

# 3

## Experimenteller Aufbau

Im folgenden Kapitel wird der experimentelle Aufbau zur zeitaufgelösten Untersuchung von Ag/Xe-Schichten mit ultrakurzen Pulsen vorgestellt. Der experimentelle Aufbau besteht im wesentlichen aus einer Vakuumapparatur und einem Lasersystem. Die Vakuumapparatur, in der die Schichten präpariert und untersucht werden, konnte ebenso wie die Präparation der Schichten durch Laserverdampfen von Kometer übernommen werden [42]. Die Apparatur und das Prinzip der Schichtpräparation werden zur besseren Übersicht in einem einleitenden Abschnitt kurz erläutert.

Das Lasersystem zur Erzeugung der ultrakurzen Pulse, bestehend aus einem kommerziellen Femtosekunden-Lasersystem und einem 2-stufigen selbstgebauten Farbstoffverstärker, wird im dritten Abschnitt ausführlich beschrieben. Um in den Signalen der zeitaufgelösten Messungen Modulationen aufzulösen, benötigt man neben Pulsen mit einer ausreichenden zeitlichen Auflösung ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Die Ag-Zentrenzahl nimmt durch Dimerisierung und Clusterbildung aufgrund einer photoinduzierten Migration ab und die Ag/Xe-Schicht zeigt bedingt durch die Bestrahlung während einer Messung ein signifikantes Ausbleichen [42]. Da die Ag/Xe-Schicht aus diesem Grund zur Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses nicht mit beliebig vielen Laserschüssen untersucht werden konnte, wurde beim Aufbau und der Justage des Verstärkers sehr viel Wert auf die Puls-zu-Pulsstabilität der erzeugten ultrakurzen Pulse gelegt.

Eine große Rolle spielt die Charakterisierung der ultrakurzen Pulse bezüglich ihrer Dauer und Bandbreite. Im Gegensatz zu Pulsen längerer Dauer muß bei ultrakurzen Pulsen zusätzlich der Einfluß der optischen Komponenten wie Linsen, Spiegeln usw. berücksichtigt werden [21]. Die hohe Pulsintensität und große Bandbreite der Pulse können eine nichtlineare Zeitabhängigkeit in der Phase der Pulse hervorrufen, die zu einer

zeitlichen bzw. spektralen Verbreiterung des Pulses führt. Diese Zeitabhängigkeit oder auch Frequenzmodulation wird als Chirp des Pulses bezeichnet und ist eine wichtige Kenngröße des ultrakurzen Pulses. Um neben der Bandbreite und Pulsdauer auch den Chirp zu bestimmen, wird der ultrakurze Puls in einem FROG (**F**requency-**R**esolved-**O**ptical-**G**ating)-Aufbau analysiert [60],[21]. Dieses Prinzip der Pulscharakterisierung wird im Anschluß an das Lasersystem im vierten Abschnitt beschrieben.

Die zeitaufgelösten Messungen wurden mit der Pump-Probe-Technik durchgeführt und im abschließenden Abschnitt dieses Kapitels werden die in dieser Arbeit eingesetzten Methoden der resonanten und Zwei-Farben-Pump-Probe-Technik erläutert und der Aufbau der Strahlverzögerungseinheit vorgestellt.

### 3.1 Die Apparatur

Um mit Molekülen oder Atomen dotierte Edelgasschichten oder Kristalle bei Temperaturen zwischen 10 K und 60 K herzustellen, benötigt man Hochvakuum (HV)- bzw. Ultrahochvakuum (UHV)-Apparaturen. Die hier benutzte UHV-Apparatur ist schematisch in Abb. 3.1 dargestellt und besteht aus einer Probenkammer und einem Gaseinlaßsystem. Probenkammer und Gaseinlaßsystem sind über ein Absperr- und Dosierventil getrennt und werden jeweils unabhängig voneinander mit einer Drehschieberpumpe (Typ D8B, Fa. Leybold-Hereus) für das Vorvakuum und einer Turbomolekularpumpe (TPU 170, Fa. Pfeiffer-Balzors) gepumpt. Der Druck in den Kammern wird über eine Ionisationsröhre (Ionivac TF211, Fa. Leybold-Hereus) gemessen und liegt ohne Ausheizen bei  $3 \cdot 10^{-9}$  mbar in der Probenkammer und bei  $5 \cdot 10^{-7}$  mbar im Gaseinlaßsystem. In der Probenkammer sinkt der Druck beim Abkühlen auf 40 K auf  $7 \cdot 10^{-10}$  mbar.

Das Kernstück der Probenkammer ist ein Kreuz, bestehend aus sechs CF100-Flanschen, an dem in der Detektionsebene rechtwinklig zueinander drei CF35-Quarzfenster angebracht sind, über die einerseits die Laserstrahlen in die Kammer eingekoppelt und andererseits die Fluoreszenz und die Transmission der zu untersuchenden Ag/Xe-Schicht detektiert werden. Der Kupferprobenhalter ist an einem Helium-Verdampferkryostaten (Fa. Leybold-Hereus) angebracht und kann mittels einer Drehdurchführung und eines XYZ-Manipulators (beides Fa. Vacuum Generators) zur Justage in alle Raumrichtungen verstellt werden. Am unteren Teil des Kupferprobenhalters ist in einer Durchbohrung ein 1 mm dickes LiF-Substrat (Fa. Korth Kristalle) mit einem Durchmesser von 25 mm angebracht, auf dem die Ag/Xe-Schicht auskondensiert. Der thermische Kontakt zwischen Substrat und Probenhalter wird über eine 0.1 mm dicke Indium-Folie hergestellt. Mit

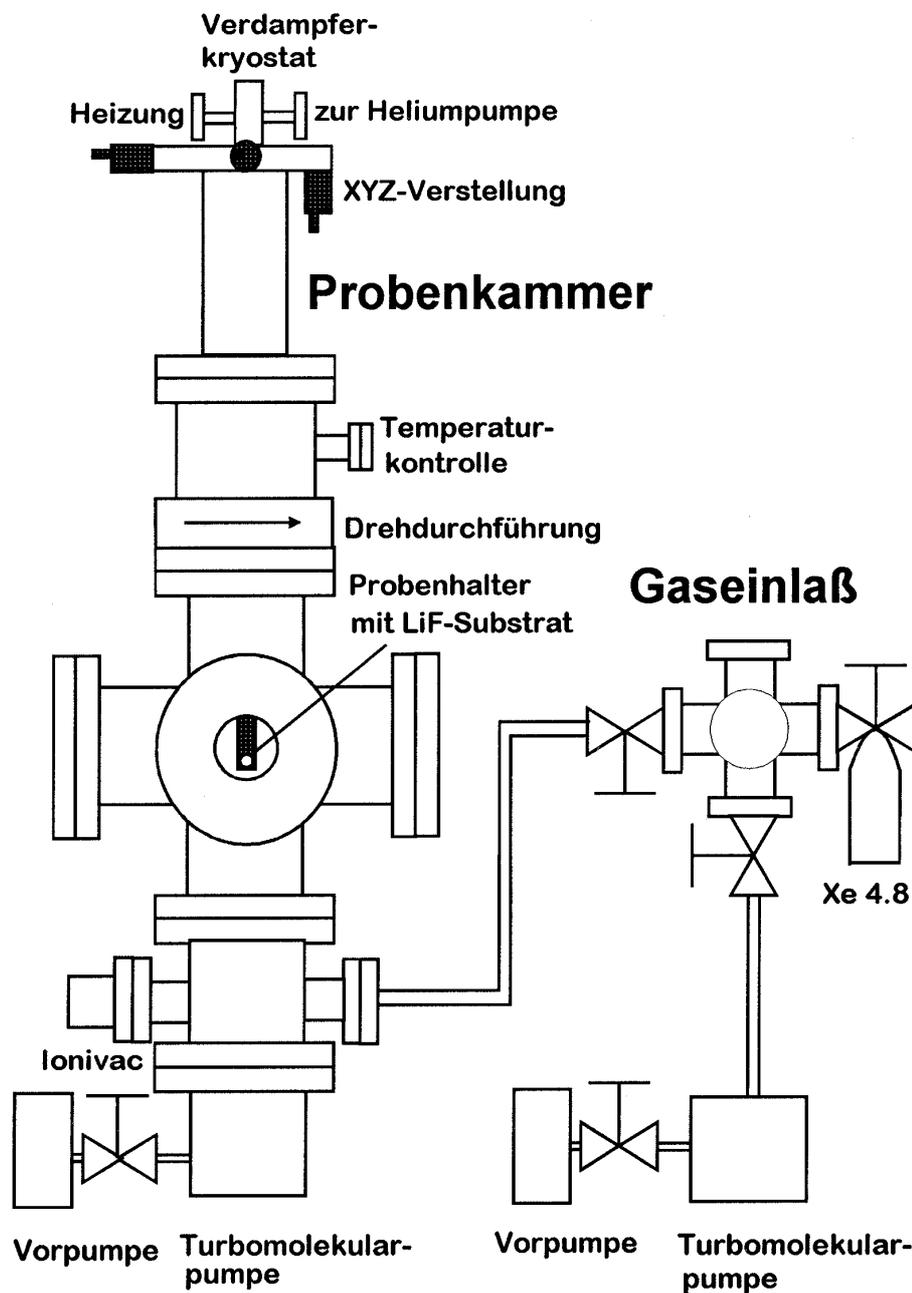


Abb. 3.1: Aufbau der Probenkammer und des Gaseinlaßsystemes.

Hilfe des Verdampferkryostaten kann der Probenhalter und damit das LiF-Substrat bis auf 5 K abgekühlt werden. Die Temperatur am Substrat kann über eine Heizung (Modell HTR25, Fa. Lakeshore) über einen weiten Bereich mit einer Genauigkeit von 1 K variiert und über eine Silizium-Diode (DT-470, Fa. Lakeshore), die am unteren Ende des Probenhalters in Substratnähe angebracht ist, kontrolliert werden.

Das Gaseinlaßsystem besteht aus einem 35CF-Edelstahlkreuz, an dem über einen Druckminderer die Xenon-Flasche angebracht ist. Das Xenon ECD 4.8 hat eine Reinheit von 99.9998 % (Fa. Messer-Griesheim) und kann über ein Dosierventil kontrolliert zur Schichtzucht in die Probenkammer eingelassen werden.

## 3.2 Die Probenpräparation

Modellsysteme in der Matrixisolationsspektroskopie zur Untersuchung der Energierelaxation und zeitaufgelöster Prozesse sind kleine Moleküle, z. B. HCl [29], I<sub>2</sub> [3], und F<sub>2</sub> [13], und Atome, die in eine Edelgasmatrix aus Xenon, Krypton, Argon oder Neon eingebettet werden. Aufgrund der schwachen van der Waals-Wechselwirkung bilden Edelgase erst bei tiefen Temperaturen Kristalle, die eine fcc-Struktur aufweisen. Verunreinigungen können aber auch Bereiche mit hcp-Struktur erzeugen. Die eingebetteten Gastmoleküle bzw. Atome nehmen ihrer Größe entsprechend bestimmte Einbaulagen im Edelgaskristall ein, die als Sites bezeichnet werden. ESR-Untersuchungen haben gezeigt, daß Ag-Atome in einer Xe-Matrix vorwiegend auf Substitutionsplätzen zu finden sind [39].

Edelgasschichten bzw. Kristalle wachsen je nach Gasart im Vakuum zwischen 10 K (Neon) und 60 K (Xenon) bei Einlaßdrücken zwischen 10 - 500 mbar durch Sublimation aus der Gasphase. Die strukturelle und optische Qualität der dotierten Edelgasschichten bzw. Kristalle hängt stark von den Zuchtbedingungen, d. h. der Zuchttemperatur und dem Zuchtdruck bzw. der Aufdampfgeschwindigkeit, ab [30]. Im allgemeinen liegen die Schichten in polykristalliner Form vor, wobei die Größe der Kristallite mit dem Zuchtdruck zunimmt. In Röntgenbeugungsexperimenten wurde eine lineare Abhängigkeit zwischen der Korngröße und der Zunahme des Zuchtdruckes gefunden [59]. Die Korngröße kann dabei bis auf 700  $\mu\text{m}$  anwachsen und dies führt zu einer Verbesserung der Kristallqualität, die durch die optische Klarheit und Homogenität charakterisiert ist. Ein weiterer Vorteil der Edelgase liegt darin, daß sie aufgrund ihrer Elektronenkonfiguration abgeschlossene, äußere Schalen besitzen und im Grundzustand lediglich schwache Van der Waals-Bindungen mit den Gastmolekülen oder Atomen eingehen. Wegen ihrer großen Bandlücke (Xe: 8.36 eV, Kr: 10.16 eV, Ar: 12.05 eV und Ne: 17.59 eV) sind Edelgase

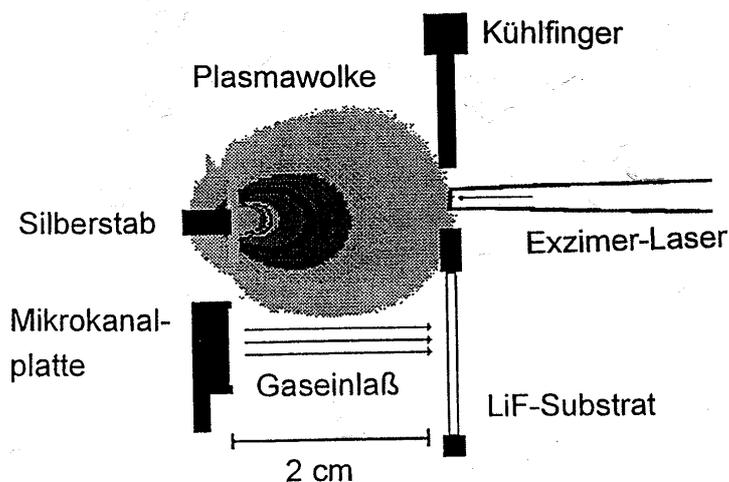


Abb. 3.2: Herstellung der Ag/Xe- Schichten mittels Laserverdampfung aus [43].

transparent bis in den UV-Bereich.

Da die Ag-Atome in der Xe-Matrix für  $\lambda = 330$  nm einen hohen Absorptionswirkungsquerschnitt von  $3 \cdot 10^{-16}$  cm<sup>2</sup> zeigen, werden bei diesem Experiment dünne Schichten mit einer Zuchtrate von 0.6 - 1  $\mu$ m/min und einem Zuchtdruck von ca. 200 mbar gezogen [42]. Die Schichtdicke variiert zwischen 10  $\mu$ m und 15  $\mu$ m. Die Verdampfung des Ag findet direkt in der Probenkammer durch Fokussierung eines Excimer-Lasers ( $\lambda = 308$  nm, EMG 53 MSC, Fa. Lambda) auf einen 5 mm dicken Ag-Stab statt [42],[43]. Die Pulsenergien liegen um 10 mJ und die Repetitionsrate beträgt 3 Hz. In Abb. 3.2 ist die Schichtpräparation schematisch dargestellt. Das durch Laserverdampfen entstehende keulenförmige Ag-Plasma ist durch ein helles, grünes Rekombinationsleuchten der Ag-Atome gekennzeichnet. Gleichzeitig mit dem Prozeß des Laserverdampfens strömt über eine Multikanal-Platte, die sich unterhalb des Ag-Stabes befindet, das Xenon dosiert und gleichmäßig ein und kondensiert mit den Ag-Atomen auf dem 2 cm entfernten und auf 40 K gekühlten LiF-Substrat. Die mit Ag-Atomen dotierte Xe-Schicht besitzt eine zylindrische Form mit einem Durchmesser von ca. 1 cm und bedingt durch die räumliche Anordnung bei der Zucht zeigt die Schicht einen Gradienten in der Ag-Konzentration. Die Ag/Xe-Konzentration kann durch Variation des Xe-Zuchtdruckes zwischen 1:1000 und 1:3000 variiert werden.

### 3.3 Das Lasersystem

Die für die zeitaufgelösten Untersuchung der Dynamik und Relaxation der Ag-Atome in der Xe-Matrix benötigten ultrakurzen Pulse im Wellenlängenbereich von 640 nm bis 680 nm bzw. 320 nm und 340 nm werden in einer Kombination aus kommerziellen Ultrakurzpulslasersystem und selbstgebaute Farbstoffverstärker erzeugt.

#### 3.3.1 Das Femtosekunden-Lasersystem

In Abb. 3.3 ist das CPA-1-Lasersystem der Fa. Clark-MXR Inc. zur Erzeugung von ultrakurzen Pulsen dargestellt, wobei die Abkürzung CPA (*chirped pulse amplification*) für das Prinzip der Verstärkung von frequenzmodulierten (gechirpten) Pulsen steht.

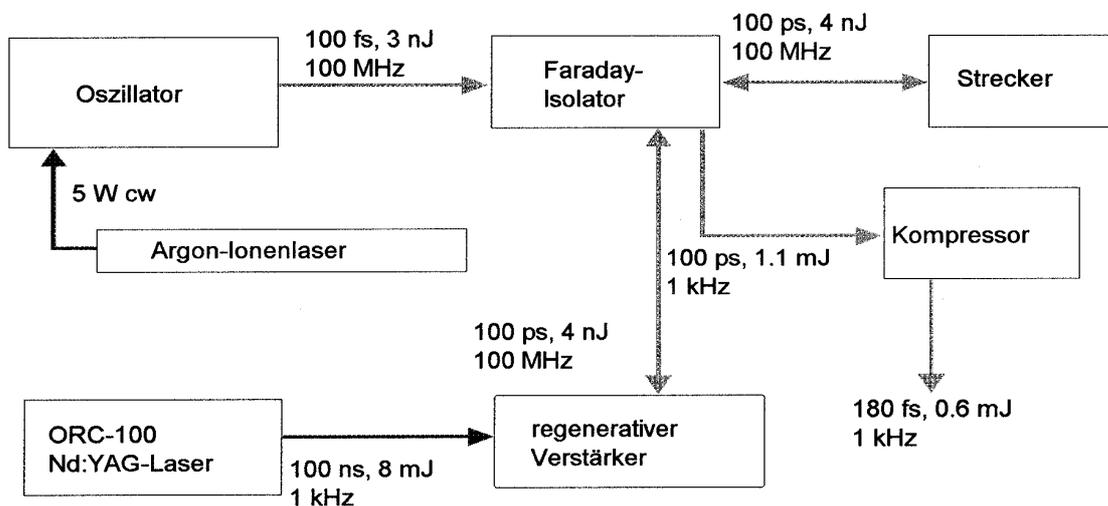


Abb. 3.3: Schematischer Aufbau des Femtosekundenlasersystemes der Fa. Clark-MXR Inc.. Die Pulse besitzen nach Verlassen des Kompressors bei einer Dauer von ca. 180 fs eine Energie von 0.6 mJ.

Das System besteht zum einen aus einem Oszillator mit einem Titan-Saphir (Ti:Sa)-Kristall, der über einen Argon-Ionen-Laser (Modell Innova 310, Fa. Coherent) *all-line* kontinuierlich mit 5 W gepumpt wird. Die ultrakurzen Pulse mit einer Dauer von 100 fs und einer Bandbreite von 10 nm bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm werden im Oszillator durch das Prinzip des *Kerr-Linsen-Modenkoppelns* erzeugt [40]. Die Energie der ultrakurzen Pulse liegt um 3 nJ bei einer Repetitionsrate von 100 MHz. Der anschließende

Isolator, der insgesamt dreimal durchlaufen wird, dient zur optischen Trennung der Strahlengänge. Um Beschädigungen der optischen Komponenten aufgrund der hohen Spitzenintensitäten zu unterbinden, werden im Strecker die Pulse vor der anschließenden Verstärkung in einer Littrow-Gitter-Spiegelkombination durch die Winkeldispersion von 100 fs auf 100 ps verlängert und somit die Intensität des Pulses durch die zeitliche Streckung um einen Faktor 1000 verringert [21]. Die daraus resultierende Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) bewirkt eine Phasenmodulation des Pulses, die als Chirp bezeichnet wird.

Die gechirpten Pulse werden nach erneutem Durchlaufen des Isolators als *seed*-Puls in den Resonator des regenerativen Verstärkers, der als Verstärkungsmedium ebenfalls einen Ti:Sa-Kristall besitzt, eingekoppelt. Der Kristall wird durch einen gütegeschalteten Nd:YAG-Laser (Modell ORC-1000, Fa. Clark-MXR Inc.) bei 532 nm und einer Leistung von 8 W mit einer Pulsdauer von 100 ns bei einer Repetitionsrate von 1 kHz gepumpt. Die Ein- und Auskopplung des *seed*-Pulses in den Resonator wird über eine Pockelszelle gesteuert. Die Umlaufzeit des Pulses im Resonator ist so eingestellt, daß der Puls optimal bezüglich des Nd:YAG-Pumpprozesses verstärkt wird. Der *seed*-Puls verbleibt für ca. 30 Umläufe im Verstärker-Resonator und wird dabei kontinuierlich verstärkt. Die Energie der Pulse liegt nach Verlassen des regenerativen Verstärkers um 1.1 mJ bei einer Repetitionsrate von 1 KHz. Im Anschluß durchlaufen die so verstärkten gechirpten Pulse nochmals den Isolator, bevor sie abschließend im Kompressor durch eine Littrow-Anordnung zweier Gitter auf ca. 180 fs verkürzt werden. Die ultrakurzen Pulse aus dem Ti:Sa-Lasersystem besitzen bei einer Repetitionsrate von 1 KHz eine Energie von 600  $\mu$ J. In einem PG-FROG (**P**olarization-**G**ate **F**requency **R**esolved **O**ptical **G**ating)-Aufbau, bei dem mit Hilfe eines nichtlinearen Prozesses 3. Ordnung ein Autokorrelationssignal erzeugt wird, kann der ultrakurze Puls bezüglich Dauer, Bandbreite und Chirp charakterisiert werden.

### 3.3.2 PG-FROG-Aufbau

Bei dem hier vorgestellten Aufbau, der in Abb. ?? schematisch dargestellt ist, wird zur Erzeugung des Autokorrelationssignales der optische Kerr-Effekt eingesetzt.

Dazu wird der zu charakterisierende Puls mit einem Strahlteiler in einen starken Gate- und schwachen Signalstrahl aufgespalten und diese mit einer zeitlichen Verzögerung in einem Kerr-Medium (Saphir, 1 mm dick) zum Überlapp gebracht. Die Polarisation des Signalstrahles wird mit einem Polarisator auf  $0^\circ$  eingestellt. Der zeitlich verzögerte Gate-

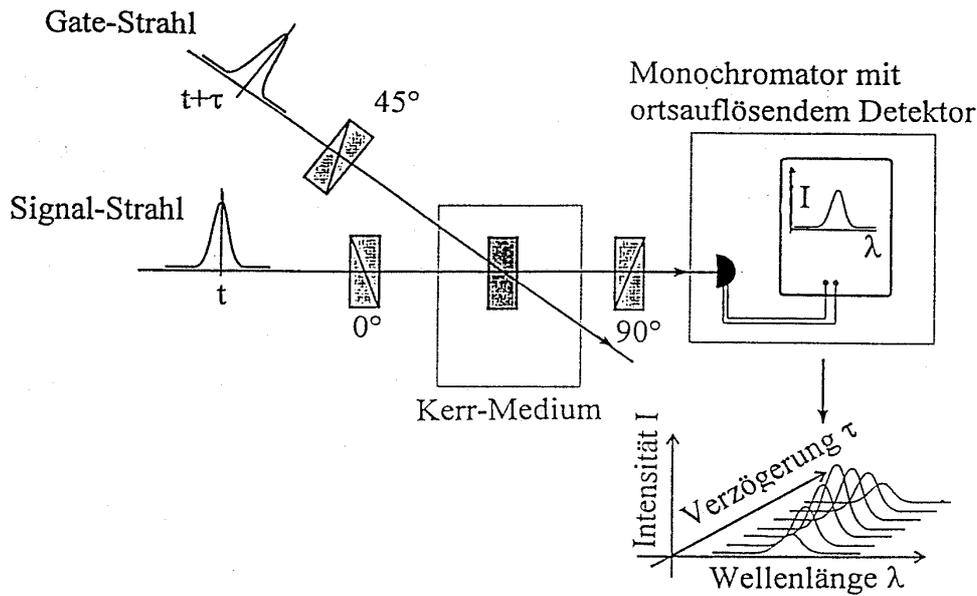


Abb. 3.4: PG-FROG-Aufbau zur Charakterisierung der ultrakurzen Pulse aus [60].

strahl, der bezüglich der Signalstrahlpolarisation um  $45^\circ$  gedreht ist, bewirkt eine intensitätsabhängige Änderung des Brechungsindex im Kerr-Medium. Als Folge dessen kommt es im zeitlichen Überlapp zu einer Drehung der Polarisation des Signalpulses. Die Anordnung der gekreuzten Polarisatoren im Signalstrahl dient dazu, das Hintergrundspektrum zu unterdrücken. Die Detektion des im Kerr-Medium erzeugten Autokorrelationssignales erfolgt in einer Anordnung aus Monochromator und CCD-Kamera (Flash Cam, Fa. PCO). Um ein zweidimensionales Abbild des Pulses zu erhalten, werden Spektren für verschiedene Verzögerungszeiten zwischen Gate- und Signalpuls aufgenommen, die dann das sogenannte Spektrogramm bilden. Aus diesem Spektrogramm erhält man Informationen über Phase und Form des ultrakurzen Pulses. Da es sich um einen nicht-linearen Prozeß 3. Ordnung handelt, benötigt man genügend hohe Pulsintensitäten, um ein solches FROG-Spektrogramm aufzunehmen. In Abb. 3.5 ist das Spektrogramm eines chirpfreien Ti:Sa-Pulses der Zentralwellenlänge 800 nm mit einer spektralen Breite von 10 nm und einer zeitlichen Dauer von 160 fs dargestellt.

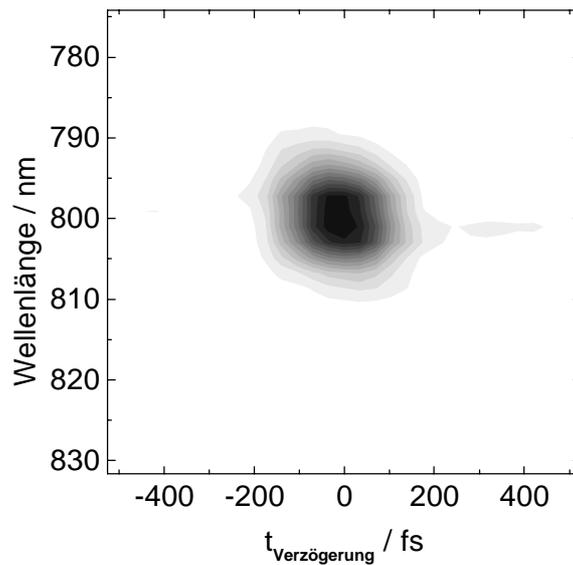


Abb. 3.5: FROG-Spektrogramm eines Ti:Sa-Pulses der Zentralwellenlänge 800 nm mit einer Bandbreite von 10 nm und einer Pulsdauer von 160 fs.

### 3.3.3 Der 2-stufige Farbstoffverstärker

Die für das Experiment benötigten ultrakurzen Pulse zwischen 640 nm und 680 nm erhält man, indem die Ti:Sa-Pulse im Wasser ein Weißlichtkontinuum erzeugen, aus dem die gewünschte spektrale Komponente herausgefiltert und in einem selbstgebauten 2-stufigen Farbstoff-Nachverstärker verstärkt wird. Mit einem Folienstrahlteiler (Fa. LOT Oriel) wird aus dem Ti:Sa-Strahl ca. 1 % ( $6 \mu\text{J}$ ) ausgekoppelt und mit Hilfe eines Ferrerrades (Transmission 10 % - 100 %, Fa. Laser Components) in seiner Energie variiert. Der Strahl mit einem Durchmesser von 6 mm wird zunächst zur Verbesserung des Strahlprofils mit einer Linse der Brennweite 1000 mm in ein Raumfilter RF mit einem Durchmesser von  $200 \mu\text{m}$  fokussiert. Anschließend wird der Strahl in eine mit deionisiertem Wasser gefüllte 5 mm breite Quarzdurchflußküvette fokussiert, wobei es durch Selbstphasenmodulation und Selbstfokussierungseffekte in der Flüssigkeit zur Weißlichterzeugung kommt [21],[38]. Im allgemeinen reicht zur Weißlichterzeugung eine Energie von maximal  $0.5 \mu\text{J}$  aus. Das wenig oberhalb seiner Schwellenenergie erzeugte Weißlicht ist um die Zentralwellenlänge von 800 nm zentriert und die spektrale Breite deckt den Bereich von 300 nm bis 1200 nm ab. Die Stabilität des Weißlichtes hängt stark von der Puls-zu-Puls-Stabilität der ultra-

kurzen Ti:Sa-Pulse ab und die Schwankung ist bei optimaler Justage kleiner als 5 %. Das erzeugte *s*-polarisierte Weißlicht wird über einen Achromaten der Brennweite  $f = 200$  mm gesammelt und in den 2-stufigen Farbstoffverstärker bzw. in die Bethunezellen eingekoppelt. In Abb. 3.6 ist das Prinzip der Pulsverstärkung mit anschließender Kompression verdeutlicht.

Das Herzstück im Verstärker sind die beiden je 4 cm langen Bethunezellen BZ, die die Form eines gleichschenkeligen Prismas besitzen und eine Durchbohrung haben, durch die der in Propenylcarbonat (PC) gelöste Farbstoff DCM (Fa. Radiant Dyes & Laser Acc.) fließt. Die Konzentration der Farbstofflösung in der ersten Stufe ist 0.2 g DCM pro 1 l PC und die der zweiten Stufe ist 0.015 g/l. Das Absorptionsprofil von DCM hat eine Halbwertsbreite von 150 nm und sein Maximum bei 480 nm. Das Emissionsspektrum zwischen 615 nm und 666 nm hat sein Maximum bei 639 nm. Der Durchmesser der Durchbohrung der ersten Bethunezelle ist 1.5 mm und der der zweiten ist 4 mm. Die Zellen werden seitlich mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser (Modell Brilliant, Fa. Quantel) bei 532 nm und einer Energie von 150 mJ bei einer Pulsdauer von 5 ns mit 10 Hz gepumpt. Der Einsatz des Nd:YAG-Lasers anstelle eines vorher benutzten XeCl-Lasers stellte einen großen Fortschritt nicht nur im Hinblick auf die Pulsstabilität der ultrakurzen Pulse dar, sondern auch bezüglich der Verwendungsdauer des Farbstoffes. Durch den Pumpprozess mit dem Nd:YAG-Laser wird der Farbstoff wesentlich weniger beansprucht, so daß die Farbstofflösung über einen längeren Zeitraum eingesetzt werden konnte und so zu der schon einleitend geforderten Pulsstabilität beitrug.

Das runde Strahlprofil des Nd:YAG-Lasers mit einem Durchmesser von 1 cm wird in einem Teleskop bestehend aus einer konkaven ( $f = -90$  mm) und einer konvexen ( $f = 250$  mm) Zylinderlinse aufgeweitet und erhält so ein Rechteckprofil mit den Maßen 1 cm · 3.5 cm. Mit diesem angepaßten Strahlprofil ist es möglich, die Bethunezellen vollständig auszuleuchten und effektiv zu nutzen. Der Vorteil der Bethunezelle liegt darin, daß durch die Prismenform und die dadurch bedingten internen Reflexionen eine gleichmäßige Ausleuchtung des Farbstoffes und damit ein gaußförmiges Verstärkungsprofil gewährleistet ist. Die erste Zelle wird mit 30 % der Energie des Nd:YAG Lasers und die zweite Stufe mit den verbleibenden 70 % gepumpt. Die Energiestabilität des Nd:YAG-Lasers liegt bei 4 % und der zeitliche Jitter wird mit weniger als 0.5 ns angegeben. Um den zeitlichen Überlapp zwischen dem die Bethunezellen pumpenden Nd:YAG-Laser und den ultrakurzen Pulsen des Ti:Sa bzw. des Weißlichtes zu optimieren und eine maximale Verstärkung zu erreichen, benutzt man eine Verzögerungseinheit (Modell DG535, Fa. Stanford Research), die extern über den Pockelszellentreiber des regenerativen Ti:Sa-Verstärkers mit 1 KHz gesteuert

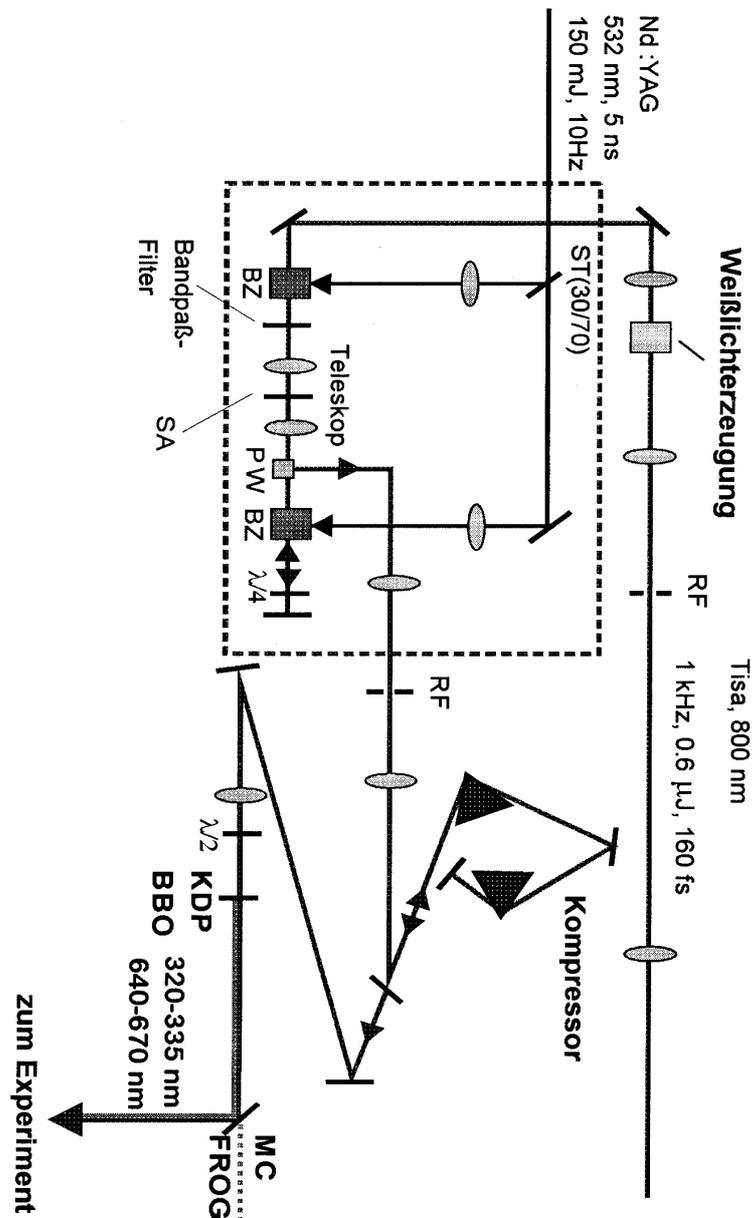


Abb. 3.6: Aufbau des 2-stufigen Farbstoffverstärkers mit den beiden Bethunezellen BZ, die durch einen Nd:YAG-Laser im Verhältnis 30:70 gepumpt werden. Über einen Bandpaßfilter kann die gewünschte Wellenlänge aus dem Weißlicht separiert und verstärkt werden. Die Pulse durchlaufen insgesamt dreimal die Bethunezellen und werden über einen Polarisationswürfel PW aus dem Verstärker ausgekoppelt. Die Raumfilter RF dienen dazu, das Strahlprofil zu verbessern. In einem Prismen-Kompressor werden die Pulse verkürzt und anschließend in einem KDP-Kristall bzw. BBO-Kristall verdoppelt. Die Pulse können in einem FROG-Aufbau und einem Monochromator (MC) charakterisiert werden.

wird. Das Signal wird in der Verzögerungseinheit auf 10 Hz dividiert und über eine interne Verzögerung die Blitzlampen und der Q-Switch des Nd:YAG-Lasers optimal bezüglich der Verstärkung in den Zellen getriggert.

Mit Hilfe eines Bandpaß-Filtersatzes (Fa. Laser Components), der nach der ersten Bethunezelle eingesetzt wird, kann die für das Experiment benötigte Wellenlänge aus dem Weißlicht in 5 nm bzw. 10 nm-Schritten von 640 nm bis 680 nm herausgefiltert werden. Die Bandbreite der Filter liegt bei 5 nm bzw. 10 nm. Der Puls der gewünschten Wellenlänge durchläuft anschließend die zweite Bethunezelle, wobei der Strahldurchmesser durch ein Teleskop dem größeren Durchmesser der Durchbohrung angepaßt wird. Wie in Abb. 3.6 dargestellt, wird der Strahl nach der zweiten Stufe durch das zweimalige Passieren eines  $\lambda/4$ -Plättchens um  $90^\circ$  in seiner Polarisation gedreht und durchläuft ein drittes Mal die zweite Bethunezelle, bevor der nun *p*-polarisierte Strahl über einen Polarisationswürfel ausgekoppelt wird und den Verstärker verläßt.

In allen mit Lasern gepumpten Farbstofflasersystemen stellt die spontane Emission des Farbstoffes ein großes Problem dar, da sie einen merklichen Teil der Inversion auf Kosten der induzierten Emission abbauen kann [20]. Dadurch kommt es zu einer Verstärkung der spontanen Emission ASE (**A**mplified **S**pontaneous **E**mission) und diese überlagert sich als zeitlich breiter Untergrund der schmalen Laseremission. Durch die ASE bedingt treten zusätzliche Schwankungen in der Pulsintensität auf. In unserem Fall beträgt der Anteil der ASE nach der ersten Stufe und einem Bandpaßfilter zur Selektion der spektralen Komponente bei einer Verstärkung um einen Faktor 2000 ca. 5 % im Signal. Um eine Verstärkung der ASE in der zweiten Stufe zu vermeiden, wird zwischen den einzelnen Verstärkerstufen ein sättigbarer Absorber SA eingebaut, der durch die intensiven Pulse gesättigt wird und dabei die schwächere ASE unterdrückt. Ein 1 mm dickes Farbfiler (RG715, Fa. Schott), dessen Absorptionsprofil im Bereich der zu verstärkenden Wellenlänge liegt, wird als sättigbarer Absorber SA in den Brennpunkt des Teleskopes nach der ersten Stufe eingebaut. Bei Pulsen mit moderaten Energien besitzt dieses Filter eine Transmission  $T_0$  von  $10^{-5}$ . Mit zunehmender Intensität  $I$  der Pulse wird der Grundzustand des sättigbaren Absorbers durch optisches Pumpen entvölkert und aufgrund der im Vergleich zur Pulsdauer langen Lebensdauer  $\tau$  des angeregten Zustandes die Absorption in einem schmalen Spektralbereich gesättigt, d.h. der Absorber bleicht aus und die Transmission  $T$  erhöht sich wesentlich. Es gilt die Beziehung:

$$T = T_0^{1/(1+I/I_s)},$$

wobei  $I_s$  die Sättigungsintensität des Absorbers ist. Um einen sättigbaren Absorber auszubleichen sind hohe Intensitäten nötig und die eingestrahlte Intensität  $I$  muß wesentlich größer als  $I_s$  sein. Ultrakurze Pulse besitzen diese benötigte Intensität, während die ASE aufgrund der Lebensdauer von ca. 50 ns unterhalb der Sättigungsintensität liegt. Durch den Einsatz des SA sinkt der Anteil der ASE nach der ersten Stufe um einen Faktor 10 auf unter 0.5 %. Nach zweimaligem Durchlaufen der zweiten Stufe und Auskopplung aus dem Verstärker wird der Strahl mit einer Linse ( $f = 500$  mm) in ein Raumfilter RF mit einem Durchmesser von  $200 \mu\text{m}$  fokussiert. Diese Anordnung dient dazu, das Strahlprofil zu verbessern, führt aber aufgrund der unterschiedlichen Strahlcharakteristika von Puls und ASE zu einer weiteren Unterdrückung der ASE. Die resultierende Verstärkung der Pulse zwischen 640 nm und 680 nm im Farbstoffverstärker liegt bei knapp  $10^6$ , wobei die ASE im Gesamtsignal weniger als 2 % ausmacht. Die Energien der ultrakurzen Pulse werden mit einem pyroelektrischen Detektor (Model J3-02, Fa. Molelectron) gemessen und die Pulse um 660 nm besitzen bei einer Repetitionsrate von 10 Hz eine Energie von max.  $10 \mu\text{J}$ . Die Puls-zu-Pulsschwankungen liegen bei optimaler Justage bei maximal  $\pm 5$  %. Die Charakterisierung der Pulse bezüglich ihrer Dauer  $\tau_P$  und ihrer Bandbreite  $\Delta\nu$  wird im folgenden Abschnitt erläutert.

### 3.3.4 Pulskompression und Charakterisierung

Durch die im Verstärker eingebauten optischen Komponenten wie Linsen, Filter, Polarisationswürfel und  $\lambda/4$ -Plättchen aus BK7-Material und den mit der Farbstofflösung gefüllten Bethunezellen kommt es aufgrund der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) zu einer zeitlichen Verbreiterung der Weißlicht-Pulse, die ohne den Einfluß der GVD kürzer als die sie erzeugenden Ti:Sa-Pulse wären.

Die GVD für BK7 liegt bei  $-2.6604 \text{ fs}/(\text{nm}\cdot\text{cm})$ . Der Einfachheit halber wird für den Farbstoff in den Zellen der gleiche Wert angenommen. Unter der Annahme von 17 cm Material im Verstärkeraufbau, wobei die Bethunezellen allein 12 cm ausmachen, und einer Bandbreite  $\Delta\nu$  von 8 nm für einen Puls um 660 nm ergibt sich damit eine zeitliche Verbreiterung der Pulse um rund 360 fs auf gut 540 fs. In einer Autokorrelation wurde die Pulsdauer nach Verlassen des Verstärkers zu 800 fs bestimmt. Die zusätzliche Verbreiterung ist damit zu erklären, daß der Einfluß der Farbstofflüssigkeit doch größer ist als angenommen.

Um die Dauer  $\tau_P$  der Pulse zu verkürzen, wurde nach dem Verstärker ein Kompressor bestehend aus zwei gleichschenkligen F2-Prismen aufgebaut, deren GVD positiv ist und

so die negative GVD der optischen Komponenten aus BK7 kompensiert [21]. Der Abstand der beiden Prismen beträgt ca. 140 cm und kann über einen auf einem Verschiebetisch montierten Spiegel variiert werden. Die GVD der F2-Prismen liegt bei  $+0.33 \text{ fs}/(\text{nm}\cdot\text{cm})$  und bei einer Laufstrecke von 280 cm ist es möglich, die GVD durch das Material um  $93 \text{ fs}/\text{nm}$  zu kompensieren (Vergl. Abb. 3.6). Um den Chirp des Pulses zu kompensieren, kann über eine Mikrometerversstellung eines der Prismen bezüglich des einfallenden Strahles verschoben und damit die Menge des durchlaufenden Prismenmaterials bezüglich des Chirps des Pulses variiert werden. Diese Chirpkompensation führt zu einer weiteren Pulsverkürzung. Unter der Annahme Bandbreiten-begrenzter gaußförmiger Pulse ergibt sich mit  $\tau_P \cdot \Delta\nu = 0.441$  eine minimal zu erreichende Pulsdauer  $\tau_P$  von 78 fs. Im FROG-Aufbau kann die Kompression der Pulse als Funktion der Bandbreite  $\Delta\nu$  und der Pulsdauer  $\tau_P$  kontrolliert werden [60]. In Abb. 3.7 ist exemplarisch ein FROG-Spektrum für einen komprimierten, chirpfreien Puls mit  $\lambda = 655 \text{ nm}$  und einer Bandbreite von 8 nm dargestellt, dessen Pulsbreite 72 fs beträgt. Die Dauer der komprimierten Pulse der Zentralwellenlängen 646 nm und 668 nm ist vergleichbar und liegt je nach Kompressorjustage zwischen 60 fs und 80 fs.

Bevor die Pulse in einem KDP-Kristall (Dicke 0.5 mm, geschnitten für  $\lambda = 655 \text{ nm}$ , Fa. Laser Components) verdoppelt werden, wird in einem  $\lambda/2$ -Plättchen die  $p$ -Polarisation um  $90^\circ$  gedreht. Die Energien der  $s$ -polarisierten Grundwelle ( $1\omega$ ) um 660 nm liegen bei maximal  $5 \mu\text{J}$  und die der verdoppelten Pulse ( $2\omega$ ) um 330 nm mit  $p$ -Polarisation um  $1 \mu\text{J}$  bei einer Puls-zu-Pulsschwankung von maximal  $\pm 10 \%$ . Die Dauer und der Chirp der verdoppelten Pulse kann im FROG-Aufbau aufgrund der zu geringen Intensitäten nicht kontrolliert werden. Um Aussagen über die Pulsdauer zu treffen, kann der bei der Zwei-Farben-Pump-Probe-Messung zur Nullpunktsbestimmung angewandte optische Kerr-Effekt im LiF-Substrat in der Probenkammer benutzt werden (siehe Kapitel 5, *Zwei-Farben-Pump-Probe-Messungen*). Dieser Aufbau ist vergleichbar mit dem des FROG-Aufbaues und das mit einer Diode detektierte Korrelationssignal zwischen dem fundamentalen und dem verdoppelten Puls ist in Abb. 3.8 gezeigt. Aussagen über einen möglichen Chirp der UV-Pulse können mit dieser Anordnung nicht getroffen werden.

Die Kreuzkorrelationsbreite  $\Delta t_{KK}$  ist unter der Annahme von gaußförmigen Pulsen zu 172 fs bestimmt worden. Daraus ergibt sich mit  $\Delta t_{KK} = 2\sqrt{\ln 2} \sqrt{(2\tau_2^2 + \tau_1^2)/2}$  und einer  $1\omega$ -Pulsdauer  $\tau_1$  von 80 fs eine Pulsdauer  $\tau_2$  für den verdoppelten Puls von 165 fs. Die Verbreiterung der UV-Pulsdauer gegenüber den Pulsen der Grundwelle ist auf die geringe Bandbreite  $\Delta\nu$  des KDP-Verdopplerkristalles von  $1.62 \text{ nm}\cdot\text{mm}$  und die unterschiedlichen Geschwindigkeiten der spektralen Komponenten im Kristall zurückzuführen.

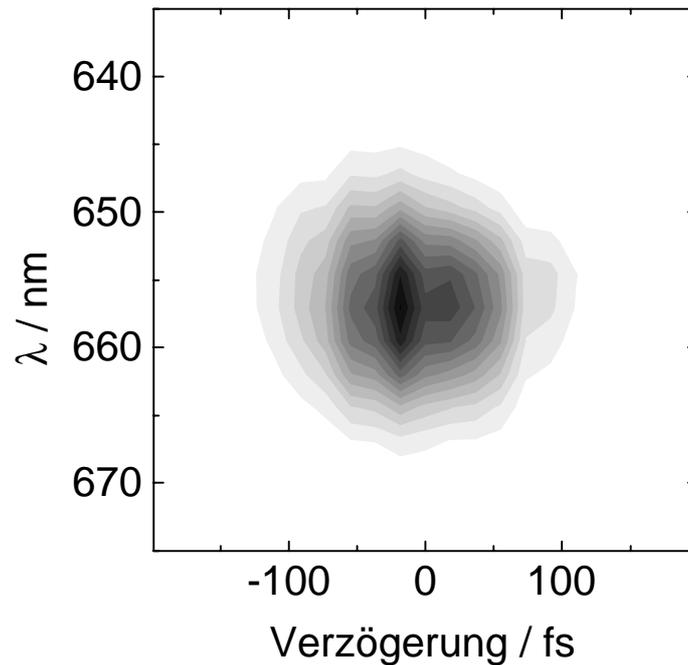


Abb. 3.7: FROG-Spektrogramm eines im Prismenkompressor auf 72 fs komprimierten Pulses mit einer Zentralwellenlänge von 655 nm und einer Bandbreite von 8 nm.

In einem Monochromator (Modell 306 MV mit 300 L/mm-Gitter, Fa. Minuteman) kann über eine CCD-Zeilenkamera (Typ Sony ILX703, spektrale Empfindlichkeit 300-900 nm, Fa. Tichawa) neben der Wellenlänge auch die Bandbreite der Grundwelle und der Verdoppelten bestimmt werden. Die gemessenen Bandbreiten von 8 nm und 1.9 nm sind in der Abb. 3.9 exemplarisch für Pulse mit  $\lambda = 668 \text{ nm}$  und  $\lambda = 334 \text{ nm}$  gezeigt und vergleichbar mit den anderen im Experiment eingesetzten Wellenlängen. Zur Frequenzverdopplung wurde auch ein für 800 nm geschnittener 0.2 mm dicker BBO-Kristall (Fa. Döhler) benutzt, dessen Effizienz deutlich höher als die des KDP-Kristalles war. Die Bandbreite der Verdoppelten zeigte sich, wie in Abb. 3.10 gezeigt, unbeeinflusst davon. Mit diesem hier beschriebenen Laseraufbau ist die Erzeugung stabiler ultrakurzer Pulse im Bereich zwischen 640 nm und 680 nm bzw. durch Frequenzverdopplung zwischen 320 nm und 340 nm möglich. In Tab. 3.1 sind zur besseren Übersicht die Charakteristika der einzelnen Pulse exemplarisch aufgelistet.

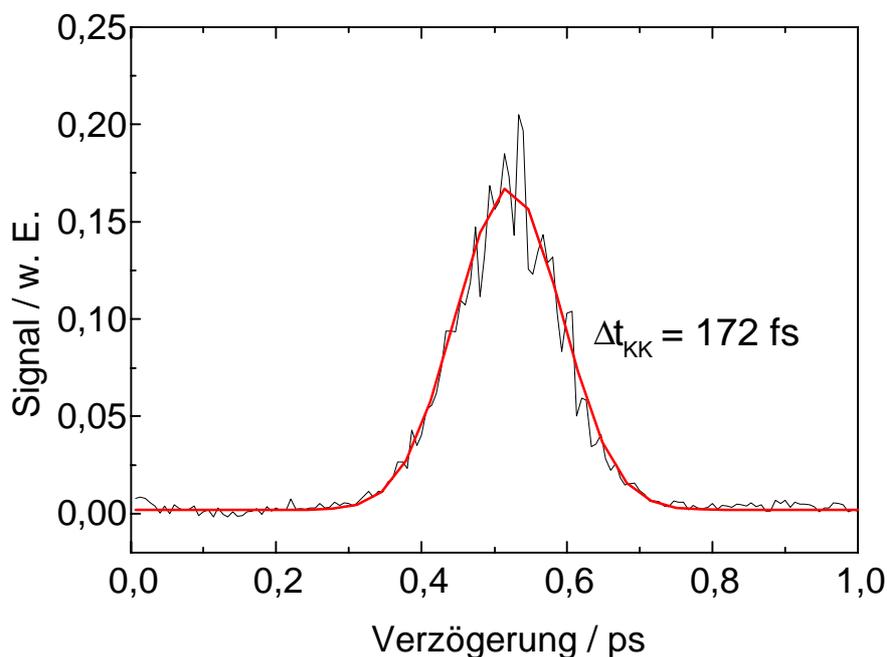


Abb. 3.8: Kerr-Signal zwischen dem fundamentalen Puls um 668 nm und dem frequenzverdoppelten Puls um 334 nm. Die Kreuzkorrelationsbreite ist  $\Delta t_{KK} = 172 \text{ fs}$ . Daraus läßt sich die Dauer des  $2\omega$ -Pulses zu 165 fs bestimmen.

	<b>1<math>\omega</math>-Puls</b>	<b>2<math>\omega</math>-Puls</b>
Energie / $\mu\text{J}$	5	0.5 - 1
Bandbreite / nm	8	1.9
Pulsdauer / fs	60-80	160-170
Stabilität / %	$\pm 5$	$\pm 10$

Tab. 3.1: Charakterisierung der ultrakurzen Pulse am Beispiel 668 nm bzw. 334 nm. Die Daten sind typisch für die im Experiment eingesetzten Pulse.

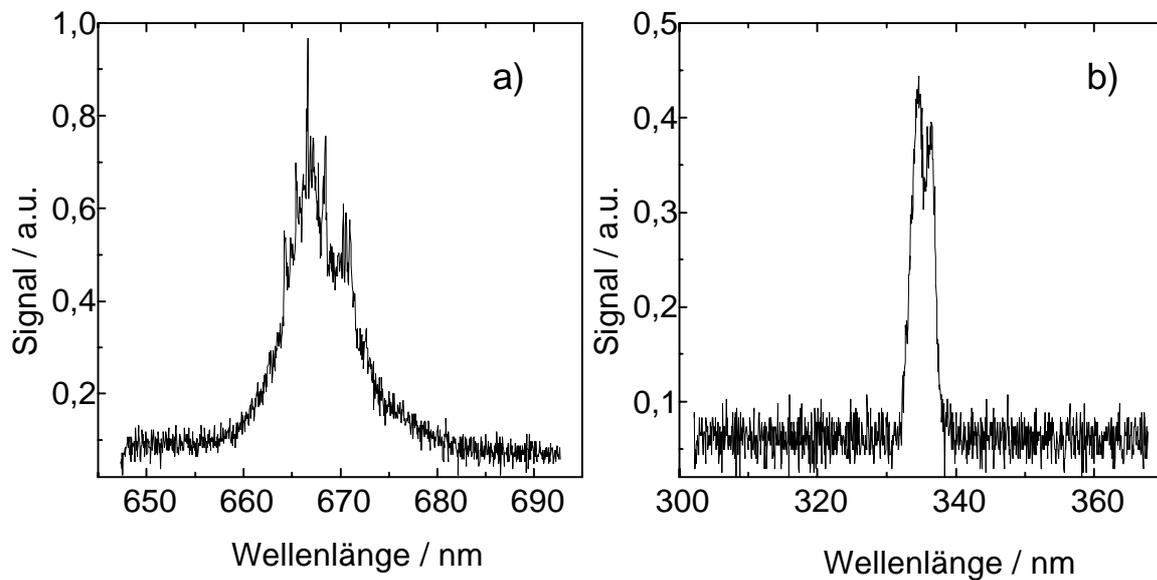


Abb. 3.9: Die Bandbreite der ultrakurzen Pulse a) der Grundwelle um 668 nm ist zu 8 nm und die b) der Verdoppelten um 334 nm zu 1.9 nm bestimmt worden.

### 3.3.5 Experimentelle Methoden zur Beobachtung der Wellenpaketdynamik

Ausführliche Diskussionen der Pump-Probe-Technik und ihrer Anwendung finden sich bei Diels und Rudolph [21], Kaiser [38] und Manz und Wöste [47]. In der Pump-Probe-Spektroskopie wird das zu untersuchende System mit einem starken ultrakurzen Pumpuls elektronisch in einen Nichtgleichgewichtszustand angeregt und aufgrund der kohärenten Überlagerung von Schwingungseigenzuständen ein lokalisiertes Wellenpaket präpariert. Das im angeregten Zustand erzeugte Wellenpaket entwickelt sich zeitlich und räumlich unter dem Einfluß der Kernbewegung auf den angeregten Potentialflächen, wobei die physikalisch relevanten Größen die Gruppengeschwindigkeit des Wellenpaketes und die Energierelaxationszeit  $T_1$  des angeregten Zustandes sind. Die zeitliche Entwicklung des angeregten Zustandes in einen Gleichgewichtszustand wird mit einem i. a. schwächeren Probepuls detektiert, der zeitlich verzögert zum Pumpuls eingestrahlt wird. Im all-

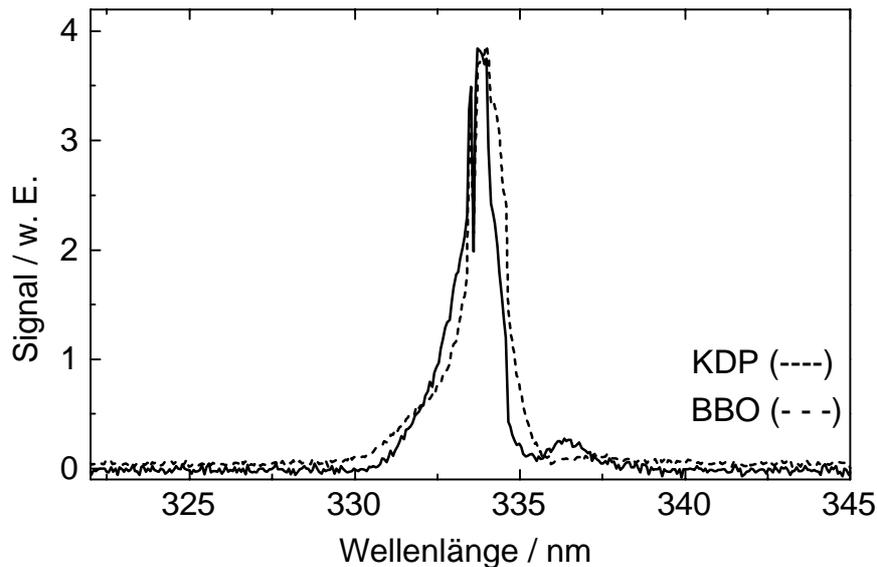


Abb. 3.10: Vergleich der Bandbreiten des frequenzverdoppelten Pulses um 334 nm bei Benutzung eines KDP-Kristalles (—) und eines BBO-Kristalles (- - -).

gemeinen wird dazu eine optische Eigenschaft des Systemes, wie z. B. die Absorption oder die Fluoreszenz als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepuls detektiert. Grundlegende Voraussetzung für die Pump-Probe-Technik ist die Existenz eines Probefensters, d. h. eines Bereiches mit einem großen Franck-Condon (FC)-Faktor zwischen der Potentialfläche, auf der die Entwicklung des Wellenpaketes stattfindet, und dem Grundzustandspotential oder einer anderen Potentialfläche. Existieren eine oder mehrere Positionen, in denen die FC-Übergangswahrscheinlichkeit zwischen zwei Zuständen besonders hoch ist und eine starke Abhängigkeit vom Kernabstand aufweist, so können z. B. durch Ionisation in höhere Zustände oder durch stimulierte Emission Aussagen über die Dynamik bei anderen Kernausslenkungen und die Bevölkerungszeit der relaxierten Zustände gewonnen werden. Besitzen Pump- und Probepuls die gleiche Wellenlänge, so handelt es sich um die resonante Pump-Probe-Technik. Im anderen Fall spricht man von der Zwei-Farben Pump-Probe-Technik.

Das Ag-Atom in der Xe-Matrix, das zusammen mit seinen nächsten 12 Xe-Nachbaratomen als Quasimolekül betrachtet wird, wird elektronisch mit einem starken Pumpimpuls um 330 nm bei kleinen Kernausslenkungen vom  $5s$ -Grundzustand in einen der  $5p$ -Zustände (SB,

–JT oder +JT) angeregt. Die Dynamik der  $p$ -Orbital-Wechselwirkung mit der Umgebung und die Depopulationszeit des angeregten Zustandes werden mit der resonanten Pump-Probe-Technik untersucht. Dazu wird ein zeitlich verzögerter, sehr schwacher Probepuls gleicher Wellenlänge eingestrahlt und dessen Absorptionsänderung als Funktion der Verzögerungszeit gemessen.

Ergänzend wurde in dieser Arbeit die Zwei-Farben Pump-Probe-Spektroskopie in Form der Fluoreszenzverlustspektroskopie eingesetzt. In dieser Anordnung wird wiederum mit dem UV-Puls die elektronische Anregung durchgeführt und mit einem starken Probepuls, der die Wellenlänge der Fundamentalen um 660 nm trägt und somit innerhalb der Fluoreszenzbande aus dem relaxierten SB-Zustand liegt, die Emission stimuliert (Vergl. Abb. 2.1 im Kapitel *Jahn-Teller-Effekt am Ag/Xe-System*). Die Änderung der spontanen Emission wird als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepuls gemessen und ermöglicht neben der Detektion der Wellenpaketdynamik bei großen Kernausslenkungen auch Aussagen über Relaxationsprozesse.

Der Aufbau der Strahlverzögerungseinheit zur Durchführung dieser beiden Techniken wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

## 3.4 Die Strahlverzögerungseinheit

### 3.4.1 Resonanter Pump-Probe-Aufbau

Der Aufbau der Strahlverzögerungseinheit für den Fall der resonanten Pump-Probe-Technik ist in Abb. 3.11 dargestellt. Mit einem UG1-Filter (2 mm, Fa. Schott) wird nach der Frequenzverdopplung im KDP- oder BBO-Kristall die Fundamentale um 660 nm geblockt. Der frequenzverdoppelte Puls mit einer Pulsdauer von ca. 170 fs wird an einem 1 mm dicken Strahlteiler ST (Fa. Laseroptik), der unter  $45^\circ$  für 310 - 350 nm hochreflektierend und im längerwelligen Bereich hochtransmittierend ist, in Pump- und Probepuls aufgespalten. Der transmittierte Probepuls trägt mit 10 nJ ca. 2 % der Energie und der reflektierte Pumpimpuls mit maximal 500 nJ wird über die Verzögerungsstrecke geführt, die aus einem auf einem Schlitten (Typ M.414.10, Fa. Physics Instruments) montierten, breitbandig Au-beschichteten Retroreflektor (UBBR1-5UV, Fa. Newport) besteht, der über einen Schrittmotor (VRDM 564/50 LNA, Fa. Berger & Lahr) und eine Steuerung (Modell SMK 02-Z, Fa. Owis) verfahren werden kann. Die Schrittweite des Motors liegt bei  $1 \mu\text{m}/\text{Schritt}$  und dies entspricht einer Auflösung von 6 fs.

Mit einer Quarzlinse ( $f = 250 \text{ mm}$ ) werden die beiden Teilstrahlen auf die Ag/Xe-Schicht

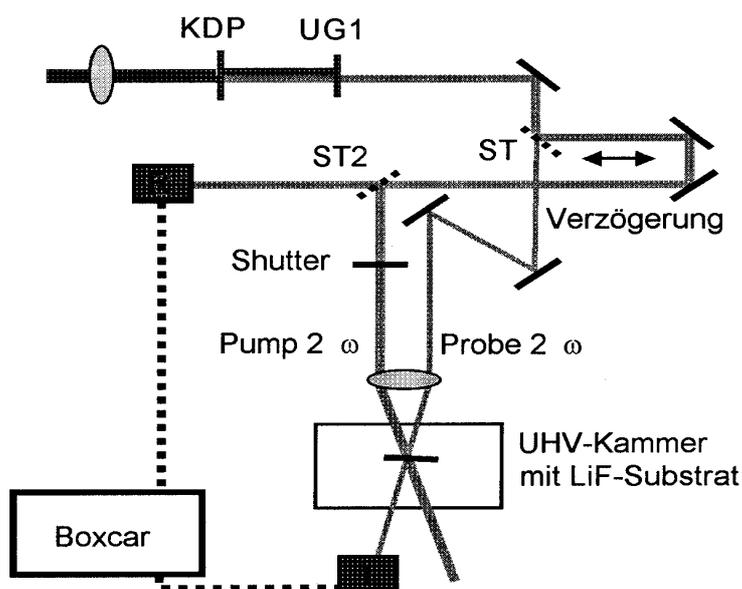


Abb. 3.11: Aufbau der Strahlverzögerungseinheit für die resonanten Pump-Probe-Messungen (KDP: Verdopplerkristall; ST, ST2: Strahlteiler; UG1: UV-Filter und R,T: Dioden zur Messung der Referenz- und Transmissionssignale).

fokussiert und zum räumlichen Überlapp gebracht. Die Ag/Xe-Schicht befindet sich bezüglich der einfallenden Strahlen auf der abgewandten Seite des LiF-Substrates. Die Änderung der Transmission des schwachen Probepulses als Funktion der Verzögerungszeit  $t_D$  zwischen Pump- und Probepuls wird mit einer Diode T detektiert. Die Transmission des Probepulses nimmt durch den Pumpimpuls aufgrund einer photoinduzierten Ag-Migration und Dimerisierung stetig zu [42]. Aus diesem Grund wird in den Strahlengang des Pumpimpulses ein Shutter eingebaut, der es erlaubt, die aktuelle Transmission des Probepulses zu jeder Verzögerungszeit zu messen. Die Absorption der Ag-Atome in der Xe-Schicht liegt bei  $70 \pm 5 \%$  und nimmt während der Messung zwischen  $10 \%$  und  $15 \%$  ab. Aufgrund der photoinduzierten Migration und der dadurch bedingten Abnahme der Ag-Zentrenzahl wird jede Messung an einem neuen Probenort durchgeführt.

Wiederum  $2 \%$  des über die Verzögerungsstrecke laufenden Pumpimpulses werden über einen zweiten Strahlteiler ST2 als Referenz ausgekoppelt und über eine Diode R (Modell S1722-02, Bandbreite 190-1100 nm, 60 MHz, Fa. Hamamatsu) detektiert. Alle im Aufbau eingesetzten Dioden sind vom gleichen Typ. Die Referenz- und Transmissionssignale der

Dioden werden durch schnelle Vorverstärker (Modell CLC 100, Fa. Comlinear Corp.) mit einem Faktor 10 multipliziert. Die Verstärker besitzen eine Bandbreite von 500 MHz und eine Anstiegszeit von 600 ps. Mit Hilfe zweier Boxcars (Modell SR250, Fa. Stanford Research) werden in einem Oszilloskop (TDS350, 200 MHz, 1 GS/s, Fa. Tektronix) durch die Verschiebung der Gates und die Variation der Breiten der Integrationsbereich optimal den Signalen angepaßt. Die Gatebreiten liegen bei 20 ns. Die Transmissions- und Referenzsignale der Dioden werden im Boxcar in Analogsignale umgewandelt, über eine AD-Wandlerkarte (DAS1600, Fa. Keithley) digitalisiert und anschließend im Rechner weiterverarbeitet.

### 3.4.2 Zwei-Farben-Pump-Probe-Aufbau

Im Fall der Zwei-Farben Pump-Probe-Spektroskopie trägt der Pumpimpuls wie im resonanten Fall die frequenzverdoppelte Wellenlänge um 330 nm und wird am Strahlteiler ST reflektiert und über die Verzögerungsstrecke geführt. Der Probestrahl mit der Wellenlänge der Fundamentalen um 660 nm durchdringt unabgeschwächt den Strahlteiler ST (siehe Abb. 3.12).

In beide Strahlengänge sind Polarisatoren P eingebaut und die Linse, mit der die Teilstrahlen auf die Ag/Xe-Schicht fokussiert werden, ist in der Mitte geteilt und diese Teile sind im Abstand von ca. 1 cm montiert, um den Farbfehler bei der Abbildung aufgrund der unterschiedlichen Wellenlängen zu kompensieren. Das LiF-Substrat mit der Ag/Xe-Schicht ist um ca. 30° aus der vertikalen Anordnung gedreht. Mit einem 1 mm-UG1-Filter wird im Pumpstrahl die Grundwelle und mit einem 1 mm-RG610-Filter im Probestrahl die Verdoppelte um 330 nm unterdrückt. Um die Sättigung der Absorption in der Ag/Xe-Schicht zu vermeiden und damit die Effizienz der stimulierten Fluoreszenz zu erhöhen, wird die Energie des Pumpstrahles mit Hilfe eines metallisch beschichteten Filtersatzes abgeschwächt und somit der Verlust im zu messenden Fluoreszenzsignal optimiert. Mit Hilfe zweier Dioden R und T detektiert man einerseits als Referenz einen Teil des über den Strahlteiler ST2 ausgekoppelten Pumpimpulses und andererseits die Änderung der Transmission des Pumpimpulses durch die Ag/Xe-Schicht. Die Änderung der spontanen Emission als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probestrahl wird mit einer Linse gesammelt und mit einem Photomultiplier PM detektiert, der mit 1 kV betrieben wird. Der Shutter moduliert in diesem Aufbau den Probestrahl und die spontane Fluoreszenz kann ohne den stimulierenden Einfluß des Probestrahl gemessen werden. Alle Signale werden nachverstärkt und über die jeweiligen Boxcars die Breiten und die

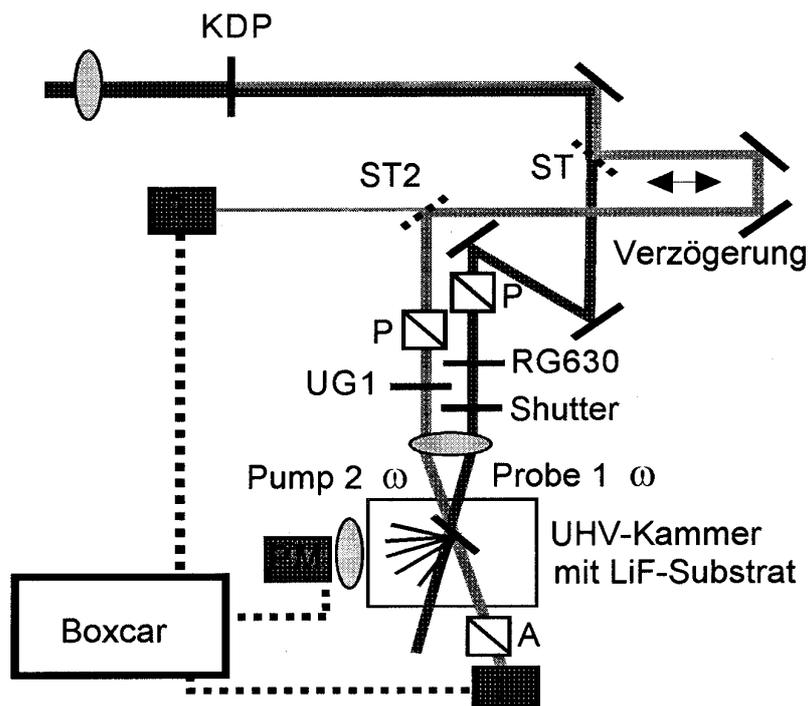


Abb. 3.12: Aufbau der Strahlverzögerungseinheit im Fall der Zwei-Farben Pump-Probe Anregung (KDP: Verdopplerkristall; ST, ST2: Strahlteiler; P: Polarisator; A: Analysator; UG1, RG630: Filter; R, T: Dioden zur Messung der Referenz bzw. der Transmission und PM: Photomultiplier).

Verschiebung der Gates am Oszilloskop optimiert. Um die Fluoreszenz aus der SB-Bande, die eine strahlende Lebensdauer von 58 ns besitzt, im Bereich von 620 nm bis 700 nm mit einer Halbwertsbreite von 55 nm zu detektieren und zusätzliches Licht des Probepulses in diesem Bereich zu unterdrücken, wird ein RG695-Langpaßfilter der Dicke 3 mm oder ein passendes Bandpaßfilter benutzt und das Gate mit einer Breite von 40 ns um ca. 50 ns bezüglich des Probestrahlsignales verschoben. Zur Detektion der Fluoreszenz aus der -JT-Bande bei 545 nm (FWHM 45 nm) mit einer Lebensdauer von 22 ns werden zwei Bandpaßfilter der Zentralwellenlänge 540 nm und einer Halbwertsbreite von 10 nm bzw. 40 nm eingesetzt. Die eingestellten Gatebreiten liegen zwischen 20 ns und 40 ns und die Verschiebung bezüglich des Probestrahlsignales bei 0 ns. Um Laser bedingte Schwankungen auszugleichen, werden die Fluoreszenzsignale mit dem Referenzsignal normiert.

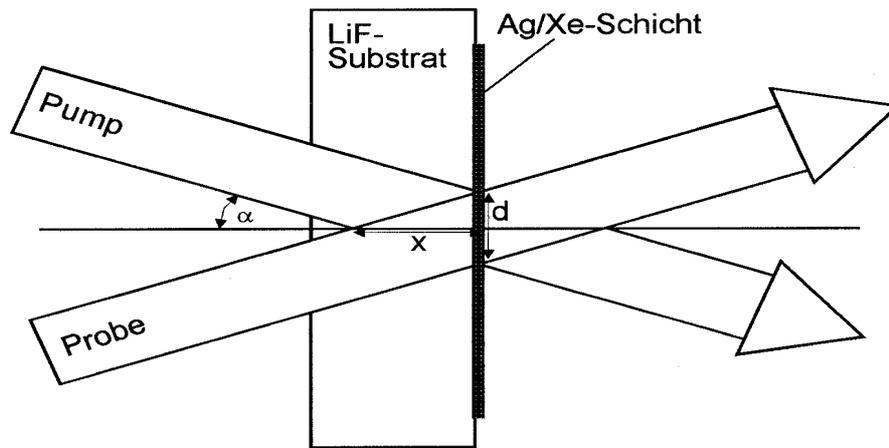


Abb. 3.13: Schematische Darstellung der Strahlgeometrie von Pump- und Probepuls. Mit  $d = 50 \mu\text{m}$  ist der Fokusbereich um einen Faktor 3 größer als die Schichtdicke. Die Überlapplänge  $2x$  wurde in der Abschätzung mit einem Einfallswinkel  $\alpha$  von  $3^\circ$  zu knapp 1.5 mm bestimmt.

### 3.4.3 Strahlgeometrie im Überlapp

Der ideale Fokusbereich  $d$  bei Abbildung durch eine Linse ist gegeben durch  $d = \lambda f/D$ , wobei  $D$  der Strahldurchmesser vor der Linse,  $f$  deren Brennweite und  $\lambda$  die eingestrahlte Wellenlänge ist [64]. Bei einem Strahldurchmesser  $D$  von 4 mm und einer Brennweite von 250 mm berechnet sich  $d$  bei 330 nm zu  $20 \mu\text{m}$  und weicht damit von der im Experiment bestimmten Größe von ca.  $50 \mu\text{m}$  ab. In Abb. 3.13 ist der räumliche Überlapp von Pump- und Probepuls in der  $15 \mu\text{m}$  dicken Ag/Xe-Schicht schematisch dargestellt. Der Strahldurchmesser  $d$  im Fokus ist mit  $50 \mu\text{m}$  ungefähr dreimal größer als die Dicke der Ag/Xe-Schicht. Bei einem Einfallswinkel  $\alpha$  von  $3^\circ$  berechnet sich die Länge  $2x$  des Überlappvolumens von Pump- und Probepuls zu knapp 1.5 mm und ist damit größer als das LiF-Substrat. Die Fläche der Foki auf der Ag/Xe-Schicht ist ca.  $2 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2$ . Daraus ergeben sich für den UV-Pumpimpuls bei einer Pulsdauer von 170 fs und einer Energie von 500 nJ Intensitäten von max.  $3 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$  und für den Probepuls der Fundamentalen mit 5  $\mu\text{J}$  und einer Dauer von 90 fs bis zu  $3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ .

Die Rayleighlänge  $l_R = \pi d^2/\lambda$  bezeichnet den Abstand von der Strahltaile  $d$ , bei dem sich der Fokus um einen Faktor  $\sqrt{2}$  vergrößert und damit die Intensität um einen Faktor  $\sqrt{2}$  abnimmt. Bei einer Fokusgröße von  $50 \mu\text{m}$  auf der Ag/Xe-Schicht ist die Rayleighlänge

ca. 2.3 cm und damit wesentlich größer als das Substrat, auf dem die Ag/Xe-Schicht ausfriert. Aufgrund des kleinen Einfallswinkels zwischen Pump- und Probepuls auf der Ag/Xe-Schicht und der hohen Pulsintensitäten ist es demnach möglich, im LiF-Substrat ein Kerr-Signal zu messen und damit den zeitlichen Nullpunkt  $t_D = 0$  zwischen Pump- und Probepuls zu bestimmen.

Die mit diesen Aufbauten erzielten Ergebnisse am System Ag/Xe werden in den Kapiteln *Resonante Pump-Probe Messungen* und *Zwei-Farben Pump-Probe Messungen* vorgestellt.