

A. Autokorrelator

Zur Bestimmung der Pulslängen wurde ein Autokorrelator aufgebaut, der sich dadurch auszeichnet, möglichst wenig zusätzliche Gruppengeschwindigkeitsdispersion einzuführen. Grundlage hierfür war der Optiksatz für einen kommerziellen Autokorrelator (Stingl OEG, Österreich).

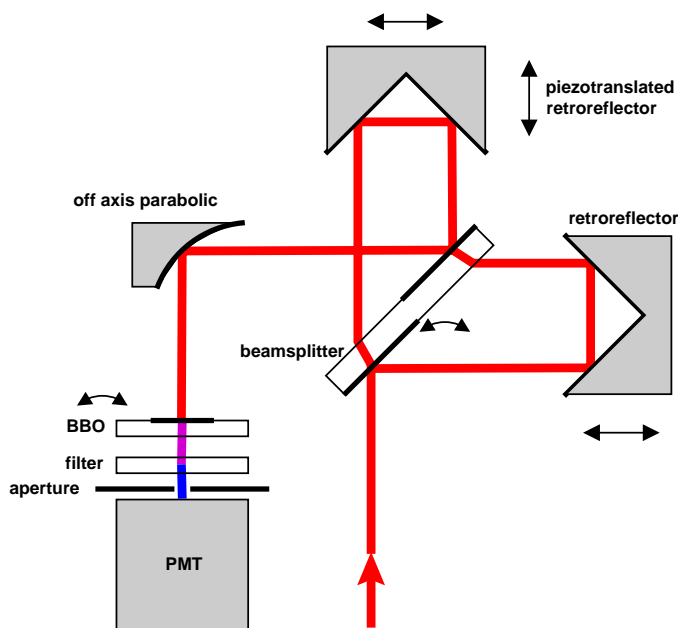


Abbildung A.1:
Prinzipische Skizze des Autokorrelators

Unumgänglich ist der Durchtritt der Laserpulse durch den Strahlteiler (s. Abb. A.1). Bei herkömmlichen Strahlteilern ist die dielektrische Beschichtung dabei auf einer Seite aufgebracht, so daß einer der Teilpulse das Strahlteilersubstrat dreimal, der andere aber nur einmal durchläuft. Dies führt zu einer ungleichmäßigen Verlängerung der beiden Teilpulse, was die Messung der Autokorrelation ausschließt. Außerdem ergibt sich eine 180° -Phasenverschiebung zwischen den beiden Teilpulsen, die bei einer interferometrischen Autokorrelation zu einem Minimum statt zu einem Maximum bei gleichen Armlängen führt. Daher ist der Strahlteiler hier auf beiden Seiten jeweils bis zur Hälfte dielektrisch beschichtet. Beide Teilstrahlen durchlaufen nur einmal das Substrat und werden in gleicher Weise verlängert, was vorkompensiert werden kann. Da die Bandbreite des Strahlteilers für s-Polarisation

($R = 50\% \pm 10\%$ von 600 bis 1000 nm) größer ist als für p-Polarisation werden die Laserpulse über ein Periskop in den Autokorrelator eingekoppelt, was ihre Polarisation von p nach s dreht.

Mit Hilfe zweier silberbeschichteter Retroreflektoren werden die beiden Teilpulse dann überlagert. Anstelle einer fokussierenden Linse wird ein goldbeschichteter 90° -Parabolspiegel mit einer Brennweite von 50 mm verwendet. Als nichtlineares Medium wird ein BBO-Kristall (Beta-Barium Borat) eingesetzt, der lediglich $25 \mu\text{m}$ dick ist. Dieses verhindert Pulsverlängerung im Kristall und garantiert eine große Phasenanpassungsbandbreite. Der Kristall befindet sich auf einem Quarzsubstrat und ist mit einer Schutzschicht versehen. Wegen der geringen Dicke ist auch die Ausbeute an Frequenzverdoppelter recht gering, so daß zu deren Detektion statt einer Photodiode ein Photomultiplier (Hamatsu, H5783-03) herangezogen wurde. Zur Trennung der fundamentalen Frequenz von der Verdoppelten, befindet sich vor dem Photosensor noch ein Kantenfilter ($T = 90\%$ von 360 bis 440 nm) und zur Unterdrückung von Streulicht eine Blende.

Durch Verschieben des einen Retroreflektors senkrecht zum Strahl kann der Überlapp der Teilpulse so eingestellt werden, daß entweder die hintergrundfreie Intensitätsautokorrelation oder die interferometrische Autokorrelation (s. dazu [44, 56]) gemessen wird. Einer der beiden Retroreflektoren wird von einem Piezoelement (PI, P-288.00, Disk-Translator; Spectra Physics, Model 476, Scanning Interferometer Driver) harmonisch mit einer Frequenz von ca. 1 Hz in Strahlrichtung bewegt. Damit wird die zeitliche Verzögerung der beiden Teilpulse zueinander variiert und die Autokorrelation kann mit einem digitalen Speicheroszilloskop (LeCroy, 9400) am Photomultiplier aufgenommen werden.

B. Lineare Reflektivitäten dünner Goldfilme

Als ein Beispiel für eine Pump-Probe-Messung allein mit dem selbstgebauten Ti:Sa-Oszillator ohne Pulsverstärkung wurde die Zeitabhängigkeit der linearen Reflektivität dünner polykristalliner Goldfilme auf Quarzsubstraten gemessen.

Um den Pump- vom Probestrahl trennen zu können, wurde die Frequenz des Probestrahls mittels eines nur $25\ \mu\text{m}$ dicken BBO-Kristalls verdoppelt. Das Intensitätsverhältnis vom Probe- zum Pumpimpuls betrug bei der fundamentalen Wellenlänge von $800\ \text{nm}$ ca. $1 : 19$. Der Versuchsaufbau ist in Abb. (B.1) schematisch dargestellt. Mit einem dichroitischen Spiegel (HR $400\ \text{nm}$, HT $800\ \text{nm}$) wurden Pump- und Probestrahl kollinear durch eine achromatische Linse ($f=20\ \text{mm}$) auf die Probenoberfläche fokussiert. Die Trennung der beiden Wellenlängen erfolgte durch insgesamt $4\ \text{mm}$ BG39-Glasfilter (Schott). Die Detektion erfolgte mit einer verstärkten Si-Photodiode (LCI 7.5, Laser Components) und einem Lockinverstärker (SR850, Stanford Instruments).

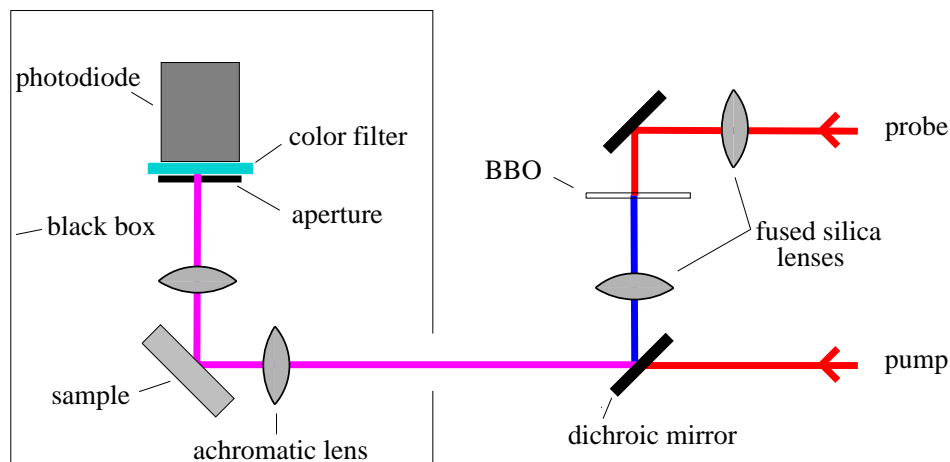


Abbildung B.1: Prinzipskizze des Aufbaues zur Messung der Zeitabhängigkeit der linearen Reflektivitäten mit dem Ti:Sa-Oszillator.

Zur Messung der Zeitabhängigkeit der linearen Reflektivität wurde zuerst der Probestrahl mit einem Chopper moduliert und der Pumpstrahl abgeblockt, um

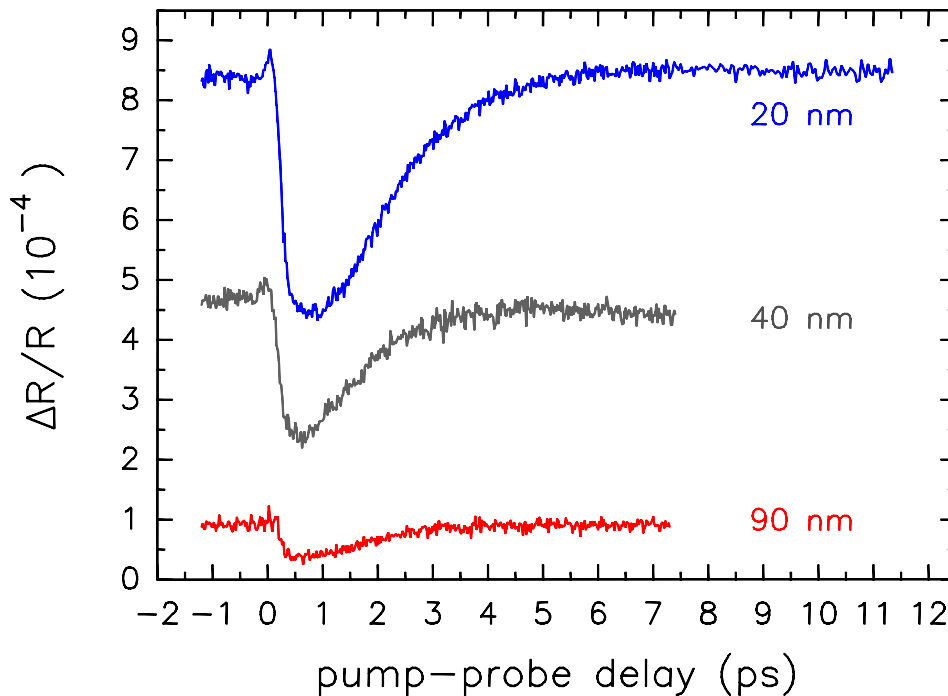


Abbildung B.2: Relative Änderung der linearen Reflektivität dünner polykristalliner Goldfilme auf Quarz in Abhängigkeit der Verzögerungszeit. Die Dicken betragen 20, 40 und 90 nm. Der Pumpstrahl wurde mechanisch intensitätsmoduliert.

den vom Pumpimpuls unbeeinflussten Reflektivitätswert zu ermitteln. Anschließend wurde der Pumpstrahl moduliert und lediglich die pumpinduzierte Änderung der linearen Reflektivität detektiert. Diese Änderung wird durch den probemoduliert gemessenen Reflektivitätswert dividiert und es ergibt sich die relative Änderung der Reflektivität. Diese ist in der Abb. (B.2) für drei verschiedene Filmdicken dargestellt.

Aufgrund der sehr kleinen Pulsenergie von ca. 3 nJ ist der zu erwartende Heizeffekt im Leitungsband sehr klein. Ferner liegt die Interbandübergangsschwelle (der energetische Abstand von der Oberkante des d-Bandes zur Fermikante) für Gold bei ungefähr 2.38 eV, also relativ weit entfernt von der Photonenenergie der Probepulse von 3.0 eV. Daher sind die Probepulse nicht sehr sensitiv für die ohnehin kleinen pumpimpulsinduzierten Änderungen der Besetzungsdichte um die Fermikante herum. Daraus erklären sich die kleinen relativen Änderungen im Bereich von einigen 10^{-4} .

Aus systematischen Untersuchungen der Filmdickenabhängigkeit der zeitaugelösten linearen Reflektivität an Goldfilmen mit geringerer Zeitauflösung ist bekannt [135], daß der 20 nm dicke Film homogen geheizt ist. Der Abfluß der Wärme in das thermisch schlecht leitende Quarzsubstrat ist sehr gering. Daher ist dort die Temperaturerhöhung größer als in den anderen beiden Filmen, was sich in der stärksten Reflektivitätsänderung widerspiegelt. Mit zunehmender Filmdicke wird der Tem-

peraturhub immer kleiner. Dies ist die Ursache für die stetig kleiner werdende Reflektivitätsmodulation. Ebenfalls damit konsistent ist die Dickenabhängigkeit der Anfangsniveaus. Eigentlich sollte bei Modulation des Pumpulses die induzierte Änderung bei negativen Delayzeiten verschwinden. Aufgrund der hohen Repetitionsrate von ca. 90 MHz kommt es aber zu einer akkumulativen Erwärmung des bestrahlten Flecks. Je dünner hierbei wieder der Film, desto höher die mittlere Temperatur, umso höher der pumpinduzierte Anfangslevel.

Ein weiterer Aspekt ist die Signalform. Die optische Anregung der Elektronen geschieht instantan. Das bedeutet aber noch nicht die Etablierung einer Elektronentemperatur. Je geringer die Anregungsdichte im Elektronenbad, umso länger dauert die Thermalisierung der Elektronen untereinander. Die mit dem Ti:Sa-Oszillator erreichten Anregungsdichten sind im Gegensatz zu denen, die man mit verstärkten Laserpulsen erreichen kann, so gering, daß die elektronische Thermalisierung bis zu einer halben Pikosekunde und darüber hinaus andauern kann, was in Einklang mit zeitaufgelösten Photoemissionsexperimenten [136] ist. Daraus resultiert das Minimum der Reflektivität zu Verzögerungszeiten von ca. 500 fs. Danach kann von einem thermischen Gleichgewicht zwischen den Elektronen ausgegangen werden und es erfolgt die thermische Kopplung an das Gitter, die natürlich davor konkurrierend auch schon stattgefunden hat.

C. Gruppengeschwindigkeitsdispersion einiger optischer Materialien und deren Kompensation

Durchläuft ein Laserpuls ein optisches Material so erfahren die Phasen der einzelnen Frequenzkomponenten aufgrund der wellenlängenabhängigen Phasengeschwindigkeiten eine Verschiebung. Die Phasenverschiebung $\Phi(\omega)$ des elektrischen Feldes läßt sich um die Zentralfrequenz ω_0 entwickeln :

$$\Phi(\omega) = \Phi(\omega_0) + \left. \frac{d\Phi}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\Phi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad . \quad (\text{C.1})$$

Wie in [137] gezeigt wird, führen $\Phi(\omega_0)$ und $d\Phi/d\omega|_{\omega_0}$ lediglich zu einer Phasenverschiebung der Trägerfrequenz bzw. zu einer zeitlichen Verschiebung der Pulseinhüllenden. Der Term $\Phi'' := d^2\Phi/d\omega^2|_{\omega_0}$, die Gruppengeschwindigkeitsdispersion, führt hingegen zu einer zeitlichen Pulsverlängerung und zu einer Frequenzordnung innerhalb des Pulses, wobei bei normaler Dispersion die langwelligeren Frequenzanteile den kurzwelligeren vorausseilen. Für die Pulsverlängerung ergibt sich ein Faktor von [137] :

$$\frac{\tau_{\text{out}}}{\tau_{\text{in}}} = \sqrt{1 + \left(4 \ln 2 \frac{\Phi''}{\tau_{\text{in}}^2} \right)^2} \quad , \quad (\text{C.2})$$

wobei τ_{in} die zeitliche Länge des einfallenden und τ_{out} die zeitliche Länge des auslaufenden Pulses ist.

Die Phasenverschiebung, die ein Laserpuls bei dem Durchlaufen eines transparenten Materials der Länge L erfährt, beträgt (siehe z. B. [138]) :

$$\Phi(\omega) = -\frac{\omega L}{c} n(\omega) \quad , \quad (\text{C.3})$$

mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit c und dem Brechungsindex $n(\omega)$ des Materials. Daraus ergibt sich die Gruppengeschwindigkeitsdispersion als zweite Ableitung :

$$\Phi'' = -\frac{L}{c} \left(2 \frac{dn}{d\omega} + \omega \frac{d^2n}{d\omega^2} \right) , \quad (\text{C.4})$$

bzw. in der gebräuchlicheren Form in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ :

$$\Phi'' = \frac{L\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2n}{d\lambda^2} . \quad (\text{C.5})$$

Bei ultrakurzen Laserpulsen können aber auch höhere Ordnungen in Gl.(C.1) beitragen, so daß die Berücksichtigung der Dispersion dritter Ordnung erforderlich wird, für welche gilt :

$$\Phi''' = -\frac{L\lambda^4}{4\pi^2 c^3} \left(3 \frac{d^2n}{d\lambda^2} + \lambda \frac{d^3n}{d\lambda^3} \right) . \quad (\text{C.6})$$

Der Einfluß der Dispersion dritter Ordnung auf die Gruppengeschwindigkeitsdispersion kann mit :

$$|\Delta\Phi''(\omega)| \approx |\Phi'''(\omega) \Delta\omega| \quad (\text{C.7})$$

abgeschätzt werden, wobei $\Delta\omega$ die spektrale Breite des Laserpulses ist, mit :

$$\Delta\omega = 8\pi c \frac{\Delta\lambda}{4\lambda_0^2 - \Delta\lambda^2} . \quad (\text{C.8})$$

Damit genügt die Kenntnis des Brechungsindex und dessen Ableitungen, um die Pulsverlängerung, die bei dem Durchgang durch ein transparentes Medium induziert wird, zu berechnen. Für sehr viele transparente Materialien läßt sich die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex im sichtbaren Teil des Spektrums durch ein Polynom mit einer Genauigkeit von 10^{-5} und besser beschreiben. Dieses wird im folgenden für einige Materialien vorgestellt.

Für künstlichen Quarz, künstlichen Saphir, SF11 und BK7 läßt sich der Brechungsindex durch die sogenannte Sellmeier-Gleichung beschreiben [139] :

$$n = \sqrt{1 + \frac{A\lambda^2}{\lambda^2 - B} + \frac{C\lambda^2}{\lambda^2 - D} + \frac{E\lambda^2}{\lambda^2 - F}} , \quad (\text{C.9})$$

	Quarz	Saphir	SF11	BK7
<i>A</i>	0.6961663	1.0237980	1.73848403	1.03961212
<i>B</i>	0.0046791	0.0037759	0.01360686	0.00600070
<i>C</i>	0.4079426	1.0582640	0.31116897	0.23179234
<i>D</i>	0.0135121	0.0122544	0.06159605	0.02001791
<i>E</i>	0.8974794	5.2807920	1.17490871	1.01046945
<i>F</i>	97.934003	321.36160	121.922711	103.560653

Tabelle C.1: Koeffizienten für die Sellmeier-Gleichung für verschiedene im sichtbaren Spektralbereich transparente Materialien. Die Werte für künstlichen Quarz sind [140], die für künstlichen Saphir sind [141] und die für SF11 und BK7 sind [139] entnommen.

wobei λ in μm einzusetzen ist und A, B, C, D, E und F materialabhängige Konstanten sind. Diese sind in der Tabelle C.1 zusammengefaßt.

Der Brechungsindex von Luft läßt sich im sichtbaren Spektralbereich mit der Cauchyschen Dispersionsformel berechnen [142] :

$$n = A' + \frac{B'}{\lambda^2} + \frac{C'}{\lambda^4} \quad , \quad (\text{C.10})$$

wobei unter Normalbedingungen gilt $A' = 1.000287566$, $B' = 1.3412 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2$ und $C' = 3.777 \cdot 10^{-32} \text{ m}^4$.

Damit lassen sich die Ableitungen des Brechungsindex nach der Wellenlänge und damit die Gruppengeschwindigkeitsdispersion bzw. die zu erwartende zeitliche Verlängerung eines Laserpulses beim Durchtritt durch eines dieser Materialien berechnen. In der Tabelle C.2 sind für die verschiedenen Materialien die längenspezifischen Dispersionen zweiter und dritter Ordnung gemäß den Gleichungen C.5 und C.6 bei 800 nm, sowie der pulsverlängernde Einfluß der Dispersion dritter Ordnung gemäß Gleichung C.7 für einen Puls mit einer spektralen Breite von 45 nm zusammengefaßt.

Es zeigt sich, daß Quarz, abgesehen von Luft, die geringste Dispersion zweiter und dritter Ordnung besitzt. In Abbildung C.1 ist die nach Gleichung C.2 zu erwartende Pulsverlängerung unter Berücksichtigung der Dispersion dritter Ordnung gemäß Gleichung C.7 für die verschiedenen Materialien dargestellt. Die Pulsbreite von 15 fs entspricht dabei einem bandbreitebegrenzten Laserpuls mit einer spek-

	$\Phi''(\text{fs}^2/\text{m})$	$\Phi'''(\text{fs}^3/\text{m})$	$\Delta\Phi''(\text{fs}^2/\text{m})$
Quarz	36162	30571	4052
Saphir	58118	45695	6057
SF11	189633	134527	17831
BK7	44652	35649	4725
Luft	20.426	10.881	1.442

Tabelle C.2: Längenspezifische Dispersionen zweiter und dritter Ordnung für künstlichen Quarz, künstlichen Saphir, SF11, BK7 und Luft gemäß den Gleichungen C.5 und C.6 bei 800 nm. Der pulsverlängernde Einfluß $\Delta\Phi''$ durch die Dispersion dritter Ordnung wurde nach Gleichung C.7 für eine spektrale Breite von 45 nm berechnet.

tralen Breite von 45 nm bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm.

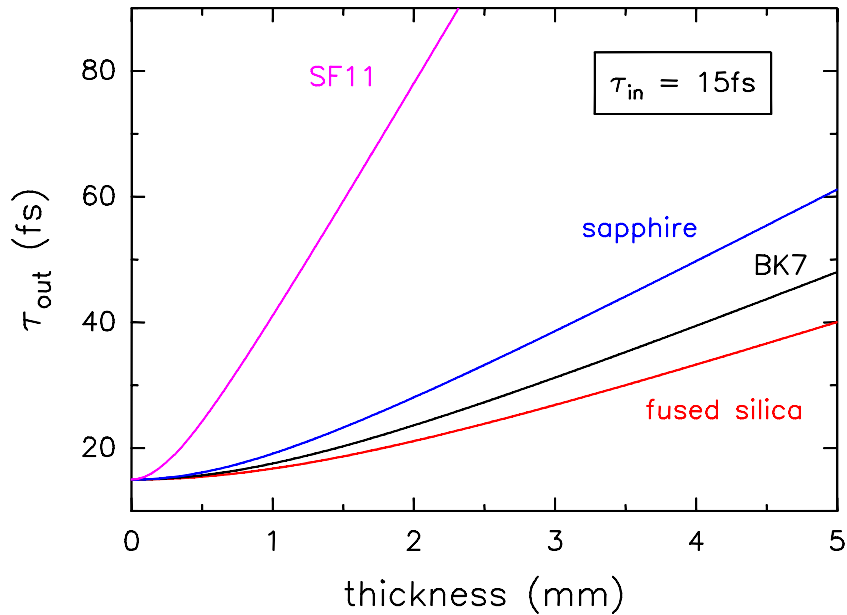


Abbildung C.1: Verlängerung eines 15 fs langen Laserpulses bei 800 nm in Abhängigkeit der Dicke für verschiedene Materialien. Berechnet wurde die Verlängerung gemäß Gl. C.2 unter Berücksichtigung der Dispersion dritter Ordnung nach Gl. C.7.

Die nachfolgenden Abbildungen zeigen nocheinmal zusammenfassend die Brechungsindizes und deren Ableitungen in Abhängigkeit von der Wellenlänge.

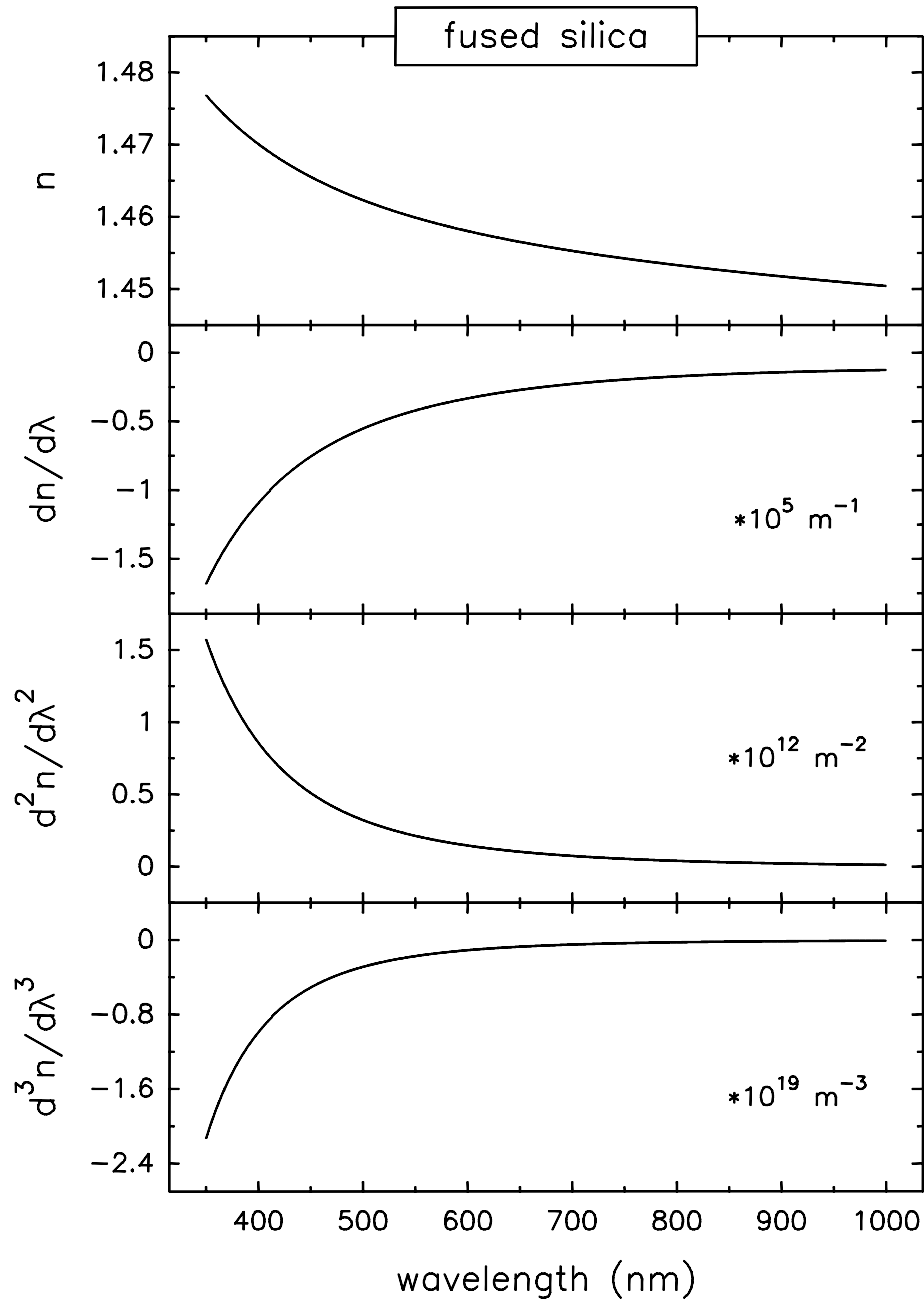


Abbildung C.2: Brechungsindex, sowie erste, zweite und dritte Ableitung davon in Abhängigkeit der Wellenlänge gemäß der Sellmeier-Gleichung C.9 für Quarz mit den entsprechenden Koeffizienten aus Tabelle C.1.

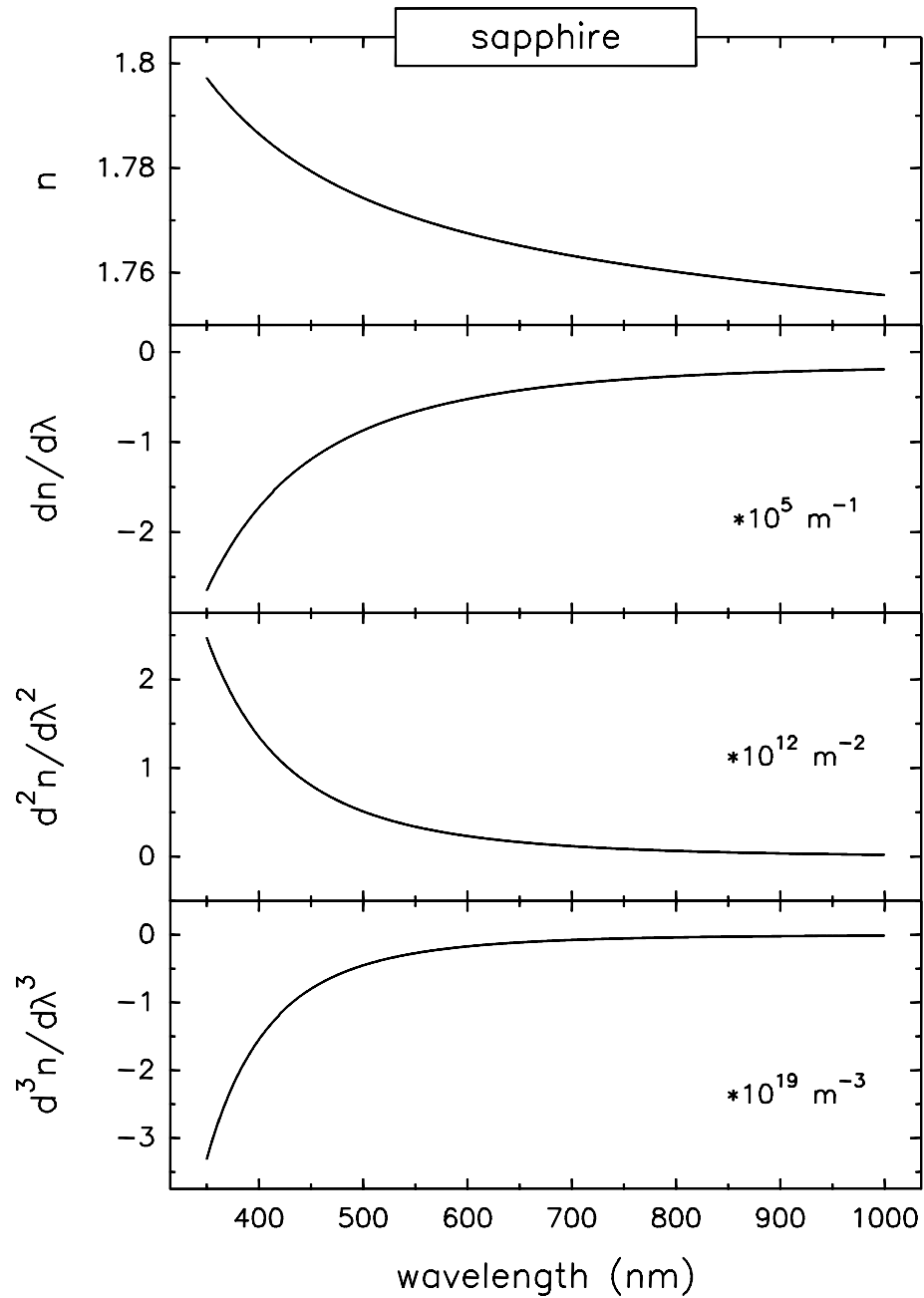


Abbildung C.3: Brechungsindex, sowie erste, zweite und dritte Ableitung davon in Abhängigkeit der Wellenlänge gemäß der Sellmeier-Gleichung C.9 für Saphir mit den entsprechenden Koeffizienten aus Tabelle C.1.

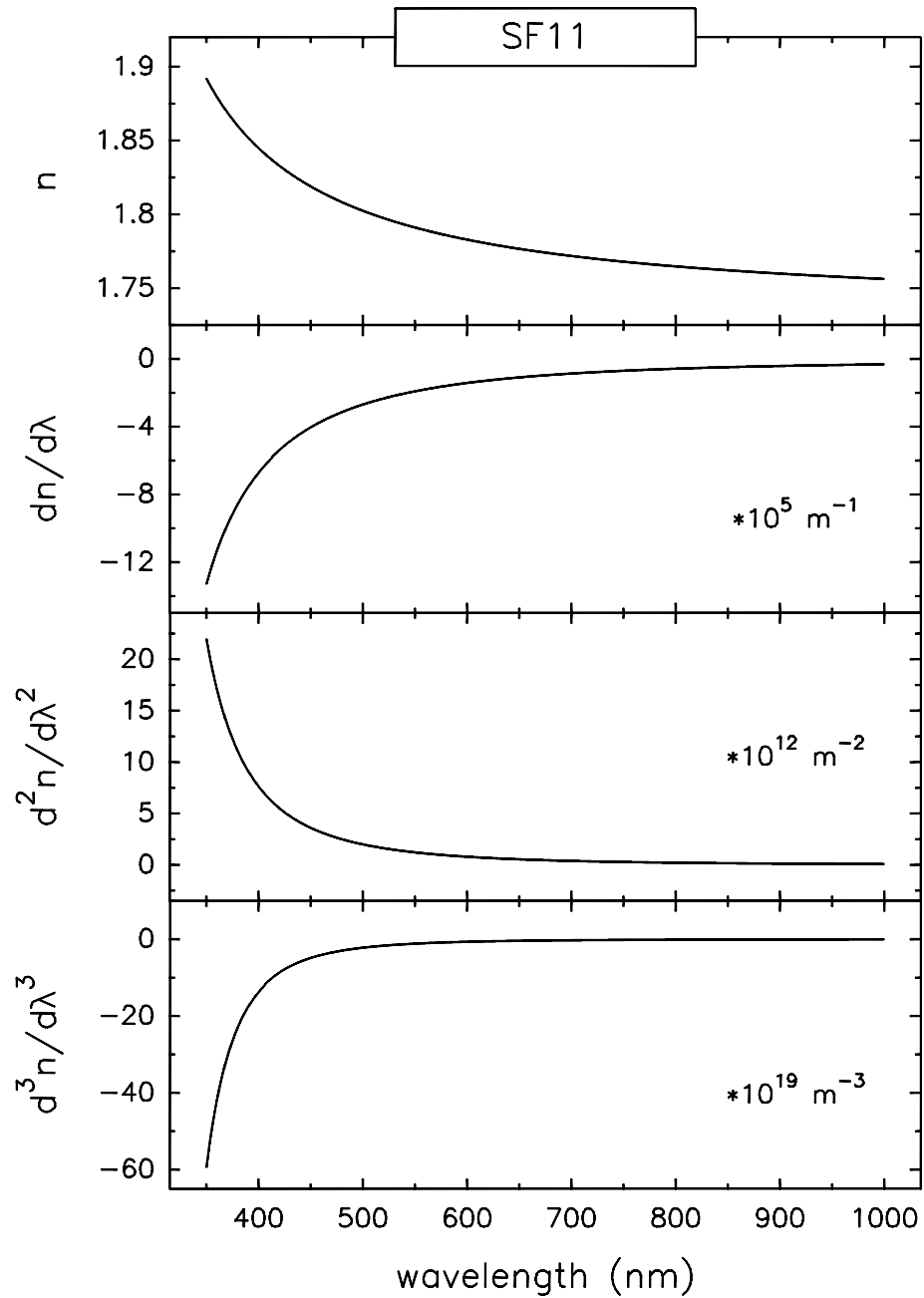


Abbildung C.4: Brechungsindex, sowie erste, zweite und dritte Ableitung davon in Abhängigkeit der Wellenlänge gemäß der Sellmeier-Gleichung C.9 für SF11 mit den entsprechenden Koeffizienten aus Tabelle C.1.

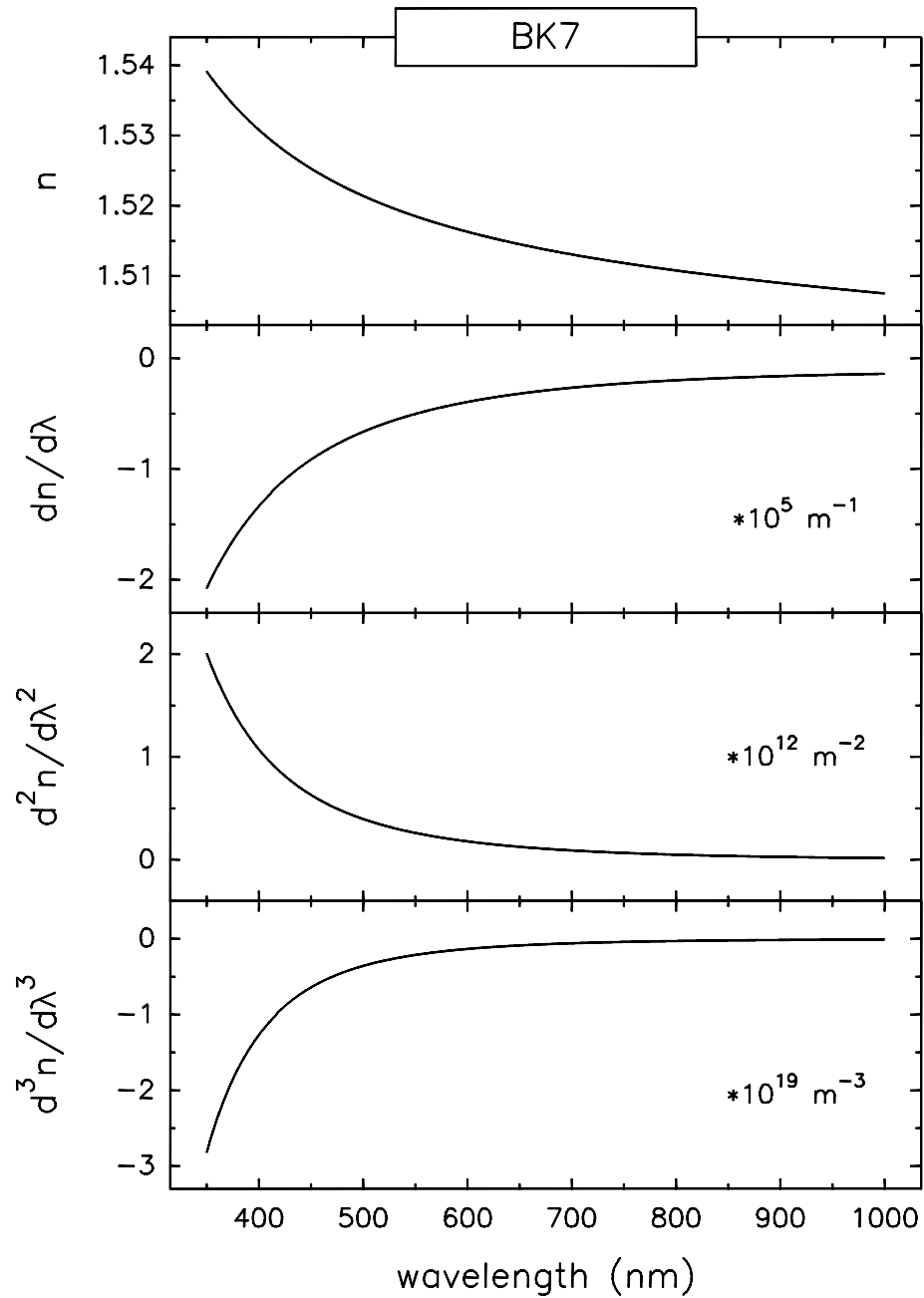


Abbildung C.5: Brechungsindex, sowie erste, zweite und dritte Ableitung davon in Abhängigkeit der Wellenlänge gemäß der Sellmeier-Gleichung C.9 für BK7 mit den entsprechenden Koeffizienten aus Tabelle C.1.

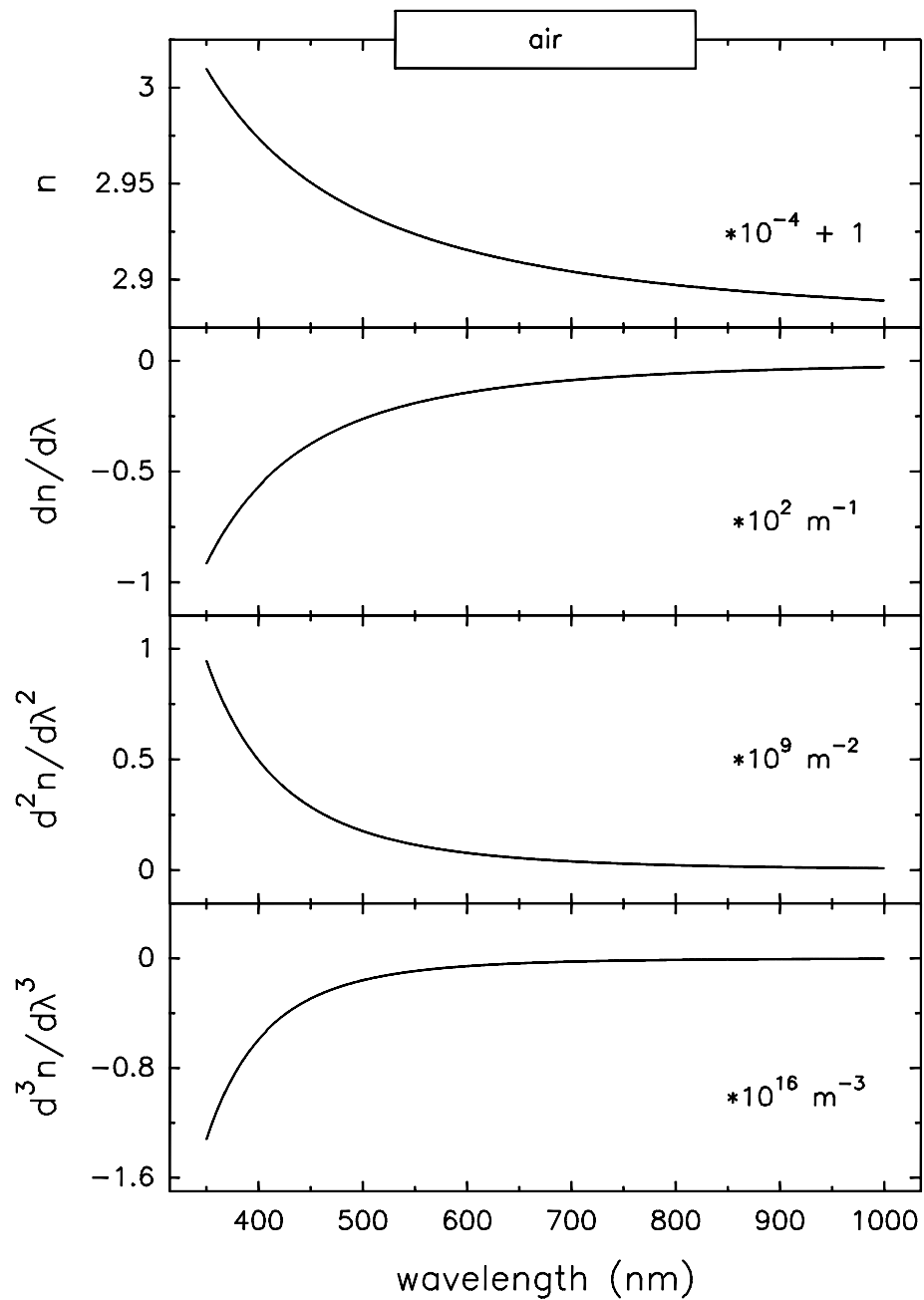


Abbildung C.6: Brechungsindex, sowie erste, zweite und dritte Ableitung davon in Abhängigkeit der Wellenlänge gemäß der Cauchyschen Dispersionsformel C.10 für Luft.

Wie aus der Tabelle C.2 hervorgeht sind die durch die optischen Materialien hervorgerufenen Gruppengeschwindigkeitsdispersionen positiv. Um diese zu kompensieren, muß also negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion zugeführt werden. Dieses ist z. B. mit einem Prismenkompressor möglich, wie in [143] gezeigt wurde. Das Prinzip beruht auf der Wellenlängenabhängigkeit der Winkeldispersion.

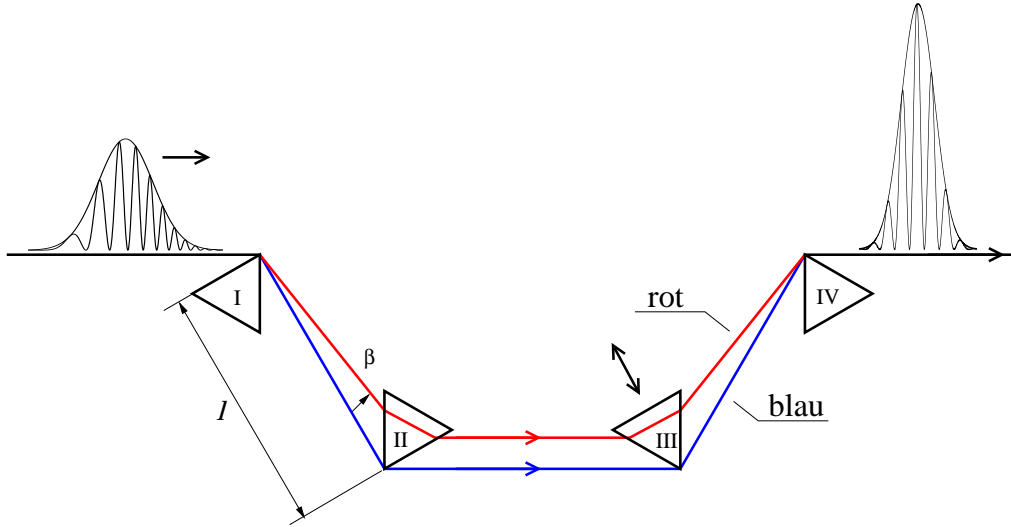


Abbildung C.7: Prinzipskizze eines Prismenkompressors aus vier Brewster-Prismen (I-IV), die im Winkel minimaler Ablenkung angeordnet sind. Durch Änderung der Eintauchtiefe eines der Prismen (hier III) läßt sich die insgesamt negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion des Kompressors stufenlos variieren. Schematisch angedeutet ist ein einlaufender Laserpuls mit einem linearen Chirp, der durch das Durchlaufen des Kompressors kompensiert wird.

Wie in der Abbildung C.7 schematisch gezeigt ist, sind die optischen Weglängen für langwelligeres Licht kürzer als für kurzwelligeres, womit eine zeitliche Verzögerung zwischen den einzelnen spektralen Anteilen erreicht wird. Nach [143] berechnet sich der optische Weg P , der zur Dispersion beträgt, gemäß:

$$P = 2l \cos \beta \quad , \quad (\text{C.11})$$

wobei der Winkel β von der Wellenlänge abhängt. Aus dieser Winkeldispersion ergeben sich die Gruppengeschwindigkeitsdispersion und die Dispersion dritter Ordnung zu [144] :

$$\frac{d^2\Phi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2P}{d\lambda^2} \quad , \quad (\text{C.12})$$

bzw. :

$$\frac{d^3\Phi}{d\omega^3} = -\frac{\lambda^4}{(2\pi)^2 c^3} \left(3 \frac{d^2 P}{d\lambda^2} + \lambda \frac{d^3 P}{d\lambda^3} \right) . \quad (\text{C.13})$$

Für Brewsterprismen, die im Winkel minimaler Ablenkung stehen, ergibt sich damit für die Gruppengeschwindigkeitsdispersion [106] :

$$\frac{d^2\Phi}{d\omega^2} = -\frac{4\lambda^3}{\pi c^2} \cdot \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \cdot l . \quad (\text{C.14})$$

Das heißt, daß der Betrag der maximal möglichen negativen Gruppengeschwindigkeitsdispersion für ein bestimmtes Material durch den Prismenabstand bestimmt wird. Bei dem Durchtritt durch das Prismenmaterial wird wieder positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion induziert, deren Betrag durch die Eintauchtiefe eines der Prismen kontrolliert werden kann (in Abbildung C.7 Prisma III). Damit kann die sich insgesamt ergebende Gruppengeschwindigkeitsdispersion des Kompressors fein abgestimmt werden. Ein linearer Chirp, wie er in der Abbildung C.7 angedeutet ist, kann damit kompensiert werden.

Zusätzlich wird durch den Kompressor gemäß Gleichung C.13 und durch den Durchgang durch das Prismenmaterial Dispersion dritter Ordnung induziert. Eine in einem einlaufenden Laserpuls vorhandene Dispersion dritter Ordnung ließe sich zwar auch durch einen Prismenkompressor kompensieren, aber nicht gleichzeitig zur Dispersion zweiter Ordnung. Da die Gruppengeschwindigkeitsdispersion im allgemeinen aber zu einer stärkeren Pulsverlängerung führt, wird man diese mit dem Prismenkompressor kompensieren. Daher sollten bei allen Anwendungen mit ultrakurzen Laserpulsen nach Möglichkeit Komponenten mit einer kleinen Dispersion dritter Ordnung verwendet werden, z. B. künstlicher Quarz. Unter Umständen nachteilig wirkt sich hierbei die kleine Dispersion zweiter Ordnung aus, die dann bei einem Prismenkompressor zu großen Prismenabständen führt.

Anstelle eines Prismenkompressors kann auch ein Gitterkompressor benutzt werden, welcher weniger Dispersion dritter Ordnung induziert. Gegenüber einem Gitterkompressor bietet ein Prismenkompressor aber den Vorteil weitaus geringerer Leistungsverluste und kontinuierlicher Durchstimmbarkeit der Gruppengeschwindigkeitsdispersion ohne Strahlversatz. Sollte es notwendig sein, so kann mit einer Kombination von Gitter- und Prismenkompressor eine gleichzeitige Kompensation der Dispersion zweiter und dritter Ordnung erreicht werden, wie z. B. in [145] demonstriert ist.

