



# Pump-Probe Experimente an dünnen Goldfilmen

Reneé Andrea Nitzsche

Matrikelnummer: 771379

12. Juli 2022

1. Gutachter: Prof. Dr. Matias Bargheer
2. Gutachter: Prof. Dr. Svetlana Santer

---

eingereicht im Studiengang  
Bachelor of Science Physik

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät  
Institut für Physik und Astronomie

## **Inhaltsverzeichnis**

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>4</b>
2.1	Anregung der Elektronen und das Zwei-Temperatur-Modell . . . . .	4
2.2	Pump-Probe-Experiment . . . . .	8
2.3	Reflexionsänderung der Probe . . . . .	8
2.4	Weißlichterzeugung . . . . .	10
2.5	Frequenzverdopplung . . . . .	10
<b>3</b>	<b>Vergleich der experimentell erfassten Daten</b>	<b>13</b>
3.1	Charakterisierung der Probe . . . . .	13
3.2	Anregung mit einer Wellenlänge von 800 nm . . . . .	14
3.2.1	Zeitliches Verhalten der Reflexivität . . . . .	15
3.2.2	Transiente Spektren . . . . .	16
3.2.3	Spektrum zu verschiedenen Fluenzen . . . . .	18
3.3	Anregung mit einer Wellenlänge von 400 nm . . . . .	19
3.3.1	Zeitliches Verhalten der Reflexivität . . . . .	20
3.3.2	Transiente Spektren . . . . .	20
3.3.3	Spektren verschiedener Fluenzen . . . . .	22
3.4	Vergleich der verschiedenen Anregungswellenlängen . . . . .	23
3.4.1	Zeitliches Verhalten der Reflexivität . . . . .	24
3.4.2	Transiente Spektren . . . . .	25
<b>4</b>	<b>Modellierung der transienten Reflexivität von Gold</b>	<b>27</b>
<b>5</b>	<b>Fazit</b>	<b>30</b>
	<b>Literatur</b>	<b>31</b>

## 1 Einleitung

Im Rahmen dieser Arbeit wird eine 20 nm dicke Goldschicht untersucht, welche auf eine 2 mm Magnesiumoxidschicht gewachst wurde. Ziel dabei ist es einen möglichen Unterschied in der Reflexion der Goldschicht kurz nach der Anregung durch 800 nm und 400 nm zu beobachten.

Dabei lässt sich mittels eines Pump-Probe-Aufbaus die zeitliche Entwicklung des Spektrums des reflektierten Probe-Stahls, welcher aus zuvor erzeugtem Weißlicht besteht, betrachten. Für das allgemeine Verständnis der Reaktion der Goldschicht nach der Anregung durch den Laserpuls werden beide Pump-Wellenlängen, unter Verwendung verschiedener Fluenzen, zunächst getrennt voneinander betrachtet.

Um einen Zusammenhang zwischen beiden Messreihen herzustellen wird aus beiden Messreihen eine Fluenzmessung ausgewählt, welche zu späten Zeiten eine vergleichbare Reflexionsänderung aufweist. Diese werden anschließend zu frühen Zeiten verglichen.

Eine Modellierung der Reflexionsänderung von Gold bei verschiedenen Temperaturen ermöglicht ein Abschätzen der Elektronentemperatur aus den gemessenen Spektren.

## 2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen sowie der Aufbau eines Pump-Probe Experiments besprochen. Dabei wird zunächst betrachtet, was passiert wenn ein Laserpuls auf eine Goldschicht fällt. Die Energie des Photonen wird auf die Goldschicht übertragen. einem System hinzugefügt wird, welches aus Phononen und Elektronen besteht. Anschließend wird dargestellt, wie sich dies durch einen experimentellen Aufbau verwirklichen lässt und abschließend wird aufgrund späterer Relevanz auf die Frequenzverdopplung eingegangen.

### 2.1 Anregung der Elektronen und das Zwei-Temperatur-Modell

Trifft ein Laserpuls auf eine Oberfläche wird ein Teil der Energie des Pulses absorbiert. dies führt zu einer Änderung der im System gespeicherten Energie Systems lässt sich über ein Zwei-Temperatur-Modell beschreiben. es beschreibt dabei die Änderung der wärme für das Subsystem der Phononen und das der Elektronen. [6] [15] Das Zwei-Temperatur-Modell beschreibt die Änderung der im System der Elektronen bzw. Phononen gespeicherten Wärme im Verlauf der Zeit. Bevor der Laserpuls auf die Goldschicht trifft, befinden sich beide Systeme im thermodynamischen Gleichgewicht. D.h. die Temperatur der Elektronen  $T_e$  gleicht der Temperatur der Phononen  $T_{ph}$ . Wird der Goldfilm nun durch einen Laserpuls angeregt, so wird, abhängig von der Wellenlänge, dem System der Elektronen oder Phononen Energie zugeführt.

Wird die Energie dem System der Elektronen hinzugefügt werden, abhängig von der Wellenlänge, Elektronen aus dem Valenz- oder Leitungsband über das Fermi-niveau gehoben. Es kommt also, abhängig von der Photonenenergie, zu Inter- bzw. Intrabandübergängen im Gold. Mit einem Blick auf die Bandstruktur von Gold (Abbildung 1) lässt sich erkennen, dass für einen Interbandübergang eine größere Photonenenergie benötigt wird als für einen anderen möglichen Intrabandübergang. Wobei letzterer meistens mit einem Phonon zusammenhängt (ein sogenannter indirekter Übergang.)

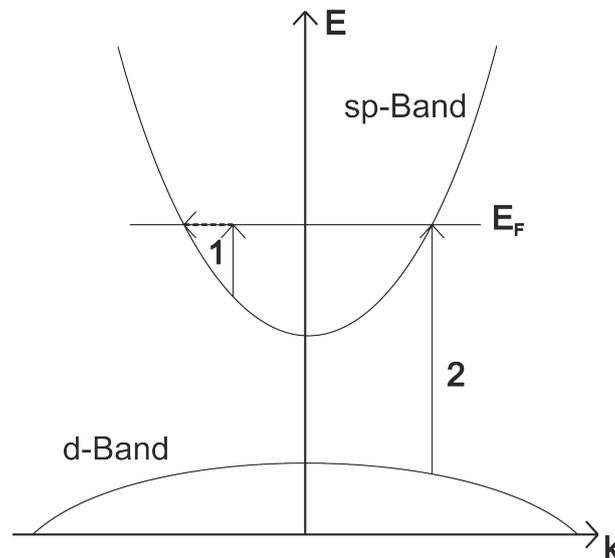


Abbildung 1: Zu sehen ist die Schematische Bandstruktur von Gold. Dabei ist zum einen ein möglicher Intrabandübergang, bei dem ein Elektron innerhalb des sp-Leitungsbandes über das Fermi-niveau gehoben wird (1), und zum anderen ein Interbandübergang, bei dem ein Elektron aus dem energetisch tiefer liegenden d-Band über das Fermi-niveau im sp-Band gehoben wird (2), eingezeichnet.

So ist es möglich mit einer Wellenlänge von 800 nm, was einer Photonenenergie von 1.55 eV entspricht, Intra-bandübergänge zu tätigen, jedoch sind Inter-bandübergänge nicht möglich. Wird der Goldfilm stattdessen mit einer Wellenlänge von 400 nm, also einer Photonenenergie von 3.1 eV, angeregt sind auch Inter-bandübergänge in Gold möglich. Da die Zustandsdichte der Elektronen in den d-Bändern sehr hoch ist, wird bereits bei geringen Leistungen eine stärkere relative Änderung in der Reflexion zu beobachten sein. Dies wird in späteren Kapiteln noch einmal deutlich. Durch das Anheben der Elektronen über das Fermi-Niveau kommt es zunächst zu einer Ausbildung einer nicht-thermischen Verteilungsfunktion, welche sich nicht mittels der Fermi-Dirac Verteilung beschreiben und auch keiner Temperatur zuordnen lässt. Über Stöße der Elektronen untereinander kommt es zu einer Umverteilung der Energie im Elektronensystem und es bildet sich eine heiße Fermi-Verteilung mit einer bestimmten Temperatur aus. Vergleicht man diese Temperatur mit der Temperatur der Phononen, so sind die Elektronen bedeutend heißer. Beide Systeme sind demzufolge nicht mehr im thermodynamischen Gleichgewicht.

Um wieder ins thermodynamische Gleichgewicht zu gelangen, müssen die Elektronen Wärme an die Phononen abgeben, wodurch sich eine Temperatur einstellen wird, welche über der Ausgangstemperatur liegt. Beschreiben lässt sich dieser Vorgang mit einem Zwei-Temperatur-Modell, welches über die folgenden miteinander gekoppelten Differentialgleichungen gegeben ist:

$$\begin{aligned} C_e(T_e, x) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \nabla (\kappa \nabla T_e(x)) - g_{e,ph}(T_e - T_{ph}) + S(x, t), \\ C_{ph}(T) \frac{\partial T_{ph}}{\partial t} &= g_{e,ph}(T_e - T_{ph}). \end{aligned} \quad (1)$$

Die Differentialgleichungen beschreiben, wie sich die Temperaturen beider Systeme mit der Zeit wieder aneinander anpassen.  $C_e$  und  $C_{ph}$  sind die Wärmekapazitäten der Elektronen und der Phononen. Dabei lässt sich  $C_e$  durch einen linearen Zusammenhang zwischen Sommerfeld-Koeffizienten und Temperatur beschreiben.

$$C_e = \gamma T. \quad (2)$$

Da die Temperatur der Phononen in den gezeigten Experimenten bereits zu Beginn höher ist als die Debye-Temperatur von Gold, kann die spezifische Wärmekapazität durch das Dulong-Petit-Gesetz beschrieben werden. Demnach kann die spezifische Wärmekapazität als konstant und somit auch unabhängig von der Temperatur angenommen werden.

$$C_{ph} = 3R. \quad (3)$$

Da sich heiße Elektronen am Fermi-Niveau mit Fermi-Geschwindigkeit  $v_F = \sqrt{\frac{2E_F}{m_e}}$  bewegen [12] und es sich bei der verwendeten Probe um einen dünnen Film handelt, stellt sich in der Probe bereits nach kurzer Zeit eine einheitliche Temperatur ein. Um dies zu verdeutlichen ist nachfolgend die dafür notwendige Rechnung durchgeführt. Dabei repräsentiert  $d$  die Dicke der Probe, welche nach Angaben des Herstellers 20 nm beträgt, und  $v_F$  die Fermi-Geschwindigkeit der Elektronen in Gold,  $1.4 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ . [4]

$$\begin{aligned} t &= \frac{d}{v_F}, \\ t &= 0.143 \text{ fs}. \end{aligned} \quad (4)$$

Da wir auf dieser Zeitskala nicht sensitiv sind lässt sich der Diffusionsterm in der ersten Differentialgleichung vernachlässigen.

Der nächste in beiden Differentialgleichungen auftretende Term beschreibt die Kopplung beider

Systeme. Die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante  $g_{e,Ph}$  determiniert die Geschwindigkeit mit der sich die Temperaturen annähern.

Der letzte in der ersten Differentialgleichung anzutreffende Term ist der Quellterm  $S$ . Dieser symbolisiert die Energiezufuhr durch den Laserpuls in das System der Elektronen und ist daher lediglich in der ersten Differentialgleichung, welche den Verlauf der Elektronentemperatur beschreibt, vorhanden.

Bei konstanten Wärmekapazitäten und der Vernachlässigung des Quellterms durch setzen passender Randbedingungen lässt sich diese Gleichung weiter vereinfachen.

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= -g_{e,ph}(T_e - T_{ph}), \\ C_{Ph} \frac{\partial T_{ph}}{\partial t} &= g_{e,ph}(T_e - T_{ph}). \end{aligned} \quad (5)$$

Die Randbedingungen sind dabei durch  $T_{Ph}(t = 0) = 300 \text{ K}$  und  $T_e(t = 0) = T_{0e}$  gegeben. Sie repräsentieren die Temperaturen beider Systeme direkt nach der Anregung. Lösen der Differentialgleichung mit dem Exponentialansatz führt zu:

$$\begin{aligned} T_e &= 300 \text{ K} + (T_{0e} - 300 \text{ K}) \frac{C_e}{C_e + C_{Ph}} \left( 1 + \frac{C_{Ph}}{C_e} e^{-\frac{t}{\tau}} \right), \\ T_{Ph} &= 300 \text{ K} + (T_{0e} - 300 \text{ K}) \frac{C_e}{C_e + C_{Ph}} \left( 1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right). \end{aligned} \quad (6)$$

Beide Systeme gleichen sich demnach für  $t \rightarrow \infty$  aneinander an. Das sich dann einstellende thermodynamische Gleichgewicht liegt bei  $T_\infty = 300 \text{ K} + (T_{0e} - 300 \text{ K}) \frac{C_e}{C_e + C_{Ph}}$ .

Um dies in Abbildung 2 exemplarisch darzustellen wurden verschiedene Starttemperaturen  $T_{0e}$  gewählt. Diese Starttemperatur lässt sich einer Fluenz zuordnen. Fluenz (pro Laserpuls) beschreibt die Energie, die pro Laserpuls auf einen Teil der Oberfläche der Probe trifft. Dabei werden zwei Fluenzbegriffe unterschieden. Die Peak-Fluenz, welche eine einheitliche Verteilung der Energie auf die gesamte Kreisfläche annimmt und in die FWHM-Fluenz. FWHM steht hier für „Full Width at Half Maximum“ und lässt sich aus der Standardabweichung  $\sigma$  bestimmen

$$FWHM = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma. \quad (7)$$

Bei ihr wird angenommen, dass sich die gesamte Energie innerhalb der durch die FWHM beschriebenen Fläche absorbiert wird. Die so berechenbare Fluenz  $F$  oder auch  $F_{FWHM}$  lässt sich wie folgt ausdrücken:

$$F_{FWHM} = \frac{E}{2\pi\sigma^2 \ln 2} \quad (8)$$

$$= \frac{4E}{\pi FWHM^2} \quad (9)$$

Beide Varianten sind lediglich eine Abschätzung der tatsächlichen Fluenz. Um möglichst nah an diese heran zu gelangen wird der Wert der FWHM-Fluenz noch mit dem Faktor  $\log(2)$  multipliziert.

In den Abbildung 2 und Abbildung 3 und auch den nachfolgenden Messungen wurde die FWHM-Fluenz verwendet.

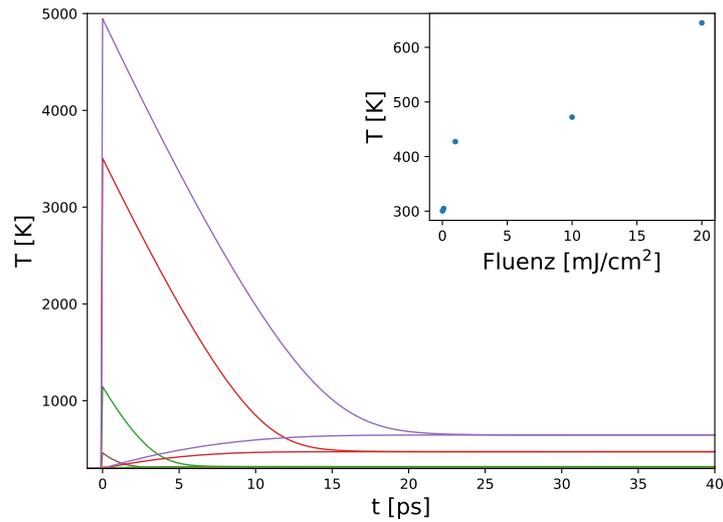


Abbildung 2: Zu sehen ist eine Simulation des Zwei-Temperatur Modells für eine 10 nm dicke Goldschicht. Die Wärmekapazitäten der Phononen betragen  $C_{Ph} = 128.49 \frac{\text{J}}{\text{KgK}}$  und die der Elektronen  $C_e = 0.0036788T \frac{\text{J}}{\text{KgK}}$ . Der Elektron-Phonon Kopplungs-term  $g_{e,ph}$  beträgt  $2.5 \cdot 10^{16} \frac{\text{J}}{\text{m}^3\text{K}}$ .

Bei dem Vergleich zweier deutlich verschiedenen Fluenzen wird noch einmal deutlich, dass der Abfall der Temperatur bei größeren Fluenzen deutlich langsamer und linearer verläuft. Dies hängt mit der Wärmekapazität der Elektronen zusammen. Da diese einen linearen Zusammenhang aufweist (siehe Gleichung 2) wird sie mit steigender Temperatur größer und trägt somit mehr zu dem Verlauf der Temperatur bei.

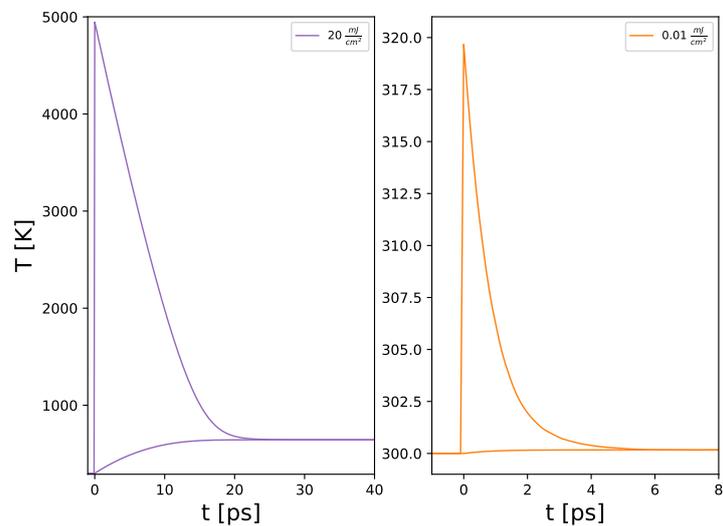


Abbildung 3: Gezeigt wird der Temperaturverlauf zweier stark verschiedener Fluenzen. Der in violett dargestellte Verlauf der Elektronen und Phononen Temperatur entspricht einer Fluenz von  $20 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  und der in orange dargestellte Verlauf einer Fluenz von  $0.01 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ .

Es ist festzuhalten, dass davon ausgegangen wird, dass sich die Temperatur auf der betrachteten Zeitskala lediglich im Goldfilm ändert. Es wird demnach keine Wärme an das Substrat abgegeben.

Auch wird bei dieser Überlegung nicht berücksichtigt, dass sich zuerst eine nicht thermische Verteilung ausbildet und es ballistischen Wärmetransport von Elektronen und Phononen geben kann.[6]

## 2.2 Pump-Probe-Experiment

Ein möglicher Aufbau in der Femtosekundenspektroskopie ist der sogenannte Pump-Probe Aufbau. Bei einem Pump-Probe Experiment (zu deutsch Anrege-Abfrage Experiment), wird der vom Lasersystem generierte ultrakurze Laserpuls in zwei separate Pulse, dem pump-Puls (Anrege-Puls) und dem probe-Puls (Abfrage-Puls), aufgeteilt. Dabei ist die Intensität des Pump-Pulses deutlich größer als die des Probe-Pulses.

Somit ist es zum einen möglich die Probe mit dem Pump-Strahl anzuregen und zum anderen die Änderung der Absorption der Probe in Reflexion oder Transmission mit dem Probe-Strahl zu messen. Im Laufe dieser Arbeit wurde die Probe lediglich in Reflexion gemessen (siehe Abbildung 4).

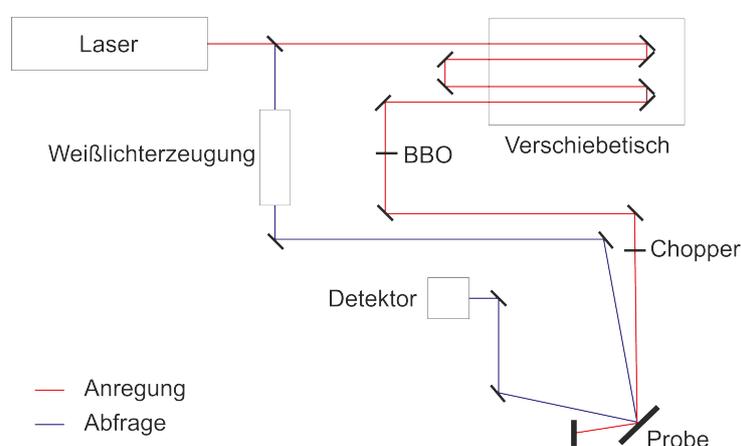


Abbildung 4: Gezeigt wird eine schematische Darstellung des Pump-Probe Aufbaus. Dabei wird der Pump-Puls rot und der Probe-Puls blau dargestellt.

Der Einsatz eines Verschiebetisches ermöglicht einen zeitlich variablen Versatz beider Pulse, wodurch es möglich ist die Probe zu verschiedenen Zeitpunkten nach der Anregung durch den Pump-Puls zu betrachten.

Um die Reflexionsänderung bei verschiedenen Wellenlängen zu betrachten wurde mit dem Probe-Puls ein Weißlichtspektrum erzeugt welches unter einem anderen Winkel auf die Probe trifft.

Beide Pulse wurden von der Probe reflektiert. Dabei wurde der Pump-Puls anschließend geblockt und der Probe-Puls in einen Detektor geleitet. Um zu erkennen wie sich die Reflexivität der Probe ändert, wurde die Reflexivität der Probe zum einen vor und zum anderen nach der Anregung durch den Pump-Puls gemessen. Damit dies möglich ist, wurde in den Strahlengang des Pump-Pulses ein Chopper eingebaut, welcher synchronisiert zu dem verwendeten Laser betrieben wurde. So ist es möglich eine relative Änderung im Spektrum zu ermitteln und zu betrachten wie und ob sich dieses ändert.

## 2.3 Reflexionsänderung der Probe

Die in diesem Unterkapitel skizzierte Herangehensweise zur Bestimmung der dielektrischen Funktion lässt sich noch einmal explizit in den Veröffentlichungen von Stoll, Maioli et al. [14], Rosei [13], Antonangeli, Colavita, Rosei und Salusti [3] und Guerrisi und Rosei [11] nachlesen.

Die relative Reflexionsänderung  $\frac{\Delta R}{R} = \frac{\partial \ln(R)}{\partial \epsilon_1} \Delta \epsilon_1 + \frac{\partial \ln(R)}{\partial \epsilon_2} \Delta \epsilon_2$  hängt zum einen von der Reflexivität  $R$  und zum anderen von der dielektrischen Funktion  $\epsilon$  ab. Dabei ist die Reflexivität  $R$  abhängig vom Brechungsindex  $n$  und vom Einfallswinkel des Pulses auf die Probe. Sie lässt sich durch die Fresnel'schen Gleichungen bestimmen.

Die dielektrische Funktion  $\epsilon$  lässt sich in einen Real und Imaginärteil aufteilen

$$\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2. \quad (10)$$

Gibt es lediglich Intrabandübergänge lassen sich diese durch die Drude-Theorie beschreiben. Dabei wird angenommen, dass sich die Elektronen im Leitungsband wie freie Elektronen verhalten.

Ist es energetisch möglich Interbandübergänge anzuregen, muss berücksichtigt werden, dass es sowohl zu Intrabandübergängen, als auch zu Interbandübergängen kommen kann. Daher muss in diesem Fall für die „joint density of states“ (kurz „JDOS“) die „energy distribution of the joint density of states“ (kurz „EDJDOS“) mit der jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeit gewichtet werden. Diese geht in Form der Fermi-Dirac-Verteilung  $f(E, T_e)$  in die JDOS ein, wodurch die JDOS eine Temperaturabhängigkeit erhält  $JDOS(T)$ .

Um den Imaginärteil der dielektrischen Funktion für Interbandübergänge zu bestimmen wird über alle energetisch möglichen Übergänge summiert und ist somit durch  $\epsilon_{ib} = \frac{e^2 \lambda^2}{\epsilon_0 m_e^2 c^2} \cdot \sum_i (A_i JDOS_i)$  gegeben [14].  $A_i$  beschreibt dabei die Stärke des Übergangs. Der gesamte Imaginärteil der dielektrischen Funktion setzt sich letztendlich aus dem Intraband-(Drude) und dem Interband-Anteil zusammen.

$$\text{Im}(\epsilon) = \epsilon_{\text{Drude}} + \epsilon_{ib}. \quad (11)$$

Über die Kramers-Kronig Relation [1] lässt sich daraus der Realteil und somit die dielektrische Funktion  $\epsilon$  bestimmen.

In Abbildung 5 ist die so ermittelbare relative Reflexionsänderung für verschiedene Elektronentemperaturen im Vergleich zu der Reflexionsänderung bei 300 K dargestellt. Dabei kommt es im Wellenlängenbereich von 450 nm bis 525 nm zur Ausbildung eines Maximums, welches sich nicht signifikant verschiebt. In dem Bereich ab 525 nm kommt es mit steigender Temperatur immer deutlicher zu einer negativen Änderung in der Reflexion. Es ist jedoch zu bemerken, dass mit steigender Temperatur der Abstand der Maxima der einzelnen Kurven zueinander geringer wird.

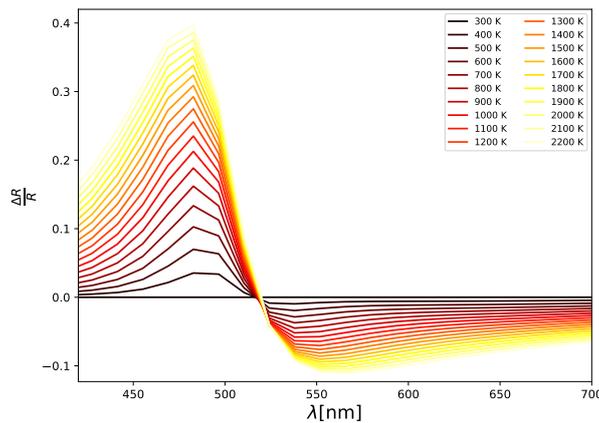


Abbildung 5: Zu sehen sind die simulierten Daten für die Änderung der Reflexion. Mit steigender Temperatur der Elektronen nimmt auch die Änderung der Reflexion zu. Dabei ist diese hier im Vergleich zu einer Reflexionsänderung bei einer Temperatur von 300 K aufgetragen.

## 2.4 Weißlichterzeugung

Um die durch den Pump-Puls verursachten Änderungen in einem möglichst großen Wellenlängenbereich zu beobachten wurde mit dem Abfrage-Puls ein Weißlichtspektrum generiert.

Bei der Weißlichterzeugung wird ausgehend von dem eingehenden Laserpuls ein Spektrum erzeugt, welches sich über den gesamten optisch sichtbaren Bereich bis ins Nahinfrarot erstreckt. Im Nahinfrarot kommt es dann zum exponentiellen Abfall der Intensität.[8]. Ziel dabei ist es eine möglichst hohe Intensität der Wellenlängen im Bereich von 400 nm bis 600 nm zu generieren. Dafür wird ausgenutzt, dass der Brechungsindex  $n$  sowohl von der Wellenlänge  $\lambda$ , als auch nichtlinear von der Intensität  $I$  des Laserpulses abhängt.[9]

$$n = n_0(\lambda) + n_2 I(t) \quad (12)$$

Damit die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex zum Tragen kommt wird der Laserpuls im Saphir fokussiert. Dafür wird er zunächst durch einen Graufilter in eine Sammellinse geleitet und gelangt anschließend in den Saphir. Durch das Fokussieren des Pulses wird dessen Intensität erhöht und es kommt zu einer normalen Dispersion, welche durch den ersten Term beschrieben wird und ein zeitliches Auseinanderlaufen des Pulses zur Folge hat, und zur Selbstphasenmodulation. Sie verursacht eine spektrale Verbreiterung des Pulses.[9]

Da die Intensität nach wie vor am größten bei der eingehenden Wellenlänge ist wurde das Weißlicht abschließend durch einen Kurzpassfilter (Carlflex X) geleitet, welcher den Wellenlängenbereich oberhalb von 740 nm herausfiltert.

## 2.5 Frequenzverdopplung

Um das Pump-Probe Experiment mit einer anderen Pump-Wellenlänge wiederholen zu können, wurde die eingehende Wellenlänge halbiert. Hierfür wurde das Prinzip der Frequenzverdopplung (engl. second harmonic generation, SHG) verwendet.

Bei der Frequenzverdopplung wird mit Hilfe eines nichtlinearen doppelbrechenden Kristalls die eingehende Frequenz verdoppelt, also die Wellenlänge halbiert.

In diesem Fall wurde  $\beta$ -Bariumborat (BBO), ein uniaxialer Kristall, also ein Kristall mit einer optischen Achse, verwendet, da er eine hohe Verdopplungseffizienz besitzt. Bei BBO handelt es sich um den für die Frequenzverdopplung von 800 nm üblichen Kristall.

Eine Frequenzverdopplung mit anderen Materialien ist ebenfalls möglich, insofern sich in diesem sowohl die frequenzverdoppelte Welle, als auch die eingehende Welle, ausbreiten können. So ist auch eine Frequenzverdopplung bei Materialien mit mehr als einer optischen Achse möglich, wenn auch gegebenenfalls weniger effizient.

Die senkrecht auf den BBO treffende, elektromagnetische Welle induziert durch eine periodische Verschiebung der elektronischen Ladungen im Kristall einen elektrischen Dipol. Ist die Intensität der eingehenden Welle gering, so verhält sich das induzierte Dipolmoment proportional zur Feldstärke und die Polarisation der Welle ist linear von der elektrischen Feldstärke abhängig. Für höhere Intensitäten gilt diese Aussage nicht mehr. In diesem Fall hängt die Polarisation lediglich zu einem Teil linear von der elektrischen Feldstärke ab und es kommen Terme höherer Ordnung, im Fall der Frequenzverdopplung zweiter Ordnung, hinzu.[10]

Die Polarisation  $P$  und die elektrische Feldstärke  $E$  lassen sich durch;

$$P = \epsilon_0 \sum_{n=1}^2 \chi^{(n)} E^n, \quad (13)$$

$$E = E_0 \sin(\omega t),$$

beschreiben.[10][7] Der erste Term der Summe beschreibt dabei die Polarisation des Strahls mit der gleichen Schwingungsfrequenz wie die der eingehenden Welle. Durch umformen des hinteren Terms mit Hilfe trigonometrischer Zusammenhänge lassen sich klar zwei andere Terme erkennen, ein von der Frequenz unabhängiger Term und einer, der mit der doppelten Frequenz schwingt. Dabei wird die Polarisation des frequenzverdoppelten Terms durch den Suszeptibilitätstensor um  $90^\circ$  gedreht.

$$\begin{aligned} P^{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} E_0^2 \sin^2(\omega t), \\ P^{(2)} &= \epsilon_0 \left( \frac{\chi^{(2)} E_0^2}{2} - \frac{\chi^{(2)} E_0^2 \cos(2\omega t)}{2} \right). \end{aligned} \quad (14)$$

Die induzierten Dipole strahlen also zum einen eine Welle mit der ursprünglichen Frequenz und zum anderen eine Welle mit dem Doppelten der ursprünglichen Frequenz aus. Um eine Ausbreitung der durch den letzten Term beschriebenen Welle zu ermöglichen, müssen die Phasengeschwindigkeiten beider Wellen aneinander angepasst werden. Eine Ausbreitung der zweiten harmonischen Welle wäre in einem isotropen Material aufgrund von Dispersion, also der Abhängigkeit des Brechungsindex von der Wellenlänge nicht möglich, da es in diesem Fall aufgrund unterschiedlicher Phasengeschwindigkeiten beider Wellen zu destruktiver Interferenz kommt. Aus eben diesem Grund werden doppelbrechende, anisotrope, Materialien verwendet. Dabei ist zu beachten, dass der Laserstrahl zwar senkrecht auf die Grenzfläche, jedoch unter einem bestimmten Winkel auf die optische Achse trifft.[10]

Trifft unpolarisiertes Licht auf die optische Achse, so wird die Welle zum einen in einen ordentlichen Strahl, welcher senkrecht zur optischen Achse polarisiert ist und zum anderen in einen außerordentlichen Strahl, welcher parallel zur optischen Achse verläuft, aufgeteilt. In diesem Fall trifft jedoch lediglich parallel polarisiertes Licht auf die optische Achse, wodurch zunächst lediglich der ordentliche Brechungsindex von Relevanz ist. Ist die Intensität der einfallenden elektromagnetischen Welle jedoch groß genug, sodass es zu einer Ausbreitung der frequenzverdoppelten Welle kommt, breitet sich diese aufgrund des außerordentlichen Brechungsindex mit einer anderen Phasengeschwindigkeit aus. Dabei ist die Phasengeschwindigkeit, also auch der außerordentliche Brechungsindex, der frequenzverdoppelten Welle vom Winkel zur optischen Achse abhängig. Für beide Strahlen gelten also voneinander verschiedene Brechungsindizes, wodurch die jeweiligen Phasengeschwindigkeiten der Wellen voneinander verschieden sein können. Somit kann sich die eingehende Welle phasenrichtig mit der Welle überlagern, welche sich mit einer Schwingungsfrequenz  $\omega$  ausbreitet, sich jedoch die frequenzverdoppelte Welle aufgrund destruktiver Interferenz nicht ausbreiten kann. Da der außerordentliche Brechungsindex wie bereits erwähnt vom Winkel zur optischen Achse abhängt ist es möglich beide Brechungsindizes aneinander anzupassen. Dies bedeutet, dass auch die Phasengeschwindigkeiten beider Wellen nun gleich groß sind und die frequenzverdoppelten Wellen sich somit ebenfalls phasengleich überlagern und sich eine frequenzverdoppelte Welle mit größtmöglicher Amplitude ausbreitet.

Trifft der Strahl sowohl senkrecht auf die Grenzfläche als auch auf die optische Achse wäre die Ausbreitungsgeschwindigkeit des außerordentlichen Strahls immer gleich groß. Da die beiden Brechungsindizes jedoch immer noch voneinander verschieden wären, würde es in diesem Fall ebenfalls zur destruktiven Interferenz kommen.[10]

Von der semi-quantenmechanischen Seite her lässt sich dies durch einen 2 Photonenprozess erklären. Hierbei gilt sowohl Energie-, als auch Impulserhaltung. Bei der Betrachtung der Impul-

serhaltung lässt sich die Halbierung der Wellenlänge erkennen. [7][2]

$$\begin{aligned}2p_1 &= p_2 \\2\hbar k_1 &= 2\hbar k_2 \\ \frac{2\hbar 2\pi}{\lambda_1} &= \frac{\hbar 2\pi}{\lambda_2} \\ \lambda_2 &= \frac{\lambda_1}{2}\end{aligned}\tag{15}$$

Berücksichtigt man dies bei der Betrachtung der Energieerhaltung so lässt sich ein anpassen der Brechungsindizes zeigen.

$$\begin{aligned}2\hbar\omega_2 &= \hbar\omega_1 \\4\pi f_1 &= 2\pi f_2 \\ \frac{2c_{m,1}}{\lambda_1} &= \frac{c_{m,2}}{\lambda_2} \\ \frac{2c_0}{\lambda_1 n_1} &= \frac{c_0}{\lambda_2 n_2} \\ n_1 &= n_2\end{aligned}\tag{16}$$

### 3 Vergleich der experimentell erfassten Daten

In diesem Kapitel wird zunächst die Dicke und die Beschaffenheit des Goldfilms besprochen und anschließend die experimentell gewonnenen Daten dargelegt.

Wie bereits im vorherigen Kapitel erwähnt ist es abhängig von der verwendeten Pump-Wellenlänge möglich Inter- bzw. Intrabandübergänge in Gold anzuregen. Dabei wird nachfolgend zunächst die Anregung der Goldschicht durch eine Pump-Wellenlänge von 800 nm und anschließend von 400 nm betrachtet. Während es bei einer Wellenlänge von 800 nm lediglich möglich ist Intrabandübergänge anzuregen lässt eine Wellenlänge von 400 nm auch Interbandübergänge zu.

Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird die Änderung der Reflexion der Probe der verschiedenen Anregungswellenlängen miteinander verglichen.

#### 3.1 Charakterisierung der Probe

Um die Dicke der auf das Substrat aufgetragenen Goldschicht genauer zu bestimmen wurde am Synchrotron des Helmholtz-Zentrum Berlin, Strahlrohr KMC3-XPP, eine XRR Messung durchgeführt. XRR ist dabei eine Kurzschreibweise für Röntgenreflektometrie. Sie lässt sowohl Rückschlüsse auf die Schichtdicke, als auch auf die Oberflächenrauheit und die Dichte des Films zu [5].

Bei dem Messverfahren handelt es sich um einen  $\Theta$ - $2\Theta$  Scann. Dabei trifft der Röntgenstrahl unter einem Winkel  $\Theta$  auf die Probe und wird unter  $2\Theta$  reflektiert und von einem Detektor aufgenommen. Für die Messung wurden kleine Winkel bis  $5^\circ$  verwendet. Dabei ist zu bedenken, dass es bei Winkeln kleiner dem kritischen Winkel zur Totalreflexion kommt und die vom Detektor gemessene Intensität maximal ist. [5]

Trifft der Röntgenstrahl nicht unter Totalreflexion auf die Probe kommt es an der Grenzschicht Luft-Gold sowohl zur Reflexion, als auch zur Transmission. Der Transmittierte Strahl wird anschließend an der nächsten Grenzschicht (Au-MgO) reflektiert. Zwischen beiden Strahlen kommt es somit zu einem Gangunterschied. Dieser Gangunterschied hat zur Folge, dass die gemessene Intensität aufgrund von Interferenz abnimmt. Es kommt zur sogenannten Zweistrahlinterferenz. Wie stark der Strahl reflektiert bzw. transmittiert wird lässt sich mit den Fresnelschen Formeln bestimmen.

In der nachfolgenden Grafik wurde die Intensität anstelle des Winkels logarithmisch über den Streuvektor  $\bar{Q}$  aufgetragen. Dabei hängen der Streuvektor  $Q$  und der Winkel  $\Theta$  über

$$Q = 2k \sin \Theta, \tag{17}$$

zusammen.

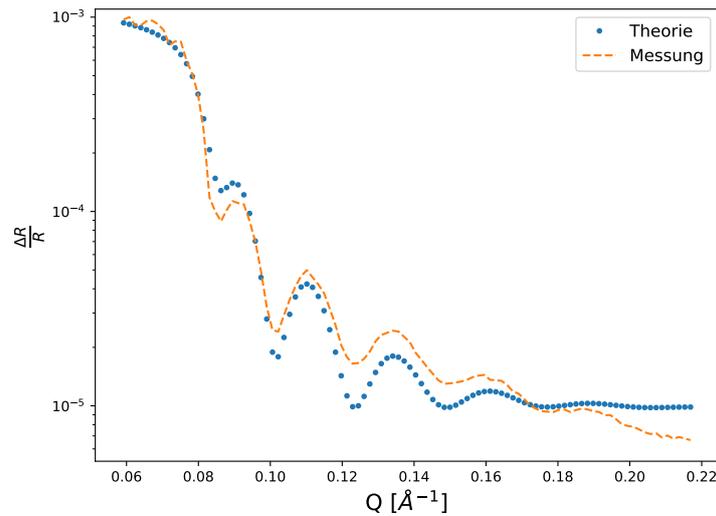


Abbildung 6: Gezeigt wird der theoretische Intensitätsverlauf (blau) der XRR Messung an einem 20 nm Goldfilm auf Manganoxid und gemessene Intensitätsverlauf (orange).

Da es sich bei der Messung um elastische Streuung handelt kommt es nur zur Reflexion, wenn die Laue Bedingung  $\vec{k} - \vec{k}' = \vec{Q}$  erfüllt ist. Die beiden k-Vektoren beschreiben dabei den unter dem Winkel  $\Theta$  ein- und ausfallenden Strahl. Bestimmt man den Betrag des Streuvektors  $\vec{Q}$ , so wird deutlich, dass in diesem sowohl die Wellenlänge als auch der Einfallswinkel enthalten sind. Die Dicke der Schicht ergibt sich dabei aus dem Abstand der Maxima zueinander, während Dichte und Rauheit der Probe das Abklingverhalten der Oszillationen beeinflussen. aus dem Abstand der Maxima der Oszillationen lässt sich die tatsächliche Schichtdicke der Probe bestimmen. Dies entspricht einer tatsächlichen Schichtdicke von näherungsweise 20 nm. Vergleicht man nun das gemessene Signal mit der Simulation einer 20 nm Schicht, so lässt sich ein schnelleres Abklingen der Amplitude der Oszillationen feststellen. Dies weist darauf hin, dass es sich nicht um eine planare Probe handelt.

### 3.2 Anregung mit einer Wellenlänge von 800 nm

Der in Abb.7 gezeigte Übersichtsplot repräsentiert exemplarisch die aufgenommenen Daten. Der gezeigte Übersichtsplot ist aufgeteilt in drei Subplots. Der obere Subplot zeigt den zeitlichen Verlauf der gemessenen Reflexionsänderung für einen ausgewählten Wellenlängenbereich. Der rechte Subplot betrachtet die Reflexionsänderungen bei verschiedenen Wellenlängen zu einem bestimmten Zeitpunkt. Im dritten Subplot werden beide Informationen dargestellt. Der Verlauf der Transienten wird mit Hilfe einer Farbskala veranschaulicht.

Die angefügten Abbildungen oben links und unten rechts zeigen Ausschnitte aus dem Plot unten links. Dieser veranschaulicht mit Hilfe einer Farbskala die relative Änderung des Spektrums zu verschiedenen Zeiten. Hellblaue Bereiche kennzeichnen dabei Bereiche welche eine starke negative Änderung aufweisen, während hellgelbe, bzw. weiß erscheinende Bereiche eine größte positive Änderung bedeuten. Für beide Farben gilt umso heller der Farbton umso größer die Änderung und umso dunkler Farbton um so geringer ist die Änderung, wodurch schwarz bedeutet, dass es keine relative Änderung gibt. Die eingezeichneten Wellenlängenbereiche und Zeiten sind so gewählt, wie sie auch für die nachfolgenden Betrachtungen gewählt wurden.

Wird diese Änderung zu einem bestimmten Zeitpunkt betrachtet ist eine momentane Darstellung der Änderung möglich wie in dem rechten Teil der Grafik in Abbildung 7 gezeigt.

Bei den gewählten Wellenlängenbereichen wurde darauf geachtet, dass es zum einen einen Bereich mit großer positiver Änderung und einen mit negativer Änderung gibt.

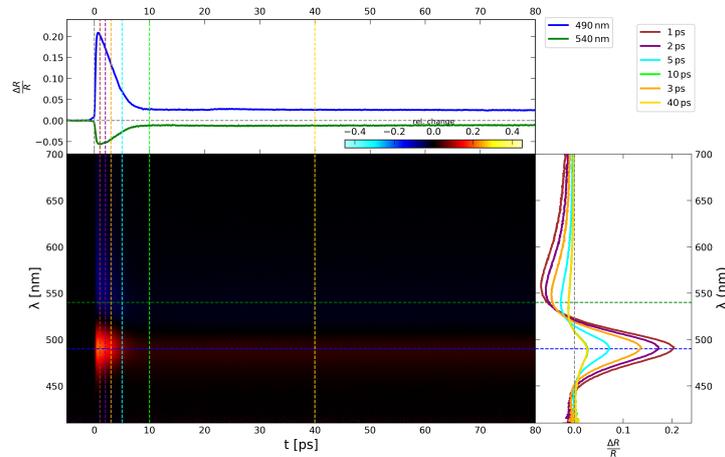


Abbildung 7: Die dargestellten Daten wurden mit einer Fluenz von  $1.34 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  aufgenommen

Betrachtet man nun die beiden ausgewählten Wellenlängenbereiche separat über die Zeit erhält man die darüber dargestellten Transienten. Dabei wurde dafür in den nachfolgenden Darstellungen über mehrere Wellenlängen gemittelt.

Bei deren genauerer Betrachtung lässt sich feststellen, dass sich diese in drei Bereiche einteilen lässt. Im 1. Bereich kommt es zu einem rapiden Anstieg in der Änderung der Reflexion der Probe. Dieser Bereich erstreckt sich für gewöhnlich bis zu 1 ps. Die Zeitspanne des 2. Bereiches variiert, dauert aber in den getätigten Messungen, bei welchen ein Pump-Puls von 800 nm verwendet wurde, mindestens 6 ps. In diesem Bereich sinkt die Änderung in der Reflexion der Probe wieder ab und bildet sich letztendlich im 3. Bereich in ein Plateau aus. Wie der Übersichtsplot sehr gut zeigt ändert sich auf den ersten Blick in diesem Abschnitt nichts mehr, weswegen die nachfolgenden Darstellungen lediglich bis 29 ps reichen.

### 3.2.1 Zeitliches Verhalten der Reflektivität

Wie bereits in Abbildung 2 zu sehen war, ist die Relaxation der Elektronentemperatur im Zwei-Temperatur-Modell mit der Fluenz verknüpft. Dies sollte nun experimentell überprüft werden. Dafür wurde die in Abbildung 7 zu sehende Transiente nun mit der anderer Fluenzen verglichen. Dabei ist die kleinste verwendete Fluenz durch einen violetten und die größte durch grünen Graphen dargestellt (Abb. 8 und Abb. 9).

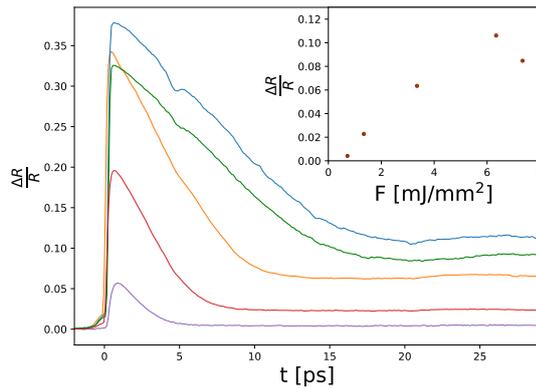


Abbildung 8: Darstellung mehrerer Transienten im gemittelten Wellenlängenbereich von 480 nm bis 500 nm

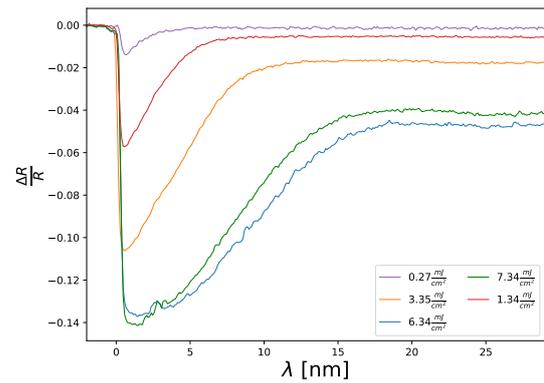


Abbildung 9: Darstellung mehrerer Transienten im gemittelten Wellenlängenbereich von 580 nm bis 600 nm

Werden die beiden höchsten Fluenzen zunächst außer Betracht gelassen so wird deutlich, wie das Maximum bzw. Minimum der relativen Änderung mit steigender Fluenz zunimmt bzw. weiter absinkt. Dabei bleibt der Bereich 1 bei allen Messungen in der gleichen Größenordnung ( $\sim 1$  ps). Dies ist bei Bereich 2 nicht der Fall. Dieser wird mit steigender Fluenz größer, sodass er bei der größten Fluenz ca. 15 ps lang ist. Betrachtet man das Sinken der relativen Änderung genauer und bezieht auch die beiden größten Fluenzen mit ein, so wird deutlich, dass sich dieses Verhalten ebenfalls mit steigender Fluenz zu ändern scheint. Umso größer die Fluenz ist umso flacher ist der Abfall bzw. um so länger dauert die Relaxation.

Gleiches lässt sich bei Abb. 9 feststellen. So gibt es zunächst eine starke negative relative Änderung und anschließend eine Relaxation bis sich dann ein Plateau ausbildet.

Beide Abbildungen zeigen Plateaus welche sich mit steigender Fluenz bei größeren relativen Änderungen ausbilden. Wählt man nun zu einem festen Zeitpunkt die jeweilige relative Änderung im Spektrum und plottet diese über die Fluenz lässt sich annähernd ein linearer Verlauf erkennen (Abb. 8). Um sicherzugehen, dass sich zu dem gewählten Zeitpunkt nicht mehr viel ändert wurde dieser aus dem Bereich 3 ausgewählt und liegt in allen Fällen bei 60 ps.

### 3.2.2 Transiente Spektren

Bei der Betrachtung der Variation des gemessenen Spektrums wurden exemplarisch die größte und die kleinste Fluenz der Messreihe ausgewählt.

Hierfür betrachten wir zunächst die Änderungen des Spektrums zu frühen Zeiten (also im Bereich 1).

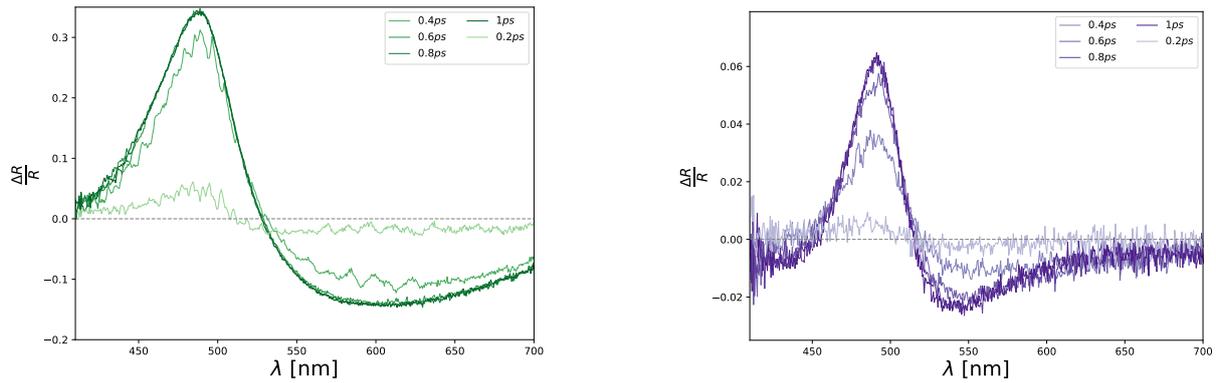


Abbildung 10: Änderung des Spektrums kurz nach der Anregung der Probe durch den Pump-Puls für die größte gemessene Fluenz (links) und für die kleinste gemessene Fluenz (rechts)

Beide gewählte Fluenzen zeigen klar eine mit der Zeit zunehmende Ausprägung von Maximum und Minimum. Während das Maximum zunächst an Ausprägung gewinnt verschiebt sich das Minimum mit zunehmender Zeit zusätzlich zu kleineren Wellenlängen.

Bei der größten Fluenz ist das Maximum nach 0,4 ps beinahe vollständig ausgeprägt, bei der kleinsten Fluenz ist es zum gleichen Zeitpunkt lediglich knapp über der Hälfte. Die Ausprägung des Maximums verläuft bei hohen Fluenzen also schneller.

Desweiteren fällt auf, dass bei Wellenlängen kleiner als 450 nm bei der größten Fluenzen eine positive relative Änderung, jedoch eine negative relative Änderung bei der kleinsten Fluenz gibt. Auch ist die Form des Spektrums nach dem Nulldurchgang verschieden, so ist die Ausprägung des Minimums bei der größten Fluenz bedeutend breiter als bei der kleinsten Fluenz.

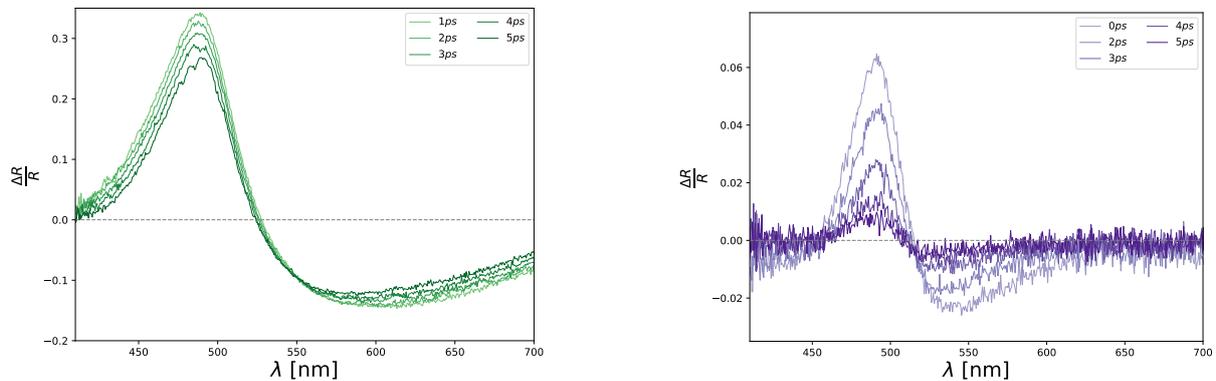


Abbildung 11: Änderung des Spektrums im Bereich 2 der Transienten bei einer Fluenz von 7,34  $\frac{mJ}{cm^2}$  (links) und einer Fluenz von 0,72  $\frac{mJ}{cm^2}$  (rechts).

Im 2. Bereich lässt sich bei dem durch die kleinste Fluenz generierten Spektrum eine deutliche Verringerung der relativen Änderung mit steigender Zeit feststellen. Wie der Übersichtsplot zu Beginn des Kapitels bereits mittels der Farbskala veranschaulicht hat, verbleibt das Maximum im gleichen Wellenlängenbereich, während sich das Minimum zu kleineren Wellenlängen verschiebt und abflacht.

Da der Bereich 2 bei der größten Fluenz deutlich größer ist, ist die Relaxation von Maximum und

Minimum in diesem Bereich sehr gering. Dennoch lässt sich dort bereits ein ähnliches Verhalten erahnen.

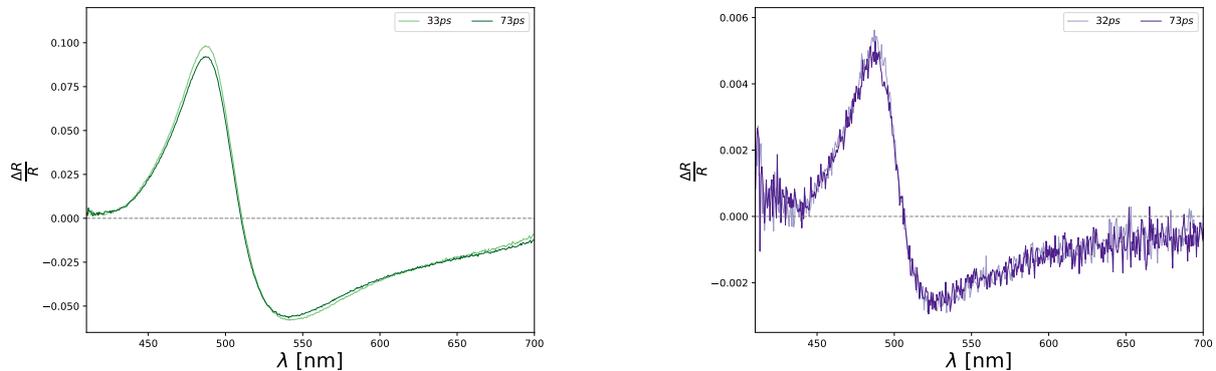


Abbildung 12: In Bereich 3 ist in beiden Fällen nur noch eine Minimale Änderung zu beobachten.

Zu den im 3. Bereich gewählten Zeiten hat sich bei beiden Transienten das Plateau ausgebildet. Wie bereits bei der Betrachtung der Transienten vermutet ist in beiden Fällen die Änderung minimal.

Beide Messungen weisen nach wie vor ein Maximum bei 480 nm-500 nm und ein Minimum aus. Dabei ist dieses jedoch zueinander verschoben. Das der kleinsten Fluenz-Messung befindet sich im Bereich von 510 nm-530 nm, während sich das Minimum der größten Messung bei 530 nm-550 nm befindet. Mit steigender Fluenz verschiebt sich demnach das Minimum zu späten Zeiten zu höheren Wellenlängen.

### 3.2.3 Spektrum zu verschiedenen Fluenzen

Nimmt die verwendete Fluenz zu, so steigt, zum gleichen Zeitpunkt betrachtet, sowohl die Ausprägung des Maximums, als auch des Minimums. Dabei verbleibt die Position des Maximums im gleichen Wellenlängen Bereich, während sich die Position des Minimums zu größeren Wellenlängen hin verschiebt. Zusätzlich zu dem Verschieben des Minimums lässt sich in dem Fall auch beobachten, dass sich der Nulldurchgang verschiebt. Lässt man die höchste Fluenz außen vor, so lässt sich feststellen, dass sich dieser ebenfalls zu größeren Wellenlängen hin verschiebt. Während es für die beiden kleinsten Fluenzen im Bereich von 400 nm bis 450 nm noch eine minimale negative relative Änderung gibt, ist sie für die großen drei Fluenzen deutlich positiv. Bezieht man nun die beiden größten Fluenzen mit in das Gesamtbild mit ein, so lässt sich festhalten, dass sich das Maximum zwar auch in diesem Fall im gleichen Wellenlängenbereich wie das der anderen gemessenen Spektren ist, jedoch die beiden Kurven „vertauscht“ scheinen. So ist die relative Änderung der größten Fluenz (dargestellt durch die grüne Kurve) mit 0.3 weniger ausgeprägt als das der kleineren Fluenz (dargestellt durch die blaue Kurve). Gleiches lässt sich bei diesen beiden Kurven über den Nulldurchgang und der Ausprägung des Minimums sagen.

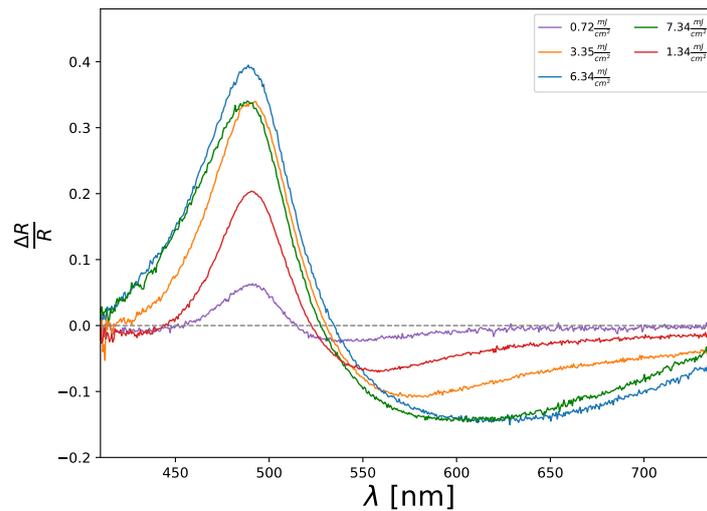


Abbildung 13: Darstellung der relativen Änderung des Spektrums zum gleichen Zeitpunkt bei verschiedenen Fluenzen

### 3.3 Anregung mit einer Wellenlänge von 400 nm

Da das Ziel der Arbeit ist diesen Datensatz mit dem einer anderen Wellenlänge zu vergleichen, wurden obige Betrachtungen mit einer Wellenlänge von 400 nm, also der frequenzverdoppelten Welle wiederholt und nachfolgend vorgestellt.

Um die 2. harmonische Welle zu generieren wurde, wie in Unterkapitel 2.2 bereits erwähnt, ein BBO in den Strahlengang des Pump-Pulses gebaut und das im Unterkapitel 2.5 vorgestellte Verfahren verwendet um eine möglichst effiziente Erzeugung der 400 nm zu ermöglichen.

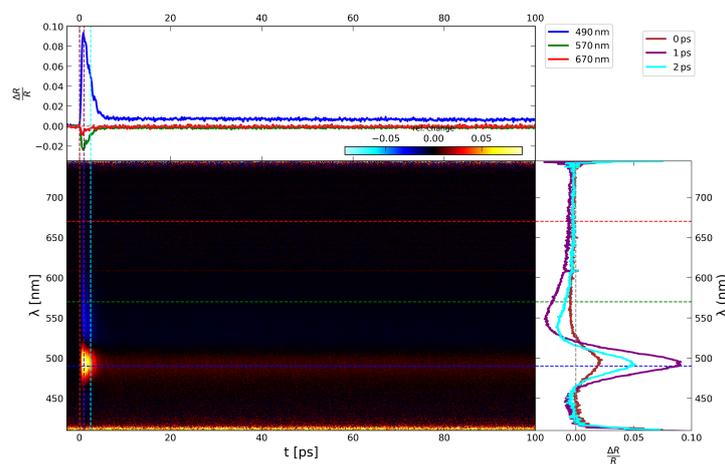


Abbildung 14: Die dargestellten Daten wurden mit einer Fluenz von  $0.15 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  aufgenommen

Ein Blick auf den Übersichtstplot zeigt den gleichen Aufbau wie in Abb. 7. Wobei der Hauptplot, welcher sowohl die Änderung in der Reflexion bei verschiedenen Wellenlängen, als auch deren zeitlichen Verlauf, zeigt, eine positive Reflexionsänderung im Bereich um die 615 nm aufweist. Dies hängt mit einer zu hohen auf den Detektor treffende Intensität zusammen und wird demnach in der Betrachtung nicht weiter Berücksichtigt.

### 3.3.1 Zeitliches Verhalten der Reflektivität

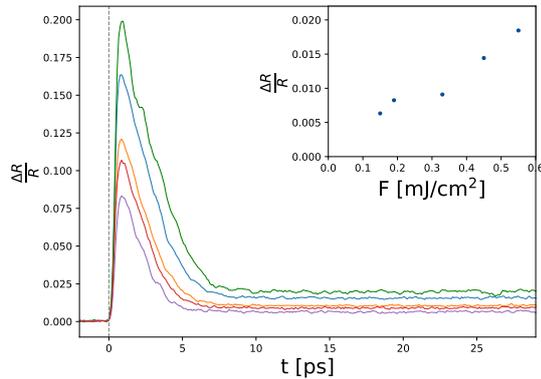


Abbildung 15: Zum einen sind in dieser Darstellung mehrere Transienten in einem gemittelten Wellenlängenbereich von 480 nm bis 500 nm zu sehen. Zum anderen wurde die relative Änderung bei einem Zeitpunkt von  $\sim 60$  ps über die jeweilige Fluenz aufgetragen. Es lässt sich näherungsweise ein linearer Verlauf erkennen.

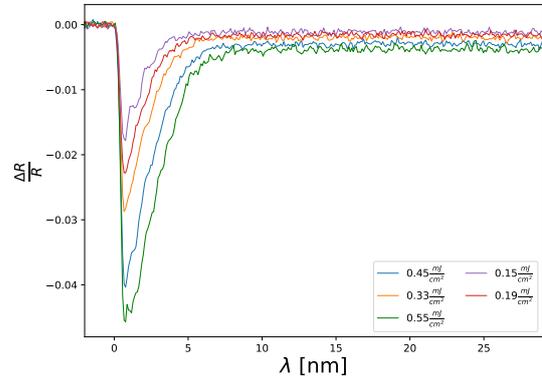


Abbildung 16: Darstellung mehrerer Transienten im gemittelten Wellenlängenbereich von 580 nm bis 600 nm

Auch hier lässt sich die Transiente wieder in die gleichen drei Bereiche einteilen. Beim Betrachten des ersten Bereich wird die Ausprägung des Maximum mit steigender Fluenz größer. Ebenso verhält es sich mit der Größe der relativen Änderung im 3. Bereich. betrachtet man die relative Änderung über die Fluenz wird dies noch einmal deutlich, ebenso lässt sich bei dieser Darstellung ein annähernd lineares Verhalten feststellen.

### 3.3.2 Transiente Spektren

Wird für die Betrachtung der Spektren zu verschiedenen Zeitpunkten abermals die größte und die kleinste gemessene Fluenz verwendet, so fällt auf, dass in beiden Fällen direkt nach der Anregung noch keine signifikante Änderung im Spektrum deutlich wird. Im 1. Bereich bilden sich Maximum und Minimum schnell aus. Während sowohl Minimum, als auch Maximum im 2. Bereich absinken verbleibt das Maximum im gleichen Wellenlängenbereich und das Minimum verschiebt sich zu niedrigeren Wellenlängen. Dabei kommt es zu einem abflacht des nach rechts auslaufenden Armes. Für die Betrachtung des 3. Bereichs wurden abermals über 100 Zeitschritte gemittelt um das Rauschen des Signals zu minimieren. In beiden Fällen lässt sich keine signifikante Änderungen mehr erkennen.

### 3 Vergleich der experimentell erfassten Daten

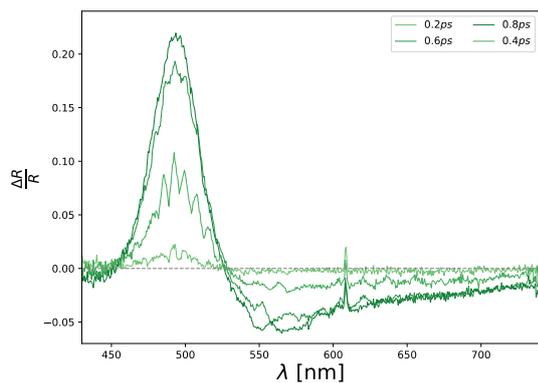


Abbildung 17: gezeigt werden die Spektren zu vier verschiedenen Zeiten aus dem 1. Bereich bei einer Fluenz von 0.55

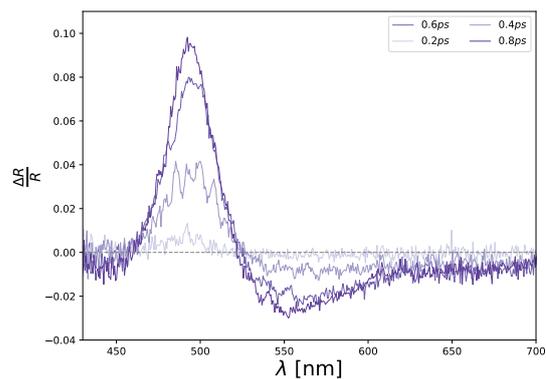


Abbildung 18: gezeigt werden die Spektren zu vier verschiedenen Zeiten aus dem 1. Bereich bei einer Fluenz von 0.15

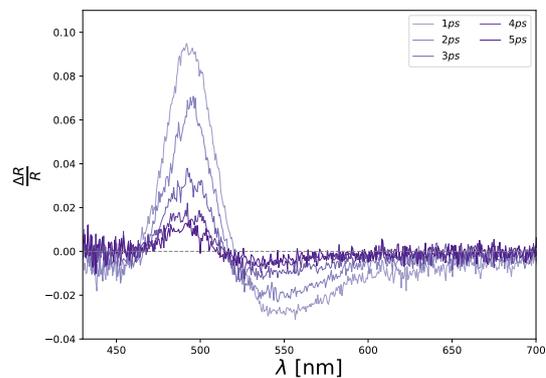
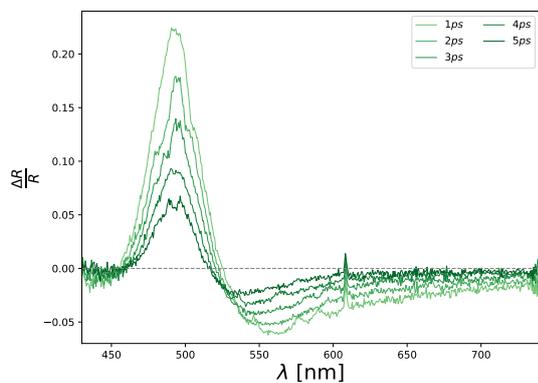


Abbildung 19: gezeigt werden fünf, zu verschiedenen Zeitpunkten aufgenommene, Spektren, aus dem 2. Bereich der Transienten, bei einer Fluenz von 0.55 (in grün dargestellt) und 0.15 (in violett dargestellt)

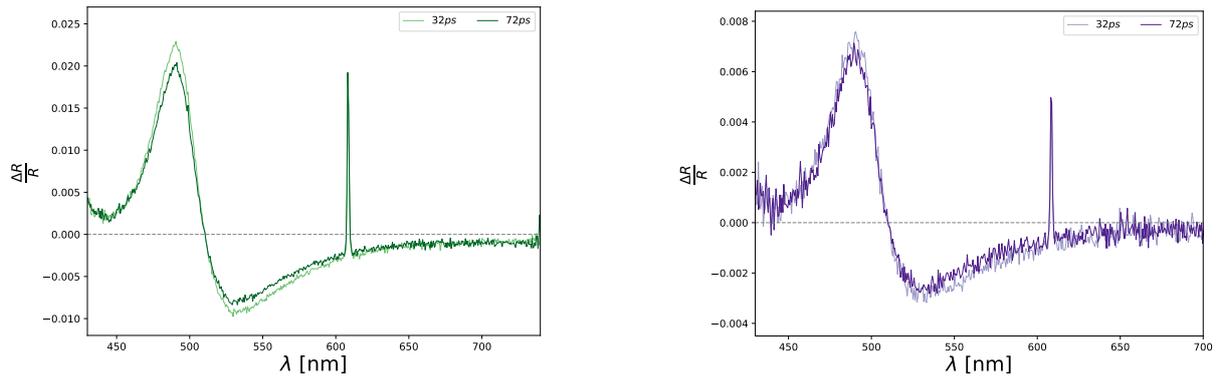


Abbildung 20: gezeigt werden zwei zum gleichen Zeitpunkt aufgenommene Spektren aus dem letzten (dritten) Bereich. Da das Signal in diesem Bereich sehr klein ist im Vergleich zum Rauschen wurde über mehrere Zeitschritte gemittelt. Die verwendeten Fluenzen sind abermals 0.55, in grün dargestellt, und 0.15 in violett dargestellt.

### 3.3.3 Spektren verschiedener Fluenzen

Die hier gewählte Farbcodierung entspricht der gleichen wie in Abbildung 13. So ist das Spektrum, welches von der kleinsten Fluenz generiert wurde ebenfalls in violett und das Spektrum welches mit der größten Fluenz erzeugt wurde grün dargestellt.

Es lässt sich klar erkennen, dass mit steigender Fluenz auch die Ausprägung des Maximums und des Minimums steigt. Während der Bereich in dem sich das Maximum befindet unabhängig von der gewählten Fluenz ist, so verschieben sich dennoch der Nulldurchgang und das Minimum zu höheren Wellenlängen.

So ist das Minimum bei einer Fluenz von  $0.15 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  am stärksten im Bereich von 540 nm bis 560 nm ausgeprägt, während es sich bei einer Fluenz von  $0.55 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  in einem Bereich von 548 nm bis 570 nm befindet. Alle in 3.3.2 gezeigten Spektren weisen einen Peak bei 615 nm auf, der wie bereits zu Beginn erwähnt nicht mit der Reflexion der Probe, sondern mit einer zu hohen auf den Detektor treffenden Intensität zusammenhängt. Jedoch veranschaulicht diese Darstellung gut, dass der Peak immer bei der gleichen Wellenlänge zu beobachten ist und mit steigender Fluenz ausgeprägter erscheint (was mit einer steigenden Verwendeten Leistung im Pump-Puls zusammenhängt).

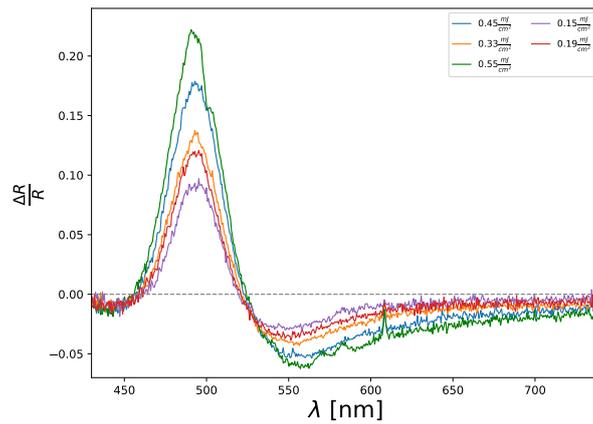


Abbildung 21: Darstellung der relativen Änderung des Spektrums zum gleichen Zeitpunkt bei verschiedenen Fluenzen

### 3.4 Vergleich der verschiedenen Anregungswellenlängen

Um beide Messreihen nun miteinander zu vergleichen wurde zunächst geschaut, welche Messungen im 3. Bereich eine vergleichbare relative Änderung aufweisen. Dafür wurde bei allen Messungen die Änderung in der Reflexion zu einem Zeitpunkt bei 60 ps betrachtet (Siehe Abbildung 22). Dies führt zu den in Abbildung 22 gezeigten Datenpunkten. Beide Messreihen weisen einen annähernd linearen Verlauf auf. Wobei der Datenpunkt der größten, durch die 800 nm erzeugten, Fluenz eine kleinere Reflexionsänderung aufweist und nicht wie erwartet die Größte. Grund dafür kann eine Beschädigung der Goldschicht sein.

Bei dem Vergleich der Messreihen lässt sich feststellen, dass die Änderung der Reflexion bei einer vergleichbaren Fluenz von beider Pump-Wellenlängen verschieden ist. So ist die Reflexionsänderung bei einer Pump-Wellenlänge von 400 nm erkennbar größer als bei einer Pump-Wellenlänge von 800 nm.

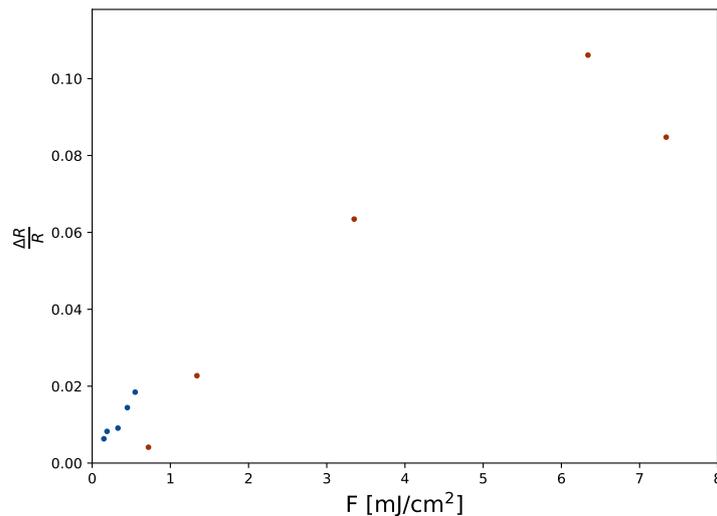


Abbildung 22: relative Änderung der Transienten beider Messreihen zu einem Zeitpunkt von 60 ps (3. Bereich); Ausgewählt aus dem Wellenlängenbereich 480 nm-500 nm

In beiden Fällen ist es die Messung mit der kleinsten gewählten Fluenz. Nachfolgend werden also diese beiden Messungen miteinander verglichen. Dabei wird die Messung der frequenzverdoppelten Welle durch blau und die Messung mit 800 nm-Pump durch rot dargestellt.

### 3.4.1 Zeitliches Verhalten der Reflexivität

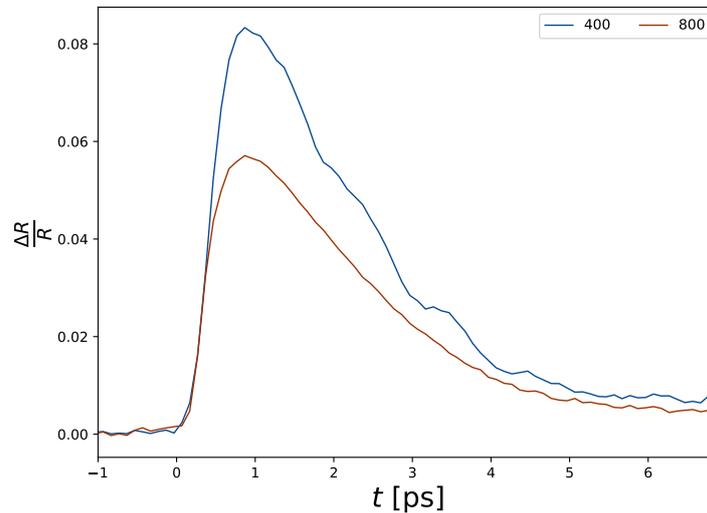


Abbildung 23: Beide Transienten weisen im 3. Bereich eine annähernd gleichgroße relative Änderung auf.

Zwar weisen beide Transienten im 3. Bereich eine Annähernd ähnliche rel. Änderung auf, jedoch nicht im 1. und 2. Bereich. Dort lässt sich deutlich erkennen, dass eine größere Änderung (bei kleinerer Fluenz) mit einer Wellenlänge von 400 nm erzielt werden kann. Im 2. Bereich fällt die Transiente der Messung mit 400 nm deutlich schneller ab und nähert sich somit der anderen Transienten an, wodurch sie im 3. Bereich eine annähernd gleichgroße rel. Änderung aufweisen.

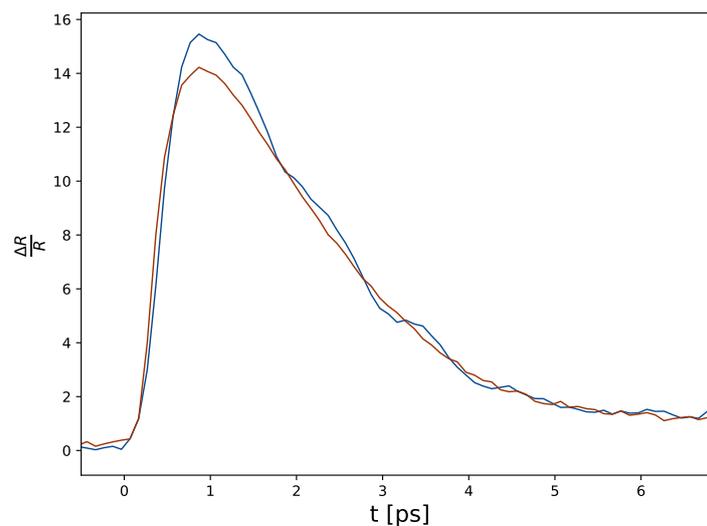


Abbildung 24: Die normierte Darstellung beider Transienten zeigt einen minimalen Unterschied in der Reflexion zu frühen Zeiten.

bei dem Vergleich beider normierten transienten wird deutlich, dass es lediglich einen kleinen Unterschied in der Maximalen Änderung der Reflexion gibt. Beide Transienten jedoch eine Zeitgleiche Ausbildung des Plateaus aufweisen.

### 3.4.2 Transiente Spektren

Betrachtet man zunächst den 1. Bereich, so fällt auf, dass bei einer Anregung von 800 nm bei kleineren Wellenlängen früher eine klar positive Änderung festzustellen ist.

Bei beiden Messungen ist das Maximum der Reflexionsänderung bei einem Zeitpunkt von 0.3 ps gleich ausgeprägt. Danach steigt das Maximum der Messung mit 400 nm jedoch schneller an und erreicht eine maximale Ausprägung von ca. 0.1. Die maximale Änderung des Maximums der Messung mit 800 nm erreicht zum gleichen Zeitpunkt lediglich eine Änderung von 0.06. Diese Änderung weist die andere Messung bereits zu einem Zeitpunkt von 0.5 ps auf.

Betrachtet man nun das Verhalten des Nulldurchgangs genauer, so scheint sich dieser in den Messungen selber zu diesen Zeiten nicht zu verschieben. Jedoch ist dieser bei den beiden Messungen nicht identisch, sondern verschoben. So ist der Nulldurchgang der Messung mit 400 nm bei größeren Wellenlängen als der der Messung mit 800 nm. Des Weiteren sind auch die Minima beider Messungen gleichermaßen gegeneinander verschoben.

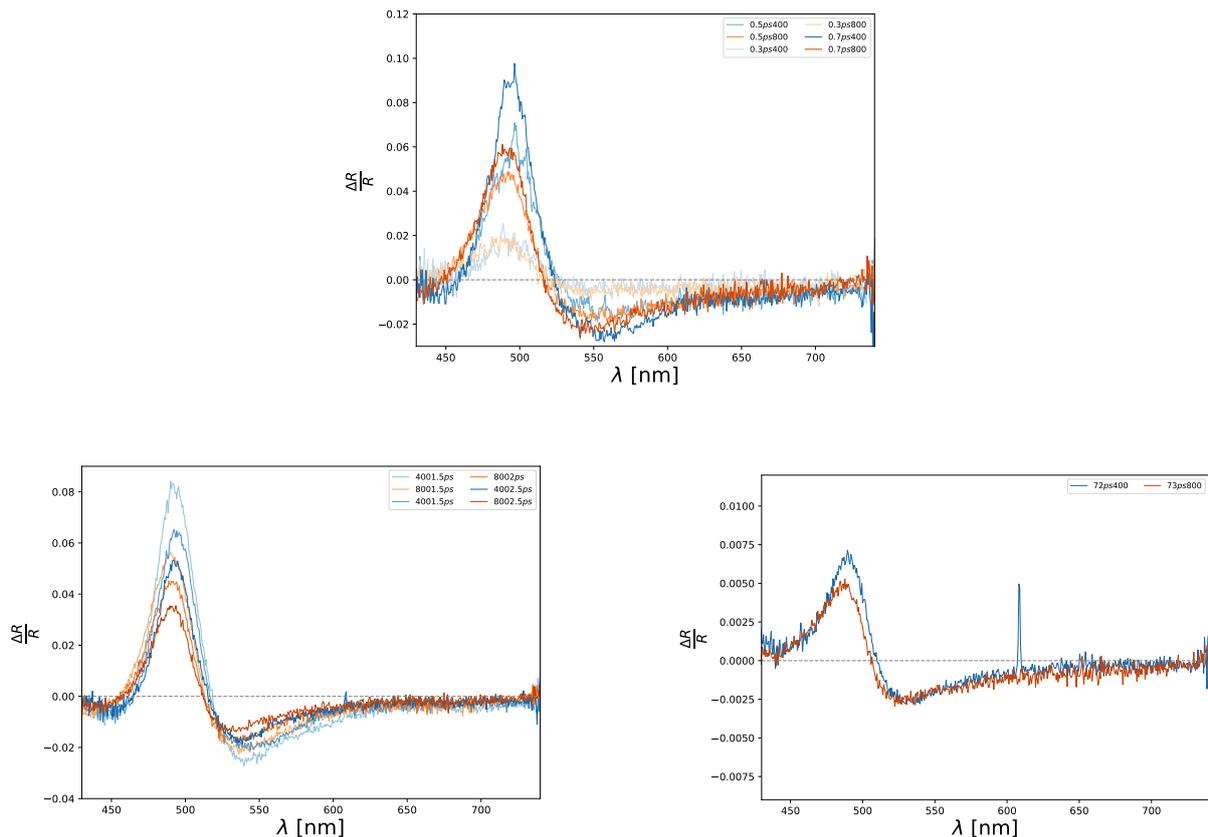


Abbildung 25: Vergleich der Spektren im 1. Bereich (oben), 2. Bereich (unten links) und im 3. Bereich (unten rechts) in orange dargestellt ist die Fluenz von  $0.72 \frac{\Delta R}{R}$  und in blau  $0.15 \frac{\Delta R}{R}$

Betrachtet man nun den 2. Bereich so bleibt der Versatz vom Nulldurchgang und dem Minimum

erhalten. Dennoch verschiebt sich der Nulldurchgang bei beiden Messungen mit steigender Zeit zu kleineren Wellenlängen. Die Ausprägung beider Maxima zu gleichen Zeiten ist auch hier immer verschieden. So ist die Ausprägung bei einer Verwendung von 400 nm als Pump-Strahl immer größer. Eine gleichgroße rel. Änderung tritt auf, wenn bei der Messung mit 400 nm 2.5 ps und bei der Messung mit 800 nm 1.5 ps vergangen sind.

Beide Messungen zeigen ansonsten ein Abflachen von Minimum und Maximum mit steigender Zeit.

Der 3. Bereich zeigt nach wie vor einen Versatz des Nulldurchgangs. Des weiteren sind die Minima gegeneinander verschoben, weisen jedoch die gleiche Ausprägung auf.

Anders sieht das beim Maximum aus. dort ist die Änderung der Messung mit einer Fluenz von  $0.15 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  nachwievor stärker ausgeprägt.

## 4 Modellierung der transienten Reflexivität von Gold

Die gemessenen Transienten weisen einen ähnlichen Verlauf auf, wie die Temperatur der Elektronen über die Zeit im Zwei-Temperatur-Modell (siehe 2.1 und 24). Jedoch nimmt, wie bereits in Unterkapitel 2.3 erwähnt, der Abstand der Simulierten Maxima der Reflexionsänderung  $\frac{\Delta R}{R}$  mit steigender Temperatur ab. Daraus lässt sich ableiten, dass es keinen linearen Zusammenhang zwischen der Temperatur der Elektronen und der Reflexionsänderung der Goldschicht gibt. Für den gewählten Wellenlängenbereich der Transienten (480 nm bis 500 nm) ist dies in der nachfolgenden Grafik veranschaulicht.

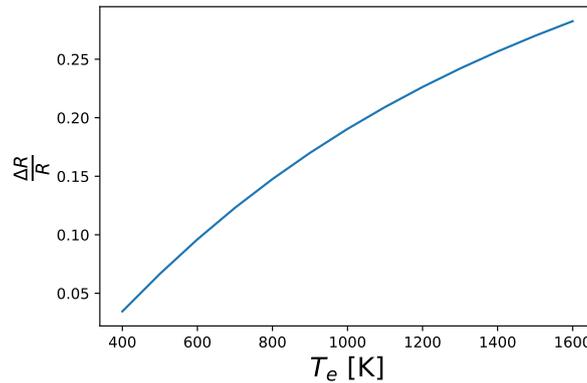


Abbildung 26: Es ist klar zu erkennen, dass die Reflexionsänderung nicht linear mit der Temperatur zusammenhängt. Der Betrachtete Wellenlängenbereich für die Reflexionsänderung ist dabei im Bereich von 480 nm bis 500 nm.

Diese Darstellung lässt sich nutzen um jedem Wert der Reflexionsänderung eine Temperatur zuzuordnen. Die so bestimmte Temperatur der Elektronen ist jedoch lediglich eine grobe Näherung. Eine andere Möglichkeit an die Temperatur der Elektronen zu gelangen ist durch den Vergleich der simulierten dielektrischen Funktion von Gold mit den gemessenen Transienten Spektren.

Bei der Betrachtung der Abbildung 27 lässt sich bereits eine klare Ähnlichkeit zwischen den gemessenen Daten und der Simulation feststellen. Der gewählte Temperaturbereich der Simulierten Daten erstreckt sich dabei von 300 K bis hin zu 700 K in 100 K Schritten. Der Zeitpunkt zu dem die gemessenen Spektren ausgewählt wurden liegt bei  $\sim 1$  ps, da dies dem Zeitpunkt entspricht zu dem die größte Reflexionsänderung festzustellen ist.

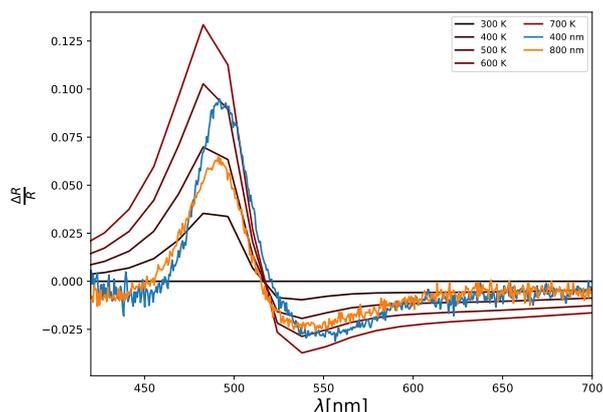


Abbildung 27: Die simulierte Daten sind durch einen roten Farbverlauf dargestellt und weisen eine Verschiebung der Extrema im Vergleich zu den gemessenen Daten auf. Die gemessenen Daten sind dabei durch Orange bzw. Blau gekennzeichnet.

Der Übersicht halber betrachten wir die gemessenen Spektren nacheinander. Zunächst betrachten wir das Spektrum, welches durch eine Fluenz von  $0.72 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  generiert wurde. Wie in Abbildung 28 zu erkennen ist lässt sich das gemessene Spektrum im Wellenlängenbereich von 480 nm bis 575 nm der Temperatur von 500 K zuordnen. Danach kommt es zu einer deutlichen Abweichung von eben dieser.

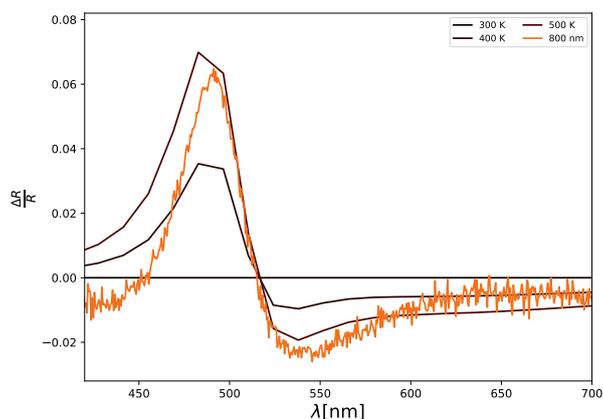


Abbildung 28: Die simulierte Daten wurden auf das gemessene Spektrum normiert. in dem Bereich von 480 nm bis 575 nm einer Temperatur von 500 K zuordnen. Außerhalb dieses Bereiches weicht die Simulation deutlich von den gemessenen Daten ab.

Betrachtet man nun das Spektrum welches durch eine Fluenz von  $0.15 \frac{\Delta R}{R}$  generiert wurde, so lässt es sich im gleichen Wellenlängenbereich einer Temperatur von 600 K zuordnen (siehe Abbildung 29). Wie auch in Abbildung 28 kommt weicht das gemessene Spektrum außerhalb des Wellenlängenbereiches von 480 nm bis 575 nm deutlich von den Modulierten Daten ab.

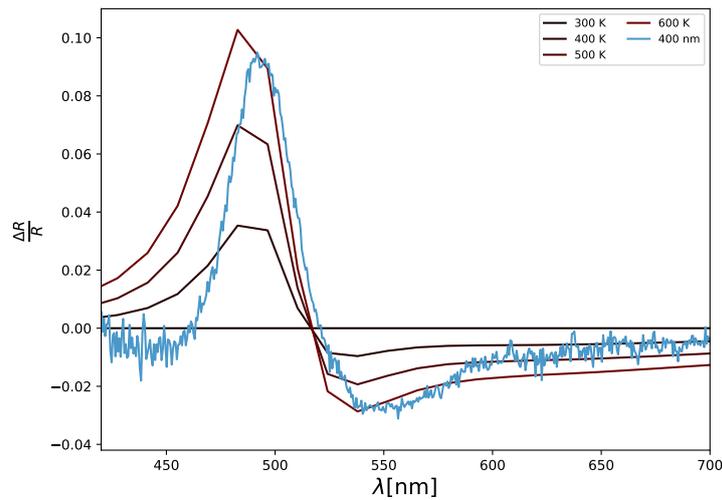


Abbildung 29: Die simulierten Daten wurden auf das gemessene Spektrum normiert. in dem Bereich von 480 nm bis 575 nm einer Temperatur von 500 K zuordnen. Außerhalb dieses Bereiches weicht die Simulation deutlich von den gemessenen Daten ab, wobei sich ab 600 nm das gemessene Spektrum zu einer Temperatur von 500 K passt.

Selbiges lässt sich für späte Zeiten aus dem 3. Bereich betrachten.

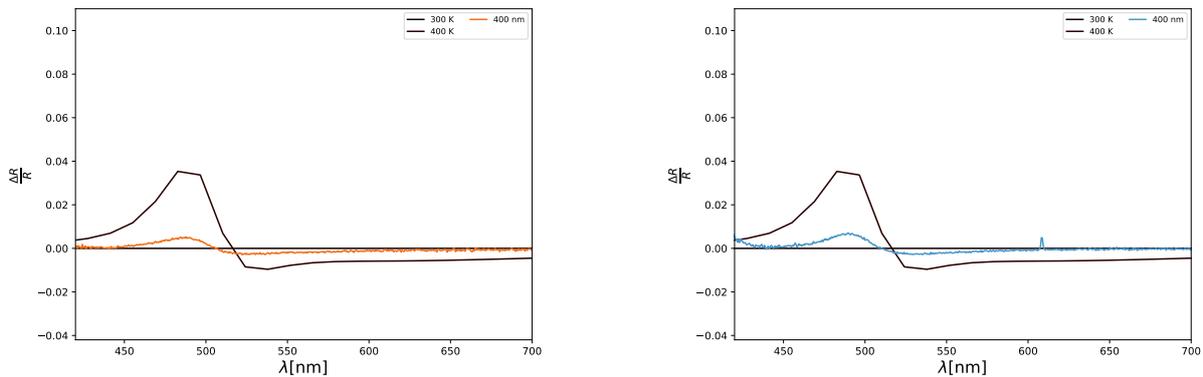


Abbildung 30: Zu späten Zeiten lassen sich beide gemessenen Spektren keiner der simulierten Verlaufskurven für die relative Reflexionsänderung zuordnen.

Dafür wurde der Zeitpunkt von 72 ps bzw. 73 ps gewählt. Wie bereits zuvor festgestellt verschiebt sich der Nulldurchgang zu späteren Zeiten zu kleineren Wellenlängen. In Abbildung 4 ist klar zu erkennen, dass die Temperatur unter 400 K liegt. Um diese genauer zu bestimmen müsste für den Temperaturbereich von 300 K bis 400 K abermals Simulationen, jedoch in kleineren Abständen, durchgeführt werden.

Allgemein lässt sich sagen umso kleiner die gewählten Temperaturschritte gewählt werden desto genauer ist letztendlich die Bestimmung der Temperatur der Elektronen im Goldfilm.

Unter der Annahme, dass der Anstieg der Reflexionsänderung im Bereich von 300 K bis 400 K linear zur Temperatur der Elektronen verläuft, lässt sich für die Temperatur der Elektronen zum einen  $T_e = 359.73 \text{ K}$  und zum anderen  $T_e = 380.73 \text{ K}$  bestimmen. Da wir jedoch bereits gesagt haben, dass diese Annahme im allgemeinen nicht gilt ist diese Aussage mit Vorsicht zu genießen.

## 5 Fazit

Mit Hilfe eines Pump-Probe Aufbaus wurden zwei Fluenzreihenmessungen durchgeführt. Als Pump-Wellenlängen diente dabei bei der ersten Messreihe eine Wellenlänge von 800 nm und bei der zweiten Messreihe eine Wellenlänge von 400 nm.

Vergleiche der Reflexivität der einzelnen Messungen innerhalb der Fluenzreihe zeigen eine Erhöhung der maximalen Reflexionsänderung, sowie einen länger dauernden Abfall, bei steigender Fluenz. Bei der Betrachtung der dazugehörigen Transienten Spektren lässt sich eine Verschiebung des Minimums feststellen.

Zieht man außerdem das Zwei-Temperatur-Modell mit hinzu lässt sich feststellen, dass ebenso das Angleichen der Temperatur der Elektronen und Phononen länger dauert und sich das Plateau zu immer späteren Zeiten ausbildet. Dies spiegelt sich auch in den gemessenen Spektren wieder. So ist bei geringen Fluenzen deutlich zu erkennen, dass sich Spektren kleinerer Fluenzen schnell aus und auch wieder zurückbilden.

Für den Vergleich der beiden Messreihen wurden zwei Messungen ausgewählt, welche nach 60 ps eine ähnliche Änderung in der Reflexion aufweisen. Die Betrachtung der normierten Transienten beider Messungen wiesen lediglich einen minimalen Unterschied nach ca. 1 ps auf. Dies hängt sehr wahrscheinlich damit zusammen, dass die Reflexionsänderung der einzelnen Transienten bei 60 ps nicht identisch ist. Würden beide Transienten eine identische Reflexionsänderung in diesem Bereich aufweisen würde kein erkennbarer Unterschied in den Transienten zu beobachten sein.

Eine Betrachtung der transienten Spektren ermöglichte einen Vergleich der Messungen außerhalb des Wellenlängenbereiches von 480 nm bis 500 nm. So lässt sich in dem Fall ein ähnlicher Verlauf nach dem Nulldurchgang feststellen.

Da beide Transienten sowohl zu frühen, als auch zu späten Zeiten nicht die gleiche Reflexionsänderung aufweisen lässt sich eine unterschiedliche Temperatur der Elektronen im Goldfilm vermuten. Um dies zu überprüfen wurden die gemessenen Spektren mit der modulierten Reflexionsänderung verglichen. Somit ließ sich bei der durch die Fluenz von  $0.72 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  eine Temperatur von ca. 500 K und bei einer Fluenz von  $0.15 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$  eine Temperatur von 600 K feststellen.

## Literatur

- [1] URL: [https://www.rp-photonics.com/kramers\\_kronig\\_relations.html](https://www.rp-photonics.com/kramers_kronig_relations.html) (besucht am 12.11.2019).
- [2] URL: <https://www.uni-muenster.de/Physik.AP/Lange/NLOSS05-4.pdf> (besucht am 12.11.2019).
- [3] F. Antonangeli u. a. "Optical gaps and interband matrix elements of silver as a function of temperature". In: *Il Nuovo Cimento B (1971-1996)* 24.1 (Nov. 1974), S. 121–129. ISSN: 1826-9877. DOI: 10.1007/BF02724037. URL: <https://doi.org/10.1007/BF02724037>.
- [4] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin. Oldenbourg-Verlag, 2013, S. 48. ISBN: 978-3-486-71301-5.
- [5] Jürgen Bauch und Rüdiger Rosenkranz. "XRR - Röntgenreflektometrie". In: *Physikalische Werkstoffdiagnostik: Ein Kompendium wichtiger Analytikmethoden für Ingenieure und Physiker*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2017, S. 50–51. ISBN: 978-3-662-53952-1. DOI: 10.1007/978-3-662-53952-1\_25. URL: [https://doi.org/10.1007/978-3-662-53952-1\\_25](https://doi.org/10.1007/978-3-662-53952-1_25).
- [6] Andre Bojahr. "Hypersound interaction studied by time-resolved inelastic light and x-ray scattering". doctoralthesis. Universität Potsdam, 2016, S. xxiii, 201.
- [7] Robert W. Boyd. "Chapter 1 - The Nonlinear Optical Susceptibility". In: *Nonlinear Optics (Third Edition)*. Hrsg. von Robert W. Boyd. Third Edition. Burlington: Academic Press, 2008, S. 1–67. ISBN: 978-0-12-369470-6. DOI: <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-369470-6.00001-0>. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780123694706000010>.
- [8] M. Bradler, P. Baum und E. Riedle. "Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- $\mu$ J pump pulses". In: *Applied Physics B* 97.3 (Aug. 2009), S. 561. ISSN: 1432-0649. DOI: 10.1007/s00340-009-3699-1. URL: <https://doi.org/10.1007/s00340-009-3699-1>.
- [9] Demtröder. Springer, 2000. ISBN: 3-540-64219-6.
- [10] Wolfgang Demtröder. Springer, 2017, S. 243–245. ISBN: 978-3-662-55789-1.
- [11] M. Guerrisi, R. Rosei und P. Winsemius. "Splitting of the interband absorption edge in Au". In: *Phys. Rev. B* 12 (2 Juli 1975), S. 557–563. DOI: 10.1103/PhysRevB.12.557. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.12.557>.
- [12] "Layer specific observation of slow thermal equilibration in ultrathin metallic nanostructures by femtosecond X-ray diffraction". In: *Nature Communications* 9 (Aug. 2018). DOI: 10.1038/s41467-018-05693-5. URL: <https://doi.org/10.1038/s41467-018-05693-5>.
- [13] R. Rosei. "Temperature modulation of the optical transitions involving the Fermi surface in Ag: Theory". In: *Phys. Rev. B* 10 (2 Juli 1974), S. 474–483. DOI: 10.1103/PhysRevB.10.474. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.10.474>.
- [14] Tatjana Stoll u. a. "Advances in femto-nano-optics: ultrafast nonlinearity of metal nanoparticles". In: *The European Physical Journal B* 87.11 (Nov. 2014), S. 260. ISSN: 1434-6036. DOI: 10.1140/epjb/e2014-50515-4. URL: <https://doi.org/10.1140/epjb/e2014-50515-4>.
- [15] C.-K. Sun u. a. "Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold". In: *Phys. Rev. B* 50 (20 Nov. 1994), S. 15337–15348. DOI: 10.1103/PhysRevB.50.15337. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.50.15337>.

## **Selbstständigkeitserklärung**

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Bachelorarbeit selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Literatur und Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Stellen sind als solche kenntlich gemacht.

Die Arbeit wurde bisher in gleicher oder ähnlicher Form keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt und auch nicht veröffentlicht.

Potsdam, den 12. Juli 2022

Reneé Andrea Nitzsche