

Fortgeschrittenenpraktikum – Vorbereitung

Femtosekunden-Pump-Probe-Experimente

Erik Streb*

23. September 2007

Betreuer: Herr Dr. Kampfrath

1 Einführung

In diesem Versuch möchte ich die Dynamik von Kernbewegungen und Elektronen direkt zeitaufgelöst verfolgen. Dafür setze ich das Pump-Probe-Verfahren ein. Ein Sb- bzw Bi-Kristall wird mit einem Pump-Puls optisch angeregt und mit einem Probe-Laserpuls abgefragt. Der Probe-Puls ist gegenüber dem Probepuls zeitlich verzögert. Ziel des Versuchs ist es, das Frequenzspektrum kohärenter Phononen von Bismut (Bi) und Antimon (Sb) zu analysieren und sich die dazugehörige Anregungs- und Abklingdynamik anzuschauen.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Erzeugung der Laserpulse durch Titan-Saphir-Laser

Im Versuch basiert die Erzeugung der ultrakurzen Laser-Pulse auf titandotiertem Aluminiumoxid. Titan liegt in den am besten dotierten Saphiren zu 0,1% vor. Das Absorptionsspektrum im blaugrünen Bereich des sichtbaren Spektrums ist hierbei sehr breit, was an der starken Störung der lokalen Elektronenumgebung liegt, denn der Atomradius von Titan ist um 26% größer als der des Aluminiums. Diese Störung erzeugt ein starkes lokales elektrisches Feld. Das Emissionsspektrum ist zu niedrigeren Energien hin verschoben. Für die Erzeugung ultrakurzer Pulse ist ein breites Spektrum nötig. Jeder Laser besteht im einfachsten Fall aus zwei Spiegeln, zwischen denen das Licht hin und

*E-Mail: mail@erikstreb.de

her läuft, dem Resonator. Im Resonator befindet sich ein Verstärkermedium, das über ein breites Frequenzspektrum verfügt. In Titan-Saphir gibt es die größte Verstärkung bei ca. 800 nm, so dass die Spektren von Titan-Saphir-Femtosekundenlasern dort normalerweise ihr Maximum aufweisen.

2.2 Modenkopplung

Im Resonator bilden sich Moden. Das Spektrum des Lasers ist also nicht kontinuierlich, vielmehr kommen nur solche Frequenzen vor, die stehenden Wellen im Laserresonator entsprechen. Wenn der Resonator die Länge von L hat, haben die Moden die Frequenzen von:

$$\nu_n = cN / (2L) \quad (1)$$

wobei N die Anzahl der Knoten der Mode ist. Die Frequenzen der Moden liegen sehr dicht beieinander, ihr Abstand entspricht dem Kehrwert der Laufzeit im Resonator. Das bestimmt dann auch die Pulsrepetitionsrate des Lasers. Sie liegt im Bereich von 100 MHz. Aufgrund der großen Verstärkungsbandbreite des Titan-Saphirs schwingen zig-tausende Moden an. Kurze Pulse verlangen lediglich noch eine feste (lineare) Phasenbeziehung zwischen den Moden. Die Phasen der Moden müssen also gekoppelt sein, in diesem Fall durch Kerr-Linsen-Modenkopplung. Siehe Gleichung (1).

2.3 Kerr-Effekt

Unter Kerr-Effekt wird die Änderung des Brechungsindex' unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes verstanden. Der optische Kerreffekt ist die Änderung des Brechungsindex' unter dem Einfluss von Laserstrahlung, die man sich als periodisch änderndes elektrisches Feld vorstellen kann. Der Brechungsindex kann durch

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (2)$$

beschrieben werden, wobei n_0 der feldfreie Brechungsindex, n_2 der nichtlineare Brechungsindex und I die Laserintensität ist. n_2 liegt in der Größenordnung von einigen $10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, d. h. man benötigt Intensitäten über 10^{10} W/cm^2 , um eine merkliche Änderung des Brechungsindex' zu erreichen. Auf der Strahlachse ist der Laser am intensivsten, deshalb wird er beim Durchgang durch Titan-Saphir den Brechungsindex auf der Strahlachse stärker ansteigen lassen als am Strahlrand. Damit wird die optische Weglänge für achsennahe Strahlen länger als für achsenferne: Der Strahl wird durch die sogenannte Kerr-Linse fokussiert, man spricht hier von einer Selbstfokussierung.

2.4 Gauß-Pulse, Dispersion in transparenten Medien

Ich beschreibe das elektrische Feld des Pulses im Frequenzbild und im Zeitbild:

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon(t) e^{i\omega t} dt \quad \epsilon(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega) e^{-i\omega t} dt \quad (3)$$

$$\Delta t^2 = \frac{\int (t - \langle t \rangle)^2 \epsilon(t) e^{i\omega t} dt}{\int \epsilon(t) e^{i\omega t} dt} \quad \Delta \omega^2 = \frac{\int (\omega - \langle \omega \rangle)^2 E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega}{\int E(\omega) e^{-i\omega t} d\omega} \quad (4)$$

Die spektrale Breite im Frequenzraum beschränkt die minimale Pulsdauer:

$$\Delta t^2 \Delta \omega^2 \geq \frac{1}{2} \quad (5)$$

Fourierlimitierte Pulse:

$$\Delta t^2 \Delta \omega^2 = \frac{1}{2} \quad (6)$$

Einfluss der Phase im Gaußpuls:

$$E(\omega) = E_0 \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Gamma}\right) \longrightarrow \epsilon(t) = \epsilon_0 \exp(-\Gamma t^2) \exp(i\omega_0 t) \quad (7)$$

Wenn die Frequenzkomponenten nicht alle in Phase sind, kommt noch ein weiterer Term $\exp(i\Phi(\omega))$ hinzu. Fourierlimitierte Pulse bleiben nur dann kurz, wenn es keine Dispersion gibt, die die Phasenlage der Frequenzkomponenten modifiziert. In dispersiven Medien:

$$k(\omega) = k(\omega_0) + k'(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k''(\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (8)$$

Für einen Gauß-Puls mit konstanter Phase:

$$\begin{aligned} E(\omega, x) &= E_0(\omega) e^{-ik(\omega)x} \\ &= E_0 \exp\left(-ik(\omega_0)x - ik'(\omega - \omega_0)x - \left(\frac{1}{4\Gamma} + \frac{i}{2}k''\right)(\omega - \omega_0)^2\right) \end{aligned} \quad (9)$$

Fouriertransformation von $E(\omega, x)$:

$$E(t, x) \propto \exp\left(i\omega_0\left(t - \frac{x}{v_\Phi(\omega_0)}\right)\right) \exp\left(-\Gamma(x)\left(t - \frac{x}{v_g(\omega_0)}\right)^2\right) \quad (10)$$

Gruppengeschwindigkeitsdispersion:

$$k''(\omega_0) = \frac{d^2k(\omega_0)}{d\omega^2} = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v_g(\omega_0)}\right) \quad (11)$$

Da es sich um ein aktives Medium handelt, gibt es eine positive Dispersion, die die Pulse verbreitert. Deswegen ist eine Dispersionskompensation durch zwei Prismen – die eine negative Dispersion erzeugen – erforderlich, um die positive Dispersion auszugleichen.

2.5 Optische Autokorrelation

Mit der optischen Autokorrelation ist es möglich, die Pulslänge von ultrakurzen Laserpulsen zu ermitteln. Da es sich um Laserpulse handelt, kann man davon ausgehen, dass die Funktion $x(t)$, die einen solchen Puls beschreibt, nur für einen endlichen Zeitbereich

ungleich Null ist. Ein solches Signal, welches eine endliche Energie besitzt, nennt man Energiesignal. Für ein Energiesignal $x(t)$ ist die Autokorrelation definiert durch:

$$\Phi_{xx}(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-\infty}^{+\infty} x(t) x(t - \tau) dt \quad (12)$$

Man sieht sofort, dass dieser Grenzwert nicht für Signale existiert, die keine endliche Energie besitzen. Verschiebt man das Energiesignal um eine beliebige feste Zeitkonstante t_0 , so wird das Autokorrelationssignal weiterhin mit dem beliebig anwachsenden T über das gesamte (endlich breite) Signal $x(t)$ und $x(t - \tau)$ und $x(t - \tau + t_0)$ laufen. Da lediglich Bereiche aus dem Integral fallen – bzw. neu unter das Integral rutschen – innerhalb derer der Inhalt des Integrals gleich Null ist, gilt:

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T}^{+T} x(t) x(t - \tau) dt = \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T}^{+T} x(t + t_0) x(t - \tau + t_0) dt \quad (13)$$

Die normalisierte Autokorrelationsfunktion 1. Ordnung:

$$G_1(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} E(t) E(t - \tau) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} E^2(t) dt} \quad (14)$$

Wählt man $t_0 = \tau$, so erhält man

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T}^{+T} x(t) x(t - \tau) dt = \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T}^{+T} x(t + \tau) x(t) dt \quad (15)$$

also

$$\Phi_{xx}(\tau) = \Phi_{xx}(-\tau) \quad (16)$$

Die Autokorrelationsfunktion ist symmetrisch. Man wird unabhängig von der Form des Signals immer eine symmetrische Autokorrelationsfunktion erhalten. Im Versuch sollte ich ein Signal proportional zu $G_2(t)$ bekommen. Realisiert wird die Autokorrelation durch das Aufspalten des Strahls und die Festlegung zweier verschiedener Laserwege s_1 und s_2 . Dadurch entsteht ein Zeitintervall $\tau = \frac{\Delta s}{c}$. Die Strahlen werden wieder zusammengeführt, dadurch superpositionieren sich die Intensitäten $I(t, \tau) = c\epsilon_0 (E_1(t) + E_2(t - \tau))^2$. Ein linearer Detektor hat das Ausgangssignal

$$S_L(\tau) = a \langle I(t, \tau) \rangle = \frac{a}{T} \int_{-T/2}^{+T/2} I(t, \tau) dt \quad \text{Normalisiert: } I(\tau) = \frac{\int |E(t) E(t - \tau)|^2 dt}{2 \int |E(t)|^2 dt} \quad (17)$$

Für die gleichen Amplituden der zwei Pulse $E_1(t) = E_2(t) = E_0(t) \cos \omega t$, wird der Integrand zu:

$$I(t, \tau) = c\epsilon_0 [E_0(t) \cos \omega t + E_0(t - \tau) \cos \omega(t - \tau)]^2 \quad (18)$$

Das entstandene Integral wird bei monochromatischem Licht zu

$$S_L(\tau) = 2ac\epsilon_0 E_0^2 (1 + \cos \omega \tau) \quad (19)$$

mit der Periode $\Delta\tau = \frac{\pi}{\omega} = \frac{\lambda}{2c}$. Für den Versuch wird die normierte Autokorrelationsfunktion 2. Ordnung

$$G_2(t) = \frac{\int I(\tau) I(t - \tau) d\tau}{\int I^2 d\tau} \quad (20)$$

gebraucht, da hier ein nicht-linearer Kristall benutzt wird. Ein linearer Detektor reicht in diesem Falle nicht aus, da ein solcher eine große Zeitkonstante hat und die resultierende Intensität direkt von der Summe der zeitlich um τ verschobenen Intensitäten abhängt. Ich benutze deswegen den BBO-Kristall als Frequenzverdoppler, weil die Intensität der Harmonischen dann quadratisch von der Summe der Intensitätsschwankungen in Abhängigkeit von τ zu messen ist. Somit sollte das Signal auf dem Oszilloskop eine solche Proportionalität wie bei der Autokorrelationsfunktion 2. Ordnung aufweisen.

Will man die Länge des Pulses nun bestimmen, so muss zunächst aus der aufgenommenen $I(\tau)$ -Kurve die Autokorrelationsbreite $\Delta\tau_{AC}$ – also die Halbwertsbreite – abgelesen werden. die Pulsbreite $\Delta\tau$ hängt dann von der Pulsform ab. Für die in diesem Versuch zu untersuchenden Funktionen (Gauß- und Sekanshyperbolicusquadrat) gibt es Umrechnungsfaktoren

$$\frac{\Delta\tau}{\Delta t} = \sqrt{2} \quad \text{für Gaußfunktion,} \quad \frac{\Delta\tau}{\Delta t} = 1.55 \quad \text{für Sekanshyperbolicusquadrat} \quad (21)$$

Will man diese Ergebnisse nun mit dem theoretischen Wert vergleichen, muss man die spektrale Bandbreite $\Delta\nu$ kennen. So besteht der Zusammenhang mit der Pulsdauer:

$$\Delta\nu\Delta\tau = K \quad (22)$$

Für gaußförmige Pulse ist $K = 0,441$, für sechs²-Pulse ist $K = 0,315$.

2.6 Optische Anregung von Bismut (Bi) und Antimon (Sb)

Ich will eine Aussage über die transiente Reflektivität der beiden Halbmetalle Bismut und Antimon nach einer optischen Anregung treffen. Der Pumpuls regt die Elektronen im Kristallgitter zu vertikalen Übergängen in der elektronischen Bandstruktur an, was auf den Gesamtkristall betrachtet zu einer räumlich geänderten Elektronendichte führt. Je nach Stärke der Kopplung der Kernkoordinaten mit dem elektronischen System des Kristalls, wird eine Veränderung der Kernkoordinaten erzeugt und somit eine Veränderung der Gitterkonstante. Dies wirkt sich vorübergehend auf die Reflektivität des Kristalls aus. Diese Reflektivitätsänderung kann nun mit dem Probepuls vermessen werden.

Es werden also durch den Pump-Puls Gitterverzerrungen und in Folge Gitterschwingungen angeregt, beschrieben durch optische Phononen im Gitter (DECP). Da die Anregungsdauer kurz im Vergleich zur Schwingungsdauer ist, wird hiermit eine feste Phasenbeziehung zwischen den Phononen definiert, also kohärente optische Phononen. Diese Anregung muss grundsätzlich von solcher durch Raman-Streuung unterschieden werden. Bei der Raman-Streuung kommt es durch Anregung zu einem Energieverlust der einfallenden Strahlung und zur Anregung der Phononen durch Impulsübertragung.

Berechnet man die Auswirkungen von DECP auf die Reflektivität R , so gelangt man nach kurzer Rechnung zu folgendem einfachen Ausdruck für die relative Änderung von R :

$$\frac{\Delta R(t)}{R} = A \int_0^{\infty} d\tau e^{-\beta\tau} G(t-\tau) + B \int_0^{\infty} d\tau [e^{-\beta\tau} - e^{-\gamma\tau} \cos(\omega_0\tau + \Phi)] \times G(t-\tau) + C \int_0^{\infty} d\tau G(t-\tau) \quad (23)$$

Dabei ist $G(t)$ die oben beschriebene Autokorrelationsfunktion, $\beta, \gamma \ll \omega_0$ sind die Zerfallsraten für das angeregte Elektronen-System bzw. die Phononen und Φ ist ein Phasenfaktor.

2.7 Nichtlineare Optik

Man benötigt einige Begriffe aus der nichtlinearen Optik. Im Unterschied zur klassischen Optik hängen in dieser wichtige Größen von der Intensität des eingestrahlten Lichts ab. Zudem ist es physikalisch sinnvoller, die Superposition zweier elektromagnetischer Wellen zu betrachten. Der Fokaldurchmesser 2ω eines Gaußschen Wellenpakets, anschaulich gesprochen also die Dicke des Strahls, kann beim Durchgang durch Linsen oder Blenden aus einer Messung der Leistung vor und nach der Blende bestimmt werden:

$$P_{\text{nach}}/P_{\text{vor}} = 1 - \exp(-2a^2/\omega^2) \quad (24)$$

wobei a der Blendenradius ist. Die mittlere Energiedichte oder Fluenz F des Strahls mit gemessener Leistung P ist dann logischerweise gegeben durch:

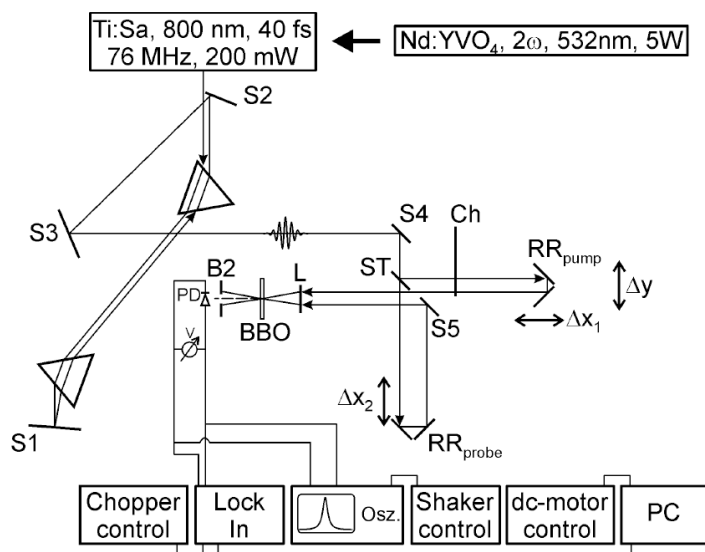
$$F = \frac{P}{(\omega^2\pi)\omega} \quad (25)$$

wobei ω die Pulsrate des Lasers ist.

3 Versuchsaufbau und Durchführung

3.1 Apparatur

Der verwendete Pump-Laser ist ein Nd:YVO₄ Festkörperlaser, der den Titan-Saphir-Oszillator speist. Der Laserstrahl verläuft zunächst durch ein Prismenpaar und wird dann durch Spiegel in den Strahlteiler geleitet. Dort wird der Strahl in den Pump- und



Probestrahl geteilt. Der Pumpstrahl wird auf den Retroreflektor des Pumparms gerichtet, der auf einem linearen Verschiebetisch kontinuierlich um eine vordefinierte Wegstrecke verfahren wird. Der Probestrahl wird auf einen Schüttler (*Shaker*) geschickt, der die andere Wegstrecke definiert. Beide Strahlen werden durch eine Linse zusammengeführt.