

# B05 Femtosekunden-Pump-Probe-Experimente

Durchführung am 13. September 2007

## Zusammenfassung

Die Pump-Probe Technik ermöglicht die zeitliche Auflösung ultraschneller Prozesse in Atomen und Oberflächen. Das Prinzip des Verfahrens besteht darin, dass eine Probe mit einem Pumpsignal mit hoher Intensität angeregt wird und anschließend der Zerfall dieses angeregten Zustandes mittels Probesignal analysiert wird. In dem folgenden Versuch untersuchen wir die zeitliche Entwicklung der Reflektivität in einem angeregten Zustand (*transient reflection*) von Bismut.

## Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Physikalische Grundlagen des Versuchs</b>	<b>2</b>
1.1	Erzeugung von fs-Laserpulsen . . . . .	2
1.1.1	Erzeugung . . . . .	2
1.1.2	Titan:Saphir Laser . . . . .	2
1.1.3	Modenkopplung (mode-locking) . . . . .	2
1.2	Charakterisierung der Laserpulse . . . . .	3
1.3	Lock-In-Verstärker . . . . .	3
1.4	Bismut . . . . .	4
1.4.1	Metall - Halbmetall . . . . .	4
1.4.2	Halbleiter - elektronische Bandstruktur . . . . .	4
1.4.3	Phononen . . . . .	4
1.4.4	transiente Reflexivität . . . . .	5
<b>2</b>	<b>Versuchsaufbau und Messprinzip</b>	<b>5</b>
2.1	Versuchsaufbau . . . . .	5
2.2	Versuchsdurchführung . . . . .	6
<b>3</b>	<b>Auswertung</b>	<b>8</b>
3.1	Fluenz . . . . .	8
3.2	Pulsform und -dauer . . . . .	10
3.3	Transiente Reflektivität . . . . .	12
<b>4</b>	<b>Zusammenfassung und Diskussion</b>	<b>14</b>

# 1 Physikalische Grundlagen des Versuchs

## 1.1 Erzeugung von fs-Laserpulsen

### 1.1.1 Erzeugung

Um die hohe zeitliche Auflösung ( $\sim 10$  fs) tatsächlich zu erreichen, ist ein Laser mit hoher Intensität und extrem kurzen Pulsen nötig. Beliebige kurz gepulste Laserpulse lassen sich theoretisch durch Überlagerung unendlich vieler Moden mit fester Phasenbeziehung erzeugen (Modenkopplung). Betrachten wir der Einfachheit halber ein Gaußsches Spektrum:

$$I(\omega) = I_0 e^{-k\omega^2}.$$

Die Intensitätsverteilung als Funktion der Zeit erhält man durch Fouriertransformation:

$$I(t) \propto e^{-t^2/4k}.$$

Diese einfache Überlegung zeigt bereits, dass der Puls kürzer wird, je breiter die spektrale Verteilung ist.

### 1.1.2 Titan:Saphir Laser

Beim Titan:Saphir Laser befinden sich  $\text{Ti}^{3+}$  Ionen in einer Saphirmatrix. Auf Grund der verschiedenen Ionenradien treten an den dotierten Stellen starke lokale Gitterstörungen auf, welche zugleich ein starkes lokales elektrisches Feld hervorrufen. Werden Elektronen durch Photoneinstrahlung angeregt, so erfahren deren Zustände auf Grund des elektrischen Feldes eine Aufspaltung. Die Elektronenzustände sind stark mit den Schwingungsmoden der Saphirmatrix gekoppelt, wobei hier durch eine starke Verbreiterung des spektralen Verstärkungsprofils induziert wird. Dies ist einer der Hauptunterschiede zu herkömmlichen Lasern, wobei der Ti:Sa Laser im gepulsten Betrieb genutzt wird, wohingegen viele konventionelle Laser im cw-Betrieb arbeiten.

### 1.1.3 Modenkopplung (mode-locking)

Ein breites spektrales Verstärkungsprofil reicht allerdings nicht aus, um scharf getrennte Pulse zu erhalten. Ferner müssen die unterschiedlichen Moden in einer festen Phasenbeziehung stehen. In einem optischen Resonator der Länge  $L$  werden zunächst Seitenbänder mit einem Frequenzunterschied  $c/2L$  angeregt. Hier bedarf es der sogenannten Modenkopplung, wobei drei verschiedene Arten (active mode-locking, passive mode-locking und self-mode-locking) unterschieden werden. Beim Ti:Sa Laser kommt die self mode-locking Methode mittels einer Kerr-Linse zum Einsatz.

Der Kerr-Effekt ist ein nicht-linearer optischer Effekt, nach dem die Brechzahl von der Intensität abhängt:

$$n = n_0 + I \cdot n_2.$$

Zu unterscheiden ist zwischen dem räumlichen und zeitlichen Verhalten dieses Effektes. Wir wollen nur das räumliche Verhalten diskutieren. Angenommen das Wellenbündel hat eine gaußsche Intensitätsverteilung

$$I(r, \varphi, z) = I_0 e^{-r^2}$$

und sei  $n_2 > 0$ , so kommt es zur Selbstfokussierung. Die Brechzahl ist in der Mitte höher als weiter außen und das Lichtbündel wird zur Mitte hin gebrochen. Für  $n_2 < 0$  spricht man von Selbstdefokussierung.

## 1.2 Charakterisierung der Laserpulse

Verschiedene Bauelemente in dem Versuchsaufbau haben eine positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD):

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

die ein auseinanderlaufen des Laserpulses verursacht. Um ( zum einen die zum Pumping benötigte Fluenz zu erreichen und zum anderen ) eine hohe zeitliche Auflösung beim Probing, muss der Laserpuls ausgesprochen kurz sein. Ein Auseinanderlaufen des Pulses muss also so gut wie möglich unterbunden werden.

Dazu benutzt man einen sogenannten optischen Kompressor. Dieser besteht aus zwei Prismen, die so aufgestellt sind, dass die Richtung des Strahles insgesamt unverändert bleibt. Beide Prismen haben jedoch eine negative GVD, so dass die positive GVD der anderen Elemente über die Strecke an durchquertem Prisma kompensiert werden kann.

Die Schärfe des Laserpuls wird mittels Autokorrelation 2. Ordnung bestimmt:

$$G_2(t) = \frac{\int I(\tau - t) I(\tau) d\tau}{\left| \int I^2(\tau) d\tau \right|}.$$

Theoretisch müsste man die Intensität mit einem unendlichen scharfen synthetisch erzeugten Puls  $\tilde{I}(t) = \delta(t - t_0)$  korrelieren:

$$G(t) = \int I(\tau) \delta(t - \tau) d\tau.$$

Im Anbetracht der Zeitskala (10 fs) ist dies aber unmöglich zu realisieren. Daher korreliert man das Signal mit sich selbst, was im Falle von Laserlicht ein vernünftiger Ansatz ist. Anders als bei weißem Licht ist bei stark kohärentem Licht, die Autokorrelationszeit ein gutes Maß für die Pulsdauer.

Die Autokorrelation 2. Ordnung wird realisiert durch Frequenzverdopplung mittels eines BBO Kristalls (Beta-Bariumborat). Treffen beide Teilstrahle unter genügendem zeitlichen und räumlichen Überlapp auf den Kristall, entstehen Photonen mit der 2. Harmonischen als Frequenz. In einem der Teilstrahlen, steht ein sogenannter Shaker. Dieser variiert mit einer Frequenz, die höher als die Reaktionszeit der Messdiode ist, die Länge des Armes. Je kleiner die Amplitude des Shakers, bis die Frequenzverdopplung verschwindet, desto kürzer ist der Laserpuls.

## 1.3 Lock-In-Verstärker

Das Signal des Probestrahls  $U_{\text{in}}(t)$  wird mittels Lock-In-Verstärker aufgenommen. Mit diesem können auch sehr schwache Signale bei starkem Rauschen (Umgebungslicht) herausgefiltert und gemessen werden, wobei das Signal/Rausch-Verhältnis stark verbessert werden kann. Der Lock-In Verstärker korreliert das Signal mit einem Referenzsignal (z.B. Sinuskurve, Rechteckspannung)  $U_{\text{ref}}(t)$

das wählbare Parameter, wie Frequenz und Phase hat. Dazu wird das Signal mit dem Referenzsignal multipliziert und über eine feste Zeit  $T$  summiert. Damit ergibt sich das Ausgangssignal  $U_{\text{out}}(t)$  als:

$$U_{\text{out}}(t) = \frac{1}{T} \int_{t-T}^t U_{\text{ref}}(\tau) U_{\text{in}}(\tau) d\tau.$$

Die für die Lock-In-Technik benötigte Periodizität, des zu messenden Signals, erhält man durch einen sogenannten Chopper, der den Probestrahl periodisch abdeckt und so dem Signal vor dem zu beobachteten Prozess eine Rechteckform aufmoduliert.

## 1.4 Bismut

### 1.4.1 Metall - Halbmetall

Bismut besitzt metallische Eigenschaften und kann nach [6] bereits als Metall gezählt werden. Ein Metall zeichnet sich durch den metallischen Glanz der Oberfläche, die Undurchsichtigkeit, die Dehnbarkeit bzw. plastische Verformbarkeit (Duktilität), gute elektrische und thermische Leitfähigkeit aus. Halbmetalle sind Elemente, welche metallische und nichtmetallische Eigenschaften besitzen, sie stehen im Periodensystem der Elemente zwischen den Metallen und Nichtmetallen, wobei Bismut das letzte Metall ist und an Polonium und Antimon grenzt, welche bereits Halbmetalle sind. Bei Metallen ist die Zustandsdichte am Fermi-niveau deutlich größer als bei Halbmetallen.

### 1.4.2 Halbleiter - elektronische Bandstruktur

Halbleiter besitzen eine Bandlücke zwischen dem Leitungs- und Valenzband, zudem existieren im Valenzband keine freien Zustände, welche eine Leitung ermöglichen würden. Jedoch besteht die Möglichkeit für thermische Elektronen die Bandlücke zu überwinden und so zur Leitung beizutragen. Dies ist bereits bei Zimmertemperatur möglich.

Die elektronische Bandstruktur ergibt sich aus den Potentialen, welche von den Gitteratomen gebildet werden. Diese beschränken die Anzahl der erlaubten Zustände der Elektronen, was zur Ausbildung einer Bandstruktur führt.

Beim direkten Halbleiter liegen Valenzbandmaximum und Leitungsbandminimum direkt übereinander, wie Abb. 1 zeigt. Hierbei ist ein vertikaler Übergang ohne Phononenbeteiligung (horizontaler Übergang) möglich.

Beim indirekten Halbleiter liegt das Valenzbandmaximum nicht unter dem Leitungsbandminimum, es ist ein zusätzlicher Impuls  $\vec{k}$  nötig, welcher in Form eines Phonons aufgenommen oder abgegeben werden kann, um ein Elektron anzuregen. Dies ist auf Abb. 2 zu sehen.

### 1.4.3 Phononen

Als Phononen werden Gitterschwingungen bezeichnet. Eine kohärente Gitterschwingung ist eine Schwingung der Gitterpunkte bzw. Atome, bei der diese die gleiche Frequenz und eine feste Phasenbeziehung besitzen. Man kann zwei Schwingungsarten unterscheiden, die symmetrischen und die antisymmetrischen Schwingungen. Im Falle der symmetrischen Schwingungen, schwingen alle Atome in die gleiche Richtung und es kommt zu temporären Deformationen. Bei

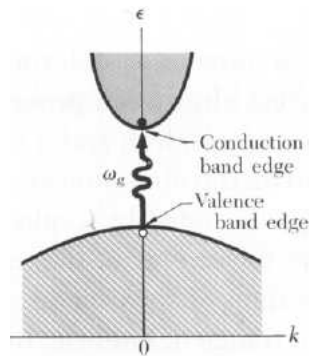


Abbildung 1: Darstellung des Bandschemas eines direkten Halbleiters nach [5]

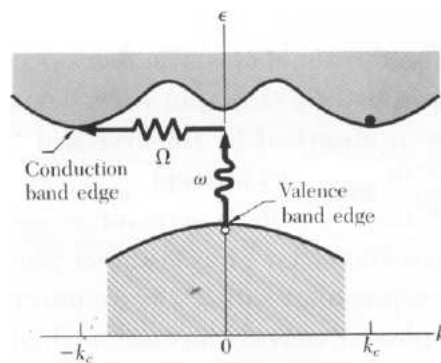


Abbildung 2: Darstellung des Bandschemas eines indirekten Halbleiters nach [5]

den antisymmetrischen Schwingungen, schwingen die Atome gegeneinander, wobei es hierdurch zu einer Ladungsschwerpunktverlagerung und somit zur lokalen Polarisation kommt, dies ist der optische Phononenzweig.

#### 1.4.4 transiente Reflexivität

Die transiente Reflexivität beschreibt die Eigenschaft, dass sich der Anteil der einfallenden Photonen die reflektiert werden, zeitlich verändert. Für die zu bestimmenden transienten Reflexivitäten können wir mit den Messungen von [2] vergleichen, welche sich auf den Abbildungen 3 und 4 befinden.

## 2 Versuchsaufbau und Messprinzip

### 2.1 Versuchsaufbau

Als Quelle für unseren Pumppulse verwenden wir einen Ti:Sa Laser (Coherent Mira). Dieser wird von einem Neodymlaser gepumpt. Das Signal hat eine Repetitionsrate von 76 MHz, d.h. es werden 76 Millionen Pulse pro Sekunde erzeugt. Wir betreiben die Laserquelle ungefähr bei der Hälfte der maximal erreichbaren

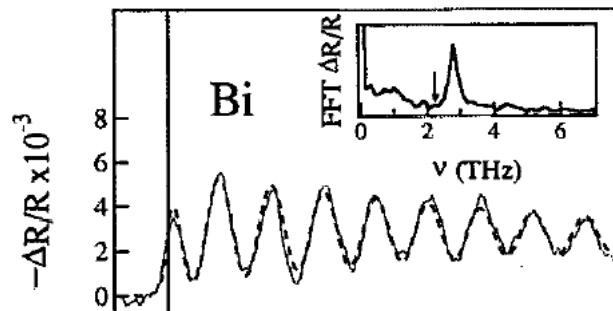


Abbildung 3: transiente Reflexivitätsmessung aus [2]

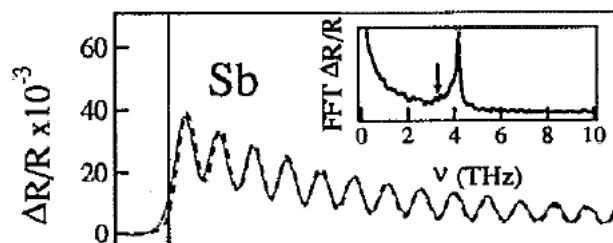


Abbildung 4: transiente Reflexivitätsmessung aus [2]

Leistung von 200 mW. Die Pulse haben eine spektrale Verteilung um 800 nm, wir erwarten also rotes Licht.

Detektiert wird mit einer Photodiode. Die Ausmaße der Diode sind größer als der Strahl selbst. Dadurch wird immer die gesamte Strahlung detektiert, ausreichende Justierung vorausgesetzt.

Wir benutzen zuerst einen Aufbau zur Messung der Intensitätsautokorrelation für einen fs-Laserpuls, zu sehen in Abb. 5. Danach messen wir mit einem zweiten Aufbau, der in Abb. 6 zu sehen ist, die transienten Reflexivität.

## 2.2 Versuchsdurchführung

Die beiden Strahlengänge waren bereits weitestgehend justiert. Die Prismen zur Anpassung der GVD wurden gar nicht verändert. Anstelle einer Linse zum Zusammenführen der beiden Teilstrahlen, kam ein Parabolspiegel zum Einsatz. Zunächst haben wir beide Strahlengänge so justiert, dass die gemessene Leistung hinter der Lochblende jeweils maximal wurde. Die Justierung wurde in der Nähe des Maximums zunehmend langwieriger, da hier die Trägheit des Leistungsmessgerätes sehr deutlich wurde. Dann haben wir den BBO Kristall in den Strahl eingebracht. Ein intensiver blauer Fleck wurde sofort sichtbar. Ein Shaker zum Auffinden des Maximums wurde nicht benutzt. Mit dem BBO waren also ein blauer Fleck umgeben von zwei roten Flecken zu sehen. Hier konnten das Phänomen der Frequenzverdopplung gut sichtbar gemacht werden: hielt man einen der Teilstrahlen zu, blieb von den drei Punkten immer nur ein roter übrig.

Nachdem die Autokorrelation optimal eingestellt war, konnte der weitere

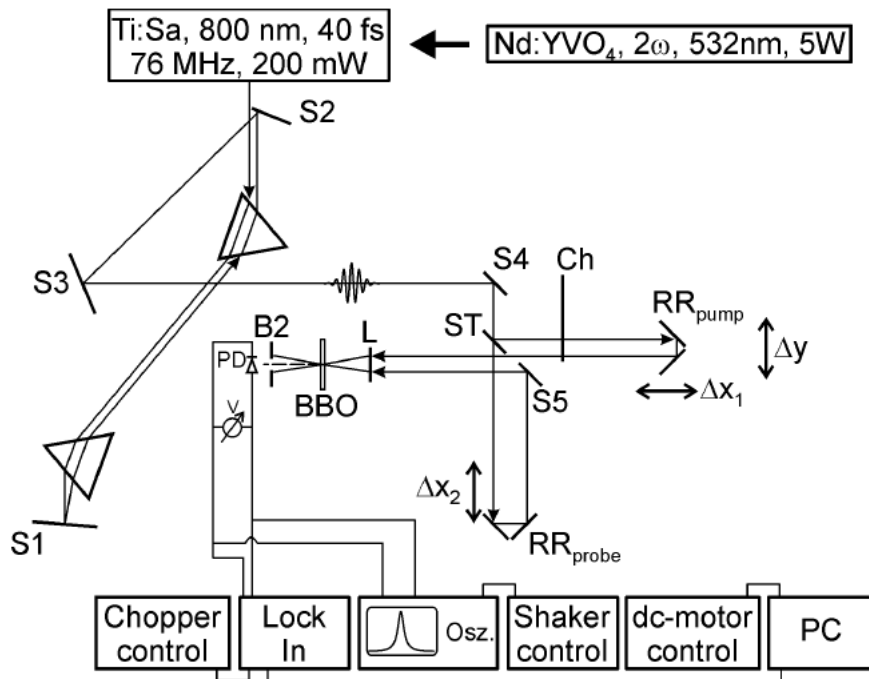


Abbildung 5: Experimenteller Aufbau zur Messung der Intensitätsautokorrelation eines Femtosekundenlaserpuls mittels einem nichtlinearen Kristall [1]

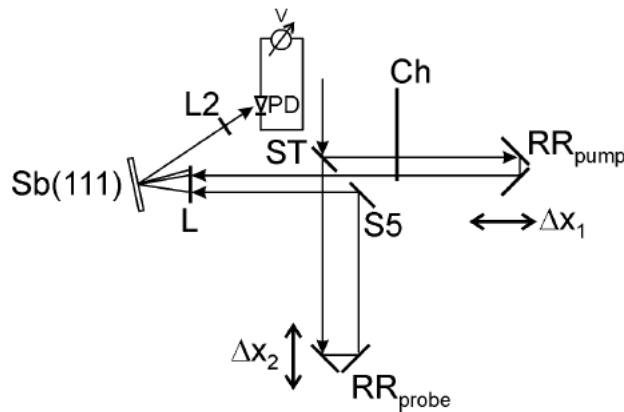


Abbildung 6: Experimenteller Pump-Probe-Aufbau zur Messung der transienten Reflexivität [1]

Versuch vom PC mit Hilfe eines Schrittmotors kontrolliert werden. Das Messprogramm variiert den Pump-Probe Abstand  $\Delta t$  und speichert den kompletten Verlauf in einer ASCII Datei ab.

### 3 Auswertung

#### 3.1 Fluenz

Die Messung mit dem Leistungsmessgerät ergab folgende Werte ohne Lochblende

Strahl	Leistung
Pump	$108 \pm 1 \text{ mW}$
Probe	$27.5 \pm 0.5 \text{ mW}$

und mit Lochblende ( $d = 50 \text{ }\mu\text{m}$ )

Strahl	Leistung
Pumpstrahl	$74 \pm 0.5 \text{ mW}$
Probestrahl	$16 \pm 0.5 \text{ mW}$

Der Fehler ergibt sich aus der Schwankung der Leistungsmessung bei unveränderter Justierung. Für das Verhältnis der Leistung vor und nach der Lochblende ergibt sich somit

Strahl	Verhältnis $q$
Pump	$0.6852 \pm 0.0079$
Probe	$0.582 \pm 0.022$

Hieraus lässt sich bereits erkennen, dass die beiden Strahlen nicht gleich gut fokussiert waren, da die relative Leistungsänderung sich um 10% unterscheidet. Der Pumpstrahl scheint also besser justiert gewesen zu sein. Das dies an der Justierung liegen muss folgt aus der Annahme, dass die Strahlen, nachdem sie aus dem gleichen Strahl aufgespalten wurden, auf ihren unterschiedlichen Wegen keine Veränderung erfahren haben und somit theoretisch identischer Natur sein müssten. Da die Leistung eine Mittelung über die Zeit darstellt, ist es zudem nicht nötig die gleichen Wellenpakete zu betrachten, obwohl die Leistung einer geringen Schwankung, bedingt durch die leichte Instabilität des Lasers, unterworfen war.

Den Fokusedurchmesser berechnen, wir indem wir eine gaußsche Intensitätsverteilung

$$I(r) = I_0 e^{-ar^2}$$

annehmen und ausrechnen welches FWHM ein Strahl mit dem gemessen Abfall hat.

Der Radius der Lochblende ist  $R = 25 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ . Das theoretische Verhältnis des Gesamtstrahles zu einem bei  $R$  abgeschnittenen beträgt

$$q_{\text{Th}} = \frac{\int_0^R r e^{-ar^2} dr}{\int_0^\infty r e^{-ar^2} dr} = 1 - e^{-aR^2}.$$

Diese Gleichung ist nach  $a$  umzuformen und in den Durchmesser für einen Strahl mit diesem FWHM einzusetzen:

$$d = 2\sqrt{\frac{\ln 2}{a}} = 2\sqrt{\frac{-R^2 \ln 2}{\ln(1-q)}} = 2R\sqrt{\frac{-\ln 2}{\ln(1-q)}}.$$



Damit ergeben sich die beiden Fokusburchmesser zu:

$$d_{\text{Pu}} = (3.872 \pm 0.084) \cdot 10^{-5} \text{m}$$

$$d_{\text{Pr}} = (4.46 \pm 0.13) \cdot 10^{-5} \text{m}.$$

Um die mittlere Fluenz  $F$  zu bestimmen, nutzen wir die Formel

$$F = 4 \frac{P_i}{\pi d^2 \nu}$$

mit der Pulsfrequenz  $\nu = 76 \text{ MHz}$ , dem jeweiligen Fokusburchmesser  $d$  und der einkommenden Leistung  $P_i$ . Hieraus erhalten wir:

$$F_{\text{Pu}} = (1.207 \pm 0.039) \frac{\text{J}}{\text{m}^2}$$

$$F_{\text{Pr}} = (0.232 \pm 0.011) \frac{\text{J}}{\text{m}^2}$$

Die Energie pro Puls ergibt sich aus der Annahme, dass wir bei 76 MHz-Betrieb  $76 \cdot 10^6$  Pulse pro Sekunde besitzen. Die Leistung für alle Pulse der Teilstrahlen erhalten wir als  $P_{\text{Pu}} = (108 \pm 1) \text{ mW}$  und  $P_{\text{Pr}} (27.5 \pm 0.5) \text{ mW}$ . Wir müssen um die Energie pro Puls zu erhalten nur durch die Anzahl der Pulse pro Sekunde teilen:

$$\frac{P}{76 \text{ MHz}} = E$$

Hieraus ergeben sich Energien pro Puls von  $E_{\text{Pu}} = (1.421 \pm 0.014) \cdot 10^{-9} \text{ J}$  und  $E_{\text{Pr}} = (0.3618 \pm 0.0066) \cdot 10^{-9} \text{ J}$ . Wir bestimmen aus den Energien pro Puls die Photonenzahl, die in einem Puls enthalten ist, indem wir durch die Einzelphotonenenergie teilen. Diese ist jedoch durch die Frequenzverteilung der Photonen nicht für jedes Photon gleich, wie es bei monochromatischem Licht der Fall wäre, daher ergibt sich:

$$N = \frac{E}{hc \int_0^\infty \frac{F(\lambda)}{\lambda} d\lambda}.$$

Wobei  $F(\lambda)$  die Wellenlängenverteilung des Laserpulses ist.

Um diesen Ausdruck numerisch bestimmen zu können müssen obere und untere Abschneidfrequenzen bzw. Wellenlängen gewählt werden. Wir wählen relativ willkürlich  $\lambda_{\text{min}} = 10 \text{ nm}$  und  $\lambda_{\text{max}} = 3000 \text{ nm}$  was in Anbetracht der beobachteten Verteilung aber vernünftig wirkt, um sagen zu können, dass der numerische Fehler gegenüber einem experimentellen Fehler vernachlässigbar wird: Es ist weder Röntgenstrahlung zu erwarten noch tiefinfrarote Strahlung interessant.

Unsere normierte Verteilungsfunktion lautet:

$$F(\lambda) = \sqrt{\frac{b}{\pi}} e^{-b(x-c)^2}.$$

Wobei die Konstanten der Abbildung 7 zu entnehmen sind. Fehler, die sich aus dem Anpassen ergeben, sind gegenüber der Leistungsmessung zu vernachlässigen und so ergibt sich eine mittlere Energie pro Photon von

$$E_{\text{Ph}} = hc \int_0^\infty \frac{F(\lambda)}{\lambda} d\lambda \approx 2.39 \cdot 10^{-19} \text{ J} \approx 1.49 \text{ eV}$$

Wir erhalten daraus für die Anzahl der Photonen pro Puls

$$N_{\text{Pu}} = \frac{E_{\text{Pr}}}{E_{\text{Ph}}} = (5.946 \pm 0.059) \cdot 10^9$$

$$N_{\text{Pr}} = \frac{E_{\text{Pu}}}{E_{\text{Ph}}} = (1.514 \pm 0.028) \cdot 10^9$$

und somit eine Gesamtzahl pro Puls von:

$$N_{\text{Puls}} = (7.460 \pm 0.066) \cdot 10^9.$$

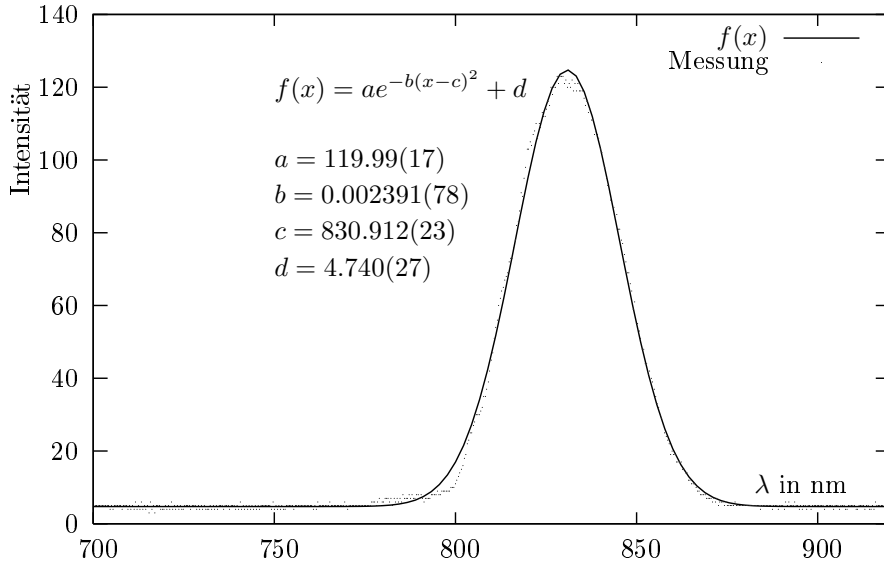


Abbildung 7: Fitting der Wellenlängenverteilung des Laserpulses

### 3.2 Pulsform und -dauer

Die Anpassung des Pulses an die beiden theoretischen Verläufe ist in Abbildung 8 zu sehen.

Mit Hilfe von Tabelle 7.3 aus [4] finden wir die Beziehung  $\frac{\Delta\tau_{AC}}{1.414} = \Delta\tau$  für den Gauß'schen Verlauf und  $\frac{\Delta\tau_{AC}}{1.543} = \Delta\tau$  für den sech<sup>2</sup>-Verlauf, mit den Pulsdauern  $\Delta\tau$  und den aus Abb. 8 bestimmbaren Autokorrelationsbreiten  $\Delta\tau_{AC}$  (FWHM). Es ergeben sich folgende Werte

Verlauf	$\Delta\tau_{AC}$ in fs	$\Delta\tau$ in fs
Gauß(AC)	$61.87 \pm 0.44$	$43.76 \pm 0.32$
sech(AC)	$59.8 \pm 0.30$	$38.76 \pm 0.20$

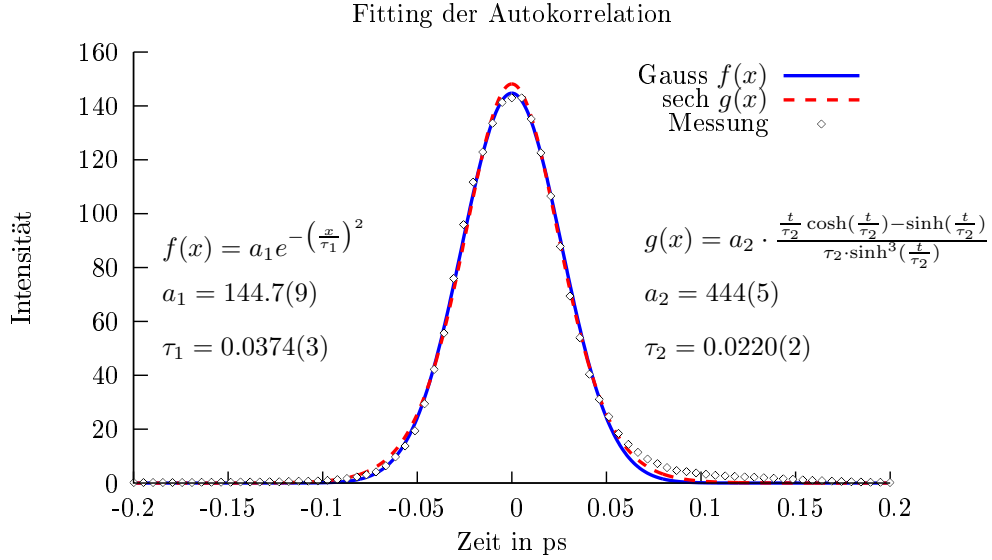


Abbildung 8: Anpassung der Pulsform

Beide Verläufe scheinen eine ähnlich gute Beschreibung des tatsächlich gemessenen Verlaufes zu liefern. Die Summe der Residuen ist für die Gauß Kurve mit 381.9 leicht größer als für den sech<sup>2</sup>-Verlauf mit 317.3. Demnach ist die Sech<sup>2</sup> Kurve die etwas genauere Beschreibung. Allerdings müssen wir annehmen, dass unsere Methode nicht ausreicht, um eine Kurvenform auszuschließen.

Die Pulslänge kann auch aus dem Zeit-Bandbreiten-Produkt bestimmt werden. Um diese mit der direkt bestimmten Pulslänge zu vergleichen, nutzen wir, dass für das Zeit-Bandbreiten-Produkt gilt:

$$\Delta\nu\Delta\tau = K \Leftrightarrow \Delta\tau = \frac{K}{\Delta\nu}$$

wobei  $K = 0.441$  für den Gaußschen-Verlauf und  $K = 0.315$  für den sech<sup>2</sup>-Verlauf gilt. Wir können aus dem Wellenlängenspektrum  $\Delta\nu$  bestimmen. Aus den Anpassungen (siehe Abb. 7) erhalten wir, wenn wir die Anpassung nach FWHM umstellen:

$$ae^{-b(x-c)^2} \stackrel{!}{=} \frac{a}{2}$$

$$\Rightarrow \frac{\ln 2}{b} = (x-c)^2 \Rightarrow x_{\pm} = c \pm \sqrt{\frac{\ln 2}{b}} =: \lambda_{1/2}$$

$$\begin{aligned} \Delta\nu &= c_0 \left( \frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \\ &= c_0 \left( \left( c - \sqrt{\frac{\ln 2}{b}} \right)^{-1} - \left( c + \sqrt{\frac{\ln 2}{b}} \right)^{-1} \right) = (14.79 \pm 0.30) \text{ THz} \end{aligned}$$

$$\Delta\tau_{\text{Gauss}} = (29.8 \pm 0.9) \text{ fs}$$

$$\Delta\tau_{\text{sech}^2} = (21.3 \pm 0.7) \text{ fs}$$

was im Vergleich zu unseren direkt bestimmten Pulslängen deutlich von diesen abweicht, d.h. die Werte liegen weit ausserhalb des 3-fachen Fehlerintervalls. Dies lässt sich über die Prismenkompressoren begründen. Durch diese wird die positive GVD ausgeglichen und die Chirps entfernt, wodurch die Pulse teilweise verlängert werden. Daher sind die Pulsdauern, nachdem sie den Versuchsaufbau durchlaufen haben, ca. doppelt so lang, wie zu Beginn. Der Fehler ergibt sich aus dem dominierenden Fehler bei der Anpassung von 0.3%.

### 3.3 Transiente Reflektivität

Die Anpassung der Reflektivität ist Abbildung 10 zu entnehmen. Die differentielle Auftragung

$$\frac{\Delta R}{R(t < 0)} = \frac{R(t)}{R(t < 0)} - 1$$

ist in Abbildung 11 zu sehen.

Der Verlauf der transienten Reflexivität kann in zwei Bewegungen unterschieden werden, der Bewegung der gedämpften Schwingung und einer weiteren überlagerten Bewegung, die zuerst die Intensität leicht erhöht, jedoch schnell abfällt, so dass danach fast nur noch die exponentielle Abnahme der gedämpften Schwingung im Verlauf der Einhüllenden zu erkennen ist. Daher passen wir eine Linearkombination aus einer gedämpften oszillatorischen Schwingung überlagert mit einem Polynom an. Im Bereich zwischen  $-0.1$  ps und  $0.2$  ps variiert die Reflektivität äußerst stark. Wir vermuten, dass der Lock-In Verstärker hier nicht ausreichend filtern konnte. Der Pumpstrahl ist ein zeitlich extrem scharfes Signal und daher, wie oben gesehen, über viele Frequenzen verteilt. Es ist also möglich, dass Teile des Pumpstrahles direkt reflektiert und detektiert wurden.

Die gefittete Funktion ist bei  $t = 0$  fast bei einem Minimum, was für einen DECP Prozess (displacive excitation of coherent phonons) spricht. Die Resonanzfrequenz

$$b \approx (2.878 \pm 0.020) \text{ THz}$$

stimmt bemerkenswert gut mit dem Maximum der Fouriertransformierten (s. Abb. 9) überein.

Der Wellenvektor ergibt sich unter der Annahme einer der Phononenwellenlänge proportionalen Eindringtiefe von ungefähr 20 nm. Diese ist sehr viel größer als  $q$ . Daraus folgt

$$|\vec{q}_{\text{Ph.}}| \ll d_{\text{BZ}}$$

daher kann  $|\vec{q}_{\text{Ph.}}|$  als ungefähr 0 angenommen werden. Daher befindet sich  $\vec{q}$  sehr nahe am  $\Gamma$ -Punkt. Die Frequenz  $b$  ist für  $T = 300$  K der Phononenmode

$$\Gamma \rightarrow T : \Lambda_3(TO)$$

zuzurechnen.[7]

Insbesondere wenn man in Betracht zieht, dass die Fouriertransformation auch den Bereich  $t < 0$  mit einbezieht.

Die Relaxationsrate ergibt sich zu:

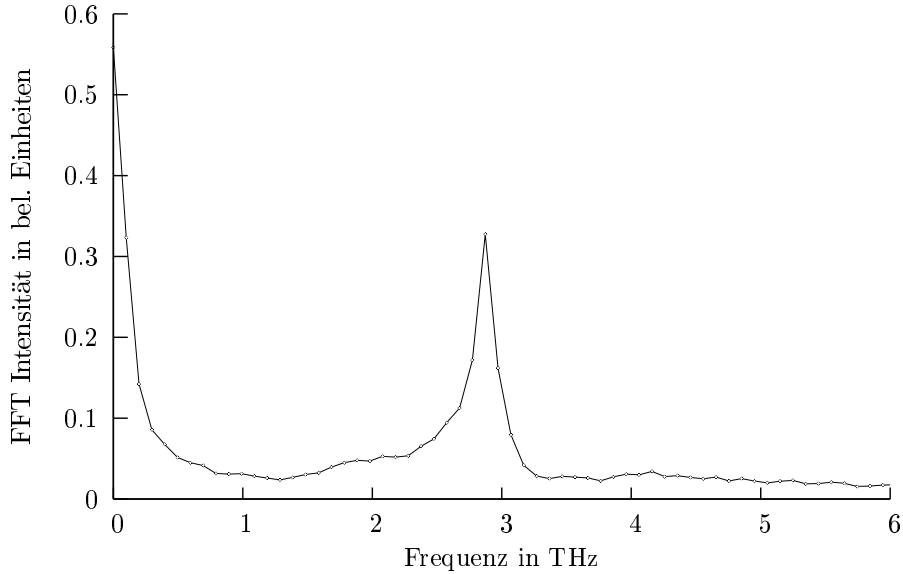


Abbildung 9: Fouriertransformation der transienten Reflektivität. Eine deutliche Spitze ist bei 2.9 THz erkennbar

$$d = (0.33 \pm 0.01) \frac{1}{\text{ps}}$$

was einer Zeitspanne von

$$t_{\text{Rel.}} = (3.0 \pm 0.1) \text{ ps}$$

entspricht.

Die Phasenverschiebung der Kosinusschwingung beträgt  $(8 \pm 11)^\circ$ , was in guter Übereinstimmung mit [2, 3] ist.

Das Abklingen der Oszillationen kann durch ein Zusammenspiel mehrerer Effekte erklärt werden.

1. Die Phonon-Phonon-Wechselwirkung, welche eine anharmonische Wechselwirkung in Kristallen ist, ermöglicht die Erzeugung eines dritten Phonons aus der Wechselwirkung von zwei Phononen, wobei die Frequenz des resultierenden  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  die Summe der Frequenzen der wechselwirkenden Phononen ist. Die Anwesenheit eines Phonons erzeugt eine periodische elastische Deformation, welche die elastischen Konstanten eines Kristalls moduliert. Das zweite Phonon spürt nun diese Modulation und wird an dieser gestreut, so erzeugt dieses dann ein drittes Phonon.
2. Die Elektron-Loch-Paarerzeugung kann ein Phonon absorbieren oder emittieren, wobei die emittierten Phononen von anderer Frequenz als die absorbierten sein können. Die Phononen, die vor der Absorption die gleiche Frequenz besaßen, werden so also "frequenzmoduliert". Dies führt zu einem Abklingeffekt der Oszillationen.

3. Phononen können an Gitterdefekten absorbiert werden wodurch Schwingungen eliminiert werden.

Laut Hase [3] nehmen Oszillationen und Relaxationszeiten mit abnehmender Temperatur zu. Nach [3] werden die optischen Phononen möglicherweise vom  $\Gamma$ -Punkt zum  $\Lambda$ -Punkt laufen und zerfallen an diesem in zwei akustische Phononenmoden. Dies trägt zusätzlich zum Abklingen der Oszillationen bei.

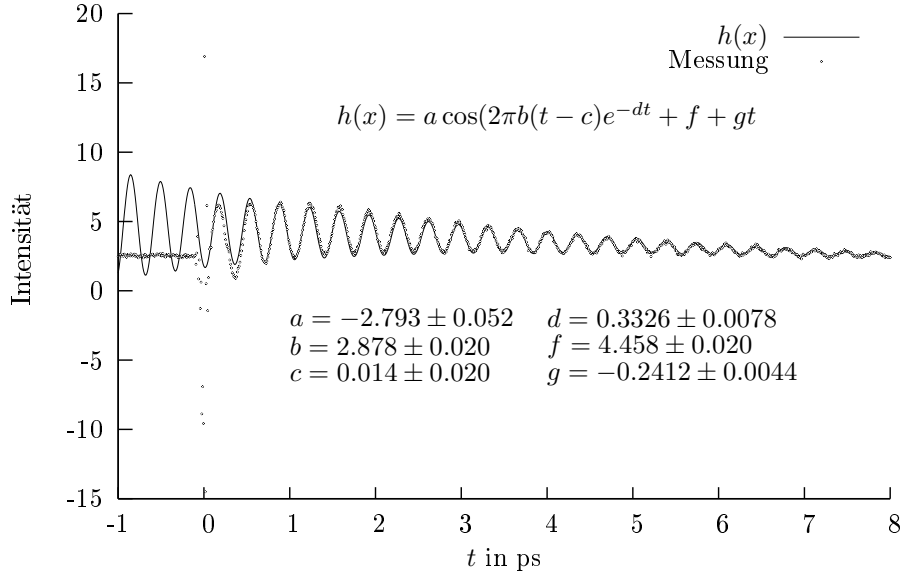


Abbildung 10: Fitting der transienten Reflexivität

## 4 Zusammenfassung und Diskussion

In dem durchgeführten Femtosekunden Pump-Probe-Experiment, konnten wir einen Laserpuls von ungefähr 50 fs erzeugen und optimieren. Es war ausgesprochen faszinierend eine derart kurze Zeitspanne direkt zu beobachten und experimentell überhaupt in diese zeitliche Dimension vorzudringen.

Auch wenn mehrere Indizien für ein Gaußsches Modell der zeitlichen Intensitätsverteilung sprechen, konnten wir nicht abschließend klären, welches den tatsächlichen Puls beschreibt.

Den nichtlinearen Effekt der Frequenzverdopplung haben wir erfolgreich beobachtet. Auch die transiente Reflexivität haben wir erfolgreich beobachtet und quantifiziert. Hier war etwas Fingerspitzengefühl und Geduld nötig, um aussagekräftige Prozesse zu beobachten. Letztendlich ist es uns aber gelungen reproduzierbar sehr schöne Pump-Probe Abklingprozesse zu messen.

Der Verlauf der Oszillation spricht klar für eine DECP Anregung, das heißt eine instantane Verrückung der Gitteratome und eine kosinusartige Oszillation. Die gemessene Abklingzeit der Oszillation beträgt

$$t_{\text{Rel.}} = (3.0 \pm 0.1) \text{ ps},$$

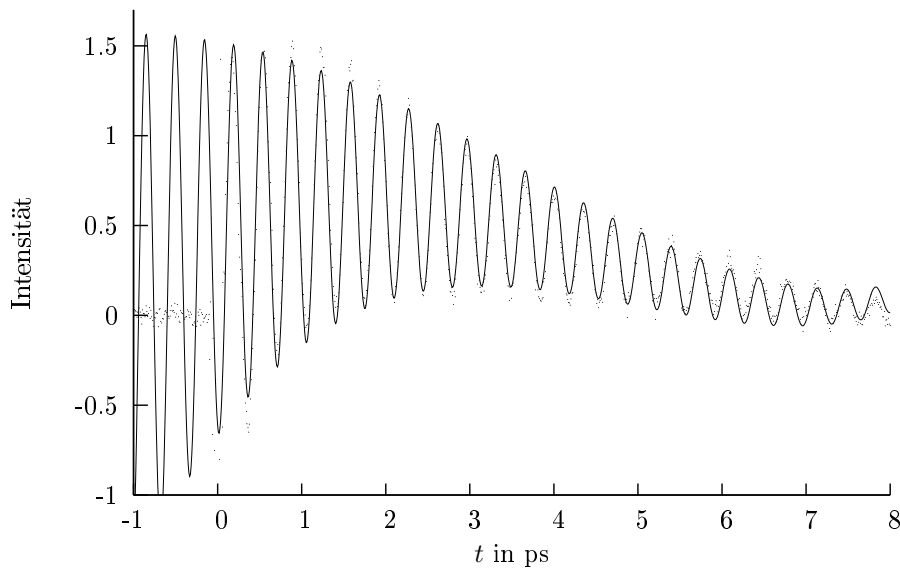


Abbildung 11: Differentielle Änderung der Reflektivität

was über dem theoretischen Wert von Zeiger [2] aber unter dem experimentellen Wert von Hase [3] liegt. Hier wäre es günstig gewesen, den Abklingprozess noch über die 5 ps hinaus zu messen, um die Abklingrate genauer zu bestimmen. Die Phononenfrequenz konnten wir sowohl durch Anpassen einer gedämpften Oszillation als auch durch diskrete Fouriertransformation auf:

$$\nu_{\text{Ph}} = (2.878 \pm 0.020) \text{ THz}$$

bestimmen. Dieses Ergebnis stimmt hervorragend mit den Literaturwerten überein.[3, 2]

Im Sinne einer effizienten und zügigen Auswertung wäre es insbesondere wünschenswert gewesen, gesuchte Größen wie “mittlere Fluenz” und “Abklingrate/Relaxationsrate” unmissverständlicher zu definieren. Allen ASCII Dateien, die von dem Messaufbau aufgezeichnet wurden, mangelte es an Spaltenbezeichnungen. Auch wenn, wir diese Angaben im Messprotokoll festgehalten haben, halten wir es für sinnvoll, wenn alle zur Auswertung benötigten Dateien, so gut wie möglich dokumentiert sind.

## Literatur

- [1] BERLIN, FACHBEREICH PHYSIK FREIE UNIVERSITÄT: *Fortgeschrittenen Praktikum Versuch B05 - Femtosekunden-Pump-Probe-Experimente*, 2004.
- [2] CHENG, T. K., J. VIDAL, H. J. ZEIGER, G. DRESSELHAUS, M. S. DRESSELHAUS, und E. P. IPPEN: *Mechanism for displacive excitation of coherent phonons in Sb, Bi, Te, and TiO3*. Appl. Phys. Lett., 59(16):1923, 1991.
- [3] HASE, MUNEAKI, KOHJI MIZOGUCHI, HIROSHI HARIMA, SHIN-ICHI NAKASHIMA und KIYOMI SAKAI: *Dynamics of coherent phonons in bismuth*

*generated by ultrashort laser pulses.* Phys. Rev. B, 58(9):5448–5452, Sep 1998.

- [4] (HRSG.), C. RULLIÈRE: *Femtosecond Laser Pulses*, 1998.
- [5] KITTEL, CH.: *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, 14. Auflage, 2002.
- [6] RIEDEL, E.: *Anorganische Chemie*. Walter de Gruyter, 6. Auflage, 2004.
- [7] SCHÖBER, H.R. und P.H. DEDERICHS: *Neue Serie*, Band III/13a. Landolt-Börnstein, 1981.





Messprotokoll B5    Betreuer: Kampfrath  
H. Dornlich, Max. Hoffmann

13.9.67

Leistungsbestimmung:  $27.5 \pm 0.5$  mW Probestrahl  
 $108 \pm 1$  mW Pumpstrahl

Maximale Pump Energie durch Pinhole  $74 \pm 0.5$  mW  
" Probe " " "  $16 \pm 0.5$  mW  
Durchmesser der Lochblende:  $50 \mu\text{m}$

Maximale Frequenzverdopplung bei  $0.384$  ps

Computer speichert Ergebnisse in ASCII Datei:

- Zeit in ps + Intensität in bel. Einheiten
- Frequenz in THz

Messungen an Bi:

bi1.dat: FT max @ 2.9 THz