

## B5: Femtosekunden-Pump-Probe-Experimente

### 1. Übersicht zum Thema und Zusammenfassung der Ziele

Lichtpulse mit einer Dauer von einigen 10 fs bieten die Möglichkeit, die Dynamik von Kernbewegungen und Elektronen direkt zeitaufgelöst zu verfolgen. Dazu wird der zeitliche Verlauf einer durch eine kurze optische Anregung (Pump) erzeugten Störung mit einem ebenfalls kurzen Laserpuls abgefragt (Probe), der in Bezug auf den Pump-Puls kontrolliert zeitlich verzögert ist [1, Kap. 11.4]. Im Versuch wird nichtlineare Optik zur Pulscharakterisierung eingesetzt und das Pump-Probe-Verfahren verwendet, um die **transiente Reflektivität** der **Halbmetalle** Bi und Sb zu messen. Hierbei werden im Zeitintervall von einigen Pikosekunden nach dem Pumpen **kohärente Gitterschwingungen**, die dem **optischen Phononenzweig** zuzuordnen sind, beobachtet [2,3]. Elektronen (oder genauer Elektronen-Loch-Paare) werden durch Absorption von Photonen durch **vertikale Übergänge** in der **elektronischen Bandstruktur** des Festkörpers innerhalb der Laserpulsdauer angeregt. Die Besetzung dieser Zustände führt zu einer im Vergleich zum Gleichgewicht um  $\delta Q$  geänderten Gitterkonstante  $Q+\delta Q$  [3]. Im Kristallvolumen entstehen dadurch bei genügend langer elektronischer Lebensdauer **symmetrische Schwingungen** des Kristallgitters. Da die Bandstruktur von der Gitterkonstanten abhängt, führen die Gitterschwingungen zu einer periodischen Modulation der linearen Reflektivität.

Im Praktikumsversuch soll die Charakterisierung von Femtosekunden-Laserpulsen und ihr Einsatz in zeitaufgelösten Experimenten kennengelernt werden. Zunächst ist es wichtig, die Zeitstruktur der Lichtpulse mit Hilfe der **optischen Intensitäts-Autokorrelation** [1, Kap. 11.2.2; 4, Kap. 7.4.2] zu vermessen und unter Einsatz eines **Prismenkompressors** zu optimieren. Unter diesen Bedingungen werden die Sb- und Bi-Kristalle (rhomboedrisch) untersucht. Dabei wird die Intensität des Probestrahls mit einer Photodiode gemessen. Durch Einsatz eines Strahlzerhackers (Chopper) im Pump-Strahlengang und Detektion der Probe-Intensität mittels **Lock-In-Verstärker** wird die Pump-induzierte Änderung der Reflektivität als Funktion der zeitlichen Verzögerung zwischen Pump- und Probestrahl aufgenommen.

Ziel ist die Analyse des Frequenzspektrums kohärenter Phononen für Bi und Sb und der dazugehörigen Anregungs- und Abklingdynamik. Damit lassen sich der Mechanismus der lichtgetriebenen Anregung der Gitterschwingungen bestimmen und charakteristische Relaxationsraten angeben.

### 2. Grundlagen

Die Dynamik eines Systems lässt sich in Echtzeit mit Hilfe von optischen Anregungs-Abfrageexperimenten (engl. pump-probe) verfolgen. Ein erster Lichtpuls der Dauer  $\Delta\tau$  zum Zeitpunkt  $t=0$  erzeugt einen angeregten Zustand des untersuchten Systems, der mit einem um  $\Delta t$  verzögerten Lichtpuls (möglichst von identischer Dauer  $\Delta\tau$ ) abgefragt wird. Eine Messung des Probe-Signals als Funktion der Verzögerung  $\Delta t$  gibt die zeitliche Entwicklung des angeregten Zustands an [1, Kap. 11.4]. Die Zeitskalen der nachzuweisenden Prozesse sind dabei durch die **Laserpulsdauer** bzw. seine **spektrale Bandbreite** limitiert [4, Kap. 2]. Eine Bandbreite von einigen 10 Terahertz, wie sie durch **modengekoppelte Ti:Saphir-Laser** erzeugt werden, ermöglicht es, **kohärente optische Phononen** zeitaufgelöst zu messen. Solche Gitterschwingungen sind im Volumen symmetrisch und entstehen durch die vom Pump-Puls erzeugte elektronische Anregung,

die eine in Bezug auf den Grundzustand geänderte räumliche Verteilung der Elektronendichte aufweist. Besteht eine genügend starke Kopplung der Kernkoordinate an das elektronische System, so führt die elektronische Anregung zu einer Gitterverzerrung bzw. einer neuen Gitterkonstante. Ist der Pumpimpuls kurz in Bezug auf die Schwingungsfrequenz, so findet die Anregung annähernd instantan statt und definiert die Phase der angeregten Phononen. Diese Phase ermöglicht die Unterscheidung zwischen einer resonanten elektronischen Anregung, die mit einem ausgelenkten Gitter startet und eine kosinusartige Phase besitzt (displacive excitation of coherent phonons) [2,3] und einer impulsiven Phononenerzeugung durch optische Anregung im elektronischen Grundzustand (vgl. Raman-Streuung), die eine sinusförmige Schwingung aufweist.

Für die Erzeugung von fs-Laserpulsen ist (a) eine **breitbandige Fluoreszenzemission** des Lasermediums mit Anregung vieler Resonatormoden und (b) die **Kopplung dieser Moden** mit fester Phasenbeziehung notwendig [4, Kap. 3]. Das breite Emissionsspektrum wird durch vibronische Verbreiterung der kristallfeldaufgespalteten optisch angeregten Zustände der  $Ti^{3+}$ -Dotierung in der  $Al_2O_3$ -Matrix hervorgerufen [4, Kap. 4.4.2]. Optisch gepumpt wird der Ti:Sa-Oszillator mit einem frequenzverdoppelten diodengepumpten Festkörperlaser (kontinuierliche Leistung 5 W bei 532 nm).

In optischen Elementen innerhalb des Aufbaus ist es wichtig, die **Gruppengeschwindigkeitsdispersion** (GVD)

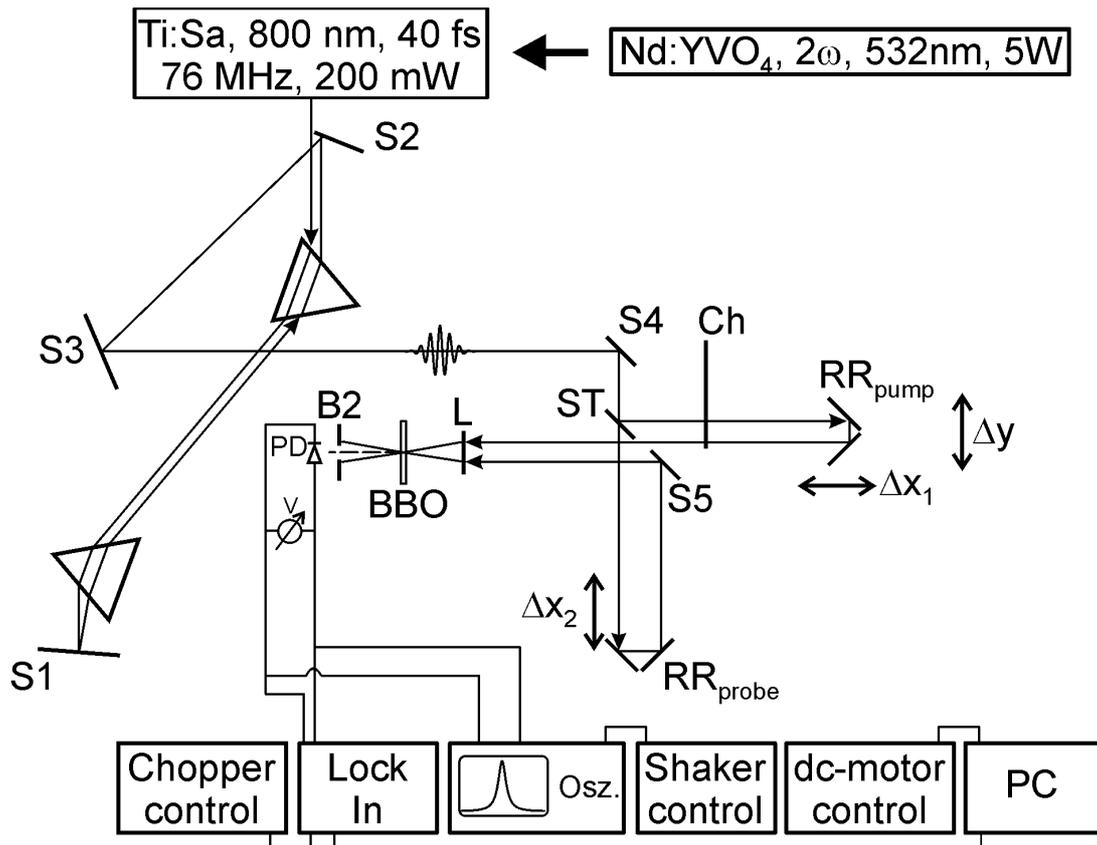
$$k''(\omega_0) = \frac{d^2k(\omega_0)}{d\omega^2} = \frac{d}{d\omega} \left( \frac{1}{v_g(\omega_0)} \right),$$

mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g = \frac{d\omega}{dk}$  zu kontrollieren, um ein Auseinanderlaufen des Pulses in der Zeit zu verhindern [4, Kap. 2]. Hierzu werden Kompressoren (Prismenkompressor) [4, Kap. 4.3.2; 5]) verwendet, die eine negative GVD erzeugen um die positive GVD optischer Bauteile zu kompensieren.

*Charakterisierung der Laserpulse:* Eine Pulsdauer im fs-Bereich verlangt nach einem ebenso schnellen Verfahren, um die Pulse zu charakterisieren. Da elektronische Verfahren wegen endlicher Kapazitäten usw. ausscheiden, werden optische Verfahren verwendet [4, Kap. 7.4.2]. Im Experiment wird hierzu die Intensitäts-Autokorrelation 2. Ordnung mit einem nichtlinearen Kristall (BBO) verwendet.

### 3. Experimenteller Aufbau

Das hier verwendete Lasersystem bestehend aus kommerziellem Pumplaser (Coherent Verdi 5W) und Ti:Sa-Oszillator (Coherent Mira) ist Teil eines verstärkten, durchstimmbaren fs-Lasersystems. Für das Experiment im Rahmen des Fortgeschrittenenpraktikums stehen 50% der Leistung des Ti:Sa-Oszillator (ca. 200 mW) bei einer Repetitionsrate von 76 MHz zur Verfügung, mit der das Pump-Probe-Experiment an Halbmetallen durchgeführt wird. Der Pulszug durchläuft zunächst den Kompressor aus zwei Quarzprismen (s. Abb. 1). Der Strahl wird durch Spiegel S2 "gepickt" und auf S3 reflektiert, von wo der Pulszug über S4 auf den Strahlteiler ST in ein Interferometer läuft. ST reflektiert 80% des Strahls auf den Retroreflektor des Pumparms ( $RR_{pump}$ ) und transmittiert 20% auf  $RR_{probe}$ . Zur Einstellung des zeitlichen Überlapps sind die Retroreflektoren in Strahlrichtung verschiebbar. Während  $RR_{probe}$  auf einer lautsprecherähnlichen Membran (Shaker) montiert ist, die den optischen Weg  $\Delta x_2$  mit



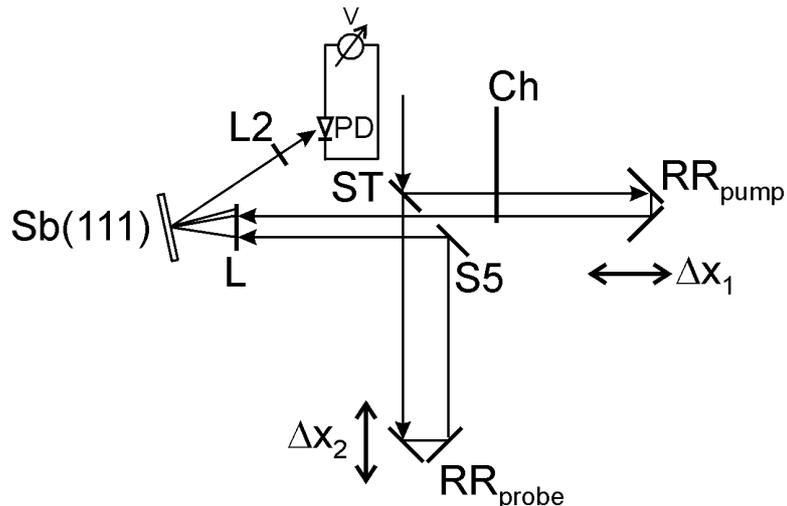
**Abb. 1:** Experimenteller Aufbau zur Messung der Intensitätsautokorrelation eines Femtosekundenlaserpuls mittels einem nichtlinearen Kristall

einer Frequenz  $f$  moduliert, wird  $RR_{\text{pump}}$  auf einem linearen Verschiebetisch kontinuierlich innerhalb eines gewählten Intervalls um  $\Delta x_1$  verfahren. Um Pump- und Probestrahl anschließend im Fokus der Linse  $L$  auf  $/$  in dem Kristall überlappen zu können, ist es notwendig die Strahlen vor  $L$  parallel zueinander und zur Linsenachse zu führen.

Die Pulscharakterisierung mit Hilfe der Autokorrelation wird in Transmission durch Erzeugung der zweiten Harmonischen [4, Kap. 2.3.1.1] mit einem beta-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) Kristall gemessen (Abb. 1). Hierbei fallen beide Strahlen unter dem gleichen Winkel auf den BBO. Bei **zeitlichem und räumlichem Überlapp** der Pulse und erfüllter **Phasenanpassungsbedingung** findet Frequenzverdopplung von der Fundamentalen  $h\nu=1,5$  eV zur zweiten Harmonischen  $2h\nu$  statt. Hinter dem BBO-Kristall ist dann ein blauer Reflex mittig zwischen zwei rotblauen Spots zu erkennen. In der Autokorrelation wird die Intensität dieses korrelierten Signals als Funktion der zeitlichen Verzögerung mit einer Photodiode gemessen. Das zugehörige Signal ist proportional zur **Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung**

$$G_2(t) = \frac{\int I(\tau) \cdot I(\tau - t) dt}{\int I^2 d\tau} \quad [4, \text{Kap. 7.4.2}].$$

Durch Variation der durchlaufenen Glasstrecke im Prismenkompressor wird die Pulsdauer minimiert.



**Abb. 2:** Experimenteller Pump-Probe-Aufbau zur Messung der transienten Reflektivität

Das Pumpen der Halbmetalle erfordert eine maximale Energiedichte (=Fluenz, [ $\text{Jm}^{-2}$ ]) auf der Oberfläche, die durch Fokussieren erreicht wird. Zu beachten ist, dass die Brennweite einer Linse invers proportional zum Durchmesser des Fokus ist [1, Kap. 5.9]. Die Photodiode wird nun so montiert, dass sie den an der Halbmataloberfläche reflektierten Probestrahl nachweist (Abb. 2). Zur Eliminierung von Umgebungseinflüssen wird die Detektion mit einem Lock-In-Verstärker durchgeführt. Ein Chopper (Ch) öffnet und schließt hierzu den Pump-Strahlengang mit einigen 100 Hz.



### Sicherheitshinweis



**Die hohe Energie pro Puls von fs-Kurzpulslasern kann das Auge schädigen. Verhindern Sie daher unbedingt, dass ein Laserstrahl oder ein Reflex auf Ihre Augen oder die Augen weiterer Anwesenden fällt. Legen Sie vor der Arbeit immer reflektierende Gegenstände wie Ringe oder Uhren, die in die Strahlnähe kommen können, ab. Grundsätzlich darf der Laserstrahl nicht die Strahlebene parallel zum optischen Tisch oder den Tisch verlassen. Nehmen Sie diesen Hinweis ernst und weisen Sie Leute auf eventuelles Fehlverhalten hin.**

#### 4. Aufgaben

Nehmen Sie zusammen mit dem Betreuer den Ti:Sa-Laser in Betrieb und speichern Sie je ein Spektrum für den cw- und den Pulsbetrieb.

##### 4.1 Autokorrelation

Vollziehen Sie den Strahlengang des optischen Aufbaus nach. Prüfen Sie den Überlapp der beiden Teilstrahlen im Fokus mit einem Stück Papier und montieren Sie die  $50 \mu\text{m}$  Lochblende auf den Probenstisch. Verwenden Sie zur besseren Sichtbarkeit das IR-Sichtgerät. Lenken Sie beide Teilstrahlen durch die Blende. Zur Abschätzung des Fokusbereichs und der Fluenz der Strahlen messen Sie mit dem Leistungsmessgerät die Leistung beider Strahlen mit und ohne Lochblende. Optimieren Sie die Fluenz durch vorsichtiges Verfahren der Linse und Nachziehen des Strahlengangs mit S5 bzw. ST.

Entfernen Sie das pinhole und montieren Sie den BBO-Kristall senkrecht zur optischen Achse. Beobachten Sie abhängig von der Stellung des Prismenkompressors das Auftreten von verdoppeltem Licht in den beiden Teilstrahlen zusätzlich zur Fundamentalen von 800 nm. Fixieren Sie mit dem IR-Sichtgerät den räumlichen Überlapp der beiden Teilstrahlen durch Blocken jeweils eines Strahls.

Verfahren Sie  $RR_{\text{pump}}$  mit Hilfe des PC-gesteuerten DC-Motors bis Sie das korrelierte Signal erkennen. Definieren Sie am Messprogramm den Zeitnullpunkt und optimieren Sie das korrelierte Signal mit  $\Delta x_1$ ,  $\Delta y$ , S5, ST und der BBO-Stellung. Achten Sie darauf die Photodiode nicht zu sättigen!

Messen Sie die Autokorrelation mit Hilfe des Shakers und Oszilloskops. Lesen Sie die Autokorrelationsbreite ab und minimieren Sie diese durch Variation der durchstrahlten Glasmenge im Kompressor.

Stoppen Sie den Shaker und nehmen Sie die kürzeste Autokorrelation mit dc-Motor und Lock-In auf.

#### *4.2 Transiente Reflektivität*

Montieren Sie den Sb(111)-Kristall und die Photodiode, um die reflektierte Intensität des Probestrahls zu messen. Achten Sie darauf, dass der Pump-Strahl geblockt ist. Stellen Sie den räumlichen und zeitlichen Überlapp her. Prüfen Sie das Auftreten eines korrelierten Signals (Lock In, Kanal 1) durch Blocken des Pump- bzw. Probestrahls. Messen Sie die transiente Reflektivität im Zeitfenster 1 ps vor der Ankunft der Pumpstrahls bis 5 ps nach dem Zeitnullpunkt. Wählen Sie zur Messung aufeinander abgestimmte Parameter.

In der Auswertung wird das transiente Signal auf die Reflektivität im ungepumpten Fall ( $R(t < 0)$ ) normiert. Messen Sie hierzu bei geblocktem Pump das Signal des Probe nach Montage des Choppers in den Probestrahl.

Wiederholen Sie die Messung mit dem Bi(111)-Kristall.

### **5. Auswertung**

#### *5.1 Fluenz*

Bestimmen Sie aus dem Verhältnis der einfallenden zur durch die Lochblende transmittierten Leistung den Fokusbereich [1, Kap. 5.9]. Bestimmen Sie mit diesem Resultat die mittlere Fluenz der beiden Teilstrahlen innerhalb der verwendeten Lochblende, sowie Energie und Zahl der Photonen pro Puls.

#### *5.2 Pulsform und -dauer*

Passen Sie an die gemessene Autokorrelation die theoretischen Verläufe der Pulseinhüllenden für (a)  $I(t) \propto e^{-t^2}$  und (b)  $I(t) \propto \text{sech}^2(t)$  an. Bestimmen Sie jeweils die Autokorrelationsbreite  $\Delta\tau_{AC}$  und die Pulsdauer  $\Delta\tau$  nach [4, Kap. 7.4.2, Tab. 7.3]. Diskutieren Sie, welche Pulsform das experimentelle Resultat besser beschreibt.

Vergleichen Sie die direkt bestimmte Pulslänge mit der Bandbreite des gemessenen Laserspektrums über das Zeit-Bandbreiten-Produkt [4, Kap. 2.2.3].

### 5.3 Transiente Reflektivität

Stellen Sie die Daten als differentielle Änderung der Reflektivität dar:

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(t) - R(t < 0)}{R(t < 0)}, \text{ } R(t < 0) \text{ steht für den Gleichgewichtsfall}$$

Beschreiben Sie zunächst den Verlauf der gemessenen transienten Reflektivität. Analysieren Sie die auftretende Frequenz und die Relaxationsrate für die untersuchten Halbmetalle. Handelt es sich um Phononenanregung durch Gitterverrückung oder impulsive Anregung? Vergleichen Sie das Ergebnis mit der Literatur [2,3,6]. Geben die beobachtete Phononenmode an und ordnen Sie der gemessenen Frequenz mit Hilfe der Phonondispersionsrelationen einen reziproken Gittervektor zu [7]. Warum unterscheiden sich die Phononenfrequenzen für Sb und Bi?

Wie groß ist die gemessene Abklingrate? Diskutieren Sie mögliche Mechanismen für das Abklingen der kohärenten Gitterschwingungen. Berücksichtigen Sie die endliche Temperatur, bei der das Experiment durchgeführt wurde.

## 6. Literatur

---

[1] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy*, 3. Auflage, Springer, Berlin Heidelberg New York, 2003

[2] T.K. Cheng, J. Vidal, H.J. Zeiger, G. Dresselhaus, M.S. Dresselhaus, E.P. Ippen, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1923 (1991)

[3] A.I. Lobad, A.J. Taylor, *Phys. Rev. B* **64**, 180301 (2001)

[4] C. Rullière (Hrsg.), *Femtosecond Laser Pulses*, Springer (1998)

[5] R.L. Fork, O.E. Martinez, J.P. Gordon, *Opt. Lett.* **9**, 150 (1984)

[6] J.S. Lannin, J.M. Calleja, M. Cardona, *Phys. Rev. B* **12**, 585 (1975)

[7] H.R. Schober, P.H. Dederichs in *Landolt-Börnstein, Neue Serie*, Bd III/13a, Springer, Heidelberg, 1981