.

Strukturen, um plasmonische topologische Quasipartikel zu erzeugen, sind in der Literatur bereits bekannt. Die Gruppe von Prof. Dr. Guy Bartal fand so eine Struktur zur Erzeugung eines Skyrmion-Gitters [44, 45] und die Gruppe von Prof. Dr. Hrvoje Petek eine zur Erzeugung eines Merons [46].

Die Vektor-Mikroskopie bietet hier eine wichtige Ergänzung zu den bisherigen Untersuchungen. Da hier zu jedem Zeitschritt die echte SPP-Feldkonfiguration auf der Oberfläche bekannt ist, ist es auch möglich den Spin-Drehimpuls (engl. *spin angular momentum*, kurz: SAM) und alle daraus resultierenden topologischen Größen zu jedem Zeitschritt zu extrahieren. Dies erweitert die SNOM-Experimente von Bartal um die Zeitkomponente. Die mittels optischen Fluss berechneten L-Linien in den zeitaufgelösten Experimenten von Petek mitteln über mehrere optische Zyklen und so kann die Vektor-Mikroskopie auch hier mit zusätzlicher Dynamik ihren Beitrag leisten.



## Einordnung in den Stand der Forschung

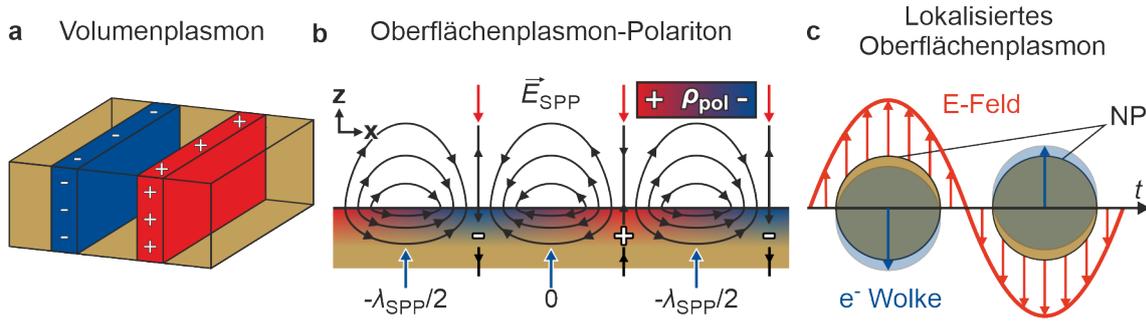
2

Diese Arbeit beschäftigt sich mit Feldern an metallischen Oberflächen. Aus dem Themenfeld der Plasmonik werden Oberflächenplasmon-Polaritonen (engl. *surface plasmon polaritons*, kurz: SPPs) an Metall-Dielektrikum-Grenzflächen hervorgehoben. Ferner werden die Photoemissions-Elektronenmikroskopie (engl. *photoemission electron microscopy*, kurz: PEEM) und die notwendigen Mechanismen zur Abbildung von SPPs erläutert. Ein besonderes Augenmerk wird hier auf den erstmalig an einem PEEM installierten Detektor F216 von *TVIPS* gelegt, der die Experimente in dieser Arbeit durch seine Eigenschaften erst ermöglichte. Abschließend werden die Grundlagen zur Polarisationskontrolle diskutiert.

### 2.1. Einführung in die Plasmonik

Bevor die Vektor-Mikroskopie erläutert wird, ist es notwendig zunächst die physikalischen Eigenschaften der SPPs an der Oberfläche vorzustellen, die für die Vektor-Mikroskopie verwendet werden. Dafür wird in diesem Kapitel kurz das SPP im Themenfeld der Plasmonik eingeordnet und anschließend eine kurze Einführung in das Themenfeld der SPPs gegeben. Für eine detailliertere Betrachtung wird im Weiteren auf einschlägige Literatur und Lehrbuchwissen verwiesen.

Die Plasmonik umfasst einen Großteil des Bereichs der Nanophotonik und beschreibt Wechselwirkungsprozesse zwischen elektromagnetischen Feldern und Elektronen in oder unterhalb der Größenordnung der Anregungswellenlänge [47]. Plasmonen sind Quasiteilchen, die als kollektive Oszillationen von Elektronen [48, 49] in einem Material oder als quantisierte Plasma- oder Elektronendichtewelle [47, 50] beschrieben werden können. In der Plasmonik werden grundsätzlich drei verschiedene Arten unterschieden, die in Abbildung 2.1 schematisch dargestellt werden.



**Abb. 2.1.:** Schematische Darstellung von einem Volumenplasmon a), einem Oberflächenplasmon-Polariton b) und einem lokalisierten Oberflächenplasmon an einem Nanopartikel (NP) in c).

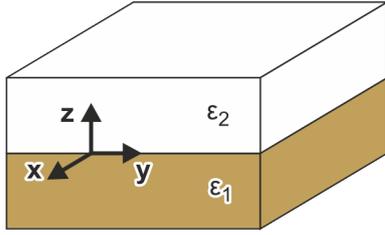
Volumenplasmonen (Abb. 2.1a)) werden durch Teilcheneinschläge im Festkörper angeregt [47]. Anders als Volumenplasmonen (3D) wird ein Oberflächenplasmon-Polariton (Abb. 2.1b)) an Oberflächen (2D) und ein lokalisiertes Oberflächenplasmon (engl. *localized surface plasmon*, kurz: LSP) [51] an Partikeln (1D) angeregt (Abb. 2.1c)).

LSPs beschreiben die optisch angeregte resonante Feldüberhöhung an Partikeln die kleiner sind als die Anregungswellenlänge. Die Resonanzwellenlänge hängt dabei von der Partikelgröße, der Form und dem Material ab [52–54] und liegt bei Edelmetallen (Gold, Silber) im sichtbaren Bereich [55].

SPPs hingegen sind optisch angeregte quantisierte Elektronendichtewellen, entlang der Metall-Dielektrikum-Grenzfläche. Dabei koppelt die elektromagnetische Welle des Lichtes an das Dipolmoment der longitudinalen Plasmaoszillation des freien Elektronengases (Oberflächenplasmon). Das SPP kombiniert die Eigenschaften der Ladungsträgeroszillation (Oberflächenplasmon) mit elektromagnetischen Welleneigenschaften des Polaritons und propagiert so als evaneszente Welle über die Oberfläche. In Gold propagiert ein SPP mit 793 nm Wellenlänge etwa 300  $\mu\text{m}$  weit [56].

### 2.1.1. Dispersionsrelation eines Oberflächenplasmon-Polaritons

Das SPP befindet sich stets an der Grenzfläche von einem Metall und einem Dielektrikum und lässt sich als elektromagnetische Welle über die Maxwell-Gleichungen in Materie beschreiben. Dabei kann angenommen werden, dass keine freien Ladungen  $\rho_{ext} = 0$  oder Ströme  $j_{ext} = 0$  existieren. Wird  $z$  wie in Abbildung 2.2 als orthogonal auf der Grenzfläche ( $xy$ -Ebene) definiert, so zerlegt sich die dielektrische Funktion  $\varepsilon_\alpha(r)$  mit dem Index für die beiden Medien  $\alpha$  in den metallischen Anteil  $\varepsilon_1$  für  $z < 0$  ( $\alpha = 1$ ) und den Anteil des



**Abb. 2.2.:** Skizze von zwei gestapelten Materialien mit unterschiedlichen dielektrischen Funktionen  $\varepsilon_\alpha$  kontaktiert an der  $xy$ -Grenzfläche. Dabei entspricht das untere goldfarbene Material dem metallischen Anteil  $\varepsilon_1$  und das obere weiße Material dem Dielektrikum  $\varepsilon_2$ .

Dielektrikums  $\varepsilon_2$  für  $z > 0$  ( $\alpha = 2$ ). Durch Einsetzen einer harmonischen Zeitabhängigkeit [47, 57]

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r})e^{-i\omega t} \quad (2.1)$$

wird aus der Wellengleichung

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \frac{\varepsilon(\vec{r})}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.2)$$

die Helmholtz-Gleichung

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} + k_0^2 \varepsilon(\vec{r}) \vec{E} = 0, \quad (2.3)$$

mit  $k_0 = \frac{\omega}{c}$  als Vakuum-Wellenvektor. Nun kann die Gleichung durch Separation der beiden Halbräume orthogonal zur Grenzfläche (entlang der  $z$ -Richtung) geschrieben werden als

$$\vec{E}_\alpha(\vec{r}, t) = \vec{E}_\alpha^0 e^{-\kappa_\alpha |z|} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} e^{-i\omega t}. \quad (2.4)$$

Der Wellenvektor  $\vec{k}$  entspricht dem Betrag eines Wellenvektors, der parallel zur Oberfläche, demnach in Ausbreitungsrichtung verläuft. Da  $\vec{k}$  ein komplexer Vektor ist, schließt er damit auch Dämpfung ein. Für die Abklingkonstante orthogonal zur Oberfläche  $\kappa_\alpha$  gilt

$$\kappa_\alpha^2 = k_\alpha^2 - \varepsilon_\alpha \cdot k_0^2. \quad (2.5)$$

Wird nun Gleichung 2.4 unter der Randbedingung, dass elektrische und magnetische Felder an der Grenzfläche stetig sein müssen, in die Maxwell Gleichungen eingesetzt, folgt

$$\frac{\kappa_1}{\kappa_2} = -\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}. \quad (2.6)$$

In einem alternativen Ansatz [58] wird ausgenutzt, dass das Amplitudenverhältnis zwischen dem einfallenden elektromagnetischen Feld  $E_{\text{ein}}$  und dem reflektierten elektromagnetischen Feld  $E_{\text{ref}}$  über die Fresnelgleichung beschrieben werden kann. Für p-polarisiertes

Licht ergibt sich der Reflexionskoeffizient

$$\xi = \frac{E_{\text{ref}}}{E_{\text{ein}}} = \frac{\varepsilon_1 k_2^\perp - \varepsilon_2 k_1^\perp}{\varepsilon_1 k_2^\perp + \varepsilon_2 k_1^\perp}, \quad (2.7)$$

wobei  $k_\alpha^\perp = k_{\alpha z}$  orthogonal auf der Grenzfläche steht. Da laut Fano [59] nur ein Feld als Lösung der Maxwell Gleichung für die Oberfläche existiert, muss  $E_{\text{ref}} = 0$  oder  $E_{\text{ein}} = 0$  gelten. Ist der Zähler  $E_{\text{ref}} = 0$  ergibt sich

$$\frac{\kappa_1}{\kappa_2} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}, \quad (2.8)$$

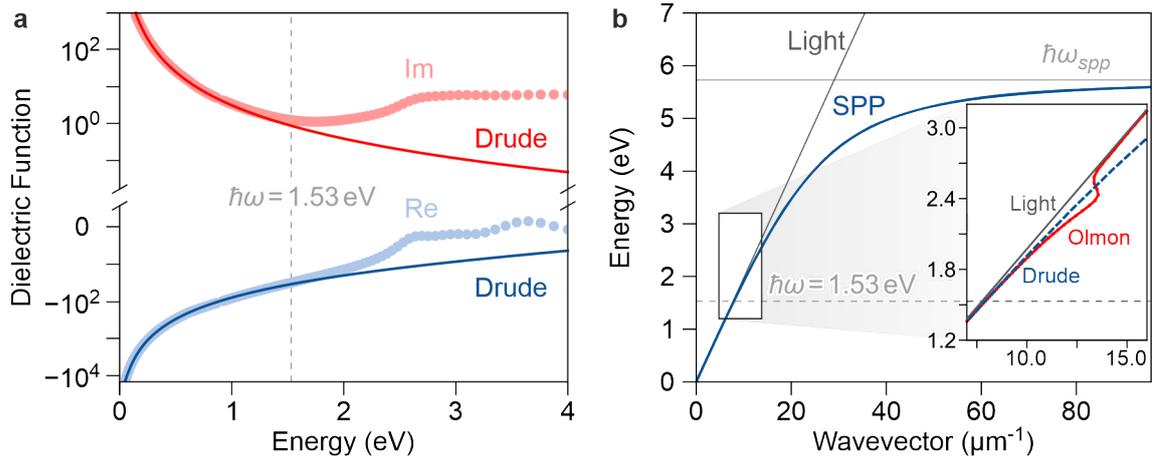
was der Brewstermode entspricht [58]. Für den Nenner ( $E_{\text{ein}} = 0$ ) ergibt sich direkt die SPP-Bedingung aus Gleichung 2.6 und entspricht der Fano-Mode oder SPP-Mode. Das SPP lässt sich als Eigenmode des Systems interpretieren, die genau dann auftritt, wenn der Reflexionskoeffizient  $\xi$  gerade eine Polstelle aufweist. Das SPP ist an die Oberfläche gebunden und somit müssen die Felder in beiden Medien evaneszent abfallen. Aus Gleichung 2.4 folgt, dass  $k^\perp = -i\kappa$  dafür rein imaginär mit positiven Imaginärteil  $\Im(k_\alpha^\perp) > 0$  sein muss, da sonst der Betrag des elektrischen Feldes an der Oberfläche ansteigen würde. Damit ist die linke Seite von Gleichung 2.6 positiv was mit einem Vorzeichenwechsel in den Realteilen der dielektrischen Funktion  $\Re(\varepsilon_\alpha)$  zwischen den beiden Medien ( $\Re(\varepsilon_1) < 0$  wenn  $\Re(\varepsilon_2) > 0$ ) einhergehen muss. Als Kombination werden deswegen oft Metalle oder metallische (hochdotierte) Halbleiter, die eine hohe negative dielektrische Funktion aufweisen mit Dielektrika wie Vakuum oder undotierten Halbleitern mit positiver dielektrischer Funktion verbunden. In dieser Arbeit werden ausschließlich die SPPs an der Gold-Vakuum-Grenzfläche untersucht.

Durch einsetzen von Gl. 2.6 unter Ausnutzung der Stetigkeit  $k_{\text{SPP}} = k_\alpha$  in Gl. 2.5, folgt die Dispersionsrelation

$$k_{\text{SPP}}(\omega) = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}. \quad (2.9)$$

Dabei steht  $k_{\text{SPP}}$  für den parallel zur Oberfläche stehenden Wellenvektor des SPPs. Im einfachen Fall lässt sich das Gold-Vakuum Materialsystem im Rahmen des Drude-Modells

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i \frac{\omega}{\tau}} \quad (2.10)$$



**Abb. 2.3.:** Abbildung a) zeigt Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion von Gold in Abhängigkeit von der Energie gemäß der Drude-theorie (durchgezogene Linie) und nach Olmon *et al.* [60] (Punkte). Abbildung b) zeigt die Lichtgerade in grau und in blau die Dispersionsrelation für SPPs im Drude Modell an einer planaren Gold-Vakuum-Grenzfläche in Einheiten des reziproken Wellenvektors. Die in grau eingezeichneten horizontalen Linien entsprechen einer Wellenlänge von 800nm, sprich  $\hbar = 1.53$  eV (gestrichelte Linie) und der Plasmafrequenz (durchgezogene Linie). Die experimentellen Daten entstammen dem Artikel von Olmon *et al.* [60]. Im Einschub ist eine Vergrößerung auf den relevanten Bereich gezeigt, in der Lichtgrade, Drude-Darstellung und die aus Daten extrahierte Kurve nach Olmon *et al.* eingezeichnet sind. Abbildung nach Masterarbeit Pascal Dreher [61].

betrachten. Mit  $\tau$  als mittlere elektronische Streuzzeit und  $\omega_p$  als Plasmafrequenz, ergibt sich durch Einsetzen von  $\varepsilon_2 = 1$  (Vakuum) mit Umformung, die Dispersionsrelation für SPPs

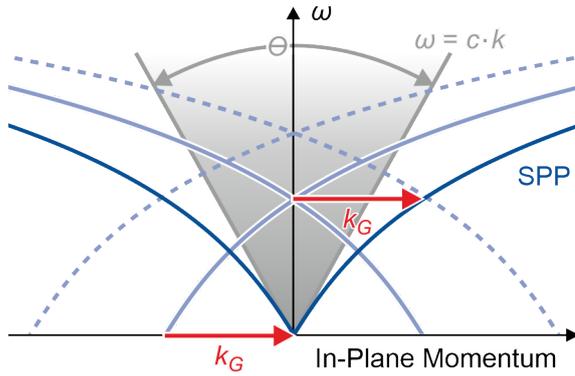
$$\omega^2(k_{\text{SPP}}) = k_{\text{SPP}}^2 c^2 + \frac{\omega_p^2}{2} - \sqrt{k_{\text{SPP}}^4 c^4 + \frac{\omega_p^4}{4}}. \quad (2.11)$$

In Abbildung 2.3 ist entsprechend Gleichung 2.10 in a) die dielektrische Funktion in Abhängigkeit von der Energie dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass durchgezogenen Linien, die dem Drude Modell entstammen für kleine Energien bis hin zu den in unserem Experiment verwendeten 1.53 eV sehr gut mit den experimentellen Datenpunkten von Olmon *et al.* [60] zusammenpassen und für höhere Energien in realen Systemen einem komplizierteren Verlauf folgen.

In Abbildung 2.3b) ist gemäß Gleichung 2.11 die Dispersionsrelation als Energie in Abhängigkeit des Wellenvektors aufgetragen. Der mit einem schwarzen Kasten markierte relevante Bereich ist im Einschub vergrößert dargestellt. Hier ist zu sehen, dass bei der im Experiment verwendeten Energie von 1.53 eV die experimentellen Daten von Olmon *et al.* (rot), das Drudemodell (blau) und die Lichtgerade (grau) in guter Näherung übereinstimmen. Damit ist genäherte Betrachtung im Drudemodell zumindest in diesem Energiebereich gerechtfertigt. Für große SPP Wellenvektoren nähert sich die Dispersionsrelation nach dem Drudemodell der Oberflächenplasmon-Energie. Die experimentellen Daten im Einschub hingegen nähern sich der Lichtgeraden an. Auch gut zu erkennen ist jedoch der Impulsunterschied zwischen der Lichtgeraden und dem Verlauf der SPP-Dispersionsrelation. Ein SPP lässt sich demnach rein optisch nicht anregen. Im folgenden Unterkapitel 2.1.2 wird gezeigt wie ein SPP dennoch optisch angeregt werden kann.

### 2.1.2. Anregung eines Oberflächenplasmon-Polaritons

Für die optische Anregung eines SPPs muss ein Impulsübertrag bereitgestellt werden. Der benötigte Impulsübertrag kann über eine topographische Änderung der Oberfläche erreicht werden. Dies funktioniert mit einer herausstehenden Kante und einem Graben gleichermaßen. Mittels Elektronenstrahlolithografie (engl. *electron beam lithography*, kurz: EBL) oder mit der Ionenfeinstrahlanlage (engl. *focused ion beam*, kurz: FIB) können Strukturen kontrolliert gewachsen oder geschnitten werden. Dabei kann es einfach ein einzelner Strich sein, ein periodisch strukturiertes Strichgitter oder komplexere Strukturen wie sie im Laufe dieser Arbeit noch häufiger beschrieben werden. Die Einkopplungseffizienz ska-



**Abb. 2.4.:** Impulsübertrag zur Anregung von SPP. Der Lichtkegel ist grau dargestellt, während die durch die rot dargestellten Gittervektoren replizierten Dispersionsrelationen blau dargestellt sind. Abbildung nach Masterarbeit Pascal Dreher [61].

liert dabei mit der Breite und Tiefe des Kopplers [62] (Näheres in Kap. 2.4.3) und die Intensität lässt sich durch ein optimiertes periodisches Gitter erhöhen [63, 64]. Wie in Abbildung 2.4 zu sehen, beträgt der zu überbrückende Gittervektor

$$k_{\text{SPP}}(\omega) = k \sin(\theta) + nk_{\text{G}} \quad (2.12)$$

und setzt sich zusammen aus dem Gittervektor des Lichtes  $k$ , das unter einem Winkel  $\theta$  zur Flächennormalen eingestrahlt wird und dem Vielfachen  $n$  des SPP-Gittervektors

$$k_{\text{G}} = \frac{2\pi}{a} = \frac{2\pi}{\lambda_{\text{SPP}}}, \quad (2.13)$$

wobei der Gitterabstand  $a$  auf die SPP-Wellenlänge  $\lambda_{\text{SPP}}$  festgelegt wird. Im verwendeten Experiment vereinfacht sich Gleichung 2.12 noch ein wenig, da der Einfallswinkel stets senkrecht zur Oberfläche ist und somit  $\theta = 0$  gilt. Die SPP-Dispersionsrelation repliziert sich im reziproken Raum (vgl. Abb. 2.4) um den Gittervektor  $k_{\text{G}}$  und ermöglicht so die Kopplung von Licht und SPP. Demnach können SPPs auch nur durch die Feldkomponente des Lasers angeregt werden, die parallel zu  $k_{\text{G}}$  und somit senkrecht auf dem Gitter stehen. Wie bei elektronischen Strukturen, kommt es bei einem Gitter zu vermiedenen Kreuzungen (engl. *anti crossing*) am Brillouin-Zonenrand, sodass sich eine plasmonische Bandlücke an den Entartungspunkten ausbildet [65].

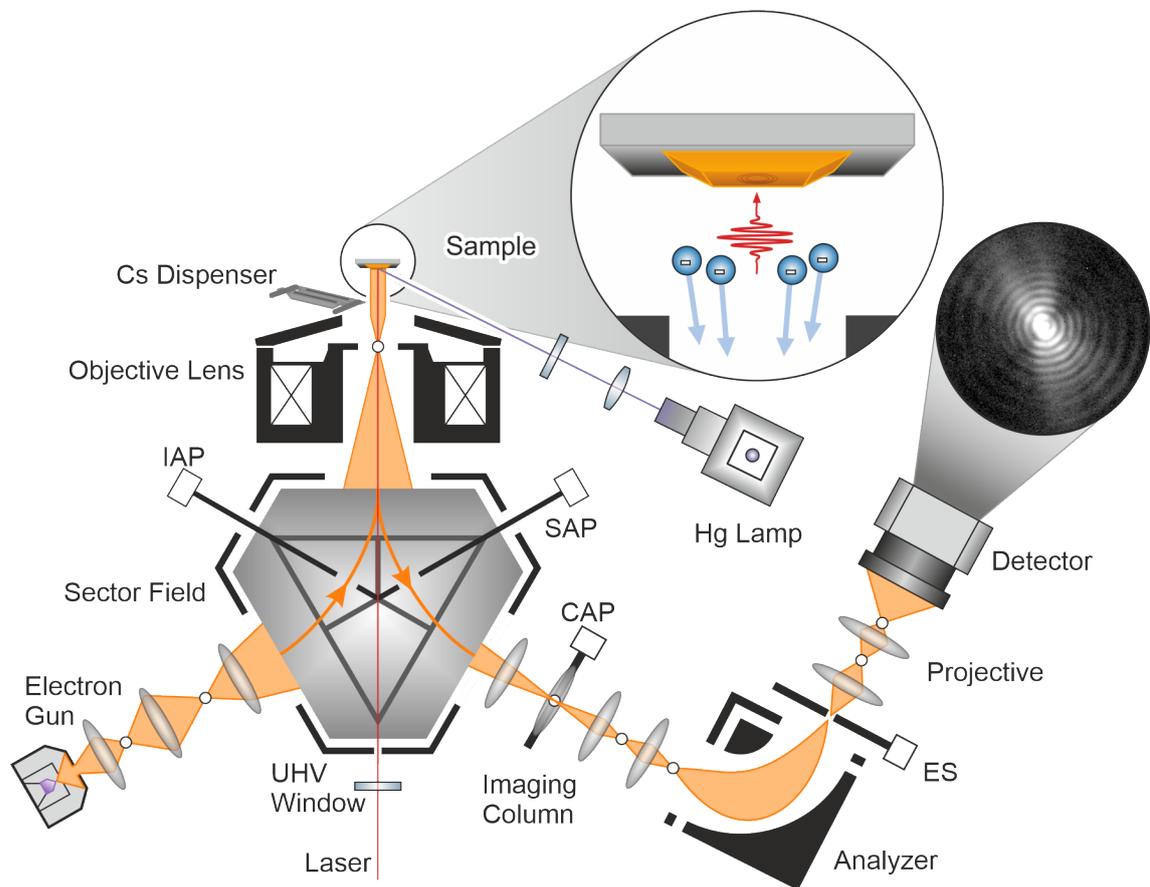
## 2.2. Abbildung von Plasmonen

Als lichtartiges Phänomen bewegen sich SPPs mit nahezu Lichtgeschwindigkeit [66] über die Oberfläche und koppeln dabei an die elektronischen Eigenschaften des Materials [67]. Da die Wellenlänge des SPPs in der Größenordnung des Lichtes (einige hundert Nanome-

ter) liegt, ist es notwendig eine Methode zu wählen die sub-Wellenlängen Auflösung hat, um ein SPP zu visualisieren. Dies legt nahe, dass für die Untersuchung von SPPs lediglich eine oberflächensensitive Nahfeldmethode oder eine elektronenbasierte Methode in Frage kommt. Zu den optischen Methoden gehören das optische Rasternahfeldmikroskop (engl. *scanning near field microscopy*, kurz: SNOM), die Streu- und Leckstrahlungs-Mikroskopie (engl. *leakage radiation microscopy*) [68] und die abgeschwächte Totalreflexion Infrarotspektroskopie (engl. *attenuated total reflection infrared spectroscopy*)[69]. Kürzlich wurde die Reihe an Methoden um die nichtlineare optische Nahfeldmikroskopie (engl. *nonlinear near-field optical microscopy*, kurz: NNOM) erweitert, welche den nichtlinearen Prozess der Vier-Wellen-Mischung ausgenutzt [13]. Elektronenenergieverlustspektroskopie (engl. *electron energy loss spectroscopy*, kurz: EELS) war die erste Elektronen-basierte Methode mit der die später als Oberflächenplasmon bezeichnete Quantisierung der kollektiven Anregung experimentell nachgewiesen wurde [57, 70–72]. Photon-induzierte Elektronennahfeld-Mikroskopie (engl. *photon-induced near-field electron microscopy*, kurz: PINEM) ist eine im letzten Jahrzehnt entwickelte Methode in einem ultraschnellen Transmissionselektronenmikroskop (UTEM), mit der simultan die Quantisierung und die Interferenzmuster beobachtet werden können [8, 73]. In dieser Arbeit wird hingegen ein als PEEM betriebenes niederenergetisches Elektronenmikroskop (engl. *low energy electron microscope*, kurz: LEEM) zur direkten konzeptionellen Visualisierung von SPPs mittels nichtlinearer Photoemission genutzt. In diesem Kapitel werden die Eigenschaften und Möglichkeiten des in dieser Arbeit verwendeten LEEMs der Firma *Elmitec GmbH* erläutert, mit einem Fokus auf den erstmalig an einem LEEM installierten Elektronen-Detektor F216 von *TVIPS*, welcher diese Arbeit erst ermöglichte.

### 2.2.1. Photoemissions-Elektronenmikroskopie

Im PEEM wird die Photoemission ausgenutzt, um Elektronen auszulösen. Grundsätzlich lassen sich durch den verwendeten Elektronen-Detektor jedoch jegliche Elektronen detektieren. Wird das PEEM um einen Sektor und eine Elektronenquelle erweitert handelt es sich um ein LEEM. In dieser Arbeit wird ein LEEM kombiniert mit einem externen Lasersystem als PEEM genutzt und in den folgenden Absätzen werden, nach einer kurzen geschichtlichen Einordnung, die grundlegenden Eigenschaften des Gerätes spezifiziert.

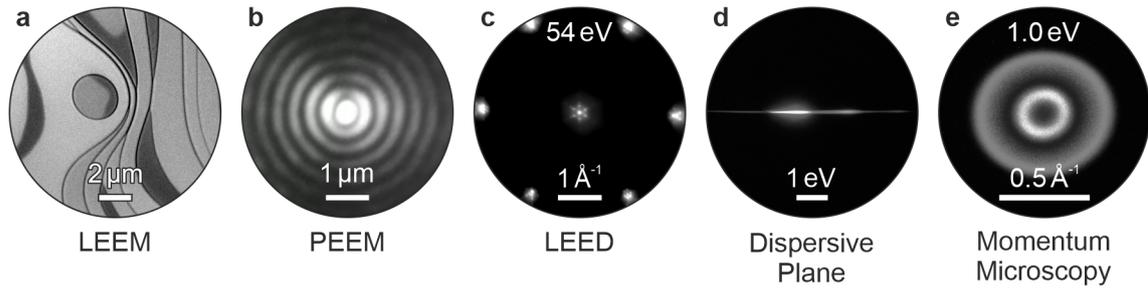


**Abb. 2.5.:** Schematische Darstellung des spektroskopischen Photoemissions- und niederenergetischen Elektronenmikroskops SPE-LEEM III von *Elmitec*. Die Abbildung zeigt die wesentlichen Komponenten für die elektronenoptische Abbildung, wobei der Strahlengang in orange dargestellt ist. Neben der Elektronenquelle werden auch ein Laser im senkrechten Einfall zur Probe und eine Quecksilber-Dampflampe als Beleuchtungsquellen verwendet. Die Elektronen werden durch ein Sektorfeld zunächst in zur Probe und anschließend zur Abbildungsoptik geleitet. Hier stehen verschiedene Aperturen, sowie ein Analysator zur Energiefilterung zur Verfügung, bevor der Elektronen-Detektor erreicht wird. Abbildung nach [74, 75].

LEEM wurde bereits 1962 von Ernst Bauer entwickelt [76] und hat 1985 den vollen Funktionsumfang aller Abbildungsmethoden, inklusive der niederenergetischen Elektronenbeugung (engl. *low energy electron diffraction*, kurz: LEED), erreicht [74]. Im Jahr 1996 wurde LEEM um einen hemisphärischen Analysator ergänzt [77] und wurde so zum spektroskopischen Photoemissions- und niederenergetischen Elektronenmikroskop (engl. *spectroscopic photoemission and low energy electron microscope*, kurz: SPE-LEEM). Auch heute wird das in dieser Arbeit genutzte SPE-LEEM III in verschiedenen Variationen noch von der Firma *Elmitec GmbH* vertrieben.

Abbildung 2.5 zeigt eine schematische Darstellung des in dieser Arbeit benutzten Aufbaus des SPE-LEEM III. Das im Verhältnis deutlich größer dargestellte zentrale Element des LEEM ist der Sektor. Dieser beinhaltet ein inhomogenes Magnetfeld, womit die Bildebenen trotz der bogenförmigen Ablenkung stets phasenrichtig abgebildet werden. Oben im Bild ist die Probe mit einer Vergrößerung dargestellt. Mit einer geeigneten Quelle können mittels Photoemission Elektronen an der Probe ausgelöst werden. Diese Quelle kann eine Quecksilberdampfampe (Hg-Lampe) sein oder ein Laser im senkrechten Einfall zur Probe.

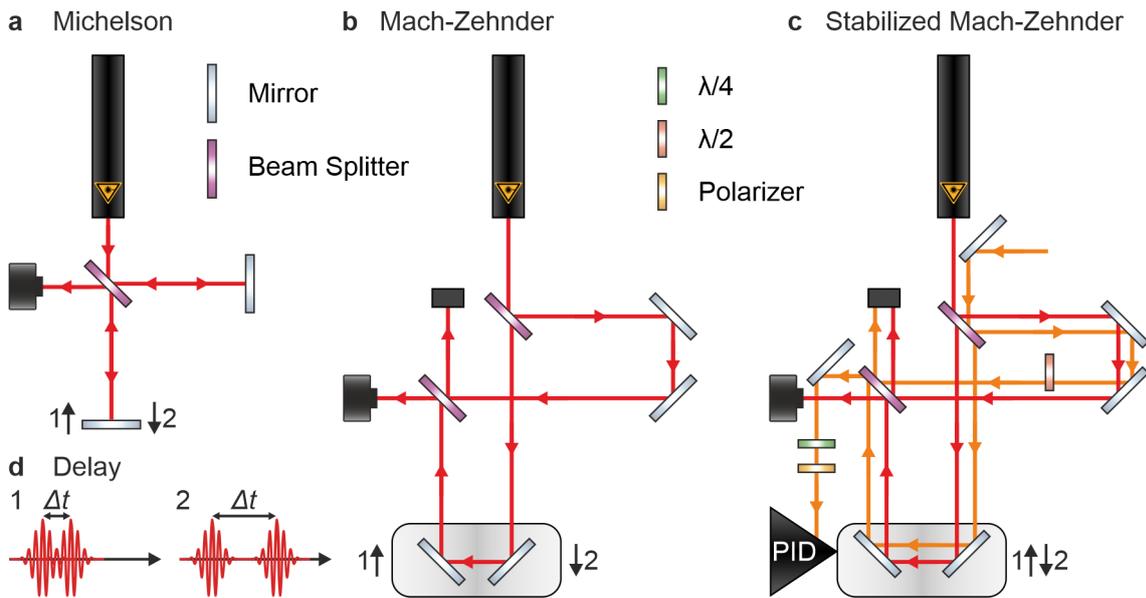
Alternativ kann die Elektronenkanone verwendet werden, um Elektronen direkt mit der Probe wechselwirken zu lassen. Im SPE-LEEM III besteht die Elektronenquelle aus einem  $LaB_6$ -Kristall umschlossen von einem Wehneltzylinder, der den Fluss an Elektronen reguliert. Die aus dem Elektronenemitter beschleunigten auf 20 keV beschleunigten Elektronen werden vom Sektor auf die Probe gelenkt und durch die zwischen Objektivlinse und Probe angelegte Hochspannung von  $-20\text{ keV} + E_{\text{STV}}$  auf eine gewählte Energie  $E_{\text{STV}}$  abgebremst, sodass diese mit der Probe wechselwirken können. Die Energie kann über eine Startspannung (engl. *start voltage*, kurz: STV) gesteuert werden. Durch die geringe Elektronenenergie ist die Methode extrem oberflächensensitiv. Dabei kann die Energie so gewählt werden, dass die Elektronen kaum oder gar nicht in die Oberfläche eindringen und direkt reflektiert werden. Der sogenannte Spiegelmodus (engl. *mirror mode*) ist hoch empfindlich auf Oberflächeneigenschaften wie Topographie, Austrittsarbeitsänderungen, Potenzialunterschiede oder magnetische Streufelder [78]. Bei höheren Energien ( $\approx 1\text{ eV}$  bis  $100\text{ eV}$ ) im regulären LEEM interagieren die Elektronen oberflächensensitiv mit der Probe und werden anschließend durch die angelegte Hochspannung wieder Richtung Sektor beschleunigt.



**Abb. 2.6.:** Darstellung von Beispielen verschiedener Abbildungsmodi im SPE-LEEM. Bild a) zeigt mit Borophene dekorierte Stufen auf Ir(111) im LEEM [79]. Im zweiten Bild b) ist eine  $J_0$  Besselmode im PEEM dargestellt [80]. In c) ist in der LEED-Aufnahme einer Goldinsel die Herringbone Rekonstruktion zu sehen. In der dispersiven Ebene in [67] d) ist ein Multiphotonen-Spektrum darstellt [80]. Zuletzt in e) ist eine Impulskarte (engl. *momentum map*) gezeigt. Dabei handelt es sich um den Oberflächenzustand einer Gold-Insel [67].

Nach der Wechselwirkung (LEEM) oder der Photoemission (PEEM) werden die Elektronen zum Objektiv beschleunigt und verlassen den Sektor anschließend in Richtung des Analysearms. Die Elektronen können durch den Analysator noch energiegefiltert (Energieschlitz (engl. *energy slit*, kurz: ES)) werden und treffen dann auf den Detektor. Eine Kombination aus verschiedenen elektromagnetischen Linsen ermöglicht nun eine Wahl von verschiedenen Abbildungsmodi (Abb. 2.6). Hierbei sind Realraumabbildungen mit verschiedenen Gesichtsfeldern (engl. *field of view*, kurz: FOV) zwischen 2 und 100  $\mu\text{m}$  Seitenlänge im LEEM (Abb. 2.6a)) und PEEM (Abb. 2.6b)) möglich. Desweiteren können auch LEED (Abb. 2.6c)) oder auch die Abbildung der dispersiven Ebene (Abb. 2.6d)) verwendet werden. Verschiedene Aperturen in der entsprechenden Bildebene (Bildauswahlblende (engl. *selective area aperture*, kurz: SAP)) oder Beugungsebene (Kontrastapertur (engl. *contrast aperture*, kurz: CAP)) erweitern das Repertoire des Geräts und ermöglichen die Selektion von Bereichen in Realraum, reziproken Raum oder der Energieebene. Unter anderem können so auch Energieschnitte im reziproken Raum gemacht werden (Abb. 2.6e)).

Des Weiteren bietet die Kammer einige *in-situ* Präparationsmethoden die für diese Arbeit wichtig sind. Die Probe kann beim Schleusen mit einem Sauerstoffplasma von Kohlenwasserstoffen befreit werden. Dafür ist der *Evactron 25* Plasmareiniger von *XEI Scientific* im Einsatz. In einer dahinter geschalteten Präparationskammer kann die Probe über den dafür konzipierten Probenhalter durch Strahlungswärme oder Elektronenstoß geheizt werden. Die Sputtergun *FDG 15* von *Focus GmbH* trägt mit Argon-Ionen einige Lagen von



**Abb. 2.7.:** Skizze eines Michelson Interferometers a), eines Mach Zehnder Interferometers b) und eines Pancharatnam-Phasen-stabilisierten Mach Zehnder Interferometers. Durch eine Längenänderung eines Interferometerarms lässt sich die Zeitverzögerung  $\Delta t$  zwischen zwei Pulsen einstellen. Zwei exemplarische Zeitverzögerungen sind in d) dargestellt.

der Probe ab und kann diese so von oberflächlichen Verunreinigungen befreien. In der in Abbildung 2.5 gezeigten Proben- oder Hauptkammer besteht wiederum die Möglichkeit den Probenhalter zu heizen und *in-situ* Materialien aufzudampfen. In dieser Arbeit ist vor allem der dargestellte Cs-Verdampfer (*Alkali Metal Dispenser* von *SAES Getters*) wichtig, da Cs die Austrittsarbeit der Goldoberfläche senkt [81]. Das Cs-Salz ist in zwei parallel geschalteten Trog-förmigen Stäbchen gebunden und wird über einen Direktstrom erwärmt und verdampft.

## 2.2.2. Zeitaufgelöste Experimente

Für die zeitaufgelöste Vektor-Mikroskopie muss zunächst geklärt werden, wie SPP-Dynamik gemessen wird und welche Prozesse dafür ausgenutzt werden. In diesem Kapitel werden deshalb die grundlegenden Prinzipien der zeitaufgelösten Experimente skizziert und die ausschlaggebenden Parameter des Aufbaus erläutert.

Die Zeitskala der SPP-Dynamik ist als lichtartiges Phänomen und damit mit Werten nahe der Lichtgeschwindigkeit weitab von Geschwindigkeiten, die für reguläre Kameras messbar sind. Um diese Phänomene dennoch phasenaufgelöst zu studieren, wird die Interfero-

metrie genutzt. Das einfachste Interferometer ist das Michelson-Interferometer (Abbildung 2.7a)), welches bereits 1887 genutzt wurde, um mit dem als Michelson-Morley-Experiment bekannten Experiment die Lichtäther-Theorie zu widerlegen [82]. Im Michelson Interferometer wird Licht an einem Strahlteiler geteilt und auf je einen Spiegel geleitet. Das zurückgespiegelte Licht wird am selben Strahlteiler wieder zusammengeführt und trifft auf einen Detektor. Über den Wegunterschied in den beiden Interferometerarmen wird eine Phase aufgeprägt, die zur messbaren Interferenz führt.

Um weitere Manipulationen im Interferometer zu erlauben, werden innerhalb der Interferometerarme Hin- und Rückweg getrennt und für das Auskoppeln wird ein zweiter baugleicher Strahlteiler genutzt. Diese Bauart ist als Mach-Zehnder-Interferometer (kurz: MZI, Abbildung 2.7b)) [83, 84] bekannt. Wird das MZI statt mit einer monochromatischen Lichtquelle mit einem gepulsten Laser betrieben, muss aufgrund des breiten Spektrums zunächst über die Autokorrelation der Überlapp der Pulse gefunden werden. In dieser Arbeit wird ein 80 MHz Titan-Saphir-Laser mit 15 fs Pulsen und 800 nm Zentralwellenlänge genutzt. Über einen Wegunterschied  $\Delta s = c \cdot \Delta t$  der beiden Interferometerarme kann die Zeitverzögerung  $\Delta t$  eingestellt werden. Für  $c \approx 300 \text{ km/s} = 300 \text{ nm/fs}$  und eine gewünschte Präzision von mindestens 0.1 fs ergeben sich Wegunterschiede von  $\Delta s \approx 30 \text{ nm}$ . Diese Präzision ist nur mittels eines Piezomotors einstellbar.

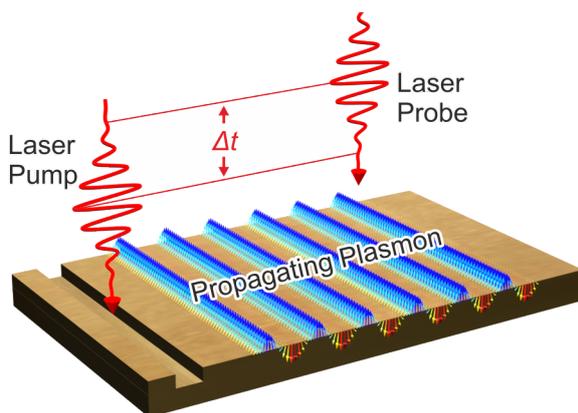
Auch bei diesen scheinbar kurzen Wegen kann es in den beiden Interferometerarmen durch ein Flattern der Spiegel zu leichten Abweichungen kommen. Um etwaige Fehler auszukorrigieren, wird mittels eines monochromatischen Stabilisierungslasers (Abb. 2.7c)) und eines Proportional-Integral-Ableitungs-Reglers (engl. *proportional-integral-derivative controller*, kurz: PID) eine in einem Interferometerarm befindliche Piezobühne aktiv stabilisiert [85–87]. Bei dieser Art der Stabilisierung wird die Pancharatnam-Phase [88] ausgenutzt, um die beiden Interferometerarme zu stabilisieren.

In einem der beiden Interferometerarme wird eine  $\lambda/2$  Wellenplatte so gedreht, dass die Polarisation der Stabilisierungslaser in den beiden Interferometerarmen orthogonal sind. Nach dem Zusammenführen passieren beide Teilstrahlen zunächst eine entsprechend gedrehte  $\lambda/4$  Wellenplatte, was sie links und rechts zirkular macht, sodass die Superposition der beiden zirkularen Teilstrahlen wieder linear ist. Anschließend wird ein drehbarer Polarisator passiert und an einer Diode die Intensität gemessen und von einem Labview Programm analysiert. Verändert sich die Wegstrecke in einem der Interferometerarme, so

ändert sich zunächst die Phasenbeziehung der zirkularen Teilstrahlen und anschließend dreht sich das superponierte lineare Signal. Dreht sich die lineare Polarisation ändert sich auch das Signal hinter dem Polarisator, was zur Regelung genutzt wird.

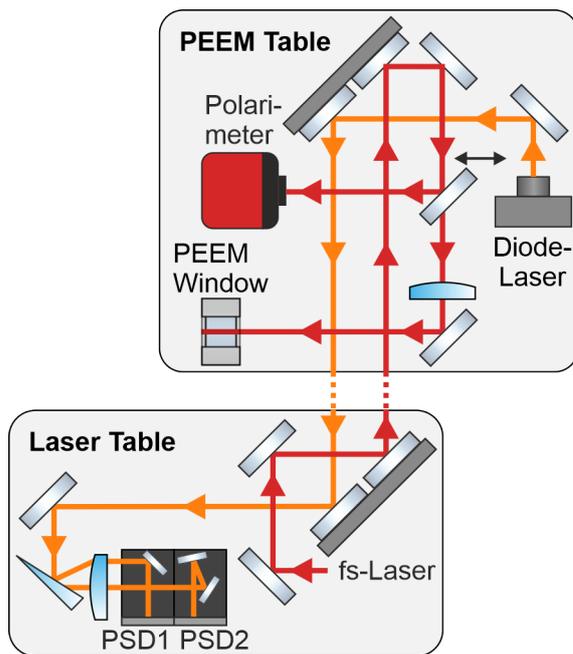
Das Regelsignal ist maximal, wenn die lineare Polarisation der Richtung des Polarisators entspricht und minimal, wenn sie senkrecht auf dem Polarisator steht. Demnach folgt der Intensitätsverlauf einer Sinus- bzw. Kosinuskurve. Um die maximale Empfindlichkeit zu erhalten, wird nicht auf das Maximum oder Minimum der Intensität, sondern auf die Flanke mit maximaler Steigung stabilisiert. Auf der steilen Flanke ist die Regelantwort einigermaßen linear und die Empfindlichkeit bezüglich kleiner Änderungen am höchsten. Die somit präzise Regelgenauigkeit des PID wird genutzt, um die Piezobühne entsprechend nachzuführen.

Die notwendigen Weiterentwicklungen dieses Interferometers für diese Arbeit sind in Kapitel 3.3 für die Vektor-Mikroskopie und in Kapitel 5.3 für die Vektor-Polarimetrie zu finden.



**Abb. 2.8.:** Schematische Skizze eines Anrege-Abfrage-Experiments. Der Anrege-Laser trifft die Probe mit linearer Struktur. An dieser Struktur wird ein lineares SPP ausgelöst, welches über die Probe propagiert. Nach einem Zeitverstoß  $\Delta t$  misst der zweite Laserpuls die direkte konzeptionelle Visualisierung des SPP.

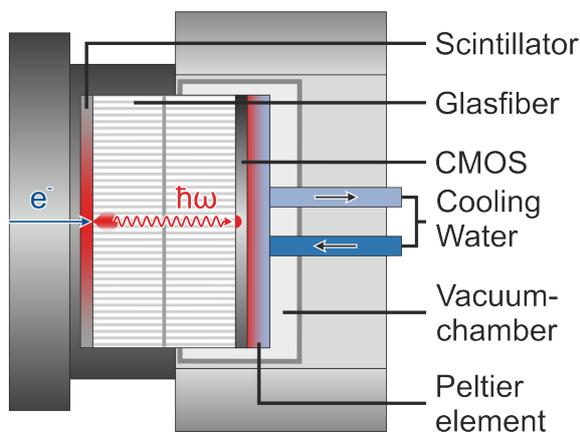
Die zeitlich getrennten Pulse werden nun als Anrege- oder Pump-Puls und als Abfrage- oder Probe-Puls bezeichnet. Wie in Abbildung 2.8 dargestellt, wird durch den Anrege-Puls ein SPP gestartet, welches zunächst propagieren kann, bevor nach einer Zeitverzögerung  $\Delta t$  der Abfrage-Puls die Probe erreicht und durch einen nichtlinearen Prozess (Kap. 2.4.2) das auf der Probe befindliche SPP misst. Die Laserpulse beleuchten dabei einige zehn bis wenige hundert Mikrometer der Probe. Demnach löst auch der Abfrage-Puls ein SPP aus. Durch die Wahl einer ausreichend hohen Zeitverzögerung (abhängig von der Länge des SPP-Pulses) kann eine Ort-zeitliche Trennung der beiden SPP-Pulse erreicht werden.



**Abb. 2.9.:** Strahlagestabilisierung zwischen dem PEEM-Tisch und dem Laser Tisch. Der Strahl einer Laserdiode (gelb) passiert zwei piezo- und schrittmorgesteuerte Doppelspiegel (durch Balken verbundene Spiegel), wobei jeweils einer auf einem der beiden Tische steht. Ein Keil spaltet den Stabilisierungslaser auf und leitet die Teilstrahlen durch eine Linse über Spiegel auf zwei positionssensitive Detektoren. Dabei analysiert einer die Position der andere den Winkel. Der fs-Laser (rot) passiert baugleiche Spiegel in entgegengesetzter Richtung und kann wahlweise auf das Polarimeter oder durch Herausnehmen des Spiegels in das PEEM geleitet werden.

Neben der zeitlichen Stabilität ist auch die örtliche Stabilität wichtig. Das Gesichtsfeld im PEEM beträgt in der Regel  $15\ \mu\text{m}$ – $50\ \mu\text{m}$  und auch die Strukturgrößen sind in dieser Größenordnung. Wenn der Laser auch nur wenige Mikrometer auf der Probe schwankt verändert sich bereits die Intensität. Da die zurückgelegte Wegstrecke des Lasers in der Größenordnung weniger Meter liegt, entspricht bereits die Vibration einzelner Spiegel der notwendigen Stabilität. Um die Optik vom Boden und damit etwaigen Schwingungen zu entkoppeln sind sowohl der Lasertisch als auch der PEEM-Tisch pneumatisch gelagert. Um mögliche Bewegungen zwischen den Tischen auszugleichen, wird das Strahlagenstabilisierungssystem *Aligna PSD 4D* von *TEM Messtechnik GmbH* genutzt.

Wie in Abbildung 2.9 gezeigt, wird eine auf dem PEEM-Tisch befindliche Laser-Diode über zwei Piezo- und Schrittmotor gesteuerte Doppelspiegel auf zwei auf dem Laser-Tisch befindliche Position Sensitive Detektoren (kurz: PSD) gelenkt. Diese beiden über eine Software eingelernten Spiegel stabilisieren auf den PSDs Ort und Winkel der Diode und somit auch die Position des fs-Lasers, der die entsprechend anderen Spiegel der Doppelspiegel passiert.



**Abb. 2.10.:** Schematische Zeichnung des Detektors mit Sensoreinheit. Der Sensor besteht aus einem Szintillator, an dem auftreffende Elektronen in Licht umgewandelt werden. Direkt auf dem Szintillator ist ein Glasfaserstrang, der mit einem zweiten Faserstrang verbunden wird, welcher wiederum direkt auf dem CMOS-Sensor aufgebracht wurde. Der Sensor befindet sich in einem eigenen Vakuum, das durch den hellgrauen Bereich gekennzeichnet ist und wird durch ein Peltier-Element auf  $0^\circ\text{C}$  gehalten. Durch eine Wasserkühlung wird die Wärme vom Peltier-Element abgeführt.

## 2.3. Inbetriebnahme des Detektors

Aus dem Aufbau besonders hervorzuheben ist der *TemCam-F216* Detektor von *TVIPS Tietz Video and Image Processing Systems GmbH*. In dieser Arbeit wurde der F216 das erste Mal an einem produktiven LEEM implementiert. Bisher wurden diese Detektoren nur an Transmissionselektronenmikroskopen (kurz: TEMs) verbaut. Die Inbetriebnahme des Detektors ist maßgeblich mit dieser Arbeit verknüpft und ist ein essenzieller Schritt für das Gelingen der Vektor-Mikroskopie und Vektor-Polarimetrie. In diesem Kapitel werden die Inhalte der eigenen Veröffentlichung [89] wiedergegeben, die hiermit als Eigenzitat gekennzeichnet werden.

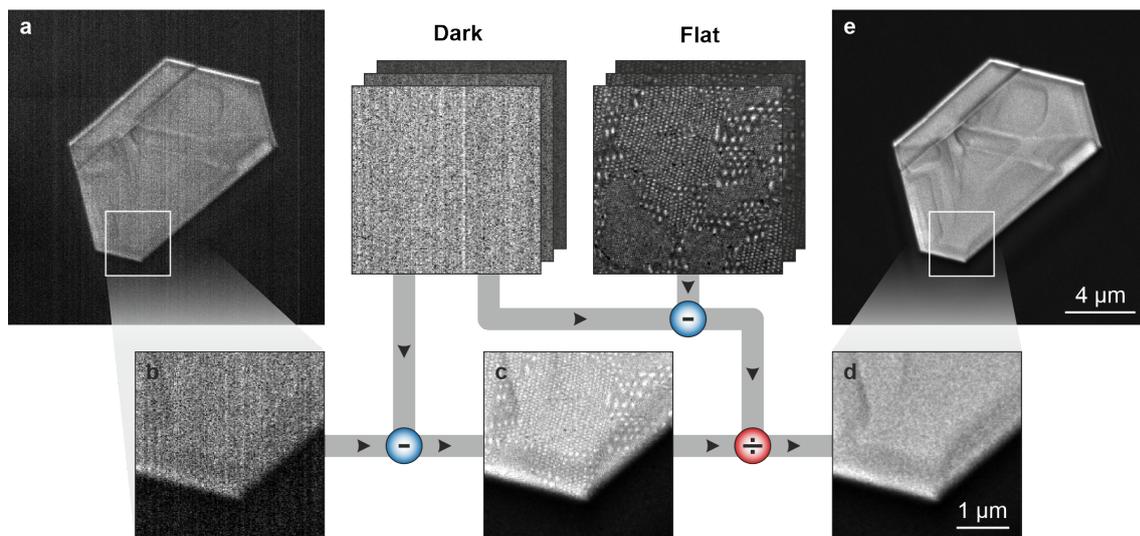
Das grundlegende Problem bei der Visualisierung von SPPs an der ursprünglichen Kombination aus einer Vielkanalplatte (engl. *multichannel plate*, kurz: MCP) von *Photonis* und der wissenschaftlichen, langsam scannenden 12 Bit CCD Kamera (*PCO Sensicam*) war stets der geringe Dynamikumfang und die Zerstörungsanfälligkeit des MCPs, speziell bei fokussierenden Strukturen [90, 91]. Im Zentrum einer solchen fokussierenden Struktur bildet sich eine stehende Welle deren Feldstärke so groß sein kann, dass es zur Multi-Photon-Photoemission (kurz: MPPE) (Kap. 2.4.1) kommt. Dabei weist die jeweils niedrigere Ordnung knapp eine Größenordnung mehr Intensität auf als die nächsthöhere Ordnung [90, 91]. Soll nun die Dynamik einer solchen Struktur untersucht werden, besteht das Risiko, dass das MCP altert [92] oder sich ein Fleck im MCP einbrennt [93]. Selbst wenn diese Schädigungsgrenze unterschritten bleibt, kommt es bei sehr hohen Intensitäten

zu einem Nachleuchten, dass die Extraktion von sich schnell ändernden quantitativen Daten erschwert. Desweiteren haben MCPs ein hohes Grundrauschen, das durch die hohe Verstärkung im MCP kaum zu vermeiden und schwer zu korrigieren ist [94]. Der F216 hat durch seine Bauweise intrinsisch eine Schädigungs- und Zerstörschwelle, die jenseits von klassischen Anwendungen im TEM liegt. Im LEEM sind diese nicht zu erreichen und dabei bietet der F216 noch einen deutlich größeren Dynamikumfang als das ursprüngliche System [89].

Wie in Abbildung 2.10 dargestellt, konvertiert der F216 die auftreffenden Elektronen über einen dünnen Phosphor-Szintillator in Lichtpulse, welche über ein Bündel an Glasfasern transportiert werden. Dieses erste Faserbündel ist noch im Vakuum mit einem zweiten Faserbündel verbunden, das dann direkt mit einem CMOS-Sensor mit  $2048 \times 2048$  Pixeln und einem Füllfaktor von 72% verbunden ist.

Als problematisch erweist sich, dass der F216 auch im aufgetauten und ausgeschalteten Zustand nicht zu sehr erwärmt werden darf und somit für die regelmäßig auftretenden Wartungsarbeiten oder für das zur Vakuumpflege notwendige Ausheizen des LEEM abgenommen werden muss. Bei jedem Abnehmen oder Anschließen besteht das Risiko einer Beschädigung des Sensors, sodass in Zukunft über eine etwa 16 cm lange Verlängerung als Driftstrecke nachgedacht wird. Diese wird durch eine Manschette ergänzt, die einen Temperaturgradienten Richtung F216 aufprägen soll. Da dies eine größere bauliche Veränderung mit Einfluss auf die Elektronenoptik ist und regelmäßige Vakuumpflege betrieben wird (durch einen Titan-Sublimator), reicht bisher ein lokales Ausheizen der Präparationskammer oder der getauschten Komponenten (meist Verdampfer) und so wurde erstmal von dieser Idee Abstand genommen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Erkenntnisse zum Detektor im LEEM- und PEEM-Betrieb substanziell vertieft und publiziert [89]. Die Bildkorrekturen (Kap. 2.3.1) ermöglichen erst die rauscharmen Aufnahmen für die Vektor-Mikroskopie. Die hohe Auflösung und der Dynamikumfang, die für eine saubere Darstellung feiner topologischer Strukturen unter einem Größenordnungen höheren Untergrund notwendig sind, zeigen sich im Performanztest (Kap. 2.3.2).



**Abb. 2.11.:** Schematische Darstellung des Korrekturverfahrens des F216 Detektors. Dargestellt ist eine Ag-Insel auf Si in verschiedenen Prozessierungsschritten. In a) ist eine Rohaufnahme ohne jegliche Korrektur. Die dazu gehörige Vergrößerung des Ausschnitts in weiß ist in b) dargestellt. In c) ist der Ausschnitt nach der Dunkelfeldkorrektur (*Dark*) gezeigt. Die Bildfehler aus c) verschwinden nach der Hellfeldkorrektur (*Flat*) und sind in d) dargestellt. In e) ist das Bild aus a) nach Dark und Flat Korrektur gezeigt. Nun sind auch feine Details auf der Oberfläche der Ag-Insel zu erkennen. [89]

### 2.3.1. Strategien zur Korrektur der Detektorantwortfunktion

Sowohl MCP-basierte Systeme als auch der F216 weisen ein detektorspezifisches Rauschmuster und eine örtlich variierende Detektorverstärkung auf. Es ist zwar möglich diese Artefakte in einem LEEM mit einem MCP-basierten Detektor zu korrigieren [94], jedoch wird eine solche Korrektur normalerweise nicht durchgeführt, da jede Überbelichtung die Korrekturbilder, die mit einem MCP-basierten Aufbau aufgenommen wurden, unbrauchbar macht.

Bilder, die mit dem F216 aufgenommen werden, zeigen ein statisches Rauschmuster, das aus Dunkelströmen resultiert und die erwähnte örtlich variierende Detektorverstärkung. Beide sind in der Regel typisch für CMOS-Detektoren sehr ausgeprägt und machen eine Korrektur unerlässlich. Da diese Bildfehler seit geraumer Zeit bekannt sind [95], gibt es bereits geeignete Konzepte, um diese Fehler zu korrigieren. Der F216 wird mit der Software *EM-Menu* geliefert, die die Möglichkeiten zur Korrektur implementiert hat.

In Abbildung 2.11 ist schematisch dargestellt, welche Prozessschritte erforderlich sind um aus einem Rohbild (2.11a) ein prozessiertes Bild (2.11e) zu erhalten. Das Rohbild in Abbildung 2.11a zeigt eine Ag-Insel (hell), die *in-situ* auf einem Si(111) Substrat (dunkel) im LEEM gewachsen wurde [96]. Das Bild wurde im PEEM aufgenommen, wobei eine Hg-Entladungslampe zur Freisetzung der Photoelektronen verwendet wurde. Um das Dunkelstrom-Rauschmuster hervorzuheben, zeigt Abbildung 2.11b) einen digitalen Zoom des weiß markierten Bereichs in Abb. 2.11a). Es ist offensichtlich, dass der Bildkontrast stark vom Dunkelstrom-Rauschen und Verstärkungsartefakten beeinträchtigt wird. Zur Korrektur des Dunkelstrom-Rauschens, kann ein aufgenommenes Bild ohne Beleuchtung (in Abb. 2.11 mit *Dark* bezeichnet) von den Daten subtrahiert werden. Abbildung 2.11c) zeigt den gleichen Bereich der Oberfläche wie in Abb. 2.11b) nach Subtraktion des Dark und zusätzlicher Kontrastanpassung. Darks müssen für jede Belichtungszeit aufgenommen werden, die im Experiment genutzt werden soll. Das verbleibende Rauschen ist Auslese-rauschen für kurze Belichtungen und Integrationsrauschen für Langzeitbelichtungen. Diese können nur durch anspruchsvolle Datenanalysetechniken entfernt werden [97, 98].

Nach der Subtraktion des Darks erscheint nun ein anderes Bildartefakt deutlicher: Spezifische honigwabeförmige Bereiche mit Intensitätsmodulationen. Diese Artefakte entstehen durch leichte Ausrichtungsfehler der Glasfaserbündel zueinander und zum CMOS-Sensor und werden dabei vom Moiré-Effekt stark verstärkt. Letztlich führt dies zu einer statischen Intensitätsmodulation in den aufgenommenen Bildern, die in Abb. 2.11c) zu sehen ist. Die kleinen Abweichungen von einer perfekten Ausrichtung zwischen den Faserbündeln und dem CMOS-Chip sind unvermeidbar. Die Ausrichtung der Glasfasern und somit auch das Moiré-Muster verändert sich bereits, wenn kleinste thermische Verspannungen durch Aufwärmen und Abkühlen des Detektors (selbst wenige Grad Celsius) aufgebracht werden.

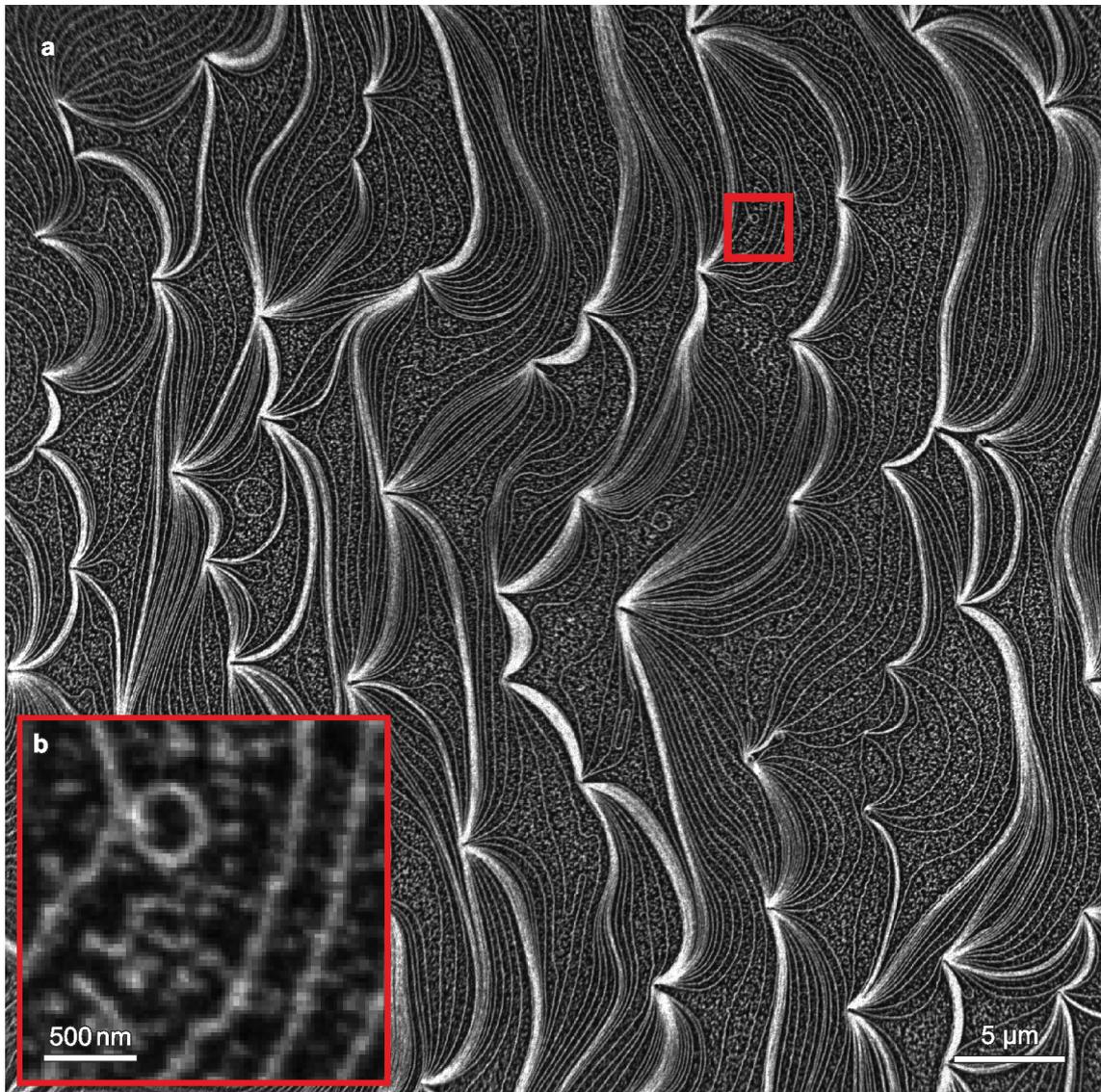
Ein weiterer Effekt, der zum Muster beiträgt, ist ein inhärentes Problem der CMOS-Sensoren. Einzelne Pixel eines CMOS-Sensors weisen unterschiedliche Verstärkungskurven auf und sind somit bei gleicher eingestrahelter Leistung unterschiedlich hell. Sowohl das Moiré-Artefakt als auch die Verstärkungsschwankungen können durch sogenanntes *Flat-Fielding* beseitigt werden. Die Verstärkungsfunktion für jedes Pixel kann bestimmt werden, indem der Detektor mit unterschiedlichen Elektronenströmen homogen beleuchtet wird (*Flats*). Um diese Flats aufzunehmen, wird im TEM der primäre Elektronenstrahl verwendet, um einen homogen beleuchteten Detektor zu erreichen. In ähnlicher Weise können, durch Ändern der Polarität der Strahlteilerspulen im Sektor des LEEM, Elektro-

nen aus der Elektronenkanone ohne jegliche Probenwechselwirkung direkt zum Detektor abgelenkt werden. Um einen möglichst homogen ausgeleuchteten Sensor zu haben, wird mittels der Wahl eines kleinen Gesichtsfeldes ein Teil des Elektronenstrahls ausgewählt und so nachjustiert, dass der angezeigte Bereich homogen ausgeleuchtet ist. Es wird bewusst auf eine Wechselwirkung mit der Probe verzichtet, da jegliche Modulation in den Flats sich genauso in allen zukünftigen Bildern widerspiegeln würde. Flats sind unabhängig von der Belichtungszeit und so müssen lediglich genug Flats gemacht werden, dass die Verstärkungskurve abgetastet wird. Aufgrund von Nichtlinearitäten der Verstärkungsfunktion ist es empfehlenswert sehr niedrige und sehr hohe Intensitäten genauer abzurastern.

Das Ergebnis nach Anwendung aller Korrekturen ist als digital vergrößerte Version in Abb. 2.11d) und in Abb. 2.11e) im Gesamtbild dargestellt. Alle besprochenen statischen Bild Artefakte wurden entfernt, und im Vergleich zu den Rohversionen in den Abb. 2.11a,b) sind mehr Details mit feineren Strukturen sowie eine drastische Verbesserung der Gesamtbildqualität zu erkennen. Die Qualität des korrigierten Zustands nimmt mit der Zeit ab und muss durch die Aufnahme neuer Darks und Flats wiederhergestellt werden. Soll ein flexibler Zustand mit vielen optionalen Belichtungszeiten bei gleichzeitig hochwertig abgerasterter Verstärkungskurve erreicht werden, dauert die Aufnahme der Korrekturbilder durchaus einige Stunden, sodass es sehr lästig wäre, wenn eine häufige Wiederholung notwendig ist. Während dies für Experimente mit extremer Präzision durchaus zutreffen kann, ist unserer Erfahrung nach eine monatliche Neukorrektur ausreichend, wenn kleinere Bildartefakte toleriert werden können.

### **2.3.2. Vergleich des F216 Detektors mit einer Vielkanalplatte-CCD-Kamera-Kombination**

Das zentrale Merkmal eines Detektors ist dessen Performanz. Um ein Verständnis für die Abbildungseigenschaften des F216 Detektors in einer LEEM/PEEM-Anwendung zu gewinnen, wurde der Detektor in verschiedenen Abbildungssituationen getestet. Zunächst gilt es herauszufinden welche Komponente des Gesamtsystems in welcher Situation der limitierende Faktor für die Auflösung ist. Bei einem Gesichtsfeld von  $50\ \mu\text{m}$  auf 2048 Detektorpixel gerechnet folgt eine theoretische Auflösung von  $24\ \text{nm}/\text{Pixel}$ , was in der Größenordnung der Auflösung des PEEM ist, sodass bei diesem und größeren Gesichtsfeldern nicht das Mikroskop sondern der Detektor limitieren sollte.



**Abb. 2.12.:** Darstellung zur Untersuchung der Auflösung in großen Gesichtsfeldern. In a) ist ein 50  $\mu\text{m}$  Gesichtsfeld von einer Si(111) Oberfläche bei leicht erhöhten Temperaturen gezeigt. Der Kontrast entsteht durch die Dekoration mit Silber und daraus resultierenden Unterschiede der Austrittsarbeit an Stufen im PEEM. In b) ist der in a) rot eingekastete Bereich 7-mal vergrößert dargestellt. Jedes Pixel im Originalbild entspricht 24 nm auf der Probe.[89]

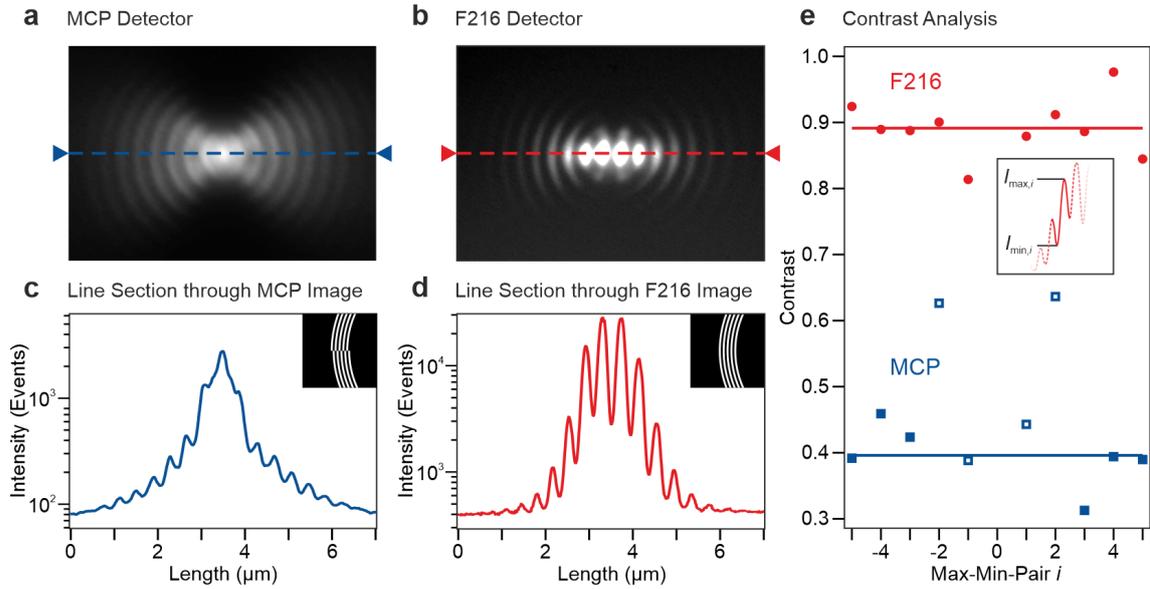
Shimizu *et al.* [76, 99] untersuchten die Auflösung ihres MCP bei verschiedenen Gesichtsfeldern an einer Cu/Si(111)  $5 \times 5$ -Oberfläche. Es ist eine gängige Methode die Auflösung eines Gerätes über einen Übergang zu bestimmen, der garantiert schärfer ist als die Auflösung des zu untersuchen Geräts. Dafür wird hier die abrupte Kontraständerung einer atomaren Stufe gewählt und ermittelt, wo der Kontrast von 84% auf 16% abfällt. Über diesen 16-84%-Kontrast bestimmten Shimizu *et al.*, dass sich die Auflösung mit größer werdenden FOV einem Wert von 3.8 Pixel auf dem CCD annähert. Bei einem Gesichtsfeld von  $20 \mu\text{m}$  entspricht dies einer Gesamtauflösung von 76 nm auf der Probe.

Zur Bestimmung der Auflösung vom F216 wird eine Silber dekorierte Si(111) Probe [100, 101] genutzt, bei der das UV-Licht einer Hg-Lampe die Photoemission für das PEEM auslöst (Abb.2.12). Das Silber setzt sich dabei an die atomaren Stufen und lässt diese aufgrund der lokalen Austrittsarbeitsänderung heller erscheinen. Die Abbildung 2.12b) entspricht einer 7-fachen digitalen Vergrößerung des in a) eingezeichneten roten Quadrates. Durch Nutzen der 16-84%-Kontrast-Methode wird bei einem Gesichtsfeld von  $50 \mu\text{m}$  eine Detektorpixelauflösung von  $2.5 \pm 0.4$  Pixel erreicht. Da der Detektor bei hohen FOV die Auflösung limitiert, ist es gerechtfertigt die Umrechnung auf  $20 \mu\text{m}$  FOV zu machen, um mit Shimizu *et al.* zu vergleichen. Auf  $20 \mu\text{m}$  umgerechnet ergibt sich eine Gesamtauflösung von 50 nm auf der Probe.

Der Detektor bietet die Möglichkeit des Einzelelektronennachweises (engl. *single electron event*, kurz: SEE), was auch seitens des Herstellers publiziert wurde [97]. Der darin enthalten Algorithmus wird genutzt, um SEE von Rauschen zu unterscheiden. Der SEE ist das kleinste detektierbare Objekt auf dem Detektor. In einem in dieser Arbeit durchgeführten Experiment wurden 1000 SEE interpoliert und gemittelt. Daraus wird die Punktspreitzfunktion (engl. *point spread function*) bestimmt. Die Halbwärtsbreite dieser Analyse ergab 1.65 Pixel und ist sehr nah an dem zuvor bestimmten Wert von  $2.5 \pm 0.4$  Pixel.

Um eine noch bessere Vergleichbarkeit zwischen unserer F216-Analyse und der von Shimizu *et al.* am MCP herzustellen, wurde der Wert der effektiven Abbildungsauflösung

$$A = \frac{d}{px} \cdot \delta \quad (2.14)$$



**Abb. 2.13.:** Kontrastanalyse im Vergleich zwischen MCP a) und F216 b) anhand von zwei ähnlichen Anrege-Strukturen auf unterschiedlichen Proben. In c) und d) sind Linienschnitte entlang der entsprechend angedeuteten Linien in a) und b) gezeigt. Als Einschub wird ein Ausschnitt der verwendeten Struktur angedeutet. In e) sind die Kontraste zwischen Struktur-Maxima und Minima bestimmt und als durchgezogene Linie für den Mittelwert verglichen.[89]

verglichen, wobei  $d$  die Detektorbreite,  $px$  die dazugehörige Pixelanzahl und  $\delta$  die bestimmte 16-84%-Kontrastbreite in Pixeln ist. Einsetzen aller Zahlenwerte ergibt

$$\text{MCP} : \frac{40 \text{ mm}}{1000 \text{ Pixel}} \cdot 3.3 \text{ Pixel} \approx 130 \mu\text{m} \quad (2.15a)$$

$$\text{F216} : \frac{33 \text{ mm}}{2048 \text{ Pixel}} \cdot 2.5 \text{ Pixel} \approx 40 \mu\text{m}. \quad (2.15b)$$

Die Auflösung des F216 ist demnach mindestens drei Mal besser als die des MCP Systems.

Der Hauptgrund für den Wechsel von einem MCP-basierten System auf den F216 ist der erhöhte Dynamikumfang und die Möglichkeit der Unterscheidung von Gebieten mit hoher oder niedriger Intensität, die nahe beieinander liegen. Mithilfe von Gold Inseln (Kap. 2.4.3) mit fokussierenden Strukturen kann die Plasmoemission (Kap. 2.4.2) untersucht werden. Die Abbildung 2.13 zeigt den Vergleich von Messungen mit dem MCP und dem F216. Im MCP-Fall wurden zwei um  $\lambda/2$  verschobene Halbkreise genutzt (siehe Einschub in Abb.2.13c), die einen einzelnen Fokus erzeugen und im F216 Fall wurde ein regulärer

Kreis gewählt (siehe Einschub in Abb.2.13d) ), der zu einem Doppelfokus mit Minimum im Zentrum führt. Für eine lineare Anregung folgt ein Signal wie in Abbildung 2.13a) für das MCP und b) für den F216 dargestellt. Die Linienschnitte entlang der gestrichelten Linie in a) und b) werden als Profile in c) und d) dargestellt. Es ist bereits rein optisch zu erkennen, dass das MCP-Bild ausgeschmierter ist und das Profil einen entsprechenden Untergrund aufweist. In der logarithmischen Darstellung der Profile sind die Maxima und Minima im F216-Fall deutlich ausgeprägter. In der quantitativen Analyse wurde nach Hintergrundabzug der Kontrast

$$C_i = \frac{I_{\max,i} - I_{\min,i}}{I_{\max,i} + I_{\min,i}} \quad (2.16)$$

bestimmt. In Abbildung 2.13e) werden die dazu gehörigen Ergebnisse veranschaulicht. Der Einschub zeigt, wie die entsprechenden Werte ermittelt wurden. Für den als Linie dargestellten Mittelwert wurden lediglich die ausgefüllten Punkte und Rechtecke gewählt, da die Ausschmierung im Zentrum der MCP-Struktur zu stark ist. Im Resultat lässt sich festhalten, dass der Kontrast des F216 mehr als doppelt so hoch ist wie der des MCP.

Insgesamt bestätigt sich, dass durch die Korrekturmechanismen aus Kapitel 2.3.1 und die inhärenten Eigenschaften des F216 ein erheblicher Vorteil in der Nutzung des F216 gegenüber MCP-basierten Systemen besteht. Gerade in der Vektor-Polarimetrie wären starkes Rauschen oder Ausschmierungen fatal. Ein Nachleuchten würde die Messung der sich ständig ändernden Feinheiten in zeitaufgelösten Experimenten erheblich erschweren und ein zu geringer Dynamikumfang würde dafür sorgen, dass der dynamische Anteil unter dem statischen Anteil im Rauschen untergehen würde (2-3 Größenordnungen Intensitätsunterschied). Der F216 hat die Eigenschaften, die für die Vektor-Polarimetrie notwendig sind. Zusammengefasst aufgelistet sind die Vorteile: Verdreifachung der Auflösung verglichen mit dem MCP-System von Shimizu *et al.* [76, 99], Verdopplung des Kontrastes im Vergleich zum MCP-System, deutlich erhöhter Dynamikumfang ohne Nachleuchten oder Erreichen einer Zerstörschwelle.

## 2.4. Nichtlineare Photoemission mit Oberflächenplasmon-Polaritonen

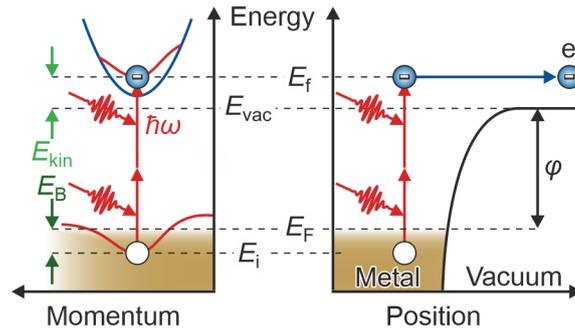
Beginnend mit einem kurzen Einstieg in die Photoemission (Kap. 2.4.1) werden in diesem Kapitel die lineare und nichtlineare Emission motiviert. Wie mittels Licht SPPs angeregt werden, wurde bereits in Kapitel 2.1.2 beschrieben. In zeitaufgelösten Experimenten können nun verschiedene Interaktionen zwischen SPPs und Licht beobachtet werden. Im Kapitel 2.4.2 wird beschrieben wie Podbiel *et al.* [91] die verschiedenen Signaturen unterschiedlichen nichtlinearen Prozessen zugeordnet haben. Die Trennung der verschiedenen Emissionskanäle wird auch in der Vektor-Mikroskopie ausgenutzt, um das dynamische Signal aus den Rohdaten herauszufiltern. Da viele der beobachteten Effekte sehr sensitiv sind, ist es notwendig geeignete Proben zu verwenden. Im Kapitel 2.4.3 wird deshalb auf die Herstellung und die Besonderheiten der verwendeten Gold-Inseln eingegangen. Abschließend wird in Kapitel 2.4.4 noch auf unterschiedliche Strukturen eingegangen, die zur Anregung genutzt werden.

### 2.4.1. Photoemission

Bei der Photoemission handelt es sich um den grundlegenden Prozess zur Freisetzung von Elektronen, die im PEEM detektiert werden. In diesem Kapitel werden die Grundlagen der linearen und nichtlinearen Photoemission zusammengefasst.

Die Photoemission wurde bereits im 19ten Jahrhundert von Wissenschaftlern wie Heinrich Hertz [102], Wilhelm Hallwachs [103, 104] oder Philipp Lenard [105–107] entdeckt und untersucht und 1905 von Einstein über die Lichtquantenhypothese gedeutet [108], der dafür 1921 den Nobelpreis bekam. Grundsätzlich werden bei der Photoemission durch die Bestrahlung eines Festkörpers mit Licht Elektronen herausgelöst. Ob Elektronen herausgelöst werden hängt davon ab, ob die Energie bzw. Wellenlänge des verwendeten Lichtes die Austrittsarbeit des Materials überwinden kann. Wie viele Elektronen ausgelöst werden hängt schließlich nur noch mit der Intensität des Lichtes zusammen.

Der Prozess der Photoemission aus einem Festkörper wird oft im Dreistufenmodell oder im Einstufenmodell beschrieben, um auch die Interaktion des Elektrons mit dem Festkörper zu berücksichtigen [109, 110]. Im Dreistufenmodell ist die Prozessreihenfolge festgelegt durch Anregung des Photoelektrons, Transport durch den Festkörper und Verlassen der Oberfläche. Da der Prozess jedoch nicht gestaffelt abläuft, beschreibt das Dreistufenmodell



**Abb. 2.14.:** Schematische Darstellung der Zwei-Photon-Photoemission. Es findet ein Bandübergang von einem Elektron mit dem initialen Energiezustand  $E_i$  in einen finalen Zustand  $E_f$ , mittels Übertrag von zwei Photonen (rot) mit jeweils einer Energie von  $\hbar\omega$ , statt. Die Bindungsenergie  $E_B$  (dunkelgrün) ist die Differenz aus der Fermienergie  $E_F$  und der des initialen Zustands. Die kinetische Energie des Elektrons (hellgrün) ermittelt sich aus der Energie des Endzustands abzüglich der Vakuumenergie  $E_{vac}$ . Linksseitig der Energieachse ist die Zwei-Photon-Photoemission im Bandschema des Impulsraums dargestellt, rechtsseitig die Überbrückung der Potentialbarriere/Austrittsarbeit  $\phi$  vom Metall ins Vakuum.

den Prozess zwar nur phänomenologisch, hilft aber bei der Interpretation und liefert sinnvolle Aussagen. Im Einstufenmodell wird die Interaktion in ein Wechselwirkungsoperator projiziert, der alle möglichen Interaktionen einbezieht. Die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen Grundzustand  $i$  und Endzustand  $f$  für die lineare Photoemission ist durch Fermis Goldene Regel gegeben. Da es nur diskrete Bandzustände gibt, wird die  $k$ -Abhängigkeit explizit ausgeschrieben [109]

$$w_{f,i} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f, \mathbf{k}_f | H^{int} | i, \mathbf{k}_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega). \quad (2.17)$$

In Abb. 2.14 ist schematisch eine nichtlineare Photoemission in einem zwei Photonen-Prozess gezeigt. In der Photoemission wird ein Elektron durch die Bestrahlung mit Licht der Energie  $n\hbar\omega$  aus einem initialen Zustand  $E_i$  im Band (rot) herausgelöst und energetisch in einen finalen Zustand  $E_f$  angehoben. Dabei wird zwischen linearer Photoemission ( $n = 1$ ) und nichtlinearer Photoemission ( $n > 1$ ) unterschieden.

Wie viele Lichtquanten für den Prozess notwendig sind, hängt von den Materialeigenschaften des bestrahlten Mediums und der verwendeten Energie des Lichtes ab. Die Materialeigenschaften des Festkörpers gehen über die Bindungsenergie des Elektrons  $E_B$  und die Austrittsarbeit  $\phi$  ein. Die Bindungsenergie ist die Differenz aus dem höchsten zu besetzenden Zustand, an der sogenannten Fermi-Energie  $E_F$  und dem Initialzustand  $E_i$  in dem

das herausgelöste Elektron sich befand. Die Austrittsarbeit ist die Differenz aus der Energie bei der das Elektron den Festkörper verlässt, der sogenannten Vakuumenergie  $E_{\text{vac}}$ , und der Fermienergie  $E_{\text{F}}$ . Letztendlich verbleibt einem Elektron, das aus einem Festkörper austritt, eine kinetische Energie

$$E_{\text{kin}} = n\hbar\omega - \phi - E_{\text{B}}, \quad (2.18)$$

wobei  $n$  der Anzahl der absorbierten Photonen entspricht. Bei der linearen Photoemission  $n = 1$  ist die Anzahl der Elektronen direkt proportional zur Intensität des eingestrahnten Lichtes. Reicht die Energie nicht aus kann bei ausreichend hoher Intensität auch der dargestellte nichtlineare Prozess getrieben werden. Die hohen Intensitäten sind notwendig, da die Wahrscheinlichkeit, dass  $n$  Photonen gleichzeitig von dem Elektron absorbiert werden gering sind. Auch im Fall eines langlebigen Zwischenzustands erhöht sich die Emissionswahrscheinlichkeit nur geringfügig. Hohe Intensitäten sind dann notwendig, wenn es keine reellen Zwischenzustände gibt und somit  $n$  Photonen gleichzeitig von dem Elektron absorbiert werden müssen. Gerade in zeitaufgelösten Experimenten wird die nichtlineare Photoemission dennoch gerne ausgenutzt. Dafür werden die benötigten Quanten durch zwei zeitlich trennbare Pulse bereitgestellt, wie bereits in Kapitel 2.2.2 beschrieben, sodass die Kreuzkorrelation der Pulse gemessen werden kann.

In verschiedenen zeitaufgelösten Experimenten konnten grundlegende Eigenschaften der SPPs bestimmt werden. Neben der Phasen- und Gruppengeschwindigkeit [66, 111], konnte auch eine Abhängigkeit des Plasmonenmusters vom Einstrahlwinkel (streifender oder flächennormaler Einfall) des Lichtes [112] ermittelt werden. Gerade der senkrecht zur Probenfläche gewählte Einfall des Lichtes war ein zentraler Schritt für weitere Experimente. Nun ist es relativ einfach andere Kopplergeometrien (Kreise [91], Fresnellinse [90], NanoSiebe [113], Meta Linsen [114]) mit beliebig gearteter Laserpolarisation zu untersuchen. Da das PEEM gegenüber dem SNOM nicht rasternd, sondern direkt-abbildend ist, ist es nun möglich Experimente, die im SNOM untersucht wurden, zeitaufgelöst zu untersuchen. Gerade im Bereich von Archimedischen Spiralen konnten nun SPP-Muster mit verschiedenen Bahndrehimpulsen (engl. *orbital angular momentum*, kurz: OAM) vermessen werden [115, 116]. Diese Strukturen (Kap. 2.4.4) weisen einige Besonderheiten auf, die auch in dieser Arbeit genutzt wurden (Kap. 5). Des Weiteren fokussieren die Strukturen die SPPs sehr stark und können so lokal Feldstärken von 4.3 V/nm erzeugen [80], die die Feldstärken des

eingestrahlt Lichtes übersteigen. Im Fokus sind die Intensitäten so hoch, dass es zur sogenannten Plasmoemission, die im nächsten Kapitel 2.4.2 erklärt wird, und ponderomotiven Energieverschiebungen kommt [80].

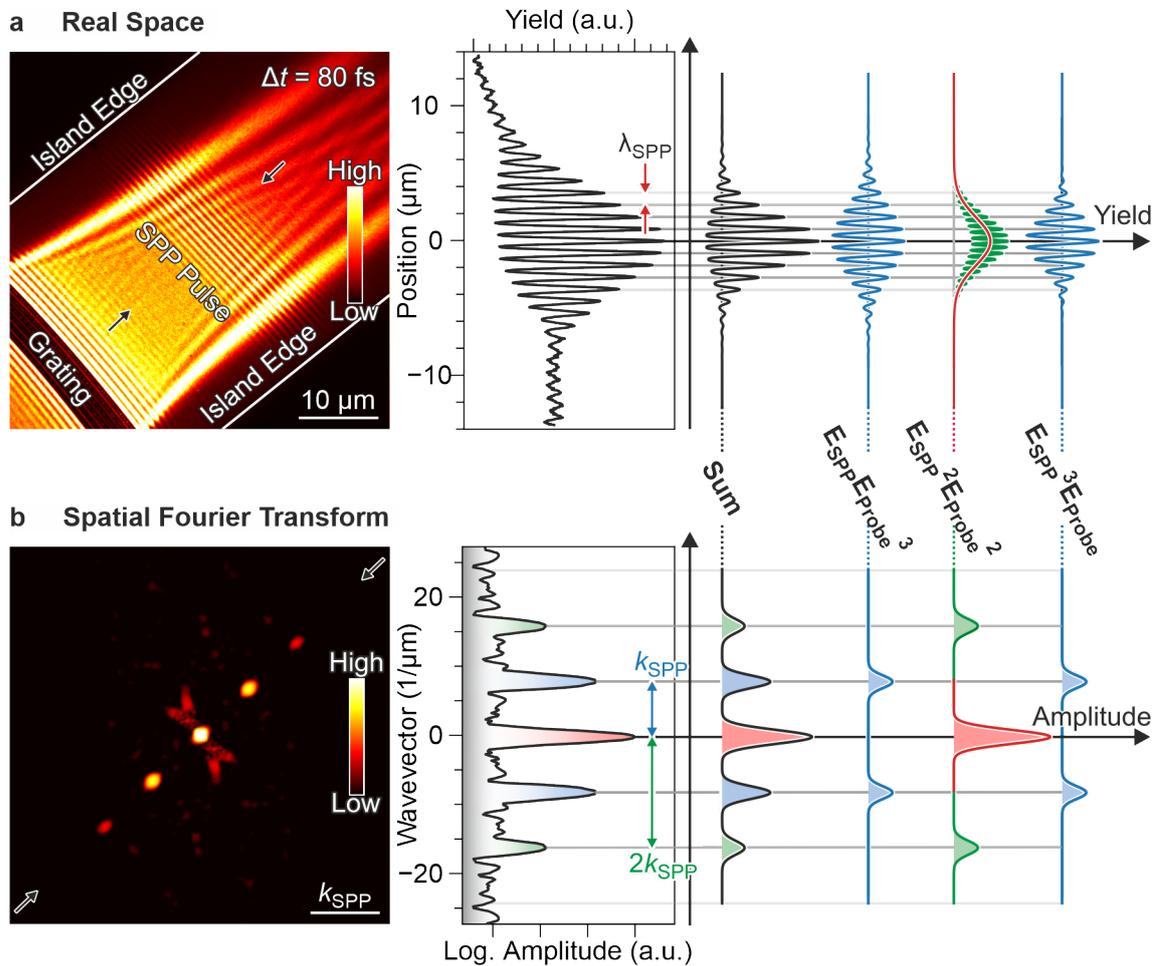
## 2.4.2. Nichtlineare Emission aus Photo- und Plasmoemission

Verwandt mit der Photoemission ist die sogenannte Plasmoemission [91]. Dabei handelt es sich um die Emission von Photoelektronen, die ausschließlich aus dem SPP-Feld resultiert. Der Begriff der Plasmoemission ist demnach stets der Situation vorbehalten, in der die Photoemission des Elektrons rein durch SPP-Felder getrieben wird. Dreher *et al.* [117] und Podbiel *et al.* [91] konnten durch raum-zeitliche Trennung der Emissionspfade eine Situation erzeugen, die diese Behauptung stützt. Es ist gelungen, gemessene Signaturen mit den Feldbeiträgen in Verbindung zu bringen. Der dynamische SPP-Photon Beitrag ist dabei genau die Signatur die in der Vektor-Mikroskopie verwendet wird. Es gilt alle anderen gemessenen Signale herauszufiltern, sodass eine vertiefte Kenntnis dieser Signaturen notwendig ist. In diesem Kapitel wird erläutert welche Feldkomponenten zu welchen Signaturen beitragen. Dabei ist die Polarisierung des Lasers parallel zur Komponente des SPPs, die in der Ebene liegt. Im Weiteren wird somit zunächst auf die vektorielle Schreibweise verzichtet.

Dreher *et al.* [117] nutzten einen Linearkoppler (Abb.2.15a)) in einem Anrege-Abfrage-Experiment. Mit dem ersten Laserpuls  $E_{L,1}$  wird das SPP  $E_{SPP,1}$  ausgelöst und vom zweiten Laserpuls  $E_{L,2}$  abgefragt. Dabei wird das SPP-Paket durch eine entsprechend hohe Verzögerungszeit zwischen den Laserpulsen örtlich und zeitlich isoliert. So konnten die Interaktionen zwischen den Laserpulsen ( $E_{L,1} \leftrightarrow E_{L,2}$ ) zwischen den SPPs ( $E_{SPP,1} \leftrightarrow E_{SPP,2}$ ) und Laserpuls eins mit SPP zwei ( $E_{L,1} \leftrightarrow E_{SPP,2}$ ) aus dem Datensatz entfernt werden. Trotz der Tatsache, dass lediglich eine Interaktion aus dem zweiten Laserpuls mit dem ersten SPP ( $E_{L,2} \leftrightarrow E_{SPP,1}$ ) besteht, sind bereits verschiedene Emissionsprozesse an der Elektronenemission beteiligt.

Um auch alle möglichen nichtlinearen Mischungen zu berücksichtigen, wird in diesem Ansatz die komplexe Schreibweise gewählt. Die Intensität oder Ausbeute  $Y_{2PPE}$  eines Zwei-Photonen-Photoemissionsprozesses (kurz: 2PPE) aus einem mit  $\Delta t$  verzögerten abfragenden Lichtfeld  $E_L(\vec{r}, t - \Delta t)$  und einem SPP-Feld  $E_{SPP}(\vec{r}, t)$  lässt sich beschreiben über

$$Y_{2PPE} \propto \int dt [(E_L(\vec{r}, t - \Delta t) + E_{SPP}(\vec{r}, t)) (E_L^*(\vec{r}, t - \Delta t) + E_{SPP}^*(\vec{r}, t))]^2. \quad (2.19)$$



**Abb. 2.15.:** Schematische Darstellung der Emissionspfade in Realraum und reziproken Raum. In a) ist das Bild eines Gitterkopplers dargestellt an dem ein SPP angeregt wurde, welches dann so weit propagiert ist, dass es vom Koppler räumlich getrennt wurde. Daneben ist ein Linienschnitt entlang der Pfeile im Bild dargestellt, sowie die Zerlegung in die verschiedenen Emissionspfade. In b) ist die Fourier-Transformation des Bildes zu sehen. Der zentrale Punkt ist umgeben von SPPs erster und zweiter Ordnung. Der Linienschnitt entlang der Pfeile im Bild ist daneben dargestellt. Das Signal liegt wie die Punkte bei  $k_{\text{SPP}}$  und  $2k_{\text{SPP}}$ . Auch hier gibt es eine Zerlegung in die Emissionspfade. Abbildung nach [117].

Für gepulste Felder würde Gleichung 2.19 wegen der Zeitabhängigkeit noch deutlich komplizierter werden. Da es zur Veranschaulichung genügt wird die Rechnung mit quasi-monochromatischen Wellen fortgesetzt und die explizite Zeitabhängigkeit der Einhüllenden vernachlässigt. Damit kann das Integral in der Ausbeute durch die gemittelte Emissionsrate  $\Gamma_{2\text{PPE}}$  ersetzt werden. Der Übersichtlichkeit halber werden zunächst die Abhängigkeiten  $(\vec{r}, t, \Delta t)$  weggelassen. Wird unter diesen Annahmen Gleichung 2.19 ausmultipliziert, ergibt sich eine Formel mit 16 Summanden, die sich zusammenfassen lassen zu

$$\begin{aligned}
\Gamma_{2\text{PPE}} \propto & |E_L|^4 \\
& + 4 |E_L|^2 \Re(E_L E_{\text{SPP}}^*) \\
& + 4 |E_L|^2 |E_{\text{SPP}}|^2 + 2\Re(E_L^2 E_{\text{SPP}}^{*2}) \\
& + 4 |E_{\text{SPP}}|^2 \Re(E_L E_{\text{SPP}}^*) \\
& + |E_{\text{SPP}}|^4.
\end{aligned} \tag{2.20}$$

Die Summanden sind nach den Potenzen in  $E_L(\vec{r}, t - \Delta t)$  und  $E_{\text{SPP}}(\vec{r}, t)$  sortiert worden. Wird weiterhin angenommen, dass die Quantenabsorption an der Oberfläche geschieht, das heißt die Evaneszenz vernachlässigt, folgt für die ebene SPP-Welle mit  $E_{\text{SPP}}$  als Amplitude

$$E_{\text{SPP}}(\vec{r}, t) = E_{\text{SPP}} e^{i\vec{k}_{\text{SPP}} \cdot \vec{r}} e^{-i\omega t} \tag{2.21}$$

und das Feld des ebenen abfragenden Lichtes mit der Amplitude  $E_L$

$$E_L(\vec{r}, t - \Delta t) = E_L e^{-i\omega(t - \Delta t)}. \tag{2.22}$$

Einsetzen von Gl. 2.21 und Gl. 2.22 in Formel 2.20 ergibt

$$\begin{aligned}
\Gamma_{2\text{PPE}} \propto & (E_L^4 + E_{\text{SPP}}^4 + 4E_L^2 E_{\text{SPP}}^2) \\
& + 4 (E_L^3 E_{\text{SPP}} + E_L E_{\text{SPP}}^3) \cdot \cos(\vec{k}_{\text{SPP}} \cdot \vec{r} - \omega \Delta t) \\
& + 4 (E_L^2 E_{\text{SPP}}^2 \cdot \cos(2\vec{k}_{\text{SPP}} \cdot \vec{r} - 2\omega \Delta t)).
\end{aligned} \tag{2.23}$$

Die Terme lassen sich Abbildung 2.15 zuordnen. In der Abbildung ist in a) der Ortsraum dargestellt. Das am Gitterkoppler gestartete SPP konnte 80 fs propagieren, bevor der zweite Laserpuls es abgefragt hat. So wurde es örtlich und zeitlich getrennt. Wird nun ein Linienschnitt entlang der eingezeichneten schwarzen Pfeile aufgenommen, ergibt sich die Intensitätsverteilung im Bild daneben. Dieses Summensignal lässt sich in die berechneten

Komponenten aus Gleichung 2.23 zerlegen. Dabei schwingen die dargestellten Komponenten mit unterschiedlichen Frequenzen. Da in der Gleichung Frequenz und Wellenvektor stets denselben Vorfaktor haben, lassen sich die Farben, und damit auch die Schwingungsfrequenzen, durch Abbildung 2.15b) erklären. In b) wird das Bild aus a) mit der schnellen 2D-Fourier-Transformation (engl. *fast 2D fourier transform*, kurz: 2D-FFT) in den reziproken Raum umgeformt. Der zentrale Punkt in der logarithmischen Auftragung ist umgeben von zwei weiteren Ordnungen links und rechts. Die Abstände zum zentralen Punkt betragen  $k_{\text{SPP}}$  und  $2k_{\text{SPP}}$ . Verdeutlicht wird das im Linienschnitt entlang der schwarzen Pfeile der daneben dargestellt ist. Hier wird auch die Farbzuordnung klar:

Die erste Zeile von Gleichung 2.23 entspricht den in rot dargestellten Bereichen. Die Terme sind statisch in  $\omega = 0$  und  $k_{\text{SPP}} = 0$ . Die mittlere Zeile entspricht den dynamischen Termen mit  $1\omega$  und  $1k_{\text{SPP}}$  und entspricht den blauen Kurven. Die letzte Zeile wird in grün dargestellt und entspricht der dynamischen Plasmoemission  $2\omega$  und  $2k_{\text{SPP}}$ .

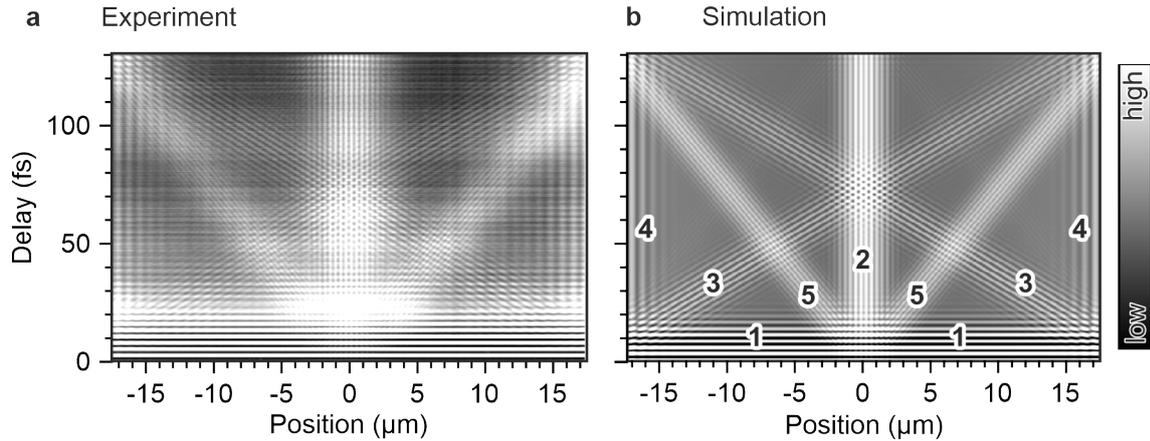
Diese Sortierung erweist sich als hilfreich, wenn wie in der Vektor-Mikroskopie mittels der FFT in Ort und Zeit gefiltert wird. So lassen sich die Komponenten in Ort und Zeit herausfiltern, die die gewünschte Information beinhalten.

Im klassischen Bild entspricht  $E^2$  einem Quant und die ungeraden Exponenten wären somit nicht erklärbar. Erklärungsansätze werden im Dichtematrix-Formalismus von Spector *et al.* [118] und der Quantenpfadinterferenz von Dreher *et al.* [119] geliefert, in dem das klassische Bild verlassen wird und SPP-Photon Interferenzpfade eingeführt werden.

In den Experimenten in Kapitel 4 und Kapitel 5 wird jedoch nicht ein einzelnes propagierendes SPP betrachtet, sondern SPPs, die aus verschiedenen Richtungen zusammentreffen. Der einfachste Fall, um die daraus resultierenden Interaktionen zu betrachten wurde von Podbiel *et al.* [91] untersucht. Im Experiment wurden dafür zwei parallele angeordnete lineare Gitter im Abstand von  $35\ \mu\text{m}$  geschnitten und senkrecht zum Koppler (maximale Effizienz) angeregt. Für die Berechnung müssten alle möglichen Interaktionsterme der Felder

$$\vec{E} = \vec{E}_{L,1} + \vec{E}_{\text{SPP},1}^L + \vec{E}_{\text{SPP},1}^R + \vec{E}_{L,2} + \vec{E}_{\text{SPP},2}^L + \vec{E}_{\text{SPP},2}^R \quad (2.24)$$

berücksichtigt werden. Der obere Index L,R steht für die Anregung am linken bzw. rechten Koppler.  $E_L$  steht für das Feld des Laserpulses,  $E_{\text{SPP}}$  für das Feld des SPP und die Indizes 1,2 steht für den ersten bzw. zweiten Puls. Reflexionen am gegenüber liegenden Koppler werden in dieser Arbeit vernachlässigt, da diese zum einen recht schwach sind und zum anderen fern von den gewählten Zeitverzögerungen auftreten. Auch ist eine Rechnung mit



**Abb. 2.16.:** Signatur-Analyse eines Anrege-Abfrage-Experiments von zwei parallelen Gitterstrukturen. Experimentelle Daten a) und Simulationen b) nach Podbiel *et al.* [91] mit den für diese Arbeit relevanten Signaturen.

6 statt der 2 Termen aus Gleichung 2.19 länglich. Daher wird wie bei Podbiel *et al.* darauf verzichtet alle Terme zu beschreiben und phänomenologisch zwischen Simulation und Experiment verglichen.

In Abbildung 2.16 sind in Experiment a) und Simulation b) Ort gegen Verzögerungszeit aufgetragen und verschiedene Signaturen zu erkennen. Wichtig für das Verständnis ist es zwischen Echtzeit und Verzögerungszeit zu differenzieren. In Echtzeit startet pro Puls je ein SPP-Paket an den beiden Kopplern, die SPPs propagieren aufeinander zu, treffen sich in der Mitte und laufen dann zum gegenüberliegenden Koppler. Da die Daten in einem zeit-integrierenden PEEM-Experiment aufgenommen wurden, ist dieser Ablauf stets gleich. Durch ein Anrege-Abfrage-Experiment können durch Einstellen der Verzögerungszeit verschiedene Korrelationen zwischen den beiden Pulsen verzeichnet werden. In Abb. 2.16 ist die Position auf der Abszisse dargestellt, wobei die "Null" auf die Mitte zwischen den Kopplern gelegt wurde. Die Ordinate ist die eingestellte Verzögerungszeit.

Vertikale Signaturen (2,4) sind Verzögerungszeit unabhängig und äußern sich im Experiment als statisches Muster. Die Horizontal Signatur (1) ist örtlich unabhängig und äußert sich im Experiment durch eine ganzflächige Intensitätsmodulation. Die diagonalen Signaturen (3,5) entstehen, wenn das durch den ersten Puls entstandene SPP mit dem Licht oder dem SPP des zweiten Pulses interagiert und bewegen sich mit der Verzögerungszeit im Bild.

Die Signaturen lassen sich auch durch ihre Entstehung zusammenfassen. Bei der statischen Signatur (4) wird das SPP, das am Koppler entsteht, durch das Licht oder SPP desselben Pulses abgefragt ( $E_{L,1} \leftrightarrow E_{SPP,1}^{L,R}$ ), ( $E_{L,2} \leftrightarrow E_{SPP,2}^{L,R}$ ). Dies liegt daran, dass die Pulse zwar kurz sind, jedoch trotzdem aus mehreren Oszillationen bestehen. Der Anfang des Pulses regt ein SPP an, welches vom Ende des Pulses abgefragt wird.

Bei Signatur (1) überlappen die beiden Laserpulse auf der Probe örtlich und zeitlich und interferieren ( $E_{L,1} \leftrightarrow E_{L,2}$ ), was zu der beschriebenen Intensitätsmodulation führt.

Die statische Signatur (2) entsteht, wenn sich die gegenläufigen SPPs, die durch den selben Puls angeregt wurden, in der Mitte treffen ( $E_{SPP,1,2}^L \leftrightarrow E_{SPP,1,2}^R$ ). Bei Signatur (5) trifft das SPP des ersten Pulses auf das gegenläufige SPP des zweiten Pulses ( $E_{SPP,1}^{L,R} \leftrightarrow E_{SPP,2}^{R,L}$ ). Diese Signaturen werden auch als statische (2) und dynamische (5) Plasmoemission bezeichnet.

Das dynamische Anrege-Abfrage-Signal (3) entsteht indem das SPP des ersten Pulses, durch das Licht des zweiten Pulses abgefragt wird ( $E_{SPP,1}^{L,R} \leftrightarrow E_{L,2}$ ).

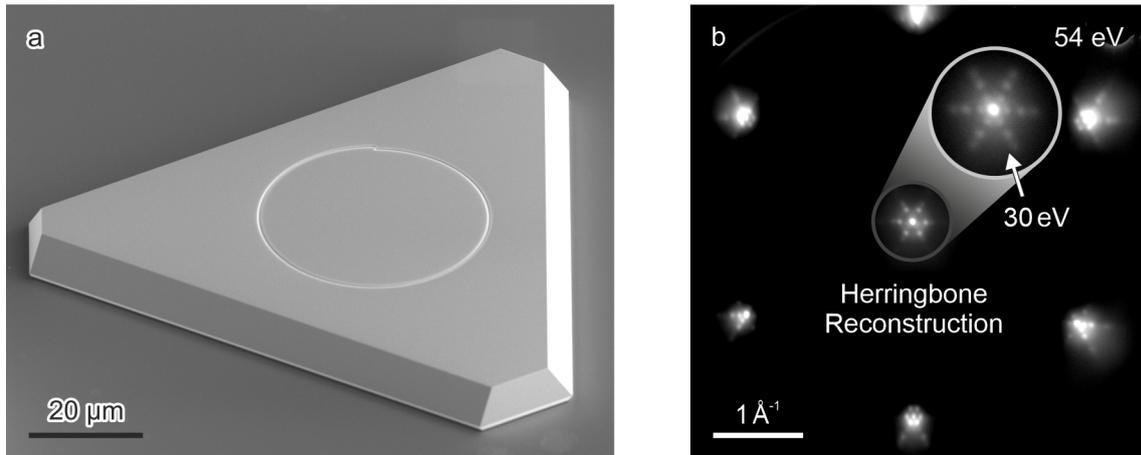
Zum statischen Hintergrund tragen die Terme bei, die mit sich selbst interagieren ( $E_L \leftrightarrow E_L$ ) und ( $E_{SPP} \leftrightarrow E_{SPP}$ ). Die übrigen Terme befinden sich am Schnittpunkt zwischen Signatur (3) und (4). In diesem ganz kleinen Zeitverzögerungsbereich überlappen SPP und Laserpulse aus erstem und zweitem Puls und interagieren ( $E_{SPP,1,2}^{L,R} \leftrightarrow E_{L,2,1}$ ).

Die Signatur (3) entspricht dem analysierten Term von Dreher *et al.* [119] und bildet die Grundlage der Vektor-Mikroskopie. Es gilt diese Signatur von den anderen Signaturen zu trennen. Während sich die Signaturen (1),(4) und (5) Ort-zeitlich separieren lassen, ist im Zentrum, in dem die interessante Interaktion passiert, neben der Signatur (3) stets Signatur (2) und ein genereller Untergrund präsent.

### 2.4.3. Probenpräparation

In diesem Kapitel sollen die relevanten Probenparameter diskutiert werden. Im Anschluss wird das generelle Vorgehen von Strukturierung bis zur Messung beschrieben.

Die observierten Plasmonen werden an einer Gold-Vakuum-Grenze erzeugt. Dafür werden themolytisch gewachsene einkristalline Au(111)-Inseln genutzt (Abbildung 2.17a)), die von Dr. Bettina Frank aus der Gruppe von Prof. Dr. Harald Gießen in der Universität Stuttgart nach Radha *et al.* [120, 121] hergestellt werden. Für die Herstellung wird  $[AuCl_4]^-$  in Wasser gelöst, sodass Hydrogentetrachloraurat(III)  $H[AuCl_4]$  entsteht. Des Weiteren wird eine Lösung aus und Tetraoctylammoniumbromid auch ToABr genannt



**Abb. 2.17.:** In a) ist die Aufnahme mit einem Rasterelektromikroskop von einer strukturierten Goldinsel mit einem Graben in Form einer Archimedisches Spirale mit  $L = 1$  dargestellt. Teil b) zeigt eine LEED-Aufnahme einer ähnlichen Insel mit einer  $(22 \times \sqrt{3})$  Supercelle bei 54 eV. Als Einschub ist die Struktur bei 30 eV dargestellt.

( $[CH_3(CH_2)_7]_4 N(Br)$ ) in Toluol  $C_7H_8$  hergestellt. Die beiden Lösungen werden vermischt und es scheidet sich eine organische Phase ab, in der die Goldplättchen segregieren. Diese rot gefärbte Präkursor Lösung wird mit einer Pipette entnommen und auf ein Substrat geträufelt und anschließend auf 130 °C erhitzt. In dieser Thermolyse wachsen die Goldinseln selbstorganisiert zu Inseln mit etwa 100 μm Kantenlänge, 1 μm Höhe und wenigen Nanometern Rauigkeit.

Im nächsten Schritt wurden mit der Ionenfeinstrahlanlage (engl. *focused ion beam*, kurz: FIB) *Raith IonLine plus* in Stuttgart oder der *FEI Helios NanoLab 600* in Duisburg Strukturen in die Goldinseln geschnitten. Die Parameter der Koppler sind dabei ausschlaggebend für die Einkopplung des SPP. Für die optimale Schnitttiefe gibt es dabei zwei verschiedene Gedankengänge. Zum einen kann die Schnitttiefe auf eine schwache Anregung von Plasmonen optimiert werden, um in das Regime eines im Verhältnis zum Laser schwachen SPP zu kommen. Dies ist sinnvoll, da für die spätere Rekonstruktion der Term  $E_L^3 E_{SPP}$  selektiert wird und das Verhältnis zwischen dominanter Plasmoemission und dem Rekonstruktionsterm zugunsten des Rekonstruktionsterms verschoben wird. Es führt jedoch auch dazu, dass die Gesamtintensität sinkt und das Messsignal sich nah am Rauschlimit bewegt. Wird hingegen eine starke Einkopplung gewählt ist zwar die Plasmoemission dominanter, aber auch das Messsignal deutlich über dem Rauschen. Hier kommt der hohe Dynamikumfang und das geringe Eigenrauschen des Detektors zugute und es ist möglich eine um

zwei Größenordnungen höhere Plasmoemission zu tolerieren. Sind die Messsignale stark genug, kann der entwickelte Filteralgorithmus die dynamischen Daten herausfiltern. Für die in dieser Arbeit gezeigten Experimente, wurde schließlich eine starke Einkopplung gewählt. Simulationen von Spektor *et al.* [62] zeigen, dass für eine Kopplerbreite von etwa  $\lambda/2 = 400$  nm eine Tiefe von etwa 155 nm am effizientesten ist. Dies konnte durch eigene Experimente verifiziert werden, bei denen für die Tiefe etwa 160 nm ermittelt wurden. Ein weiterer Vorteil der effizienten Anregung ist, dass durch das stärkere Signal mit kürzeren Belichtungszeiten gearbeitet werden kann und sich so die Dauer der Messung reduziert.

Ist die Probe einmal strukturiert wird die Probe in das LEEM eingeschleust. Beim Transfer durch Luft kommt es zu oberflächlichen Verunreinigungen. Um die Probe messbereit zu machen, werden diese Verunreinigungen entfernt. Zunächst wird die Probe für 15 Minuten einem 14 W Sauerstoffplasma ausgesetzt. Dabei sollen sich etwaige Kohlenwasserstoffe zersetzen. Anschließend wird die Probe in das Ultrahochvakuum (kurz: UHV) transferiert. In einer Präparationskammer tragen Argon-Ionen die obersten Lagen der Probe ab und damit vorrangig alle oberflächlichen Verunreinigungen. Beim Abtragen (engl. *sputter*) kann es zum Aufrauen der Probe kommen, was kontraproduktiv für die Abbildungseigenschaften der Probe ist. Im Extremfall dämpfen die Rauigkeiten die SPPs oder regen sogar ihrerseits SPPs an. Um dies zu verhindern wird die Probe während des Abtragens mit Argon rückseitig über Strahlungswärme geheizt. Die zusätzliche Mobilität von Gold-Atomen glättet die Proben wieder oder heilt diese aus (engl. *anneal*). Diese Vorgänge werden mehrfach wiederholt und sind im Fachjargon als *sputter-anneal-cycles* bekannt.

Durch die Reinigung und die hohe Qualität der Gold-Inseln ist es möglich die Inseln atomar glatt zu präparieren, sodass die Oberflächenrekonstruktion von Gold, die *Herringbone*-Rekonstruktion als  $(22 \times \sqrt{3})$ -Superzelle [122–124] nicht nur im LEED (Abbildung 2.17b)) sondern auch im LEEM sichtbar ist. Im LEED ist die Rekonstruktion schon nach wenigen Reinigungs-Zyklen zu sehen, um sie im LEEM sichtbar zu machen ist der Aufwand deutlich höher.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Erfahrung gemacht, dass die höchste Reinheit für die Vektor-Mikroskopie nicht so gut geeignet ist. Experimente haben gezeigt, dass nach caesieren der Probe das Verhältnis Plasmoemission zu SPP-Photon-Kontrast zugunsten der Plasmoemission ausfällt. Es wird vermutet, dass bei saubereren Proben die  $E_z$ -Komponente gegenüber der Komponente in der Ebene  $E_{xy}$  an spektralen Gewicht zunimmt und es wurde bereits gezeigt, dass die Plasmoemission von der  $E_z$ -Komponente dominiert wird [91]. Daher wurde die Probe lediglich mit einem Zyklus ohne und einem

Zyklus mit Heizung präpariert. Nach dem anschließenden Ausheilen der Probe zeigten sich keine Rauigkeiten im LEEM, jedoch eine gut sichtbare Herringbone-Rekonstruktion im LEED.

Das Au (111) hat in dieser reinen Form eine Austrittsarbeit von 5.31 eV [125]. Der Titan:Saphir-Laser hat eine Zentralwellenlänge von 800 nm und somit eine Photonenenergie von ca. 1.55 eV. Für die Photoemission in Gold wäre demnach ein vierter Ordnungsprozess (4 Photonen) notwendig, um Elektronen aus dem Gold auszulösen. Dieser hoch nicht-lineare Prozess ist für Anrege-Abfrage-Experimente nur bedingt geeignet, da die Intensität um etwa eine Größenordnung pro Emissionsordnung sinkt [91]. Durch eine Sub-Monolage Caesium kann die Austrittsarbeit jedoch auf bis zu 1.61 eV [81] reduziert werden, sodass ein Prozess zweiter Ordnung möglich wird. Damit ist es möglich, dass ein SPP angeregt wird, dieses propagiert und von einem anderen Quant (Photon/SPP) abgefragt wird. Das dabei emittierte Elektron kann dann detektiert werden.

#### 2.4.4. Archimedische Spiralen

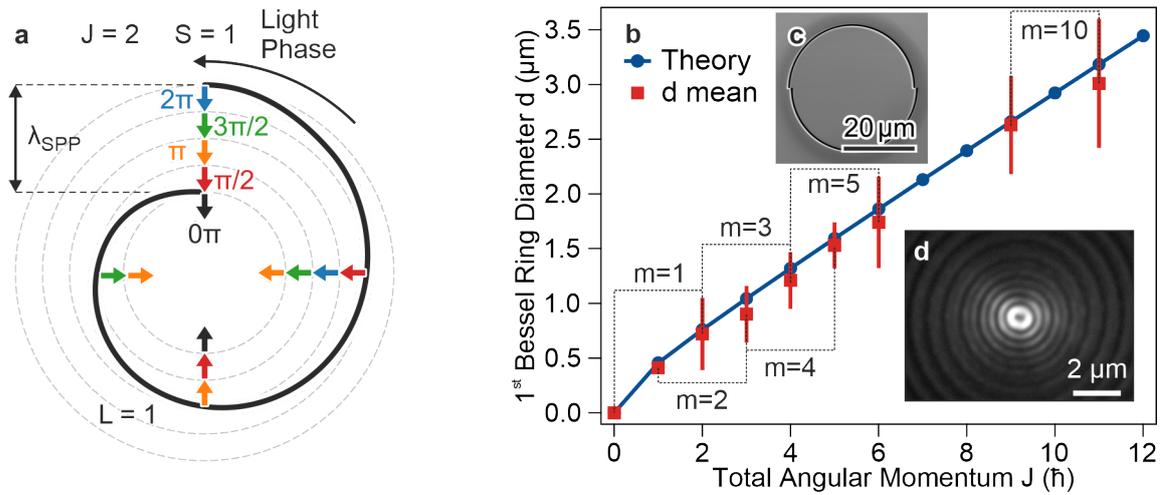
In Kapitel 2.4.1 wurde bereits angedeutet, dass durch eine Veränderung der Anrege-Strukturen interessante Phänomene untersucht werden können. Grundsätzlich sind der Strukturierung von den Gold-Inseln keine Grenzen gesetzt. Da die Anregung der SPPs stets senkrecht zum Koppler ist und demnach der Lichtpolarisation folgt, können auch Polarisationsabhängige konstruktive und destruktive Überlagerungen von SPPs ausgenutzt werden. Gerade bei Metastrukturen wie Nanosieben [113], Meta-Linsen [114] wird dies ausgenutzt, um spezielle Situationen zu erzeugen. In der Vektor-Mikroskopie wurde auf Metastrukturen verzichtet und mit konventionellen Gräben gearbeitet.

Ein zentraler Schritt zu den in dieser Arbeit gezeigten Ergebnissen war die Erzeugung von Plasmonen mit unterschiedlichen OAM. Nach Vorbild von Kim *et al.* [115] wurden Archimedische Spiralen in die Goldinseln geschnitten und mit zirkularem Licht angeregt. Die Spiralen haben die Form

$$r = r_0 + L \cdot \lambda_{\text{SPP}} \cdot \frac{\phi}{2\pi}. \quad (2.25)$$

Der Radius der Spirale  $r$  steigt von einem Grundkreis  $r_0$  mit dem Winkel  $\phi$  mit der gewählten vielfachen  $L$  von der SPP-Wellenlänge  $\lambda_{\text{SPP}}$  an. Das gesamte OAM des Plasmons an so einer Struktur

$$J = L + S \quad (2.26)$$



**Abb. 2.18.:** Vergleich von Theorie und Experiment zu Besselfunktionen in Archimedischen Spiralen mit unterschiedlichem Gesamtdrehimpuls  $J$ . Dabei wird der Gesamtdrehimpuls über einen Strukturparameter der Spirale  $L$  und die Polarisation des Lichtes  $s$  eingestellt. In a) ist eine  $L = 1$  Spirale mit  $S = 1$  angeregt sodass die  $J = 2$  Besselmode entsteht. Die Abbildung zeigt exemplarisch wie die Phase der Wellen von den vier Seiten zueinander steht. Abbildung nach Kim *et al.* [115]. In b) ist der Vergleichsplot zu sehen, wobei der Fehlerbalken durch die Werte der kurzen und langen Achsen der verformten Kreise festgelegt wird. in c) ist exemplarisch ein Rasterelektromikroskop-Bild einer segmentierten  $L = 2$  Spirale dargestellt. In d) wiederum ist ein zur Auswertung verwendetes PEEM-Bild mit einer leicht deformierten Besselmode gezeigt.

ergibt sich aus dem Drehimpuls der Struktur  $L$  und dem Drehimpuls des verwendeten Lichtes  $S$ . Die Polarisation des Lichtes  $S = \pm 1$  erhöht oder reduziert das gesamte OAM um 1.

Ein Beispiel für die Phasenlage in einer  $J = 2$  Struktur ist in Abbildung 2.18a) dargestellt. Hier ist zu erkennen, dass die SPPs aus unterschiedlichen Richtungen mit unterschiedlicher Phase im Zentrum ankommen und sich so der Vortex mit unbestimmter Phase im Zentrum des Vortex ausbildet. Bei zu großen  $L$  und den damit einhergehenden großen Lücken ist die Wegstrecke, die das SPP propagieren muss, teils sehr lang, was zu einem Abklingen des SPP führt. Mit der damit einhergehenden Änderung der Intensität in Abhängigkeit vom Anrege-Ort, könnte dies zu schlechten Resultaten führen. Deshalb wurden die Spiralen segmentiert. Erreicht die Steigung einen Wert von  $\lambda_{\text{SPP}}$ , gleichbedeutend mit einer Phasenänderung von  $2\pi$  wird die Linie unterbrochen und auf den Grundkreis

$r_0$  und eine Phase von  $0\pi$  zurückgesetzt. Somit entspricht die Anzahl der Segmente, dem durch die Struktur aufgeprägten OAM  $L$ . In Abbildung 2.18c) ist eine segmentierte  $L = 2$  dargestellt.

Die zirkulare Anregung von Archimedischen Spiralen resultiert in SPPs die mit Besselfunktionen 1. Art  $J_l(x)$  beschrieben werden können. Dabei steht  $l$  für die topologische Ladung. Die Felder sind radialsymmetrisch und lassen sich über die azimutale Komponente

$$E_{\phi,l} \propto \frac{il}{r} J_l(k_{\text{SPP}}r) e^{il\phi} \quad (2.27)$$

und die Radialkomponente

$$E_{z,l} \propto -J'_l(k_{\text{SPP}}r) e^{il\phi} \quad (2.28)$$

beschreiben, wobei die Ableitung der Besselfunktion über

$$J'_l(r) = \frac{1}{2} (J_{l-1} - J_{l+1}) \quad (2.29)$$

beschrieben wird. Damit lässt sich der radiale Anteil über eine Mischung der Bessel-Moden beschreiben, die die topologische Ladung umschließen. Für  $l = 1$  wären dies  $J_0$  und  $J_2$  und für  $L_2$  eine Mischung aus  $J_1$  und  $J_3$ .

Um Theorie und Experiment vergleichen zu können, haben Davis *et al.* [126] eine effiziente Simulation entwickelt. Dabei wird die Anrege-Struktur als Verkettung von Liniensegmenten angenähert. Die Anzahl der Liniensegmente wird so gewählt, dass die Abweichungen vom Original kleiner als die SPP-Wellenlänge ist. Jede Linie repräsentiert eine Kette von Quellen, die Huygens-Wellen aussenden, welche über die Hankel-Funktion berechnet wurden. Werden die Punktquellen aufsummiert, führt diese vereinfachte Simulation zu ebenen Wellen, die von der gewählten Struktur ausgesendet werden.

Mit dieser Simulation ließen sich die Anrege-Abfrage-Experimente simulieren. Für ein Anrege-Abfrage Experiment muss berücksichtigt werden, dass sowohl bei der Anregung als auch bei der Abfrage SPP-Bessel-Moden erzeugt werden und die Helizität der Polarisation  $s$  der Pulse durchaus beiträgt. So wird in Davis *et al.* [126] auch gezeigt, dass im dynamischen Signal bei gleicher zirkularer Polarisation der Pulse lediglich die topologische Ladung  $l$  beiträgt. In der Plasmoemission hingegen tragen in der Bessel-Mode  $J_{l+s}$  sowohl die topologische Ladung  $l$  als auch die Helizität der Laser-Polarisation  $s$  bei.

In Abbildung 2.18b) wurden die nach der Bessel-Theorie berechneten Durchmesser (blaue Punkte) mit experimentell bestimmten Durchmessern der Plasmoemission verglichen. Die Übereinstimmung ist sehr gut zu erkennen. Die Fehlerbalken sind jeweils der minimale und maximale Durchmesser der vermessenen Ellipsen. Eine solche Ellipse ist in Abbildung 2.18d) dargestellt. Die Verformung und Abweichung von der runden Form rührt von kleinsten Verformungen in der Anrege-Spirale. Bereits weniger als 1% Verformung auf einem Durchmesser von ca.  $35\ \mu\text{m}$ , was  $350\ \text{nm}$  also einer halben Wellenlänge entspricht, sind hier ausschlaggebend. In einer Kooperation der Gruppen Aeschlimann, Orenstein, Gießen und Meyer zu Heringdorf konnten die Autor\*innen [116] zeigen, dass im Zentrum von Archimedischen Spiralen mit unterschiedlichen OAMs Vortizes entstehen, deren Durchmesser und Anzahl der Punkte mit dem OAM skalieren. In der Publikation konnte dies sowohl für SPPs an der Gold-Vakuum-Grenzfläche als auch an der Gold-Silizium-Grenzfläche realisiert werden, wobei die Wellenlänge von letzteren mit  $\lambda_{\text{SPP}} = 180\ \text{nm}$  weniger als einem Viertel der Anregungswellenlänge von  $800\ \text{nm}$  entspricht.

Werden die Spiralen nicht zirkular angeregt, um Besselmoden zu kreieren, sondern linear können für eine  $L = 1$  Spirale (Meron-Paare) und für eine  $L = 2$  Spirale (ein Meron) untersucht werden. Dies sind topologische Strukturen, die in Kapitel 5 besprochen werden.

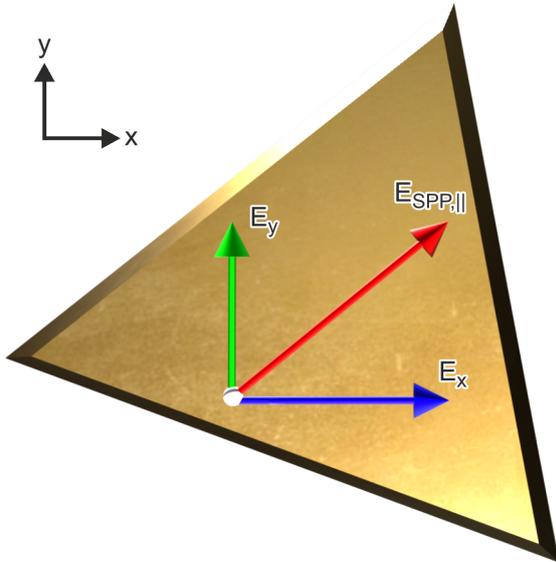


## Rekonstruktion von Feldern

Für die Rekonstruktion eines Feldes ist es notwendig alle Feldkomponenten mit Amplitude und Richtung zu kennen. In diesem Kapitel wird mit der Vektor-Mikroskopie die grundsätzliche Idee beschrieben, wie dies für SPP-Felder realisiert werden kann. Zunächst wird die Funktionsweise der Feldrekonstruktion erklärt und anhand einer einfachen Messung am linearen SPP erläutert (Kap. 3.1). Der Spezialfall des linearen SPPs reduziert die Feldrekonstruktion um eine Dimension in der Ebene auf ein 2D-Problem. Es ist somit auch ohne Vektor-Mikroskopie möglich das Feld zu rekonstruieren. Für jegliche andere Feldrekonstruktion müssen die 3D-Feldkomponenten bekannt sein und es ist somit notwendig die Polarisierungen im Interferometer individuell einzustellen um Zugriff auf beide Feldkomponenten in der Ebene zu bekommen. Daher wird zunächst auf die verschiedenen Darstellungsformen von Polarisation eingegangen (Kap. 3.2) und anschließend auf die Realisierung in Form des Vektor-Interferometers (Kap. 3.3). Für den Aufbau des neu geplanten Vektor-Interferometers wurde das bisherige, langjährig betriebene Mach-Zehnder-Interferometer [86, 87] entfernt und von Grund auf neu konzipiert. Im nachfolgenden Kapitel 4 wird der in Kapitel 3.3 beschriebene Aufbau dann genutzt um ein plasmonisches Skymion-Gitter zu rekonstruieren. Da Theorie und Experiment in der Regel nie perfekt übereinstimmen, wird in Kapitel 3.4 auf mögliche Einschränkungen eingegangen, die in der Realisierung der Vektor-Mikroskopie beachtet werden müssen.

### 3.1. Rekonstruktion einer Ebenen Welle

In diesem Kapitel wird am linearen SPP veranschaulicht wie ein SPP-Feld zu rekonstruieren ist. Die Rekonstruktion vereinfacht sich in diesem einfachen Spezialfall um eine Dimension da das entstehende SPP-Paket nur eine statt zwei Komponenten in der Ebene hat. Diese Komponente ist senkrecht auf dem zur Anregung gewählten linearen Gitterstrich oder Gitter und somit bekannt.



**Abb. 3.1.:** Darstellung zur Rekonstruktion der SPP-Feldkomponente in der Ebene (rot). Durch Abfragen des SPP-Vektors in zwei orthogonale Richtungen kann über die Projektion auf die Abfragerichtung die entsprechende x- und y-Komponente des SPPs bestimmt werden. Werden die  $E_x$ -Komponente (blau) und die  $E_y$ -Komponente (grün) entsprechend dieser Darstellung bestimmt ist die Lage des SPP-Vektors in der Ebene  $\vec{E}_{SPP,\parallel}$  festgelegt.

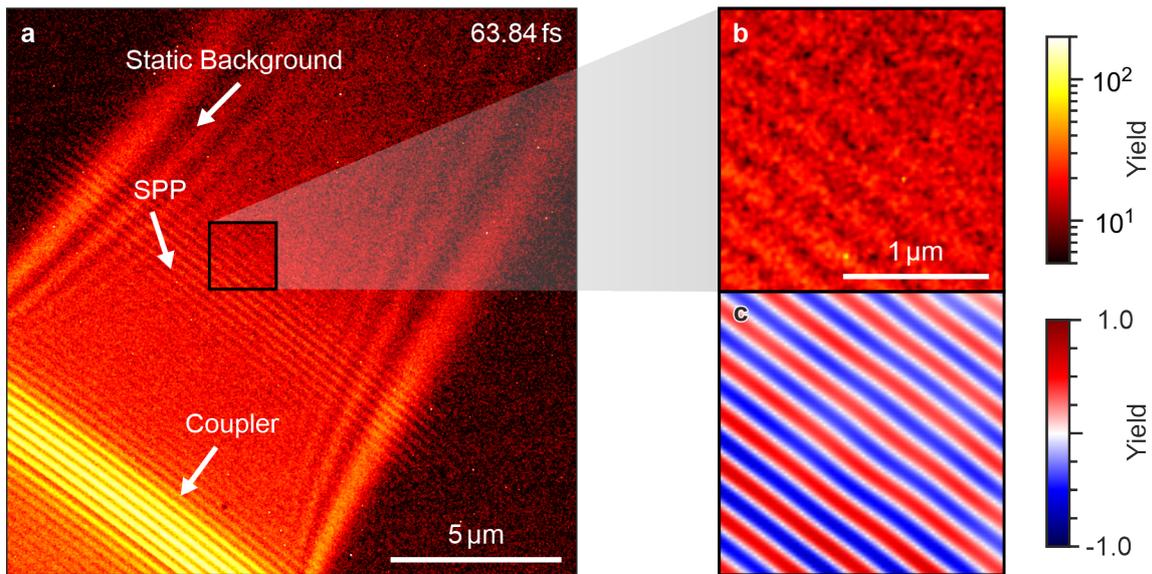
Zum Einstieg wird nun erst einmal die Grundidee der Rekonstruktion eines SPP-Vektors erläutert. Diese Grundidee basiert auf der nichtlinearen Photoemission von Elektronen im PEEM. Dabei wird ausgenutzt, dass der Abfrage-Laserpuls jeweils die Anteile des SPPs abfragt, die der Polarisation des Abfrage-Pulses entsprechen [127]. Werden nun zwei linear unabhängige lineare Polarisierungen zum Abfragen ausgewählt, wird jeweils die Projektion des Feldes in Abfrage-Richtung bestimmt. Dieses Vorgehen ist in Abbildung 3.1 visualisiert. Die erste Abfrage-Richtung ist frei wählbar und wurde in x-Richtung festgelegt. Die resultierende Projektion des SPP-Vektors auf diese Richtung entspricht der  $E_x$ -Komponente (blau). Die dazu orthogonale  $E_y$ -Komponente (grün) resultiert aus der Abfrage in die y-Richtung in einem gesonderten Experiment. Werden beide Experimente kombiniert folgt direkt über Vektoraddition der SPP-Vektor parallel zur Oberfläche  $\vec{E}_{SPP,\parallel}$  (rot). Durch die orthogonalen Abfrage-Polarisationen kann ein beliebiger Vektor in der Ebene rekonstruiert werden. Hierbei sei anzumerken, dass die Abfrage-Polarisationen nicht zwingend orthogonal sein müssen, lediglich linear unabhängig. Linear unabhängige Vektoren haben stets

orthogonale Anteile. Sind die Anteile jedoch zu gering, wird die Rekonstruktion durch die im Verhältnis schwache Feldkomponente erschwert. Daher ist die Wahl von orthogonalen Abfrage-Polarisationen optimal.

Bevor die Rekonstruktion eines beliebig orientierten SPP-Vektors technisch (Kap. 3.3) und anhand eines Skyrmion-Gitters auch praktisch (Kap. 4) realisiert werden kann, wird zunächst die Rekonstruktion des einfachen Spezialfalls gezeigt. Ein linearer Gitterkoppler bietet sich an, um die vektorielle Abhängigkeit des Signals zwischen propagierendem SPP und Abfrage-Laserpuls zu zeigen. Wie auch schon in Kapitel 2.4.2 gezeigt, wird ein SPP durch einen Anrege-Puls an einem Strichgitter ausgelöst und propagiert dann orthogonal zum Koppler und damit parallel zum Gittervektor. Die Verzögerung des Abfrage-Pulses kann nun so gewählt werden, dass sich das SPP durch Propagation einige Mikrometer vom Koppler entfernt hat. So ist das dynamische SPP-Signal vom statischen Bereich des Kopplers örtlich getrennt (Abb. 3.2).

Grundsätzlich werden für die Rekonstruktion des elektrischen Feldes des SPP zwei orthogonale Feld-Komponenten in der Ebene benötigt um die Lage der 2D-Feldvektoren zu bestimmen. Podbiel *et al.* [127] konnten jedoch zeigen, dass der Kontrast der direkten konzeptionellen Visualisierung des SPP im vom Koppler räumlich getrennten Bereich gerade dann maximal ist, wenn die Polarisation des Abfrage-Pulses parallel zum SPP ( $E_L \parallel E_{\text{SPP},\parallel}$ ), sprich orthogonal zum Koppler, ist. Ist die Abfrage-Polarisation senkrecht zur Propagationsrichtung des SPP ( $E_L \perp E_{\text{SPP},\parallel}$ ), ist lediglich etwas Hintergrundsignal zu erkennen. Diese Situation ähnelt der Situation, in der nur ein Puls auf der Probe präsent ist. Da das lineare SPP nur Feldkomponenten in der Ebene hat, die in Propagationsrichtung zeigen, konnte so gezeigt werden, dass im Kontrast lediglich die Projektion des SPP in Abfrage-Richtung sichtbar ist. Durch diese Reduktion auf zwei Dimensionen vereinfacht sich demnach die Feldrekonstruktion beim linearen SPPs erheblich.

Das in Propagationsrichtung abgefragte SPP bildet ein charakteristisches Streifenmuster im PEEM-Signal. Da das Feld als quasi-monochromatische Welle beschrieben werden kann, lässt sich direkt daraus schließen, dass bei einem minimalen  $E_{\text{SPP},\parallel}$  in der Ebene ein maximales  $E_{\text{SPP},\perp}$  orthogonal zur Ebene existiert. Die Anregung des SPP ist dann maximal wenn der Anrege-Puls orthogonal zum Koppler ist. Somit gilt, dass für Anregung und Abfrage nur die gleiche Laserpolarisation gewählt werden muss ( $E_{\text{Pump}} \parallel E_{\text{SPP},\parallel} \parallel E_{\text{Probe}}$ ) um das Feld zu rekonstruieren. Sind  $E_{\text{Pump}}$  und  $E_{\text{Probe}}$  dabei um  $\pi$  phasenverschoben (und damit antiparallel) kommt es laut Podbiel *et al.* lediglich zu einer Verschiebung der Wellenfronten des SPP-Musters um  $\lambda/2$ .



**Abb. 3.2.:** In a) sind die Rohdaten durch ein Anrege-Abfrage-Experiment visualisierten linearen SPP in Falschfarbendarstellung gezeigt. Das am Koppler angeregte SPP propagiert zunächst 63.84 fs bevor der Abfrage-Puls es an der dargestellten Stelle abgefragt und somit sichtbar gemacht hat. Durch die Endlichkeit des linearen Kopplers kommt es zu Randeffekten, die sich als statischer Hintergrund äußern. In b) ist der in a) schwarz umrandete Bereich vergrößert dargestellt. Hier ist bereits das Streifenmuster des SPP zu erahnen. Durch filtern in der Fourier-Transformation kann das dynamische Signal vom statischen Signal getrennt werden und somit aus b) das in c) dargestellte um null symmetrische SPP visualisiert werden.

Abbildung 3.2a) zeigt das Experiment am Linearkoppler in der Übersicht. Das SPP wurde am Koppler angeregt und propagierte 63.84 fs bevor der Abfrage-Puls es erreichte. Bereits in den Rohdaten ist das charakteristische Streifenmuster zu erkennen. Abbildung 3.2b) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des in a) dargestellten schwarzen Kastens. Um die statischen Signale herauszufiltern, wird das Bild gemäß Gleichung 2.23 aus Kapitel 2.4.2 in einer örtlichen zweidimensionalen-Fourier-Transformation gefiltert und lediglich die  $1k$ -Komponente maskiert. In Kapitel 5.4.3 wird diese Filterung vertieft besprochen. Nach der Rücktransformation ergibt sich ein deutlicheres Bild der Welle mit Tälern in blau und Hügeln in rot, wie in Abbildung 3.2c) dargestellt.

Wie bereits oben besprochen ist durch die Wahl der senkrecht zum Koppler stehenden Anrege- und Abfrage-Pulse die Komponente in der Ebene bestimmt und es wird keine weitere Messung mehr benötigt. Die fehlende  $E_z$ -Komponente die aus der Ebene zeigt, lässt sich über die erste Maxwell-Gleichung, das Gaußsche Gesetz

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\partial E_x}{\partial x} + \frac{\partial E_y}{\partial y} + \frac{\partial E_z}{\partial z} = \rho, \quad (3.1)$$

bestimmen. Die Komponente in der Ebene wird als  $E_x$  festgelegt, damit ist  $E_y = 0$  und es gibt auch keine freien Ladungsträger und somit ist auch die Ladungsträgerdichte  $\rho = 0$  und die Gleichung vereinfacht sich zu

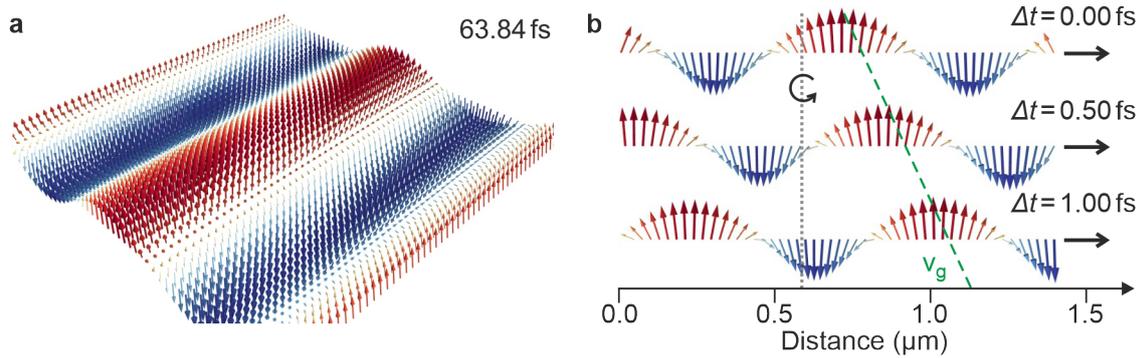
$$\frac{\partial E_z}{\partial z} = -\frac{\partial E_x}{\partial x}. \quad (3.2)$$

Würden für das Experiment keine Laser-Pulse, sondern ein kontinuierlicher Laser genutzt werden, wäre das SPP eine ebene Welle. Es bietet sich daher an das SPP als ebene Welle mit evaneszentem Abfall  $\gamma$  zu nähern. Das evaneszente Feld  $E(z) \propto e^{-\gamma(\varepsilon, k)z}$  [126] wird abgeleitet, sodass  $\partial E_z / \partial z = -\gamma E_z$  mit der Abklinglänge

$$\gamma = \sqrt{\vec{k}_{\text{SPP}}^2 - \varepsilon_0 k_0^2} \quad (3.3)$$

folgt. Mittels Gleichung 2.9 aus Kapitel 2.1.1 unter Vernachlässigung der kleinen imaginären Komponente der Dielektrizitätskonstante des Metalls  $\varepsilon_m$  folgt

$$\gamma = \frac{k_0}{\sqrt{|\varepsilon_m / \varepsilon_0| - 1}}. \quad (3.4)$$



**Abb. 3.3.:** Die Darstellung in a) zeigt einen exemplarischen Bereich des aus Abb. 3.2 rekonstruierten SPPs. Dabei ist die Wellennatur deutlich erkennbar. Wird diese Welle zu verschiedenen Zeitpunkten im Profil betrachten wie in b) dargestellt, ist zu erkennen, dass sich die Vektoren an einem fixen Ort drehen. Hier ist der Transversalspin des SPP zu beobachten. Wird ein Vektor mit einer spezifischen Ausrichtung verfolgt kann über die Verzögerungszeit und die zurückgelegte Distanz die SPP-Geschwindigkeit ermittelt werden die nahe der Lichtgeschwindigkeit liegt. Zur Übersicht ist die theoretische Gruppengeschwindigkeit von  $v_g = 0.92c_0$  [60] als grüne Linie hinterlegt.

Einsetzen der Materialeigenschaften [60]  $\epsilon_m/\epsilon_0 = -23.0$  ergibt für  $\lambda = 792$  nm eine Abklinglänge von  $\gamma = 1.69 \mu\text{m}^{-1}$ . In der linearen Geometrie ergibt sich nun

$$E_z = \frac{1}{\gamma} \frac{\partial E_x}{\partial x}. \quad (3.5)$$

Im Wesentlichen bedeutet dies, dass die Knoten der  $E_x$ -Komponente, die Bäuche der  $E_z$ -Komponente sind und umgekehrt. Im Maximum von  $E_z$  gilt demnach  $E_x = 0$  und umgekehrt. Abbildung 3.3 zeigt einen Ausschnitt des rekonstruierten elektrischen Feldes des linearen SPP. Es sind blaue Pfeile für die negative  $E_z$  und rote für die positive  $E_z$  gewählt worden. Die Länge der Pfeile entspricht der Amplitude. In a) ist deutlich die lineare Wellenform zu erkennen und b) zeigt die eindimensionale Seitenansicht. Wird dieselbe Stelle zu verschiedenen Zeitpunkten betrachtet (grau gepunktete Linie) kann beobachtet werden wie sich die Vektoren drehen. Dies ist als der Transversalspin des SPP bekannt [128]. Aus Olmon *et. al.* [60] lassen sich Phasengeschwindigkeit  $v_p = 0.98 c_0$  und Gruppengeschwindigkeit  $v_g = 0.92 c_0$  berechnen. Kahl *et al.* [66] haben in einem ähnlichen Anrege-Abfrage Experiment bereits gezeigt, dass die Phasengeschwindigkeit  $v_p$  und die Gruppengeschwindigkeit  $v_g$  ungefähr diesen Werten entsprechen. Die grün gestrichelte Linie ist mit der

Steigung von  $v_g$  eingezeichnet. Es ist deutlich zu erkennen, dass es eine gute Übereinstimmung mit der Einhüllenden der dargestellten Vektoren gibt. Etwaige Abweichungen entstammen Ungenauigkeiten bei der Bestimmung des Gesichtsfeldes.

## 3.2. Eigenschaften von polarisiertem Licht

Wie in Kapitel 3.1 verdeutlicht, müssen für die Experimente in der Vektor-Mikroskopie die verwendeten Laser-Polarisationen bekannt sein und manipuliert werden können. Dies gilt vor allem wenn zwei (Kap. 4) oder mehr (Kap. 5) Polarisationen zur Abfrage genutzt werden. Wie sich später zeigen wird (Kap. 5.4.2), ist dabei nicht nur die eigentliche Polarisation sondern auch die Phasenlage zwischen den Abfrage-Polarisationen wichtig.

In diesem Kapitel wird daher zunächst der theoretische Formalismus für Polarisationen eingeführt, um im nächsten Kapitel 3.3 zu beschreiben, wie dies experimentell realisiert werden kann. Bei der Bestimmung von Polarisationen im Bereich von ultrakurzen Pulsen, gibt es durch deren Bandbreite auch bei sehr guten Optiken Einschränkungen, die berücksichtigt werden wollen. In Kapitel 3.4 werden einige der Einschränkungen diskutiert.

Nach einem kurzen historischen Einschub soll im Folgenden auf die verschiedenen Darstellungsformen eines Polarisationszustandes eingegangen werden. Als Ausgangsgrößen dienen wahlweise Azimut und Elliptizität oder die Stokes-Parameter, welche im Polarimeter als Intensitäten gemessen werden. In der Vektor-Polarimetrie soll das echte Feld rekonstruiert werden, sodass die Intensität als Messgrößen um eine gemessene Phase erweitert wird. Der Jones Formalismus ermöglicht es eben diesen Phasenterm einzubeziehen. Eine ausführliche Beschreibung ist in den Büchern von Edward Collet [129, 130] zu finden, an denen sich einige der folgenden Abschnitte zusammenfassend orientieren.

Bartholinus fand 1670 mithilfe eines Calcit Kristalls heraus, dass Licht aus verschiedenen Anteilen (ordinär und extraordinär) besteht. 1808 nutzte Malus eben diesen Kristall in Reflektion an einer Glasebene und fand heraus, dass natürliches Licht polarisiert ist. Er benannte es als s-polarisiert (senkrecht) und p-polarisiert (parallel). Brewster entdeckte 1812, dass die Auslöschung des p-polarisierten Lichtes in der Reflexion materialabhängig ist. Schließlich vereinte Fresnel die Phänomene Interferenz, Brechung und Polarisation in der Fresnel Theorie.

Fresnel beschrieb die Polarisation als Lösungen der Wellengleichung

$$E_x(z, t) = E_{0x} \cos(\omega t - kz + \phi_x) \quad (3.6)$$

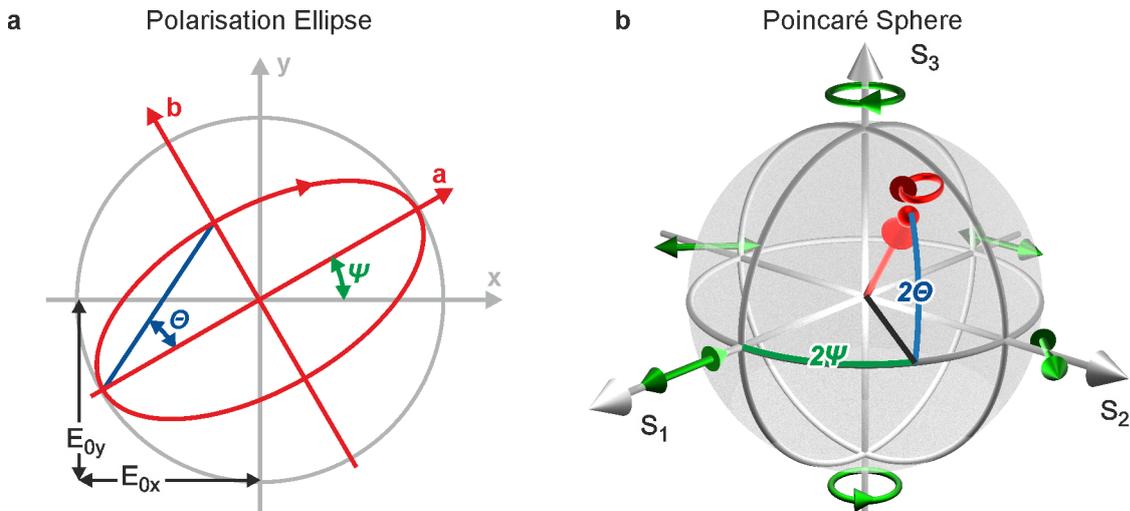
und

$$E_y(z, t) = E_{0y} \cos(\omega t - kz + \phi_y) \quad (3.7)$$

wobei  $z$  die Propagationsrichtung,  $t$  die Zeitabhängigkeit,  $\omega$  die Kreisfrequenz,  $k$  die Wellenzahl und  $\phi_i$  eine arbiträre Phase ist. Wird nun der Propagator  $(\omega t - kz)$  eliminiert und die Phase zu  $\phi = \phi_y - \phi_x$  kombiniert, folgt aus den Gleichungen 3.6 und 3.7 die Ellipsengleichung

$$\frac{E_x(z, t)^2}{E_{0x}^2} + \frac{E_y(z, t)^2}{E_{0y}^2} - \frac{2 \cdot E_x(z, t)E_y(z, t)}{E_{0x}E_{0y}} \cdot \cos(\phi) = \sin^2(\phi), \quad (3.8)$$

die  $E_x(z, t)$  und  $E_y(z, t)$  als sinusoidale Oszillation in der x-z- bzw. y-z-Ebene beschreibt. Wird nun polarisiertes Licht in der  $E_xE_y$ -Ebene betrachtet, spricht in Blickrichtung der Ausbreitung  $z$ , ist eine konstante Polarisationsellipse zu erkennen, die im Laufe dieser Arbeit eine wichtige Messgröße darstellt.



**Abb. 3.4.:** Polarisationsellipse a) zeigt eine um den Azimut  $\Psi$  verdrehte Ellipse mit der langen Halbachse  $a$  und der kurzen Halbachse  $b$ . Der Winkel  $\Theta$  gibt die Elliptizität an. In b) ist eine Poincaré Sphäre mit den Stokes-Vektoren  $(S_1, S_2, S_3)$  als Achsen zu sehen. Der rote Pfeil mit angegedeuteter Ellipse entspricht der Polarisation aus a). Die grünen Pfeile beschreiben die Polarisation entlang der entsprechenden Achse aus Draufsicht. Die Achsen sind definiert als  $S_1$  linear  $0^\circ$  oder  $90^\circ$ ,  $S_2$  linear  $\pm 45^\circ$  und  $S_3$  links und rechts zirkular. Abbildung angelehnt an [130, 131].

Über eine Polarisationsellipse lassen sich alle Polarisationszustände (linear, elliptisch und zirkular) darstellen. Da die entstehende Ellipse für gewöhnlich gegenüber  $E_x$  und  $E_y$  verdreht ist, wird eine mathematische Beschreibung benötigt um die Polarisation zu beschreiben. Dafür werden zwei Winkel eingeführt: der Azimut  $\Psi$  ( $0 \leq \Psi \leq \pi$ ) als Orientierung der linearen Achse und die Elliptizität  $\Theta$  ( $-\pi/4 \leq \Theta \leq \pi/4$ ) als Maß für die Zirkularität. Dabei ist der Azimut definiert als Winkel zwischen der langen Halbachse  $a$  und der x-Achse. Die Elliptizität wird aus dem Verhältnis der beiden Halbachsen  $a, b$  bestimmt

$$\Theta = \arctan\left(\frac{b}{a}\right). \quad (3.9)$$

Exemplarisch ist in Abbildung 3.4a) eine Polarisationsellipse mit einem Azimut  $\Psi = 30^\circ$  und einer Elliptizität von  $\Theta = 45^\circ$  dargestellt. Nach Collet [129, 130] ergibt sich für den Azimut die Relation

$$\tan(2\Psi) = \frac{2E_{0x}E_{0y}\cos(\phi)}{E_{0x}^2 - E_{0y}^2}, \quad 0 \leq \Psi \leq \pi \quad (3.10)$$

und für die Elliptizität die Relation

$$\sin(2\Theta) = \frac{2E_{0x}E_{0y}\sin(\phi)}{E_{0x}^2 + E_{0y}^2}, \quad -\pi/4 \leq \Theta \leq \pi/4. \quad (3.11)$$

Das im Experiment verwendete Polarimeter nutzt eine zeitlich gemittelte Polarisationsellipse als Darstellung der Polarisation und gibt entsprechend Azimut und Elliptizität aus. Alternativ kann die Polarisation auch als Stokes-Vektoren ausgegeben werden. Azimut und Elliptizität sind die Größen, die eine für den/die Betrachter\*in vereinfachte optische Darstellung ermöglichen. Für die Darstellung von Polarisierungen werden in dieser Arbeit deshalb auch Polarisationsellipsen verwendet. Die Polarisationsellipse kann jedoch nur voll polarisiertes Licht darstellen. Stokes-Vektoren hingegen sind als direkte Observablen des Polarisationsfeldes experimentell direkt greifbar und beinhalten auch unpolarisiertes Licht [130].

Eine anschauliche Variante zur Darstellung von Polarisierungen ist durch die sogenannte Poincaré-Sphäre gegeben (Abb. 3.4b)). Hier befindet sich der Azimut  $\Psi$  in der Äquatorialebene und die Elliptizität  $\Theta$  entspricht dem Polarwinkel. Die drei Hauptachsen des Koordinatensystems, die die Kugel aufspannen, entsprechen den Stokes-Vektoren  $S_1, S_2, S_3$ . In der Äquatorialebene sind die linearen Polarisierungen zu finden, an den Polen die zirkularen Polarisierungen.  $S_1$  ist der Anteil der horizontalen ( $S_1 = 1$ ) oder vertikalen ( $S_1 = -1$ ) Po-

larisation,  $S_2$  der um  $45^\circ$  gedrehte Anteil und  $S_3$  der zirkulare Anteil. Die Nordhalbkugel entspricht dem mathematisch negativen Drehsinn (Nordpol ist rechts zirkular  $S_3 = 1$ ), die Südhalbkugel entspricht dem mathematisch positiven Drehsinn (Südpol ist links zirkular  $S_3 = -1$ ).

Die Stokes-Vektoren lassen sich über das Gleichungsset

$$S_0 = E_{0x}^2 + E_{0y}^2 = I \quad (3.12a)$$

$$S_1 = E_{0x}^2 - E_{0y}^2 = I \cdot p_{\text{DOP}} \cdot \cos(2\Psi) \cos(2\Theta) \quad (3.12b)$$

$$S_2 = 2E_{0x}E_{0y} \cos(\phi) = I \cdot p_{\text{DOP}} \cdot \sin(2\psi) \cos(2\Theta) \quad (3.12c)$$

$$S_3 = 2E_{0x}E_{0y} \sin(\phi) = I \cdot p_{\text{DOP}} \cdot \sin(2\Theta) \quad (3.12d)$$

beschreiben. Der erste Stokes-Parameter  $S_0$  entspricht der Gesamtintensität und ist demnach

$$S_0^2 \geq S_1^2 + S_2^2 + S_3^2, \quad (3.13)$$

mindestens gleich der Summe der Quadrate der anderen Stokes-Parameter. Die Gesamtintensität  $S_0 = I$  ist dann größer, wenn ein Teil des Lichtes unpolarisiert ist. Der Grad der Polarisierung (engl. *degree of polarization*, kurz DOP)

$$p_{\text{DOP}} = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0}, \quad 0 \leq p_{\text{DOP}} \leq 1, \quad (3.14)$$

ist hierbei ein Maß welcher Anteil an Intensität polarisiert ist. Somit beschreibt der Stokes-Formalismus jegliche Form von Licht: unpolarisiert, teilpolarisiert oder polarisiert.

Azimut und Elliptizität lassen sich auch über die Stokes-Vektoren definieren. Für den Azimut ergibt sich die Gleichung

$$\Psi = \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{S_2}{S_1}\right), \quad 0 \leq \Psi \leq \pi \quad (3.15)$$

und für die Elliptizität die Gleichung

$$\Theta = \frac{1}{2} \arcsin \left( \frac{S_3}{S_0} \right), \quad -\pi/4 \leq \Theta \leq \pi/4. \quad (3.16)$$

So nützlich die Darstellung als Polarisationsellipse, Poincaré-Sphäre oder Stokes-Vektoren auch sind, fehlt diesen Darstellungen eine entscheidende Größe. In der Vektor-Polarimetrie (Kap. 5) ist es für die Rekonstruktion der Felder notwendig auch die Phasenbeziehung der verschiedenen Polarisationen zueinander zu kennen. Diese Phaseninformation fehlt jedoch im Stokes-Formalismus. Aus diesem Grund wird zusätzlich zu den gemessenen Polarisationen durch spektrale Interferenz (Kap. 5.4.2) eine Phase bestimmt. Die Darstellung die dann gewählt wurde sind die Jones-Vektoren. Der Jones-Formalismus beschreibt lediglich den polarisierten Anteil des Lichtes und ist in seiner Form

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{x_0} e^{i\phi_x} \\ E_{y_0} e^{i\phi_y} \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

komfortabel, da die Feldkomponenten  $E_{x,y}$  in ihre Amplituden  $E_{x_0,y_0}$  und einen Phasenterm mit den Phasen  $\phi_x, \phi_y$  zerlegt werden können. Somit sind die Einträge im Jones-Vektor komplex.

Die Umrechnung von Stokes zu Jones ist für die Auswertung in Kapitel 5 wichtig. Die präzise Bestimmung von Polarisationszuständen begleitet die ganze Arbeit. Die längliche Rechnung ist im Anhang A zu finden und die Komponenten des Jones-Vektors haben schließlich die Form

$$E_x^2 = \frac{1}{2} e^{2i\phi} \cdot \frac{E_{p,x} (1 + S_1) + E_{p,y} (S_2 - iS_3)}{E_{p,x}^* + E_{p,y}^* \frac{S_2 + iS_3}{1 + S_1}} \quad (3.18)$$

und

$$E_y^2 = \frac{1}{2} e^{2i\phi} \cdot \frac{E_{p,x} (S_2 + iS_3) + E_{p,y} (1 - S_1)}{E_{p,x}^* \frac{S_2 - iS_3}{1 - S_1} + E_{p,y}^*}. \quad (3.19)$$

Dabei steht  $E_{x,y}$  für die Komponenten des elektrischen Feldes der Abfrage  $\vec{E}_{\text{probe}}$  und  $E_{p,(x,y)}$  steht für die Komponenten des elektrischen Feldes der Anregung  $\vec{E}_{\text{pump}}$ .

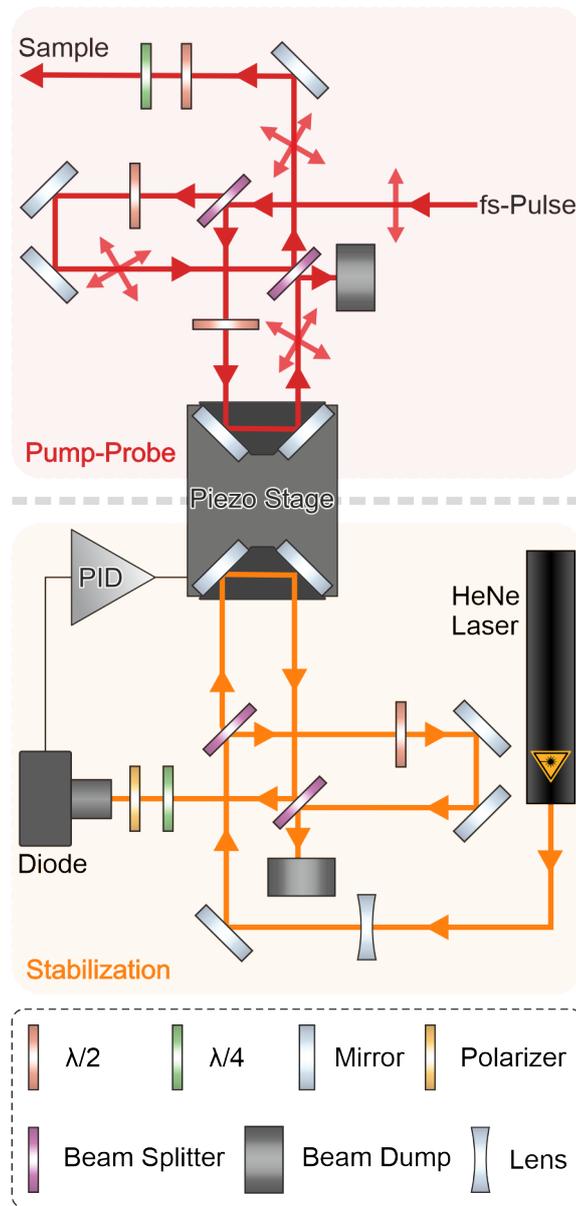
### 3.3. Optischer Aufbau für die Vektor-Mikroskopie

In diesem Kapitel wird die experimentelle Realisierung des ersten Vektor-Interferometers und die Gedankengänge zu dessen Aufbau besprochen. Bisher wurde das Interferometer mittels eines parallel zum fs-Laser laufenden Helium-Neon-Lasers stabilisiert. Das Interferometer beruhte auf der Stabilisierung von Wehner *et al.* [85] wie bereits in Kapitel 2.2.2 beschrieben. Bei dem Neuaufbau des Vektor-Interferometers konnte demnach auf die langjährige Erfahrung [63, 86, 87] mit dem MZI zurückgegriffen werden.

Eine auf Polarisation basierende Stabilisierung lässt sich jedoch schwer mit einem Vektor-Interferometer vereinen, das zwingend eine fein einstellbare Polarisationsänderung in Form von  $\lambda/2$ -Wellenplatten in den Interferometerarmen benötigt. Die zusätzlichen Wellenplatten führen dazu, dass die polarisationsabhängige Stabilisierung des MZI nicht mehr funktionieren würde. Bei Experimenten in denen Zeitverzögerung von Bruchteilen der Oszillationsperiode des SPP von  $T_{\text{SPP}} = 2.66$  fs eingestellt werden sollen, ist eine Stabilisierung jedoch unumgänglich. Für ein stabilisiertes Vektor-Interferometer darf die Stabilisierung die Polarisationsoptiken des fs-Lasers nicht passieren. Der zum fs-Laser parallel geführte HeNe könnte nur mit großen Spiegeln an den Drehmotoren vorbeigeführt werden. Große Spiegel widersprechen jedoch dem Prinzip von kurzen Strahlwegen und sind auch schwankungsanfälliger.

Um sowohl eine Polarisationsänderung für die Vektor-Mikroskopie als auch eine notwendige Stabilisierung nutzen zu können, wurde in der ersten Version des Vektor-Interferometers die Stabilisierung vom fs-Laser räumlich getrennt. Dafür wurde ein Stabilisierungs-Interferometer gespiegelt zum fs-Interferometer gebaut. Abbildung 3.5 veranschaulicht das neue Interferometer. Die Stabilisierung (gelb) und der fs-Laser (rot) blieben über eine gemeinsame Piezobühne mit jeweils einem beteiligten Interferometerarm mechanisch gekoppelt. Stabilisierung und Vektor-Interferometer bestehen dabei aus den gleichen Optikkomponenten und alle Abstände wurden gleich gewählt. Die Stabilisation erkennt wie in der Ursprungsvariante Unterschiede in ihren Interferometerarmen und korrigiert durch die Korrektur des Stabilisierungs-Interferometerarms auch den Interferometerarm des fs-Lasers mit.

Für die Vektor-Mikroskopie ist es notwendig, Anrege- und Abfrage-Puls individuell einzustellen, sodass bei gleicher Anregung unterschiedliche Abfrage-Polarisationen möglich sind. Eine Kombination aus  $\lambda/2$  und  $\lambda/4$  hinter dem Interferometer ermöglicht zunächst die Polarisation beider Pulse simultan frei einzustellen. Um die Polarisationen von An-



**Abb. 3.5.:** Schematische Darstellung des ersten Vektor-Interferometers. Da das Manipulieren der Polarisierungen für die fs-Pulse die Mach Zehnder Stabilisierung stört, wurde der Anrege-Abfrage Teil des Lasers vom Stabilisierungsteil mechanisch getrennt. Beide Teile sind symmetrisch zueinander aufgebaut und die Laser überbrücken dieselbe Distanz. Eine Piezo Bühne, die durch den Stabilisierungszeit gesteuerten Regler geregelt wird, korrigiert Schwankungen aus und setzt die Verzögerungszeiten zwischen Anregung und Abfrage im Zweig der fs-Pulse.

regung und Abfrage unterschiedlich wählen zu können müsste lediglich eine weitere  $\lambda/2$  Platte in den Abfrage-Arm eingebracht werden. Die Dispersion durch das zusätzliche Material in einem Arm würde bei Pulsen mit etwa 15 fs dazu führen, dass die beiden Interferometerarme unterschiedlichen Chirp aufsammeln, der im entsprechenden Arm korrigiert werden müsste. Das macht den Aufbau unnötig groß und kompliziert. Desweiteren müsste die zurückgelegte Wegstrecke im Anrege-Arm verlängert werden, damit die Pulse wieder überlappen. Um den Aufbau kompakt zu halten, könnten die Effekte der  $\lambda/2$  Platte im Abfrage-Arm durch ein Glas gleicher Dicke im Anrege-Arm kompensiert werden. Praktikabler ist es jedoch eine baugleiche  $\lambda/2$  Platte in den Anrege-Arm einzubauen. Dies gibt weiterhin einen zusätzlichen Freiheitsgrad der mögliche Imperfektionen der Optiken ausgleicht (Kap. 3.4).

Das Vektor-Interferometer besteht also aus einem regulären Mach-Zehnder-Interferometer, das um je eine  $\lambda/2$  Platte in den beiden Interferometerzweigen und eine Kombination aus  $\lambda/2$  Platte und  $\lambda/4$  Platte hinter dem Interferometer ergänzt wurde. Wie durch die blauen gekreuzten Doppelpfeile angedeutet kann nun mit diesem Aufbau die Polarisation von Anrege- und Abfrage-Puls individuell frei eingestellt werden.

Das erste Experiment, welches das Vektor-Mikroskop auf die Probe gestellt hat, war eine hexagonale Struktur mit einem versetzten Koppler (Kap. 4). Die Struktur wurde zirkular angeregt und in zwei orthogonale Richtungen abgefragt. Da es möglich ist die Zeitverzögerung zwischen Anregung und Abfrage fein einzustellen, konnten die vektoriellen Eigenschaften eines plasmonischen Skymion-Gitters untersucht werden.

### 3.4. Einschränkungen optischer Komponenten

Im Kapitel 3.2 wurde deutlich gemacht, wie Polarisationen bestimmt werden und dass eine exakte Bestimmung von Polarisationen auch die Phase beinhaltet. In diesem Kapitel soll noch einmal verdeutlicht werden, warum die Polarisationen gemessen werden müssen und warum der Zustand nicht einfach berechnet werden kann.

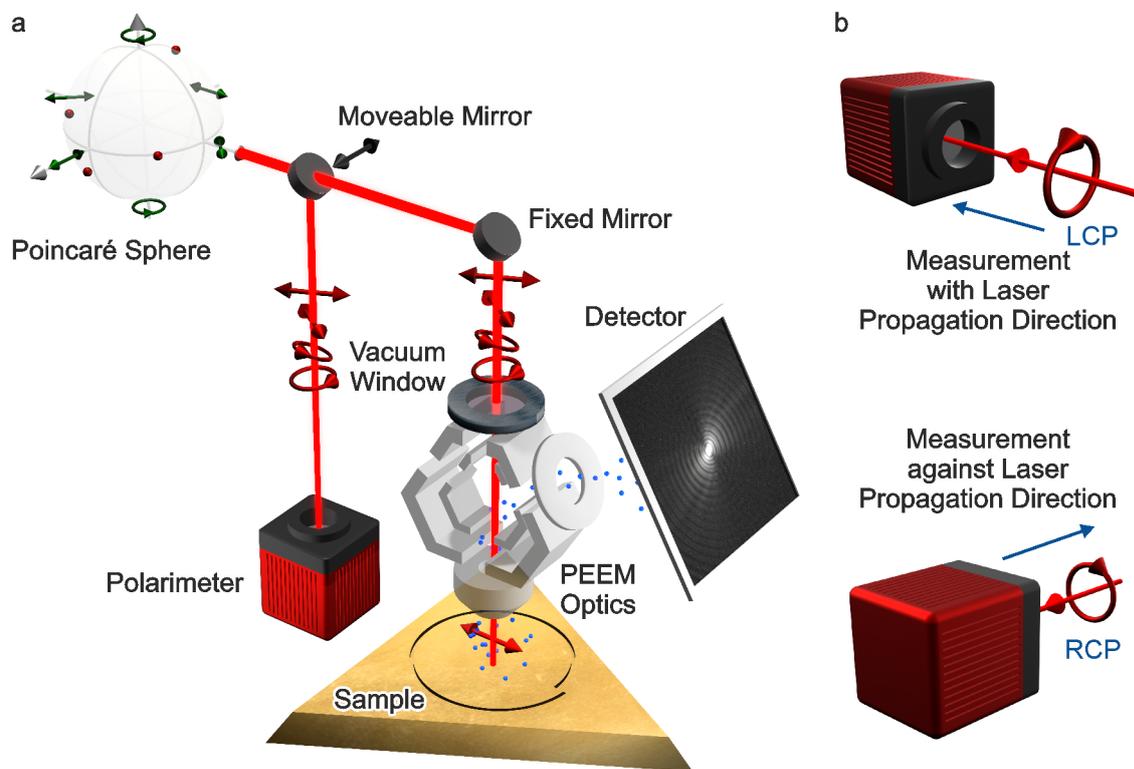
Prinzipiell lässt der Einfluss einer optischen Komponente auf den Polarisationszustand durch eine Transformationsmatrix beschreiben. Im Falle des Stokes-Vektors  $\mathbf{S}$  werden die Müller-Matrizen  $\mathbf{M}$  zur Bestimmung des neuen Stokes-Vektors  $\mathbf{S}' = \mathbf{M} \cdot \mathbf{S}$  genutzt. Die

Müller-Matrix entspricht einer  $4 \times 4$  Transformations Matrix

$$\mathbf{S}' = \begin{pmatrix} S'_0 \\ S'_1 \\ S'_2 \\ S'_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{00} & m_{01} & m_{02} & m_{03} \\ m_{10} & m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{20} & m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{30} & m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

welche für gängige optische Elemente wie Halbwellenplatten, Viertelwellenplatten oder einen Polarisator bekannt sind. Dies gilt sowohl für perfekte theoretische Wellenplatten als auch hochqualitative kommerzielle Wellenplatten. Für reale Bauteile sind neben den vorgesehenen Einträgen der  $\lambda/2$ -Wellenplatte auch die anderen Müller-Indizes ungleich null. Bei einem Multiplattensystem wie es in der Vektor-Mikroskopie verwendet wird, führen jedoch bereits geringe Abweichungen in den Einträgen durch die Fehlerfortpflanzung zu ungenauen Ergebnissen. Die Matrizen sind auch spezifisch für verschiedene Wellenlängen und empfindlich gegenüber Verdrehung der Optikkomponenten. Da in der Vektor-Mikroskopie jedoch mit Pulsen von ca. 15 fs gearbeitet wird, ergibt sich für eine Zentralwellenlänge von 800 nm eine Bandbreite von etwa 63 nm. Bei dieser Bandbreite werden bereits superachromatische Wellenplatten genutzt, um für einen möglichst großen Wellenlängenbereich die gewünschte Polarisierung zu erreichen. Bei einem Puls mit verschiedenen intensiven Wellenlängenkomponenten mischen nun aber die verschiedenen Polzustände, sodass die Gesamtpolarisation schwer zu bestimmen ist. So wurde beispielsweise die Erfahrung gemacht, dass ein zuvor linear polarisierter Laser nach Passieren einer  $\lambda/2$ -Wellenplatte nicht nur gedreht wurde, sondern auch Elliptizität dazu bekam.

Auch für Strahlteiler sind die spektral breiten und zeitlich kurzen Pulse ein Problem. Strahlteiler müssen für die kurzen Pulse breitbandig wellenlängenunabhängig sein und im Idealfall eine polarisationsunabhängige 50:50 Strahlteilung gewährleisten. Diese Eigenschaften zu kombinieren ist in der Regel schwierig, sodass hier auf den Titan:Saphir-Laser optimierte Strahlteiler vom Hersteller *Femtolasers* verbaut wurden, die das gewünschte 50:50 Strahlteilungs-Verhältnis aufweisen. Dabei funktionieren die Strahlteiler nur dann ideal, wenn das zu teilende Licht mit einer definierten Polarisierung auf sie trifft und ist somit polarisationsabhängig. Vor allem beim zweiten Strahlteiler weicht die Polarisierung aufgrund der  $\lambda/2$ -Platten für die Vektor-Mikroskopie jedoch definitiv von der für die polarisationsstabile Teilung notwendigen Polarisierung ab.



**Abb. 3.6.:** In a) ist eine schematische Darstellung einer Vektor-Polarimetrie Messung zu sehen (Kap. 5.3). In einem parallel zum Vakuumeintrittsfenster befindlichen Polarimeter wird zunächst durch Einschieben eines beweglichen Spiegels die Polarisation gemessen, bevor der Laser durch ein Vakuumfenster in das PEEM geleitet wird. Die ausgelösten Elektronen (blau) passieren die PEEM-Optik und erreichen schlussendlich den Detektor. Die Messung wird für verschiedene Polarisationen wiederholt. Der blaue Pfeil in b) deutet an, ob das Gerät mit oder gegen die Propagationsrichtung des Lasers misst. Hierdurch entscheidet sich ob eine in Strahlrichtung links zirkuläre Polarisation vom Gerät als links zirkuläre Polarisation (mit Propagationsrichtung) oder rechts zirkuläre Polarisation (gegen Propagationsrichtung) ausgegeben wird.

Die polarisationsabhängigen Eigenschaften sind für jede optische Komponente spezifisch, sodass diese prinzipiell ausgemessen werden können. Jedoch sind die Parameter auch stark davon abhängig unter welchem Winkel der Laser die Optiken passiert. Dies erschwert das Vermessen der Müller-Matrizen für die Optikkomponenten. Im ersten Schritt wurde deshalb auch auf die Einzelvermessung der Komponenten verzichtet und stattdessen eine Gesamtmatrix  $\mathbf{G}$  für das ganze System angefitet. Für die Vermessung wurde je ein Interferometerarm, mit den beiden gemeinsamen Wellenplatten hinter dem Interferometer, über einen gewissen Winkelbereich durchgefahren (Aufbau im Kap. 3.3 in Abb. 3.5). Das Verfahren der je drei Wellenplatten ergibt  $\phi^3$ -Kombinationen pro Interferometerarm, wobei  $\phi$  für die Anzahl an Winkel steht, die pro Wellenplatte angefahren werden. Um eine möglichst gute Wiederholungsgenauigkeit des eingestellten Winkels zu erreichen wurden die *AG-PR100 Piezo Rotation Stage* von *MKS Newport* verbaut, die jedoch den Nachteil einer sehr langsamen Winkeleinstellung haben. Da durch das Rastern des gesamten Winkelbereichs oft sehr große Winkelschritte gefahren werden müssen, limitiert die lange Fahrzeit die Anzahl der möglichen Abtastpunkte. Demnach sind die Abtastschritte pro Wellenplatte sehr groß, damit die Gesamtmessdauer des Experiments in einen angemessenen Rahmen bleibt. Aus der Datenwolke ließ sich schließlich die Systemmatrix  $\mathbf{G}$  anfiten. Die resultierenden Stokes-Vektoren  $\mathbf{S}_{\mathbf{G}} = \mathbf{G} \cdot \mathbf{S}$  dienten fortan als grobes Maß um die resultierenden Polarisationen frei einzustellen. Tagesabhängig müssen diese Polarisationen lediglich etwas nachgestellt werden. Über einfache Monte-Carlo Simulationen hat Yannik Paul in seiner Masterarbeit überprüft, welche Abfrage-Polarisationen bei einer festgelegten Anrege-Polarisation möglich sind. Die Daten dafür wurden aus der Systemmatrix  $\mathbf{G}$  extrahiert. Es stellte sich heraus, dass für beliebig festgelegte Anrege-Polarisation nicht jede beliebige Abfrage-Polarisation ausgewählt werden kann, was bedeutet, dass die Poincaré-Sphäre in der Abfrage nicht vollständig abgedeckt wird.

Zur Vermessung der Polarisationen wird das Polarimeter *PAX1000IR1* von *Thorlabs* genutzt. Dabei befindet sich das Polarimeter, wie in der schematischen Skizze des Messbetriebs Abb. 3.6a) skizziert, parallel zur Probe und direkt vor dem Vakuumfenster zum PEEM. Näheres zur Polarimetrie folgt in Kapitel 5.

Abbildung 3.6b) soll verdeutlichen, dass bei der Polarisationsmessung zu beachten ist, ob die vom Polarimeter ausgegebene Polarisation über eine Polarisationsmessung auf den Strahl schauend (rechts zirkular) oder in Strahlrichtung (links zirkular) aufgenommen wird. Dies ändert den Drehsinn bzw. die Händigkeit der Polarisation. Das verwendete

*Thorlabs PAX1000IR1* misst gegen die Ausbreitungsrichtung des Strahls, was gespiegelt zur Darstellung im PEEM ist und in der Auswertung der Jones Vektoren berücksichtigt wird.

## Rekonstruktion eines Skymion-Gitters

Im dem Bereich der Feldrekonstruktion von SPPs wurden mit dem SNOM bereits erste Vorstöße gewagt [10–12], jedoch blieb die Zeitdomäne bisher verwehrt. In den NNOM-Experimenten von Frischwasser *et al.* [13] wiederum ist die Auflösung nicht so hoch. Die Vektor-Mikroskopie erlaubt nun eben diesen Einblick in die Ort-Zeit Struktur im sub-Wellenlängen und sub-Femtosekunden Bereich. Eine erste Anwendung fand die Vektor-Mikroskopie im Bereich plasmonischer topologischer Strukturen. Aus dem Zoo topologischer Quasipartikel [132, 133], wurde das plasmonische Skymion ausgewählt welches mithilfe einer Struktur nach Tseses *et al.* [44] angeregt werden kann. Der Vorteil gegenüber anderen plasmonischen Quasipartikeln wie dem Meron (Kap. 5), dass im Spin-Feld zu finden ist, ist, dass die wesentlichen topologischen Größen bereits im elektrischen Feld sichtbar sind.

### 4.1. Einführung Topologie

Die Topologie ist ein großes Forschungsfeld, dass im Rahmen einer solchen Arbeit nicht ausführlich behandelt werden kann. Darum wird das Themenfeld auf die für diese Arbeit wesentlichen Aspekte beschränkt.

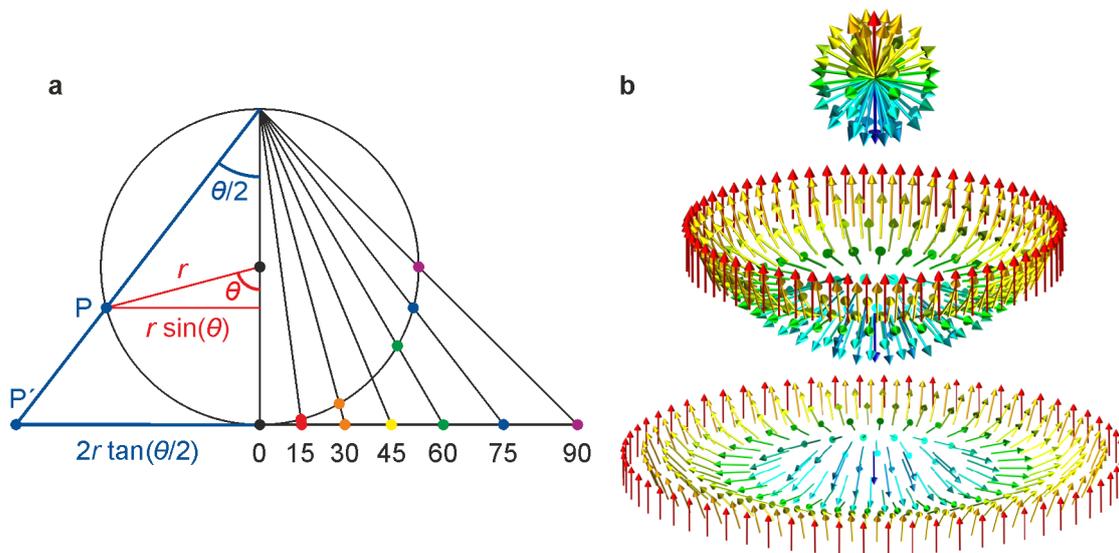
Als Teilgebiet der Mathematik, beschäftigt sich die Topologie damit wie Eigenschaften von Objekten durch Verformung erhalten bleiben, sodass sich ein Objekt homotop zu einem anderen umwandeln lässt. Ein klassisches Beispiel ist die topologische Äquivalenz zwischen einer Tasse und einem Torus, da diese in derselben Homöomorphieklasse zusammengefasst werden.

Auch in die Physik flossen topologische Konzepte mit ein. Gerade in der Festkörperphysik sollen Eigenschaften von Festkörpern durch topologische Effekte erklärbar sein. Dabei sollen 10-30% aller Materialien topologische Effekte aufweisen [134, 135]. Im Jahre 2016 erhielt David J. Thouless für die topologische Erklärung zur Stabilität des Quanten-Hall-Effektes den Nobelpreis [136]. Zwei unabhängige Teams zeigten 2007, dass für den Quanten-Hall-Effekt nicht zwingend starke externe Magnetfelder notwendig sind, sondern dass Isolatoren bestehend aus schweren Elementen durch eine Interaktion zwischen Elektronen und Atomkernen ihr eigenes Magnetfeld bereitstellen können [137, 138]. Die Topologie kann sehr besondere Eigenschaften wie beispielsweise die der 2015 experimentell entdeckten Weyl-Fermionen hervorrufen. Dabei handelt es sich um Fermionen im Festkörper die sich wie masselose Quasipartikel verhalten [139, 140]. Aber auch Quantencomputer sollen durch topologisch geschützte Qubits rauschärmer werden [141].

In diesem Kapitel sind die topologischen Objekte plasmonische Skymion-Gitter, angelehnt an die bekannten magnetischen Skymion-Gitter [31]. Die nach Tony Skyrme benannten Skymionen wurden von Skyrme ursprünglich zur Erklärung der starken Wechselwirkung in der Kernphysik postuliert [142]. Nachdem die Quark Theorie diesen Ansatz entkräftete, wurde der Begriff der Skymionen zur Beschreibung von topologischen Wirbelfeldern an magnetischen Grenzflächen übernommen [31, 143].

Skymionen können als Néel-, Bloch- und Anti-Skymion auftreten [144] und werden häufig als eine 3D-Spinstruktur auf einer Kugeloberfläche dargestellt, die auf eine Ebene projiziert wird [40, 145, 146]. Die verschiedenen Skymion-Untergruppen repräsentieren die verschiedenen Varianten, wie sich die Vektoren an die Kugeloberfläche anlegen können.

Die Entfaltung von der Kugel zur Fläche wird über eine stereographische Projektion beschrieben, welche in Abbildung 4.1a) graphisch veranschaulicht wird. Bei der stereographischen Projektion handelt es sich um eine bijektive, kreis- und winkeltreue Abbildung. Wird eine Einheitskugel betrachtet, bei der der Südpol die Projektionsfläche berührt so ergibt sich der projizierte Punkt  $P$  als Schnittpunkt zwischen der Projektionsfläche und der Gerade zwischen Nordpol und dem zu projizierenden Punkt  $P$ . Der Vektor am Punkt  $P$  wird ohne Veränderung seiner Orientierung auf den projizierten Punkt abgebildet. Problematisch an dieser Darstellung ist, dass die Abstände der projizierten Punkte bei gleicher Winkeldifferenz umso mehr steigen, je größer der Winkel  $\Theta$  ist und somit Vektoren nahe des Nordpols im Unendlichen abgebildet werden.



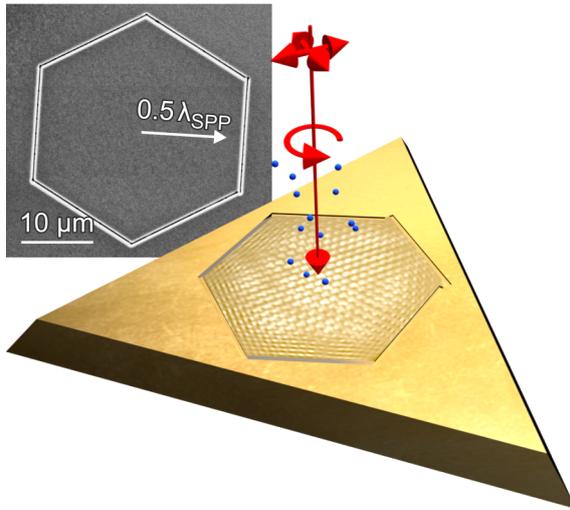
**Abb. 4.1.:** Schematische Darstellung der stereographischen Projektion in a). Hierbei werden Punkte auf der Sphäre winkeltreu auf die Projektionsfläche tangential zum Südpol abgebildet. Bei dieser Projektion würden Punkte nahe des Nordpols im unendlichen abgebildet werden. Eine alternative Form ist die azimutal äquidistante Projektion. In b) ist eine solche Projektion von einem Skyrmion dargestellt. Abbildung nach [145].

Eine ähnliche Variante ist die azimutal äquidistante Projektion wie sie in Abb. 4.1b) genutzt wurde um das in diesem Kapitel beschriebene experimentell bestimmte plasmonische Néel-Skyrmion als Kugel, Halbkugel und als Fläche darzustellen. Bei dieser Darstellung werden die Vektoren auf äquidistante Polarisationsringe abgebildet.

Die Topologie von Teilchen wie Skyrmionen lässt sich messen und ist unter verschiedenen Namen zu finden. Sie wird als topologischer Index [147–149], topologische Ladung [147–149], Skyrmion-Zahl [148], Windungszahl [149, 150] oder Chern-Zahl [132, 150] bezeichnet. Im Prinzip beschreibt diese Größe jedoch welche Berry-Phase [151] aufgenommen wird, wenn das topologische Teilchen einmal umrundet wird.

## 4.2. Probendesign Skyrmion

In Abbildung 4.2 ist eine hexagonale Anrege-Struktur nach Tseses *et al.* [44, 45] mit einer um  $\lambda/2$  nach außen verschobenen Seite dargestellt. Diese Struktur eignet sich um mit einem zirkularen Anrege-Puls ein SPP-Skyrmion-Gitter zu erzeugen. Im Experiment wurden die Koppler so in die Probe geschnitten, dass alle relevanten dynamischen Beiträge

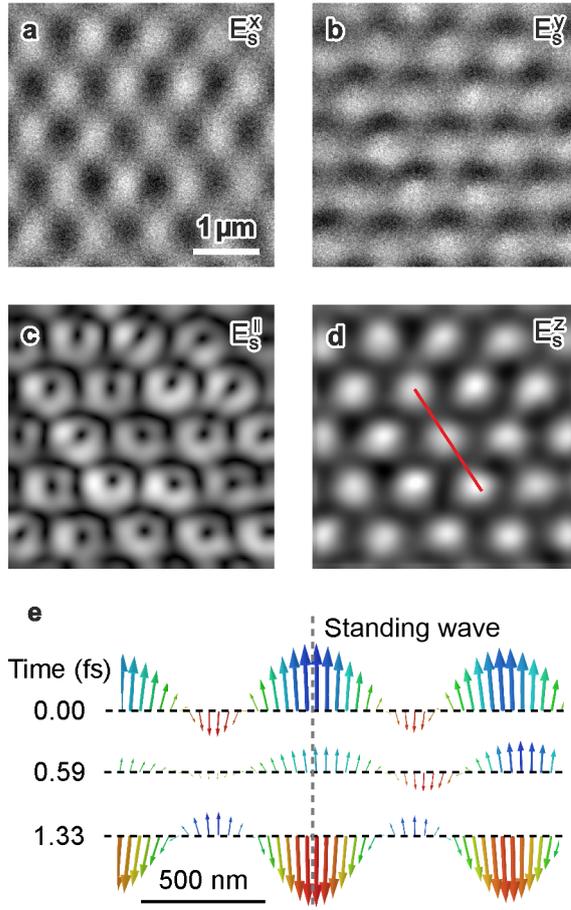


**Abb. 4.2.:** Schematische Darstellung eines Gold Plattelets mit einer Skymion-Anrege-Struktur nach [44, 45]. Innerhalb des Hexagons ist die gemessene Ausbeute angedeutet. Im Hintergrund ist eine Rasterelektronenmikroskopie-Aufnahme der gemessenen Struktur zu sehen, bei der die rechte Hexagon-Seite um eine halbe Wellenlänge verschoben ist.

durch Ort-zeitliche-Trennung von den Effekten an den Kopplern (Kap. 2.4.2) separiert werden können. Das Anrege-Abfrage-Experiment wird anschließend zwei Mal durchgeführt. Im ersten Experiment wird eine beliebige lineare Polarisation zur Abfrage gewählt. Im darauffolgenden Experiment wird eine vom der ersten Polarisation linear unabhängige Polarisation gewählt. In diesem Fall ist die für den Abfrage-Puls gewählte Polarisation orthogonal zur Polarisation des ersten Abfrage-Pulses. Für diese Messung wird der in Kapitel 3.3 beschriebene Aufbau des Vektor-Mikroskops genutzt [152]. In beiden Serien wurden die gleichen Zeitserien aufgenommen. Die Anrege-Polarisation wurde links-zirkular gewählt. Die nach dem Verfahren in Kapitel 2.4.3 gereinigte Probe zeigte eine deutlich sichtbare Herringbone Struktur und wurde caesiert, bis die laufenden SPPs gut sichtbar waren.

### 4.3. Rekonstruktion eines Skymions und der topologischen Größen

In diesem Kapitel wird zunächst erläutert, wie mittels der Vektor-Mikroskopie die Felder an der Oberfläche rekonstruiert werden können. Anschließend wird die Analyse der topologischen Größen beschrieben. Das Skymion-Gitter zeigt sich in der gewählten hexagonalen Struktur im dynamischen SPP-Licht Signal des elektrischen Feldes. Um diesen Term zu extrahieren, können gemäß Gleichung 2.23 die Emissionskanäle im Frequenzraum separiert



**Abb. 4.3.:** Gemessene Daten mit Abfragepuls in x-Richtung a) und y-Richtung b). In c) ist die kombinierte Komponente in der Ebene dargestellt und die über die Maxwell-Gleichungen berechnete z-Komponente in d). Ein Linienschnitt entlang der in d) eingezeichneten roten Linie ist in e) für verschiedene Verzögerungszeiten dargestellt. Dabei wird die stehende Welle sichtbar. Während auf der grau gestrichelten Linie (ortsfest) bei 0 fs alle Vektoren aus der Ebene hinaus zeigen, werden sie bei 0.59 fs zunächst schwächer bis sie einen halben optischen Zyklus später bei 1.33 fs in die Ebene zeigen. [152]

werden. Für die Näherung ebener Wellen kann das experimentelle Signal genähert werden als

$$Y(\vec{r}, t) \approx Y_0 + Y_1 \sin(\vec{k} \cdot \vec{r}) + Y_2 G(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) \sin(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t), \quad (4.1)$$

wobei  $Y_0$  für den statischen Untergrund steht,  $Y_1$  für die statischen Licht-SPP Wechselwirkungen und  $Y_2$  das SPP-Feld beinhaltet. Des Weiteren enthält die Gleichung die Zentralfrequenz  $\omega$  und den Wellenvektor  $\vec{k}$ . Um den Puls zu imitieren, wurde die gaußsche Einhüllende  $G(x)$  miteinbezogen. Wie im Appendix von Davis *et al.* [152] dargestellt, wurden für die Separation zwei Varianten ausprobiert. In der letztendlich für die Auswertung verwendeten einfachen Variante wird davon ausgegangen, dass sich statische Signale jeden Zyklus wiederholen. Wird entsprechend das Mittel aus dem Zyklus vorher und nachher vom aktuellen Wert abgezogen

$$Y(\vec{r}, t) - 0.5 \left[ Y\left(\vec{r}, t - \frac{\pi}{\omega}\right) + Y\left(\vec{r}, t + \frac{\pi}{\omega}\right) \right] = Y_2 \tilde{G}(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) \sin(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t), \quad (4.2)$$

werden alle Emissionskanäle auch jener der Plasmoemission mit  $2\omega$  entfernt. Methodisch wird so jedoch die Gaußsche Einhüllende verbreitert

$$\tilde{G}(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) = G(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) + 0.5 \left[ G(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t - \pi) + G(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t + \pi) \right]. \quad (4.3)$$

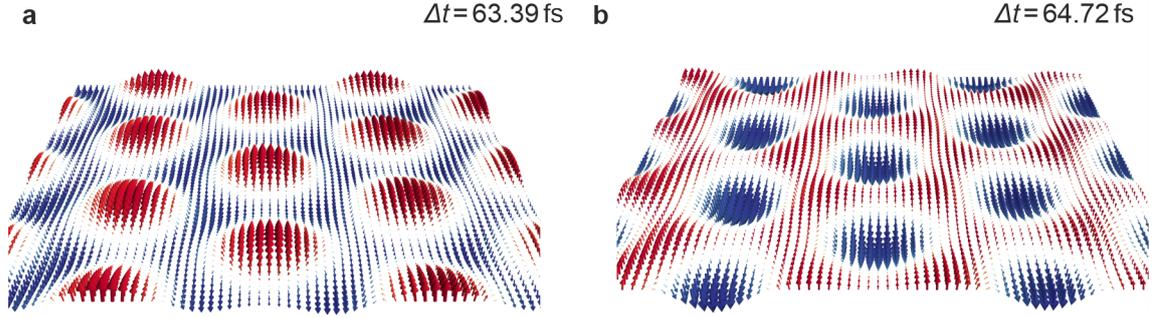
In der anderen Variante werden Fourier-Methoden herangezogen um die gewünschten Signale herauszufiltern. Diese Methode erweist sich als präziser und wird auch in der Vektor-Polarimetrie (Kap. 5) verwendet. Dass die Methode in dieser Auswertung nicht herangezogen wurde, liegt an der Problematik von Jitter und Langzeitinstabilitäten im Experiment. Weiteres dazu wird in Kapitel 4.4 erläutert. Um die Problematik der Instabilitäten auch in der ersten Methode zu umgehen wurde ein Savitzky-Golay-Filter [153] in Form eines dritte-Ordnungs-Polynoms zum Glätten der Zeitserien genutzt.

Auch örtlich werden die Daten mit einem zweidimensionalen gaußschen Faltungsfilter geglättet, um ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis zu erhalten. Der Verlust in der Auflösung ist dabei unkritisch, da die Wellenlänge  $\lambda_{\text{SPP}} = 780 \text{ nm}$  jenseits der optimalen elektronenoptischen Auflösungsgrenze des LEEMs von  $10 \text{ nm}$  liegt.

Vorwiegend thermische, aber auch mechanische Verschiebungen können dazu führen, dass die Datensätze mit x-Abfrage und y-Abfrage nicht aufeinanderpassen. Deshalb müssen diese beiden Datensätze zunächst aufeinander ausgerichtet werden, bevor die Komponente in der Ebene und vor allem die Komponente der Flächennormale in  $E_z$ -Richtung bestimmt werden können. Im Experiment wurden alle Bilder mit  $d_x = -5 \text{ Pixel}$  und  $d_y = -10 \text{ Pixel}$  verschoben. Für die Ableitung der Flächennormalen ergibt sich die Formel

$$\frac{\partial E_z(x, y, t)}{\partial z} = -A \frac{E_x(x+1, y, t-dt) - E_x(x-1, y, t-dt)}{2} - \frac{E_y(x, y+1, t) - E_y(x, y-1, t)}{2}, \quad (4.4)$$

wobei x und y die Pixel im Bild sind und der Skalierungsfaktor A soll die Intensitätsunterschiede zwischen den beiden Messungen angleichen. Unterschiedliche Intensitäten treten durch die Polarisationsabhängigkeit bezüglich Transmission und Reflexion in den verwendeten Optiken auf, wie bereits in Kapitel 3.4 skizziert. Die unterschiedliche Transmission und Reflexion sorgt zusätzlich für eine Phase und eine Nullpunktverschiebung zwischen verschiedenen Polarisierungen, welche sich in einem zeitlichen Versatz der beiden Serien zueinander äußern. Vor der Rechnung 4.4 wurde auch dieser Versatz  $d_t$  nachkorrigiert, sodass sich als Korrekturterme  $A = 1.65$  und  $d_t = -1 \text{ fs}$  ergeben. Bei 16 Bilder pro Periode



**Abb. 4.4.:** Rekonstruiertes Skyrmion-Gitter zu zwei verschiedenen Zeitpunkten. In a) zeigen die Skyrmion-Vektoren aus der Ebene hinaus und in b) zeigen sie in die Ebene. Abbildung nach [152].

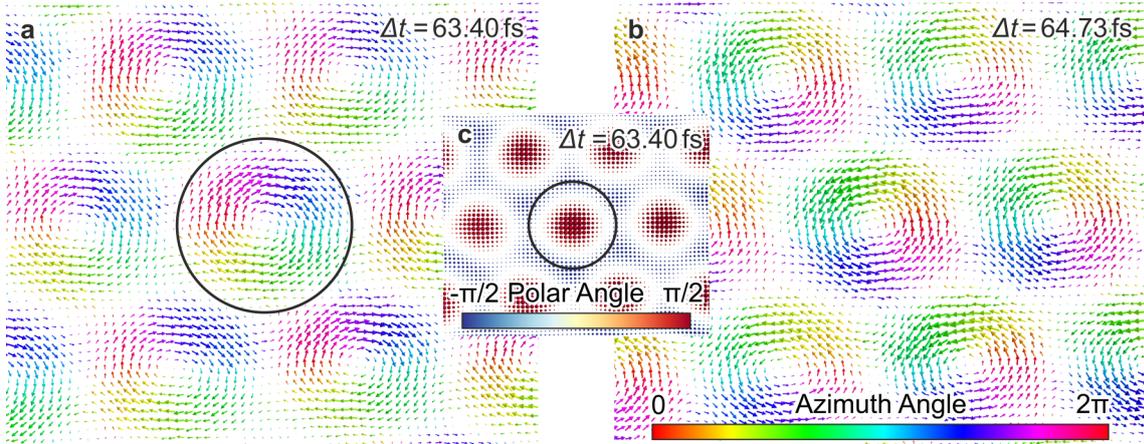
von 2.66 fs ergibt sich ein Bild alle 0.167 fs und somit ein Verschiebung von etwa 6 Bildern. Um die  $z$ -Abhängigkeit des SPPs zu erhalten, wird wie in Kapitel 3.1 ein evaneszentes Feld  $E(z) \propto e^{-\gamma(\epsilon, k)z}$  abgeleitet, mit der Abklingkonstante  $\gamma$  aus Gleichung 3.3. Da das Feld in der Ebene hier zweidimensional ist, ergibt sich die fehlende flächennormale Komponente  $E_z$  nun aus

$$E_z = \frac{1}{\gamma} \left( \frac{\partial E_x}{\partial x} + \frac{\partial E_y}{\partial y} \right). \quad (4.5)$$

Abbildung 4.4 zeigt die experimentell bestimmten elektrischen Felder für zwei verschiedene Verzögerungszeiten. In 4.4a) ist ein Skyrmion-Gitter mit Skyrmionen, die aus der Ebene hinaus zeigen dargestellt. Das Gitter ist periodisch und es sind lediglich kleinere Abweichungen in Intensität und Richtung der Pfeile sichtbar. In 4.4b) ist ein Skyrmion-Gitter mit in die Ebene zeigenden Skyrmionen visualisiert. Dabei ist an der Verteilung der Vektoren zu erkennen, dass es sich um Skyrmionen vom Néel-Typ handelt. Wird die Vektorrotation als Schnitt durch das Skyrmion betrachtet, rotiert das Bloch-Skyrmion schraubenartig und das Néel-Skyrmion in radiale Richtung [154].

Mit dem nun vollständigen elektrischen Feld lässt sich auch das Magnetfeld über die Maxwell-Gleichungen, genauer über das Induktionsgesetz,

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (4.6)$$



**Abb. 4.5.:** In a) und b) ist das Magnetfeld des Skyrmion-Gitters zu zwei verschiedenen Zeitpunkten als Draufsicht dargestellt. Dabei ist zu sehen das in der halben optischen Periode gerade der Drehsinn innerhalb der Wirbel gedreht ist. In c) ist das zu a) gehörige elektrische Feld in Draufsicht. Der Kreis markiert jeweils ein Skyrmion im Magnetfeld a) und elektrischen Feld c). Abbildung nach [152]

bestimmen. In integraler Form entspricht die zeitliche Änderung des magnetischen Flusses innerhalb einer Fläche  $dA$  dem Linienintegral der elektrischen Feldstärke entlang des Flächenrandes  $\partial A$

$$\oint_{\partial A} \vec{E} \cdot d\vec{s} = - \int_A \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \cdot d\vec{A}. \quad (4.7)$$

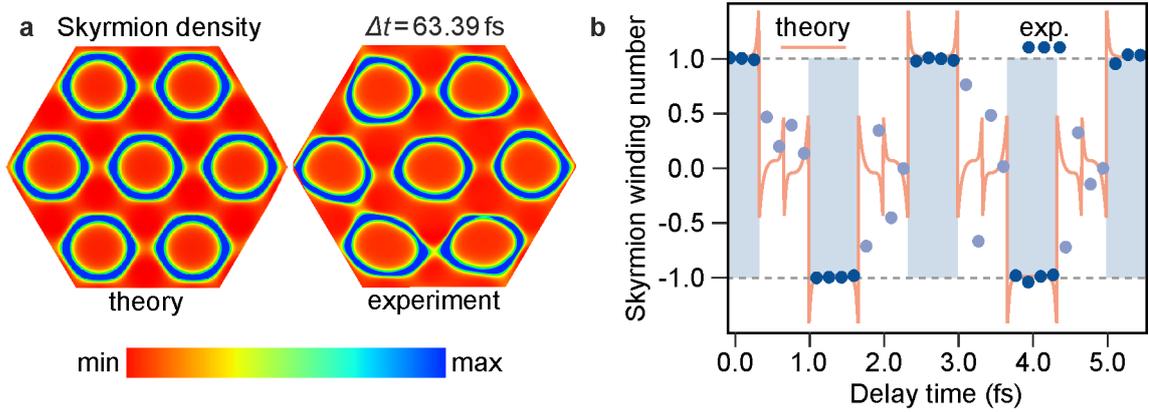
Demnach lässt sich das Magnetfeld bestimmen über

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{B}(\vec{r}, t_0) - \int_{t_0}^t \nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) dt, \quad (4.8)$$

wobei die Integralgrenzen  $t_0, t$  so gewählt werden, dass das elektrische Feld bei  $t_0 = 0$  beginnt und dann harmonisch oszilliert. Beim ebenen Wellenansatz ist diese Annahme gerechtfertigt und vereinfacht die Gleichung 4.8 zu

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{\omega} \nabla \times \vec{E}(\vec{r}) \sin(\omega t). \quad (4.9)$$

In Abbildung 4.5 ist das Magnetfeld zu zwei verschiedenen Zeitpunkten mit einem halben optischen Zyklus 1.33 fs Abstand in Draufsicht dargestellt. Zu erkennen sind Wirbel, wobei die Drehung der Wirbel zwischen Abbildung 4.5a und 4.5b) gerade den umgekehrten Drehsinn aufweisen. Wie in der Draufsicht auf das elektrische Feld 4.5c), welches dem



**Abb. 4.6.:** In a) ist die experimentell bestimmte und theoretische Skymion-Dichte dargestellt. Der Zeitpunkt der experimentellen Daten entspricht dem Feld aus Abbildung 4.4a). Die zeitliche Änderung im theoretischen Modell (rote Kurve) und in experimentellen Daten (blaue Punkte) der Skymion-Zahl oder Windungszahl ist in b) dargestellt. Die experimentell vertrauenswürdigen Bereiche wurden in einem hellblauen Ton farblich unterlegt. Datenpunkte, die aus Bildern mit sehr geringer Intensität extrahiert wurden und somit nicht in diesen Bereichen liegen wurden in einem helleren Farbton dargestellt. [152]

Zeitschritt aus a) entspricht, zu sehen ist, befinden sich die Wirbel im Magnetfeld auf den Skymionen im elektrischen Feld. Ein schwarzer Kreis markiert dabei die Lage des zentralen Skymions in beiden Feldern.

Das Skymion-Gitter hat neben den interessanten Feldkonfigurationen, die mittels der Vektor-Mikroskopie rekonstruiert werden können auch topologische Größen, die analysiert werden können. Dazu gehören die Skymion-Dichte und die Skymion-Zahl oder Windungszahl [155]. Die Skymion-Dichte wird bestimmt über

$$\mathcal{N}(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \vec{e} \cdot \left( \frac{\partial \vec{e}}{\partial x} \times \frac{\partial \vec{e}}{\partial y} \right), \quad (4.10)$$

wobei  $\vec{e}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r}, t)/E(\vec{r}, t)$  der Einheitsvektor des elektrischen Feldes ist. In Abbildung 4.6a) ist links die theoretische Skymion-Dichte und rechts die aus dem elektrischen Feld in Abbildung 4.4a) bestimmte Skymion-Dichte dargestellt. Die sieben hexagonalen Ringe sind gut zu erkennen und es sind kaum nennenswerten Deformationen zu erkennen, die auf experimentelle Abweichungen schließen lassen.

Die Windungszahl

$$\mathcal{W} = \int_S \mathcal{N} dA \quad (4.11)$$

entspricht dem Integral der Skyrmion-Dichte über die Oberfläche, in diesem Fall über die Einheitszelle  $A$ . Da hierfür eine Fläche definiert werden muss wurde die in 4.6a) gewählte hexagonale Zelle zur Auswertung herangezogen und durch die Anzahl der darin befindlichen Skyrmionen geteilt um die Darstellung in 4.6b) zu erhalten. Die daraus ermittelte Windungszahl gibt an, wie oft die Feldkonfiguration die gesamte Kugel umschließt [145]. Je nachdem, ob die Feldvektoren aus der Ebene hinaus oder in die Ebene zeigen, wird so für ein einzelnes Skyrmion eine Windungszahl von 1 oder -1 erwartet. Im Experiment wurde innerhalb der Einheitszelle, bei einer erwarteten theoretischen Windungszahl von  $\mathcal{W} = 7$ , eine Windungszahl von  $\mathcal{W} = 6.93$  bestimmt. In Abbildung 4.6b) ist die zeitliche Änderung der Windungszahl über zwei optische Zyklen dargestellt. Für die theoretische Kurve wurde ein Modell herangezogen, dass im Supplement von Davis *et al.* [152] erläutert wird. Die blauen Punkte, die den experimentellen Daten entsprechen, folgen dieser Kurve. In den Bereichen, wo das Skyrmion-Gitter vollständig ausgebildet ist, liegen die experimentellen Daten über die Dauer der Stabilität des Skyrmions bei der erwarteten Windungszahl von 1 bzw. -1. Die Zwischenbereiche sind schwierig zu interpretieren, da die Felder beim Vorzeichenwechsel sehr schwach werden und die Richtungen der Vektoren schon bei kleinsten Abweichungen bzw. Fehlern leicht zu beeinträchtigen sind. Aussagekräftig sind demnach nur die farblich unterlegten Vertrauens-Bereiche.

## 4.4. Technische Herausforderungen

Die ersten Experimente mit der neuen Methode der Vektor-Mikroskopie erwiesen sich als vielversprechend und es zeigt sich, dass es eine elegante Methode zur Bestimmung von elektromagnetischen Feldern an der Oberfläche ist. Wie bei jeder neuen Methode gibt es aber auch hier noch Optimierungsbedarf. Im Rahmen der Messung sind einige Komplikationen aufgetreten die auf konstruktive Eigenschaften des Vektor-Interferometers zurückzuführen sind. In diesem Kapitel soll darauf eingegangen werden, welche technischen Herausforderungen bestehen und welche Lösungsansätze dafür erdacht wurden.

Im vorherigen Kapitel 4.3 wurde bereits erwähnt, dass für die Filterung des gewünschten Signals, die Fourier-Methode, wie in Spektor *et al.* [118], sehr gute Resultate verspricht. Die Methode wurde auch auf die Skyrmion-Daten angewendet, aber konnte aufgrund der technischen Probleme ihr Potenzial nicht vollends ausschöpfen. Für die Analyse der Skyrmion-Daten wurde aus der Zeitserie der interessante Zeitbereich ausgeschnitten. Im Experiment ist das der Bereich, in dem das stehende Skyrmion-Gitter ausgebildet ist. Aus dieser Se-

quenz werden nun die Komponenten, die mit  $\omega$  oszillieren herausgefiltert. Dafür werden die Bilder in der Fourier-Transformation maskiert und zurück transformiert. Die Frequenzauflösung im Fourier-Raum skaliert mit dem Zeitbereich der gewählt wird. Prinzipiell müsste kein Zeitfenster gewählt werden, da das SPP über die ganze Zeitserie stets periodisch ist und somit wäre auch die Frequenzauflösung sehr gut. An dieser Stelle offenbart sich die Problematik von Jitter und Langzeitinstabilitäten des Interferometers. Dabei handelt es sich um zwei Zeitskalen die störende Effekte vorweisen. Der Jitter ist eine kurzzeitige Abweichung von der idealen gewählten Zeitverzögerung. Die Langzeitinstabilitäten sind eine über die ganze Messung aggregierte Gesamtabweichung vom Zielwert. Beide Probleme hängen mit der Bauweise des Vektor-Interferometers zusammen.

Im Vektor-Interferometer sind die Stabilisierung und der fs-Laser baulich voneinander getrennt. Dies war notwendig, da im fs-Teil die Polarisierungen in den einzelnen Interferometerarmen gedreht werden und die auf Polarisation beruhende Stabilisierung so nicht mehr funktionieren würde. Durch diese Bauweise wird zwar in beiden Teilen derselbe Weg zurückgelegt, jedoch werden dafür nicht dieselben Spiegel genutzt. Demnach werden nicht die Schwankungen der Spiegel im fs-Teil, sondern die im Stabilisierungsteil auskorrigiert. Die Schwankungen mögen sich jedoch durchaus unterscheiden, was zu dem Jitter führt. Die kleinen Wegunterschiede spiegeln sich direkt in einer Änderung der eingestellten Zeitverzögerung auf einer kurzen Zeitskala des Experimentes wieder. Über die Zeit kann es passieren, dass diese Unterschiede vorwiegend in eine Richtung korrigiert werden und so aggregieren sich die Abweichungen zu einem generellen Drift der Zeit, welcher der Langzeitinstabilität entspricht. Diese Effekte sorgen dafür, dass die gemessenen Datenpunkte nicht auf dem gewählten Zeitgitter liegen und führen dazu, dass die Fourier-Methode nicht über den ganzen Zeitbereich angewendet werden kann. Über einen kurzen Zeitbereich können Filter wie der Savitzky-Golay-Filter die Zeitserien soweit glätten, dass die Methode dennoch funktioniert.

Zufriedenstellend ist dies jedoch nicht und so bieten sich zwei Varianten an um diese Problematik zu beheben. Entweder wird die Verzögerung genau gemessen und die Daten werden im Nachgang auf ein entsprechend angepasstes Zeitgitter gesetzt oder die Stabilisierung wird verbessert. In der ersten Variante werden am ungenutzten Interferometerausgang die interferierenden Pulse monochromatisiert und ein Interferogramm der beiden verzögerten Pulse aufgenommen. Jeder Aufnahme im Mikroskop kann über die bestimmte Phase eine Verzögerungszeit der beiden Pulse zugeordnet werden. So kann der nichtlineare Piezomotor linear durchgeföhren werden und die Aufnahmen können im Nachgang Punk-

ten einem korrigiertem Zeitgitter zugeordnet werden [156–159]. In dieser Arbeit wurde der Ansatz der Neukonstruktion des Vektor-Interferometers samt Stabilisierung gewählt, der in Kapitel 5.3 beschrieben wird. Ein Vergleich zum verbesserten System wird in Kapitel 5.3.2 dargestellt.

Die Polarisationsabhängigkeit der Optiken manifestiert sich in zwei weiteren Problemen. Zum einen ist die Intensität für verschiedene Abfrage-Polarisationen unterschiedlich zum anderen ist die Nullpunktposition der Einhüllenden der Autokorrelation und die Phase der Autokorrelation abhängig von den gewählten Polarisationen.

Durch die individuelle Messung der Abfrage-Polarisation auf dem Polarimeter lässt sich die relative Intensität zwischen verschiedenen Polarisationen bestimmen und im Nachgang können die Daten entsprechend reskaliert werden. Es wäre auch eine absolute Messung mittels eines thermischen Leistungsmessgeräts vor dem Vakuumfenster möglich. Da aber nicht klar ist welcher Anteil des Strahls überhaupt zur Anregung beiträgt reicht die relative Messung.

Die polarisationsabhängige Nullpunktposition und Phase sorgen dafür, dass die Zeitgitter zwischen den Messungen nicht aufeinander liegen. Die eingestellte Zeitverzögerung entspricht bei der Vektor-Mikroskopie der des Stabilitäts-Teils, nicht der des fs-Teils. Für die Nullpunktposition und Phasenbestimmung musste ein für die Vektor-Mikroskopie neues, aber generell etabliertes Verfahren implementiert werden. Nun wurde zu jedem Zeitschritt eine spektrale Interferenz aufgenommen. Eine weitreichende Laborautomatisierung, die im Rahmen der Doktorarbeit von Pascal Dreher realisiert wurde, ermöglicht diese Weiterentwicklung zur Vektor-Polarimetrie (Kap. 5.4). In Kapitel 5.4.1 wird erläutert, wie Nullpunktposition und Phase direkt daraus ermittelt werden und somit aus den Stokes-Vektoren Jones-Vektoren werden.

## Rekonstruktion topologischer Felder

In diesem Kapitel geht es um die Extraktion von den topologischen Größen eines Merons und Meron-Paars. Wie diese erzeugt werden, ist in Kapitel 5.2 beschrieben. Im Unterschied zum Skymion-Gitter (Kap. 4) steckt die topologische Größe nicht direkt im elektrischen Feld sondern im Spin-Drehimpuls (engl. *spin angular momentum*, kurz: SAM). Die Effekte sind dabei deutlich empfindlicher und erfordern eine Erhöhung der Stabilität und Präzision des experimentellen Aufbaus im Vergleich zum vorherigen Kapitel. Um diese Präzision zu erreichen wurde das Konzept der Vektor-Mikroskopie zur Vektor-Polarimetrie erweitert. Damit verbunden ist eine Neukonstruktion des Vektor-Interferometers (Kap. 5.3) und ein neues Auswertprinzip (Kap. 5.4).

Zunächst werden jedoch grundlegende Konzepte zur Bestimmung topologischer Eigenschaften erläutert (Kap. 5.1). Diese werden für die Analyse der Eigenschaften von Meron und Meron-Paar benötigt. Das mittels Vektor-Polarimetrie bestimmte zeitabhängige elektrische Feld kann zunächst genutzt werden, um auch das Magnetfeld zu berechnen, um anschließend aus der Kombination beider Felder auch das SAM zu berechnen. Das SAM enthält bereits alle Informationen zur Topologie, die nur noch entsprechend aufbereitet werden müssen (Kap. 5.5). Bereiche mit SAM-Vektoren die parallel zur Ebene sind (L-Linien) und Punkte die lediglich eine SAM-Komponente  $S_z$  senkrecht zur Oberfläche haben (C-Punkte), sind dabei sofort im SAM zu erkennen. In der Analyse wird weiterhin zwischen 2D- und 3D-Eigenschaften unterschieden. So zeigt sich, dass es Punkte gibt, die zunächst wie C-Punkte wirken, da die SAM-Komponente in der Ebene ( $S_{\parallel} = 0$ ) ist, jedoch tatsächlich echte Nullstellen des Feldes sind  $|S| = 0$ . Diese Punkte sind sogenannte Amplituden-Vortizes und die Vektor-Polarimetrie ermöglicht es, diese eindeutig von C-Punkten zu unterscheiden. Eine gängige Größe zur Bestimmung der Topologie ist die

sogenannte Chern-Zahl. Da diese Größe durch ein Integral ins Unendliche über die Quasipartikeldichte experimentell schwer greifbar ist, wird zur Quantifizierung der Topologie eine lokale Betrachtung der Chern-Zahl vorgenommen.

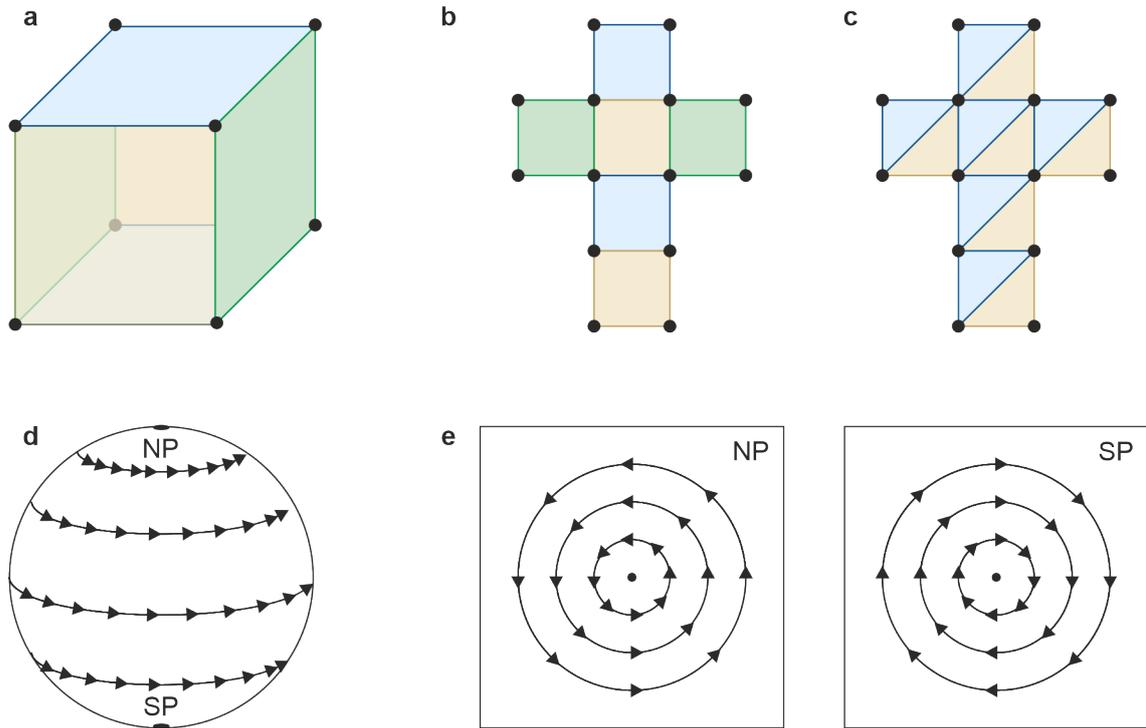
## 5.1. Bestimmung der lokalen Topologie

Die Euler-Poincaré-Charakteristik  $\chi$  ist eine topologische Invariante, die jede geschlossene Fläche einer topologischen Gruppe zuordnet. So sind zum Beispiel alle platonischen Körper mit  $\chi = 2$  in der Gruppe sphärischer Polyeder. Dabei ist die Idee, dass jeder Körper sich mit einem Netz aus Dreiecken überdecken lässt. Anschließend werden die Knoten  $V$  (engl. *vortices*), die Kanten  $E$  (engl. *edges*) und die Flächen  $F$  (engl. *faces*) gezählt und in die Formel

$$\chi = V - E + F \quad (5.1)$$

eingesetzt. In Abbildung 5.1a) ist der Würfel als einfaches Beispiel dargestellt. Dieser hat 6 Flächen, 12 Kanten und 8 Knoten. Dies ergibt  $\chi = 8 - 12 + 6 = 2$  und entspricht damit dem erwarteten Wert der 2-Sphäre  $S^2$ . Per Definition gilt die Formel 5.1 nur für in Dreiecke zerlegte Formen. Korrekterweise muss jedes Quadrat demnach in zwei Dreiecke zerlegt werden und es ergibt sich die Umrechnung  $\chi = 8 - 18 + 12 = 2$ , was ebenso der Erwartung entspricht. Wird der Würfel entfaltet, sprich die 2-Sphäre aufgebrochen, ändert sich die Topologie zu der einer Kreisscheibe  $S^1$ . In Form von Quadraten (Abb. 5.1b)) lässt sich die neu entstandene Fläche über 6 Flächen, 19 Kanten und 14 Knoten mit  $\chi = 14 - 19 + 6 = 1$  beschreiben oder in Dreiecken  $\chi = 12 - 25 + 14 = 1$  (Abb. 5.1c)). Dies entspricht dem Wert einer 2D-Fläche beziehungsweise einer Kreisscheibe.

Das SPP und damit auch alle resultierenden Felder sind an die Oberfläche gebunden und somit ist es auch sinnvoll die Topologie auf der 2D-Ebene zu betrachten. Wie oben gezeigt, lässt sich eine beliebig geartete Fläche in Dreiecke zerlegen und ist dennoch topologisch eine Kreisscheibe  $\chi = 1$ . Die grundlegende Topologie für eine Fläche ist somit festgelegt und alle topologischen Strukturen müssen dieser folgen. Das Poincaré-Hopf Theorem [23] verknüpft die rein geometrische Euler-Poincaré-Charakteristik mit dem analytischen Index von Vektorfeldern. Ein glattes Vektorfeld  $v$ , wie in (Abb. 5.1d)) dargestellt, besteht aus Tangentialvektoren auf einer Kugeloberfläche oder allgemeiner ist ein tangenciales Vektorfeld  $v \in \Gamma(TM)$  auf einer kompakten differenzierbaren Mannigfaltigkeit  $M$ , so kann dieses Vektorfeld nur endlich viele isolierte Nullstellen  $x \in v$  haben. Im Fall der dargestellten



**Abb. 5.1.:** Veranschaulichung topologischer Konzepte. Die der oberen Reihe a)-c) verdeutlicht Flächen, Kanten und Knoten für die Euler-Poincaré-Charakteristik. In a) ist ein Würfel in 3D, in b) ein entfalteter Würfel und in c) ein entfalteter Würfel in Dreiecke segmentiert dargestellt. Die unteren Bilder d) und e) veranschaulichen das Poincaré-Hopf-Theorem. In d) ist eine 2-Sphäre mit anliegendem Vektorfeld und in e) die 2D-Projektion des Nord- und Südpols dargestellt.

Kugel sind diese Nullstellen an den beiden Polen, was aber nicht zwingend der Fall sein muss. Nach Poincaré-Hopf entspricht die Euler-Poincaré-Charakteristik

$$\chi(M) = \sum_x \text{ind}(v, x) \quad (5.2)$$

der Summe über alle Indizes aller isolierten Nullstellen. In einer geschlossenen Umgebung  $U$  um eine isolierte Nullstelle mit einem Rand  $\partial U \rightarrow S^{n-1}$  und  $x \in \partial U$ , kann der Index definiert werden als  $\text{ind}(v(x)) = \text{deg} \left( \frac{v(x)}{|v(x)|} \right)$  wobei die Indizes dem Grad des Vektors in der Nähe dieser Punkte entsprechen. In Abbildung 5.1e) ist die Sicht auf die Nullstellen der Kugel gezeigt, wobei einmal von oben und einmal von unten auf die Kugel geschaut wird. Es sind zwei entgegengesetzt drehende Wirbel zu sehen, wobei für den Nordpol ein Index von  $\text{ind}_{\text{NP}} = 1$  resultiert. Da zur Betrachtung des Südpols die Perspektive umgekehrt

wurde (Blick Süd nach Nord), muss der entgegengesetzt rotierenden Wirbel  $\text{ind}_{\text{SP}} = -1$  ein weiteres negatives Vorzeichen bekommen. Für die Kugel mit zwei Nullstellen resultiert demnach nach dem Poincaré-Hopf-Theorem  $\chi = 1 - (-1) = 2$ , was der Euler-Poincaré-Charakteristik der 2-Sphäre  $S^2$  entspricht. Für die Auswertung in Kapitel 5.5 bedeutet dies, dass die Euler-Poincaré-Charakteristik in 2D mithilfe des Index bestimmt werden kann.

Auch in 3D gibt es einige fundamentale Größen die zur Beschreibung der Topologie genutzt werden können. Bereits 1987 beschrieben Nye *et al.* [43] strukturell stabile Eigenschaften des Feldes und nannten diese L-Linien und C-Punkte. In diesem Kapitel werden diese topologischen Begrifflichkeiten nähergebracht und gezeigt, wie es über eine an Fösel *et al.* [150] angelehnte Methode gelingt die lokale Topologie zu untersuchen.

Fösel *et al.* betrachten elektromagnetische Felder an der Oberfläche und beschreiben die Orientierung des Feldes in der Ebene an jedem Punkt durch Polarisationsellipsen. Somit lässt sich jedem Punkt auf der Fläche ein Punkt auf der Poincaré-Sphäre zuordnen (vgl. Kap. 3.2 Abb. 3.4). Eine Linie, die sich als Kette von linearen Polarisierungen ergibt, wird als L-Linie bezeichnet. Dabei handelt es sich um eine Trajektorie auf der Poincaré-Sphäre, die den Äquator nicht verlässt, sich darauf aber hin und her bewegen darf und diesen beliebig oft umkreisen kann. Jeder volle Umlauf hat jedoch topologisch gesehen eine Bedeutung, die im Laufe dieses Kapitels noch näher erläutert wird. Die L-Linie trennt elliptische Polarisierungen mit verschiedenem Drehsinn bzw. verschiedener Händigkeit. Dabei entsprechen die Pole der Poincaré-Sphäre voller zirkularer Polarisierung. Die Pole werden deshalb auch als C-Punkte bezeichnet. Der Nordpol ist rechts zirkular, der Südpol links zirkular.

Sowohl L-Linien als auch C-Punkte sind topologisch robust. Kleine Änderungen im Polarisationsfeld sorgen lediglich für eine Deformierung (L-Linien) oder Bewegung (L-Linien, C-Punkte). Die Deformation der L-Linien kann dabei gut mit einem Gummiband verglichen werden. Topologisch begründbar ist die Robustheit, indem die Poincaré-Sphäre herangezogen wird. Um von der Nord- auf die Südhalbkugel zu gelangen, muss der Äquator und demnach die L-Linie passiert werden und dabei ändert sich die Händigkeit der Polarisierung. L-Linien sind jedoch nicht topologisch invariant, da sie verschmelzen oder sich auftrennen können, aus einem Punkt entstehen oder sich zu einem Punkt zusammenziehen können. C-Punkte hingegen sind topologisch geschützt und können nur paarweise entstehen oder sich auslöschen. Diese Paare müssen dafür dieselbe Händigkeit beziehungsweise zirkulare Polarisierung aufweisen.

Die Topologie des Merons und des Meron-Paars ist jedoch anders als beim Skyrmion-Gitter nicht im elektrischen Feld zu finden. Somit kann die Darstellung mit Polarisationsfeld und der Poincaré-Sphäre nicht direkt herangezogen werden. Das SAM  $\vec{S} = (S_x, S_y, S_z)$  ist jedoch eine vektorielle Größe, die sich auch auf eine Kugel abbilden lässt (Kap. 4.1 Abb. 4.1). Hierbei wird die  $S_z$ -Komponente, die aus der Ebene zeigt, von den Komponenten  $S_x, S_y$  in der Ebene entkoppelt. Eine reine  $S_z$ -Komponente entspricht dem Nord- bzw. Südpol  $S_z = \pm 1$  der SAM-Kugel. Ein SAM-Vektor, der in der Ebene liegt, ist auf dem Äquator der SAM-Kugel. Analog zu Fösel *et al.* werden diese nun auch als C-Punkte ( $S_z = \pm 1$ ) und als L-Linien ( $S_z = 0, \sqrt{S_x^2 + S_y^2} = 1$ ) bezeichnet.

Wie bereits erwähnt muss für einen Vorzeichenwechsel der C-Punkte die L-Linie passiert werden. Daraus lässt sich jedoch auch schließen, dass Bereiche mit derselben Polarität  $P$  und demnach demselben Vorzeichen der  $S_z$ -Komponente stets von einer L-Linie umschlossen werden. Die Polarität ist somit eine entscheidende topologische Größe. Die Polarität ist positiv, wenn der Vektor aus der Ebene hinaus zeigt  $P = 1/2$  und negativ, wenn der Vektor in die Ebene zeigt  $P = -1/2$ . Der Vorfaktor  $1/2$  ergibt sich aus der Rechnung [132] und ist ein konstanter Wert, sodass die Polarität stets  $P = \pm 1/2$  ist.

Die andere wichtige Größe bezieht sich darauf, wie sich die Vektoren um den C-Punkt anordnen. Diese Größe entspricht dem zuvor eingeführtem Index und wird auch Windung oder Vortizität  $V$  genannt und bestimmt zusammen mit der Polarität ob es sich um ein Meron oder Anti-Meron handelt. Die Abbildung 5.2a) veranschaulicht zunächst wie ein Vortex/Anti-Vortex Meron/Anti-Meron aussieht [160–163]. Wird ein Vortex und ein Anti-Vortex im mathematisch positiven Drehsinn auseinandergefaltet, ergibt sich das in Abbildung 5.2b) dargestellte Profil. Drehen sich die Vektoren nach Entfaltung im mathematisch positiven Sinn handelt es sich um einen Vortex mit einem Index  $V = 1$ . Dies entspricht jeweils der linken Seite von Meron/Anti-Meron in Abbildung 5.2a). Drehen sich die Vektoren im mathematisch negativen Sinn, sprich im Uhrzeigersinn, handelt es sich um einen Anti-Vortex mit einem Index  $V = -1$ , wie jeweils auf der rechten Seite von Meron/Anti-Meron in Abbildung 5.2a) dargestellt. Die Ränder der Entfaltung sind dabei periodisch.

Wie in Abbildung 5.3 dargestellt, kann ein Meron-Vortex dabei verschiedene Formen annehmen die topologisch gesehen identisch sind. In der Abbildung sind exemplarisch vier Situationen dargestellt, die sehr unterschiedlich aussehen. Mal zeigen alle Pfeile zum C-Punkt, mal von ihm weg und mal umkreisen sie diesen. Für die verschiedenen Situationen wurden jedoch lediglich alle Vektoren an ihrer Position um den gleichen Winkel  $\pi/2$  ge-



dreht, was einer Phase entspricht, die dazu addiert wird. Eine zusätzliche Phase ändert somit zwar maßgeblich das Erscheinungsbild, jedoch ändert sich die Windung nicht und somit ändern sich durch eine Phase auch die topologischen Eigenschaften nicht. Nagaosa *et al.* [37] beschreiben die gesamte Helizität  $\Gamma(\theta) = V\theta + \gamma$ , wobei  $\gamma$  die Phase ist und  $\theta$  der Azimut-Winkel.

Wie bereits in Kapitel 4.1 erwähnt wurde, kann eine quantitative topologische Größe auch Chern-Zahl  $C$  genannt, bestimmt werden, um die Topologie zu beschreiben [132, 147, 150]. Eine allgemeingültige Formel für die Chern-Zahl

$$C = \int_A n(A) dA \quad (5.3)$$

kann über die Quasipartikeldichte  $n$  bestimmt werden.

$$n(A) = \frac{1}{4\pi} \hat{\mathbf{S}} \cdot \left( \partial_x \hat{\mathbf{S}} \times \partial_y \hat{\mathbf{S}} \right), \quad (5.4)$$

wobei  $\hat{\mathbf{S}}$  der SAM-Einheitsvektor ist. Da hier bis ins Unendliche integriert werden muss, ist diese Größe experimentell schwer greifbar. Es ist jedoch möglich eine lokale Chern-Zahl über Integration eines sinnvollen Bereichs zu extrahieren.

Für isolierte sphärische Quasipartikel [132] kann aus Polarität  $P$  und Index/Vortizität  $V$  die Chern-Zahl  $C$  über die relativ einfache Formel

$$C = P \cdot V \quad (5.5)$$

bestimmt werden. Die Chern-Zahl gibt Auskunft, ob es sich nun um ein Meron (positiv  $C = 0.5$ ) oder Anti-Meron (negativ ist  $C = -0.5$ ) handelt. In dieser Variante können einfach isolierte sphärische C-Punkte gezählt werden, um die topologische Zahl zu ermitteln. Dabei ist behilflich, dass sich jede geschlossene Kurve durch Deformation in einen Kreis überführen lässt und diese Regel deshalb auch auf eher unförmig wirkende geschlossene Bereiche anwendbar ist. Neben den C-Punkten gibt es auch sogenannte Amplituden-Vortizes. Diese sind in 2D nicht von C-Punkten zu unterscheiden. Sowohl C-Punkte als auch Amplituden-Vortizes sind Nullstellen im Feld in der Ebene  $S_{\parallel} = 0$ . In 3D äußern sich Amplituden-Vortizes als echte Nullstellen und haben somit mit  $S_x = S_y = S_z = 0$  keine Amplitude  $S_0$ , während C-Punkte mit  $S_0 = S_z \neq 0$  eine Komponente senkrecht zur Oberfläche haben. Daher ist es wichtig die C-Punkte zunächst eindeutig zu identifizieren, bevor diese gezählt werden.

Laut Fösel kann die Chern-Zahl auch über die L-Linien ermittelt werden, indem entlang einer L-Linie integriert wird [150]. Fösel betrachtet in der Polarisationsdarstellung, wie sich die lineare Polarisation durch Entfaltung der L-Linie dreht. Die Drehrichtung der linearen Polarisation gibt dabei das Vorzeichen der daraus ermittelten Chern-Zahl an, die Anzahl der Drehungen ergibt die topologische Ladung. Dabei gilt zu beachten, dass Polarisierungen nur bis auf  $\pi$  definiert sind.

Analog wird in die Analyse die Vortizität des Spinvektorfeldes innerhalb eines isolierten L-Bereichs durch das Integral der Änderung der Orientierung des Spins in der Ebene

$$\Phi(\theta) = \arctan\left(\frac{S_y(\theta)}{S_x(\theta)}\right) \quad (5.6)$$

mit dem Polarwinkel  $\theta$  entlang einer L-Linie über die Formel

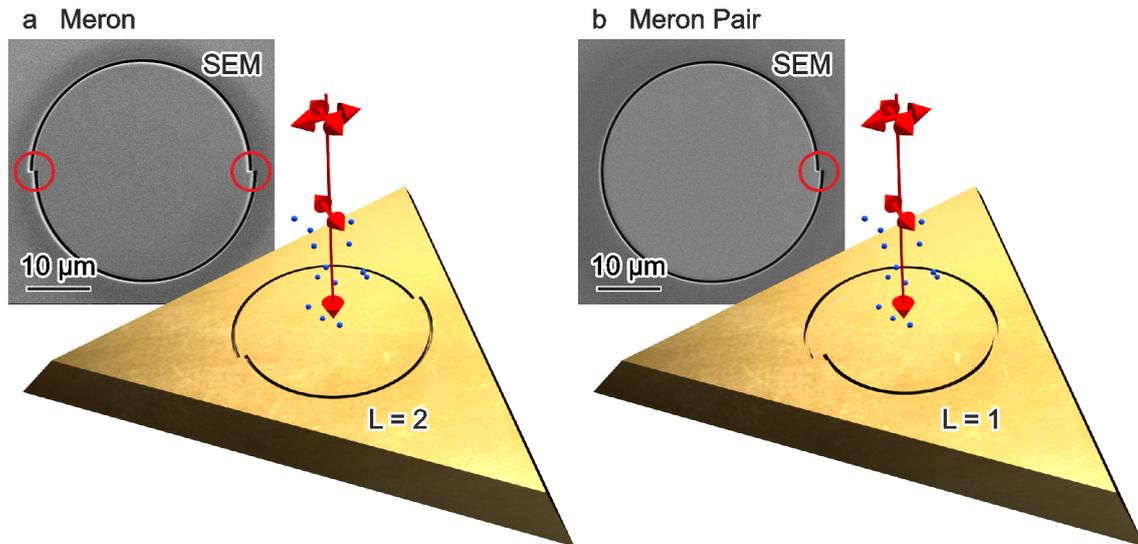
$$V = \frac{1}{2\pi} \oint_0^{2\pi} \frac{\partial\Phi(\theta)}{\partial\theta} d\theta \quad (5.7)$$

bestimmt. Diese Variante eignet sich, um die lokale Topologie in Fällen zu ermitteln, bei denen die C-Punkte nicht isoliert sind.

## 5.2. Probendesign Meron und Meron-Paar

In diesem Kapitel wird beschrieben, wie ein Meron und ein Meron-Paar erzeugt werden und welche Strukturen dafür notwendig sind.

Zur Erzeugung von einem Meron oder Meron-Paar können archimedische Spiralen verwendet werden. Wie in Kapitel 2.4.4 beschrieben, erzeugt eine archimedische Spirale bei zirkularer Anregung Besselmoden. Wobei die Ordnung der Besselmode davon abhängig ist wie die Polarisation der Anregung  $S$  im Bezug auf das vorliegende OAM der Spiralstruktur  $L$  ist. Dai *et al.* [46] zeigten bereits, dass an einer archimedischen Spirale mit  $L = 2$  ein Meron angeregt werden kann, wenn für die Anregung linear polarisiertes Licht verwendet wird. Das Meron-Paar wiederum lässt sich erzeugen, indem eine  $L = 1$  Spirale mit linear polarisiertem Licht angeregt wird. Abbildung 5.4a) zeigt eine 3D-Darstellung des Prozesses der  $L = 2$  Meron-Struktur und ein SEM-Bild einer Struktur die so ähnlich auch für die Experimente genutzt wurde. Dabei sind in den SEM-Bildern die Lücken mit einem Abstand von  $\lambda_{\text{SPP}}$  durch rote Kreise hervorgehoben. Das zur  $L = 1$  Meron-Paar-Struktur gehörige Bild ist in Abbildung 5.4b) dargestellt.



**Abb. 5.4.:** Schematische Darstellung eines Gold Platelets mit einer Anrege-Struktur und den dazu gehörigen Rasterelektronenmikroskop-Abbildungen. In a) ist eine  $L = 2$  Anrege-Struktur für das Meron und in b) eine  $L = 1$  Struktur für das Meron-Paar dargestellt.

Lineare Polarisierungen können als Überlagerung von links und rechts zirkularer Polarisation betrachtet werden. Demnach würde für die Anregung an der  $L = 1$  Spirale des Meron-Paars eine  $J_0$ - und eine  $J_2$ -Mode überlagert werden und beim Meron  $L = 2$  eine  $J_1$ - und eine  $J_3$ -Mode. Bei der Visualisierung in einem Anrege-Abfrage-Experiment muss jedoch auch die Art der Abfrage berücksichtigt werden [126]. So zeigten Davis *et al.*, dass bei entgegengesetzt zirkular polarisierten Anrege- und Abfrage-Pulsen die Helizität  $S = \pm 1$  keine Rolle spielt, bei gleich polarisierten Pulsen hingegen schon. Wichtiger noch bei einer linearen Abfrage fragt der Abfrage-Puls genau die in diese Richtung zeigende Komponente des Vektorfeldes ab, was der Grundidee der Vektor-Mikroskopie entspricht.

Um Artefakte an den Diskontinuitäten/Lücken zu vermeiden wird wie in Abbildung 5.4 die Anregung orthogonal zu diesen gewählt. Dass die Anregungsrichtung frei wählbar ist, lässt sich anhand des Schemas in Abbildung 2.18 in Kapitel 2.4.4 leicht nachvollziehen. Wird bei einer  $L = 1$  Spirale eine entgegengesetzte zirkulare Anregung  $S = -1$  gewählt, ergibt sich mit  $J = L + S = 0$  die Bessel-Nullmode mit ihren konzentrischen Kreisen. Die Bessel-Nullmode  $J_0$  mit ihren konzentrischen Kreisen kann nur entstehen, wenn alle Phasenfronten rund um die Spirale gleichzeitig die Mitte erreichen. Dies ist nur möglich, wenn an jeder Stelle der Spirale, gegenüberliegende Koppler stets dieselbe Phasenbeziehung haben [67, 80].

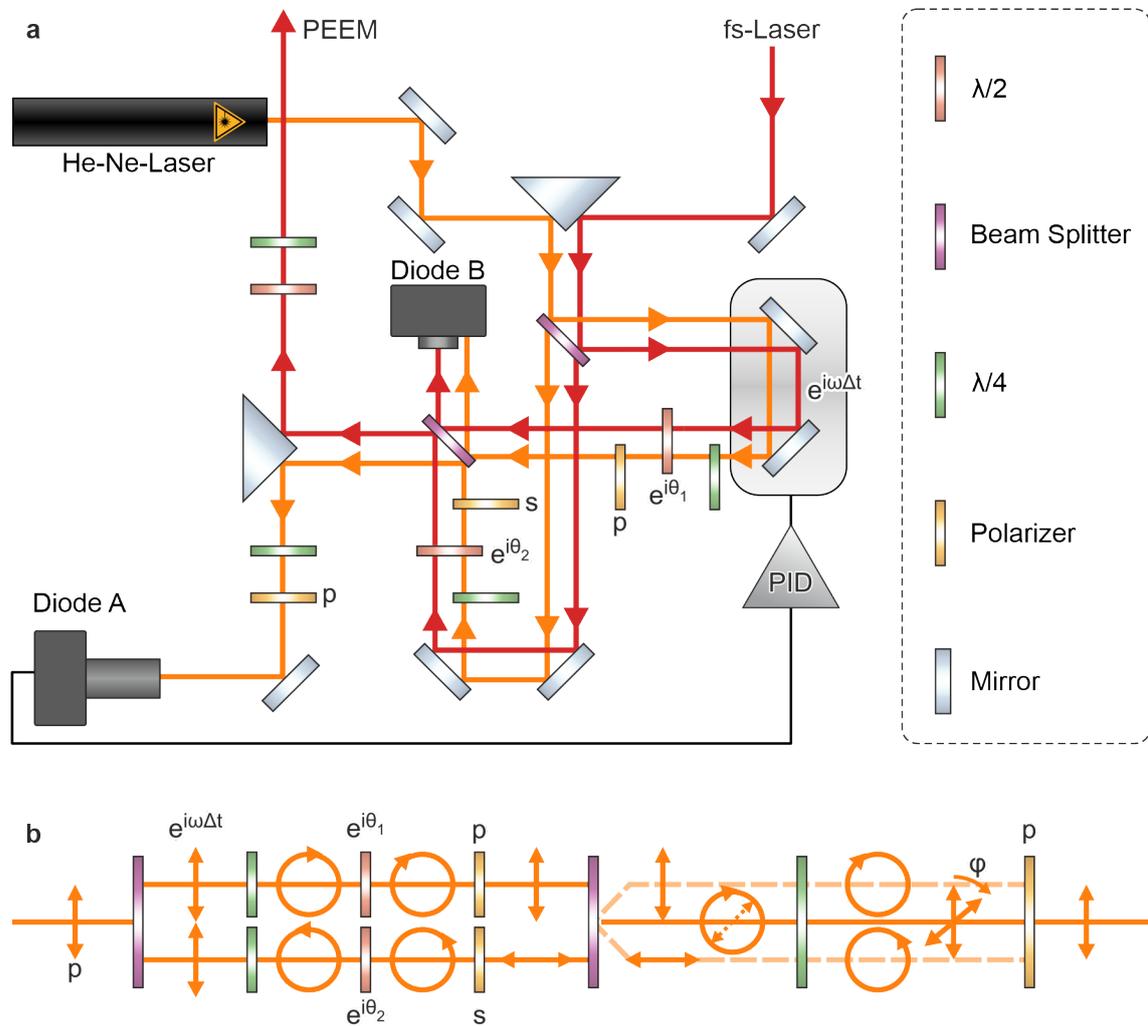
Die theoretischen Daten, die im weiteren Verlauf noch gezeigt werden, basieren auf einer analytischen Formel, die Besselmoden überlagert. Als Basis dafür wurden die Publikationen von Davis *et al.* [126] und Du *et al.* [164] herangezogen. Sowohl das Meron als auch das Meron-Paar entstehen durch die lineare Anregung von archimedischen Spiralen und sind somit eine Überlagerung der von links ( $s = 1$ ) und rechts ( $s = -1$ ) zirkular polarisierten Licht. Wird die Helizität  $s$  in die Felder der Besselfunktionen  $E_{l+s}$  eingetragen, ergibt sich für lineare Polarisation  $E_{l+1} + E_{l-1}$ . Durch Einsetzen und Vereinfachen ergibt sich die Form

$$\vec{E} = e^{il\phi} (-i)^l e^{-k_z z} \begin{pmatrix} ik_z k_r (e^{i\phi} J'_{l+1} - e^{-i\phi} J'_{l-1}) \\ \frac{k_z}{k_r} ((l+1)e^{i\phi} J_{l+1} - (l-1)e^{-i\phi} J_{l-1}) \\ -ik_r^2 (e^{i\phi} J_{l+1} - e^{-i\phi} J_{l-1}) \end{pmatrix} \quad (5.8)$$

Für die Übersicht wird hier nur die kompakte Variante dargestellt. Durch Ausnutzen der Besseleigenschaften wäre auch eine Zerlegung in einen statischen, sowie einen links und rechtsdrehenden Anteil möglich, welcher jedoch in einer sehr umfangreichen Formel resultiert, die an dieser Stelle keinen Mehrwert hat. Die Formel 5.8 kann nun simuliert werden und bildet so die erwarteten Ergebnisse ab. Die aus der Formel berechneten Simulationen werden in Kapitel 5.5 als Theorie dargestellt und sind besonders nützlich um die grundlegenden Konzepte in der Topologie zu verstehen.

### 5.3. Vektor-Interferometer für die Vektor-Polarimetrie

In der in Kapitel 3.3 beschriebenen ersten Version des Vektor-Interferometers kam es zu den in Kapitel 4.4 beschriebenen Problemen. Daher wurde für die Vektor-Polarimetrie das Interferometer und auch die Analyse (Kap. 5.4) von Grund auf neu entwickelt. Dabei wurden die wesentlichen Probleme behoben oder mindestens maßgeblich reduziert. In den folgenden Kapiteln wird zunächst die Funktion des verbesserten Interferometers erläutert (Kap. 5.3.1) und anschließend ein Vergleich der Stabilität beider Interferometer durchgeführt (Kap. 5.3.2).



**Abb. 5.5.:** Schematische Darstellung des Vektor-Interferometers für die Polarimetrie. In a) ist der Strahlengang für den He-Ne-Stabilisierungslaser (gelb) und den fs-Laser (rot) dargestellt. Beide Strahlen werden parallel durch das Interferometer geführt. Im He-Ne-Strahlengang wurden  $\lambda/4$ -Wellenplatten und p- bzw. s-polarisierte Polarisatoren ergänzt. In b) ist der Verlauf des He-Ne-Lasers durch das Interferometer als gerade gezogene Darstellung mit Polarisierungen für konstant bleibende Amplituden dargestellt. Etwaige Phasenänderungen sind an den Bauteilen markiert.

### 5.3.1. Verbessertes Vektor-Interferometer

Das gravierendste Problem des Interferometers in Kapitel 3.3 ist dessen Stabilität. Eine Stabilisierung ist nur dann wirklich effizient, wenn der zu stabilisierende Laser und die Stabilisierung dieselben Optiken passieren. Wie in Kapitel 4.4 beschrieben, ist zentral, dass die für die Vektor-Mikroskopie essentielle zusätzliche Wellenplatte die Phasenbeziehung der Polarisierungen des Stabilisierungsteils nicht zerstört. Für die Wegener-Stabilisierung [85] müssen die Polarisierungen des Stabilisierungslasers in den beiden Interferometerarmen orthogonal zueinander stehen. Ursprünglich waren diese linear polarisiert. Je nach Stellung der Vektor-Wellenplatten variieren die einzelnen Polarisierungen jedoch, sodass die Beziehung der Polarisierungen in den beiden Interferometerarmen nicht mehr fixiert ist. Da die Vektor-Wellenplatte baulich unumgänglich ist wurde der Ansatz gewählt, die Polarisierungen des Stabilisierungslasers für die beiden Interferometerarme links und rechts zirkular zu wählen. Abbildung 5.5a) zeigt schematisch den veränderten Aufbau.

Zunächst werden die Strahlengänge über einen prismenförmigen Spiegel zusammengeführt. Die Spiegel sind sowohl auf Prismenhaltern montiert, um jegliche Neigung einstellen zu können und somit Winkel und Position fein nachstellen zu können als auch auf einem x-y-Verschiebetisch, um den Abstand der Strahlen und den Auftreffpunkt zu justieren. Die Strahlteiler (violett) teilen die Strahlen des He-Ne-Lasers (gelb) und des fs-Lasers (rot) in einen transmittierten und einen reflektierten Anteil, die in die beiden unterschiedlichen Interferometerarme münden. Einer der Interferometerarme verfügt über eine geregelte Piezobühne um die Verzögerungszeit einzustellen. In jedem der Interferometerarme passieren die fs-Laserpulse eine frei einstellbare  $\lambda/2$ -Wellenplatte (rot). Die beiden Teilstrahlen werden anschließend über einen weiteren Strahlteiler wieder zusammengeführt und über einen weiteren prismenförmigen Spiegel von der Stabilisierung getrennt. Der wieder zusammengeführte fs-Laserstrahl besteht aus zwei zeitverzögerten Pulsen, deren Polarisation nach Passieren einer weiteren gemeinsamen  $\lambda/2$ -Platte und  $\lambda/4$ -Platte der gewünschten Polarisation am PEEM entspricht.

Die neu konzipierte Stabilisierung ist in Abbildung 5.5b) als linearisierte Form vom Interferometer mit den dazu gehörigen Polarisierungen dargestellt. Zur vereinfachten Anschauung gilt hier die Annahme, dass die Amplitude stets konstant bleibt. Da eine Drehung der linearen Polarisation des He-Ne-Lasers durch die gemeinsame  $\lambda/2$ -Wellenplatte die Stabilisierung stört, passiert der Stabilisierungslaser zunächst eine  $\lambda/4$ -Wellenplatte (grün) mit festem Winkel. Der zuvor lineare He-Ne-Laser ist nun links- bzw. rechts zirkular po-

larisiert. Beim Passieren der  $\lambda/2$ -Vektor-Wellenplatte (rot) ändert sich beim He-Ne-Laser demnach nur die Phase der zirkularen Polarisation. Würden nun die beiden Teilstrahlen der Interferometerarme überlagert bliebe die Stabilisierung trotz gemeinsamer  $\lambda/2$ -Vektor-Wellenplatte intakt. Aufgrund von Imperfektionen der Wellenplatten und des nachfolgenden Strahlteilers sind die Polarisationen des He-Ne-Lasers beim Zusammenführen leicht elliptisch polarisiert und die Überlagerung ist nicht mehr linear. Deshalb wurden für den He-Ne-Laser noch P- und S-polarisierende Polarisatoren (gelb) im Interferometerarm ergänzt, die aus den nahezu zirkularen Polarisationen des He-Ne-Lasers wieder die senkrechte (S) und parallele (P) Komponente ausschneiden. Da sowohl die  $\lambda/4$ -Wellenplatten als auch die Polarisatoren fixiert und nicht drehbar sind, ist es auch baulich möglich, dass sie nur den jeweiligen He-Ne-Zweig beeinflussen. Bei zirkularer Polarisation ist stets ein Anteil des Lichtes in Richtung des Polarisators polarisiert, wodurch verhindert wird, dass die Stabilisierung aufgrund einer zu schwachen Intensität in einem Arm nicht funktioniert. Das Ausschneiden des linearen Anteils macht die Stabilisierung zuverlässiger und stabiler.

In Abbildung 5.5b) wird der Verlauf nach dem Zusammenführen am Strahlteiler durch drei Linien verdeutlicht. Auf den gestrichelten Linien ist dargestellt, wie die nicht überlagerten Einzelpolarisationen mit den nachfolgenden optischen Komponenten interagieren. Die durchgezogene Linie ist die Überlagerung der beiden Polarisationen, wie ein Polarimeter sie messen würde. Dabei gilt zu beachten, dass sich die Phase in beiden Interferometerarmen geändert hat. Im Arm mit Piezobühne ist es eine Phase durch die zusätzliche Wegstrecke und dem damit einher gehenden Zeitverschub  $\omega\Delta t$  und die aufgeprägte Phase  $\theta_1$  durch die  $\lambda/2$ -Wellenplatte. Im festen Arm ohne Bühne ist es lediglich die aufgeprägte Phase  $\theta_2$  durch die andere  $\lambda/2$ -Wellenplatte. Abhängig vom Phasenunterschied  $\phi$  ist die Überlagerung von einer horizontalen und einer vertikalen Polarisation hinter dem Strahlteiler entweder  $45^\circ$ - bzw.  $135^\circ$ -linear, elliptisch oder zirkular. Wie im ursprünglichen Interferometer (Kap. 3.3) werden die Einzel-Polarisationen mit einer  $\lambda/4$ -Wellenplatte (grün) wieder zu links und rechts zirkular polarisierten Licht umgewandelt, sodass die Überlagerung wieder linear ist. Die Orientierung der linearen Polarisation ist nun vom Phasenunterschied  $\phi$  abhängig. Ein drehbarer Polarisator wird genutzt, um auf die Flanke des Signals zu stabilisieren, indem ein PID aktiv die Piezobühne nachgeregelt.

Im Experiment ändert sich die Amplitude an verschiedenen Stellen des Interferometers, sodass das Grundkonzept zwar bestehen bleibt, punktuell jedoch auch andere Polarisationen möglich sind. Eine Beschreibung dieser Zusammenhänge ist kompliziert und übersteigt den Rahmen, in dem diese Konzepte in dieser Arbeit beschrieben werden sollen.

Wichtig ist es auch darauf zu achten, den richtigen Interferometerausgang zu wählen. Es wird der Ausgang gewählt, welcher für jeden Interferometerarm an den beiden Strahlteilern je einmal reflektiert und einmal transmittiert wird. Der zweite Ausgang mit Diode B überlagert einen Interferometerarm der an beiden Strahlteilern jeweils transmittiert wird, mit einem der an beiden Strahlteilern jeweils reflektiert wird und wird zur Überwachung genutzt. Jener zweite Ausgang kann jedoch nicht zur Analyse genutzt werden, da aufgrund der Beschichtung der Strahlteiler die Phasenbeziehungen und der Nullpunkt verschoben sind und durch die unterschiedliche Menge an Glas zusätzlich Chirp aufgeprägt ist.

### 5.3.2. Stabilität der Vektor-Interferometer

In dem ursprünglichen Vektor-Interferometer in Kapitel 3.3 gab es baulich bedingte Einschränkungen. In Kapitel 4.4 wurde vor allem die zeitliche Stabilität in Form von Jitter und Langzeitdrift bemängelt. In diesem Kapitel wird anhand eines einfachen Experiments ein quantitativer Vergleich zwischen den Interferometern vorgestellt. Dabei wird überprüft wie stabil die Interferometer im statischen Fall sind, also zu einer festgelegten Verzögerungszeit.

Im PEEM wird das Signal stets zeitlich integriert gemessen. Die niedrigste einstellbare Belichtungszeit mit dem F216-Detektor liegt bei 200 ms. Die gemessenen Daten sind demnach über diesen Zeitraum integriert. Zur Überprüfung der Interferometer-Stabilität wurde nun in einem Anrege-Abfrage-Experiment beobachtet, ob ein zeitlicher Jitter vorhanden ist, also ob sich ein SPP bei einer festen Verzögerungszeit über mehrere hundert Bilder mit 200 ms Belichtungszeit bewegt. Ist der Jitter in diesem Zeitraum zu stark, also in der Größenordnung einer halben Periode, wären die Aufnahmen verschwommen und es wären keine Messungen möglich. Für die Analyse wurde ein Linearkoppler verwendet und eine Verzögerungszeit eingestellt, bei der das SPP örtlich vom Koppler getrennt ist. Um zeitliche und örtliche Bildbewegungen auseinander halten zu können, wurden die Datensätze in einem Fall auf den Koppler und im anderen Fall auf ein in der Nähe liegendes Partikel driftkorrigiert. Damit ist der Koppler-SPP-Abstand für die gewählte Verzögerungszeit im Bild fixiert. Jegliche Änderung in der Position des SPPs muss mit einer Änderung der Verzögerungszeit im Interferometer einhergehen. Um diese zu ermitteln, muss die gemessene örtliche Verschiebung in eine Verzögerungszeit umgerechnet werden.

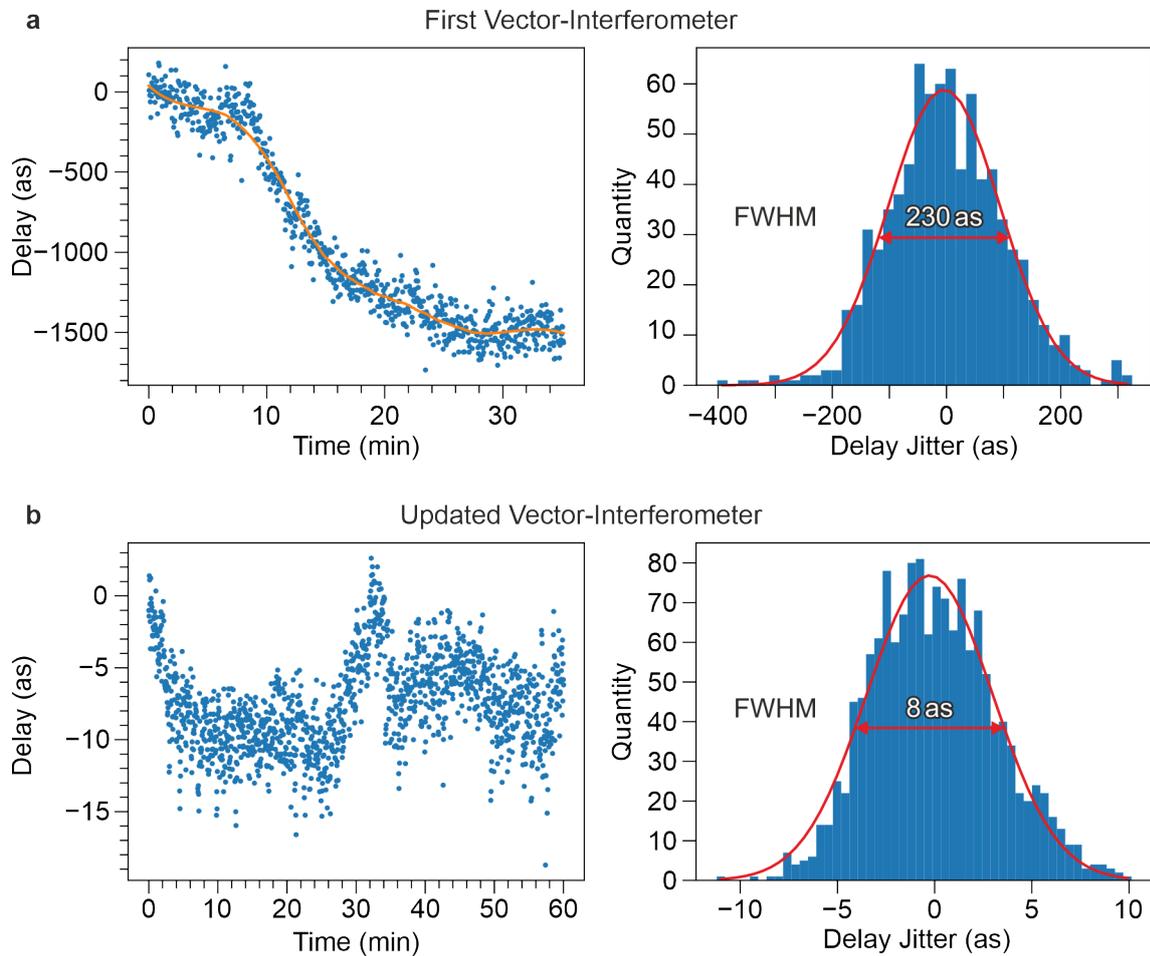
Da das SPP die Form eines Ebenen Wellenpaketes hat, kann die  $1k$ -Komponente durch eine Ringmaske in der zweidimensionalen örtlichen Fourier-Transformation extrahiert werden. Die  $1k$ -Komponente beinhaltet die Information des propagierenden SPPs und durch das Maskieren und Rücktransformieren können alle nicht der Periode entsprechenden statischen Signale herausgefiltert werden. Da die Richtung des propagierenden SPPs bekannt ist und im  $k$ -Raum sehr exakt bestimmt werden kann, kann im Realraum ein Linienschnitt in Propagationsrichtung des SPPs extrahiert werden. Die Bewegungen der Wellenfronten können so phasensensitiv bestimmt werden. Der Puls wird nun über

$$A \cdot \exp\left(-\frac{(x - p_{x0})^2}{\sigma_p^2}\right) \cdot \sin(ax + 3\phi) \quad (5.9)$$

angefittet. Insgesamt beschreibt die Exponentialfunktion die Gaußsche Einhüllende des Pulses mit der Amplitude des Pulses  $A$ , dem Erwartungswert  $p_{x0}$  und der Varianz  $\sigma_p$ . Der Sinus beschreibt die Oszillation darunter mit der Oszillationsfrequenz  $a$  und der Phase des Pulses  $\phi$ . Der Vorfaktor 3 vor dem  $\phi$  wurde gewählt, weil so der Fitparameter besser konvergiert. Anschließend wurde die Phase wieder um den Vorfaktor korrigiert.

Abbildung 5.6 zeigt, wie sich die Phase über die Zeit ändert und welche Halbwertsbreiten sich für das erste Vektor-Interferometer aus Kapitel 3.3 in Abbildung 5.6a) und das nun verbesserte Interferometer aus Kapitel 5.3.1 in Abbildung 5.6b) ergeben. In a) ist neben dem Jitter ein Langzeitdrift zu erkennen, welcher sich durch einen Gesamttrend äußert. Über einen Salvitzi-Golay Filter in dritter Ordnung wurden die Daten in einem Fenster mit 301 Datenpunkten geglättet. Die geglättete Kurve (orange) entspricht diesem Langzeitdrift des Systems, welcher ungefähr bei 1.5 fs liegt und damit größer ist als die halbe Oszillationsperiode des SPPs  $T_{\text{SPP}}/2 = 1.33\text{fs}$ . Wird der Langzeitdrift von den Datenpunkten (blau) abgezogen, bleibt der Jitter. Die Verteilung des Jitters ist in einem Histogramm aufgetragen, aus dem die Halbwertsbreite (FWHM = 230 as) resultiert. Es wurde aber auch häufiger beobachtet, dass das Interferometer um ganze Wellenzahlen gesprungen ist. Solche Sprünge machen ganze Messungen unbrauchbar.

Das verbesserte Interferometer in Abbildung 5.6b) zeigt keinen eindeutigen Langzeitdrift, sodass hier kein Abzug erfolgt. Das den Jitter repräsentierende Histogramm wird so direkt aus den Datenpunkten bestimmt. Hier ergibt sich mit einer Halbwertsbreite von FWHM = 8 as nicht nur eine um den Faktor 29 bessere Stabilität, sondern eine Stabilität die Interferometern gleicht, deren Basis nicht zusammengesetzt, sondern aus einem Stück Metall gefräst wurden [87].



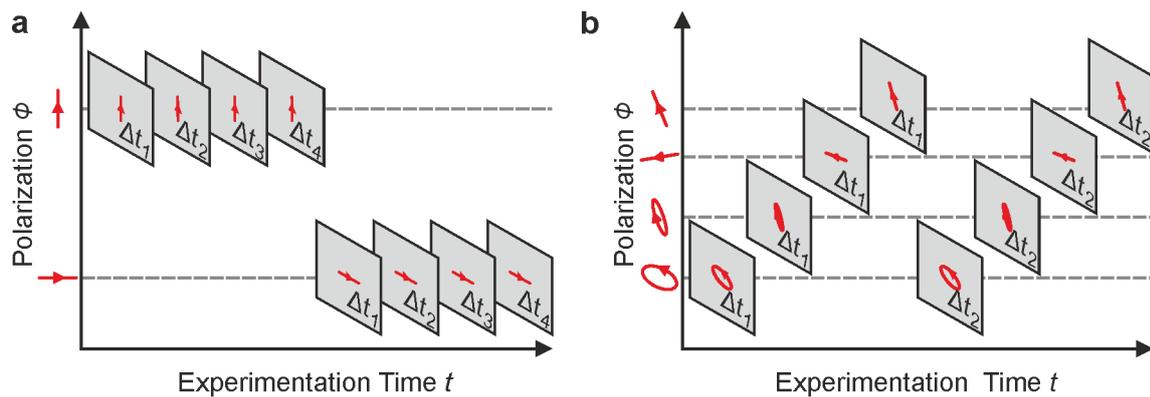
**Abb. 5.6.:** Vergleich der Stabilität der Interferometer. In a) ist das erste Vektor-Interferometer und in b) das verbesserte Vektor-Polarimetrie-Interferometer dargestellt. Die Datenpunkte links zeigen eine aus der Phase bestimmte Zeitverzögerung aufgetragen über die Bildnummer. Die orangene Linie in a) zeigt den abgezogenen Drift. Rechts sind die Jitter-Histogramme (für a) mit korrigiertem Drift) zu den Daten mit entsprechenden Halbwertsbreiten dargestellt.

Die hier ermittelte Stabilität entspricht einer statischen Halttestabilität. Um die Performanz des Interferometers einzuschätzen ist jedoch auch wichtig welche Präzision, also Wiederholungsgenauigkeit und Positioniergenauigkeit das Interferometer beim Anfahren einer gewählten Verzögerungszeit hat. Eine Wiederholungsgenauigkeit kann nicht bestimmt werden, da in dieser Interferometer-Variante bei jedem Neustart der zeitliche Überlapp der Pulse neu bestimmt werden muss. Die Positioniergenauigkeit ist prinzipiell stark abhängig von der täglichen Justage, jedoch bidirektional sehr ähnlich. Dabei fließen die Phasenunterschiede und Amplitudenverhältnisse der Pulse, deren exakter Überlapp und mögliche Probleme mit dem rotierenden Polarisationsfilter und einige andere Faktoren mit ein.

## 5.4. Analyse der Vektor-Polarimetrie

Da nun die zeitliche Stabilität für das Vektor-Interferometer gegeben ist, kann mit der Vektor-Polarimetrie gemessen werden. In der Vektor-Polarimetrie wurde die Grundidee der Vektor-Mikroskopie erweitert. So wird statt mit orthogonalen Polarisierungen, wie in Kapitel 4, ein Set beliebiger Polarisierungen gewählt. Diese Umstellung war notwendig, da es sich als schwierig erwies, Sets zu finden, für die bei vorgegebener Anregung zwei exakt orthogonale Abfrage-Polarisierungen zu finden sind. Es zeigt sich, dass eine spezifische Polarisation für die Anregung durch unterschiedliche Winkel-Kombinationen an den Wellenplatten erreicht werden kann. Das heißt, die gleiche Polarisation tritt bei unterschiedlichen Plattenwinkel-Kombinationen auf. Dies wurde ausgenutzt um für die gleiche aber nicht selbe Anregung ein Set an Wellenplatten-Winkeln zu finden bei denen die Abfrage-Polarisierungen orthogonal waren. Die unterschiedlichen Winkel-Kombinationen führten jedoch zu unterschiedlichen Intensitäten in den Anregungen und damit zu Problemen in der Rekonstruktion.

In der Polarimetrie wird das Problem der unterschiedlichen Intensitäten in der Anregung umgangen. Zu einer perfekt gewählten Anregung wird eine beliebige Anzahl  $N$  ( $N > 2$ ) unterschiedlicher Polarisierungen gewählt, für die lediglich die Wellenplatte im für die Abfrage verantwortlichen Interferometerarm gedreht wird. Die Anregung bleibt somit komplett unverändert. Wie in Abbildung 5.7b) dargestellt wurden im Experiment vier Abfrage-Polarisierungen genutzt. Damit liegt grundsätzlich überbestimmte Information für ein orthogonales Koordinatensystem vor. Die Idee ist es, so Fehler oder Ungeauigkeiten in der Rekonstruktion zu vermindern. Die Fehler skaliert dabei mit der Wurzel der Anzahl an Polarisierungen  $\sqrt{N}$ .



**Abb. 5.7.:** Schematische Darstellung des Messablaufs. Vor der Automatisierung a) wurde je eine Zeitreihe pro Abfrage-Polarisation gemessen. Nach der Automatisierung b) werden zu jedem Zeitschritt zunächst alle Polarisationen gemessen, bevor der nächste Zeitschritt aufgenommen wird.

Die während der Messung konstant gehaltene Anregungspolarisation birgt jedoch ein Problem. Da nun lediglich eine Wellenplatte in einem Interferometerarm gedreht wird ändert sich die Autokorrelation der beiden Interferometerarme. Durch die Drehung der Wellenplatte ändern sich der Zeitnullpunkt der Einhüllenden und die Phase der Autokorrelation. Die Phaseninformation ist kritisch bei der Kombination der verschiedenen Polarisationsserien für die Feldrekonstruktion. Es reichen demnach nicht aus lediglich Azimut und Elliptizität bzw. die Stokes-Vektoren zu kennen. Demnach muss zusätzlich für jede Polarisation die Phase zwischen Anrege- und Abfrage-Puls bestimmt werden. Das Messen der absoluten Phase von Polarisationen ist nicht möglich. Dies ist jedoch auch nicht notwendig, da sich alles außer der relativen Phase zwischen den verschiedenen Anrege-Abfrage-Kombinationen im Rahmen des Messprozesses rauskürzt. Näheres zur Bestimmung der Phasen ist in Kapitel 5.4.2 beschrieben.

In Abbildung 5.7 wird noch einmal dargestellt, wie sich auch der Messprozess der Vektor-Polarimetrie im Vergleich zur Vektor-Mikroskopie geändert hat und welchen Vorteil dies hat. In der ersten Version der Vektor-Messungen (Abb. 5.7a)) wurden zu einer festgelegten Anrege-Polarisation, zwei orthogonale Abfrage-Polarisationen gewählt (hier vertikal und horizontal), wobei erst eine Zeitreihe zur einen Abfrage-Polarisation und dann zur anderen Abfrage-Polarisation gemessen wurde. Diese Art und Weise erschwert die Auswertung jedoch enorm. Zum einen, wie bereits beschrieben, wurden zwei möglichst perfekte Sets an Plattenwinkeln gesucht, sodass sowohl Anregung als auch Abfrage die gewünschten Polarisationen besitzen. Um möglichst perfekt orthogonale Abfragen zu erreichen wurden

alle Wellenplatten verändert, auch die der Anregung. Damit ist zwar gewährleistet, dass Polarisierungen von Anregung und Abfrage möglichst perfekt sind, jedoch ändert sich dadurch auch die Leistung der Abfrage und kritischer auch die der Anregung. Die SPPs haben demnach nicht dieselben Ausgangsbedingungen für die Rekonstruktion. Zum anderen mussten die experimentellen Bedingungen auf der Probe möglichst konstant gehalten werden. Die Probe wird für die Messung mit Caesium bedampft um die Austrittsarbeit zu senken. Dabei ist das Signal des Elektronenmikroskops stark abhängig von der Bedeckung. Diese Bedeckung ändert sich im Zeitraum der Messung (mehrere Stunden) jedoch durchaus und zusätzlich binden sich Rückstände (vermutlich organische) aus dem Vakuum physisch am Caesium. Dadurch steigt die Austrittsarbeit wieder und das Signal bricht ein. Zwischen den Messungen muss demnach entweder neues Caesium aufgedampft werden oder die Rückstände müssen durch Erwärmen der Probe von der Oberfläche gelöst werden. Beim Zusammenführen der beiden Messreihen sind diese Intensitätsunterschiede schwierig auszugleichen und können dazu führen, dass ganze Messungen nicht verwertbar sind.

Hier kam der Vektor-Mikroskopie eine weitreichende Laborautomatisierung zugute, die M.Sc. Pascal Dreher im Zuge seiner Doktorarbeit etablierte. Mithilfe der Automatisierung ist es nun möglich, während der Aufnahme der Zeitreihe zu jeder Verzögerungszeit zunächst alle Polarisierungen aufzunehmen (Abb. 5.7b)). Damit ist sichergestellt, dass es innerhalb eines Zeitschritts zwischen den unterschiedlichen Abfrage-Polarisationen keine durch die Cs-Bedeckung bedingten Intensitätsunterschiede gibt. Ein generelles Abflachen der Intensität über die Serie hinweg ist nicht zu verhindern, jedoch auch nicht kritisch. Zur Bestimmung des Zeitnullpunktes und der Phasenbeziehung zwischen den Polarisierungen wird für jede Polarisation die dazu gehörige spektrale Interferenz zwischen Anrege- und Abfragepuls aufgenommen. Dies geschieht, indem in jedem Zeitschritt und zu jeder Polarisation ein motorisierter Spiegel in den Hauptstrahlengang gefahren wird, der in einen Analyseweig mit Spektrometer führt. Durch die Automatisierung ist es nun möglich, diese Abfolge in der Messung mittels einer in der Gruppe implementierten Python-basierten Messsoftware vollautomatisch durchzuführen. Die Daten werden anschließend im HDF5 Datenformat gesammelt und gespeichert.

Die Analyse dieses ergiebigen Datensatzes und die Rekonstruktion der Felder wird in den folgenden Kapiteln ausführlich erläutert. In der Analyse wird zunächst jeder Datensatz örtlich driftkorrigiert und anschließend die Datensätze zueinander (Kap. 5.4.1). Im nächsten Schritt werden die Daten durch zusätzliche Informationen aus der spektralen Interferenz auf ein neues gemeinsames Zeitgitter interpoliert (Kap. 5.4.2). Die Datensätze

der unterschiedlichen Polarisierungen überlappen nun zeitlich und örtlich. Wie bereits in den vergangenen Auswertungen (Kap. 3 und 4) wird schließlich das dynamische Signal mittels einer Filterung in der örtlichen und zeitlichen Fourier-Transformation extrahiert (Kap. 5.4.3). Anschließend muss lediglich die Bilddrehung des PEEMs ausgeglichen werden. So kann aus den vier Datensätzen, durch die Kenntnis der Polarisierung sowie der relativen Phase, mittels Matrixinversion das elektrische Feld rekonstruiert und daraus das magnetische Feld bestimmt werden (Kap. 5.4.5). Erst mit den Feldern ist auch zu sehen, ob die Messung erfolgreich war. Umso wichtiger ist es, dass die Datenakquise zuverlässig funktioniert. Die Feldinformationen werden weiter verwendet um zunächst das SAM zu berechnen und anschließend die topologischen Eigenschaften der verwendeten Strukturen zu analysieren (Kap. 5.5).

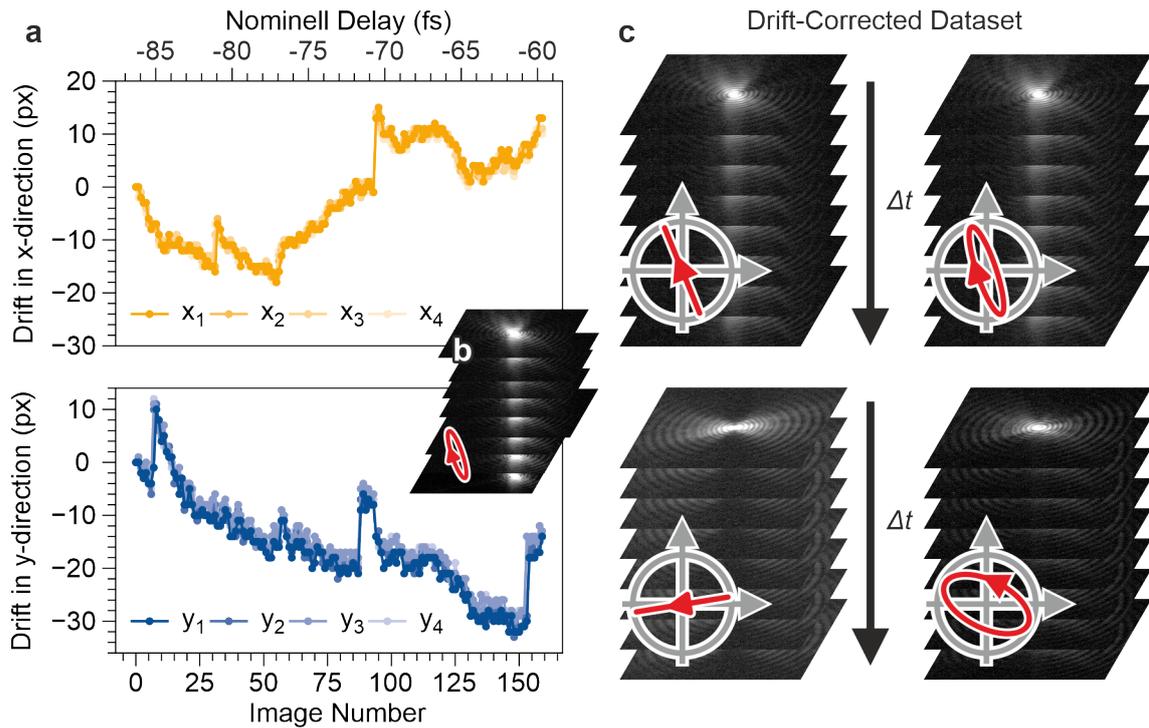
### 5.4.1. Vorbereitung der experimentellen Daten für die Analyse

Viele störende Effekte sorgen dafür, dass in den einzelnen Rohdatensätzen nur sehr wenig vom dynamischen SPP-Signal zu erkennen ist. Erst nach umfangreicher Datenbearbeitung können Informationen über die Felder extrahiert werden. In diesem Kapitel wird zunächst auf die Driftkorrektur eingegangen, die den ersten Schritt in der Analyse darstellt.

Nach dem Experiment liegen hunderte Bilder zu vier gewählten Polarisierungen und die dazu gehörigen Metadaten in einem HDF5-Datenformat vor. Dieses Format ist für die Auswertung von großem Nutzen, da hier Operationen entlang beliebiger Größen durchgeführt werden können und so nicht der ganze Datensatz mehrfach in den Arbeitsspeicher des verwendeten Computers passen muss.

Wie im vorherigen Kapitel 5.4 beschrieben, werden zu jedem Zeitschritt alle vier Polarisierungen und die dazugehörigen Spektren aufgenommen. Dies führt dazu, dass der Laser zeitweilig nicht auf der Probe ist oder die Intensität sich ändert und die Probe deshalb thermisch driftet. Obwohl es sich dabei oft nur um wenige Pixel handelt, ist es für die Vektor-Polarimetrie essenziell diesen Drift nachzukorrigieren. Bereits einige Pixel Abweichung können dazu führen, dass die Rekonstruktion am Ende misslingt.

Die Phasen-Kreuzkorrelations-Autokorrelation in Abbildung 5.8 zeigt die Driftkorrektur schematisch. Im ersten rot hinterlegten Kasten sind die aufgenommenen Zeitreihen in ihren Polarisierungen als Bilderstapel zusammengefasst. Innerhalb der Pakete ist erkennbar, dass die Strukturen entlang der Zeitverzögerungsachse  $\Delta t$  nicht übereinander liegen. Die



**Abb. 5.8.:** Darstellung der Driftkorrektur in x- und y-Richtung für vier Polarisationen. In a) ist die echte Verschiebung in x (gelb) und y (blau) über die Bildnummer oder die nominelle Verzögerungszeit aufgetragen. Die verschiedenen Polarisationen sind in Farb-abstufungen hinterlegt. Der Einschub b) zeigt übertrieben wie die Daten innerhalb eines Datensets zueinander verschoben sind. In c) sind die Sets örtlich ausgerichtet.

Originaldaten wurden für die Darstellung in der Abbildung bewusst übertrieben verschoben, da die echte Verschiebung von wenigen zehn Pixeln in einem  $2048 \times 2048$  Pixel Bild nicht zu erkennen wäre.

Um die Zeitreihen in sich und zu den Zeitreihen der anderen Polarisierungen auszurichten muss ein markantes und möglichst ortstabiles Merkmal im Bild sein. Bei den Zeitreihen handelt es sich jedoch um sich ständig ändernde Muster. Die sonst störende Plasmoemission (Kap. 2.4.2) ist hier von Nutzen, sodass für jede gewählte Polarisation die x-y-Abweichung in der Zeitreihe mit einer Phasen-Kreuzkorrelations-Autokorrelation bestimmt werden kann. In anderen Vektor-Polarimetrie-Messungen (Quasikristalle Kap.6) gab es keine so starke Plasmoemission und es musste mit Masken gearbeitet werden um die teils komplizierte Dynamik im Zentrum zu maskieren. Dabei ist stets darauf zu achten, dass die Phasen-Kreuzkorrelations-Autokorrelation nicht Maske mit Maske korreliert und die Daten so unkorrigiert bleiben. Es wurde für diesen Fall eine Kreis-Maske gewählt dessen Ränder kosinusartig ausgeschmiert wurden. Der Inhalt der Maske wurde durch zufälliges Rauschen ersetzt, das dem mittleren Rauschen des Bildes entsprach. Für die topologischen Strukturen in diesem Kapitel konnte auf die Maske verzichtet werden.

Die echte Pixel-Verschiebung ist im mittleren Teil von Abbildung 5.8 dargestellt, wobei die Verschiebung in x-Richtung in gelb und die in y-Richtung in blau über die Bildnummer bzw. die nominelle Verzögerungszeit aufgetragen ist. Die Polarisierungen sind dabei in unterschiedlichen Helligkeitsabstufungen der entsprechenden Farbe hinter die erste Polarisation hinterlegt. Die einzelnen Bilder innerhalb der Reihe werden nun entsprechend der Werte aus der Phasen-Kreuzkorrelations-Autokorrelation verschoben, sodass die Muster im Ort übereinstimmen (Einschub im mittleren Teil der Abbildung). Durch den Verschub sind die äußersten Pixel der Bilder unbrauchbar, was jedoch nicht störend ist, da der interessante Bereich nur einen kleinen Teil um das Zentrum umfasst und im Nachgang entsprechend zugeschnitten wird.

Häufig zeigt sich ein linearer Drift entlang einer spezifischen x-y-Richtung (hier: entlang der negativen x- und negativen y-Richtung im dritten Quadranten). In Abbildung 5.8a) sind auch ein paar Sprünge um mehrere Pixel zu erkennen, die sich im Rahmen der Analyse als echt erwiesen haben.

Nachdem die Zeitserien pro Polarisation in sich driftkorrigiert sind, müssen sie noch zueinander korrigiert werden. Für die unterschiedlichen Polarisierungen unterscheidet sich auch die Plasmoemission erheblich, jedoch ist die Intensität um das gleiche Zentrum verteilt. Die Serien können demnach zueinander ausgerichtet werden, indem je das erste Bild

der vier Polarisationsserien durch eine Faltung mit einem Gauß stark ausgeschmiert wird und dann die Phasen-Kreuzkorrelations-Autokorrelation auf diese vier Bilder angewandt wird.

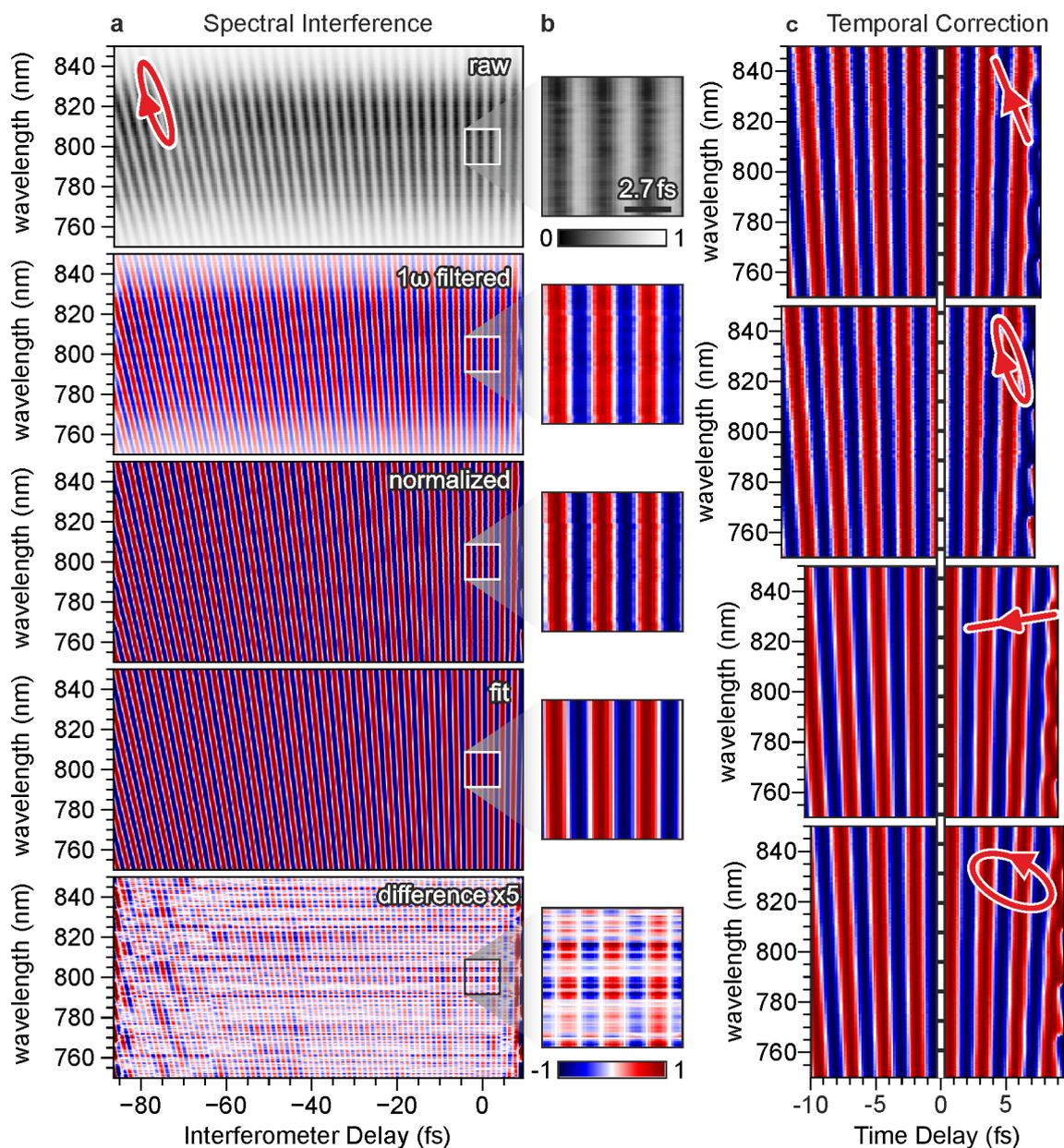
### 5.4.2. Bestimmung der Phase für den Jones-Vektor

Im nächsten Schritt müssen die nun örtlich überlappenden Zeitreihen auch auf das gleiche zeitliche Raster gebracht werden. Zu jedem Zeitschritt und zu jeder Polarisation werden die Laserpulse durch automatisches Einschieben des Spiegels in den Analysearm gelenkt. Dort befindet sich ein Spektrometer, das die spektrale Interferenz misst. Um einen größeren Datensatz zu haben, der den Zeitnullpunkt beinhaltet und den späteren Fit vereinfacht, werden über die Vektor-Polarimetrie-Messserie hinaus weitere spektrale Interferenzen aufgenommen. Die Zeitreihen zu jeder Polarisation werden zwar bei derselben nominellen Verzögerungszeit aufgenommen, jedoch führt eine Änderung der Polarisation in einem Interferometerarm zu einer Änderung des Nullpunkts und der Phase in der Autokorrelation. Somit sind die Serien zeitlich zueinander verschoben. Zur Bestimmung des echten Nullpunktes  $t_0$  und der Phase  $\phi$  für jede Polarisation werden zunächst spektrale Interferenzen

$$S(\omega, \Delta t) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt \left( \vec{E}_1(t) + \vec{E}_2(t - \Delta t) \right) \exp^{-i\omega t} \right|^2 \quad (5.10)$$

durch Anregung  $\vec{E}_1$  und Abfrage  $\vec{E}_2$  entstehenden Wellen aufgenommen. In Abbildung 5.9a) ist die spektrale Interferenz zu einer Polarisation in verschiedenen Analysedarstellungen gezeigt. Um die Effekte der verschiedenen Prozessierungsschritte zu verdeutlichen sind, die in a) markierten weißen Kästchen in Abbildung 5.9b) vergrößert dargestellt. In der obersten Darstellung in Abbildung 5.9a) sind die Rohdaten dargestellt. Aufgetragen ist die Wellenlänge über die nominell eingestellte Zeitverschiebung der Pulse im Interferometer. Da die Periodendauer  $T$  proportional zur Wellenlänge  $\lambda$  ist, kommt es bei dieser Darstellung zu einem charakteristischen Verhalten. Am Zeitnullpunkt liegen alle Wellenlängen übereinander, was sich als vertikaler Streifen äußert. Die Streifen entsprechen der konstruktiven und destruktiven Interferenz der Pulse und kippen immer stärker desto weiter sie vom Zeitnullpunkt entfernt sind.

Um sicherzustellen, dass lediglich das dynamische Signal betrachtet wird, dass die Autokorrelation der Pulse beinhaltet, werden die Rohdaten auf die  $1/\omega$ -Komponente gefiltert. Um durch die Fensterfunktion entstehende Filterartefakte zu vermeiden, wird der maskierte Bereich mit kosinusartigen Rändern ausgeschmiert. Die Daten sind nun in einer blau



**Abb. 5.9.:** Analyse der spektralen Interferenz. In a) wird die Verarbeitung der aufgenommenen spektralen Interferenz (*raw*) gezeigt. Zunächst werden die Daten in  $1\omega$  gefiltert (*1 $\omega$  filtered*) und anschließend zeilenweise normiert (*normalized*) um das Spektrum rauszuteilen. An die normierten Daten wird zeilenweise ein Kosinus-Fit durchgeführt (*fit*) und anschließend wird der Fit von den normierten Daten abgezogen. Die Farbskala der Differenz ist auf  $\pm 20\%$  reskaliert (*difference  $\times 5$* ). In b) wird jeweils das angezeigte Kästchen aus a) vergrößert dargestellt, um die Effekte genauer zu sehen. In c) sind die normierten Daten zu allen Polarisierungen dargestellt, die entsprechend ihres Zeit-Versatzes zueinander verschoben wurden, sodass sie einen gemeinsamen Zeitnullpunkt haben.

(negativ) zu rot (positiv) Skala dargestellt. Zu erkennen ist, dass die Farben um die Zentralwellenlänge des Lasers intensiver sind als an den Rändern. Dies ist durch die spektrale Intensitätsverteilung im Puls gegeben.

Eine Normalisierung vereinheitlicht die Darstellung und vereinfacht so auch den Fit. Der Zeitnullpunkt  $t_0$  und die Phase  $\phi$  werden für jede Wellenlänge durch das Fitten einer Kosinusfunktion

$$\cos(2\pi \cdot f(\Delta t - \Delta t_0) - \phi) \quad (5.11)$$

ermittelt. Daraus ergibt sich ein überbestimmtes System, da Zeitnullpunkt und Phase globale Parameter sind. Mithilfe einer Merit-Funktion werden die Parameter global angepasst. Um dabei nicht in lokale Minima zu geraten, wird die Merit-Funktion in eine differentielle Evolution eingebunden. Zur Überprüfung, ob der Fit gelungen ist wird das Residuum, aus Daten und der numerischen Anpassung bestimmt. In Abbildung 5.9a) ist die Darstellung in *difference* so skaliert, dass die intensivsten Farben eine Abweichung von  $\pm 20\%$  bedeuten (Verstärkung um Faktor 5). Misslungene Fits würden sich durch hohe Residuumswerte mit sehr intensiven Streifen äußern. Ausgenommen der Ränder, die Artefakte durchs Filtern zeigen, war der Fit erfolgreich.

Beim Verfolgen eines Streifens wird oft ein Vorzeichenwechsel beobachtet. So äußern sich die Nichtlinearitäten des Interferometers. Dazu gehört vorrangig die Präzision des Motors, der den Polarisator zur Bestimmung der Zeitverschiebung steuert und damit auch die generelle Präzision der eingestellten Zeitverzögerung  $\Delta t$  zwischen den Pulsen. Der Erwartung nach müssten alle Streifen perfekt gerade sein. Es ist jedoch eine gewisse Welligkeit zu erkennen, die gerade zum Rand hin immer deutlicher wird. Diese Welligkeit entspricht einer Überlagerung der periodischen Modulationen mit halber Periode des Motors und Vielfachen davon. In den dargestellten Daten ist die Welligkeit nicht sehr groß, in anderen Datensätzen musste dies jedoch gegenkorrigiert werden. In extremen Fällen kann es sich hier um Abweichungen von 200 as handeln, was dem Wert der Zeitverzögerungsschritten im Experiment 167 as ( $T/20$ ) entspricht.

Für jede Kombination aus unterschiedlichen Polarisierungen im Anrege- und Abfrage-Puls ergibt sich eine zur nominellen Zeitverschiebung verschobene Lage des Zeitnullpunkts. In Abbildung 5.9c) sind die vier verwendeten Abfrage-Polarisationen so zueinander verschoben, dass der gemeinsame echte Nullpunkt übereinander liegt. Dieser wird mit der

weiß gestrichelten Linie angedeutet. Dabei ist zu erkennen, dass der Zeitnullpunkt für jede Polarisation an einer anderen Stelle der in rot-blau dargestellten Oszillation liegt. Diese Verschiebung entspricht der Phase.

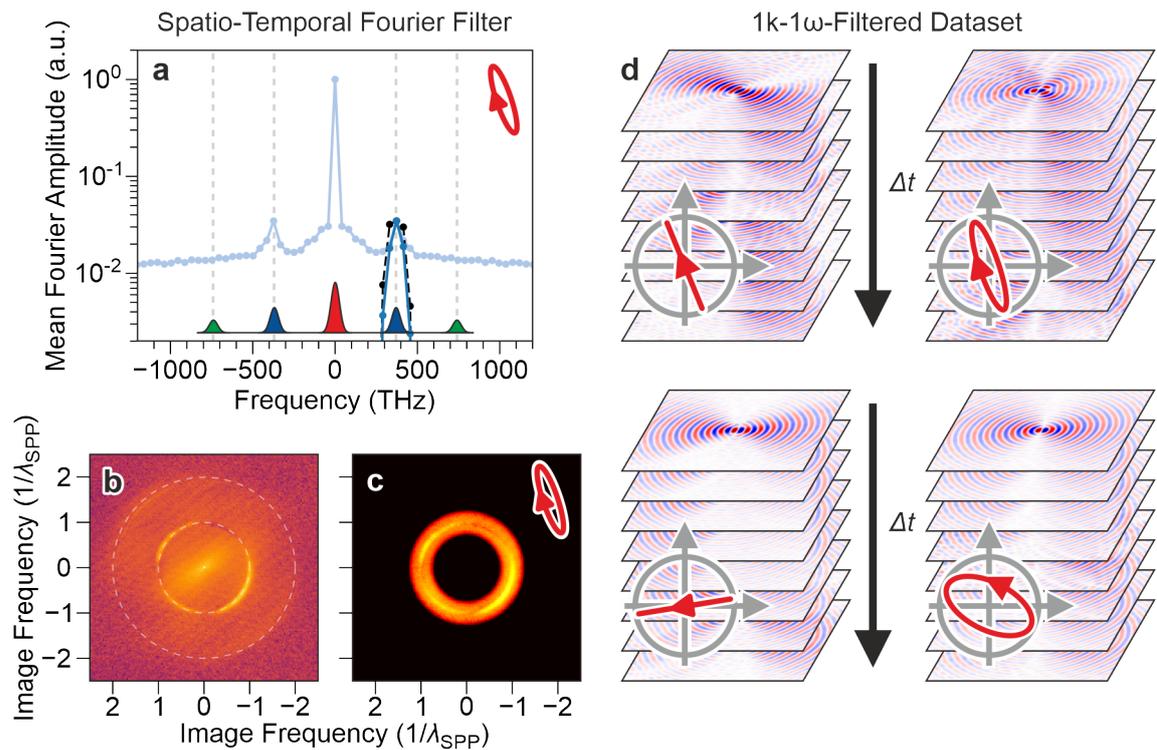
Mit dem nun bekannten realen zeitlichen Nullpunkt werden die Daten auf ein neues Zeitgitter interpoliert. Die Phase fließt in den Jones-Vektor der Polarisation ein.

### 5.4.3. Extraktion des dynamischen Signals und Bestimmung der Feldkomponenten

In diesem Kapitel wird erläutert, wie das dynamische Signal aus dem Gesamtsignal gefiltert wird. Wie bereits beim Skyrmion-Gitter ist dies notwendig, da das dynamische Signal von einem deutlich stärkeren statischen Signal überlagert wird. Die Abhängigkeiten in Ort und Zeit sind aus Gleichung 2.23 in Kapitel 2.4.2 bekannt. Das dynamische Signal steckt dabei in der  $1k-1\omega$ -Komponente. Nun da die Daten örtlich und zeitlich zueinander ausgerichtet sind, kann dieses dynamische Signal durch filtern in der Raum-zeitlichen Fourier-Transformation aus den Daten extrahiert werden. Abbildung 5.10 veranschaulicht den Prozess.

In Abbildung 5.10a) wurden die Daten in der zeitlichen Fourier-Transformation gefiltert. Die Darstellung zeigt eine Intensitätsverteilung entsprechend der Frequenz  $\omega$ . Wie im Einschub angedeutet, werden hier ein  $0\omega$ -Peak flankiert von je einem positiven und einem negativen  $1\omega$ - und  $2\omega$ -Peak erwartet. Die zweite Ordnung ist jedoch so schwach, dass sie hier nicht zu sehen ist. Das statische Signal ist hier gut 1,5 Größenordnungen größer als das dynamische  $1\omega$ -Signal. Zum Extrahieren des dynamischen Signals ist es egal ob der positive oder negative  $1\omega$ -Peak maskiert wird, da beide die gleiche Information enthalten. Hier wird der positive  $1\omega$ -Peak mit einem frei wählbaren Fenster (schwarz) maskiert und anschließend wird der Peak (blau) innerhalb dieses Fensters gefittet. Dabei wurde in der  $\omega$ -Filterung wie auch in der  $k$ -Filterung ein schmales Fenster gewählt, was im weiteren Verlauf noch erklärt wird. Die maskierten Daten werden rücktransformiert und dienen als Basis für die  $k$ -Filterung.

Abbildung 5.10b) zeigt das örtliche Analogon zur Filterung der Daten und zeigt somit eine Intensitätsverteilung entsprechend der Wellenzahl  $k$ . Die angedeuteten Ringe entsprechen der  $1k$ - und  $2k$ -Komponente. Da die Daten bereits in  $\omega$  gefiltert sind wäre lediglich Intensität auf dem  $1k$ -Ring erwartet worden. Im Bild ist zu jedoch sehen, dass es neben der leicht ausgeschmierten Intensität auf dem ersten Ring, einen zentralen ausgeschmierten



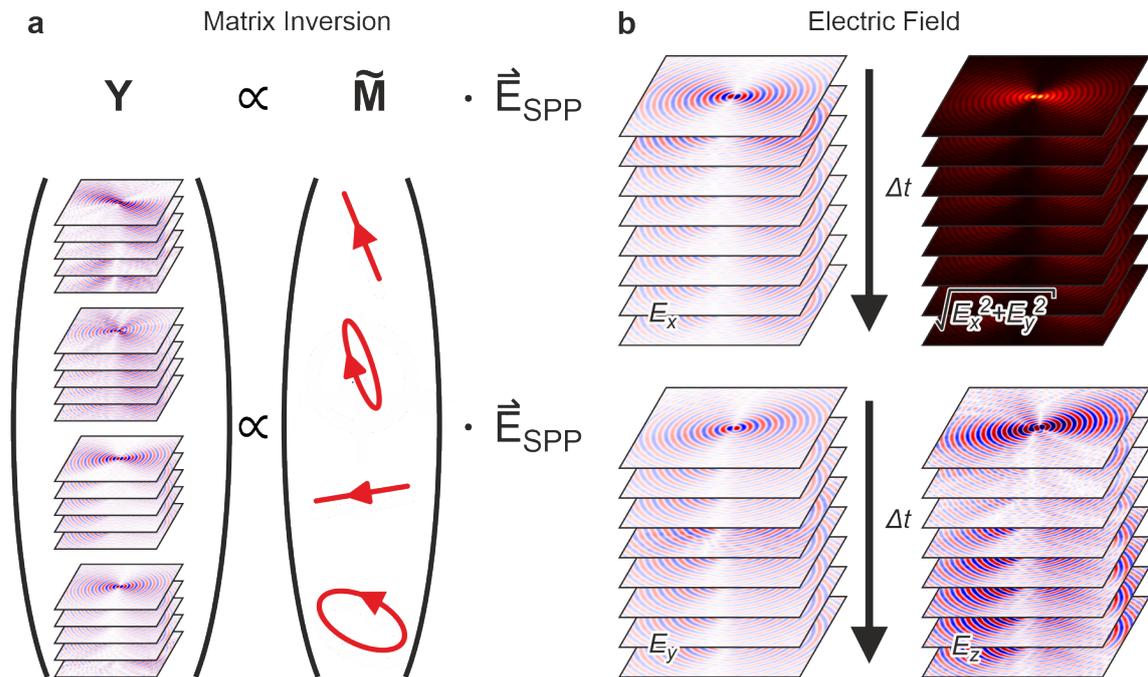
**Abb. 5.10.:** Die Datensätze aus Abbildung 5.9 werden in der zeitlichen a) und örtlichen b),c) Fourier-Transformation gefiltert. Das  $1\omega$ -Filterfenster und der dazugehörige Fit werden in a) in schwarz (maximales Fenster) und dunkelblau (Fit an Daten) angezeigt. Der Einschub unten zeigt die erwarteten Positionen der Peaks als Vielfache von  $\omega$  im Frequenzraum. In b) ist der  $k$ -Raum dargestellt, wobei sich das Signal auf Ringen mit Radius  $r = n \cdot k_{SPP}$  befindet. Die Orientierung der Intensität weist auf die Richtung der Periodizität hin. In c) wird die  $1k$ -Maske zu b) gezeigt. In d) sind die rücktransformierten Datensätze, die in  $1k$  und  $1\omega$  gefiltert wurden, dargestellt.

Bereich gibt. Die  $2k$ -Komponente fehlt wie erwartet. Die Intensitätsverteilung auf dem  $1k$ -Ring spiegelt die Polarisationsrichtungen der Abfrage wider. Warum diese im Vergleich zur Abfrage-Polarisation leicht gedreht erscheint wird in Kapitel 5.4.4 erläutert. Um das rein dynamische Signal zu extrahieren, muss nun der zentrale Bereich ausgeschlossen werden. In Abbildung 5.10c) sind die maskierten Daten zu sehen, die anschließend rücktransformiert werden.

Prinzipiell reicht die einzelne Filterung in  $1k$  oder  $1\omega$  aus um an das dynamische Signal heranzukommen, da laut Gleichung 2.20 aus Kapitel 2.4.2 keine anderen Beiträge in diese Komponenten eingehen. Die Filterung in beiden Komponenten ist dennoch sinnvoll, da in der Rechnung lediglich die Anregung an der Anrege-Struktur berücksichtigt wurde. Im Experiment kann es aber auch Signale geben, die aus anderen Anregungen stammen und die dann die eine oder die andere Komponente beeinhaltet. Diese sind zum Beispiel in Abbildung 5.10b) zu sehen. Der zentrale Bereich weist eine  $1\omega$  Abhängigkeit auf, jedoch keine  $k$ -Abhängigkeit. In Experimenten wurde gesehen, dass unter anderem die Kanten der Insel SPPs anregen, die entsprechende Beiträge haben können. Im ungünstigsten Fall ist das Verhältnis von Strukturgröße und Positionierung auf der Goldinsel oder Größe der Goldinsel gerade so, dass Kanteninteraktionen in der Strukturmitte sichtbar werden. Oftmals haben diese Artefakte Schnittbereiche mit den Daten und können so nicht vollständig entfernt werden. Die schmalen Fenster bei  $1k \pm \delta$  und  $1\omega \pm \delta$  werden also gewählt, um die Beträge solcher Effekte zu vermindern. Die Breite  $\delta$  muss dabei für jedes Experiment (nicht jede Polarisation), optimiert werden. Breitere Filter  $\delta$  sind zu bevorzugen, da die Fourier-Filter-Artefakte zunehmen je schmaler das gewählte Fenster ist.

#### 5.4.4. Rekonstruktion der Felder aus den experimentellen Daten

In diesem Kapitel wird darauf eingegangen, wie das elektrische Feld mithilfe der Messungen der vier Abfrage-Polarisationen rekonstruiert wird. Dafür müssen die gefilterten Daten zunächst normiert werden. Aufgrund von polarisationsabhängig unterschiedlichen Reflektivitäten und Transmissivitäten im Interferometer unterscheiden sich die Abfrage-Intensitäten (Anregung ist identisch) der verschiedenen Polarisationen. Aus diesem Grund wurde auf dem Polarimeter neben der Polarisation auch die relative Intensität der verschiedenen Abfrage-Polarisationen gemessen. Die verschiedenen Polarisationsserien können nun auf diese, auf dem Polarimeter gemessene, Leistung normiert werden. Das PEEM induziert



**Abb. 5.11.:** In a) ist die Rekonstruktion des elektrischen Feldes aus den zuvor prozessierten Polarisationsserien dargestellt. Die Bildintensität  $\mathbf{Y}$  ist dabei proportional zu der Matrix  $\tilde{\mathbf{M}}$  aus Jones-Vektoren angewendet auf das zu bestimmende Feld. In b) sind Zeitserien der beiden Feldkomponenten in der Ebene  $E_x, E_y$  einzeln, sowie die Kombination der beiden Komponenten als Feld parallel zu Oberfläche  $E_{\parallel} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2}$  und die Feldkomponente, die aus der Ebene zeigt  $E_{\perp} = E_z$  dargestellt.

weiterhin abhängig vom FOV noch eine Bildrotation, die zuvor ausgemessen wurde. Damit die Bild- und Polarisations-Orientierungen übereinstimmen, werden die gemessenen Serien nun nur noch gedreht, um diese Bildrotation auszugleichen.

Nach den vielen Analyseschritten sind die vier Datenreihen nun auf dem gleichen Ort-Zeit-Gitter und bestehen nur noch aus dem normierten und gedrehten dynamischen Signal. Nun sind die Daten soweit angepasst und vereinheitlicht, dass die Felder extrahiert werden können. Wie in Abbildung 5.11a) dargestellt, sind die gemessenen Bildintensitäten  $\mathbf{Y}$  proportional zur Polarisationsmatrix  $\tilde{\mathbf{M}}$  angewendet auf das zu rekonstruierende elektrische Feld  $\vec{E}_{\text{SPP}}$ . Die Matrix enthält zeilenweise die Jones-Vektoren der spaltenweise aufgetragenen Polarisierungen und bildet so eine Matrix der Form  $n \times 2$ , wobei die Anzahl der Polarisierungen  $n$  in den hier dargestellten Experimenten bei  $n = 4$  liegt. Das Feld in der Ebene kann nun aus diesem überbestimmten System der vier Abfrage-Polarisationen über eine Pseudo-Inversion mit einem *least-squares* Minimierungsverfahren [165] bestimmt werden. Dabei

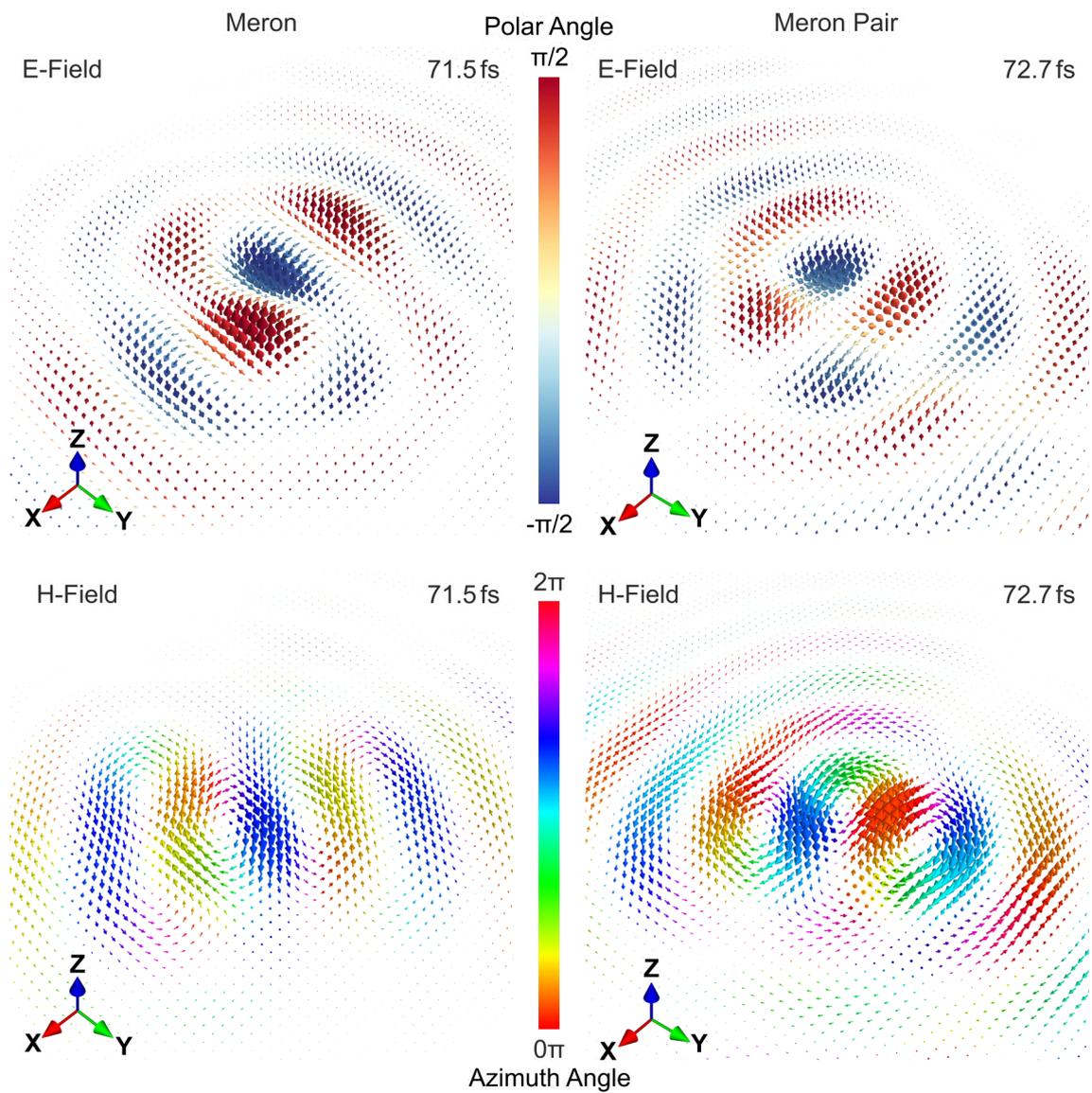
können stets die Komponenten des Feldes bestimmt werden, die der Abfrage-Polarisation entsprechen und es ist deshalb darauf zu achten, dass bei der Wahl der Polarisationen auch möglichst orthogonale Anteile auftreten. Die Polarisationszustände entsprechen den Jones-Vektoren die sich aus dem im Polarimeter gemessenen Stokes-Vektor und der aus mit der spektralen Interferenz bestimmten Phase zusammensetzen. In Abbildung 5.11b) sind die resultierenden Feldkomponenten  $E_x, E_y$  dargestellt, als auch deren Kombination als Feld in der Ebene  $E_{\parallel} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2}$ . Die Feldkomponente die aus der Ebene zeigt  $E_{\perp} = E_z$  ergibt sich analog zu Kapitel 4.3, durch Berechnung über die Maxwell-Gleichung.

### 5.4.5. Darstellung der Felder

Im vorherigen Schritt lagen die einzelnen Feldkomponenten des elektrischen Feldes als 2D-Einzeldarstellung vor. In diesem Kapitel wird mit der Feldrekonstruktion an der Oberfläche der letzte Schritt aus der Analyse der experimentellen Daten beschrieben. Aus dem rekonstruierten elektrischen Feld kann zunächst über Maxwell (Gl. 4.9 aus Kap. 4.3) das Magnetfeld berechnet werden um anschließend aus der Kombination der beiden Felder das SAM in 3D zu bestimmen. Mit diesem Kapitel schließt der experimentelle Teil der Vektor-Polarimetrie ab und somit einer der beiden zentralen Bereiche dieser Arbeit. Es wird damit gezeigt, dass die Methodik der Vektor-Polarimetrie funktioniert und nun auch alle anderen SPP-Felder mit subwellenlängen Ortsauflösung und subfemtosekunden Zeitauflösung vermessen werden können.

Im ersten Schritt wird für das Meron und das Meron-Paar je ein markanter Zeitschritt ausgewählt, welcher in der weiteren Analyse immer wieder aufgegriffen wird. Abbildung 5.12 zeigt eine 3D-Vogel-Perspektive des elektrischen und magnetischen Feldes des Merons in der linken Spalte und die des Meron-Paares in der rechten Spalte. Anders als beim Skyrmion-Gitter ist die Topologie beim Meron und Meron-Paar jedoch nicht in den Feldern sondern im Spin-Drehimpuls (Kap. 5.5) zu sehen. Die Topologie gilt zwar auch schon für die Felder, jedoch ist in den Feldern selbst zunächst nicht viel zu erkennen. Da dies die erste Rekonstruktion dieser Art ist wird dennoch kurz auf die Felder eingegangen.

Die elektrischen Felder sind in einer blau-gelb-rot-Farbskala dargestellt, wobei rot für aus der Ebene zeigend  $E_z^+$  und blau für in die Ebene hinein zeigend  $E_z^-$  steht. Je stärker die entsprechende Farbe ist, desto geringer ist der Winkel in der Ebene. Ein Vektor der keine z-Komponente hat und demnach in der Ebene liegt wird gelb dargestellt. Die Intensität wird über die Länge und Größe des Vektorpfeils ausgedrückt. Das Meron weist bei

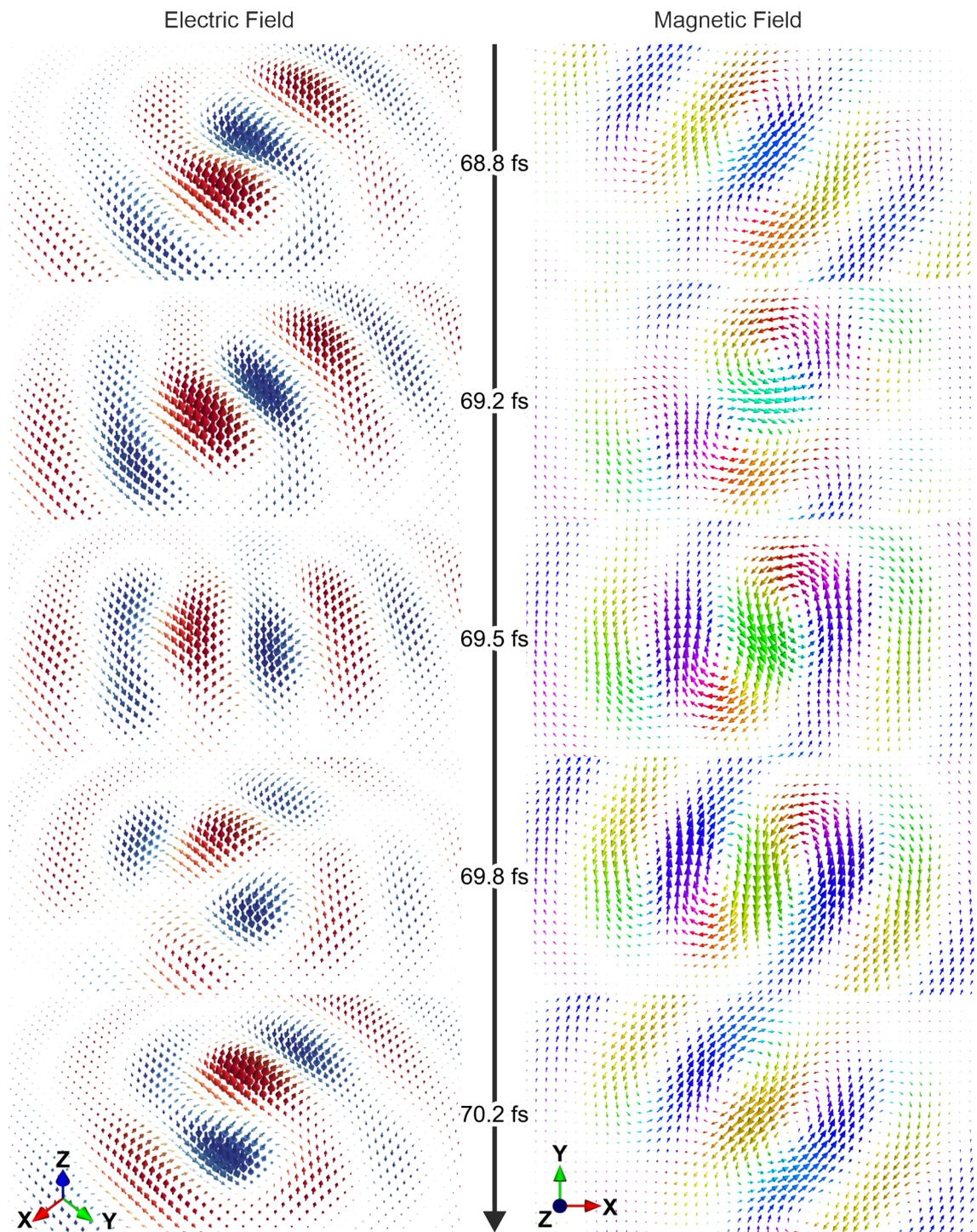


**Abb. 5.12.:** Rekonstruiertes elektrisches Feld und das daraus berechnete H-Feld des Merons und Meron-Paares.

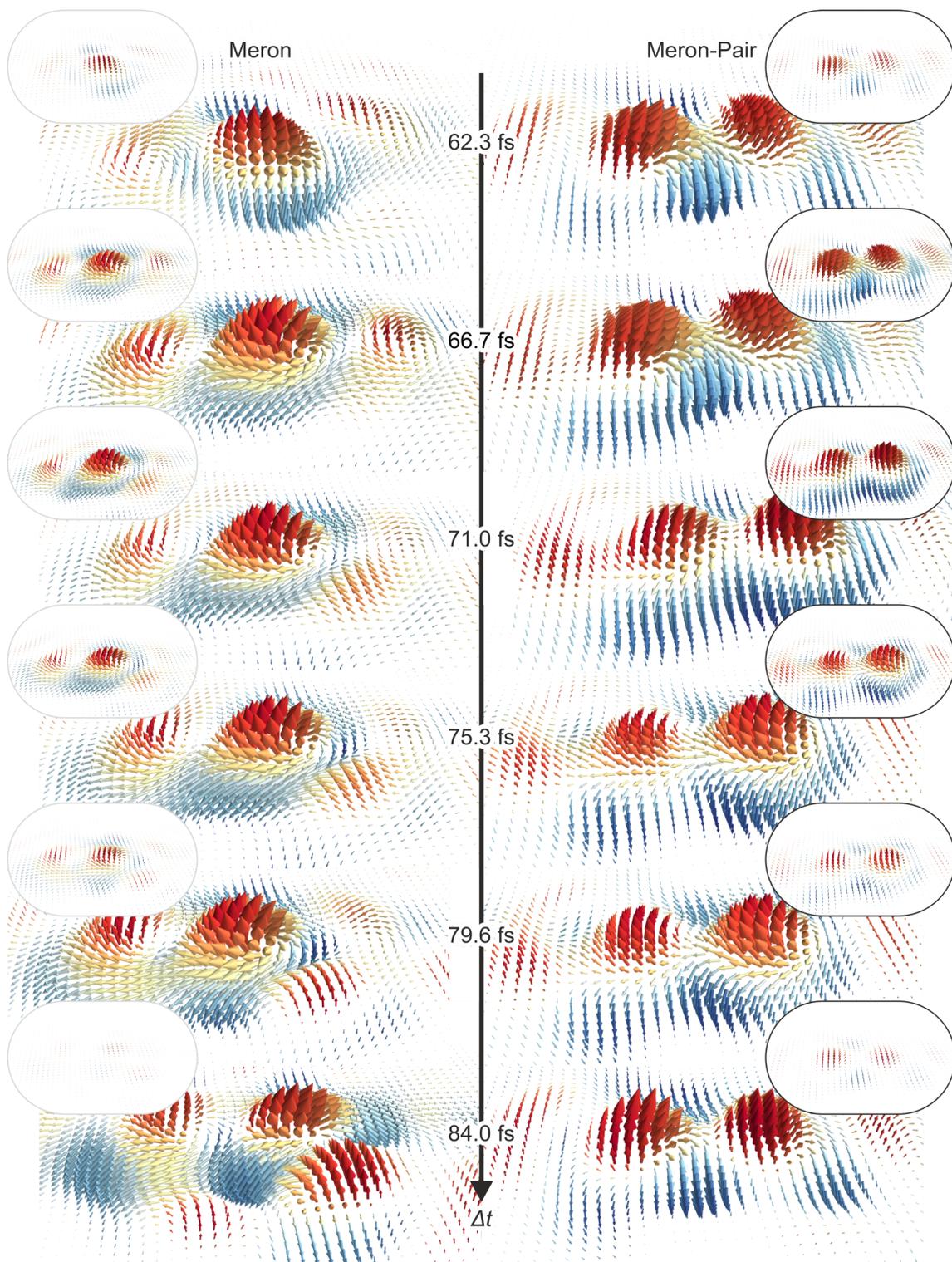
71.5 fs eine Feldverteilung auf, bei der sich ein Punkt mit positivem  $E_z^+$  und negativem  $E_z^-$  umkreisen. Nach außen bilden sich zwei um  $\pi$  zueinander verschobene Spiralen, wobei eine  $E_z^+$  und die andere  $E_z^-$  aufweisen. Theoretisch wären hier jedoch abwechselnd orientierte Halbkreise erwartet worden. Das Meron-Paar (72.7 fs) zeigt eine vierzählige Symmetrie, mit abwechselnd einem  $E_z^+$ - und  $E_z^-$ -Bereich und sich entsprechend abwechselnden Ringsegmenten nach außen. Im Kapitel 5.5 wird gezeigt, dass die Zeitpunkte jeweils ein stabiles Meron oder Meron-Paar zeigen.

Die Magnetfelder sind in einer azimutalen hsv-Farbskala dargestellt. Die Farbe kodiert die Orientierung in der Ebene. Das Magnetfeld ist fast ausschließlich in der Ebene und weist keine ausgeprägte  $H_z$ -Komponente auf. Im Fall des Merons (Abb. 5.5 links) bildet es zwei gegenläufige Strudel, die sich zu einer 8-förmigen Struktur verbinden. Entlang der langen Achse der 8-förmigen Struktur wechselt jeweils die Orientierung der Feldvektoren beim entfernen vom Zentrum. Orthogonal dazu fällt das Feld sehr schnell ab. Ähnlich sind die Magnetfelder des Meron-Paars (Abb. 5.5 rechts). Parallel zum elektrischen Feld sind hier vier Strudel zu sehen, wobei einer der vertikalen Strudel nicht vollständig ausgeprägt ist. Die vertikalen Strudel berühren sich in der Mitte, während die horizontalen getrennt sind. In dieser Abbildung sind die Ringe mit wechselnden Orientierungen zu sehen. Des Weiteren ist zu erkennen, dass die Magnetfeldlinien stets orthogonal auf der radialen Richtung stehen.

Die dargestellten Felder sind jeweils nur ein Zeitschritt aus einer zeitaufgelösten Messung über mehrere optische Zyklen. In den ergänzenden Informationen (engl. *Supplement*) der Publikation Janoschka *et al.* [166] sind diese als Video zu sehen. In Abbildung 5.13 wird die Zeitdomäne durch exemplarische Zeitschritte in einen Zeitstreifen veranschaulicht. Es ist ein halber optischer Zyklus des Merons dargestellt. Im linken Streifen sind die elektrischen Felder und im rechten die Magnetfelder bei der entsprechenden Zeitverzögerung dargestellt. In den elektrischen Feldern ist eine Drehung des zentralen Maximums und Minimums um ihr gemeinsames Zentrum im Uhrzeigersinn zu erkennen. Der rote  $E_z^+$ -Punkt bewegt sich von links-unten im ersten Bild (68.8 fs) nach rechts-oben im letzten Bild (70.2 fs). Die Rotationsrichtung im Magnetfeld ist etwas schwerer zu erkennen, doch rotiert die 8-förmige Struktur ebenfalls im Uhrzeigersinn. Zwischen dem ersten und letzten Bild des Magnetfeldes kommt es gerade zu einer Umkehr des Drehsinns des Magnetfeldes. In den Bildern ist auch zu erkennen, dass bei einem stärkeren elektrischen Feld (längere und dickere Pfeile) ein schwächeres Magnetfeld vorherrscht und umgekehrt. Dies stützt die Einhaltung der Gesamtenergie im System.



**Abb. 5.13.:** Zeitabhängigkeit des elektrischen und magnetischen Feldes des Merons. In der Darstellung ist zu erkennen wie sich die Feldkomponenten innerhalb einer halben Periode um das Zentrum drehen.



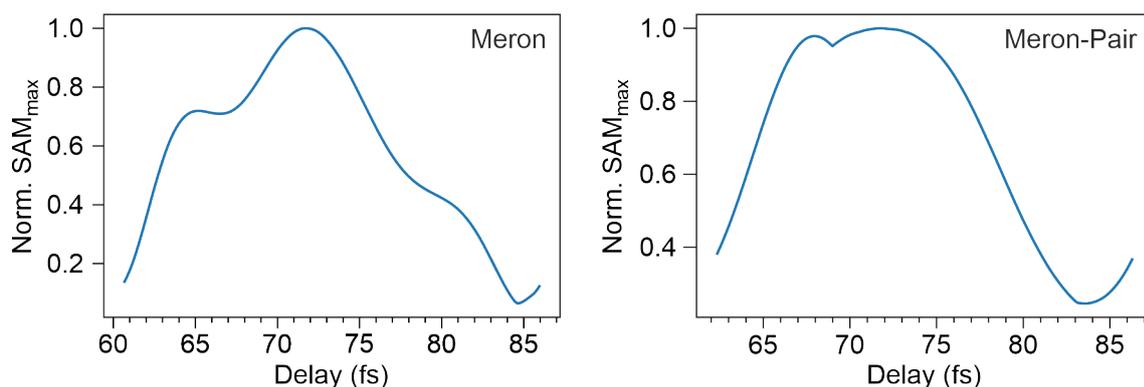
**Abb. 5.14.:** Zeitabhängigkeit des Spin Drehmoments des Merons (links) und Meron-Paares (rechts). Die Hauptbilder sind pro Zeitschritt normiert, die Einschübe oben links/rechts sind auf das Maximum der jeweiligen Zeitserie normiert.

Wie bereits erwähnt ist ein stabiles Feld beim Meron/Meron-Paar nicht im elektrischen oder magnetischen Feld zu sehen wie beim Skyrmion-Gitter, sondern im SAM. Das SAM lässt sich berechnen über

$$\vec{S} \propto \frac{1}{2\omega} \Im \left( \varepsilon \vec{E}^* \times \vec{E} + \mu \vec{H}^* \times \vec{H} \right). \quad (5.12)$$

Da das elektrische und magnetische Feld bekannt sind, wurde für das SAM von Meron und Meron-Paar die Zeitserie berechnet. Einige Zeitschritte daraus sind in Abbildung 5.14 dargestellt. Links ist das Meron und rechts das Meron-Paar. Dabei wurden die Hauptbilder pro Zeitschritt auf das Maximum des jeweiligen Bildes normiert. In den jeweils oben dargestellten Einschüben sind dieselben Zeitschritte auf das Maximum der Serie normiert dargestellt (Videos in [166]). Die Zeitschritte sind in beiden Serien gleich gewählt (4.3 fs) und die Gesamtdauer der Darstellung umfasst etwas mehr als acht optische Zyklen. Das Meron ist eine Halbsphäre die in einer Achse zu beiden Seiten hin jeweils eine begleitende, etwas ausgedehnte Halbkugel zeigen. In der späteren topologischen Analyse (Kap.5.5) wird die Form besser sichtbar. Das Meron-Paar besteht aus zwei lokalen Halbsphären nebeneinander mit leichtem Überlapp. Auch hier wird sich später eine deutlich komplexere Struktur offenbaren. Das Meron-Paar ist über die ganze Serie deutlich zu erkennen und wirkt stabil. Das Meron hingegen wird zum Ende (84.0 fs) hin instabil und verschiebt sich. Auch am Anfang (62.3 fs) sind die Seiten-Merone relativ schwach. Die Effekte der plasmonischen Topologie (Meron/Meron-Paar) entstehen durch die Interferenz von Feldern und sind demnach zeitlich beschränkt. Die Stabilität des SAMs hängt demnach von den interferierenden propagierenden SPP-Wellen ab. Sind die Wellenpakete kürzer, ist auch der Zeitbereich indem das SAM existiert kürzer. Jede Unregelmäßigkeit in der Anrege-Struktur, jedes Artefakt durch ungewollte Anregung außerhalb der Anrege-Struktur und jegliche Fehler in der Polarimetrie-Prozessierung spiegeln sich in den rekonstruierten Feldern wider und können zu Instabilitäten im SAM führen. Gerade bei schwächeren Signalen wie bei den Seiten-Meronen haben kleine Änderungen schnell eine große Wirkung.

In beiden Strukturen ist auch gut zu erkennen, dass es sich nicht einfach um eine Hälfte des "Igelballs" vom Skyrmion handelt. Es wäre zu erwarten gewesen, dass die Vektoren vom Zentrum nach außen zeigen, stattdessen ist zu erkennen, dass sich beim Meron eine Art Wirbel in mathematisch negativen Sinn bildet. Beim Meron-Paar neigen sich die Vektoren zunächst etwas nach rechts, dann nach links und dann wieder nach rechts. Topologisch



**Abb. 5.15.:** Maximale Intensität pro Bild normiert auf die maximale Intensität der Serie für Meron (links) und Meron-Paar (rechts).

gesehen ist dies jedoch kein Problem. Es ist zu vergleichen mit einem "Igelball" bei dem die Stacheln gekämmt werden können. Diese leichte Richtungsänderung entspricht der Phase aus Kapitel 5.1.

Für die Darstellung in Abbildung 5.14 wurden die Daten pro Zeitschritt normiert. Dadurch geht die Gesamtintensität verloren, jedoch zeigt sich so besser, dass die Strukturen auch bei schwachen Intensitäten noch sehr gut ausgeprägt sind. Im Vergleich dazu sind in den jeweils oben-außen dargestellten Einschüben die pro Zeitserie normierten Bilder zu sehen. Hier wirkt es so, als würde das Meron im Untergrund verschwinden. In Abbildung 5.15 ist die pro Bild ermittelte maximale Intensität, auf die maximale Intensität der Serie normiert, über die Verzögerungszeit aufgetragen. Dabei fällt auf, dass die Gesamtintensität extrem ansteigt und abfällt. Hier zeigt sich, dass der zeitliche Überlapp der Pulse begrenzt ist, sodass Anfang und Ende der Serie im Fall des Merons bei weniger als 20% und beim Meron-Paar bei weniger als 40% liegen. Wie die Einschübe verdeutlichen, sind Anfang und Ende der dargestellten Serie bereits nah am Rauschen. Dies erklärt die zuvor angemerkte abweichende Form im ersten und letzten Bild des Merons aus Abbildung 5.14.

Rein optisch scheint das SAM über einen langen Zeitraum stabil zu sein. An dieser Stelle sei bereits kurz vorgegriffen, dass das Meron-Paar stabiler erscheint als es ist, weshalb hier oft die vage sprachliche Form gewählt wurde. In Kapitel 5.5 wird sich zeigen, dass das SAM keine gute Größe ist, um Aussagen über die Topologie zu treffen. Ob es sich wirklich um ein Meron und Meron-Paar handelt kann nur über eine quantifizierbare Größe bestimmt

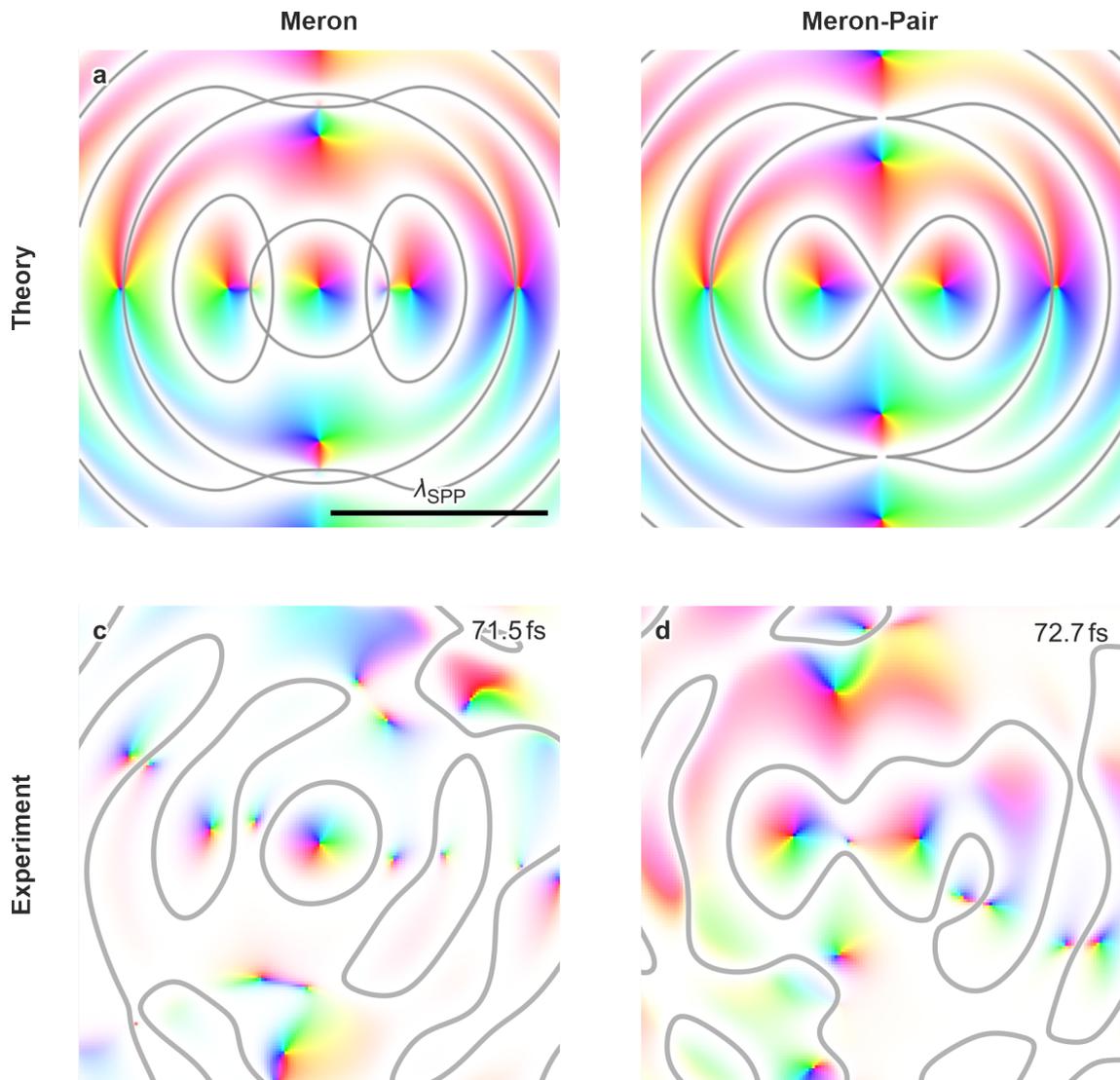
werden. Wie in Kapitel 5.1 beschrieben, quantifiziert die Chern-Zahl genau diese Größe. Im nachfolgenden Kapitel 5.5 werden verschiedene Blickwinkel kombiniert um die Topologie der Struktur zu verstehen.

## 5.5. Analyse der Topologie am Meron und Meron-Paar

Die Entwicklung der Vektor-Polarimetrie und die damit einhergehende Präzision ermöglicht es nun auch sensible topologische Strukturen und ihre Eigenschaften zu untersuchen. In diesem Teil wird die Analyse vom Meron und Meron-Paar vorgestellt. Im Unterschied zum Skyrmion (Kap. 4) bedeckt ein Meron nicht die ganze Sphäre, sondern nur eine Halbsphäre [146]. Oft wird ein Bild verwendet, in dem ein Skyrmion sich aus einem Meron und einem Anti-Meron gleicher Vortizität zusammensetzen lässt. Dieses Bild ist jedoch nur visuell richtig. Sind diese Quasiteilchen in einem gemeinsamen Gebiet heben sie sich gerade weg.

Die Gruppe von Prof. Dr. Hrvoje Petek veröffentlichte in Dai *et al.* [46] die Rekonstruktion von L-Linien am Meron mittels einer optischen-Fluss-Analyse im interferometrisch zeitaufgelösten PEEM (engl. *interferometric time-resolved photoemission electron microscope*, kurz ITR-PEEM). Sie konnten zeigen, dass die Meron-SAM-Textur über zehn optische Zyklen stabil ist. Die Dauer ist hier jedoch abhängig von der Pulsdauer der verwendeten Pulse. Genauer handelt es sich nicht um ein einzelnes isoliertes Meron, sondern um ein zentrales Meron, das durch zwei andere Meronen in einer Hantelform eingerahmt wird. Später zeigt sich, dass die beiden äußeren Meronen sich mit zwei entgegengesetzten Meronen im L-Gebiet aufheben und somit insgesamt ein Meron übrig bleibt. Mit der Polarimetrie ist es möglich die Felder zeitaufgelöst in 3D zu rekonstruieren. Daraus lassen sich nicht nur L-Linien extrahieren, sondern auch C-Punkte bestimmen, die eindeutig von Amplituden-Vortizes unterschieden werden können. Durch die komplexe Herangehensweise kann in der Vektor-Polarimetrie so nicht nur der zeitliche Verlauf der Chern-Zahl beobachtet werden, sondern auch die Dynamik von L-Linien, C-Punkten und Amplituden-Vortizes.

Angelehnt an Kapitel 5.1 können zunächst einmal die L-Linien und Nullstellen des SAM in der Ebene betrachtet werden. Mittels der Gleichung 5.8 aus Kapitel 5.2 werden die Felder des Merons und des Meron-Paars bestimmt und anschließend werden diese äquivalent zu den experimentellen Feldern analysiert. In Abbildung 5.16 ist dafür eine Pseudo-HSV-



**Abb. 5.16.:** Pseudo-HSV-Darstellung in Theorie und Experiment eines Merons und Meron-Paars. Die Darstellung zeigt den Azimut, mit einer überlagerten verstärkten  $S_z$  Komponente, um die Nullstellen (Vortizes) hervorzuheben. Dabei zeigen Meron a), Meron-Paar b) die Theorie zu den experimentellen Versionen von Meron c) und Meron-Paar d). Überlagert sind die Konturen der L-Linien in grau. Der Maßstab aller Bilder ist gleich.

Darstellung gewählt. Die HSV-Darstellung wird in Kapitel 5.5.2 ausführlich eingeführt. In der Pseudo-Variante wurden nicht alle Kanäle genutzt. Hier wird der  $2\pi$ -periodische Azimut des SAMs in der hsv-Farbskala mit einer beliebigen Potenz der  $S_z$ -Komponente verstärkt überlagert (hier dargestellt Potenz 4) um damit die Nullstellen hervorzuheben. Aus dem Analogon mit der Poincaré-Sphäre aus Kapitel 5.1 ist bekannt, dass C-Punkte an den Polen liegen (reines  $S_z$ ) und L-Linien am Äquator (kein  $S_z$ ). Durch die Verstärkung der  $S_z$ -Komponente werden C-Punkte im vollen Farbton dargestellt, während L-Linien ins Weiße übergehen. Um die L-Linien ebenso deutlich darzustellen, wurden sie im Bild als graue Konturen überlagert.

Das Meron in Abbildung 5.16a) zeigt die bereits beschriebene Hantelform, das Meron-Paar in Abbildung 5.16b) zeigt eine liegende Acht. Die L-Linien weiter außen umschließen diese zentralen Gebilde. Es ist deutlich zu sehen, dass es sich in beiden Fällen Meron und Meron-Paar nicht um isolierte C-Punkte handelt, die gezählt werden können. In der Theorie sind sowohl für das Meron (Abb. 5.16a)) als auch für das Meron-Paar (Abb. 5.16b)) zahlreiche Nullstellen des SAMs in der Ebene zu sehen, welche sich als Punkte unbestimmter Phase äußern, mit sich stark änderndem Azimut im direkten Anschluss. Einige liegen auch nah an oder sogar auf den L-Linien. Im weiteren Verlauf wird noch gezeigt, dass sich ganze Ketten an Nullstellen außerhalb des hier dargestellten Bereichs anschließen.

In den experimentellen Daten für Meron und Meron-Paar in Abbildung 5.16c,d) ist eine Ähnlichkeit zu den berechneten theoretischen Bereichen zu erkennen, jedoch wird bereits hier sichtbar, dass L-Linien an vielen Stellen verschoben oder verbunden sind, da diese lediglich topologisch robust, aber nicht topologisch geschützt sind [150]. Das Meron-Paar (Abb. 5.16d)) hat dementsprechend rechts zusätzlich noch einen ganzen Bereich angehängt. Vor allem aber umschließt im Experiment keine L-Linie die zentralen Gebilde. Dies wurde auch für ein deutlich größeres Gesichtsfeld überprüft. Auch die Nullstellen sind oft verschoben und deutlich stärker separiert. Ob es sich bei den Nullstellen nun um C-Punkte oder Amplituden-Vortizes handelt muss zunächst eindeutig bestimmt werden, bevor konkrete Aussagen getroffen werden können.

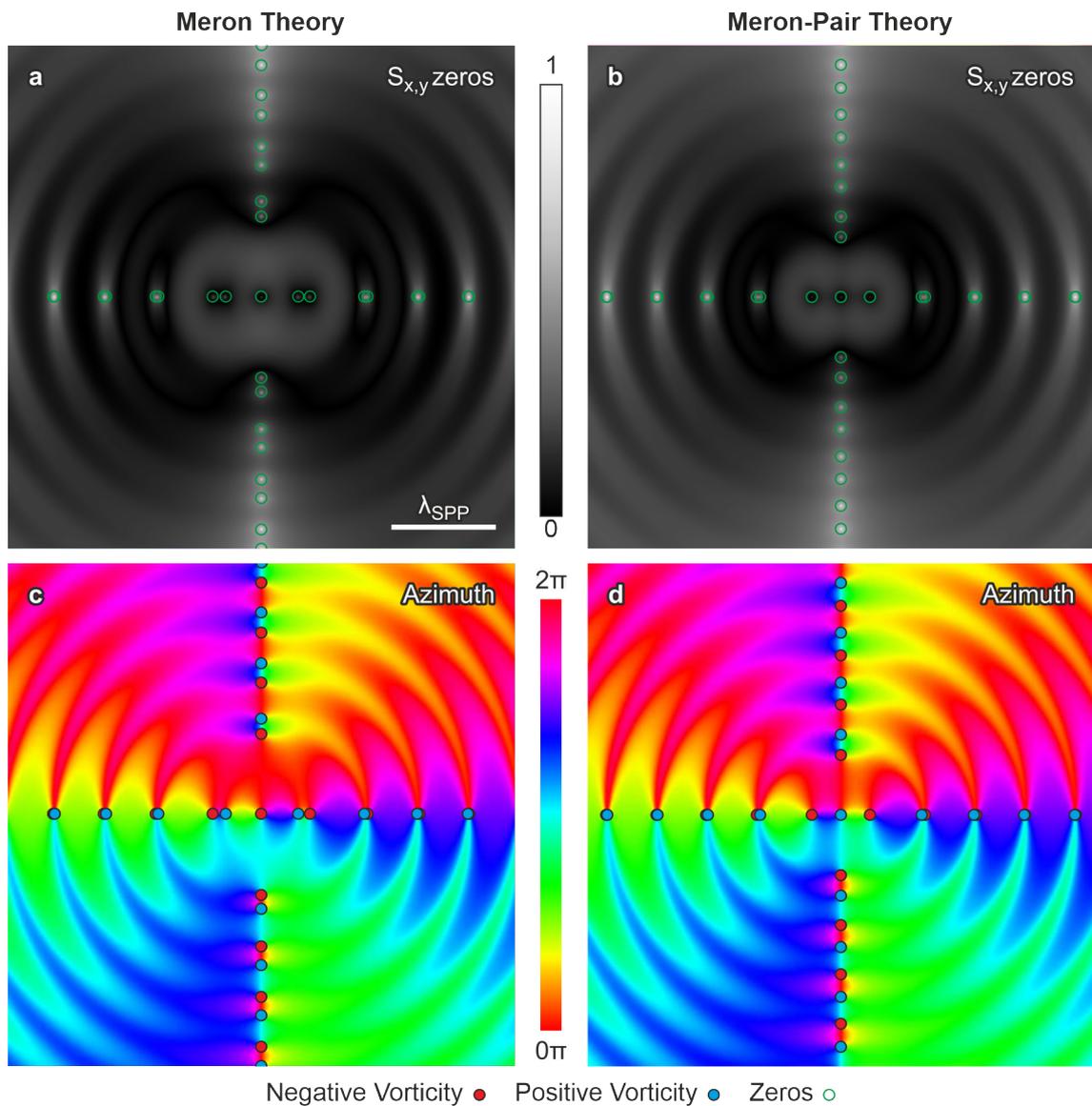
Daher ist es sinnvoll zunächst einen Blick auf die grundlegende Topologie der Fläche zu werfen. Im Kapitel 5.5.1 wird mit Hilfe der Euler-Poincaré-Charakteristik geprüft ob alle Nullstellen zuverlässig gefunden werden können und ob die Topologie der Fläche dem erwarteten Wert einer Kreisscheibe mit  $\chi = 1$  entspricht. Im darauffolgenden Kapitel 5.5.2 wird anschließend zwischen C-Punkten und Amplituden-Vortizes unterschieden und die Chern-Zahl bestimmt.

### 5.5.1. Bestimmung der zweidimensionalen Topologie

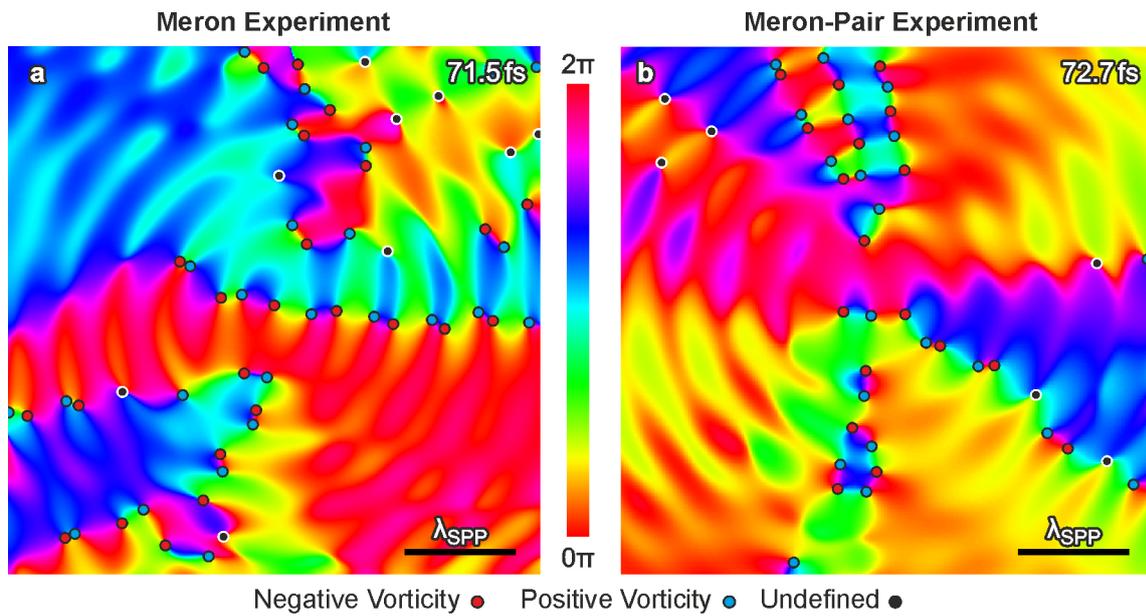
In diesem Kapitel wird das SAM Feld  $S_{\parallel}$  zunächst nur in der Ebene betrachtet. Die Nullstellen entsprechen dabei den C-Punkten und Amplituden-Vortizes, die wie in Kapitel 5.1 beschrieben in 2D ununterscheidbar sind. Die Euler-Poincaré-Charakteristik legt die Topologie der Ebene fest auf  $\chi = 1$ . Nach dem Poincaré-Hopf-Theorem muss die Summe über die Indizes der Nullstelle demnach genau diesem Wert entsprechen. Mit dieser Methode lässt sich demzufolge prüfen ob auch alle Nullstellen gefunden wurden.

In Abbildung 5.17 ist der negative Logarithmus des SAMs in der Ebene für Meron (linke Spalte) und Meron-Paar (rechte Spalte) in der Theorie dargestellt. In dieser Darstellung werden sehr kleine Werte extrem verstärkt und sind weiß. Die Punkte entsprechen den Nullstellen und deren Positionen sind mit grünen Kreisen markiert. In der unteren Zeile werden die ermittelten Nullstellen in der Azimut-Darstellung betrachtet. Über die Windung des Azimuts um die Nullstelle kann für jede Nullstelle die Vortizität bestimmt werden. Dabei wird die positive Richtung blau und die negative rot markiert. Die entgegengesetzten Vortizitäten/Indizes heben sich wiederum weg, sodass im vereinfachten Fall nach dem Poincaré-Hopf-Theorem durch einfaches Zählen geprüft werden kann, ob die Euler-Poincaré-Charakteristik eingehalten wird. Es ist ersichtlich, dass sowohl auf der Horizontalen als auch auf der Vertikalen vom Mittelpunkt aus gesehen zu jeder Seite eine Reihe an gepaarten Nullstellen startet, die sich bis ins Unendliche erstreckt. Da sich die Paare jeweils aufheben, bleibt im Fall des Merons die zentrale Nullstelle erhalten, im Fall des Meron-Paars hebt sich die zentrale Nullstelle mit einer der beiden benachbarten auf, sodass die entsprechend andere übrig bleibt. Nach Kapitel 5.1 entspricht die eine übrig gebliebene Nullstelle genau einem Euler-Poincaré-Index von  $\chi = 1$ .

In Abbildung 5.18 sind die experimentellen Daten entsprechend ausgewertet worden. Sowohl für das Meron in Abbildung 5.18a) als auch für das Meron-Paar in Abbildung 5.18b) ist die klare vertikale und horizontale Ausrichtung der Nullstellen nicht mehr zu erkennen. Es kommen weiterhin Nullstellen hinzu, denen keine eindeutige Vortizität zugeordnet werden konnte (schwarze Kreise). Diese undefinierten Punkte könnten Stellen sein, wo sich zwei Nullstellen gerade gegenseitig aufheben. Es ist topologisch durchaus erlaubt, dass neue Nullstellen entstehen solange sie paarweise mit umgekehrtem Index bzw. umgekehrter Vortizität auftreten und sich somit gegenseitig aufheben. Dies erklärt auch warum nicht die ursprünglichen vertikalen und horizontalen Arme bestehen bleiben, sondern diese sich aufspalten und verschieben. Da auch im Experiment wie zuvor in der Theorie nach dem



**Abb. 5.17.:** Bestimmung der Nullstellen des Feldes in der Ebene für die Theorie. In a) wurde der negative Logarithmus der SAM-Komponente in der Ebene des Merons visualisiert. In b) ist die entsprechende Darstellung für das Meron-Paar. Die grünen Punkte markieren die Nullstellen der SAM-Komponente in der Ebene. In c) Meron und d) Meron-Paar wurde den Nullstellen in der Azimut Darstellung eine farblich gekennzeichnete Vortizität zugeordnet. Die blauen Kreise entsprechen positiver und die roten Kreise negativer Vortizität.



**Abb. 5.18.:** Bestimmung der Nullstellen des Feldes in der Ebene für die experimentellen Daten. Äquivalent zu Abbildung 5.17 wurden die Nullstellen identifiziert und diesen Nullstellen konnten in der Azimut Darstellung für a) Merlon und b) Merlon-Paar die positiven und negativen Vortizitäten zugeordnet werden. Scheinbare Nullstellen denen keine Vortizität zuzuordnen war sind schwarz.

Poincaré-Hopf-Theorem die Euler-Poincaré-Charakteristik  $\chi = 1$  erfüllt sein muss, müssen sich alle Nullstellen bis auf eine im Zentrum paarweise aufheben. Da die Nullstellen auch im Unendlichen liegen können, ist es je nach Gesichtsfeld möglich, dass eine Nullstelle nicht sichtbar ist, um ein Paar zu bilden. Rein optisch lassen sich jedoch lokal viele Nullstellen in Paaren zusammenfassen.

Es konnte gezeigt werden, dass die Nullstellen des 2D-SAM-Feldes in der Ebene bestimmt werden können. Experimentelle Begebenheiten erfordern jedoch oft eine lokale Einschränkung. So kann auch die Euler-Poincaré-Charakteristik nur lokal überprüft werden. Da das System dreidimensional ist muss noch geprüft werden ob die Nullstellen Amplituden-Vortizes sind oder C-Punkte. Außerdem muss die Chern-Zahl bestimmt werden, um zu verifizieren, ob es sich wirklich um ein Meron und ein Meron-Paar handelt. Diese Analyse folgt in Kapitel 5.5.2.

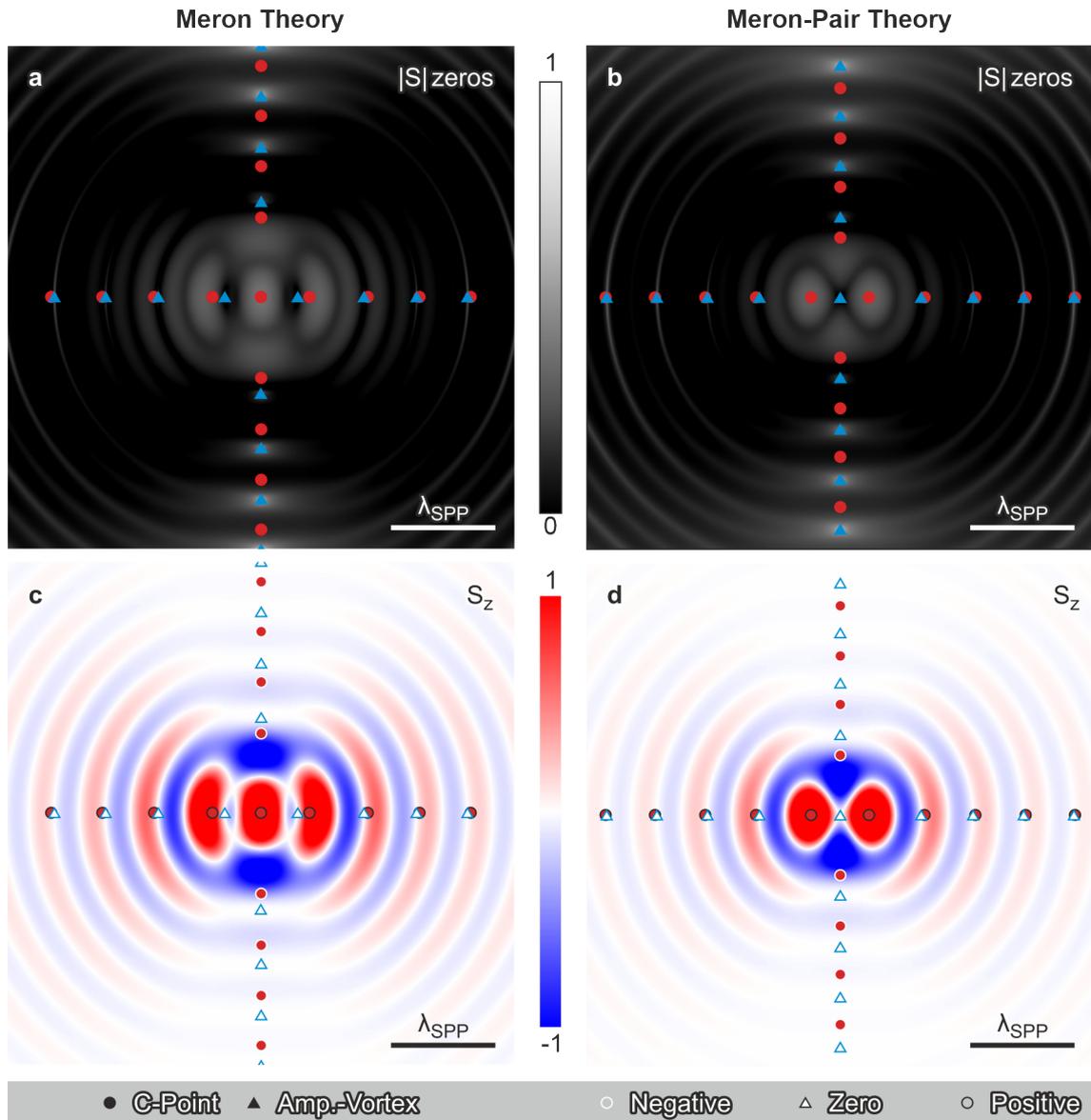
## 5.5.2. Bestimmung der dreidimensionalen Topologie

In diesem Kapitel geht es darum die 3D-Topologie zu bestimmen. Zunächst werden die C-Punkte aus der Reihe von Nullstellen des SAMs in der Ebene identifiziert und anschließend kann die Chern-Zahl auf verschiedene Varianten bestimmt werden. Damit wird die Analyse der Topologie und auch der zweite große Teil dieser Arbeit abgeschlossen.

Um die C-Punkte und Amplituden-Vortizes zu unterscheiden wird ausgenutzt, dass Amplituden-Vortizes echte Nullstellen des gesamten SAM  $|S| = 0$  sind und nicht nur der Komponente in der Ebene  $S_{\parallel}$ . C-Punkte hingegen haben stets einen von null verschiedenen Wert in der Komponente senkrecht zur Oberfläche  $S_z = S_{\perp} \neq 0$ .

In Abbildung 5.19a),b) werden die zuvor bestimmten Nullstellen, inklusive der Vortizität, abgeglichen mit den Nullstellen des gesamten SAMs. Dafür wird, wie bereits in Abbildung 5.17a),b), die Darstellung des Logarithmus gewählt  $\log(S)$ . Liegt eine Nullstelle auf einem hellen Punkt handelt es sich um einen Amplituden-Vortex, welcher mit einem Dreieck gekennzeichnet wird. Alle anderen Punkte bleiben mit Kreisen markiert und sind entsprechend C-Punkte. Auffällig ist, dass alle C-Punkte und alle Amplituden-Vortizes in der gleichen Farbe kodiert sind, was bedeutet, dass sie dasselbe Vorzeichen in der Vortizität haben.

Um ein vollständiges Bild zu erhalten, fehlt nun lediglich die Polarität der C-Punkte. Die  $S_z$ -Komponente in Abbildung 5.19c),d) liefert diese fehlende Information. In dem blauen Bereich zeigen die SAM-Vektoren in die Ebene (Polarität  $P = -1/2$ ). Die C-Punkte, die



**Abb. 5.19.:** Unterscheidung von Amplituden-Vortizes und C-Punkten. Dargestellt ist der negative Logarithmus des gesamten SAMs für das Meron a) und das Meron-Paar b). Die Dreiecke markieren Amplituden-Vortizes und die Kreise C-Punkte. In c) und d) ist die  $S_z$ -Komponente dargestellt, um den C-Punkten eine Polarität zuzuweisen. Negative Polarität auf blauen Bereichen wird durch einen weißen Rand gekennzeichnet, positive Polarität auf roten Bereichen durch einen schwarzen Rand. Amplituden-Vortizes auf den  $S_z = 0$  L-Linien bekommen eine weiße Füllung.

in diesem Bereich liegen werden mit einem weißen Rand markiert. In den roten Bereichen zeigen die Vektoren aus der Ebene hinaus (Polarität  $P = +1/2$ ) und die C-Punkte werden mit einem schwarzen Rand markiert. Amplituden-Vortizes haben keine  $S_z$ -Komponente und können dementsprechend keinen Rahmen haben. Sie liegen auf den Nulllinien von  $S_z$ , die den L-Linien entsprechen und bekommen eine weiße Füllung.

Es fällt direkt auf, dass die horizontalen C-Punkte alle eine positive Polarität haben, während den vertikalen C-Punkten negative Polarität zugewiesen wird. Meronen gleicher Vortizität aber unterschiedlicher Polarität heben sich gegenseitig auf. Nun gilt es zunächst sinnvolle Integrationsgrenzen zu bestimmen um eine Aussage über die Gesamtzahl der C-Punkte zu treffen. Eine Möglichkeit sind die L-Linien, da diese gerade unterschiedliche Polaritäten voneinander trennen. Wird nun das blaue Gebiet betrachtet, das das Meron komplett umschließt, ist zu erkennen, dass die beiden Hantel-Merone sich mit den vertikalen C-Punkten aufheben und lediglich das zentrale Meron bestehen bleibt. Über die Formel 5.5 aus Kapitel 5.1 kann eine Chern-Zahl ermittelt werden, welche mit Polarität  $P = 1/2$  und Vortizität  $V = 1$  eine Chern-Zahl von  $C = 1/2$  ergibt. Es handelt sich demnach tatsächlich um ein Meron. Im nächsten roten Gebiet kommen zwei C-Punkte positiver Polarität hinzu. Die Formel gilt grundsätzlich nur für isolierte C-Punkte und ist hier demnach nicht anwendbar, da zwei C-Punkte in diesem Gebiet liegen. Wird dies vernachlässigt wäre die Summe über die C-Punkte  $C = 3/2$ , wie auch in Publikation von Dai *et al.* [46] beschrieben. Im Unendlichen alterniert das Integral über die L-Linien stets zwischen diesen beiden Werten. Demnach ist die Bezeichnung als Meron auch nur Lokal gerechtfertigt.

Das Meron-Paar ist aus dieser Perspektive problematisch. Wird lediglich der innere 8-förmige rote Bereich betrachtet gibt es zwei C-Punkte gleicher Vortizität und gleicher Polarität, die unter Vernachlässigung der Regel isolierter C-Punkte  $C = 1$  ergeben. Dieses scheinbare Meron-Paar im Zentrum hebt sich jedoch, den blauen Integrationsbereich betrachtend, mit den vertikalen C-Punkten auf und wird damit topologisch trivial  $C = 0$ . Die ins unendliche hin alterniert die Chern Zahl demnach zwischen  $C = 0$  und  $C = 1$ . Global gesehen kann nicht von einem Meron-Paar gesprochen werden. Diese Bezeichnung ist auch lokal nur unter Einschränkungen gerechtfertigt.

Wichtig jedoch ist ein anderer Aspekt. Es ist gelungen Polarität und Vortizität für zwei benachbarte Quasiteilchen eindeutig zuzuordnen. In der Schreibweise  $(P,V)$  wären unterschiedliche Kombinationen an Teilchen möglich gewesen. Nur die genaue Kenntnis von Polarität und Vortizität erlaubt diese Zuordnung. Wie in Kapitel 5.1 in Abbildung 5.2

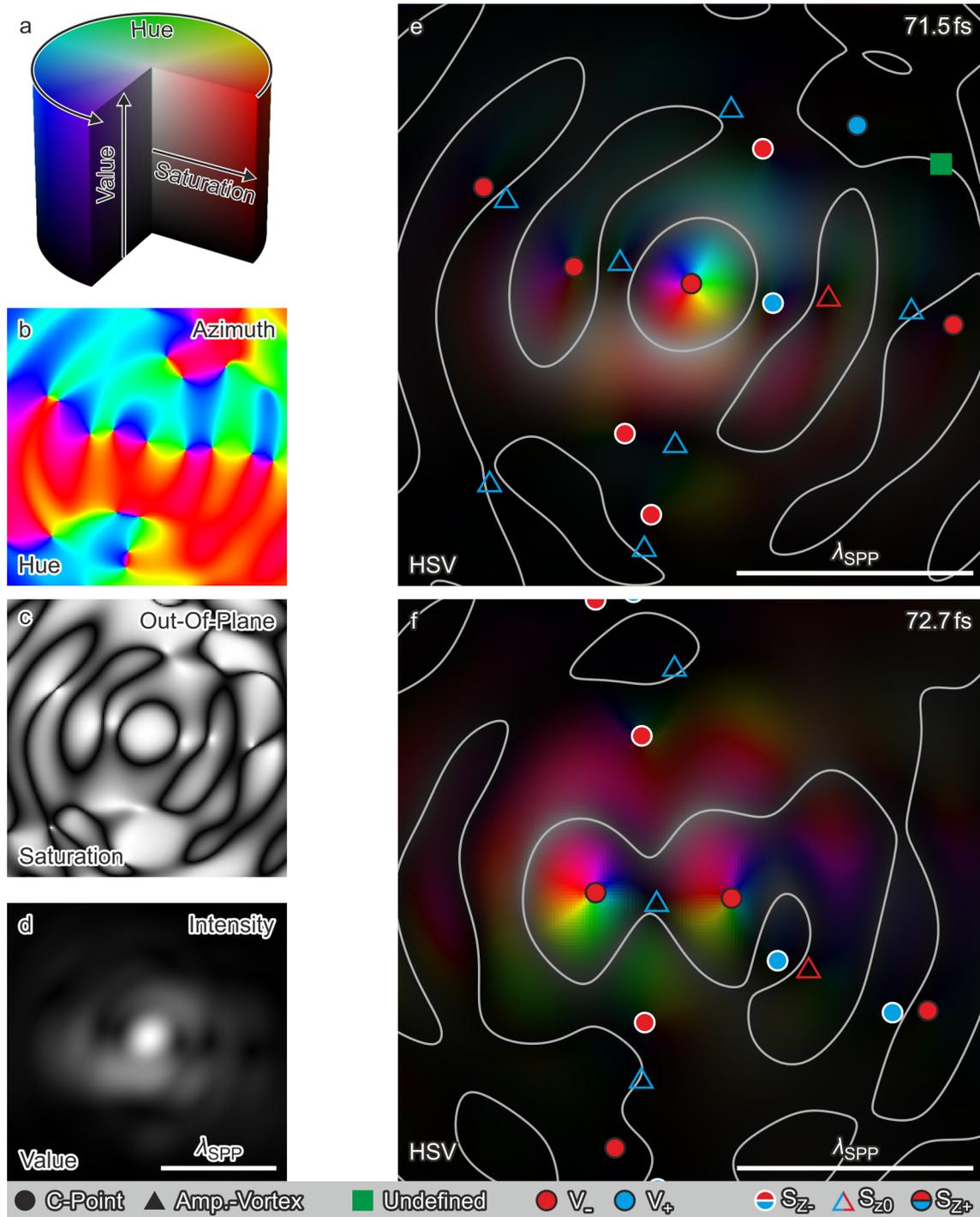
dargestellt sind die möglichen Teilchen Meron-Vortex  $(\frac{1}{2}, 1)$ , Anti-Meron-Vortex  $(-\frac{1}{2}, 1)$ , Meron-Anti-Vortex  $(-\frac{1}{2}, -1)$  und Anti-Meron Anti-Vortex  $(\frac{1}{2}, -1)$ . Die Vektor-Polarimetrie beinhaltet durch die 3D-Rekonstruktion alle notwendigen Informationen und ermöglicht eine genaue lokale Bestimmung sowie die Unterscheidung von C-Punkten und Amplituden-Vortizes. Es handelt sich demnach um ein Meron-Vortex und um ein Paar von Meron-Vortizes.

Es gibt eine Farbdarstellung in der die nun bestimmten Eigenschaften noch etwas deutlicher hervorgehoben werden können. Diese Darstellung ist in Abbildung 5.20 dargestellt. In der sogenannten HSV-Darstellung gibt es drei Kanäle, denen die Größen zugeordnet werden können die hervorgehoben werden sollen. Abbildung 5.20a) zeigt anhand eines ausgeschnittenen Zylinders wie sich die HSV-Darstellung zusammensetzt. Die Einzelkomponenten der HSV-Darstellung für das Meron (Abb. 5.20b)c)d)) werden nun einzeln vorgestellt. Zunächst gibt es den Farbkanal (engl. *hue*) welcher die generelle Farbwiedergabe steuert und die  $2\pi$ -periodische hsv-Farbskala nutzt. Hier ist es sinnvoll, den Azimut zu wählen, um die Vortizität dazustellen (Abb. 5.20b)). Der Sättigungskanal (engl. *saturation*) steuert wie kräftig die Farben sind und geht von weiß zu Vollfarbe. Dieser Kanal ist ideal um Bereiche hervorzuheben. Im Beispiel (Abb. 5.20c)) stellt dieser Kanal den Betrag der Latitude dar, welche sich über

$$\text{Sättigung} = \left| \sin \left( \arctan_2 \left( \frac{\sqrt{S_x^2 + S_y^2}}{S_z} \right) - \pi/2 \right) \right| \quad (5.13)$$

berechnet. Damit ist im Sättigungs-Kanal eine Größe wie die Polarität dargestellt, die jedoch einen etwas weichen Übergang hat als die Darstellung der reinen  $S_z$ -Komponente. Der letzte Kanal gibt den Wert (engl. *value*) wieder. Dieser geht von schwarz zu weiß und eignet sich gut, um absolute Größen darzustellen. Abbildung 5.20d) zeigt den Betrag des SAMs  $|S|$ .

In Abbildung 5.20e) ist die kombinierte Farbdarstellung des Merons und in f) die des Meron-Paars dargestellt (Videos der vollen Zeitserie in [166]). Da sie keine Amplitude haben verschwinden die Amplituden-Vortizes in dieser Darstellung und die C-Punkte wirken verstärkt. Die in der vorherigen Analyse bestimmten Amplituden-Vortizes (Dreiecke) und C-Punkte (Kreise) sind hier überlagert dargestellt. Die Farbe steht für die Vortizität, wobei blau positiv und rot negativ ist und der Rand steht für die  $S_z$ -Komponente. Ein weißer Rand entspricht negativem  $S_z$ , ein schwarzer positivem  $S_z$  und Amplituden-Vortizes behal-



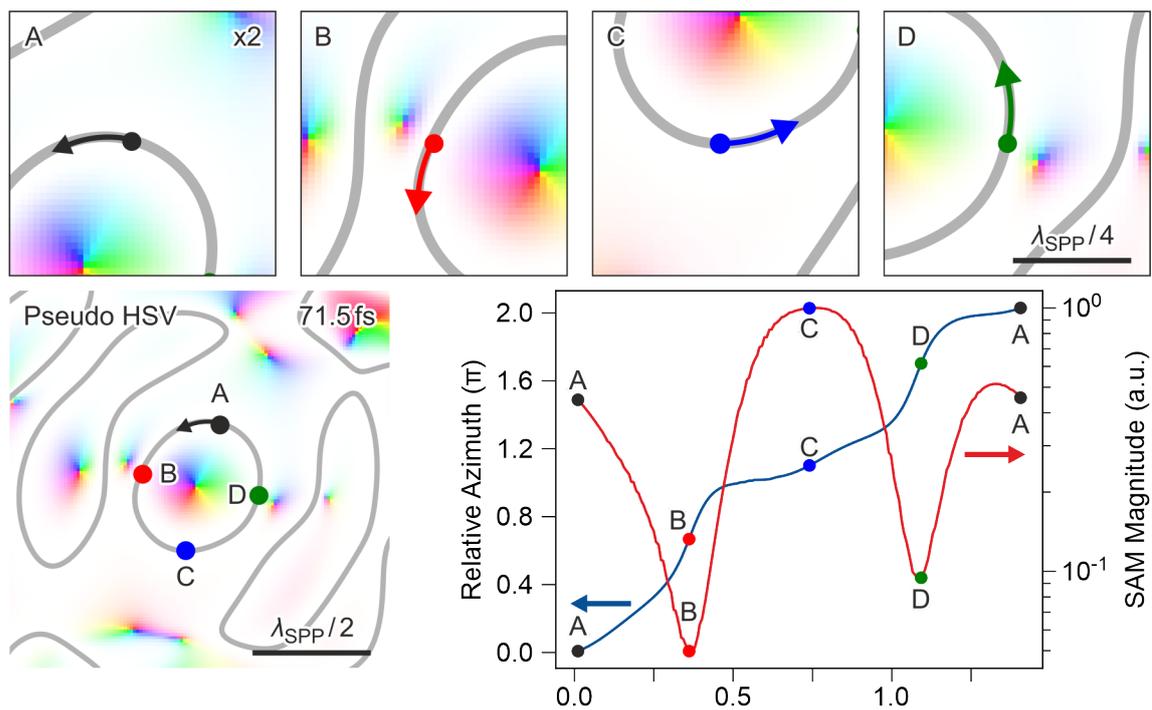
**Abb. 5.20.:** In a) ist ein ausgeschnittener Zylinder dargestellt der die HSV-Darstellung verdeutlicht. Die verschiedenen HSV-Kanäle der HSV-Darstellung b) Farbwert, c) Sättigung und d) Wert werden exemplarisch für das Meron dargestellt, welches in e) zusammengesetzt ist. In f) ist die schematisch gleiche HSV-Darstellung des Meron-Paars dargestellt. Die Amplituden-Vortices und C-Punkte sind als Überlagerung hinzugefügt.

ten die Randfarbe der Vortizität. Sowohl das Meron als auch das Meron-Paar sind in der HSV-Darstellung deutlich zu erkennen. Dabei liegt innerhalb der L-Linie beim Meron lediglich ein C-Punkt. Die C-Punkte an der Hantel als auch die vertikal gelegenen C-Punkte sind deutlich schwächer, aber gut zu erkennen. Die nächste Ordnung an horizontal gelegenen C-Punkten ist noch einmal etwas schwächer. Das grüne Quadrat ist die Nullstelle aus der experimentellen Darstellung in Abbildung 5.18 welche keine eindeutige Zuordnung erlaubte. Hierbei ist anzumerken, dass der rechte C-Punkt in blau und der rote Amplitudenvortex unphysikalisch sind. Nach der Fourier Filterung (Kapitel 5.4.2) bleibt nur noch der mittlere Term aus Gleichung 2.23 bestehen. In der Analyse wird angenommen, dass der  $E_{\text{SPP}}^3$ -Term unter der Annahme schwacher SPP-Felder vernachlässigbar ist. Da die topologischen Felder sehr sensitiv sind, ist die unphysikalische Situation vermutlich auf die Vernachlässigung dieses Terms zurückzuführen. Da in dieser Arbeit nur das zentrale Meron betrachtet wird, ist dies für die weitere Analyse jedoch unerheblich.

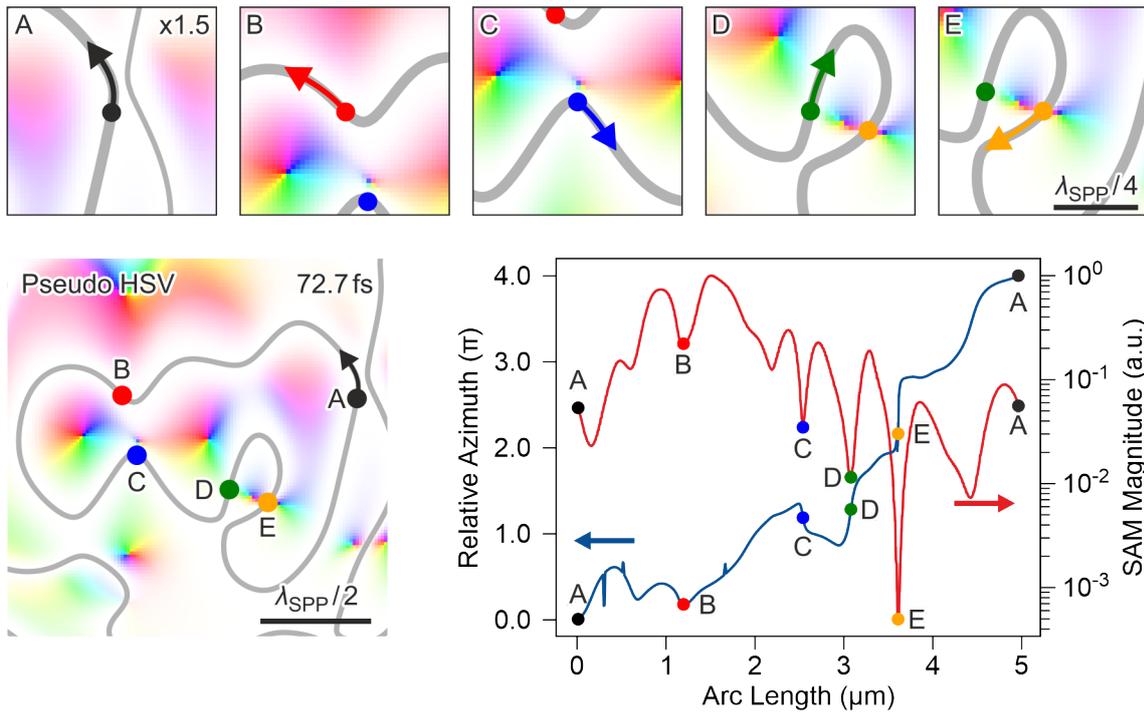
Beim Meron-Paar sind es zwei C-Punkte. Der angehängte Bereich hat keinen eigenen C-Punkt jedoch einen Amplituden-Vortex auf der L-Linie. Die zum Paar gehörigen vertikal gelegenen C-Punkte sind schon deutlich schwächer, alle weiteren nicht mehr zu erkennen. Die HSV-Darstellung ist daher ideal um die doch oft kompliziert und überladen wirkenden Darstellungen auf das Wesentliche zu reduzieren.

In Kapitel 5.1 wurde neben dem Abzählen von C-Punkten eine weitere Methode zur Bestimmung der Chern-Zahl vorgeschlagen. Diese ist für das Meron in Abbildung 5.21 und für das Meron-Paar in Abbildung 5.22 dargestellt. Beide Abbildungen sind in der Pseudo-HSV-Darstellung vom Beginn des Kapitels dargestellt. Bei dieser Methode wird die Änderung des Azimut entlang der L-Linie verfolgt um daraus die summierte Vortizität im Gebiet zu ermitteln. Im Graph in Abbildung 5.21 ist der Verlauf der Azimut-Änderung beginnend an Punkt A als blaue Kurve dargestellt. Die Kurve steigt von 0 auf  $2\pi$  und macht demnach einen vollen Farbumlauf, was einer Vortizität von  $V = 1$  entspricht. Zusammen mit der positiven Polarität  $P = 1/2$  lässt sich dies in eine Chern-Zahl von  $C = 1/2$  übersetzen und bestätigt damit das Meron.

Es wird erwartet, dass der Azimut linear ansteigt. Die Beobachtung zeigt jedoch, dass der Azimut zwei Sprungstellen aufweist. Der Graph wurde deshalb um die rote Kurve ergänzt, die die Größe des SAMs abbildet. Hier wird deutlich, dass die Sprünge im Azimut mit um einer um eine Größenordnung schwächeren Intensitäten korrelieren. Aus diesem Grund wurden markante Punkte entlang der Kontur ausgesucht und in der Pseudo-HSV-Darstellung markiert. Dafür wird eine Vergrößerung des Bereichs aus Abbildung 5.16 und



**Abb. 5.21.:** Analyse des Azimut entlang der L-Linie in der Pseudo-HSV-Farbskala des Merons. Die Änderung des Azimut ab dem Startpunkt A ist in blau im Graphen dargestellt. Die Magnitude des SAMs in rot zu sehen. Markante Punkte des Graphen sind als A-D in der Kopfzeile vergrößert gezeigt.



**Abb. 5.22.:** Analyse des Azimut entlang der L-Linie in der Pseudo-HSV-Farbskala des Merons-Paars. Die Änderung des Azimut ab dem Startpunkt A ist in blau im Graphen dargestellt. Die Magnitude des SAMs in rot zu sehen. Markante Punkte des Graphen sind als A-E in der Kopfzeile vergrößert gezeigt.

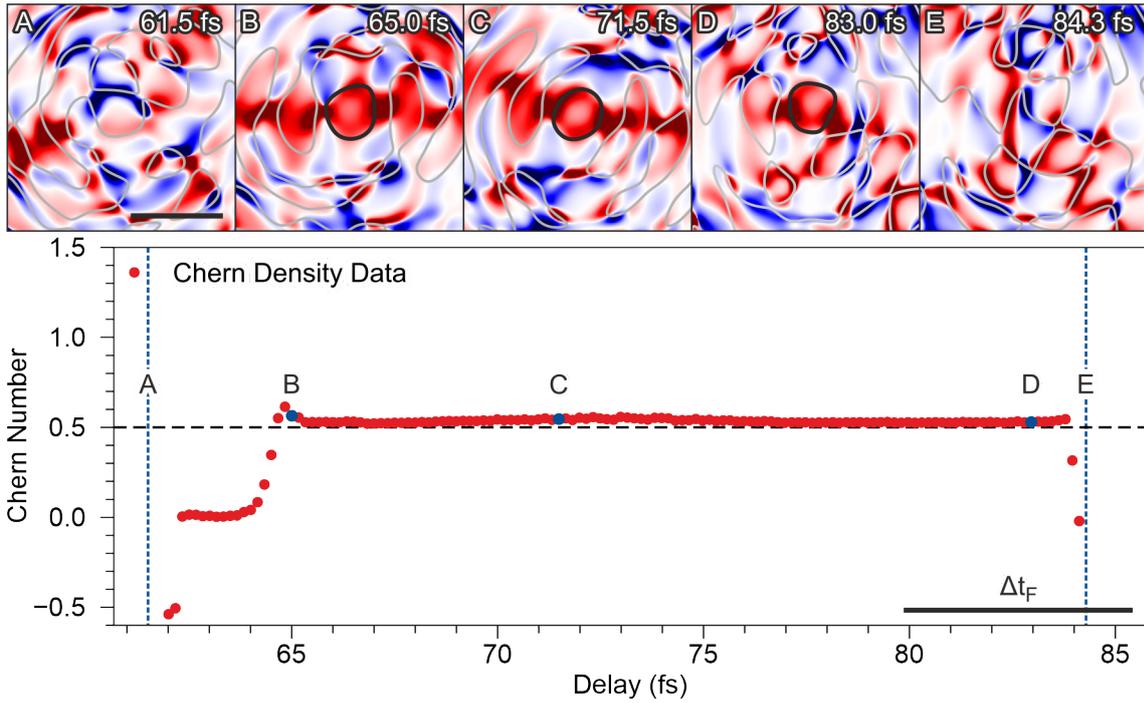
eine wiederum eineinhalbfache Vergrößerung davon in der Kopfzeile dargestellt. Dort sind im Bild zentriert die markanten Punkte A-D. Die Integrationsrichtung ist durch Pfeile angedeutet. Am Startpunkt A und am Punkt C ist noch nichts Besonderes zu sehen, da diese einen großen Abstand zu C-Punkten und Amplituden-Vortizes haben. Die Sprungbereiche des Azimut liegen in B und D, neben den Amplituden-Vortizes. Die Amplituden-Vortizes beeinflussen demnach den Verlauf des Azimut ein wenig, aber ändern die Topologie nicht. Die Abszisse ist in der Bogenlänge angegeben und verdeutlicht noch einmal auf welcher kleinen Größenskalen ( $\approx 1.5 \mu\text{m}$ ) gearbeitet wird.

Das Meron-Paar in Abbildung 5.22 zeigt in seiner seltsamen Form einen entsprechend komplizierteren Verlauf im Plot. Die Farbdarstellung entspricht der aus der vorherigen Abbildung und auch hier sind Vergrößerungen der markanten Punkte in der Kopfzeile dargestellt. Trotz des komplizierten Verlaufs ergibt das Integral über den Azimut  $4\pi$  und damit eine Vortizität von 2. Mit den Polaritäten mit  $P = 1/2$  kombiniert, ergibt sich eine Chern-Zahl von  $C = 1$ . Hier könnten noch deutlich mehr markante Punkte betrachtet

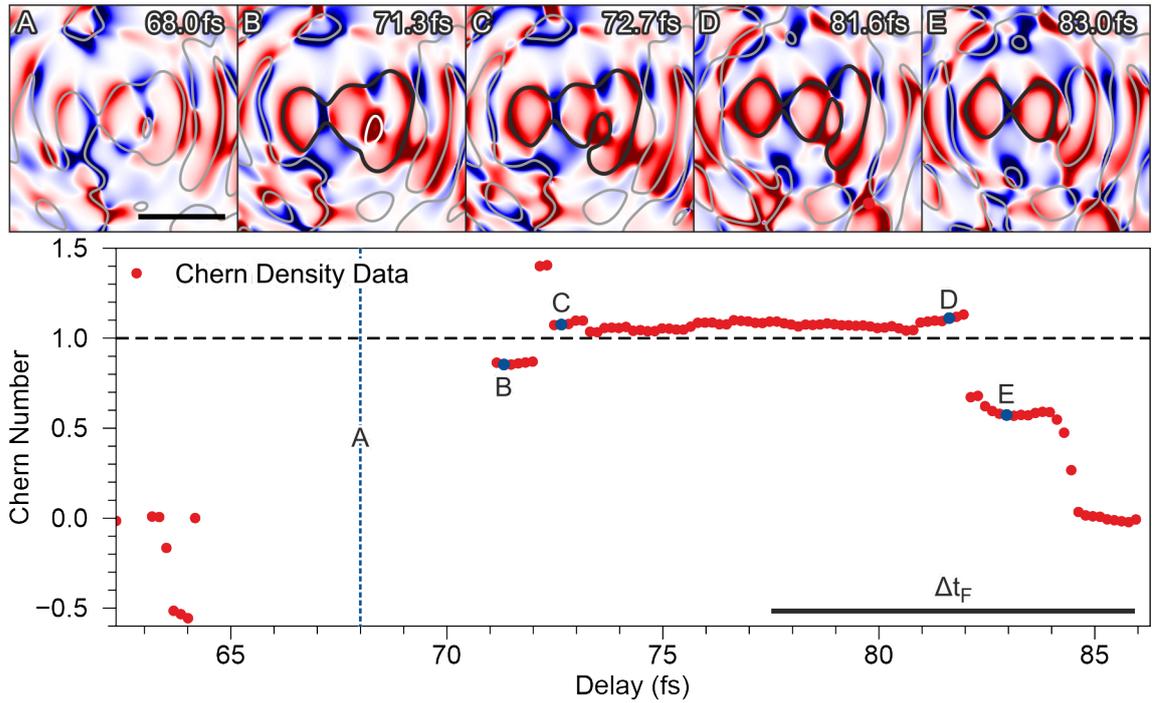
werden, aber es wurden die wesentlichen Punkte ausgewählt. Vom Startpunkt A wird der Verlauf des Azimut wieder in mathematisch positivem Sinn verfolgt. Es fällt direkt auf, dass die Rundungen der L-Linie sich im Azimut widerspiegeln. Der erste Amplituden-Vortex zwischen dem Meron-Paar sorgt nur für einen Einbruch in der SAM-Magnitude in B und C. Die markanten Punkte bei D und E liegen an einem C-Punkt mit negativer Vortizität, welcher direkt neben dem Amplituden-Vortex liegt, welcher auf der L-Linie bei E liegt. Es ist auffällig, dass die Magnitude in D schon um zwei Größenordnungen einbricht, obwohl kein Amplituden-Vortex anliegt. Dies bedeutet, dass aus der reinen Magnitude nur Hinweise auf Amplituden-Vortizes abgeleitet werden können. Lediglich in Fällen wie in E, wo der Amplituden-Vortex direkt auf oder an der L-Linie liegt, ist durch den Einbruch der Amplitude um mehr als drei Größenordnungen eine relativ sichere Aussage möglich. Im Azimut übersetzt sich dies in einem Sprung in E. Auch zu erkennen ist, dass die SAM-Magnitude im Hauptbereich des Meron-Paars stärker ist als im angehängten Bereich. Mit dieser Auswertung kann zunächst ausgeschlossen werden, dass ein weiterer C-Punkt in der L-Linie liegt und demnach kann zumindest lokal begrenzt von einem Meron-Paar gesprochen werden.

Wie bereits in Kapitel 5.1 beschrieben, ist die gängigste Variante die Chern-Zahl zu ermitteln, das Integral über die Quasipartikeldichte. Ein Integral ins Unendliche ist bei experimentellen Daten nicht möglich, demnach ist es notwendig geeignete Grenzen zu finden. In der letzten Auswertung hat sich gezeigt, dass die L-Linien als Grenzen durchaus plausible Lösungen liefern. In Abbildung 5.23 ist die aus der Quasipartikeldichte extrahierte Chern-Zahl über die Verzögerungszeit für das Meron aufgetragen. Markante Zeitpunkte A-E (in blau gekennzeichnet) sind als Quasipartikeldichte in einem Streifen über dem Graphen zu sehen. Die Quasipartikeldichte geht von negativ (blau) hin zu positiv (rot). Die L-Linien sind in grau überlagert und der Integrationsbereich ist in schwarz gekennzeichnet.

Im ersten Bild A bei 61.5 fs ist das Meron noch nicht vollständig ausgebildet, die seitlichen C-Punkte fehlen gänzlich und die Chern-Zahl ist durch den prägnanten blauen Bereich zu gering. Dies ist der Aufbaubereich des Merons. Bei B mit 65.0 fs ist das Meron aufgebaut und der stabile Bereich beginnt. In C ist mit 71.5 fs der Zeitschritt dargestellt, der auch bei den Auswertungen zuvor oft gezeigt wurde. Bei D mit 83.0 fs beginnt es instabil zu werden. Die Chern-Zahl ist noch die des Merons, aber die hantelartigen C-Punkte beginnen sich zu verschieben. Das letzte Bild E mit 84.3 fs ist im Graphen als Linie dargestellt. Dieser Bereich ist nicht mehr abbildbar, da die L-Linie des zentralen Merons mit den äußeren L-Linien verschmolzen ist und somit kein Wert bestimmt werden kann.



**Abb. 5.23.:** Zeitabhängigkeit der Chern-Zahl des Merons. Die markanten Zeitpunkte A-E, im Graphen blau markiert (Datenpunkte oder Linie), sind in der Kopfzeile in Form von der Quasipartikeldichte zu sehen. Die Chern-Zahl entspricht dem Integral über die schwarz markierte Kontur in der Quasipartikeldichte. L-Linien sind in grau überlagert. Es gilt zu beachten, dass durch das Fourier-Filtern die Daten periodisch mit der Halbwertsbreite  $\Delta t_F$  gefaltet werden.



**Abb. 5.24.:** Zeitabhängigkeit der Chern-Zahl des Meron-Paars. Die markanten Zeitpunkte A-E, im Graphen blau markiert (Datenpunkte oder Linie), sind in der Kopfzeile in Form von der Quasipartikeldichte zu sehen. Die Chern-Zahl entspricht dem Integral über die schwarz markierte Kontur in der Quasipartikeldichte. L-Linien sind in grau überlagert. Die weiß markierte Kontur im zweiten Bild wird von der schwarzen abgezogen. Fehlende Datenpunkte entsprechen Bereichen, in denen keine Chern-Zahl bestimmt werden konnte. Es gilt zu beachten, dass durch das Fourier-Filtern die Daten periodisch mit der Halbwertsbreite  $\Delta t_F$  gefaltet werden.

Durch eine sehr schmale Filterung in der zeitlichen Fourier-Transformation 180 THz ist jeder Datenpunkt mit einem Gauß der Breite  $\delta t_F = 5.6$  fs gefaltet, welcher als Maßstab in der unteren Ecke dargestellt ist. Da die Randbedingungen der Fourier Transformationen periodisch sind, sind vor allem zum Anfang und Ende der Messreihe hin Artefakte zu erwarten. Es gilt zu beachten, dass der Graph den ganzen Bereich der Messung abdeckt. Zu den ersten 7 und letzten 11 Datenpunkten der Messreihe konnte keine Chern-Zahl bestimmt werden, sodass diese Punkte im Graphen nicht dargestellt werden.

Im Fall des Meron-Paars ist der Verlauf deutlich komplizierter. In Abbildung 5.24 ist die Chern-Zahl des Meron-Paars über die Zeit aufgetragen. Hier verschmelzen die L-Linien oder trennen sich auf, sodass über weite Bereiche keine Chern-Zahl bestimmt werden kann. In anderen Bereichen kann die Chern-Zahl zwar ermittelt werden, jedoch ergibt sich kein

sinnvoller Wert für die Chern-Zahl. Dies liegt vor allem daran, dass bei der zeitlichen Fourier-Filterung mit 120 THz ein sehr enges Fenster gewählt wurde. Aufgrund von störenden Artefakten durch an den Kanten ausgelösten SPPs war dies jedoch unvermeidbar. Es ergibt sich eine Faltung der Datenpunkte mit einer Breite von  $\delta t_F = 8.3$  fs.

Im Anfangsbereich konnte zwar eine Kontur ermittelt werden, jedoch ist dies außerhalb des Überlapps der Pulse. Es schließt sich ein Bereich an in dem die innere Kontur mit den äußeren Linien verschmolzen ist und keine Chern-Zahl ermittelt werden kann. Zum Zeitpunkt 68.0 fs (gestrichelte Linie) ist dies exemplarisch dargestellt.

Das Bild B bei 71.3 fs liegt im stabilen Bereich und ist repräsentativ für eine Folge an Datenpunkten mit einer eingeschlossenen Kontur (weiß) innerhalb der ausgewerteten Kontur (schwarz). Bei der Analyse muss die weiße Kontur von der Schwarzen abgezogen werden, was zu einer leicht nach unten abweichenden Chern-Zahl führt. Der stabile Bereich setzt sich mit dem Zeitpunkt C mit 72.7 fs, der aus vorherigen Auswertungen bereits bekannt ist, mit einer relativ gut passenden Chern-Zahl von  $C = 1$  fort. In E bei 83.0 fs wird nur noch ein unphysikalischer Wert von  $C \approx 1/2$  erreicht. In den Zeitbereichen unter 65 fs und um 82 fs überlappen die Laser-Pulse nicht mehr vollständig. Somit existieren keine C-Punkte. Außerdem liegen diese Zeitbereiche tief im Bereich, wo Fourier-Artefakte eine Rolle spielen.

Es zeigt sich, dass das Meron im Bereich von ca. 65 fs bis 84 fs stabil ist. Dieser Zeitbereich entspricht mehr als sieben optischen Zyklen. Es konnte somit gezeigt werden, dass ein stabiles Meron aus den experimentell bestimmten Feldern extrahiert werden kann. Dies spricht stark für die Methode der Vektor-Polarimetrie. Auch dass nur lokal zu betrachtende und ansonsten topologisch triviale Meron-Paar hat einen einigermaßen stabilen Bereich von ca. 71 fs bis 82 fs. Dies sind immerhin noch vier optische Zyklen.

## Diskussion und Ausblick

Die Ergebnisse dieser Arbeit umfassen zwei Kernbereiche: Die Entwicklung der Vektor-Mikroskopie zur Vermessung von oberflächengebundenen SPP-Feldern auf der Nanometerskala mit sub-Femtosekunden Zeitauflösung und die Anwendung dieser neuen Technik zur Untersuchung von plasmonischen topologischen Quasiteilchen.

Diese Arbeit baut auf der Kombination von einem Anrege-Abfrage-Experiment mit aktiv stabilisierten Interferometer mit einem PEEM auf [87]. Mit dem ursprünglichen Aufbau war es möglich SPPs zeitaufgelöst zu messen und durch Anregung verschiedener Strukturen konnten Eigenschaften wie Propagation [66, 91] oder Fokussierung von SPPs [90, 167] analysiert und charakterisiert werden. Es wurden, wie auch in dieser Arbeit, archimedische Spiralstrukturen verwendet, um den Spin-Drehimpuls des Lichtes und seine Konversion in OAM zu zeigen [116].

In der Vektor-Mikroskopie sollen aus den gemessenen dynamischen Kontrasten im Anrege-Abfrage-Experiment die SPP-Felder rekonstruiert werden. Um die Vektor-Mikroskopie zu ermöglichen sind einige bauliche Änderungen am ursprünglichen Aufbau notwendig. Zunächst wurde ein Detektorwechsel vorgenommen und anschließend das Vektor-Interferometer in zwei Etappen zunächst aufgebaut und dann umgebaut. Gerade bei den starken Kontrasten in fokussierenden Strukturen wurde die Extraktion der dynamischen Effekte durch die Eigenschaften des MCP-Systems erschwert. Durch die in Kapitel 2.3 beschriebene Inbetriebnahme des F216 Detektors wurden der Dynamikumfang und das Rauschniveau im Experiment erheblich verbessert [89]. Der neue Detektor ermöglicht so die Messung von Effekten und Größen, die ansonsten nicht zugänglich gewesen wären.

Um mit der Vektor-Mikroskopie elektromagnetische Felder zu rekonstruieren, müssen mindestens zwei linear unabhängige Projektionen des Feldes gemessen werden (Kap. 3.1). Dafür müssen Anrege- und Abfrage-Polarisation individuell einstellbar sein (Kap. 3.3). In

der in Davis *et al.* publizierten [152] ersten Ausbaustufe wurden zunächst die Felder eines plasmonischen Skymion-Gitters rekonstruiert und anschließend wurde die Windungszahl bestimmt (Kap. 4.3). Dabei fielen technische Herausforderungen, vor allem in Bezug auf die Langzeitstabilität, auf (Kap. 3.4), die mit der Vektor-Polarimetrie behoben werden (Kap. 5.3.2) .

Die Vektor-Polarimetrie (Kap. 5.4) profitierte von der im Rahmen eines anderen Projektes etablierten Laborautomatisierung. So konnte die Datenqualität durch Optimierung des Messprozesses verbessert werden. Weiterhin ist durch die Aufnahme von spektralen Interferenzen der Anrege- und Abfrage-Pulse (Kap. 5.4.2) nun auch die Phaseninformation zugänglich und somit der vollständige Jones-Polarisationszustand.

Die Vektor-Polarimetrie erweist sich als substanzielle Erweiterung der Vektor-Mikroskopie. Die deutlich verbesserte Stabilität von 230 as in der Vektor-Mikroskopie auf 8 as in der Vektor-Polarimetrie und die genauere Bestimmung des Feldes durch die vier Abfrage-Polarisationen ermöglicht es deutlich empfindlichere Größen zu studieren.

So kann nicht nur die Topologie im elektrischen Feld (Skymion-Gitter in Kapitel 4.3), sondern auch die deutlich empfindlichere Topologie im SAM (Kap. 5.5) untersucht werden. Demzufolge wurden das plasmonische Meron und Meron-Paar zeitaufgelöst analysiert [166]. Durch die Genauigkeit der Vektor-Polarimetrie ist es erst möglich die Chern-Zahl aus der experimentell empfindlichen Quasipartikel-Dichte zu extrahieren und damit die dynamische Stabilität von topologischen Strukturen nachzuweisen.

Wie bereits in der Motivation (Kap. 1) erwähnt gibt es Methoden die zumindest in einige Aspekte der Feldrekonstruktionen ermöglichen. Einige Methoden haben Zugriff auf die Intensitäten einzelner Feldkomponenten, jedoch fehlen Informationen über die Vektornatur. Im PINEM [8] kann über die Elektron-Photon-Interaktion im Nahfeld einer Nanostruktur das zeitliche Verhalten des elektrischen Feldes studiert werden. Dabei werden eine extrem hohe Ortsauflösung mit Femtosekunden-Zeitauflösung kombiniert. Es wurde gezeigt, dass durch verschiedene Polarisationen des Lichtes die Feldüberhöhungen an Nanostrukturen vermessen werden können [168][169].

Im SNOM hingegen ist es der Gruppe von Prof. Dr. Kobus Kuipers [10–12] gelungen die orthogonalen Komponenten des elektromagnetischen Feldes über zwei an Lock-in-Detektoren gekoppelte Photodetektoren zu bestimmen. Analog zur Vektor-Mikroskopie könnten im SNOM so nicht nur die Felder rekonstruiert werden sondern auch das SAM bestimmt werden. Durch die Kenntnis der Nullstellen in der Ebene (2D) kann die Euler-Poincaré-Charakteristik im Poincaré-Hopf-Theorem überprüft werden. Weiterhin können

C-Punkten (2D-Nullstellen) und Amplituden-Vortizes (3D-Nullstellen) eindeutig unterschieden werden, was nur mit einer dreidimensionalen Feldrekonstruktion möglich ist. Die Schwäche des SNOMs ist die fehlende Zeitauflösung und die Dauer pro Bildaufnahme dieser rasternden Methode. Die Besonderheit der Vektor-Polarimetrie als direkt abbildende Methode, ist die Möglichkeit auch die zeitliche Stabilität von topologischen Strukturen zu untersuchen. So kann die Dynamik von L-Linien und C-Punkten und Amplituden-Vortizes, aber auch die Chern Dichte untersucht werden.

Eine ähnliche Zeitauflösung bietet die Methode von Dai *et al.* [46], die mithilfe eines optischen Fluss Algorithmus im zeitaufgelösten PEEM L-Linien identifizieren. Aufgrund der kleinen Signaländerungen ist jedoch nur eine grobe örtliche Auflösung gegeben. Um Aussagen zum zeitlichen Verlauf der plasmonisch-topologischen Quasiteilchen zu treffen, werden die Daten daher mit Simulationen verglichen und so entsprechende Merkmale identifiziert. Im Gegensatz zur Vektor-Polarimetrie bietet die Methodik jedoch keine Vektorinformationen und ist so auf Aussagen in 2D begrenzt.

Eine Methode, die der Vektor-Polarimetrie sehr nahekommt, ist das NNOM [13]. Kombiniert mit einem Anrege-Abfrage-Lasersystem bietet sie das optische Gegenstück zur elektronenoptischen Vektor-Polarimetrie. Während die Echtzeit-Darstellung der Vektor-Felder im NNOM als überlegende Eigenschaft zu nennen ist, ist die Auflösung eine begrenzt verbesserbare Größe. NNOM könnte die ideale Ergänzung zur Vektor-Polarimetrie sein, da die Methode sehr gut geeignet ist zunächst einen Überblick zu gewinnen, bevor Messungen mit der aufwendigeren Vektor-Polarimetrie vorgenommen werden.

Die in dieser Arbeit entwickelte Vektor-Polarimetrie erweist sich, durch die Möglichkeit der vollständigen Rekonstruktion von Vektorfeldern und deren Dynamik, als ideale Erweiterung der bisher bestehenden Methoden aus diesem Feld und hebt sich in einigen Teilaspekten von den bestehenden Methoden ab. Im wissenschaftlichen Kontext der Nanophotonik kann die Methodik einen substanziellen Beitrag für zukünftige Untersuchungen liefern.

Mit der Vektor-Polarimetrie können auch andere Strukturen phasensensitiv vermessen werden. Dabei kann jede beliebige Feldkonfiguration rekonstruiert werden, die durch eine Anrege-Struktur erzeugt werden kann. Metastrukturen sind hier interessant, da sie unterschiedlichste Feldkonfigurationen ermöglichen und damit vielseitige Möglichkeiten bieten. So könnten zum Beispiel die im Rahmen dieser Arbeit zeitaufgelöst untersuchten Nanosiebe [113] interessante Feldverteilungen aufweisen. Im Folgenden sollen noch einige laufende und geplante Projekte vorgestellt werden, die auf der Vektor-Polarimetrie beruhen.

In Kooperation mit der Gruppe von Prof. Dr. Harald Gießen aus Stuttgart wird die Vektor-Polarimetrie auf ein modifiziertes Skyrmion-Gitter angewendet. Durch das verdrehen zweier Skyrmion-Anrege-Strukturen unter einem definierten Winkel entsteht ein charakteristisches Muster im elektrischen Feld. Dabei entstehen isolierte Gebiete mit je einem Skyrmion, dass von 6 weiteren Skyrmionen umschlossen wird. Diese werden deswegen auch als *skyrmion bags* bezeichnet.

Auch interessant ist die Vektor-Polarimetrie an Quasikristallen, die in einer Kooperation mit der Gruppe von Prof. Dr. Guy Bartal vom Technion Israel Institute of Technology in Haifa untersucht werden. Zweidimensionale Quasikristalle besitzen weder eine Translations- noch Rotationssymmetrie in 2D und können nur mit einer höherdimensionalen Symmetrie beschrieben werden. Im Fall eines plasmonischen Pentagons wird der zur Beschreibung notwendige 4D-Raum über zwei Phonon-Freiheitsgrade und über zwei Phason-Freiheitsgrade beschrieben.

Einige Teilaspekte der Vektor-Polarimetrie können noch verbessert werden. Ein zentrales Problem ist die Nutzung von Caesium zur Absenkung der Austrittsarbeit. Im aktuellen Anrege-Abfrage-Experiment müssen die Gold-Proben über die stabile Bedeckung hinaus caesiumiert werden, um eine Emission in zweiter Ordnung zu erreichen. Abdampfen vom Caesium oder Adsorption von Verunreinigungen aus dem Vakuum führen zur Erhöhung der Austrittsarbeit und damit zu einer zunehmenden Abschwächung der Intensität während der Messung.

Ein neuer Ansatz von M.Sc. Pascal Dreher und M.Sc. Alexander Neuhaus basiert auf einer Emission in dritter Ordnung. Für einen Prozess dritter Ordnung reicht eine geringe Bedeckung, die für Stunden oder sogar Tage stabil ist, ohne neues Caesium aufdampfen zu müssen. In diesem neuen Ansatz wird das Vektor-Interferometer um einen, durch einen dichroitischen Strahlteiler abgetrennten, weiteren Zweig mit entsprechender Verzögerungstrecke erweitert. Am Ausgang des Femtosekunden-Lasers wird die zweite harmonische generiert, wobei der rote Anteil wie gewohnt durch das Interferometer geleitet wird und der blaue Anteil in den neuen Zweig geleitet wird. Durch die höhere Austrittsarbeit des mit weniger Cs bedeckten Golds reicht es für die Emission nicht, wenn nur der rote oder nur der blaue Anteil auf der Probe ist. Der blaue Puls wird zeitlich stark verbreitert und wird als Begrenzungsfenster für die Emission genutzt. Es entsteht ein Emissionskanal mit direkter linearer Abhängigkeit im Skalarprodukt, was das Fourier-Filtern unnötig macht. Das Problem mit der Fourier-Filterung in der Auswertung, also die Faltung der Datenpunkte mit einem der zeitlichen Halbwertsbreite des Filters entfällt.

Neben den Vorteilen der Vektor-Polarimetrie an sich bietet das Gesamtsystem SPE-LEEM noch weitere Vorteile. Das System bietet, wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben, Möglichkeiten der *in-situ*-Probenpräparation. Durch zusätzliche Verdampfer, kann somit nicht nur auf reinen Oberflächen Vektor-Polarimetrie betrieben werden, sondern auch auf atomaren Schichtsystemen. Das SPE-LEEM bietet dazu noch Charakterisierungsmethoden mit LEED,LEEM im Hell- und Dunkelfeld, verschiedenste Aperturen zur detaillierten Analyse ( z.B.:  $\mu$ -LEED), aber auch energetische Analysen in der dispersiven Ebene.



## Literatur

1. Abbe, E. Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung. *Archiv für Mikroskopische Anatomie* **9**, 413–468. doi:10.1007/bf02956173 (1873).
2. Rayleigh. XXXI. Investigations in optics, with special reference to the spectroscope. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **8**, 261–274. doi:10.1080/14786447908639684 (1879).
3. Rayleigh. XV. On the theory of optical images, with special reference to the microscope. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **42**, 167–195. doi:10.1080/14786449608620902 (1896).
4. Ash, E. A. & Nicholls, G. Super-resolution aperture scanning microscope. *Nature* **237**, 510–2. doi:10.1038/237510a0 (1972).
5. Brüche, E. Elektronenmikroskopische Abbildung mit lichtelektrischen Elektronen. *Zeitschrift für Physik* **86**, 448–450. doi:10.1007/bf01341360 (1933).
6. Harrick, N. J. Surface Chemistry from Spectral Analysis of Totally Internally Reflected Radiation. *The Journal of Physical Chemistry* **64**, 1110–1114. doi:10.1021/j100838a005 (1960).
7. Williams, P. M. & Yoffe, A. D. Monochromatic Cathodoluminescence Image in the Scanning Electron Microscope. *Nature* **221**, 952–953. doi:10.1038/221952a0 (1969).
8. Barwick, B., Flannigan, D. J. & Zewail, A. H. Photon-induced near-field electron microscopy. *Nature* **462**, 902–6. doi:10.1038/nature08662 (2009).

9. Hillier, J. & Baker, R. F. Microanalysis by Means of Electrons. *Journal of Applied Physics* **15**, 663–675. doi:10.1063/1.1707491 (1944).
10. Le Feber, B., Sipe, J. E., Wulf, M., Kuipers, L. & Rotenberg, N. A Full Vectorial Mapping of Nanophotonic Light Fields. *Light Sci Appl* **8**, 28. doi:10.1038/s41377-019-0124-3 (2019).
11. Le Feber, B., Rotenberg, N., Beggs, D. M. & Kuipers, L. Simultaneous measurement of nanoscale electric and magnetic optical fields. *Nature Photonics* **8**, 43–46. doi:10.1038/nphoton.2013.323 (2013).
12. Rotenberg, N. & Kuipers, L. Mapping nanoscale light fields. *Nature Photonics* **8**, 919–926. doi:10.1038/nphoton.2014.285 (2014).
13. Frischwasser, K. *et al.* Real-Time Sub-Wavelength Imaging of Surface Waves with Nonlinear Near-Field Optical Microscopy. *Nature Photonics*. doi:10.1038/s41566-021-00782-2 (2021).
14. Führer, L. *Allgemeine Topologie mit Anwendungen* ISBN: 978-3-528-03059-9 (Vieweg und Teubner, 1977).
15. Euler, L. Elementa doctrinae solidorum. *Novi Commentarii academiae scientiarum Petropolitanae* **4**, 109–140 (1758).
16. Brückler, F. M. *Geschichte der Mathematik kompakt* ISBN: 978-3-662-55573-6 978-3-662-55574-3. doi:10.1007/978-3-662-55574-3 (2018).
17. Stillwell, J. *Mathematics and Its History* ISBN: 978-1-4419-6052-8 978-1-4419-6053-5. doi:10.1007/978-1-4419-6053-5 (2010).
18. Poincaré, M. H. Complément à analysis situs. *Rendiconti del Circolo Matematico di Palermo* **13**, 285–343. doi:10.1007/bf03024461 (1899).
19. Poincaré, H. Second Complément à l'Analysis Situs. *Proceedings of the London Mathematical Society* **s1-32**, 277–308. doi:10.1112/plms/s1-32.1.277 (1900).
20. Poincaré, H. Sur les cycles des surfaces algébriques: quatrième complément à l'Analysis Situs. *Journal de mathématiques pures et appliquées* **8**, 169–214 (1902).

21. Poincaré. Sur certaines surfaces algébriques. Troisième complément à l'Analysis Situs. *Bulletin de la Société Mathématique de France* **2**, 49–70. doi:10.24033/bsmf.657 (1902).
22. Poincaré, M. H. Cinquième complément à l'Analysis Situs. *Rendiconti del Circolo Matematico di Palermo* **18**, 45–110. doi:10.1007/bf03014091 (1904).
23. Hopf, H. Vektorfelder in n-dimensionalen Mannigfaltigkeiten. *Mathematische Annalen* **96**, 225–249. doi:10.1007/bf01209164 (1927).
24. Simon, D. S. *Tying Light in Knots: Applying topology to optics* ISBN: 978-1-64327-234-4. doi:10.1088/2053-2571/aaddd5 (2018).
25. Adrien, P. & Dirac, M. Quantised singularities in the electromagnetic field. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **133**, 60–72. doi:10.1098/rspa.1931.0130 (1931).
26. Ehrenberg, W. & Siday, R. E. The Refractive Index in Electron Optics and the Principles of Dynamics. *Proceedings of the Physical Society. Section B* **62**, 8–21. doi:10.1088/0370-1301/62/1/303 (1949).
27. Aharonov, Y. & Bohm, D. Significance of Electromagnetic Potentials in the Quantum Theory. *Physical Review* **115**, 485–491. doi:10.1103/PhysRev.115.485 (1959).
28. Bardeen, J. & Stephen, M. J. Theory of the Motion of Vortices in Superconductors. *Physical Review* **140**, A1197–A1207. doi:10.1103/PhysRev.140.A1197 (1965).
29. Klitzing, K. v., Dorda, G. & Pepper, M. New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance. *Physical Review Letters* **45**, 494–497. doi:10.1103/PhysRevLett.45.494 (1980).
30. Al Khawaja, U. & Stoof, H. Skyrmions in a ferromagnetic Bose-Einstein condensate. *Nature* **411**, 918–20. doi:10.1038/35082010 (2001).
31. Mühlbauer, S. *et al.* Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet. *Science* **323**, 915–919. doi:10.1126/science.1166767 (Feb. 2009).

32. Romming, N. *et al.* Writing and deleting single magnetic skyrmions. *Science* **341**, 636–9. doi:10.1126/science.1240573 (2013).
33. Maccariello, D. *et al.* Electrical detection of single magnetic skyrmions in metallic multilayers at room temperature. *Nat Nanotechnol* **13**, 233–237. doi:10.1038/s41565-017-0044-4 (2018).
34. Iguchi, R. *et al.* Thermoelectric microscopy of magnetic skyrmions. *Scientific Reports* **9**. doi:10.1038/s41598-019-54833-4 (2019).
35. Wang, Y. *et al.* Electric-field-driven non-volatile multi-state switching of individual skyrmions in a multiferroic heterostructure. *Nat Commun* **11**, 3577. doi:10.1038/s41467-020-17354-7 (2020).
36. Yu, X. Z. *et al.* Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal. *Nature* **465**, 901–4. doi:10.1038/nature09124 (2010).
37. Nagaosa, N. & Tokura, Y. Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions. *Nat Nanotechnol* **8**, 899–911. doi:10.1038/nnano.2013.243 (2013).
38. Büttner, F. *et al.* Dynamics and inertia of skyrmionic spin structures. *Nature Physics* **11**, 225–228. doi:10.1038/nphys3234 (2015).
39. Deng, Z. L., Shi, T., Krasnok, A., Li, X. & Alu, A. Observation of localized magnetic plasmon skyrmions. *Nat Commun* **13**, 8. doi:10.1038/s41467-021-27710-w (2022).
40. Hoffmann, M. *et al.* Antiskyrmions stabilized at interfaces by anisotropic Dzyaloshinskii - Moriya interactions. *Nat Commun* **8**, 308. doi:10.1038/s41467-017-00313-0 (2017).
41. Nakajima, T. *et al.* Skyrmion lattice structural transition in MnSi. *Sci Adv* **3**, e1602562. doi:10.1126/sciadv.1602562 (2017).
42. Taguchi, Y., Oohara, Y., Yoshizawa, H., Nagaosa, N. & Tokura, Y. Spin chirality, Berry phase, and anomalous Hall effect in a frustrated ferromagnet. *Science* **291**, 2573–6. doi:10.1126/science.1058161 (2001).
43. Nye, J. F. & Hajnal, J. V. The wave structure of monochromatic electromagnetic radiation. *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* **409**, 21–36. doi:10.1098/rspa.1987.0002 (1987).

44. Tsesses, S. *et al.* Optical skyrmion lattice in evanescent electromagnetic fields. *Science* **361**, 993–996. doi:10.1126/science.aau0227 (2018).
45. Tsesses, S., Cohen, K., Ostrovsky, E., Gjonaj, B. & Bartal, G. Spin-Orbit Interaction of Light in Plasmonic Lattices. *Nano Lett* **19**, 4010–4016. doi:10.1021/acs.nanolett.9b01343 (2019).
46. Dai, Y. *et al.* Plasmonic topological quasiparticle on the nanometre and femtosecond scales. *Nature* **588**, 616–619. doi:10.1038/s41586-020-3030-1 (2020).
47. Maier, S. A. *Plasmonics: Fundamentals and Applications* ISBN: 978-0-387-37825-1. doi:10.1007/0-387-37825-1 (2007).
48. Willets, K. A. & Van Duyne, R. P. Localized surface plasmon resonance spectroscopy and sensing. *Annu Rev Phys Chem* **58**, 267–97. doi:10.1146/annurev.physchem.58.032806.104607 (2007).
49. Pines, D. Collective Energy Losses in Solids. *Reviews of Modern Physics* **28**, 184–198. doi:10.1103/RevModPhys.28.184 (1956).
50. Bohren, C. F. & Huffman, D. R. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* ISBN: 9783527618156. doi:10.1002/9783527618156 (1998).
51. Link, S. & El-Sayed, M. A. Optical Properties and Ultrafast Dynamics of Metallic Nanocrystals. *Annu Rev Phys Chem* **54**, 331–66. doi:10.1146/annurev.physchem.54.011002.103759 (2003).
52. Link, S. & El-Sayed, M. A. Size and Temperature Dependence of the Plasmon Absorption of Colloidal Gold Nanoparticles. *The Journal of Physical Chemistry B* **103**, 4212–4217. doi:10.1021/jp984796o (1999).
53. Bayer, D., Wiemann, C., Gaier, O., Bauer, M. & Aeschlimann, M. Time-Resolved 2PPE and Time-Resolved PEEM as a Probe of LSP's in Silver Nanoparticles. *Journal of Nanomaterials* **2008**, 1–11. doi:10.1155/2008/249514 (2008).
54. Dombi, P. *et al.* Ultrafast Strong-Field Photoemission from Plasmonic Nanoparticles. *Nano Lett* **13**, 674–8. doi:10.1021/nl304365e (2013).

55. Creighton, J. A. & Eadon, D. G. UltravioletVisible Absorption Spectra of the Colloidal Metallic Elements. *J. Chem. Soc., Faraday Trans.* **87**, 3881–3891. doi:10.1039/ft9918703881 (1991).
56. Surface Plasmon Resonance Based Sensors (Hrsg. Homola, J.) doi:10.1007/b100321 (2006).
57. Pitarke, J. M., Silkin, V. M., Chulkov, E. V. & Echenique, P. M. Theory of surface plasmons and surface-plasmon polaritons. *Reports on Progress in Physics* **70**, 1–87. doi:10.1088/0034-4885/70/1/r01 (2007).
58. Welford, K. Surface plasmon-polaritons and their uses. *Optical and Quantum Electronics* **23**, 1–27. doi:10.1007/bf00619516 (1991).
59. Fano, U. Excitation of atoms to states of high orbital momentum. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **7**, L401–L404. doi:10.1088/0022-3700/7/14/003 (1974).
60. Olmon, R. L. *et al.* Optical dielectric function of gold. *Physical Review B* **86**. doi:10.1103/PhysRevB.86.235147 (2012).
61. Dreher. *Nichtlineare Elektronenemission aus plasmonischen Feldern* 2018.
62. Spektor, G. *et al.* Orbital angular momentum multiplication in plasmonic vortex cavities. *Science Advances* **7**. doi:10.1126/sciadv.abg5571 (Aug. 2021).
63. Kahl, P. *Anregung, Propagation, Interferenz, Photoemission : Oberflächenplasmonpolaritonen in zeitaufgelöster Photoelektronenemissionsmikroskopie unter senkrechtem Lichteinfall* Thesis (University of Duisburg-Essen, 2016).
64. Meyer zu Heringdorf, F.-J. *et al.* signatures of plasmoemission in two photon photoemission electron microscopy. *Proc. of SPIE* **936**. doi:10.1117/12.2082610 (2015).
65. Barnes, W. L., Preist, T. W., Kitson, S. C. & Sambles, J. R. Physical origin of photonic energy gaps in the propagation of surface plasmons on gratings. *Phys Rev B Condens Matter* **54**, 6227–6244. doi:10.1103/physrevb.54.6227 (1996).

66. Kahl, P. *et al.* Direct Observation of Surface Plasmon Polariton Propagation and Interference by Time-Resolved Imaging in Normal-Incidence Two Photon Photoemission Microscopy. *Plasmonics* **13**, 239–246. doi:10.1007/s11468-017-0504-6 (2017).
67. Dreher, P., Janoschka, D., Frank, B., Giessen, H. & Meyer zu Heringdorf, F. J. Focused surface plasmon polaritons coherently couple to electronic states in above-threshold electron emission. *Communications Physics* **6**. ISSN: 2399-3650. doi:10.1038/s42005-023-01128-w (2023).
68. Drezet, A. *et al.* Leakage radiation microscopy of surface plasmon polaritons. *Materials Science and Engineering: B* **149**, 220–229. doi:10.1016/j.mseb.2007.10.010 (2008).
69. Futamata, M. Application of attenuated total reflection surface-plasmon-polariton Raman spectroscopy to gold and copper. *Appl Opt* **36**, 364–75. doi:10.1364/ao.36.000364 (1997).
70. Powell, C. J. & Swan, J. B. Origin of the Characteristic Electron Energy Losses in Aluminum. *Physical Review* **115**, 869–875. doi:10.1103/PhysRev.115.869 (1959).
71. Powell, C. J. & Swan, J. B. Origin of the Characteristic Electron Energy Losses in Magnesium. *Physical Review* **116**, 81–83. doi:10.1103/PhysRev.116.81 (1959).
72. Stern, E. A. & Ferrell, R. A. Surface Plasma Oscillations of a Degenerate Electron Gas. *Physical Review* **120**, 130–136. doi:10.1103/PhysRev.120.130 (1960).
73. Piazza, L. *et al.* Simultaneous observation of the quantization and the interference pattern of a plasmonic near-field. *Nat Commun* **6**, 6407. doi:10.1038/ncomms7407 (2015).
74. Teliëps, W. & Bauer, E. An analytical reflection and emission UHV surface electron microscope. *Ultramicroscopy* **17**, 57–65. doi:10.1016/0304-3991(85)90177-9 (1985).
75. Veneklasen, L. H. Design of a spectroscopic low-energy electron microscope. *Ultramicroscopy* **36**, 76–90. doi:10.1016/0304-3991(91)90139-w (1991).

76. Bauer, E. *Surface Microscopy with Low Energy Electrons* ISBN: 978-1-4939-0934-6. doi:10.1007/978-1-4939-0935-3\_1 (2014).
77. Schmidt, T. *et al.* SPELEEM: Combining LEEM and Spectroscopic Imaging. *Surface Review and Letters* **05**, 1287–1296. doi:10.1142/S0218625X98001626 (1998).
78. Bauer, E. Low energy electron microscopy. *Reports on Progress in Physics* **57**, 895–938. doi:10.1088/0034-4885/57/9/002 (Sep. 1994).
79. Omambac, K. M. *et al.* Segregation-Enhanced Epitaxy of Borophene on Ir(111) by Thermal Decomposition of Borazine. *ACS Nano* **15**, 7421–7429. doi:10.1021/acsnano.1c00819 (2021).
80. Dreher, P. *et al.* Quantitative determination of the electric field strength in a plasmon focus from ponderomotive energy shifts. *Nanophotonics* **11**, 3687–3694. doi:10.1515/nanoph-2022-0284 (2022).
81. LaRue, J. L. *et al.* The work function of submonolayer cesium-covered gold: a photoelectron spectroscopy study. *J Chem Phys* **129**, 024709. doi:10.1063/1.2953712 (2008).
82. Michelson, A. A. & v. Laue, M. Die Relativbewegung der Erde gegen den Lichtäther. *Naturwissenschaften* **19**, 779–784. doi:10.1007/bf01528662 (1931).
83. Mach, L. Über einen Interferenzrefraktor. *Zeitschrift für Instrumentenkunde*, 89–93 (1892).
84. Zehnder, L. Ein neuer Interferenzrefraktor. *Zeitschrift für Instrumentenkunde*, 275–285 (1891).
85. Wehner, M. U., Ulm, M. H. & Wegener, M. Scanning interferometer stabilized by use of Pancharatnam’s phase. *Opt Lett* **22**, 1455–7. doi:10.1364/ol.22.001455 (1997).
86. Buckanie, N. M. *Anregung und Propagation von Oberflächenplasmonen in Ultrakurzzeit-Photoemissionselektronenmikroskopie* Diss. (Universität Duisburg-Essen, 2010).
87. Zu Heringdorf, F. J. M. *et al.* spatio-temporal imaging of surface plasmon polaritons in two photon photoemission microscopy. *Proc. of SPIE* **9921**. doi:10.1117/12.22398 (2016).

88. Pancharatnam, S. Generalized theory of interference, and its applications. *Proceedings of the Indian Academy of Sciences - Section A* **44**, 247–262. doi:10.1007/bf03046050 (1956).
89. Janoschka, D. *et al.* Implementation and operation of a fiber-coupled CMOS detector in a low energy electron Microscope. *Ultramicroscopy* **221**. doi:10.1016/j.ultramic.2020.113180 (2021).
90. Podbiel, D. *et al.* Spatiotemporal Analysis of an Efficient Fresnel Grating Coupler for Focusing Surface Plasmon Polaritons. *ACS Photonics* **6**, 600–604. doi:10.1021/acsp Photonics.8b01565 (2019).
91. Podbiel, D. *et al.* Imaging the Nonlinear Plasmoemission Dynamics of Electrons from Strong Plasmonic Fields. *Nano Lett* **17**, 6569–6574. doi:10.1021/acs.nanolett.7b02235 (2017).
92. Meyer zu Heringdorf, F. J., Reuter, M. C. & Tromp, R. M. Growth dynamics of pentacene thin films. *Nature* **412**, 517–20. doi:10.1038/35087532 (2001).
93. Tromp, R. M. *et al.* A simple energy filter for low energy electron microscopy/photoelectron emission microscopy instruments. *J Phys Condens Matter* **21**, 314007. doi:10.1088/0953-8984/21/31/314007 (2009).
94. De Jong, T. A. *et al.* Quantitative analysis of spectroscopic Low Energy Electron Microscopy data: High-dynamic range imaging, drift correction and cluster analysis. *Ultramicroscopy*. doi:10.1016/j.ultramic.2019.112913 (2019).
95. Nelson, M. D. General noise processes in hybrid infrared focal plane arrays. *Optical Engineering* **30**. doi:10.1117/12.55996 (1991).
96. Wall, D. *et al.* Shape, orientation, and crystalline composition of silver islands on Si(111). *IBM Journal of Research and Development* **55**, 9:1–9:6. doi:10.1147/jrd.2011.2158761 (2011).
97. Tietz, H., Ghadimi, R. & Daberkow, I. Single electron events in TEM - measuring the resolution of fiber optic coupled CMOS cameras. *Imaging Microsc.* (2013).
98. Kealhofer, C., Lahme, S., Urban, T. & Baum, P. Signal-to-noise in femtosecond electron diffraction. *Ultramicroscopy* **159 Pt 1**, 19–25. doi:10.1016/j.ultramic.2015.07.004 (2015).

99. *Image blur by micro channel plate in LEEM/PEEM* (2008), 203–206.
100. Denier van der Gon, A. W. & Tromp, R. M. Phase formation sequence and domain structure: A low-energy-electron-microscopy study of the Si(111)-(sqrt 3 x sqrt 3 )Ag surface. *Phys Rev Lett* **69**, 3519–3522. doi:10.1103/PhysRevLett.69.3519 (1992).
101. Henzler, M. Growth modes in homo- and heteroepitaxial growth. *Progress in Surface Science* **42**, 297–316. doi:10.1016/0079-6816(93)90077-9 (1993).
102. Hertz, H. Ueber einen Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die electriche Entladung. *Annalen der Physik und Chemie* **267**, 983–1000. doi:10.1002/andp.18872670827 (1887).
103. Hallwachs, W. Ueber die Electricirung von Metallplatten durch Bestrahlung mit electricchem Licht. *Annalen der Physik und Chemie* **270**, 731–734. doi:10.1002/andp.18882700809 (1888).
104. Hallwachs, W. Ueber den Einfluss des Lichtes auf electrostatisch geladene Körper. *Annalen der Physik und Chemie* **269**, 301–312. doi:10.1002/andp.18882690206 (1888).
105. Lenard, P. Erzeugung von Kathodenstrahlen durch ultraviolettes Licht. *Annalen der Physik* **307**, 359–375. doi:10.1002/andp.19003070611 (1900).
106. Lenard, P. Ueber die lichtelektrische Wirkung. *Annalen der Physik* **313**, 149–198. doi:10.1002/andp.19023130510 (1902).
107. Lenard, P. Über die Absorption von Kathodenstrahlen verschiedener Geschwindigkeit. *Annalen der Physik* **317**, 714–744. doi:10.1002/andp.19033171203 (1903).
108. Einstein, A. Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Annalen der Physik* **322**, 132–148. doi:10.1002/andp.19053220607 (1905).
109. Hüfner, S. *Photoelectron Spectroscopy XV*, 662. ISBN: 978-3-642-07520-9 978-3-662-09280-4. doi:10.1007/978-3-662-09280-4 (Springer Berlin, Heidelberg, 2003).

110. Berglund, C. N. & Spicer, W. E. Photoemission Studies of Copper and Silver: Experiment. *Physical Review* **136**, A1044–A1064. doi:10.1103/PhysRev.136.A1044 (1964).
111. Lemke, C. *et al.* Mapping surface plasmon polariton propagation via counter-propagating light pulses. *Opt Express* **20**, 12877–84. doi:10.1364/OE.20.012877 (2012).
112. Kahl, P. *et al.* Normal-Incidence Photoemission Electron Microscopy (NI-PEEM) for Imaging Surface Plasmon Polaritons. *Plasmonics* **9**, 1401–1407. doi:10.1007/s11468-014-9756-6 (2014).
113. Jin, Z. *et al.* Phyllotaxis-inspired nanosieves with multiplexed orbital angular momentum. *eLight* **1**. doi:10.1186/s43593-021-00005-9 (2021).
114. Prinz, E. *et al.* Functional Meta Lenses for Compound Plasmonic Vortex Field Generation and Control. *Nano Lett* **21**, 3941–3946. doi:10.1021/acs.nanolett.1c00625 (2021).
115. Kim, H. *et al.* Synthesis and dynamic switching of surface plasmon vortices with plasmonic vortex lens. *Nano Lett* **10**, 529–36. doi:10.1021/nl903380j (2010).
116. Spektor, G. *et al.* Revealing the subfemtosecond dynamics of orbital angular momentum in nanoplasmonic vortices. *Science* **355**, 1187–1191. doi:10.1126/science.aaj1699 (2017).
117. Dreher, P. *et al.* Momentum space separation of quantum path interferences between photons and surface plasmon polaritons in nonlinear photoemission microscopy. *Nanophotonics*. doi:10.1515/nanoph-2023-0776 (2024).
118. Spektor, G. *et al.* Mixing the Light Spin with Plasmon Orbit by Nonlinear Light-Matter Interaction in Gold. *Physical Review X* **9**. doi:10.1103/PhysRevX.9.021031 (2019).
119. Dreher, P. *et al.* Separating quantum path interferences using momentum space. under review.
120. Radha, B., Arif, M., Datta, R., Kundu, T. K. & Kulkarni, G. U. Movable Au Microplates as Fluorescence Enhancing Substrates for Live Cells. *Nano Research* **3**, 738–747. doi:10.1007/s12274-010-0040-6 (2010).

121. Radha, B. & Kulkarni, G. U. A Real Time Microscopy Study of the Growth of Giant Au Microplates. *Crystal Growth and Design* **11**, 320–327. doi:10.1021/cg1015548 (2011).
122. Murphy, C. J. *et al.* Impact of branching on the supramolecular assembly of thioethers on Au(111). *J Chem Phys* **142**, 101915. doi:10.1063/1.4907270 (2015).
123. Woll, C., Chiang, S., Wilson, R. J. & Lippel, P. H. Determination of atom positions at stacking-fault dislocations on Au(111) by scanning tunneling microscopy. *Phys Rev B Condens Matter* **39**, 7988–7991. doi:10.1103/physrevb.39.7988 (1989).
124. Barth, J. V., Brune, H., Ertl, G. & Behm, R. J. Scanning tunneling microscopy observations on the reconstructed Au(111) surface: Atomic structure, long-range superstructure, rotational domains, and surface defects. *Phys Rev B Condens Matter* **42**, 9307–9318. doi:10.1103/physrevb.42.9307 (1990).
125. Hölzl, J. & Schulte, F. K. in *Solid Surface Physics* (Hrsg. Hölzl, J., Schulte, F. K. & Wagner, H.) 1–150 (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1979). ISBN: 978-3-540-35253-2. doi:10.1007/BFb0048919.
126. Davis, T. J. *et al.* Subfemtosecond and Nanometer Plasmon Dynamics with Photoelectron Microscopy: Theory and Efficient Simulations. *ACS Photonics* **4**, 2461–2469. doi:10.1021/acsp Photonics.7b00676 (2017).
127. Podbiel, D., Kahl, P. & Meyer zu Heringdorf, F. J. Analysis of the contrast in normal-incidence surface plasmon photoemission microscopy in a pumpprobe experiment with adjustable polarization. *Applied Physics B* **122**. doi:10.1007/s00340-016-6363-6 (2016).
128. Oi Nakamura, Y. Spin quantum number of surface plasmon. *Solid State Communications* **39**, 763–765. doi:10.1016/0038-1098(81)90453-1 (1981).
129. Collet, E. *Polarized Light: Fundamentals and Applications* ISBN: 978-0824787295 (CRC Press, 1993).
130. Collett, E. *Field Guide to Polarization* ISBN: 9780819478207. doi:10.1117/3.626141 (2005).

131. Coppola, G. & Ferrara, M. A. Polarization-Sensitive Digital Holographic Imaging for Characterization of Microscopic Samples: Recent Advances and Perspectives. *Applied Sciences* **10**. doi:10.3390/app10134520 (2020).
132. Göbel, B., Mertig, I. & Tretiakov, O. A. Beyond skyrmions: Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles. *Physics Reports*. doi:10.1016/j.physrep.2020.10.001 (2020).
133. Shen, Y. *et al.* *Topological quasiparticles of light: Optical skyrmions and beyond* 2022. doi:10.48550/ARXIV.2205.10329.
134. Bradlyn, B. *et al.* Topological quantum chemistry. *Nature* **547**, 298–305. doi:10.1038/nature23268 (2017).
135. Castelvechi, D. The strange topology that is reshaping physics. *Nature* **547**, 272–274. doi:10.1038/547272a (2017).
136. Thouless, D. J., Kohmoto, M., Nightingale, M. P. & den Nijs, M. quantized hall conductance in a two-dimensional periodic potential. *Physical Review Letters* **49**, 405–408. doi:10.1103/PhysRevLett.49.405 (1982).
137. Fu, L., Kane, C. L. & Mele, E. J. Topological insulators in three dimensions. *Phys Rev Lett* **98**, 106803. doi:10.1103/PhysRevLett.98.106803 (2007).
138. Moore, J. E. & Balents, L. Topological invariants of time-reversal-invariant band structures. *Physical Review B* **75**. doi:10.1103/PhysRevB.75.121306 (2007).
139. Lv, B. Q. *et al.* Experimental Discovery of Weyl Semimetal TaAs. *Physical Review X* **5**. doi:10.1103/PhysRevX.5.031013 (2015).
140. Xu, S. Y. *et al.* TOPOLOGICAL MATTER. Discovery of a Weyl fermion semimetal and topological Fermi arcs. *Science* **349**, 613–7. doi:10.1126/science.aaa9297 (2015).
141. Gladchenko, S. *et al.* Superconducting nanocircuits for topologically protected qubits. *Nature Physics* **5**, 48–53. doi:10.1038/nphys1151 (2008).
142. Skyrme, T. A non-linear theory of strong interactions. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* **247**, 260–278. doi:10.1098/rspa.1958.0183 (1958).

143. Bogdanov, A. N. & Rössler, U. K. Chiral Symmetry Breaking in Magnetic Thin Films and Multilayers. *Physical Review Letters* **87**, 037203. doi:10.1103/physrevlett.87.037203 (Juni 2001).
144. Kovalev, A. A. & Sandhoefner, S. Skyrmions and Antiskyrmions in Quasi-Two-Dimensional Magnets. *Frontiers in Physics* **6**. doi:10.3389/fphy.2018.00098 (2018).
145. Everschor-Sitte, K. & Sitte, M. Real-Space Berry Phases: Skyrmion Soccer. *Journal of Applied Physics* **115**, 172602. doi:10.1063/1.4870695 (2014).
146. Lin, S.-Z., Saxena, A. & Batista, C. D. Skyrmion fractionalization and merons in chiral magnets with easy-plane anisotropy. *Physical Review B* **91**. doi:10.1103/PhysRevB.91.224407 (2015).
147. Berry, M. V. & Dennis, M. R. Polarization singularities in isotropic random vector waves. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **457**, 141–155. doi:10.1098/rspa.2000.0660 (2001).
148. Heinze, S. *et al.* Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Nature Physics* **7**, 713–718. doi:10.1038/nphys2045 (2011).
149. Von Bergmann, K., Kubetzka, A., Pietzsch, O. & Wiesendanger, R. Interface-induced chiral domain walls, spin spirals and skyrmions revealed by spin-polarized scanning tunneling microscopy. *J Phys Condens Matter* **26**, 394002. doi:10.1088/0953-8984/26/39/394002 (2014).
150. Fösel, T., Peano, V. & Marquardt, F. L lines, C points and Chern numbers: understanding band structure topology using polarization fields. *New Journal of Physics* **19**. doi:10.1088/1367-2630/aa8a9f (2017).
151. Berry, M. V. Quantal phase factors accompanying adiabatic changes. *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* **392**, 45–57. doi:10.1098/rspa.1984.0023 (1997).
152. Davis, T. J. *et al.* Ultrafast Vector Imaging of Plasmonic Skyrmion Dynamics with Deep Subwavelength Resolution. *Science* **368**, eaba6415. doi:10.1126/science.aba6415 (2020).
153. Press, W. H. & Teukolsky, S. A. Savitzky-Golay Smoothing Filters. *Computers in Physics* **4**. doi:10.1063/1.4822961 (1990).

154. Kezsmarki, I. *et al.* Neel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV4S8. *Nat Mater* **14**, 1116–22. doi:10.1038/nmat4402 (2015).
155. Tchoe, Y. & Han, J. H. Skyrmion generation by current. *Physical Review B* **85**. doi:10.1103/PhysRevB.85.174416 (2012).
156. Heberle, A. P., Baumberg, J. J. & Kohler, K. Ultrafast coherent control and destruction of excitons in quantum wells. *Phys Rev Lett* **75**, 2598–2601. doi:10.1103/PhysRevLett.75.2598 (1995).
157. Petek, H. *et al.* Optical Phase Control of Coherent Electron Dynamics in Metals. *Physical Review Letters* **79**, 4649–4652. doi:10.1103/PhysRevLett.79.4649 (1997).
158. Petek, H. & Ogawa, S. Femtosecond time-resolved two-photon photoemission studies of electron dynamics in metals. *Progress in Surface Science* **56**, 239–310. doi:10.1016/s0079-6816(98)00002-1 (1997).
159. Kubo, A. *et al.* Femtosecond imaging of surface plasmon dynamics in a nanostructured silver film. *Nano Lett* **5**, 1123–7. doi:10.1021/nl0506655 (2005).
160. Gao, N. *et al.* Creation and annihilation of topological meron pairs in in-plane magnetized films. *Nat Commun* **10**, 5603. doi:10.1038/s41467-019-13642-z (2019).
161. Yu, X. Z. *et al.* Transformation between meron and skyrmion topological spin textures in a chiral magnet. *Nature* **564**, 95–98. doi:10.1038/s41586-018-0745-3 (2018).
162. Augustin, M., Jenkins, S., Evans, R. F. L., Novoselov, K. S. & Santos, E. J. G. Properties and dynamics of meron topological spin textures in the two-dimensional magnet CrCl<sub>3</sub>. *Nat Commun* **12**, 185. doi:10.1038/s41467-020-20497-2 (2021).
163. Hayami, S. & Yambe, R. Meron-antimeron crystals in noncentrosymmetric itinerant magnets on a triangular lattice. *Physical Review B* **104**. doi:10.1103/PhysRevB.104.094425 (2021).

164. Du, L., Yang, A., Zayats, A. V. & Yuan, X. Deep-subwavelength features of photonic skyrmions in a confined electromagnetic field with orbital angular momentum. *Nature Physics* **15**, 650–654. doi:10.1038/s41567-019-0487-7 (2019).
165. Anton, H. & Rorres, C. *Elementary Linear Algebra: Applications Version* ISBN: 978-1-118-87876-7 (Wiley, 2013).
166. Janoschka, D. *et al.* Spatio-temporal topology of plasmonic vector fields revealed by polarimetric photo-emission microscopy. (submitted) (2023).
167. Frank, B. *et al.* Short-range surface plasmonics: Localized electron emission dynamics from a 60-nm spot on an atomically flat single-crystalline gold surface. *Sci Adv* **3**, e1700721. doi:10.1126/sciadv.1700721 (2017).
168. Yurtsever, A. & Zewail, A. H. Direct visualization of near-fields in nanoplasmonics and nanophotonics. *Nano Lett* **12**, 3334–3338. doi:10.1021/nl301643k (2012).
169. Vanacore, G. M., Fitzpatrick, A. W. P. & Zewail, A. H. Four-dimensional electron microscopy: Ultrafast imaging, diffraction and spectroscopy in materials science and biology. *Nano Today* **11**, 228–249. doi:10.1016/j.nantod.2016.04.009 (2016).



## Berechnung der Jones-Vektoren

Der Stokes-Vektor ist durch vier Komponenten definiert. Die  $S_0$ -Komponente

$$S_0 = |E_x|^2 + |E_y|^2 = 1 \quad (\text{A.1})$$

beschreibt die Intensität, die im vereinfachten Fall auf 1 normiert wird. Eine anschaulich Variante zur Darstellung von Polarisationen ist durch die sogenannte Poincaré-Sphäre gegeben. In ihr sind die Stokes-Vektoren  $S_1, S_2, S_3$  die drei Achsen eines Koordinatensystems und spannen die Kugel auf. In der Äquatorialebene sind die linearen Polarisationen zu finden, an den Polen die zirkularen Polarisationen.  $S_1$  ist der Anteil der horizontalen ( $S_1 = 1$ ) oder vertikalen ( $S_1 = -1$ ) Polarisation und folgen der Relation

$$S_1 = |E_x|^2 - |E_y|^2 = E_x E_x^* + E_y E_y^*. \quad (\text{A.2})$$

$S_2$  beschreibt den um  $45^\circ$  gedrehte Anteil mit der Relation

$$S_2 = 2 \cdot \Re(E_x E_y^*) = E_x E_y^* + E_x^* E_y \quad (\text{A.3})$$

und  $S_3$  der zirkulare Anteil

$$S_3 = 2 \cdot \Im(E_x E_y^*) = -i E_x^* E_y + i E_x E_y^*. \quad (\text{A.4})$$

Die Nordhalbkugel entspricht dem mathematisch negativen Drehsinn (Nordpol ist rechts zirkular  $S_3 = 1$ ), die Südhalbkugel entspricht dem mathematisch positiven Drehsinn (Südpol ist links zirkular  $S_3 = -1$ ). Um aus einem Stokes-Vektor einen Jones-Vektor zu machen ist eine zusätzliche Phase

$$\phi = \arg \left( \vec{E}_{\text{pump}}^* \cdot \vec{E}_{\text{probe}} \right). \quad (\text{A.5})$$

relevant. Zur Vereinfachung wird  $\vec{E}_{\text{probe}}$  nun als  $\vec{E}$  sowie  $\vec{E}_{\text{pump}}$  ersetzt durch  $\vec{E}_p$  geschrieben. Zur weiteren Berechnung lässt sich Gleichung A.5 umschreiben zu

$$\phi = \arctan \left( \frac{\Im(\vec{E}_p^* \cdot \vec{E})}{\Re(\vec{E}_p^* \cdot \vec{E})} \right). \quad (\text{A.6})$$

Anschließend werden  $\Re$  und  $\Im$  wie in Gleichung A.3 und Gleichung A.4 ersetzt zu

$$\tan(\phi) = \frac{-i(E_{p,x}^* E_x + E_{p,y}^* E_y) + i(E_{p,x} E_x^* + E_{p,y} E_y^*)}{(E_{p,x}^* E_x + E_{p,y}^* E_y) + (E_{p,x} E_x^* + E_{p,y} E_y^*)}. \quad (\text{A.7})$$

$E_x$  oder  $E_y$  sind die zu bestimmenden Komponenten, die über Gl.A.3 und Gl.A.4 gekoppelt sind. Es ergeben sich aus

$$\frac{S_2 - iS_3}{2} = E_x E_y^* = \alpha \quad (\text{A.8})$$

und

$$\frac{S_2 + iS_3}{2} = E_x^* E_y = \alpha^* \quad (\text{A.9})$$

Gleichungen für  $E_x$

$$E_x = \frac{\alpha}{E_y^*} \quad (\text{A.10})$$

und für  $E_x^*$

$$E_x^* = \frac{\alpha^*}{E_y}. \quad (\text{A.11})$$

Gleichung A.7 lässt sich nun zusammenfassen zu

$$\tan(\phi) = \frac{-iE_{p,x}^* \frac{\alpha}{E_y^*} + iE_{p,x} \frac{\alpha^*}{E_y} - iE_{p,y}^* E_y + iE_{p,y} E_y^*}{E_{p,x}^* \frac{\alpha}{E_y^*} + E_{p,x} \frac{\alpha^*}{E_y} + E_{p,y}^* E_y + E_{p,y} E_y^*}. \quad (\text{A.12})$$

Wird nun den Nenner auf die andere Seite gezogen ergibt sich

$$\tan(\phi) \cdot \left( E_{p,x}^* \frac{\alpha}{E_y^*} + E_{p,x} \frac{\alpha^*}{E_y} + E_{p,y}^* E_y + E_{p,y} E_y^* \right) = -iE_{p,x}^* \frac{\alpha}{E_y^*} + iE_{p,x} \frac{\alpha^*}{E_y} - iE_{p,y}^* E_y + iE_{p,y} E_y^*, \quad (\text{A.13})$$

wodurch sich gleiche Terme leichter zusammenfassen lassen

$$(i + \tan(\phi)) \left( E_{p,x}^* \frac{\alpha}{E_y^*} + E_{p,y}^* E_y \right) - (i - \tan(\phi)) \left( E_{p,x} \frac{\alpha^*}{E_y} + E_{p,y} E_y^* \right) = 0. \quad (\text{A.14})$$

Multipliziert mit  $E_y$  und durch eine eingeschobene 1 in der Form  $E_y/E_y$  im ersten Term ergibt sich

$$(i + \tan(\phi)) \left( E_{p,x}^* \alpha \frac{E_y^2}{|E_y|^2} + E_{p,y}^* E_y^2 \right) - (i - \tan(\phi)) (E_{p,x} \alpha^* + E_{p,y} |E_y|^2) = 0 \quad (\text{A.15})$$

und schließlich lässt sich  $E_y^2$  ausklammern und umformen zu

$$E_y^2 = \frac{i - \tan(\phi)}{i + \tan(\phi)} \cdot \frac{E_{p,x} \alpha^* + E_{p,y} |E_y|^2}{E_{p,x}^* \frac{\alpha}{|E_y|^2} + E_{p,y}^*}. \quad (\text{A.16})$$

Der Bruch mit den Tangens Relationen kann weiterhin als Exponentialfunktion geschrieben werden und durch zusätzliches einsetzen von den Gleichungen A.8 und A.9

$$E_y^2 = e^{2i\phi} \cdot \frac{E_{p,x} \frac{S_2 + iS_3}{2} + E_{p,y} |E_y|^2}{E_{p,x}^* \frac{S_2 - iS_3}{2|E_y|^2} + E_{p,y}^*}. \quad (\text{A.17})$$

Eine Relation für  $|E_y|^2$  kann schließlich aus den Gleichungen A.8 und A.9

$$\alpha\alpha^* = |E_x|^2 |E_y|^2 \quad (\text{A.18})$$

und Gl.A.2

$$S_1 = \frac{\alpha\alpha^*}{|E_y|^2} - |E_y|^2 \quad (\text{A.19})$$

$$\Rightarrow |E_y|^4 + S_1 |E_y|^2 - \alpha\alpha^* = 0$$

gewonnen werden. Dafür wird die pq-Formel verwendet

$$|E_y|^2 = -\frac{S_1}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{-S_1}{2}\right)^2 + |\alpha|^2}. \quad (\text{A.20})$$

Wird nun  $|\alpha|^2$  mithilfe von Gleichungen A.8 und A.9

$$|\alpha|^2 = \frac{S_2^2 + S_3^2}{4} \quad (\text{A.21})$$

ersetzt und setzt in Gleichung A.20 ein ergibt sich

$$|E_y|^2 = -\frac{S_1}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{-S_1}{2}\right)^2 + \frac{S_2^2 + S_3^2}{4}} = -\frac{1}{2} \left( -S_1 \pm \sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2} \right). \quad (\text{A.22})$$

Für vollständig polarisiertes Licht gilt bei auf 1 normierter Intensität

$$S_0^2 = S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 = 1 \quad (\text{A.23})$$

und somit ergibt sich aus Gl. A.22

$$|E_y|^2 = \frac{1}{2} (-S_1 \pm 1). \quad (\text{A.24})$$

Per Definition ist ein Stokes-Vektor mit  $S_1 = 1$  in x-Richtung polarisiert, somit ist  $|E_y|^2 = 0$  und Gleichung A.24 kann auf das positive Vorzeichen beschränkt werden. Wird nun Gleichung A.24 in Gleichung A.17 eingesetzt, folgt

$$E_y^2 = \frac{1}{2} e^{2i\phi} \cdot \frac{E_{p,x} (S_2 + iS_3) + E_{p,y} (1 - S_1)}{E_{p,x}^* \frac{S_2 - iS_3}{1 - S_1} + E_{p,y}^*}. \quad (\text{A.25})$$

Wird nun mit einer eingeschobenen 1 der Form  $\frac{1 - S_1}{1 - S_1}$  erweitert, folgt aus Gleichung A.25

$$E_y^2 = \frac{1}{2} e^{2i\phi} (1 - S_1) \cdot \frac{E_{p,x} (S_2 + iS_3) + E_{p,y} (1 - S_1)}{E_{p,x}^* (S_2 - iS_3) + E_{p,y}^* (1 - S_1)}. \quad (\text{A.26})$$

Der Nenner ist nun das Komplex konjugierte des Zählers

$$E_y^2 = \frac{1 - S_1}{2} e^{2i\phi} \cdot \frac{Z_y}{Z_y^*} \quad (\text{A.27})$$

und dieser Quotient entspricht nur einer weiteren Phase

$$\frac{Z_y}{Z_y^*} = e^{2i\chi}, \quad (\text{A.28})$$

sodass sich  $E_y$  reduzieren lässt auf

$$E_y = \sqrt{\frac{1 - S_1}{2}} e^{i(\phi + \chi)} \quad (\text{A.29})$$

Gleichungen für  $E_y$

$$E_y = \frac{\alpha^*}{E_x^*} \quad (\text{A.30})$$

und für  $E_y^*$

$$E_y^* = \frac{\alpha}{E_x}. \quad (\text{A.31})$$

Gleichung A.7 lässt sich nun zusammenfassen zu

$$\tan(\phi) = \frac{-iE_{p,x}^*E_x + iE_{p,x}E_x^* - iE_{p,y}^*\frac{\alpha^*}{E_x^*} + iE_{p,y}\frac{\alpha}{E_x}}{E_{p,x}^*E_x + E_{p,x}E_x^* + E_{p,y}^*\frac{\alpha^*}{E_x^*} + iE_{p,y}\frac{\alpha}{E_x}}. \quad (\text{A.32})$$

Nenner auf die andere Seite gezogen ergibt

$$\tan(\phi) \cdot \left( E_{p,x}^*E_x + E_{p,x}E_x^* + E_{p,y}^*\frac{\alpha^*}{E_x^*} + iE_{p,y}\frac{\alpha}{E_x} \right) = -iE_{p,x}^*E_x + iE_{p,x}E_x^* - iE_{p,y}^*\frac{\alpha^*}{E_x^*} + iE_{p,y}\frac{\alpha}{E_x}, \quad (\text{A.33})$$

wodurch sich gleiche Terme leichter zusammenfassen lassen

$$(i + \tan(\phi)) \left( E_{p,x}^*E_x + E_{p,y}^*\frac{\alpha^*}{E_x^*} \right) = (i - \tan(\phi)) \left( E_{p,x}E_x^* + E_{p,y}\frac{\alpha}{E_x} \right). \quad (\text{A.34})$$

Multipliziert mit  $E_x$  und durch eine eingeschobene 1 in der Form  $E_x/E_x$  im ersten Term ergibt sich

$$(i + \tan(\phi)) \left( E_{p,x}^*E_x^2 + E_{p,y}^*\alpha^*\frac{E_x^2}{|E_x|^2} \right) = (i - \tan(\phi)) (E_{p,x}|E_x|^2 + E_{p,y}\alpha) \quad (\text{A.35})$$

und schließlich lässt sich  $E_x^2$  ausklammern und umformen zu

$$E_x^2 = \frac{i - \tan(\phi)}{i + \tan(\phi)} \cdot \frac{E_{p,x}|E_x|^2 + E_{p,y}\alpha}{E_{p,x}^* + E_{p,y}^*\frac{\alpha^*}{|E_x|^2}}. \quad (\text{A.36})$$

Der Bruch mit den Tangens Relationen kann weiterhin als Exponentialfunktion geschrieben werden und durch zusätzliches einsetzen von den Gleichungen A.8 und A.9

$$E_x^2 = e^{2i\phi} \cdot \frac{E_{p,x}|E_x|^2 + E_{p,y}\frac{S_2 - iS_3}{2}}{E_{p,x}^* + E_{p,y}^*\frac{S_2 + iS_3}{2|E_x|^2}}. \quad (\text{A.37})$$

Eine Relation für  $|E_x|^2$  kann schließlich aus den Gleichungen A.8 und A.9

$$\alpha\alpha^* = |E_x|^2|E_y|^2 \quad (\text{A.38})$$

und Gl.A.2

$$S_1 = -\frac{\alpha\alpha^*}{|E_x|^2} + |E_x|^2 \quad (\text{A.39})$$

$$\Rightarrow |E_x|^4 - S_1|E_x|^2 - \alpha\alpha^* = 0$$

gewonnen werden. Dafür wird die pq-Formel verwendet

$$|E_x|^2 = \frac{S_1}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{S_1}{2}\right)^2 + |\alpha|^2}. \quad (\text{A.40})$$

Wird nun  $|\alpha|^2$  mithilfe von Gleichungen A.8 und A.9

$$|\alpha|^2 = \frac{S_2^2 + S_3^2}{4} \quad (\text{A.41})$$

ersetzt und setzt in Gleichung A.40 ein ergibt sich

$$|E_x|^2 = \frac{S_1}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{S_1}{2}\right)^2 + \frac{S_2^2 + S_3^2}{4}} = \frac{1}{2} \left( S_1 \pm \sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2} \right). \quad (\text{A.42})$$

Für vollständig polarisiertes Licht gilt bei auf 1 normierter Intensität

$$S_0^2 = S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 = 1 \quad (\text{A.43})$$

und somit ergibt sich aus Gl. A.42

$$|E_x|^2 = \frac{1}{2} (S_1 \pm 1). \quad (\text{A.44})$$

Per Definition ist ein Stokes-Vektor mit  $S_1 = 1$  in x-Richtung polarisiert, somit ist  $|E_x|^2 = 1$  und Gleichung A.44 kann auf das positive Vorzeichen beschränkt werden. Wird nun Gleichung A.44 in Gleichung A.37 eingesetzt folgt

$$E_x^2 = \frac{1}{2} e^{2i\phi} \cdot \frac{E_{p,x} (1 + S_1) + E_{p,y} (S_2 - iS_3)}{E_{p,x}^* + E_{p,y}^* \frac{S_2 + iS_3}{1 + S_1}}. \quad (\text{A.45})$$

Wird nun mit einer eingeschobenen 1 der Form  $\frac{1+S_1}{1+S_1}$  erweitert folgt aus Gleichung A.45

$$E_x^2 = \frac{1}{2} e^{2i\phi} (1 + S_1) \cdot \frac{E_{p,x} (1 + S_1) + E_{p,y} (S_2 - iS_3)}{E_{p,x}^* (1 + S_1) + E_{p,y}^* (S_2 + iS_3)}. \quad (\text{A.46})$$

Der Nenner ist nun das komplex konjugierte des Zählers

$$E_x^2 = \frac{1 + S_1}{2} e^{2i\phi} \cdot \frac{Z_x}{Z_x^*} \quad (\text{A.47})$$

und dieser Quotient entspricht nur einer weiteren Phase

$$\frac{Z_x}{Z_x^*} = e^{2i\psi}, \quad (\text{A.48})$$

sodass sich  $E_x$  reduzieren lässt auf

$$E_x = \sqrt{\frac{1 + S_1}{2}} e^{i(\phi + \psi)} \quad (\text{A.49})$$





## Danksagung

Eine Doktorarbeit wird von vielen Leuten begleitet die zu verschiedenen Zeiten dazu beitragen, dass Doktorand\*innen diese doch oft beschwerliche Zeit überstehen. Vor der Promotion absolviert man das Physik Studium, in dem man in der Regel mehr Zeit mit den Mitstudierenden verbringt, als mit der Familie oder mit Schlaf. Stundenlang saß man in Vorlesungen zusammen oder rechnete an Übungsaufgaben. Hiermit möchte ich mich bei all denen bedanken, die diesen Weg zusammen mit mir gingen. Hervorzuheben sind dabei Malte Jongmanns, Mathias Kamp und Max Kumm. Im ersten Semester heißt es: schauen sie nach links und rechts. Zwei von ihnen Dreien werden das Studium nicht schaffen. Wir vier haben es aber vom ersten Tag bis hin zur Promotion geschafft und ich freue mich, dass wir gemeinsam gerechnet, gebüffelt, über das Praktikum geflucht haben und trotzdem noch mit Spaß bei der Sache geblieben sind. Dank auch an Birte Cöster, Isabell und Hendrik Oppenberg mit denen ich nicht nur studiert habe, sondern auch den Großteil der verbliebenen "Freizeit" verbracht habe. Das gemeinsame Essen und die Spieleabende nachdem die Übungsaufgaben endlich abgearbeitet waren, waren ein Lichtblick und das kleine bisschen Entspannung, was die Zeit erträglich gemacht hat.

Viele Stunden verbringt man mit dem Team, mit dem man arbeitet. Hiermit möchte ich mich bei der AG Horn-von Hoegen bedanken. Im Jahr 2015 kam ich als ahnungsloser Bachelorstudent in die AG und wurde herzlich eingeladen zu lernen. Nun bin ich ahnungsloser Doktorand und trotzdem bricht die Unterstützung nicht ab. Mein Dank gilt Prof. Horn-von Hoegen, der mich als AG-Leiter stets unterstützt hat und mir die Promotion ermöglicht hat, sich aber vermutlich immer noch ärgert, dass ich nicht im Keller-Team angefangen habe. Dank an die Technik Lukas Kujawinski und Heinz Wolf, die jedes Gerät, dass mit "Kaputt?!" auf ihren Schreibtisch gelegt wurde, wieder in Stand gesetzt haben. Ich danke für die dummen Sprüche, die man sich gegenseitig gedrückt hat und den stets

offenen Umgang. Dank auch an Alice Wunderlich. Unser Überlapp war recht kurz aber ich habe dich nicht nur wenn es um Babythemen ging, sondern besonders auch menschlich und fachlich sehr zu schätzen gelernt. Dank an Angela Poddig die bei allen offiziellen Anliegen stets zum Hörer gegriffen hat und zu einer schnellen Lösung beigetragen hat.

Bedanken muss ich mich auch bei den Ehemaligen. Bei meinen Vorgängern, die mir die Basics im Labor beigebracht haben und durch die ich gelernt habe, dass schludriges Arbeiten nicht zielführend ist. Dank an Tobias Witte, Bernd Hafke, Jan-Henrik Herrig und Christian Brand mit denen ich in der AG aber vor allem auch auf Konferenzen viel Zeit verbringen durfte und die die Zeit durch Witz, Freude und das ein oder andere Bier durchaus erträglicher gemacht haben.

Danke an den SFB 1242, die Leitung, Projektleitung und die Mitglieder. Ohne die finanzielle Ausstattung des SFBs gäbe es den Detektor und damit auch diese Arbeit nicht. Danke für die zahlreichen Konferenzen, den wissenschaftlichen Austausch und die Möglichkeit viele tolle Menschen kennenzulernen. Besonderer Dank gilt dem PEEM-Team. Eine eingeschworene Truppe, die sich stets unterstützt und einen freundschaftlichen Umgang pflegt. Dank an Hannah Kohler für emotionale, oft hitzige Gespräche, die gute Seele des Teams. Dank an Alexandra Rödl nicht nur die Vermittlerin und emotionale Stütze im Team ist, sondern ganz zum Ende ihrer Masterarbeit noch den fehlenden Baustein für diese Arbeit ergänzt hat. Dank an Alexander Neuhaus, der gerade in der Spätphase meiner Promotion maßgeblich Unterstützung angeboten und geholfen hat. Ohne diese Hilfe hätte sich einiges länger gezogen oder bliebe unvollendet.

Dank an meinen Betreuer Prof. Frank Meyer zu Heringdorf. Für die Aufnahme ins Team, die Ermöglichung der Promotion, die Aufnahme ins SFB-Projekt und die daran geknüpften Konferenzen in nah und fern. Danke für alles, was ich lernen durfte, aber auch für das Vertrauen das Labor eigenständig zu nutzen. Eine Person ist besonders hervorzuheben. Der Dank an Pascal Dreher lässt sich hier kaum verschriftlichen. Ohne dich hätte ich die Promotion gar nicht erst angefangen. Danke für die gemeinsamen Stunden im Labor teils bis spät in die Nacht. Du bist Leidensgenosse im Labor, Zimmergenosse auf Konferenzen, Superbrain der Physik, wortgewandter Unterstützer in so mancher Diskussion und ein guter Freund. Ohne deine Unterstützung gäbe es diese Arbeit nicht. Du hast Wochen und Monate deiner Zeit investiert, um Code zu produzieren und Messungen zu automatisieren, Ideen am laufenden Band produziert und du warst stets zur Stelle wenn die Hütte mal wieder brannte und Hilfe notwendig war. Ich war sicherlich der größere Nutznießer der Symbiose des LEEM-PEEM- Dream-Teams und bin dir unendlich dankbar.

Danke auch an alle unerwähnten AG-Mitglieder die mir die Arbeitszeit oftmals durch geteilte Freude und Leid versüßt haben.

Danke an alle Kooperationspartner, besonders hervorzuheben Prof. Harald Gießen für viele frische Ideen die stets zu Top-Forschung und hochrangigen Publikationen führen. Dr. Bettina Frank für den stetigen Nachschub von Proben und all die Zeit, die in die Präparation gesteckt wurde. Prof. Tim Davis der wesentliche Teile dieser Arbeit begleitet hat, Auswertungen und Publikationen vorangetrieben hat und oft einen zur Lösung dienlichen neuen Blickwinkel beigetragen hat.

Ein besonderer Dank gilt meiner Familie. Insbesondere meinen Eltern und meiner Frau Diana. Sie waren die Stütze in meinem Studium und während der Promotion. Mussten viel Gejammer ertragen und mich aufbauen, wenn mal wieder alles schief lief oder ich vollkommen fertig war. Danke für die Ermunterung, die Ablenkung, die Unterstützung in jeglicher Form. Danke, dass es euch gibt und ihr stets für mich da seid. Ohne euch wäre ich nicht, wer ich bin und hätte auch diesen Lebensabschnitt nicht beschreiten können. Dank auch an meine Tochter Paulina. Der kleine Sonnenschein hat zwar für eine Verzögerung in der Abgabe der Arbeit gesorgt, war jedoch gleichzeitig meine Motivation die Arbeit fertig zu stellen.

# DuEPublico

Duisburg-Essen Publications online

UNIVERSITÄT  
DUISBURG  
ESSEN

*Offen im Denken*

ub | universitäts  
bibliothek

Diese Dissertation wird via DuEPublico, dem Dokumenten- und Publikationsserver der Universität Duisburg-Essen, zur Verfügung gestellt und liegt auch als Print-Version vor.

**DOI:** 10.17185/duepublico/82090

**URN:** urn:nbn:de:hbz:465-20240701-145304-6

Alle Rechte vorbehalten.