

Kapitel 3

Der experimentelle Aufbau

Der zur Durchführung der SFG-Experimente verwendete experimentelle Aufbau unterteilt sich im Wesentlichen in drei Komponenten: das Lasersystem, die Ultrahochvakuumkammer mit den zur Präparation der Probe notwendigen Vorrichtungen einschließlich der Hochdruckzelle sowie der Detektionseinrichtung inklusive der Steuerung des Experiments. Alle drei Teile sollen in diesem Kapitel beschrieben werden.

3.1 Das Lasersystem

Zur Erzeugung der notwendigen Lichtstrahlen im sichtbaren und im infraroten Wellenlängenbereich wurde im Rahmen dieser Arbeit ein auf Festkörperlasern basierendes kommerzielles Lasersystem aufgebaut und in Betrieb genommen. Abbildung 3.1 zeigt einen Überblick über die einzelnen Komponenten des Lasersystems. Die Funktion dieser Komponenten wird in den folgenden Abschnitten vorgestellt, soweit diese zum Verständnis des Aufbaus notwendig ist. Auf eine zu detailreiche Darstellung wird dabei verzichtet, da die Physik eines Kurzpulslasers nicht das Thema dieser Arbeit ist. Die zum System gehörenden Betriebsanleitungen [11, 12, 13, 14, 15] stellen alle in dieser Richtung notwendigen Informationen zur Verfügung. Einleitend wird eine Charakterisierung des zentralen Elements der meisten Systemkomponenten, des titandotierten Saphirkristalls gegeben.

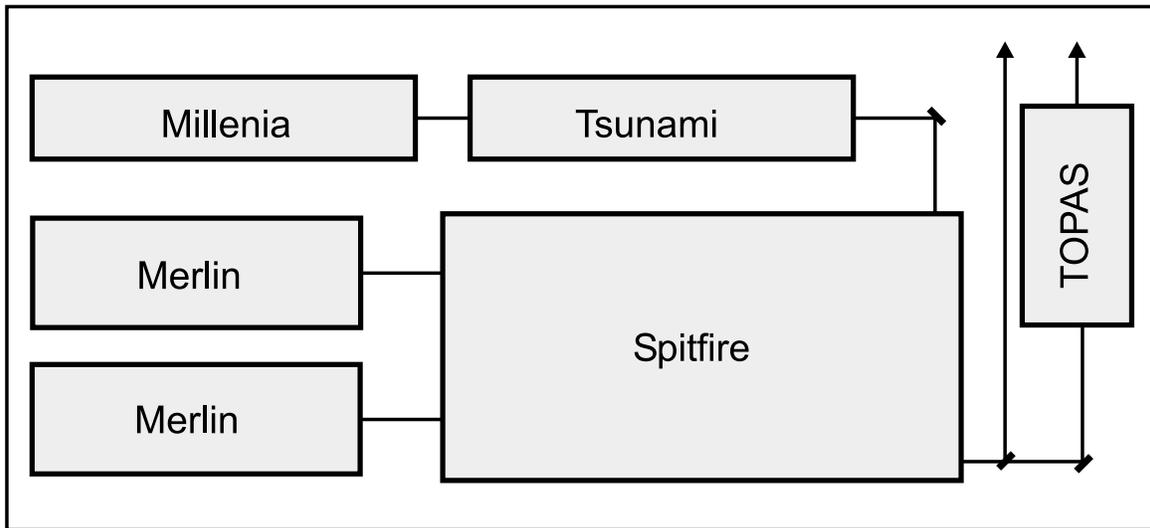


Abbildung 3.1: Überblick über das Lasersystem. Nähere Erläuterungen finden sich im Text.

3.1.1 Der titandotierte Saphirkristall (Ti:Sa)

Ti:Sa-Kristalle spielen bei modernen Festkörperlasern eine entscheidende Rolle als Lasermedien. Aufgrund ihres in Abbildung 3.2 gezeigten sehr breiten Absorptionsspektrums und ihres ebenfalls sehr breiten und zudem noch relativ zur Absorption verschobenen Emissionsspektrums, ebenfalls in Abbildung 3.2 dargestellt, eignen sich diese Kristalle insbesondere zur Konstruktion von Kurzpulslasern. Die seit einigen Jahren im Markt etablierten, technisch ausgereiften und sehr effizient arbeitenden frequenzverdoppelten Nd:YAG- und Nd:YLF-Festkörperlaser lassen sich ideal zum optischen Pumpen der Ti:Sa-Kristalle verwenden. Die spektral sehr breite Emissionscharakteristik des Ti:Sa-Kristalls ist in zweierlei Hinsicht sehr vorteilhaft. Zum Einen ist zur Erzeugung ultrakurzer Pulse ein breites Frequenzspektrum notwendig. Ein Puls mit einer zeitlichen Dauer von 50 fs hat beispielsweise bei einer Zentralwellenlänge von 790 nm eine spektrale Breite von über 20 nm. Zum Anderen lässt ein breites Emissionsspektrum eine Durchstimbarkeit des Lasers zu. Benutzt man zusätzlich noch die Möglichkeiten der Frequenzverdopplung und -verdreifachung, so lässt sich mit einem Ti:Sa basierten Laser ein sehr weiter Spektralbereich vom Ultravioletten bis hin zum nahen Infrarot abdecken. Von dieser Durchstimbarkeit wurde bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente allerdings kein Gebrauch gemacht.

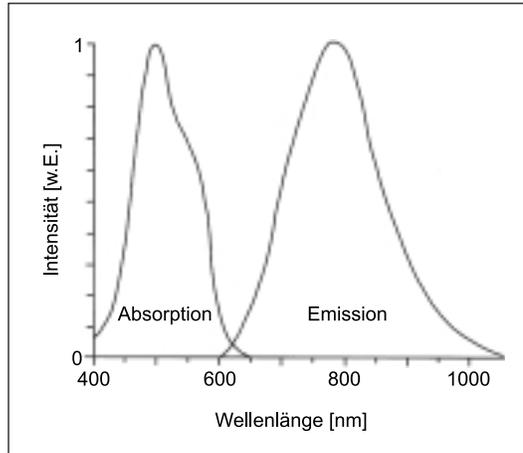


Abbildung 3.2: Das Absorptions- und das Emissionsspektrum des Ti:Sa-Kristalls.

3.1.2 Der Ti:Sa-Oszillator Tsunami mit dem Pumplaser Millenia

Der Oszillator Tsunami

Alle Laserpulse für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden mittels des Ti:Sa basierten Oszillators Tsunami der Firma Spectra Physics erzeugt. In einem zweifach gefalteten Resonator befindet sich der Ti:Sa-Kristall. Dieser wird vom weiter unten beschriebenen Pumplaser Millenia mit 4,6 W kontinuierlichem Laserlicht der Wellenlänge 532 nm optisch gepumpt. Durch den im Resonator befindlichen Akustooptischen Modulator (AOM) werden durch Seitenbänderzeugung viele Lasermoden mit unterschiedlichen Frequenzen erzeugt. Diese Erzeugung erfolgt derart, dass eine Modenkopplung der unterschiedlichen Frequenzmoden möglich ist. Durch diese Modenkopplung werden Pulse von einer Pikosekunde Dauer erzeugt. Die zu diesem Zwecke ebenfalls notwendige Kompensation der Dispersion der Gruppengeschwindigkeit des Lichtes wird durch das statt des hochreflektierenden Endspiegels in den Resonator eingebauten Gires-Tournois-Interferometers realisiert. Die Zentralwellenlänge des Laserpulses lässt sich durch das Verdrehen des doppelbrechenden Filters (Bifi) verändern. Nur die gewünschte Wellenlänge wird durch den Bifi in der notwendigen Ebene polarisiert, um an den 10 im Resonator befindlichen Bauteilen mit in Brewsterwinkeln angebrachten Oberflächen keine entscheidende Abschwächung zu erfahren. Im Rahmen dieser Arbeit wurde stets die Wellenlänge des Emissionsmaximums des Ti:Sa-Kristalls

verwendet, diese beträgt 790 nm. Die Wiederholrate des Oszillators wird durch die Resonatorlänge determiniert und liegt bei etwa 82 MHz. Die Energie der erzeugten Laserpulse liegt bei ca. 10 nJ.

Der Pumplaser Millenia

Der kontinuierliches (cw-) Laserlicht emittierende Laser Millenia der Firma Spectra Physics ist ein von Laserdioden gepumpter Neodym-Yttrium-Vanadat- (Nd:YVO_4 -) Festkörperlaser. Der mit Licht der Wellenlänge 640 nm gepumpte Nd:YVO_4 -Kristall emittiert in einem Resonator Licht der Wellenlänge 1064 nm. Dieses wird innerhalb des Resonators mittels eines Lithium-Triborat- (LBO-) Kristalls frequenzverdoppelt und das verdoppelte Licht aus dem Resonator ausgekoppelt. Die Wellenlänge des ausgekoppelten Lichts, welche 532 nm beträgt, liegt nahe dem Absorptionsmaximum des Ti:Sa-Kristalls (siehe Abbildung 3.2).

3.1.3 Das Verstärkersystem Spitfire und der Pumplaser Merlin

Der Pumplaser Merlin

Zum optischen Pumpen der beiden im Verstärkersystem Spitfire eingebauten Ti:Sa-Kristalle wird jeweils ein Pumplaser Merlin der Firma Spectra Physics verwendet. Dieser Laser ist ein Neodym-Yttrium-Lithiumfluorid (Nd:YLF -) Festkörperlaser, der mittels einer im Resonator vorhandenen Güteschaltung Laserpulse mit einer Dauer von 250 ns emittiert. Diese Pulse werden im Resonator frequenzverdoppelt. Die daraus resultierende emittierte Wellenlänge des Lasers ist 527 nm. Die Wiederholrate des Lasers liegt bei 1000 Hz, die Energie pro Puls beträgt 12 mJ. Gepumpt wird dieser Laser von einer Hochdruckgasentladungslampe, die im kontinuierlichen Betrieb genutzt wird und eine Lebensdauer von 200 Stunden hat, was einen Lampenwechsel etwa einmal im Monat notwendig macht.

Das Verstärkersystem Spitfire

Da die Pulsenergie der vom Ti:Sa-Oszillator Tsunami emittierten Laserpulse für die in dieser Arbeit dargestellten Experimente um viele Größenordnungen zu klein ist,

wird ein sogenanntes chirped-pulse-amplifier- (CPA-)¹ Pulsverstärkersystem verwendet. Dieses besteht im Wesentlichen aus vier Teilen, welche im Folgenden erklärt werden.

- **Der Pulsdehner**

Je kürzer ein Laserpuls ist, desto grösser ist seine Energiedichte pro Zeiteinheit. Pulse mit einer Dauer von wenigen Pikosekunden in den hier benötigten Energiebereich zu verstärken, ist aufgrund der Zerstörschwelle des zu dieser Verstärkung genutzten Ti:Sa-Kristalls nicht möglich. Daher wird der Puls zeitlich gedehnt². Dies geschieht durch Aufspaltung des Laserpulses in seine spektralen Anteile mittels eines Gitters, der Propagation dieser Anteile um unterschiedliche Wegstrecken und dem nachherigen Zusammensetzen der zeitverschobenen Anteile zu einem Puls, mit Hilfe desselben Gitters. Der resultierende Lichtpuls hat nun eine Dauer von etwa 250 ps.

- **Der regenerative Verstärker**

Die entscheidende Verstärkung des Eingangslaserpulses von 10 nJ auf etwa 1,2 mJ wird durch den Einsatz eines regenerativen Verstärker realisiert. Dieser Verstärker besteht im Wesentlichen aus einem Resonator mit zwei hochreflektierenden Endspiegeln und einem innerhalb dieses Resonators angebrachten Ti:Sa-Kristalls. Dieser Kristall wird von einem oben beschriebenen Pump Laser Merlin optisch gepumpt. Sind alle weiteren Komponenten, die sich noch innerhalb des Resonators befinden, deaktiviert, arbeitet dieser Resonator als kontinuierlicher Laser. Durch eine Anordnung zweier Pockelszellen, einer $\lambda/2$ -Platte und eines polarisierenden Strahlteilers wird jeweils ein Laserpuls aus dem Oszillator nach der zeitlichen Dehnung in den regenerativen Verstärker eingekoppelt, in mehreren Resonatorumläufen verstärkt und schließlich ausgekoppelt. Dabei wird von der Tatsache Gebrauch gemacht, dass der im Resonator des Verstärkers umlaufende Puls in seiner zeitlichen und räumlichen Dynamik dem eingekoppelten Laserpuls folgt, also eine Dauer von 250 ps hat. Dieses Verfahren wird seeding³ genannt. Der regenerative Verstärker wird mit einer Wiederholfrequenz von 500 Hz be-

¹Für das englische Wort „chirp“, das soviel wie Zwitschern (eines Vogels) bedeutet, gibt es in diesem Zusammenhang keine adäquate deutsche Übersetzung.

²Die Möglichkeit der räumlichen Ausdehnung des Pulses besteht theoretisch auch, ist aber wenig praktikabel.

³Abgeleitet vom englischen „to seed“: sähen.

trieben, d.h. es wird nur bei jedem zweiten Pumpuls ein Oszillatorpuls in den Resonator eingekoppelt. Dies hängt mit einer Eigenschaft des Pulskompressors zusammen und wird im entsprechenden Abschnitt erläutert.

- **Der Mehrpass-Verstärker**

Um eine weitere Verstärkung des vom regenerativen Verstärker erzeugten Laserstrahles zu erreichen, ist eine weitere Verstärkerstufe implementiert. Diese besteht ebenfalls aus einem Ti:Sa-Kristall, der von einem Pumpulaser Merlin gepumpt wird. In dieser Verstärkerstufe wird allerdings kein weiterer Resonator eingesetzt. Der Laserstrahl wird lediglich dreimal durch den Ti:Sa-Kristall geführt, wobei der Strahl vor dem ersten Durchgang in den Kristall fokussiert wird und danach jeweils eine optische 4f-Abbildung des vom Kristall kommenden Laserpulses zurück in den Kristall vorgenommen wird, um ein gleichbleibendes Strahlprofil zu gewährleisten. Bei diesen drei Durchgängen durch den Kristall wird der Strahl verstärkt und hat nach dieser Verstärkerstufe eine Pulsenergie von etwa 3.4 mJ.

- **Der Pulskompressor**

Nachdem der Laserpuls die notwendige Energie hat, muss er wieder auf seine ursprüngliche Dauer komprimiert werden. Der dazu verwendete Pulskompressor ist prinzipiell aufgebaut wie der Pulsdehner, wirkt aber bezüglich der spektralen Komponenten des Pulses genau entgegengesetzt. Durch Variation des Wegs, den die spektralen Komponenten des Laserpulses zurücklegen müssen, lässt sich eine möglichst gute Komprimierung erzielen. Die Pulsdauer des Laserpulses, der den Pulskompressor verlässt, ist etwa doppelt so groß wie die Dauer des Oszillatorpulses, was auf nichtlineare Pulsverlängerungen zurückzuführen ist. Das Kompressorgitter besteht aus goldbeschichtetem Kunststoff, der auf ein Glassubstrat aufgebracht ist. Trotz eines bereits relativ großen Durchmessers des erzeugten Laserstrahls von etwa 5 mm ist die mittlere Laserleistung so groß, dass es bei einem Betrieb des Lasersystems bei 1000 Hz zur thermischen Deformation des Gitters kommt, die wiederum Auswirkungen auf das Profil des Laserstrahls und seine Pulslänge haben. Da die Effizienz des, im nächsten Abschnitt beschriebenen, optisch-parametrischen Verstärkers sehr empfindlich auf diese Strahldeformationen reagiert, kann das System nur mit den bereits weiter oben erwähnten 500 Hz betrieben werden, um eine möglichst hohe Pulsenergie

des infraroten Laserlichts zu erzielen. Die Effizienz des Pulscompressors liegt bei ca. 60%, so dass die Austrittspulsenergie nach dem Pulscompressor etwa 2 mJ beträgt.

3.1.4 Der optisch-parametrische Verstärker TOPAS

Zur Erzeugung des für die Experimente notwendigen Infrarotlichts wurde der optisch-parametrische Verstärker (OPA) TOPAS der Firma Light Conversion verwendet, der über mehrere nichtlinear-optische Prozesse dieses Licht generiert. In einem Bariumborat- (BBO-) Kristall wird zunächst aus einem kleinen Anteil des aus dem Verstärkersystem in den OPA eintretenden Pumpstrahls eine sogenannte Superlumineszenz, ein weisses Licht mit definierten Phasenbeziehungen zwischen den spektralen Anteilen, erzeugt. Aus diesem wird mittels eines verstellbaren Gitters eine Wellenlänge im nahen infraroten Bereich des Spektrums, etwa zwischen 1000 nm und 2800 nm, ausgewählt. Diese wird über den nichtlinear-optischen Prozess der optisch-parametrischen Verstärkung im selben Kristall unter Mitwirkung des Großteils des Pumpstrahls verstärkt. Dabei entsteht neben einem starken Strahl dieses infraroten Lichts, dem sogenannten Signal, gleichzeitig ein Strahl mit der Differenzfrequenz zwischen den Frequenzen des fundamentalen und des ausgewählten Lichts, der sogenannte Idler. Diese mit jeweils etwa 100 μJ ungefähr gleichstarken Strahlen werden in einen Silberthiogallat-(AGS-) Kristall geführt. Über einen weiteren nichtlinear-optischen Effekt, die Differenzfrequenzerzeugung, werden hier Laserpulse im mittleren Infraroten erzeugt. Die Wellenlänge dieses Strahls lässt sich zwischen 2800 nm (3571 cm^{-1}) und 6000 nm (1667 cm^{-1}) variieren, wobei die Pulsenergie bei maximal 10 μJ liegt. Das Durchstimmen des OPA wird durch Verfahren aller relevanten Komponenten durch Schrittmotoren realisiert und lässt sich nach einer Kalibrierung mittels eines Computers steuern.

3.1.5 Die optischen Strahlengänge

Zur korrekten Überlagerung des sichtbaren und des infraroten Laserlichts auf der Probe ist es notwendig, diese beiden Laserstrahlen in definierter Weise auf den Probenkristall zu führen. Darüber hinaus soll die Möglichkeit gegeben sein, den Strahlengang des infraroten Laserlichts komplett mit trockenem Stickstoff spülen zu können, um

10^3 mbar zu realisieren, ohne das UHV im oberen Bereich zu beeinträchtigen. Die dafür notwendigen Einrichtungen und die beiden genannten Bereiche der UHV-Kammer werden in den folgenden Abschnitten beschrieben.

Der Präparationsbereich

Der Präparationsbereich der UHV-Kammer entspricht dem in der Arbeitsgruppe üblichen Standard. Zum Verfahren der Probe dient ein Manipulator mit 400 mm vertikalem Hub, je ± 12 mm Verschiebung in beiden horizontalen Richtungen und der Möglichkeit der Rotation um die vertikale Achse um 360 Grad. Die Probe kann mit flüssigem Stickstoff auf 85 K gekühlt und mittels resistiver Heizung auf 1300 K erhitzt werden. Eine Ionenkanone und ein Dosierventil sind in die Kammer eingebaut. Zur Charakterisierung der Probe sind eine Apparatur zur niederenergetischen Elektronenbeugung (LEED) und zur Messung von Augerelektronen sowie ein Quadrupolmassenspektrometer vorhanden. Darüber hinaus ist zur Präparation von metallischen Nanopartikeln auf der Probenoberfläche ein Elektronenstrahlverdampfer vorgesehen. Dieser kann mit Hilfe eines ebenfalls in der Kammer vorhandenen Schwingquarzes geeicht werden. Der Basisdruck der Kammer beträgt $1 \cdot 10^{-10}$ mbar.

Der Messbereich

Abbildung 3.6 zeigt die eigentliche Messkammer. Zwei CaF_2 -Fenster ermöglichen den Ein- und Austritt der Laserstrahlen bzw. des SFG-Signals. An die Kammer ist ein Dosierventil angeschlossen. Zur Druckmessung sind in der Kammer ein Ionisationsmanometer, ein Viskositätsmanometer sowie, durch ein UHV-dichtes Ventil von der Kammer getrennt, zwei Kapazitätsmanometer zur Messung von Drücken bis zu 10^3 mbar angeschlossen. Auf einer Linearverschiebung ist zusätzlich ein GaAs-Kristall gehalten, der an die Probenposition gefahren werden kann, um Justage- und Kalibriermessungen vornehmen zu können. Im UHV-Betrieb hat die Messkammer einen Basisdruck von $1 \cdot 10^{-10}$ mbar.

Die Realisierung der Hochdruckkompatibilität

Abbildung 3.7 zeigt einen Schnitt durch die Messkammer einschließlich der darüber befindlichen Vorrichtung zur Abdichtung der Messkammer gegenüber der Präpara-

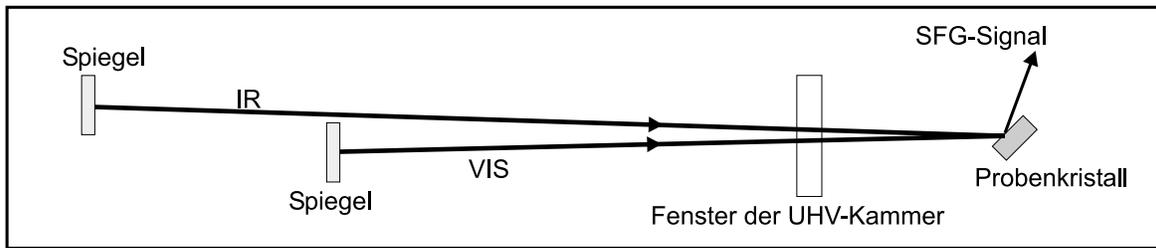


Abbildung 3.4: Der letzte Teil der optischen Strahlengänge: Infraroter (oben) und sichtbarer (unten) Laserstrahl verlaufen in einer vertikalen Ebene.

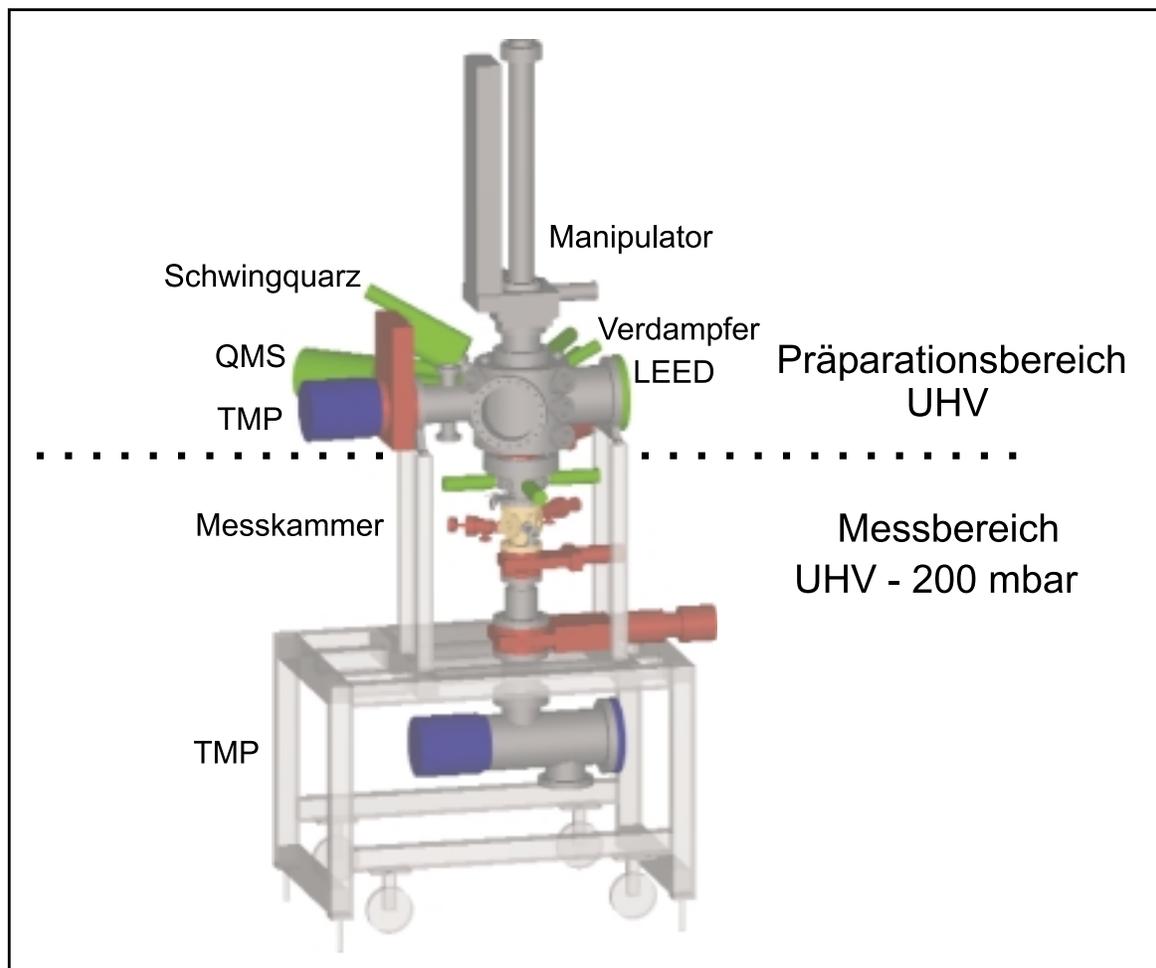


Abbildung 3.5: Die UHV-Kammer mit ihren zwei Bereichen. QMS: Quadrupolmassenspektrometer; TMP: Turbomolekularpumpe (aus [16]).

tionskammer. Ähnlich einer differenziell gepumpten Drehdurchführung enthält diese Vorrichtung drei Dichtungsringe aus Teflon, in die der außen polierte Kühlfinger eingefahren wird. Zwischen den Teflondichtungen befinden sich jeweils Zwischenräume, die separat gepumpt werden können. Eine genauere Beschreibung der Vorrichtung findet sich in [16, 81].

3.3 Das Detektionssystem

Das Detektionssystem ist im Rahmen dieser Arbeit konzipiert und aufgebaut worden und, im Gegensatz zum Lasersystem, in dieser Konfiguration nicht kommerziell erhältlich. Daher soll es im Folgenden detailliert dargestellt werden. Die prinzipielle Funktionsweise der zur Steuerung des Experiments notwendigen und ebenfalls selbstentwickelten Computerprogramme wird ebenfalls erläutert.

3.3.1 Die Grundlagen der Detektion

Aus zum Zeitpunkt des Beginns dieser Arbeit vorliegenden Veröffentlichungen, z. B. [17, 18, 91] war bekannt, dass mit sehr geringen Signalintensitäten, im Bereich einiger hundert Photonen pro eingestrahltm Laserpuls, zu rechnen ist. Daher ist bei der Entscheidung für eine geeignete Nachweiseinrichtung die Wahl auf ein Photomultiplierbasiertes Detektionssystem gefallen. Dieser Photomultiplier wird im Modus des Einzelphotonenzählens betrieben, welcher weiter unten näher erläutert wird. Abbildung 3.9 zeigt eine Übersicht über alle, in den folgenden Abschnitten genauer beschrieben, Komponenten der Detektion.

Das Einzelphotonenzählen

Ein Photomultiplier kann prinzipiell in zwei Modi betrieben werden. Im sogenannten Proportionalmodus ist die am Ausgang gesammelte Ladung proportional zu der eingefallenen Zahl von Photonen. Dieser Modus wird bei relativ hohen Photonenströmen benutzt. Bei einer sehr kleinen Zahl nachzuweisender Photonen wird der Photomultiplier im Modus des Einzelphotonenzählens betrieben. Dabei löst ein detektiertes

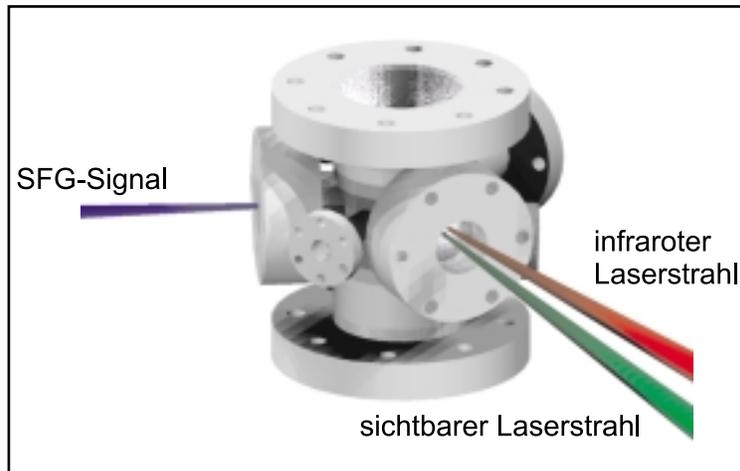


Abbildung 3.6: Die Messkammer ohne Anbauten (aus [16]).

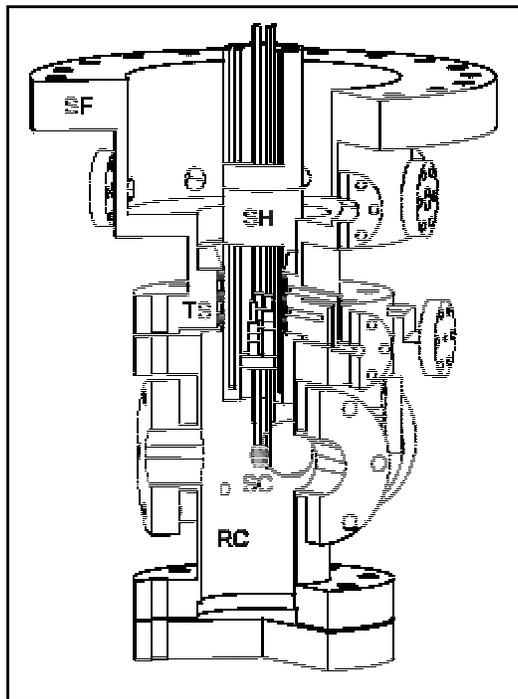


Abbildung 3.7: Die Realisierung der Hochdruckkompatibilität. Die im Dichtungsflansch (SF) eingebauten Teflondichtungen (TS) dichten mit Hilfe des Kühlfingers (SH) die Messkammer (RC) gegen die Präparationskammer ab. Der Probenkristall (SC) befindet sich auf Höhe der beiden Fenster (aus [16]).

Photon⁶ im Multiplier eine Elektronenlawine aus, die einen messbaren Ladungspuls am Ausgang liefert. Pro auf die Probe einfallendem Laserpuls kann also maximal ein Ereignis nachgewiesen werden. Dies entspricht einer maximalen Zählrate von 1/Puls. Je mehr sich die gemessene Zählrate 1/Puls nähert, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass tatsächlich mehr als ein Ereignis stattgefunden hat. Diese Wahrscheinlichkeit lässt sich mittels einer Poissonverteilung beschreiben. Diese lautet [19]

$$p_k = \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda}, \quad (3.1)$$

wobei p_k die Wahrscheinlichkeit, dass k Photonen pro Laserpuls eintreffen, und λ der sogenannte Parameter der Verteilung ist. Die Intensität des einfallenden Signals ist die Summe der Zahl der Photonen pro Laserpuls, gewichtet mit den Wahrscheinlichkeiten p_k ihres Auftretens, also

$$I = \sum_{k=0}^{\infty} p_k \cdot k = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda} \cdot k. \quad (3.2)$$

Da bei Einzelphotonennachweis auch mehrere einfallende Photonen k nur zu einem Ereignis führen, hat eine Photonenzahl $k \geq 1$ keinen anderen Einfluss als $k = 1$. Für die vom Photomultiplier detektierbare Intensität gilt daher die Gleichung

$$I_Z = \sum_{k=0}^{\infty} p_k \cdot k_n = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda} \cdot k_n \quad (3.3)$$

mit

$$k_n = \begin{cases} 1 & \text{für } k > 0 \\ 0 & \text{für } k = 0 \end{cases}.$$

Die tatsächliche gemessene Zählrate Z ist jedoch Gleichung 3.3 abzüglich der Wahrscheinlichkeit p_0 für das Eintreffen eines Photons⁷

$$Z = \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda} \right) - e^{-\lambda} = 1 - e^{-\lambda}. \quad (3.4)$$

Gleichung 3.2 kann nun wie folgt umgestellt werden:

$$I = \frac{\lambda^0 \cdot 0}{k!} + \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\lambda^k k}{k!} e^{-\lambda}, \quad (3.5)$$

⁶Die Quanteneffizienz des Photomultipliers ist hier als Teil der Detektionswahrscheinlichkeit des gesamten Detektionssystems interpretiert, ein detektiertes Photon ist mit der Wahrscheinlichkeit eins nachgewiesen worden.

⁷Unter Verwendung der Mac Laurinschen Formel [19].

mit der Ersetzung $k'=k-1$ ergibt sich

$$I = e^{-\lambda} \sum_{k'=0}^{\infty} \frac{\lambda^{k'} \cdot \lambda}{k'!} = \lambda. \quad (3.6)$$

Mit Gleichung 3.4 folgt daraus, dass das tatsächlich am Photomultiplier angekommene Signal I und die daraus resultierende Zählrate Z in der Beziehung

$$Z = 1 - e^{-I} \quad (3.7)$$

stehen. Um also das wahre Signal aus der gemessenen Zählrate zu errechnen, müssen alle gemessenen Zählraten in die Funktion

$$I = -\ln(1 - Z) \quad (3.8)$$

eingesetzt werden. Geht die gemessene Zählrate gegen 1/Puls, tritt eine Sättigung ein. Es ist daher darauf zu achten, dass die gemessenen Zählraten einen Wert von 0.4/Puls nicht überschreiten, um die Veränderung der Zählrate durch die Korrektur kleiner als 20% zu halten. Dies lässt sich durch entsprechende Wahl der Intensitäten der auf die Probe einfallenden Laserstrahlen einstellen.

Die Trennung von Signal und Störeinflüssen

Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten hat sich ein Verhältnis von Photonen zählrate n_{aus} zu auf die Probe geleiteten Photonen n_{ein} von $\frac{n_{aus}}{n_{ein}} = 10^{-12}$ ergeben. Eine Detektion des Signal ist nur möglich, da sich Signal und Störeinflüsse sehr gut voneinander trennen lassen. Die drei Möglichkeiten der Trennung von Signal und Störeinflüssen sollen nun beschrieben werden.

Die räumliche Trennung des Signals von den einfallenden Strahlen

Die kritischste Störgröße während der Messung ist der einfallende sichtbare Laserstrahl. Dieser wird vom Probenkristall reflektiert und gelangt nahezu unvermindert in die Richtung der Detektion und ist um 10 Größenordnungen stärker als das Signal. Bei der Summenfrequenzerzeugung gilt für das Signal neben dem Gesetz der Energieerhaltung, welches die zu messende Wellenlänge determiniert, auch die Impulserhaltung⁸.

⁸Siehe dazu Abschnitt 2.1.

Da beide einfallenden Laserstrahlen in einem Winkel von $\phi = 2^\circ$ zueinander einstrahlt werden, gilt für die Richtung des Signals relativ zum einfallenden sichtbaren Strahl:

$$\vec{P}_{Signal} = \vec{P}_{IR} + \vec{P}_{VIS} \quad (3.9)$$

mit

- \vec{P}_{Signal} : Impulsvektor des Signalstrahls,
- \vec{P}_{IR} : Impulsvektor des einfallenden infraroten Laserstrahls und
- \vec{P}_{VIS} : Impulsvektor des einfallenden sichtbaren Laserstrahls.

In der vom infraroten und dem sichtbaren Strahl aufgespannten Ebene, lässt sich Gleichung 3.9 in Koordinaten des einfallenden sichtbaren Laserstrahls umschreiben zu

$$\vec{P}_{Signal} = \frac{E_{VIS}}{c} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{E_{IR}}{c} \cdot \begin{pmatrix} \cos(\phi) \\ \sin(\phi) \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

mit den jeweiligen Photonenenergien E_{VIS} bzw. E_{IR} . Diese Abweichung des Signalstrahls sowohl vom sichtbaren als auch vom infraroten einfallenden Strahl lässt sich ausnutzen, um durch eine geeignete Blende nur das Signal passieren zu lassen. Abbildung 3.8 verdeutlicht dies.

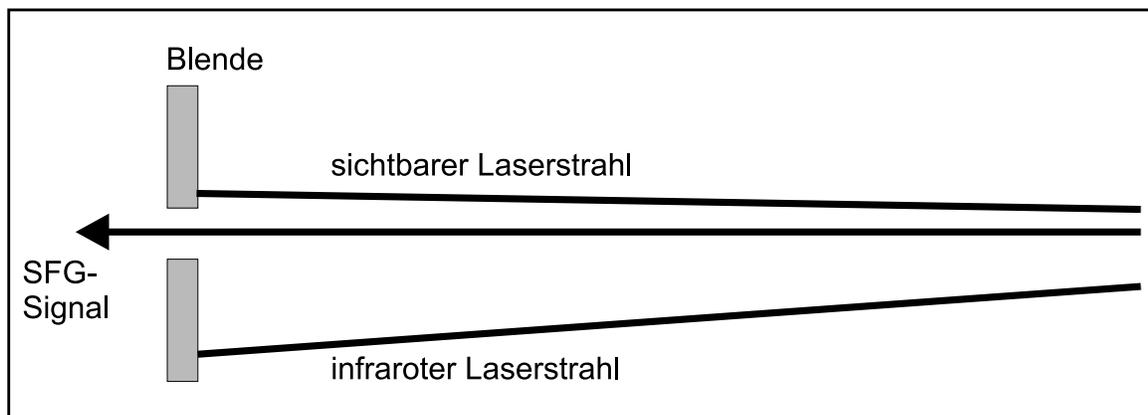


Abbildung 3.8: Die räumliche Trennung des SFG-Signals von den einfallenden Laserstrahlen durch eine Blende.

Die spektrale Selektion des Signals

Da die räumliche Trennung des SFG-Signals insbesondere vom einfallenden sichtbaren Laserstrahl nicht vollständig gelingt, ist eine spektrale Selektion des Signals vorgesehen. Die Photonenenergie des Signals ist stets höher als die beider einfallender Strahlen. Daher kann mittels optischer Kantenfilter, deren Filterkante zwischen der Wellenlänge der SFG-Signale und der des einfallenden sichtbaren Lichts liegt, das Verhältnis der Zahl der Signalphotonen zu der Zahl der unerwünschten Photonen stark verbessert werden. Um die Selektivität der Detektion noch zu erhöhen, ist zusätzlich vor dem Photomultiplier ein Gittermonochromator installiert.

Die zeitliche Selektion des Signals

Da die einfallenden Laserpulse auf dem Probenkristall im Raum und auch in der Zeit überlappen müssen, und ein Puls nur eine Dauer von etwa 2 ps hat, ist ein definiertes Zeitverhalten des Detektionssystems von vornherein notwendig. Dieses lässt sich nun auch nutzen, um ein sehr schmales Zeitfenster zu definieren, in dem ein Signal erwartet werden kann. Da nur innerhalb dieses Zeitfensters vom Photomultiplier kommende Pulse akzeptiert werden, kann man das Signal-zu-Rausch-Verhältnis entscheidend verbessern.

Der inhärente Strahlversatz

Aus Gleichung 3.9 lässt sich ersehen, dass der Signalstrahl räumlich von den von der Probe reflektierten einfallenden Strahlen getrennt ist. Diese räumliche Variation ist aber nicht konstant, sondern hängt von der Energie beider einfallender Laserstrahlen ab. Da in allen hier behandelten Experimenten die Energie des sichtbaren Lichtes konstant gehalten wird, hängt die Veränderung der örtlichen Trennung von der Energie des infraroten Lichtes ab. Veränderlich ist dabei der Winkel des Signalstrahls relativ zum Strahl des sichtbaren Lichts. Durch die Propagation des Lichtes bis zur Detektionsebene um ca. 500 mm entsteht so eine Variation sowohl des Auftreffpunktes des Signalstrahls auf dieser Ebene als auch des Auftreffwinkels relativ zu dieser Ebene. Diesem Effekt muss zur Optimierung der Detektion Rechnung getragen werden. Insbesondere ist zu bedenken, dass der Eintrittsspalt des Monochromators keinerlei horizontale Abweichungen des eintreffenden Lichtstrahls zulässt. In vertikaler Rich-

tung dagegen kann ein Bereich von 10 mm überstrichen werden, ohne das sich die Intensität des aus dem Monochromator austretenden Signals (wohl aber Position und Winkel) verändert. Dies erklärt die im Abschnitt 3.1.5 erwähnte Anordnung der auf den Probenkristall einfallenden Strahlen in einer vertikalen Ebene.

3.3.2 Die Realisierung der einzelnen Komponenten der Detektion

Abbildung 3.9 zeigt eine Übersicht über das Detektionssystem. Über Spiegel 1 und Spiegel 2 wird der Signalstrahl auf die Eingangsebene des Monochromators geleitet. Dabei passiert er eine Blende, die den sichtbaren Laserstrahl ausblendet und vier Kantenfilter, deren Transmission oberhalb von 730 nm jeweils kleiner als ein Prozent ist. Der Monochromator ist ein abbildender Czerny-Turner-Gittermonochromator mit einer 4f-Abbildung, einer Brennweite von 250 mm, einem Gitter mit 1200 Linien pro mm und einer minimalen Bandbreite von 0.02 nm. Die aktive Fläche des benutzten Photo-

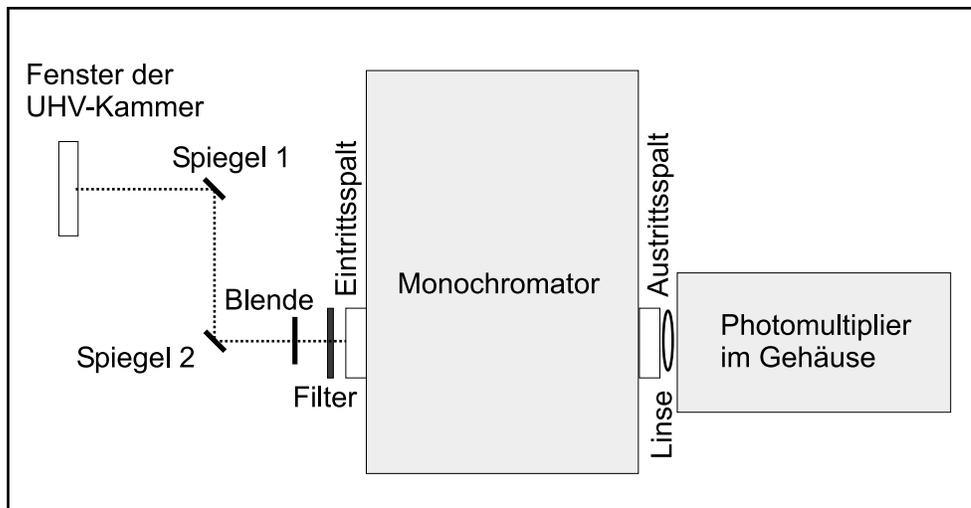


Abbildung 3.9: Überblick über das Detektionssystem. Nähere Erläuterungen finden sich im Text.

multipliers ist eine S20-Kathode mit einer Quanteneffizienz im genutzten Spektralbereich von 2 Prozent und einem Durchmesser von 2 mm. Der geringe Durchmesser wurde gewählt, um die davon abhängige Dunkelzählrate möglichst gering zu halten. Um den Signalstrahl unter Berücksichtigung des oben beschriebenen infrarotenergieabhängigen Strahl- und Winkelversatzes auf diese kleine Fläche abbilden zu können, wird eine

plankonkave Linse, optimiert in Bezug auf Brennweite und Positionierung, eingesetzt. Abbildung 3.10 zeigt die Geometrie der Linse im Bezug auf die Austrittsebene des Monochromators und der aktiven Photomultiplierfläche. Das gesamte Detektionssystem hat einen rechnerischen Wirkungsgrad von 0.1 Prozent, der durch Kalibriermessungen bestätigt wurde. Im Gehäuse des Photomultipliers befindet sich eine Kombination aus Diskriminator und Verstärker, der TTL-Pulse ausgibt. Diese werden von einer in einem PC eingebauten Zählerkarte, die ein Zeitfenster von minimal $20 \mu\text{s}$ öffnen und extern getriggert werden kann, eingelesen, und von einem weiter unten beschriebenen selbstentwickelten Computerprogramm verarbeitet.

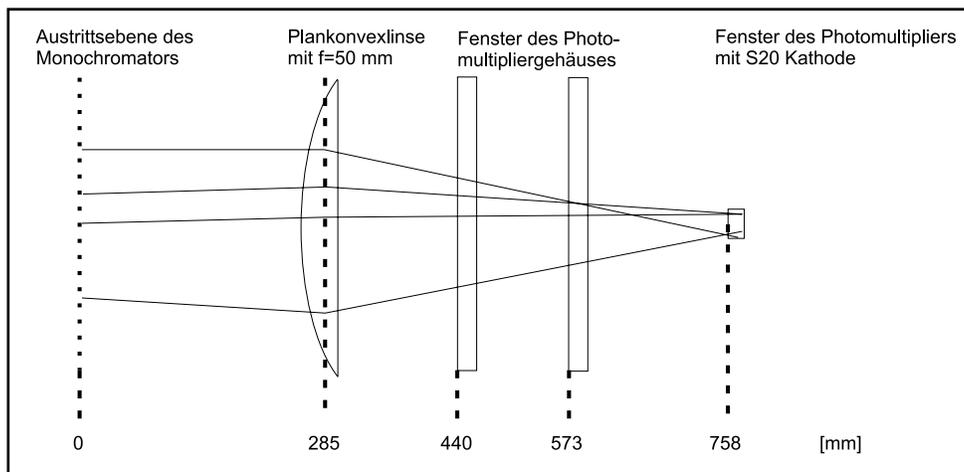


Abbildung 3.10: Die Geometrie der zwischen Monochromator und Photomultiplier eingesetzten Linse. Die vom Monochromator ausgehenden Strahlen repräsentieren Strahlen mit maximalen Variationen bezüglich Position und Winkel, wie sie im Experiment vorkommen können. Alle Strahlen treffen die aktive Fläche des Photomultipliers und können daher detektiert werden.

3.3.3 Die Steuerung des Experiments

Die gesamte Steuerung des Experiments wird von dem selbstentwickelten Programm „SFGDOS“ vorgenommen. Dieses kontrolliert die Energie des infraroten Lichtes und die eingestellte Wellenlänge des Monochromators. Es liest das Signal einer gewünschten Zahl von Laserpulsen, typischerweise 2400 ein, speichert dieses Signal ab und stellt es graphisch dar. Spektren über einen beliebigen Spektralbereich⁹ können auto-

⁹Die sinnvollen Grenzen des Spektralbereichs ergeben sich aus den Spezifikationen des Lasers.

matisch durchfahren werden. Dabei muss für jede Photonenenergie sowohl der optisch-parametrische Verstärker als auch der Monochromator nachgefahren werden. Zum sinnvollen Setzen des Zeitfensters während der Messung wird ein von der Elektronik des Verstärkersystems des Lasers abgeleiteter Triggerpuls verwendet, der kurz vor jedem Laserpuls gesendet wird.

