

Quellen und
Detektionsverfahren für
lasererzeugte intensive
THz-Pulse

Diplomarbeit
von
Frank Jacob

PHYSIKALISCHES INSTITUT
DER JOHANN WOLFGANG GOETHE-UNIVERSITÄT
FRANKFURT AM MAIN

1. 10. 2000

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mit zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Roskos für die Vergabe dieser Diplomarbeit und die Bereitstellung der dafür benötigten Mittel. Besonderen Anteil am Erfolg dieser Arbeit hat Torsten Löffler, dessen effiziente und rationelle Herangehensweise mir manchen Umweg ersparten. Außerordentlich wertvoll waren die ausgiebigen Diskussionen mit Mark Thomson und seine profunden Erläuterungen. Ihm verdanke ich zahlreiche Ideen und Anregungen.

Des weiteren bedanke ich mich für die gute und angenehme Arbeitsatmosphäre bei allen Diplomanden, Doktoranden und Mitarbeitern der Arbeitsgruppe, deren Hilfsbereitschaft über manche Hürde hinweghalf. Nicht zuletzt schulde ich den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt Dank für die hochwertige und rasche Umsetzung vieler Ideen.

Schließlich möchte ich meinen Eltern, die mir stets helfend zur Seite standen, und der Studienstiftung des deutschen Volkes für die Unterstützung meines Studiums danken.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	2
2	Grundlagen	4
2.1	Erzeugung von THz-Strahlung	4
2.1.1	Großflächige Antennen	5
2.1.2	Intrinsische Emmitter	6
2.1.3	Frequenzmischen	6
2.2	Detektion von THz-Strahlung	7
2.2.1	Antennen	7
2.2.2	EO-Detektion	8
2.3	Versuchsaufbau	9
2.4	Lasersystem	11
2.5	Optische Bandbreite	12
2.6	Fokussierung von THz-Strahlung	14
3	THz-Emitter	19
3.1	Halbleiter mit externem elektrischen Feld	19
3.1.1	Abhängigkeit von der Vorspannung	19
3.1.2	Abhängigkeit von der Pump-Intensität	21
3.1.3	Spektrum und zeitlicher Verlauf	23
3.2	Intrinsischer Halbleiter	26
3.2.1	Sättigungsverhalten	28
3.2.2	Spektrum und zeitlicher Verlauf	29
3.3	Elektrooptischer Emmitter	30
3.3.1	Phasenanpassung	30
3.3.2	Winkelabhängigkeit	34
3.3.3	Sättigungsverhalten	35
3.3.4	Spektrum und zeitlicher Verlauf	36
3.4	Plasma	40
3.4.1	Plasmaerzeugung	40
3.4.2	Spektrum und zeitlicher Verlauf	41
3.5	Vergleich und Ausblick	43
3.5.1	Zeitlicher Verlauf	44
3.5.2	Frequenzspektrum	45

3.5.3	Sättigungsverhalten	46
3.5.4	Flächenabhängigkeit	47
3.5.5	Diskussion und Ausblick	49
4	THz-Detektoren	52
4.1	Antennen	52
4.2	Elektrooptischer Detektor	56
4.2.1	Analysator	56
4.2.2	THz-Pulsenergie	59
4.2.3	Spektrale Bandbreite des EO-Detektors	61
4.2.4	Abhängigkeit der Bandbreite von der Probe-Pulslänge	63
4.3	Ausblick	64
4.3.1	Dynamische Lockin-Bereichsanpassung	65
4.3.2	Bandbreite	66
4.3.3	Detektorkristall	68
5	Spektroskopie	69
5.1	Grundlagen	69
5.1.1	Versuchsaufbau	69
5.1.2	Datenanalyse	70
5.1.3	Wasserabsorptionen	72
5.2	THz-TD-Spektroskopie	73
5.2.1	GaAs	74
5.2.2	ZnTe	77
5.3	Optisch gepumpte THz-Zeitbereichs-Spektroskopie	79
5.3.1	Versuchsaufbau	79
5.3.2	LT-GaAs	80
5.4	Ausblick	83
6	Zusammenfassung	85
A	Zeit-/ Bandbreiten-Produkt	88
B	Autokorrelation des optischen elektrischen Feldes	89
C	Fokusradius	90
D	Gruppenbrechungsindex	92
E	EO-Phasenanpassung	93

Teile dieser Arbeit wurden veröffentlicht in:

„Generation of terahertz pulses by photo-ionization of electrically biased air“

T. Löffler, F. Jacob and H. G. Roskos

Appl. Phys. Lett. **77**, 453 (2000)

„THz generation by photo-ionization of electrically biased air“

T. Löffler, F. Jacob and H. G. Roskos

Springer Series of Ultrafast Phenomena XII, in press

Kapitel 1

Einleitung

Leistungsstarke kohärente Quellen und Detektoren für beinahe jede Wellenlänge elektromagnetischer Strahlung existieren seit vielen Jahrzehnten. Das Spektrum reicht dabei von langwelligeren Radiowellen, über Mikrowellen, dem sichtbaren Licht bis hin zu Röntgenstrahlen. Lange Zeit klaffte aber in dem Bereich zwischen Mikrowellenstrahlung, die z.B. von MASERN oder Gunn-Oszillatoren erzeugt werden kann, und dem Infraroten, das unter anderem von Lasern emittiert wird, eine Lücke, die von etwa 100 GHz bis zu einigen THz ($1 \text{ THz} \equiv 10^{12} \text{ Hz} \equiv 33 \text{ cm}^{-1} \equiv 4 \text{ meV}$) reichte. Da zahlreiche physikalisch interessante Phänomene, wie z.B. Phononenresonanzen in Kristallen oder Rotationsübergänge von Molekülen in diesem Frequenzbereich liegen, bestand großes Interesse an der Schließung dieser Frequenzlücke.

Mit der Entwicklung von Kurzpulslasern, die in den letzten Jahren Pulslängen von unter 10 fs ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) erreichten, eröffneten sich neue Möglichkeiten zur Generation von THz-Strahlung. 1975 entwickelte D. Auston den nach ihm benannten optoelektronischen Schalter, der durch die Nutzung kurzer Laserpulse kohärente THz-Strahlung emittieren und detektieren kann. In den nachfolgenden Jahren fand eine zunehmend schnellere Verbesserung und Entwicklung neuartiger Detektions- und Emissionsverfahren von THz-Strahlung statt, die von den schnellen Fortschritten der Femtosekunden-Lasertechnologie unterstützt wurde. Die erreichten höheren Leistungen erlaubten erste Anwendungen, wie z.B. die **THz-Time Domain Spectroscopy** (THz-TDS), mittels derer inzwischen ein breites Spektrum an Proben (Festkörper, Flüssigkeiten, Gase und auch Flammen) spektroskopiert wurde. Da durch die kohärente Detektion des THz-Pulses sowohl die Amplituden- als auch die Phasen-Information gewonnen werden, können zugleich der Absorptionskoeffizient und der Brechungsindex der Probe direkt bestimmt werden.

Eine Erweiterung der THz-TDS besteht darin, die Probe zusätzlich optisch anzuregen und die THz-Absorption bzw. THz-Dispersion in Abhängigkeit von der optischen Anregung zu messen (z.B. mit zusätzlicher Änderung der zeitlichen Verzögerung oder der optischen Intensität). Diese sogenannte Ultrakurzzeit-Spektroskopie ermöglicht die Untersuchung ultraschneller Phänomene wie der Ladungsträgerdynamik in Halbleitern oder der Schwingungsdynamik von Molekülen in Flüssigkeiten.

Zunehmendes Interesse erfahren bildgebende Verfahren, bei denen analog zu Röntgenaufnahmen aus örtlich aufgelösten spektroskopischen Informationen der THz-TDS - wie Absorption oder Dispersion - ein Bild der Probe zusammengesetzt wird. Dabei sind zahlreiche Anwendungen in der Medizin, Qualitätsprüfung, Biologie oder Sicherheitstechnik denkbar.

In den letzten Jahren stehen durch die Entwicklung der regenerativ verstärkten Lasersysteme zunehmend hohe optische Intensitäten mit Spitzenleistungen über 10 GW zur Verfügung¹. Diese hohen Pulsenergien können zur Generation intensiver THz-Pulse genutzt werden, wobei eine höhere Konversionseffizienz nichtlinearer Emissions- und Detektionsverfahren zu erwarten ist. Andererseits sind die intensiven THz-Pulse an sich zur Beobachtung von nichtlinearen und Sättigungseffekten notwendige Voraussetzung. Aber auch für Anwendungen wie bildgebende Verfahren bieten diese hohen Intensitäten neue Möglichkeiten, wie die flächige Detektion, bei der mittels einer CCD-Kamera mit nur einem Puls ein hochauflösendes Bild der ganzen Probe aufgenommen werden kann.

Ziel dieser Arbeit ist der Vergleich verschiedener THz-Emissions- und Detektionsverfahren im Hinblick auf die Eignung für das verwendete regenerativ verstärkte Lasersystem. Weiterhin wird die Verwendbarkeit der derart optimierten Apparatur zur THz-TDS und für optisch angeregte Pump-Probe-Experimente durch erste Messungen nachgewiesen.

Diese Diplomarbeit gliedert sich im wesentlichen in drei Teile: Nach einer kurzen Einführung in die Grundlagen der THz-Emission und Detektion in Kapitel 2 wird in Kapitel 3 ein Vergleich zwischen drei etablierten THz-Emissionsverfahren (großflächige extern vorgespannte Antennen, intrinsische Halbleiter und elektrooptische Emission) und einem neuartigen Emitter (extern vorgespanntes Plasma) angestellt.

Der zweite Teil der Arbeit (Kapitel 4) befaßt sich mit zwei gebräuchlichen Detektionsverfahren (Halbleiter-Antennen und elektrooptische Detektion) und prüft sie hinsichtlich ihrer Eignung für das Lasersystem.

Im dritten Teil (Kapitel 5) werden erste THz-TDS und optisch angeregte Pump-Probe-Messungen mit dem entwickelten System an verschiedenen Materialien vorgestellt. Kapitel 6 faßt die gewonnenen Ergebnisse zusammen und zeigt Möglichkeiten zur weiteren Systemoptimierung auf.

¹Addiert man die Leistung sämtlicher 1995 weltweit existierenden 432 Atomkraftwerke, erhält man eine Gesamtleistung von 340 GW [Bri00]. Die Spitzenleistung des optischen Pulses entspricht also der Leistung von etwa 13 Atomkraftwerken.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 Erzeugung von THz-Strahlung

Terahertz-Strahlung kann durch verschiedene Verfahren mittels ultrakurzer Laserpulse erzeugt werden. Die am häufigsten eingesetzte Methode beruht auf der schnellen Änderung der Ladungsträgerverteilung in Halbleitern, wie z.B. Silizium oder Galium Arsenid.

Wenn Licht auf eine Halbleiteroberfläche trifft, werden Photoladungsträger durch die Absorption von optischen Photonen generiert und der Halbleiter wird leitend. Die Wellenlänge des Lichts muß so gewählt sein, daß die Photonenenergie hc/λ über der Bandlücke des Halbleiters liegt. Fällt kein Licht mehr auf die Oberfläche, wird durch schnelle Rekombination der Ladungsträger der ursprüngliche Zustand wiederhergestellt. Auf diesem Prinzip beruht der opto-elektronische Schalter, dessen Stromfluß durch auftreffendes Licht kontrolliert wird. Zuerst wurde dieses Prinzip von Auston et al. 1975 [JA75] zur Erzeugung von THz-Strahlung genutzt, weshalb dieser Schalter auch „Auston-Schalter“ genannt wird. Ein Auston-Schalter besteht aus mikrometergroßen lithographisch hergestellten Metallbahnen auf einem Halbleiter, wie ihn Abb. 2.1 zeigt.

Die entscheidende Eigenschaft des Auston-Schalters, die ihn erst zum THz-Emitter macht, ist die Zeitskala von ps (10^{-12} s), auf der das Schließen und Öffnen des Stromkreises geschieht. Zum Schalten in diesem sub-Pikosekunden-Bereich sind Lichtpulse mit einer entsprechenden Kürze nötig. Die durch diese Pulse verursachte Änderung der Leitfähigkeit des Halbleiters bewirkt eine entsprechende Modulation des Stromflusses der externen Stromquelle. Um die vollständige Modulation auf einer der Laserpulslänge ähnlichen Zeitskala zu ermöglichen, ist die Verwendung von Halbleitern mit besonders schnellen Rekombinationszeiten notwendig. Häufig verwendet werden ionenimplantiertes Si und low-temperature-grown (LT-) GaAs, die durch Störstellen eine schnellere Rekombination der Ladungsträger bewirken.

Betrachtet man vereinfachend den Auston-Schalter als elektrischen Dipol mit zeitlich veränderlichem Dipolmoment $\mathbf{p}(t)$, so kann die klassische Lösung der Maxwellgleichungen in Dipolnäherung übernommen werden. Für das Fernfeld eines Hertzschen Dipoloszillators (Abstand wesentlich größer als die Wellenlänge der emittierten Strahlung $|\mathbf{r}| \gg \lambda$, auch

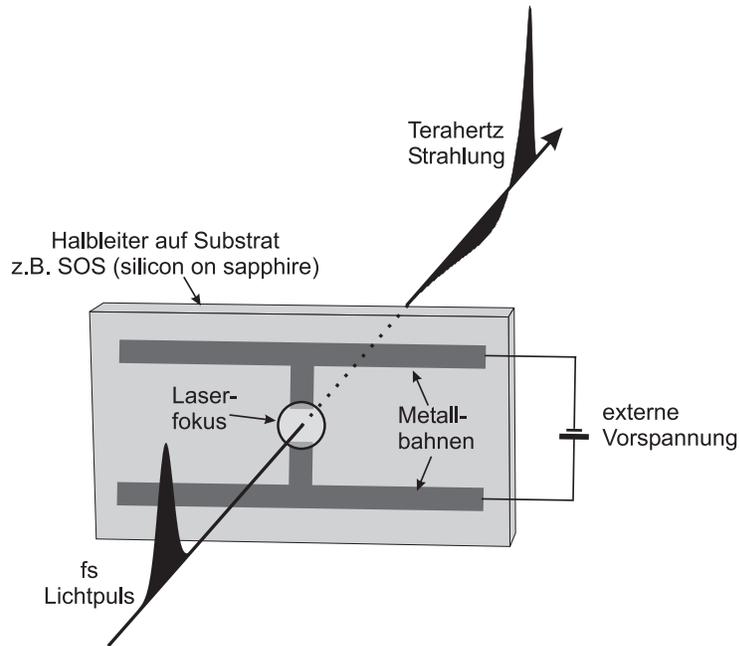


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines typischen Auston-Schalters. Die Breite der photoleitenden Lücke liegt in der Größenordnung einiger Mikrometer.

Strahlungszone genannt) ergibt sich [Gre91]

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \propto \frac{\mu_0 \mu_r}{4\pi r^3} (\ddot{\mathbf{p}} \times \mathbf{r}) \times \mathbf{r} \quad (2.1)$$

Das Dipolmoment kann dabei verstanden werden als Summe der Momente der einzelnen Ladungsträger q im Abstand d . Nimmt man vereinfachend für d die Dipollänge, ergibt sich $\mathbf{p} = \mathbf{d} \sum q$. Da die Dipollänge für den Auston-Schalter konstant ist, erhält man $\ddot{\mathbf{p}} \propto \ddot{q}d = \dot{I}d$ (I elektrischer Strom). (2.1) läßt sich damit für die Feldamplitude E vereinfachen zu

$$E(r, t) \propto \frac{\mu_0}{4\pi r} (\dot{I}(t) d) \quad (2.2)$$

woraus resultiert, daß der durch Schließen und Öffnen des Auston-Schalters modulierte Strom Quelle elektromagnetischer Strahlung ist. Das abgestrahlte E-Feld ändert sich daher auf einer ähnlichen Zeitskala wie der Stromfluß, womit sich eine Schwingungsdauer im Pikosekunden-Bereich und damit THz-Frequenzen ergeben.

2.1.1 Großflächige Antennen

Auf der Suche nach stärkeren THz-Emittlern fand man, daß vor allem bei Nutzung intensiver Laserstrahlung die Auston-Schalter nicht mit den höheren Leistungsdichten skalieren und der Generationsprozeß ineffizienter wird. Zum Teil werden die Antennen durch die hohen optischen Leistungsdichten sogar zerstört. Diese Sättigungseffekte lassen sich aber durch Vergrößerung der photoleitenden Lücke vermeiden, was zu großflächigen Antennen (engl. large aperture antenna) führte.

Diese entartete Form eines Auston-Schalters besteht aus einem großflächigen, dünnen Halbleiter, an dessen Seiten durch Kontaktierung, z.B. mittels Metallkontakten, eine Hochspannung angelegt wird. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten großflächigen Antennen basieren auf GaAs und haben einen Elektrodenabstand von 3 cm. Die elektrische Feldstärke der externen Vorspannung kann trotz dieses größeren Abstands in einer ähnlichen Größenordnung von kV/cm liegen, wie sie bei mikrometergroßen Antennen durch Anlegen kleinerer Spannungen erreicht wird. Durch den großen Abstand der Elektroden ist im Gegensatz zum Auston-Schalter die Größe der Antenne nicht mehr deutlich kleiner, sondern größer als die Wellenlänge (1 THz \simeq 300 μm in Luft) der generierten Strahlung, so daß der Emitter nicht mehr als Punktquelle betrachtet werden kann. Das Huygensche Prinzip sagt im Gegenteil aufgrund der Ausleuchtung des Halbleiters mit einem parallelen optischen Strahl eine kollineare Ausbreitung der emittierten Strahlung voraus.

2.1.2 Intrinsische Emitter

Halbleiter können auch ohne extern angelegtes Feld THz-Strahlung emittieren. Das Prinzip beruht auf der Nutzung des intrinsischen Oberflächenfelds des Halbleiters, das durch Bandverbiegung an der Grenzschicht entsteht. Diese Bandverbiegung ergibt sich aus der Stetigkeitsbedingung des chemischen Potentials beim Halbleiter-Luft-Übergang und wird auch Verarmungszone genannt. Da die Tiefe der Verarmungszone (Debye-Länge) im allgemeinen sehr klein ist, entstehen sehr hohe Feldstärken, die häufig die maximal anlegbaren Feldstärken extern vorgespannter Antennen übertreffen.

Erzeugt man nun an der Halbleiteroberfläche durch Licht geeigneter Wellenlänge Ladungsträger, so werden diese durch das Oberflächenfeld beschleunigt und es fließt ein zeitabhängiger Strom senkrecht zur Oberfläche. Die zeitliche Ableitung dieses Stromflusses ist analog zum Emissionsprozeß des Auston-Schalters Quelle elektromagnetischer Strahlung. Durch die Verwendung ultrakurzer optischer Pulse kann diese im Bereich von einigen THz liegen.

2.1.3 Frequenzmischen

Nichtlineare Kristalle bieten eine weitere Möglichkeit, THz-Strahlung aus kurzen optischen Pulsen zu generieren. Durch die endliche Länge ist in optischen Pulsen zwangsläufig nicht nur eine Frequenz enthalten, sondern ein Frequenzspektrum um die Zentralfrequenz des Lasers. Dieses Spektrum ist um so breiter, je kürzer der optische Puls ist.

Der nichtlineare Effekt bewirkt einen Energieaustausch zwischen verschiedenen Frequenzen elektromagnetischer Felder. Dieser Effekt ist weithin bekannt durch die Nutzung zur Frequenzverdopplung eines optischen Strahls. Der Prozeß kann verstanden werden als die Addition zweier Photonen gleicher Frequenz zu einem Photon doppelter Frequenz ($2\omega = \omega + \omega$). Durch das endliche Frequenzspektrum des optischen Pulses, das mehr als eine Frequenz enthält, ist ein weiterer Prozeß möglich, die Mischung zur Differenzfrequenz $\omega_3 = \omega_2 - \omega_1$. Die Länge des optischen Pulses bedingt, daß sich hauptsächlich Differenzfrequenzen im THz-Bereich ergeben (siehe unten). Aufgrund der im Vergleich zu optischen Frequenzen viel niedrigeren generierten THz-Frequenz wird dieses Emissionsprinzip auch als optische

Gleichrichtung (engl. optical rectification) bezeichnet.

Ein alternativer Weg zur Beschreibung der Emission durch den nichtlinearen optischen Effekt besteht in der Betrachtung der Polarisation P des Kristalls. Entwickelt man P nach Potenzen von E erhält man [Nol93]

$$P_i(E) = \epsilon_0 \left(\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k^* + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k^* E_l + \dots \right) \quad (2.3)$$

wobei die Suszeptibilität erster Ordnung $\chi^{(1)}$ ein Tensor zweiten Ranges, die Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi_{ijk}^{(2)}$ ein Tensor dritten Ranges usw. sind und materialspezifisch vom Kristall abhängen. Die Suszeptibilitäten $\chi^{(i)}$ nehmen in der Regel mit wachsendem i schnell ab, so daß selbst bei ultrakurzen Laserpulsen hoher Intensität die Entwicklung bei $\chi^{(2)}$ abgebrochen werden kann.

Der Emissionsprozeß beruht auf dieser instantanen Nichtlinearität zweiter Ordnung. Gemäß (2.3) ist $P^{(2)}(t)$ proportional zu $\chi^{(2)} |E_{opt}(t)|^2$, also zu dem Intensitätsprofil des optischen Pumpstrahls $P^{(2)}(t) \propto I_{opt}(t) = |E_{opt}(t)|^2$. Aus den Maxwellgleichungen ergibt sich direkt der Zusammenhang zwischen der Änderung der Polarisation \mathbf{P} , der Änderung der Stromdichte j und dem elektrischen Feld \mathbf{E} [Nol93]

$$\mathbf{E} \propto \frac{\partial j}{\partial t} \propto \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \propto \frac{\partial^2 I_{opt}}{\partial t^2} \quad (2.4)$$

womit das emittierte Feld in diesem einfachen Bild proportional zur zweiten zeitlichen Ableitung des optischen Intensitätsprofils ist. Aufgrund der extremen Kürze der optischen Pulse ergeben sich THz-Frequenzen der emittierten Strahlung.

2.2 Detektion von THz-Strahlung

2.2.1 Antennen

Der Auston-Schalter, wie er in Abschnitt 2.1 als THz-Emitter vorgestellt wurde, eignet sich auch zum Nachweis von THz-Strahlung. Im Unterschied zu dem in Abb. 2.1 gezeigten Schema werden sowohl die zu detektierende THz-Strahlung als auch der optische Probe-Puls auf die photoleitende Lücke der Antenne fokussiert. Anstelle der externen Vorspannung wird der Stromkreis über ein Amperemeter geschlossen. Fallen optischer Probe-Puls und THz-Strahlung exakt zeitgleich auf die photoleitende Lücke, werden durch Absorption optischer Photonen Ladungsträger erzeugt, die durch das anliegende THz-Feld (analog zum Anlegen einer externen Vorspannung) über das externe Amperemeter getrieben werden. Der gemessene Strom ist in erster Näherung proportional zum anliegenden THz-Feld. Durch Variation der zeitlichen Verzögerung τ mittels einer mechanischen Verschiebestrecke zwischen optischem Probe-Puls und THz-Feld läßt sich so die THz-Schwingung stückweise abtasten (Vergleiche Abb. 2.2).

Die Bandbreite der Antenne, also der Frequenzbereich, der durch ein derartiges Detektionsverfahren nachgewiesen werden kann, wird primär durch das Antwortverhalten und

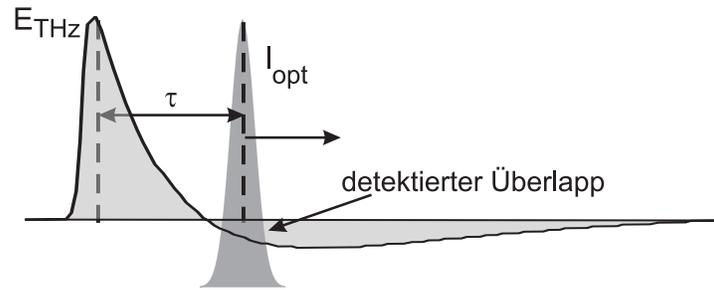


Abbildung 2.2: Das gemessene Signal kann anschaulich als $\propto I_{opt}(t + \tau) \cdot E_{THz}(t)$ betrachtet werden. Durch Variation der Verzögerung τ zwischen optischem Probe- und THz-Strahl kann die THz-Signalförmung nach und nach abgetastet werden.

die Rekombinationszeit der Photoladungsträger bestimmt. Ist die photoleitende Lücke für eine im Verhältnis zur Schwingungsperiode der THz-Strahlung vergleichbaren Zeit leitfähig, mittelt sich der Stromfluß über die THz-Schwingung zu Null und das Amperemeter mißt keinen Strom. Dementsprechend muß ein Halbleiter verwendet werden, dessen Photoladungsträger schnell (im sub-Pikosekundenbereich um THz detektieren zu können) eine hohe Mobilität erreichen und wieder rekombinieren. Vor allem die Rekombinationszeiten liegen aber typischerweise deutlich über dem Pikosekundenbereich, so daß einiger Aufwand getrieben werden muß, um die Rekombination der Ladungsträger zu beschleunigen.

Eine Möglichkeit, die Rekombinationszeiten in Halbleitern zu beschleunigen, besteht in der Ionenimplantation durch Einführung von Störstellen des Kristallgitters z.B. durch Beschuß mit 2 MeV Ar+ Ionen, wobei die Ionen das Si komplett durchdringen und damit keine elektrische Dotierung sondern eine Störung des Kristallgitters bewirken. Die erzeugten Photoladungsträger können nun sehr schnell nach ihrer Anregung in diese Störstellen fallen, womit die photoleitende Lücke schnell (im sub-Pikosekundenbereich) wieder nichtleitend wird. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ionenimplantiertes silicon-on-sapphire (SOS) als Grundmaterial für die Detektorantennen verwendet, wobei Saphir als guter Isolator mit hoher Wärmeleitfähigkeit ein ideales Substrat für Silizium darstellt. Häufig wird, wie bei der Emission, auch LT-GaAs als Material verwandt.

2.2.2 EO-Detektion

Die Grundidee der elektrooptischen (EO-) Detektion von THz-Pulsen liegt in der Beobachtung der instantanen Brechungsindexänderung, die der THz-Puls durch den elektrooptischen Effekt in einem geeigneten Material hervorruft. Die durch den geänderten Brechungsindex verursachte Verzögerung kann durch einen optischen Probe-Puls gemessen werden und erlaubt den Rückschluß auf die elektrische Feldstärke E der THz-Strahlung.

Man unterscheidet gewöhnlich zwischen zwei elektrooptischen Effekten: dem linear vom E-Feld abhängigen Pockels-Effekt und dem quadratischen Kerr-Effekt. Bei den angewendeten

elektrischen Feldstärken der THz-Pulse ist der Kerr-Effekt und alle Terme höherer Ordnung aufgrund der sehr viel kleineren elektrooptischen Koeffizienten vernachlässigbar, so daß im folgenden nur noch der lineare Term – der Pockels-Effekt – betrachtet wird. Die Änderung des Brechungsindex n durch den Pockels-Effekt läßt sich beschreiben als [Yar89]

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_i = \sum_{j=1}^3 \mathbf{r}_{ij} E_j \quad (2.5)$$

wobei \mathbf{r}_{ij} eine 6x3 Matrix ist und elektrooptischer Tensor genannt wird. Die Indizes i, j beziehen sich auf die Konvention $1 = x$, $2 = y$ und $3 = z$. i wird weiterhin über die Mischterme $4 = yz$, $5 = xz$ und $6 = xy$ indiziert. Zusätzlich zu einer möglicherweise ohnehin schon vorhandenen Anisotropie des Brechungsindex¹ kann das sogenannte Index-Ellipsoid $1/n^2 = 1$ durch das anliegende E-Feld verzerrt werden, wodurch sich unterschiedliche Brechungsindizes für die verschiedenen Ausbreitungsrichtungen ergeben.

Für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten EO-Kristalle ZnTe und GaP, die eine Zinkblendenstruktur besitzen, ergibt sich durch Symmetrie-Überlegungen eine deutliche Vereinfachung. Der elektrooptische Tensor kann mittels geschickter Indizierung auf ein relevantes Matricelement r_{41} reduziert werden [Yar89, Win99]. Damit läßt sich die durch den Pockels-Effekt verursachte Brechungsindexänderung ausdrücken als

$$\Delta n = n_x - n_y = r_{41} n^3 E \quad (2.6)$$

Diese Änderung des Brechungsindex kann mittels eines optischen Probe-Strahls gemessen werden, der kollinear mit dem THz-Puls durch den Kristall läuft. Der Anteil des optischen Pulses, der parallel zum anliegenden E-Feld des zu detektierenden THz-Pulses polarisiert ist, erfährt durch den geänderten Brechungsindex eine Phasenverzögerung. Der senkrechte Anteil hingegen „sieht“ nach wie vor den unveränderten Brechungsindex. Diese Phasenverzögerung bzw. Polarisationsänderung kann durch einen nachfolgenden Analysator bestimmt werden und liefert damit einen Wert, der proportional zum anliegenden E-Feld ist.

Analog zur Detektion mit Antennen kann nun durch Variation der Verzögerung τ zwischen dem optischen Puls und dem zu detektierenden THz-Puls der zeitliche Verlauf des THz-Feldverlaufs abgetastet werden (Vergleiche Abb. 2.2).

2.3 Versuchsaufbau

Um im Rahmen dieser Arbeit den experimentellen Vergleich der verschiedenen Emissions- und Detektionsverfahren effizient durchführen zu können, wurde Wert darauf gelegt, einen möglichst modularen Versuchsaufbau zu konzipieren, der einen vergleichsweise einfachen Umbau auf einen anderen Emittter oder Detektor erlaubt. Abb. 2.3 zeigt den Versuchsaufbau für die verschiedenen Emittter und Detektoren.

¹Ein doppelbrechender Kristall, wie z.B. LiTaO₃, besitzt auch ohne extern anliegendes Feld unterschiedliche Brechungsindizes für die ordentliche und die außerordentliche Ausbreitungsrichtung

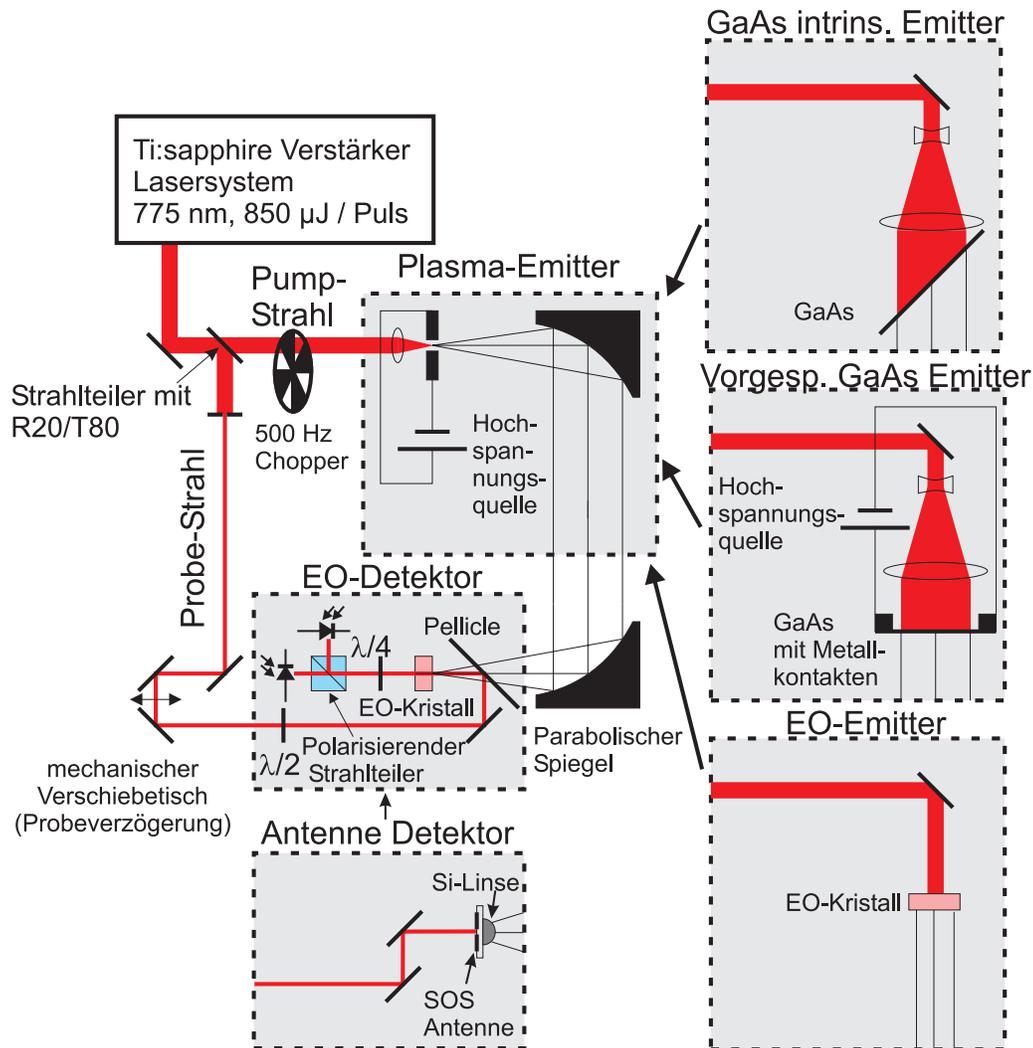


Abbildung 2.3: Experimenteller Aufbau der vier verschiedenen THz-Emitter und zweier Detektionsverfahren. Wie gezeigt, ist der THz-Strahldurchmesser des EO-Emitters zwar kleiner, wird aber aufgrund der Kollinearität auch durch den Parabolspiegel in den Detektor fokussiert.

Der optische Laserpuls wird zunächst durch einen Strahlteiler zu 80 % in Pump- und 20 % Probe-Strahl aufgeteilt. Durch einen mit der halben Laserrepetitionsrate laufenden mechanischen Licht-Zerhacker wird nur jeder zweite Puls des Pumpstrahls durchgelassen, wobei durch eine Phase-Locked-Loop sichergestellt ist, daß jeder Puls entweder ganz geblockt oder durchgelassen wird. Nach dem Licht-Zerhacker besitzt der Pump-Strahl nur noch die halbe optische Leistung, aber dieselbe Pulsenergie, da die Pulse nun nur noch eine Repetitionsrate von 500 Hz haben. Anschließend wird der Pump-Puls für den Emissionsprozeß genutzt, wobei die vier in dieser Arbeit verglichenen Emitter als Modul in Abb. 2.3 gezeigt sind. Der Plasma-Emitter stellt ein neuartiges, erst in Abschnitt 3.4 vorgestelltes Verfahren zur Generierung von THz-Pulsen dar [LJR00]. Eine detailliertere Diskussion, insbesondere der

Emissioncharakteristik aller Emitter, erfolgt in dem nachfolgenden Kapitel. Der generierte THz-Strahl wird von allen vier Emittlern kollinear emittiert und durch einen nachfolgenden Parabolspiegel auf den Detektor fokussiert.

Folgt man dem Strahlengang des Probe-Strahls nach der Aufteilung durch den Strahlteiler, so wird er zunächst durch eine variable Apertur auf einen kleineren Strahldurchmesser abgeschwächt. Nachfolgend wird der Probe-Puls derart über einen mechanischen Verschiebetisch geführt, daß er in der Nullposition des Verschiebetisches exakt zeitgleich mit dem THz-Pumpimpuls auf den Detektor-Kristall des EO-Detektors bzw. auf die Antenne des Antennen-Detektors trifft. Durch Variation der Verzögerungsstrecke kann die beschriebene Abtastung des THz-Puls erfolgen (siehe auch Abb. 2.2).

Zur Messung sowohl des Stroms der Detektor-Antenne als auch des Differenzsignals der Photodioden des EO-Detektors wird ein Lockin-Verstärker genutzt. Als Referenzsignal für den Lockin dient dabei das 500 Hz-Triggersignal des mechanischen Licht-Zerhackers. Da der Lockin damit nur die Differenz zwischen dem Detektorsignal mit THz und ohne THz mißt, wird ein konstanter Offset und die Messung von Fluktuationen vermieden, die nicht von den Emittlern herrühren. Die Photodioden des EO-Detektors, dessen Funktionsprinzip ausführlich in Abschnitt 4.2 beschrieben wird, sind mit dem Differenzeingang (A-B) des Lockin verbunden, so daß dem Prinzip der „balanced detektion“ entsprechend nur die Änderung ohne Offset gemessen wird. Schließlich kontrolliert ein PC während der Messung die Verzögerung des Probe-Strahls durch Ansteuerung des Verschiebetisches und nimmt für die verschiedenen Zeitverzögerungen die Meßwerte des Lockin-Verstärkers auf.

Typische Einstellungen für den Lockin-Verstärker, wie sie im Rahmen dieser Arbeit genutzt wurden, sind - soweit nicht anders vermerkt - Integrationszeiten von 30 ms des Lockin-Verstärkers pro Messpunkt. Der Verschiebetisch wird kontinuierlich mit einer Geschwindigkeit derart verfahren, daß in 100 ms eine Strecke durchlaufen wird, die der gewünschten minimalen Auflösung von typischerweise 0,2 ps entspricht.

2.4 Lasersystem

Zur Erzeugung und Detektion von THz-Strahlung wurde ein kommerzielles Femtosekunden-Lasersystem der Firma Clark-MXR mit der Typenbezeichnung CPA-2001 verwendet. Es handelt sich dabei um einen regenerativen Titan:Saphir-Verstärker, der von einem Nd:YAG-Laser gepumpt wird.

Das in Abb. 2.4 dargestellte Grundprinzip dieses regenerativen Lasersystems besteht in der zeitlichen Pulsaufweitung des vom Seed-Laser kommenden Pulses, gefolgt von einer Verstärkung und einer Pulscompression. Die Verstärkung um einen Faktor 10^5 wird erzielt durch den Abbau der vom regenerativen Verstärker bereitgestellten Besetzungsinversion durch den Pump-Puls bei mehrfachem Durchlaufen der resonanten Cavity. Die Besetzungsinversion des Kristalls wird durch den Nd:YAG-Laserpuls wiederhergestellt.

Die erzielten Spitzenleistungen im generierten Laserpuls von bis zu 10 GW erweisen sich als problematisch, da ein Kristall bei diesen Intensitäten seine Transparenz verliert und

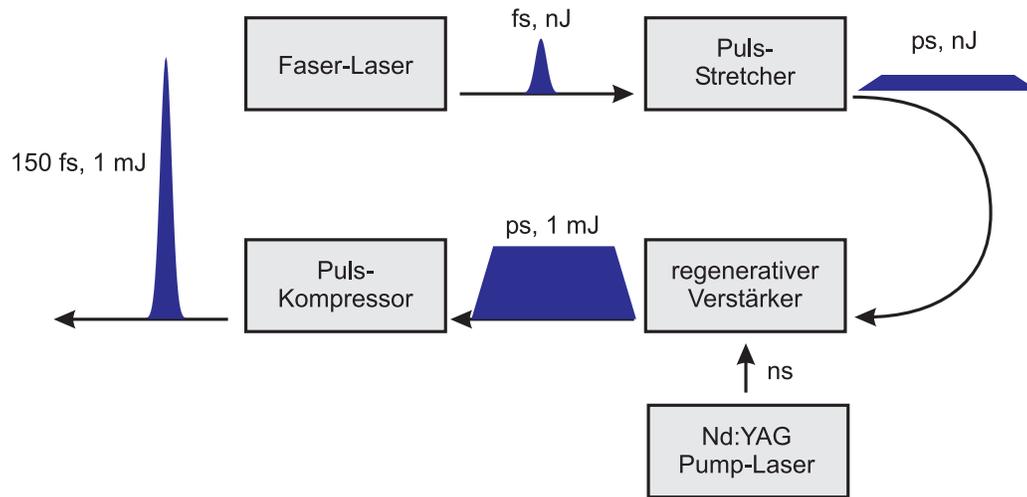


Abbildung 2.4: Funktionsprinzip eines regenerativen Verstärker-Lasersystems.

Pulsenergie	$> 800 \mu\text{J}$
Pulslänge	$< 150 \text{ fs}$
Wellenlänge	775 nm
Repetitionsrate	1 kHz
Energiestabilität	$< 2\%$
Ausgangsleistung	$> 800 \text{ mW}$

Tabelle 2.1: Zusammenfassung der wichtigsten Daten des verwendeten Lasersystems.

zerstört würde. Das verwendete Lasersystem arbeitet daher nach dem Prinzip der Chirped-Puls-Amplification (CPA): Der vom Seed-Laser generierte Puls wird zunächst im sogenannten Stretcher zeitlich aufgeweitet, wodurch die Intensität vermindert wird. Anschließend kann dieser ns-Puls ohne Zerstörung des Titan:Saphire-Kristalls verstärkt werden. Im folgenden Puls-Kompressor wird dieser verstärkte Puls wieder auf 150 fs komprimiert und besitzt nun eine Energie von 1 mJ/Puls mit einer Pulslänge von 150 fs. Tabelle 2.1 zeigt eine Zusammenfassung der wichtigsten Laserdaten.

2.5 Optische Bandbreite

Der Prozeß der EO-Emission kann wie beschrieben als Frequenzmischung zwischen Photonen des pumpenden Laserlichts betrachtet werden: Zwei Photonen der Frequenz ω_1 und ω_2 mischen sich zu einem Photon der Differenzfrequenz $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. Dabei kann ω_1 als $-\omega_1$ betrachtet werden, da nur der Realteil des komplexen E-Felds physikalische Relevanz hat und damit $E^{-\omega_2} = (E^{\omega_2})^*$ (siehe auch [Yar89]). Es wird deutlich, daß für die emittierte THz-Bandbreite die Bandbreite des optischen Pumpstrahls von entscheidender Bedeutung ist, denn je mehr Photonenpaare eine Differenzfrequenz in der Größenordnung THz haben, um so mehr THz-Leistung dieser Frequenz wird emittiert.

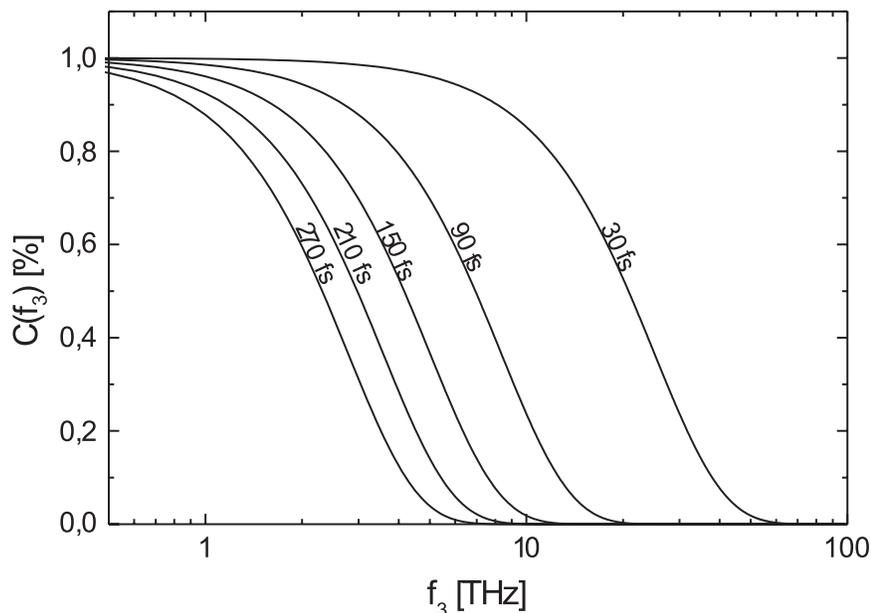


Abbildung 2.5: Halblogarithmische Darstellung der im optischen Pumpimpuls enthaltenen Differenzfrequenzen relativ zum Grenzwert für niedrige Frequenzen. Für einen idealen, verlustfreien EO-Kristall mit optimaler Phasen Anpassung für alle Frequenzen entspricht dies dem emittierten Frequenzspektrum eines EO-Emitters.

Die relevante Größe für den Emissionsprozeß ist die Autokorrelation $C(\omega_3)$ des optischen elektrischen Feldes [GG99]. In Anhang B wird $C(\omega_3)$ unter der Annahme eines gaußförmigen Intensitätsprofils hergeleitet. Damit lassen sich nun die in Abb. 2.5 gezeigten, im optischen Puls enthaltenen Differenzfrequenzkomponenten berechnen. Sie können als Obergrenze für die in der Frequenzmischung erreichbaren THz-Frequenzen angesehen werden. Durch zahlreiche weitere Faktoren (siehe Abschnitt 3.3) wie Phasenfehlanpassung, Absorption etc. können diese hohen Frequenzen aber nicht erreicht werden.

Für die von dem hier verwendeten Lasersystem erzeugten 150 fs Pulse ist der Differenzfrequenzanteil für 7,3 THz auf 10% zurückgegangen. Die Bandbreite hängt nicht nur von der Halbwertbreite ab, sondern auch sehr stark von der Pulsform, so daß schon kleine Abweichungen von der angenommenen Gaußschen Pulsform zu deutlich anderen Ergebnissen führen.

2.6 Fokussierung von THz-Strahlung

Eine für die THz-Detektion, aber auch für Spektroskopie und bildgebende Verfahren wichtige Größe ist die Fokus-Fläche A der THz-Strahlung. Da sowohl bei der EO-Detektion als auch bei der Detektion mittels Halbleiter-Antennen das gemessene Signal proportional zum elektrischen THz-Feld ist, wird bei kleinerer THz-Fokusfläche im Detektor ein größeres Signal gemessen. Dies ist unmittelbar einsichtig, wenn man bei gleichbleibender THz-Leistung im THz-Puls das elektrische Feld mittels des Poyntingschen Theorems berechnet

$$E_{THz} = \sqrt{\frac{2I_{THz}}{c \epsilon_0}} = \sqrt{\frac{2P_{THz}}{A c \epsilon_0}} \quad (2.7)$$

I_{THz} ist die Intensität mit der Dimension $[\text{W}/\text{m}^2]$ und P_{THz} die Leistung mit der Dimension $[\text{W}]$. Durch das größere gemessene Signal bei kleinerem Fokus ist eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses zu erwarten, die linear von dem Fokus-Durchmesser abhängt.

Bedingt durch die wesentlich größere Wellenlänge der THz-Strahlung unterscheidet sich das Ausbreitungsverhalten im Vergleich zu optischer Strahlung deutlich. THz-Strahlung divergiert schneller und läßt sich aufgrund des wellenlängenabhängigen Beugungslimits nicht ähnlich hart fokussieren. Die Justage ist daher sehr kritisch, die sichtbare optische Strahlung kann nur als grobe Annäherung dienen.

Da das THz-Strahlprofil analog zum optischen Pumpstrahl als gaußförmig angenommen werden kann, läßt sich die Propagation der THz-Strahlung durch den ABCD-Matrix-Formalismus beschreiben [Jep96, Yar89], der eine einfache Behandlung der Propagation durch einen komplexen optischen Aufbau erlaubt. Das elektrische Feld eines Strahls mit gaußförmigen Profil läßt sich schreiben als

$$E(x, y, z) = E_0 \frac{r_0}{r(z)} \exp \left(-i(kz - \eta(z)) - (x^2 + y^2) \left(\frac{1}{r^2(z)} + \frac{ik}{2R(z)} \right) \right) \quad (2.8)$$

wobei

$$r^2(z) = r_0^2 \left(1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi r_0^2 n} \right)^2 \right) = r_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2} \right) \quad (2.9)$$

$$R(z) = z \left(1 + \left(\frac{\pi r_0^2 n}{\lambda z} \right) \right) = z \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2} \right) \quad (2.10)$$

$$\eta(z) = \arctan \left(\frac{\lambda z}{\pi r_0^2 n} \right) = \arctan \left(\frac{z}{z_0} \right) \quad (2.11)$$

$$z_0 = \frac{\pi r_0^2 n}{\lambda} \quad (2.12)$$

Wie in Abb. 2.6 dargestellt, entspricht $r(z)$ dem Strahlenradius an der Stelle z , wobei dieser im allgemeinen als die Distanz zwischen dem Maximum und dem Abfall auf $1/e$ des maximalen Wertes definiert ist. $R(z)$ ist der Krümmungsradius der Phasenfront an der Stelle z . Der Phasenfaktor $\eta(z)$ beschreibt die Änderung der Phasenfront, die durch die endliche Ausdehnung hervorgerufen wird. z_0 entspricht der sogenannten Rayleigh-Länge, bei der ein nach klassischer geometrischer Optik berechneter Strahl einen Strahldurchmesser von r_0

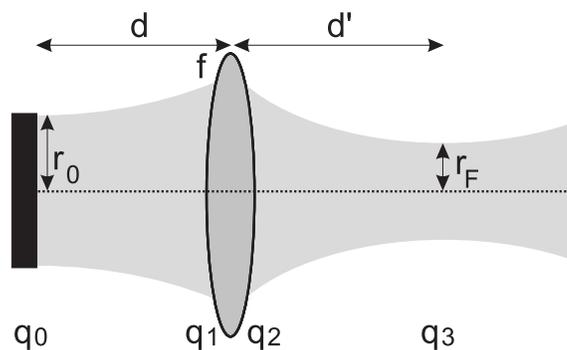


Abbildung 2.6: Propagation des Gaußschen Strahlprofils. f ist die Brennweite der Linse, r_0 der Radius direkt hinter dem Emitter und r_F der Radius des Strahlprofils im Fokus.

Element Nr.	$\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix}$	Beschreibung der optischen Komponente
1	$\begin{bmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$	Ein homogenes Medium der Länge d .
2	$\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ \frac{-1}{f} & 1 \end{bmatrix}$	Eine dünne Linse der Brennweite f .

Tabelle 2.2: Liste der für den hier verwendeten Aufbau relevanten ABCD-Matrizen in der entsprechenden Reihenfolge. Der verwandte Parabolspiegel kann als dünne Linse beschrieben werden.

hätte. Mit der Einführung des Parameters

$$\frac{1}{q(z)} \equiv \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi n r^2(z)} \quad (2.13)$$

läßt sich (2.8) schreiben als

$$E(x, y, z) = E_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp \left(-i (kz - \eta(z)) - i \frac{k(x^2 + y^2)}{2q(z)} \right) \quad (2.14)$$

Bezüglich einer ausführlichen Herleitung dieser Resultate muß an dieser Stelle auf [Yar89] verwiesen werden.

Die Propagation eines gaußförmigen Strahls läßt sich gemäß dem ABCD-Matrix-Formalismus beschreiben als

$$q_2 = \frac{Aq_1 + B}{Cq_1 + D} \quad (2.15)$$

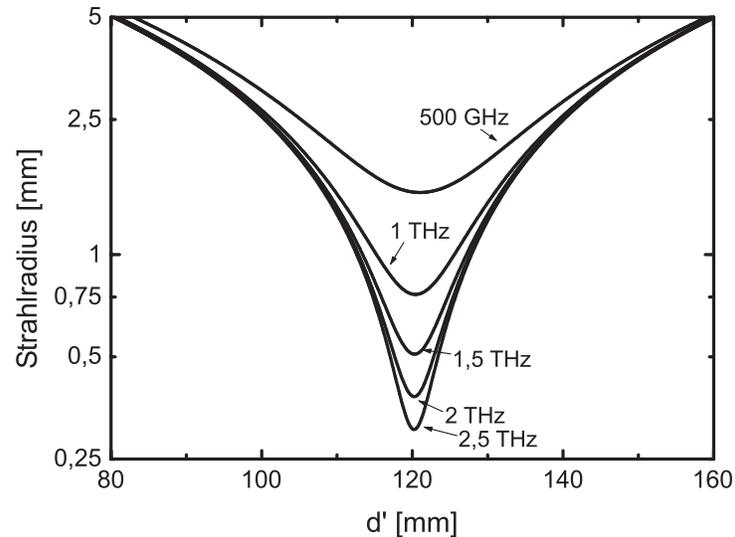


Abbildung 2.7: Halblogarithmische Darstellung der Änderung des THz-Strahlradius in Abhängigkeit von dem Abstand d' hinter dem Parabolspiegel für verschiedene Frequenzen. Zur Berechnung wurde ein Emitter mit einem Durchmesser von 3 cm angenommen, der in einem Abstand von 20 cm vor einem Parabolspiegel mit einer Fokuslänge von 12 cm steht.

wobei A , B , C und D Elemente der sogenannten Ray-Matrix sind, die die Propagation durch eine optische Komponente beschreibt. Mittels Gleichung (2.15) erhält man die Änderung von q_1 zu q_2 bei der Propagation durch die Komponente. Da die Kenntnis von $q(z)$ gemäß (2.13) unter anderem die Kenntnis des Strahldurchmessers einschließt, kann dieser für jede Position im Versuchsaufbau berechnet werden. In Tabelle 2.2 sind die hier verwendeten Ray-Matrizen aufgeführt.

Um den Strahldurchmesser nach einem Parabolspiegel² berechnen zu können, faßt man die in Tabelle 2.2 aufgeführten Ray-Matrizen durch Matrixmultiplikation zusammen und setzt sie in (2.15) ein, um mittels (2.13) einen Ausdruck für den Strahlenradius (Abfall auf $1/e$) der THz-Strahlung zu erhalten. Damit läßt sich die in Abb. 2.7 gezeigte Änderung des Strahldurchmessers in Abhängigkeit von dem Abstand hinter dem Parabolspiegel für verschiedene Frequenzen berechnen.

Es wird deutlich, daß niedrige Frequenzen sich – bedingt durch das Beugungslimit – nur wesentlich schlechter fokussieren lassen. Wie in Anhang C gezeigt, lassen sich der Fokusradius r_F – also der minimale Strahlradius – und der Abstand des Fokus von dem fokussierenden Parabolspiegel d_F ausdrücken als

$$r_F = r_0^2 \frac{d^2 + z_0^2}{D^2 + z_0^2} \quad (2.16)$$

²Ein Parabolspiegel wird im Versuchsaufbau zur Fokussierung auf den THz-Detektor genutzt und kann im ABCD-Formalismus durch eine Linse ersetzt werden, vergleiche Abb. 2.3.

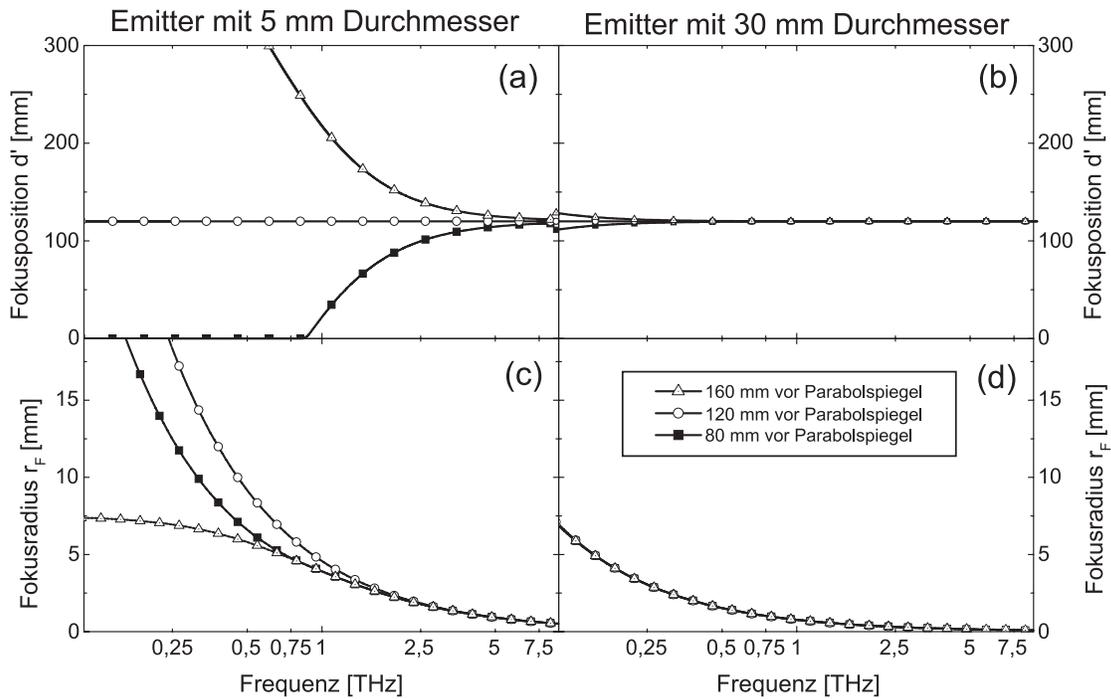


Abbildung 2.8: Berechnung der Fokusposition für einen Emittor mit einem Durchmesser von (a) 5 mm und (b) 30 mm. Es sind drei verschiedene Abstände zwischen dem THZ-Emittor und dem fokussierendem Parabolspiegel gezeigt, wovon der 120 mm Abstand der angenommenen Brennweite des Parabolspiegels entspricht. In (c) und (d) ist entsprechend der Fokusradius (also der minimale Strahlradius hinter dem Parabolspiegel) in Abhängigkeit von der THz-Frequenz dargestellt.

$$d_F = -\frac{D(d^2 + z_0^2)}{D^2 + z_0^2} \quad (2.17)$$

mit $z_0 \equiv \pi r_0^2 / \lambda$, $D \equiv d - (d^2 + z_0^2) / f$ wobei f die Brennweite des Parabolspiegels und d der Abstand Emittor-Parabolspiegel sind.

Abb. 2.8 zeigt für zwei verschiedene Emittorgrößen die Frequenzabhängigkeit der Fokusposition r_F und des Fokusradius d_F für drei verschiedene Abstände zwischen Emittor und Parabolspiegel. Es wird deutlich, daß nur für einen Abstand zwischen Emittor und Parabolspiegel, der der Brennweite entspricht, die Fokusposition frequenzunabhängig ist. Zwar lassen sich die niedrigen Frequenzen durch einen davon abweichenden Abstand härter fokussieren, das dadurch gewonnene Signal-Rausch-Verhältnis verbessert sich aber nur für die Frequenz, deren Fokusposition mit der Detektorposition übereinstimmt. Eine Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses für das gesamte Frequenzspektrum durch einen von der Brennweite abweichenden Abstand ist nicht möglich. Dementsprechend ist nur eine Positionierung des Detektors im Fokus des Parabolspiegels sinnvoll.

Geht man von einem Abstand zwischen Emittor und Parabolspiegel der Brennweite f aus,

erhält man durch Einsetzen von $d = f$ in (2.16) den Zusammenhang zwischen Emitterradius r_0 und dem Fokusradius

$$r_F = \frac{f\lambda}{r_0\pi} \quad (2.18)$$

Eine Vergrößerung der Emitterfläche bei gleichbleibender emittierter THz-Pulsleistung bewirkt also eine Verkleinerung der Fokusfläche und damit eine Vergrößerung des detektierten Signals bzw. Signal-Rausch-Verhältnisses.

Wie gezeigt, lassen sich kleine Emitter nur schlecht fokussieren. Für sehr kleine Emitter ist ein Versuchsaufbau mit zwei Parabolspiegeln deutlich besser geeignet. In diesem Fall ist die Größe des Bildes der Quelle nach dem zweiten Parabolspiegel proportional zur Fläche des Emitters. Für den hier als Beispiel angeführten Emitter mit einem Durchmesser von 5 mm fokussiert ein Aufbau mit einem Parabolspiegel vergleichbar hart wie ein Aufbau mit zwei Parabolspiegeln.

Kapitel 3

THz-Emitter

Im folgenden Kapitel wird ein Vergleich zwischen drei etablierten THz-Emissionsverfahren (großflächige extern vorgespannte Antennen, intrinsische Halbleiter und elektrooptische Emission) und einem neuartigen Emitter (extern vorgespanntes Plasma) angestellt. Alle in diesem Kapitel gezeigten Daten wurden mit dem elektrooptischen ZnTe-Detektor (vergleiche Abschnitt 4.2) und einer Lockinverstärker-Zeitmittlung von 30 ms gemessen.

3.1 Halbleiter mit externem elektrischen Feld

In diesem Abschnitt werden die wesentlichen Aspekte der Erzeugung von THz-Pulsen durch großflächige THz-Antennen untersucht. Für das Verständnis der zeitlichen Form und des Sättigungsverhaltens sind die Ladungsträgergeneration im Halbleitermaterial, die Dynamik der Ladungsträger sowie die phasengerechte Summation der elektrischen Felder von entscheidender Bedeutung. Im folgenden soll näher auf diese Faktoren eingegangen werden.

Der hier eingesetzte THz-Emitter besteht aus einem 3x3 cm großen GaAs-Wafer, der mit 3 cm langen Kupferelektroden in einem Abstand von 3 cm kontaktiert ist, um eine externe Vorspannung anlegen zu können. Diese Fläche wird vollkommen von dem durch ein Teleskop aufgeweiteten optischen Strahl ausgeleuchtet, wobei ein Teil der optischen Leistung - bedingt durch das runde Strahlprofil und den quadratischen Emitter - ungenutzt verlorengeht. Da die Antenne sehr viel größer ist als die Wellenlänge der erzeugten THz-Strahlung, kann die emittierte Strahlung am besten durch ebene Wellen beschrieben werden. Im Gegensatz dazu werden die einige Mikrometergroßen Antennen, welche in hochrepetierlichen Lasersystemen eingesetzt werden, meist als Punktquellen betrachtet.

3.1.1 Abhängigkeit von der Vorspannung

Abb. 3.1 zeigt eine optisch angeregte Antenne mit extern angelegter Spannung V_b und resultierendem elektrischen Feld \vec{E}_b . Der Emitter wird senkrecht zur Oberfläche vom optischen Puls beleuchtet, die dadurch erzeugten Ladungsträger werden in die Richtung des externen Feldes beschleunigt, und der Photostrom J_s fließt in Richtung der externen Vorspannung. Betrachtet man nun die hierdurch erzeugten elektromagnetischen Felder, so läßt sich mittels

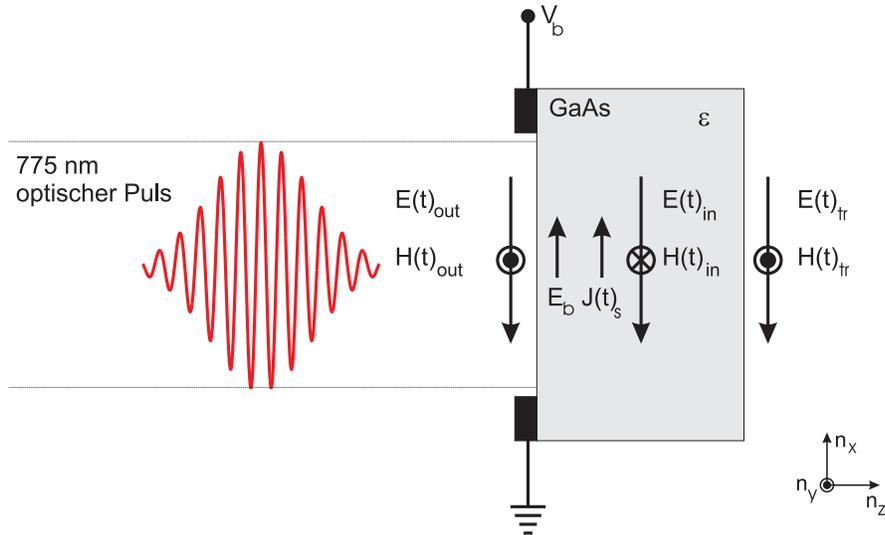


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der durch einen optischen Puls großflächig angeregten und mit einer Spannung V_b vorgespannten Antenne. Das durch die Vorspannung hervorgerufene elektrische Feld ist als E_b , die zeitabhängige Oberflächen-Stromdichte parallel dazu als $J_s(t)$ dargestellt. Gezeigt werden weiterhin die relevanten elektrischen und magnetischen Felder der erzeugten THz-Strahlung. Dabei ist E_{out} bzw. H_{out} das nach außen strahlende und E_{in} bzw. H_{in} das in die Antenne eindringende elektromagnetische Feld. E_{tr} bzw. H_{tr} ist das schließlich durch die Antenne transmittierte Feld.

der sogenannten Gaußschen Kästchen und des Stokesschen Satzes das Feldverhalten an den Grenzflächen einfach finden [Nol93, Jac75]:

$$\vec{n} \times (\vec{E}_{out} - \vec{E}_{in}) = 0 \quad (3.1)$$

$$\vec{n} \times (\vec{H}_{out} - \vec{H}_{in}) = \vec{J}_s \quad (3.2)$$

Aus Gleichung (3.1) folgt unmittelbar

$$\vec{E}_{out} = \vec{E}_{in} = \vec{E}_{THz} \quad (3.3)$$

d.h. das reflektierte E-Feld ist an der Oberfläche genauso groß wie das in den Emitter hinein abgestrahlte Feld. Dieses Ergebnis ist experimentell bestätigt worden [HDZ⁺90], steht aber im Gegensatz zu den mikrometergroßen Dipolantennen hochrepetierlicher Systeme, bei denen gezeigt wurde, daß das Feld in Richtung des Substrates größer ist als das reflektierte Feld [SAN88].

Die Maxwellgleichungen verknüpfen die abgestrahlten elektrischen und magnetischen Felder durch die folgende Beziehung [DZA92]

$$\vec{H}(t)_{in} \times \vec{n}_z = \frac{\sqrt{\epsilon}}{\eta_0} \vec{E}_{in}(t) \quad (3.4)$$

$$\vec{H}(t)_{out} \times \vec{n}_z = \frac{1}{\eta_0} \vec{E}_{out}(t) \quad (3.5)$$

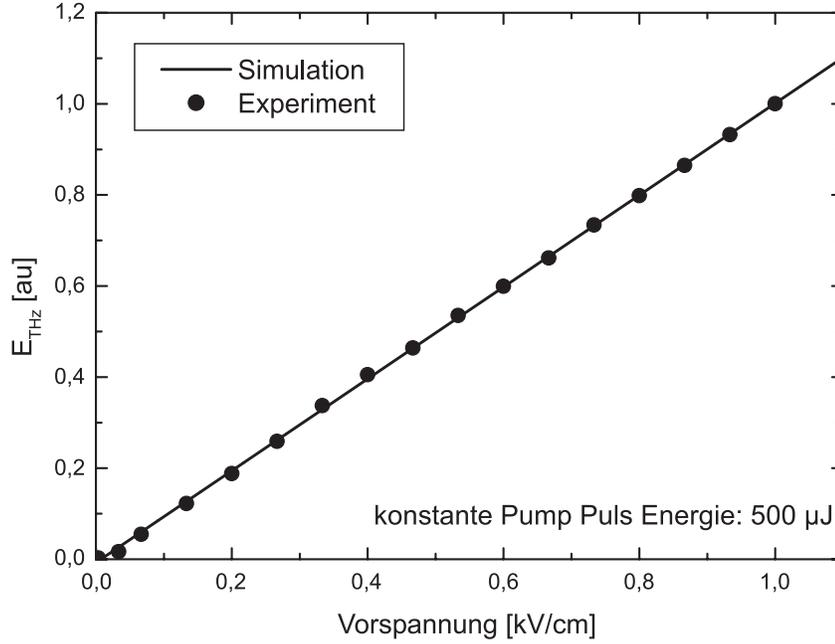


Abbildung 3.2: Detektiertes THz-Peak to Peak E-Feld aufgetragen gegen die elektrische Vorspannung des Emitters bei konstanter optischer Pumpenergie von $500 \mu\text{J}$.

wobei $\eta_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \approx 120\pi \Omega$ [Jac75] der sogenannte Freiraumwellenwiderstand ist (engl. free space impedance). Setzt man nun Gleichung (3.4) und (3.5) in Gleichung (3.2) ein und benutzt (3.3), so erhält man

$$\vec{J}_s(t) = -\frac{\sqrt{\epsilon} + 1}{\eta_0} \vec{E}_{\text{THz}}(t) \quad (3.6)$$

d.h. der Photostrom ist antiparallel und proportional zum emittierten E-Feld.

Aus dem Ohmschen Gesetz [Jac75] erhält man für die Oberflächenstromdichte $\vec{J}_s(t)$ einen Zusammenhang zur Oberflächenleitfähigkeit $\sigma_s(t)$

$$\vec{J}_s(t) = \sigma_s(t) \left(\vec{E}_b + \vec{E}_{\text{THz}}(t) \right) \quad (3.7)$$

Damit ergibt sich zusammen mit (3.6)

$$\vec{E}_{\text{THz}} = -\vec{E}_b \frac{\sigma_s(t)\eta_0}{\sigma_s(t)\eta_0 + 1 + \sqrt{\epsilon}} \quad (3.8)$$

Diese Gleichung sagt einen linearen Zusammenhang zwischen der Amplitude des emittierten THz-Feldes und der angelegten Vorspannung voraus. Wie in Abb. 3.2 gezeigt, stimmt dies gut mit der gemessenen Abhängigkeit überein.

3.1.2 Abhängigkeit von der Pump-Intensität

Das Stromstoß-Modell (engl. current surge) wurde als Mechanismus der Erzeugung von THz-Pulsen in großflächigen extern vorgespannten Antennen überwiegend anerkannt [Gri93,

[BRT94, HDZ⁺90]. Dabei wird angenommen, daß die Zahl der Ladungsträger im Leitungsband vom zeitlichen Integral der absorbierten Photonen und damit vom Integral der Intensität des optisch anregenden Pulses bestimmt wird. Der optische Puls schließt also für einen kurzen Moment den externen Stromkreis der Vorspannung und währenddessen fließt Strom. Die Mobilität der generierten Ladungsträger steigt meist langsamer an als die Dauer des optischen Pulses, so daß die Zeitabhängigkeit berücksichtigt werden muß. Der genaue Zusammenhang hängt von vielen Faktoren ab, wie z.B. der externen Vorspannung und der Photonenenergie. In einem einfachen Modell steigt die Mobilität exponentiell mit einer materialspezifischen mittleren Stoßzeit τ_s von ihrer instantanen Mobilität μ_i bis auf ihren Gleichgewichtswert μ_{dc} an

$$\mu(t) = \mu_{dc} - (\mu_{dc} - \mu_i) e^{-t/\tau_s} \quad (3.9)$$

Für GaAs beträgt die Gleichgewichtsmobilität $\mu_{dc} = 8500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, kurz nach der optischen Anregung mit einem 1,5 eV Puls wurde sie zu ca. $\mu_i = 1400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ abgeschätzt [BRT94].

Die so erzeugten Ladungsträger rekombinieren mit einer exponentiellen Rate, abhängig von der Ladungsträgerlebensdauer τ_c . Diese ist bei den meisten Halbleitern sehr viel größer als die optische Pulslänge (z.B. GaAs $\simeq 500 \text{ ps}$). Damit läßt sich die Oberflächenleitfähigkeit $\sigma_s(t)$ angeben als [BRT94]

$$\sigma_s(t) = \frac{e(1-R)}{\hbar\omega} \int_{-\infty}^t \mu(t-t') I_{opt}(t') e^{-(t-t')/\tau_c} dt' \quad (3.10)$$

Dabei ist I_{opt} die optische Pumpintensität, $\hbar\omega$ die Photonenenergie, R die optische Reflektivität und e die Elementarladung.

Setzt man nun (3.10) und (3.9) in (3.8) ein, so erhält man ein Modell für das Sättigungsverhalten des Emitters. Paßt man die Parameter τ_s und τ_c des Modells an, so findet man - wie in Abb. 3.3 gezeigt - eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Daten. Dabei erhält man für $\tau_s = 140 \text{ fs}$ und damit eine mit veröffentlichten Daten ([Gri93] 150 fs) fast exakte Übereinstimmung. τ_c beeinflusst den simulierten Sättigungsverlauf nur geringfügig und kann aus dem Sättigungsfit nicht gewonnen werden. Schall et al. geben in [SJ00] übereinstimmend mit den in Abschnitt 5.3 gezeigten Messungen eine Größenordnung von ps für τ_c an.

Es zeigt sich, daß GaAs schon für Intensitäten $< 5 \mu \text{ J/cm}^2$ zu sättigen beginnt und das emittierte THz-Feld ab etwa $30 \mu \text{ J/cm}^2$ praktisch nicht mehr mit der optischen Intensität steigt. Um die Anzahl der erzeugten Ladungsträger abschätzen zu können, muß man Annahmen über die Tiefe der Verarmungszone ($d_v = 500 \text{ nm}$ für GaAs) und das Verhältnis der auf dieser Strecke absorbierten Ladungsträger treffen ($a_v = 0,5$). Für die maximale Pumpenergie von $E = 50 \mu \text{ J/cm}^2$ ergibt sich dann eine Ladungsträgerdichte von $n \sim E(1-R)a_v/(h\nu d_v) = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, wobei $\nu = 3,75 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$ die optische Pumpfrequenz und R der Amplitudenreflektionskoeffizient der Fresnelschen Gleichungen ist. Diese Abschätzung zeigt, daß der Halbleiter durch die optische Anregung für kurze Zeit praktisch metallisch wird.

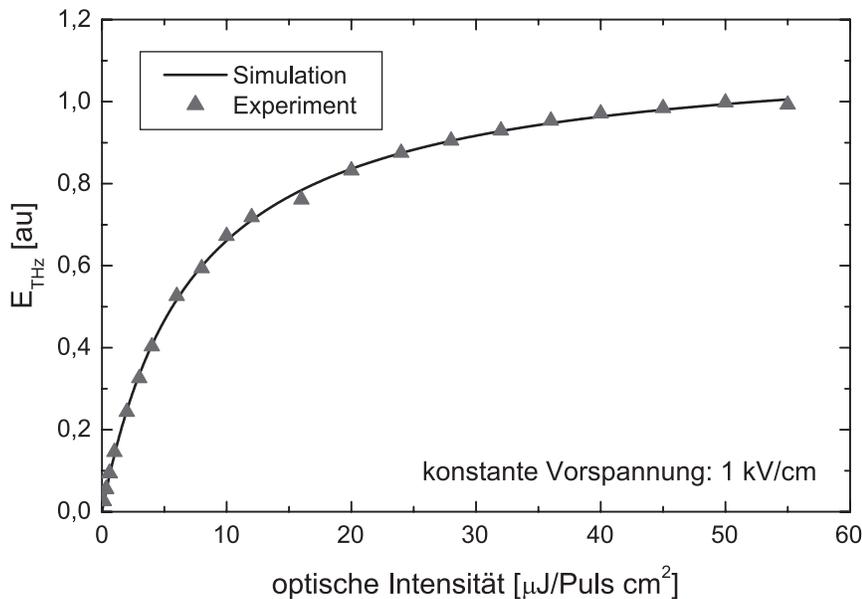


Abbildung 3.3: Abhängigkeit des detektierten THz-Feldes von der optischen Pumpuls Intensität. Die durchgezogene Linie ist eine Anpassung mit dem im Text beschriebenen Modell und den Parametern. Die Messdaten geben die maximale Signalamplitude im Zeitbereich wieder.

3.1.3 Spektrum und zeitlicher Verlauf

Der experimentell bestimmte zeitliche Verlauf und das Frequenzspektrum des emittierten THz-Feldes sollen im folgenden mit der im vorangegangenen Abschnitt entwickelten theoretischen Beschreibung verglichen werden. Da das abgestrahlte EM-Feld im Fernfeld proportional zur zeitlichen Änderung des Stromflusses ist (2.2), läßt sich aus (3.7), (3.9) und (3.10) der zeitliche Verlauf der emittierten Strahlung und damit das Frequenzspektrum berechnen. Dabei bleiben aber Propagations- sowie Beugungseffekte unberücksichtigt. Zudem wird die nicht perfekte Detektor-Charakteristik nicht mit einbezogen.

Um die Reflektion des generierten THz-Pulses im Emittor beschreiben zu können, muß die Propagation des an der Oberfläche generierten Pulses durch den GaAs-Wafer in Betracht gezogen werden. Dabei erfährt der Puls Dispersion durch die Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex $n(\omega)$ und Absorption, die vom Imaginärteil des Brechungsindex $\kappa(\omega)$ abhängt (die hier verwendeten Daten sind [Pal] entnommen). Berücksichtigt man, daß der Hauptpuls einmal und die Reflektion noch zusätzlich zweimal den Emittor durchlaufen, erhält man

$$E_{tr}(t) = t D(d) A(d) (r D(2d) A(2d) + 1) E_{in}(t) \quad (3.11)$$

wobei $r = 2/(n + 1)$ die Amplitudenreflektions- bzw. $t = (n - 1)^2/(n + 1)^2$ die Amplitudendurchlässigkeitskoeffizienten der Fresnelschen Gleichungen für den Halbleiter/ Luft-Übergang sind. $D(z) = \exp(-iz\omega n/c)$ ist die Dispersion in Abhängigkeit von der durchlaufenen Strecke z im Halbleiter, wobei d die Dicke des Wafers ist (im Experiment etwa $360 \mu\text{m}$).

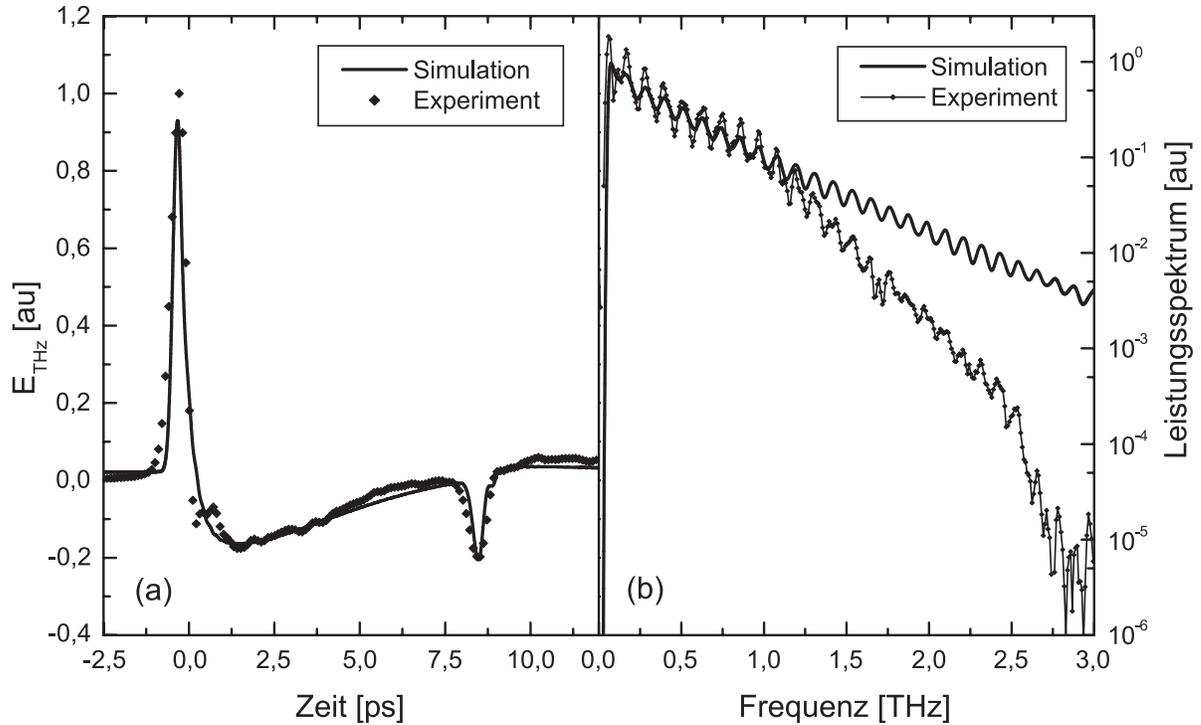


Abbildung 3.4: *Simulation und experimentelle Daten des zeitlichen Verlaufs des vom vorgespannten GaAs emittierten EM-Fernfeldes. (a) zeitlicher Verlauf mit Reflexion nach ca. 8,6 ps. (b) halblogarithmische Darstellung des Fourierspektrums mit durch die Reflexion verursachten Oszillationen.*

Entsprechend ist $A(z) = \exp(-z\omega\kappa/c)$ die Absorption im Halbleiter.

Das so erhaltene Modell stimmt, wie in Abb. 3.4a gezeigt, gut mit dem gemessenen zeitlichen Verlauf des emittierten Pulses überein. Die Beschreibung der komplexen Ladungsträgerdynamik in GaAs [LHS⁺99] ist durch das beschriebene Modell stark vereinfacht, so daß die Parameter τ_c und τ_s angepaßt wurden ($\tau_c = 3,0$ ps und $\tau_s = 260$ fs). Sowohl im Vergleich zu dem zuvor erläuterten Sättigungsfit als auch mit den in [Gri93] angegebenen Daten ergibt sich für die mittlere Stoßzeit und für die Ladungsträgerlebensdauer eine gute Übereinstimmung. Der etwa 8,6 ps später ankommende negative Puls ist die beschriebene Reflexion an der Emitter-Rückseite.

Das Frequenzspektrum des gemessenen und des simulierten Pulses (Abb. 3.4b) verdeutlicht, daß der im Experiment gemessene Puls offenbar Energie oberhalb von 1 THz relativ zur Simulation verliert. Da Verluste durch Beugung sich in erster Linie auf niedrige Frequenzen auswirken, kann dieser Effekt einem ungenügenden Frequenzverhalten des elektrooptischen Detektors zugeschrieben werden. Die Oszillationen im Frequenzspektrum von Simulation und Experiment mit einer Periode von etwa 110 GHz werden durch die Reflexion verursacht (die sogenannte Etalon-Oszillation).

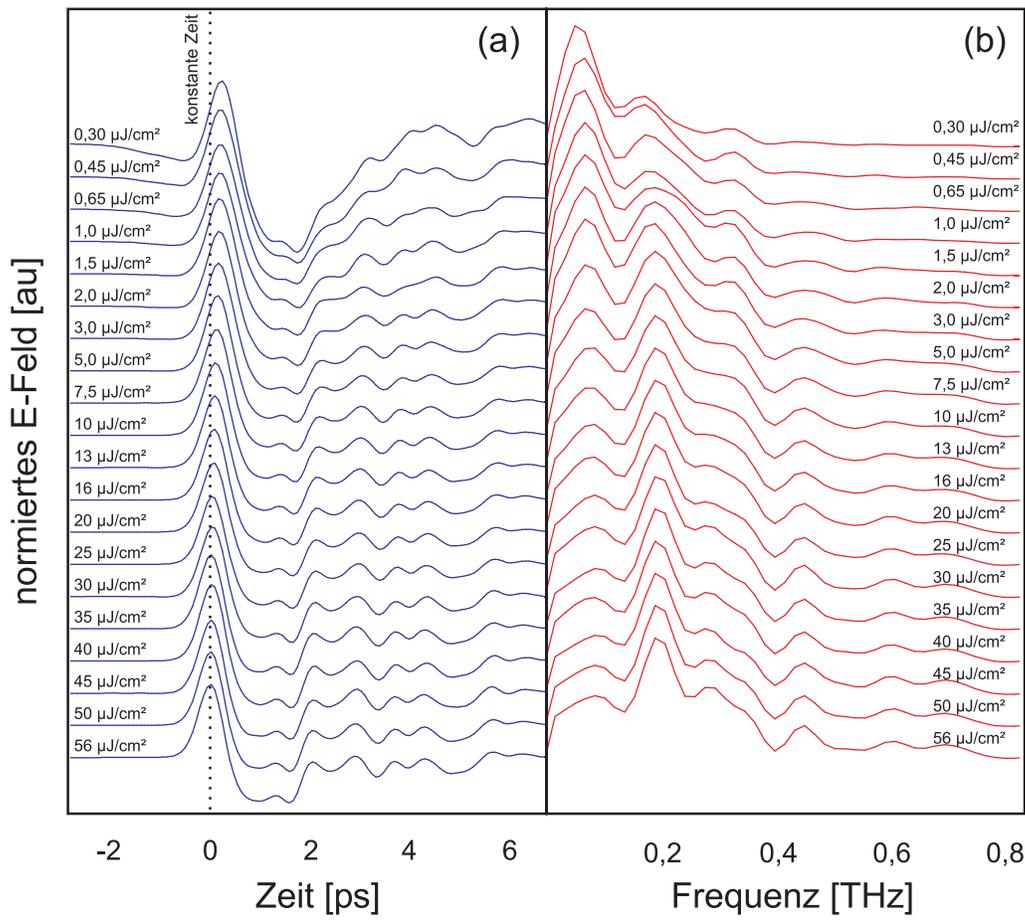


Abbildung 3.5: Mit 1 kV/cm extern vorgespannter GaAs-Emitter (a) Zeitlicher Verlauf des emittierten THz-Pulses für verschiedene optische Pumpleistungen. (b) Berechnetes Leistungsspektrum der entsprechenden Pumpleistungen. Sowohl (a) als auch (b) sind linear dargestellt.

Betrachtet man den zeitlichen Verlauf des THz-Pulses in Abhängigkeit von der optischen Pumpleistung (Abb. 3.5), so erkennt man eine zeitliche Verzögerung des Hauptmaximums von bis zu 200 fs für niedrigere Pumpleistungen. Da die Anzahl der Ladungsträger mit der Pumpleistung steigt, wird das extern angelegte Feld zunehmend abgeschirmt und die Ladungsträger nur für eine kürzere Zeit bis zur Abschirmung beschleunigt. Dadurch wird die maximale Beschleunigung und somit das Maximum der emittierten Strahlung früher erreicht. Das Frequenzspektrum wird dementsprechend für höhere Leistungen zu höheren Frequenzen verschoben. Dazu trägt auch die zunehmend schnellere Abbremsung durch Ladungsträger-/Ladungsträgerstreuung bei. Für hohe angelegte Felder wurde auch eine signifikante Änderung der Pulsform beobachtet [LHS⁺99], die durch einsetzende Phononen-Streuprozesse vom Γ Tal ins L Tal des Leitungsbandes herrührt.

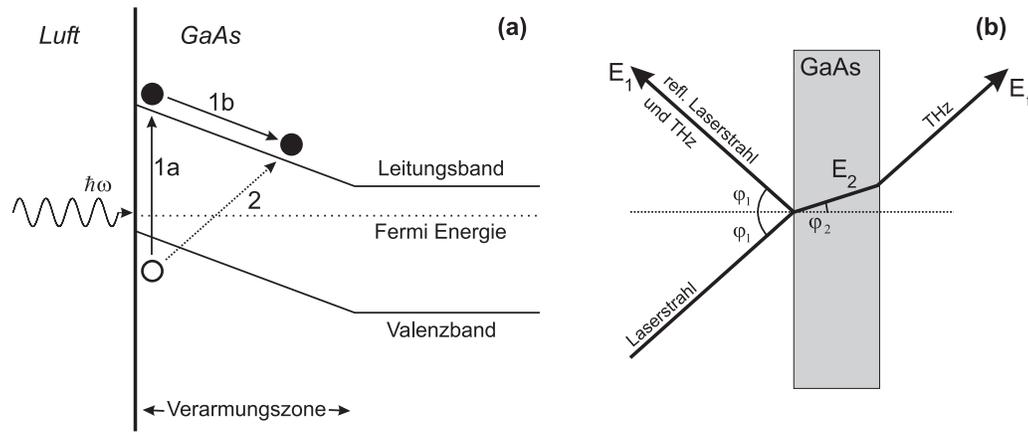


Abbildung 3.6: **(a)** Bandstruktur nahe der Halbleiteroberfläche. In der Verarmungszone bilden sich durch die Bandverbiegung statische elektrische Felder aus, so daß photoerzeugte Ladungsträger (1a) beschleunigt werden und elektromagnetische Strahlung emittieren (1b). Zudem gibt es nichtlineare Prozesse, die zu einer instantanen Polarisierung bzw. Polarisierungsänderung führen und ebenfalls emittieren (2). **(b)** Zusammenhang der Winkel zwischen den Propagationsrichtungen der an der Halbleiteroberfläche generierten elektromagnetischen Strahlung gemäß den Fresnelschen Gleichungen.

3.2 Intrinsischer Halbleiter

Wie bereits im Abschnitt 2.1.2 angeführt, kann auch ein Halbleiter ohne externe Vorspannung zur Erzeugung von THz-Pulsen genutzt werden. Im folgenden sollen die zentralen Gesichtspunkte dieses Emissionsprozesses dargestellt werden.

Der Generationsprozeß der THz-Strahlung im nicht vorgespannten Halbleiter kann verstanden werden als dynamische Elektronen-Loch-Ladungsträgerseparation in der Oberflächenverarmungszone des nicht vorgespannten Halbleiters. Wie in Abb. 3.6a dargestellt, gibt es zwei Mechanismen, die zur Ladungsträgerseparation führen:

- Die Absorption eines Photons aus dem optischen Anregungspuls führt zum vertikalen Übergang zwischen Valenz und Leitungsband. Nachfolgend wird das Elektron durch das in der Verarmungszone verbogene Leitungsband beschleunigt, so daß analog zum Stromstoß-Modell des vorangegangenen Abschnitts elektromagnetische Strahlung emittiert wird.
- Die Absorption des optisch anregenden Photons führt zum "diagonalen" Übergang zwischen Valenz und Leitungsband (Franz-Keldish-Effekt), so daß instantan eine horizontale Polarisierung vorhanden ist. Dieser Symmetriebruch, verursacht durch das Feld der Verarmungszone, hat zur Folge, daß $\chi^{(2)}$ (siehe auch (2.3)) im Bereich der Verarmungszone nicht Null ist und damit nichtlineare Prozesse zur Emission von THz-Strahlung führen.

Zunächst wurde nur die Ladungsträgerbeschleunigung des Stromstoß-Modells zur Erklärung herangezogen [ZDH⁺90, ZHDA90]. Dieses Modell versagte aber für die Beschreibung

der starken Abhängigkeit der THz-Intensität von der kristallographischen Orientierung des emittierenden Halbleiters, wenn man diesen um die Achse senkrecht zur Oberfläche rotiert [GSD⁺92]. Diese starke Modulation der Generationseffizienz kann aber verstanden werden, wenn man den zweiten Mechanismus – die instantane Polarisation durch den Franz Keldish Effekt – als nichtlinearen Generationsprozeß annimmt, wobei sich durch die Anisotropie der Suszeptibilität $\chi^{(2)}$ im Kristall die Winkelabhängigkeit ergibt. Man findet dabei eine Abhängigkeit der Form [SG93]

$$I^{FIR} = (c_1 + c_2 \sin 2\phi)^2 + c_3^2 \quad (3.12)$$

für eine (001) Oberfläche, wobei ϕ der Winkel zwischen der optischen Polarisation und der Kristallorientierung, c_1 die Summe der Beiträge des Stromstoß-Modells und c_2 der Beitrag der optischen Gleichrichtung im nichtlinearen Medium ist. Dabei hängt die relative Stärke der Modulation von der optischen Intensität ab, so daß sich darauf schließen läßt, daß mit steigender optischer Intensität die optische Gleichrichtung eine immer größere Rolle spielt. Für anders gespaltene Kristalle findet man andere Winkelvielfache und Modulationstiefen von bis zu 95% für optische Anregungsdichten über $10 \mu J/cm^2$ [SG93].

Offensichtlich müßte der gleiche nichtlineare Prozeß nicht nur die Differenzfrequenz im THz generieren, sondern auch die Summenfrequenz. Allerdings ist die Effizienz dieses Prozesses sehr viel kleiner, da die Polarisierbarkeit der Elektronen und Löcher innerhalb des Bandes mit zunehmender Frequenz abnimmt, so daß praktisch kein blaues Licht generiert wird [GSD⁺92].

Da das Stromstoß-Modell, abgesehen von der kristallographischen Orientierung des Emitters, den Emissionprozeß gut beschreibt, kann das elektrische Feld in Dipolnäherung aus einem Hertzischen Vektorpotential, das von oszillierenden Ladungen senkrecht zur Halbleiteroberfläche ausgeht, berechnet werden. Dabei wird – wie im vorangegangenen Abschnitt – das emittierte Feld mittels ebener Wellen beschrieben, was in Anbetracht der relativen Größe des Emitters im Vergleich zur Wellenlänge eine gute Näherung ist. Damit läßt sich die Amplitude des nach außen abgestrahlten Felds E_1 , des nach innen abgestrahlten Felds E_2 und des schließlich transmittierten Felds E_t berechnen, gemäß [ZHDA90]

$$E_1 = \eta_2 J_s \frac{\sin \varphi_1}{\cos \varphi_1 + (n_2/n_1) \cos \varphi_2} \quad (3.13)$$

$$E_2 = -(n_1/n_2) E_1 \quad (3.14)$$

$$E_t = t(\varphi_2) E_2 \quad (3.15)$$

wobei η_2 die charakteristische Oberflächenimpedanz des Halbleiters, φ_1 der Einfalls- bzw. Reflektionswinkel und φ_2 der Brechungswinkel ist (siehe Abb. 3.6)b, n_1 der Brechungsindex von Luft und n_2 der des Halbleiters. $t(\varphi_2)$ ist der Transmissionkoeffizient des Halbleiter/Luft-Übergangs, den man aus den Fresnelschen Gleichungen [Hec94] erhält,

$$t(\varphi_2) = \frac{2 n_1 \cos \varphi_1}{n_1 \cos \varphi_2 + n_2 \cos \varphi_1} \quad (3.16)$$

Daraus ergibt sich ein Maximum der emittierten THz-Strahlung für den Brewster Winkel von 75° . Die gezeigten Meßdaten wurden alle aufgrund des einfacheren experimentellen

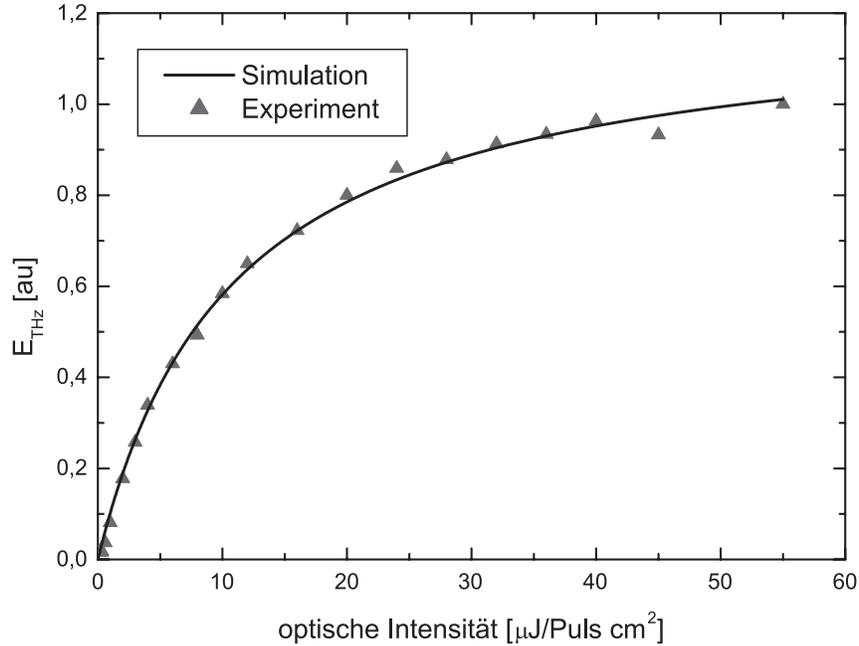


Abbildung 3.7: Sättigungsverhalten des intrinsischen GaAs-Emitters.

Aufbaus in einem Winkel von 45° aufgenommen, bei dem nur noch etwa die Hälfte der THz-Amplitude emittiert wird.

3.2.1 Sättigungsverhalten

Das Sättigungsverhalten des intrinsischen Emitters ist sehr ähnlich dem großflächiger Antennen (siehe Abschnitt 3.1). Dies läßt sich damit begründen, daß die Unterscheidung zwischen dem beschriebenen Stromstoß-Modell und der instantanen Polarisation in gewisser Weise künstlich ist, da die emittierte THz-Strahlung die zeitliche Ableitung des Stromflusses J bzw. die zweite Ableitung der Polarisation P ist, wobei $J \propto dP/dt$ gilt. Wenn man alle Einflüsse berücksichtigt, müßten beide Modelle zum gleichen Ergebnis kommen [GSD⁺92]. Daher kann (3.8) als Sättigungsverhalten übernommen werden, wobei nur das Vorspannungsfeld \vec{E}_b durch das Feld der Verarmungszone \vec{E}_V ersetzt werden muß.

Ein Fit der experimentellen Daten ergibt, wie Abb. 3.7 zeigt, eine gute Übereinstimmung und liefert $\tau_c = 1,3 \mu\text{s}$ bzw. $\tau_s = 230 \text{ fs}$, also ähnlich wie in Abschnitt 3.1.3 eine mit Literaturwerten in Einklang stehende mittlere Stoßzeit τ_s , aber eine physikalisch nicht sinnvolle Ladungsträgerlebenszeit. Dies hängt zum einen mit der starken Vereinfachung der Ladungsträgerdynamik von GaAs im Modell zusammen, zum anderen aber auch mit dem nur geringen Einfluß von τ_c auf das Sättigungsverhalten, denn die Hauptemission der elektromagnetischen Strahlung findet beim Beschleunigen der Ladungsträger statt, nicht beim Abbremsen durch Streuung.

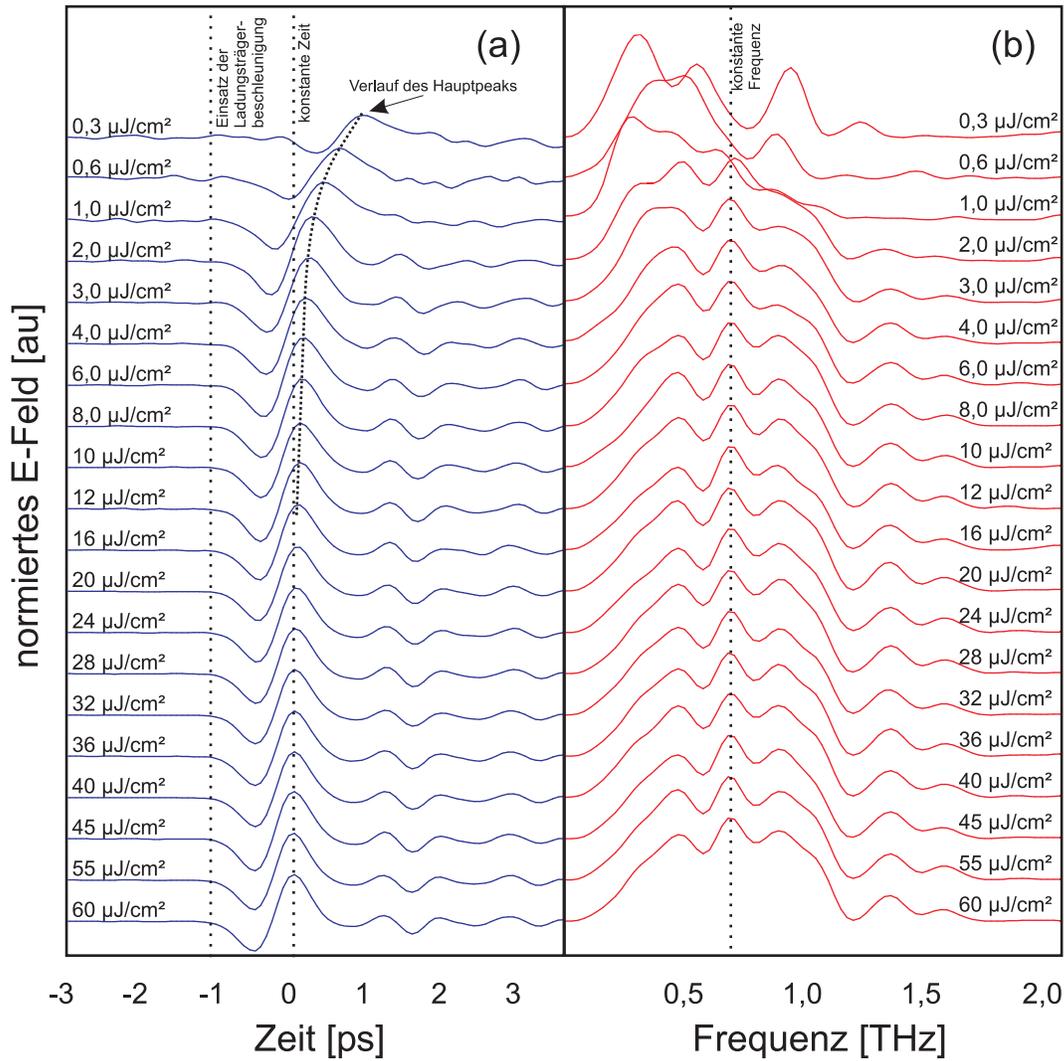


Abbildung 3.8: Intrinsic GaAs-Emitter (a) Zeitlicher Verlauf des emittierten THz-Pulses für verschiedene optische Pumpleistungen. (b) Berechnetes Leistungsspektrum der entsprechenden Pumpleistungen.

3.2.2 Spektrum und zeitlicher Verlauf

Betrachtet man die Änderung des zeitlichen Verlaufs der emittierten Strahlung bei Variation der optischen Pumpleistung, so fällt eine starke zeitliche Verzögerung des Hauptpeaks von bis zu 1,1 ps bei Pumpleistung unter $20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ auf (Abb. 3.8a). Der zeitliche Einsatz der Ladungsträgerbeschleunigung und damit der Emission hingegen ist konstant für die verschiedenen Pumpleistungen, wobei dies für Leistungsdichten unter $2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ durch das schlechter werdende Signal-Rausch-Verhältnis zunehmend schwerer Abb. 3.8a zu entnehmen ist, durch andere Meßreihen aber bestätigt wurde. Die Dauer der nachfolgenden Ladungsträgerbeschleunigung in der Verarmungszone des Halbleiters bis zu ihrem maximalen Wert bestimmt die zeitliche Länge der ersten Halbwelle der emittierten Strahlung (2.2). Entsprechend zum zeitlichen Verlauf ist das Frequenzspektrum (Abb. 3.8b)) durch den län-

geren ersten Halbpuls für optische Anregung unter $2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ zu niedrigeren Frequenzen verschoben. Da mit zunehmender optischer Pumpleistung mehr und mehr Ladungsträger generiert werden, wird das elektrische Feld der Verarmungszone stärker abgeschirmt, so daß die Ladungsträger nur noch kürzer beschleunigt werden. Der Bremsprozeß durch die Streuung der Ladungsträger an Phononen hingegen ist nahezu unabhängig von der Abschirmung des Feldes der Verarmungszone, so daß Länge und Form der zweiten Halbwelle annähernd gleich bleiben und diese nur zeitlich später liegt. Für sehr hohe Pumpleistungen kann allerdings Ladungsträger-/ Ladungsträgerstreuung eine zunehmende Rolle spielen und damit wiederum zum schnelleren Abbremsen und zu höheren Frequenzen beitragen.

3.3 Elektrooptischer Emitter

In diesem Abschnitt soll der als Alternative zu Antennen bedeutendste Generationsprozeß von THz-Strahlung diskutiert werden, die elektrooptische (im weiteren EO-) Emission. Dieser Ansatz zur Erzeugung von Ferninfrarotstrahlung wurde zuerst von Yang *et al.* 1971 berichtet, die einen Aufbau mit Pikosekunden-Laser und LiNbO_3 als Emissionskristall nutzten [YRS71]. Die effiziente Erzeugung von THz-Strahlung mittels EO-Emission wurde erstmals von Xu *et al.* 1992 mit Femtosekunden-Laserpulsen und ebenfalls LiNbO_3 sowie LiTaO_3 als Emitterkristall demonstriert [XZA92].

3.3.1 Phasenanpassung

Wie in Abschnitt 2.1.3 bereits erläutert, wird durch intensive, auf einen Kristall fallende optische Strahlung eine nichtlineare Polarisation $P^{(2)}(t)$ erzeugt, die dem zeitlichen Verlauf des Intensitätsprofils $|E_{opt}(t)|^2$ der optischen Strahlung folgt, falls der Kristall eine nichtlineare instantane Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ besitzt. Die emittierte THz-Strahlung ist dabei gemäß 2.4 proportional zu $\partial^2 P^{(2)}/\partial t^2$. Dieser Prozeß wird als optische Gleichrichtung bezeichnet (engl. optical rectification) und soll im folgenden, angelehnt an die Herleitung der nichtlinearen Frequenzverdopplung in [Yar89], beginnend bei den Maxwellgleichungen, näher betrachtet werden:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \mathbf{j} + \frac{\partial}{\partial t}(\epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}) \quad (3.17)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t}(\mu_0 \mathbf{H}) \quad (3.18)$$

Die Polarisation \mathbf{P} kann in einen linearen und einen nichtlinearen Term aufgeteilt werden

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi_L \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \quad (3.19)$$

Damit läßt sich unter Verwendung des Ohmschen Gesetzes $\sigma \mathbf{E} = \mathbf{j}$ (σ ist die Leitfähigkeit) Gleichung 3.17 schreiben als

$$\nabla \times \mathbf{H} = \sigma \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \epsilon \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t} \quad (3.20)$$

wobei $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi_L)$. Anwenden von $\nabla \times$ auf 3.18 und einsetzen von 3.20 liefert

$$\nabla^2 \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\sigma \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \epsilon \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t} \right) \quad (3.21)$$

wobei die Identität $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla \nabla \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E}$ und $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ benutzt wurde. (3.21) ist eine allgemeinere Form der in [XZA92] angegebenen Differentialgleichung. Im weiteren soll die Betrachtung beschränkt werden auf die Ausbreitung ebener Wellen ausschließlich in z Richtung ($\partial/\partial y = \partial/\partial x = 0$) sowie auf die drei am Prozeß der THz-Photon-Generierung beteiligten Frequenzen ω_1 und ω_2 des optischen Pumpstrahls, die sich zur emittierten THz-Frequenz ω_3 mischen. Vernachlässigt man weiterhin die Absorption im Kristall, läßt sich die Differentialgleichung (3.21) nach einigen Umformungen [Yar89] schreiben als

$$\frac{dE_{3j}}{dz} = -i\omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} d_{jik} E_{1i} E_{2k}^* e^{i\Delta k z} \quad (3.22)$$

wobei gemäß der Benennung der Frequenzen E_1 und E_2 die optischen Pumpfelder sind und E_3 das generierte THz-Feld ist. Die Indizes i, j, k sind durch die entsprechenden kartesischen Koordinaten x bzw. y zu ersetzen. Wie in Anhang E diskutiert, ergibt sich aufgrund der Impulserhaltung: $\Delta k = k(\omega_1) - k(\omega_1 - \omega_3) - k(\omega_3)$, wobei ohne Beschränkung der Allgemeinheit $\omega_1 > \omega_2$ angenommen wurde. Der Differenzfrequenz-Suszeptibilitätstensor d_{ijk} ist über die Beziehung

$$(P_{NL})_i^{\omega_3} = 2d_{ijk}^{\omega_3=\omega_1-\omega_2} E_j^{\omega_1} E_k^{-\omega_2} \quad (3.23)$$

definiert und damit ein Maß für den linearen elektrooptischen Effekt bzw. die Polarisation in der i Richtung des Kristalls, hervorgerufen durch elektrische Felder in j bzw. k Richtung. (3.22) läßt sich nun lösen. Mit der Randbedingung $E_3(0) = 0$ (kein THz-Input) und der Kristalllänge L ergibt sich

$$E_{3j}(L) = -2i\omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} d_{jik} E_{1i} E_{2k}^* \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \quad (3.24)$$

Mittels des Poyntingschen Vektors [Hec94] läßt sich nun ein Ausdruck für die emittierte THz-Leistung pro Fläche angeben

$$\frac{P(\omega_3)}{\text{Fläche}} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon}{\mu_0}} E_{3j} E_{3j}^* \quad (3.25)$$

$$= 2\omega^2 \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} d_{ijk}^2 E_{1i}^2 E_{2k}^2 \frac{(e^{i\Delta k L} - 1)(e^{-i\Delta k L} - 1)}{\Delta k^2} \quad (3.26)$$

$$= 2\omega^2 \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} d_{ijk}^2 E_{1i}^2 E_{2k}^2 \frac{2 - 2\cos(\Delta k L)}{\Delta k^2} \quad (3.27)$$

$$= 2\omega^2 \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon}} d_{ijk}^2 E_{1i}^2 E_{2k}^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} \quad (3.28)$$

Im letzten Schritt wurde die Identität $\sin(\alpha/2) = \sqrt{(1 - \cos \alpha)/2}$ benutzt. Mit $2P(\omega_3)/(P(\omega_1) + P(\omega_2))$ erhält man die Konversionseffizienz des EO-Emitters. In Abb. 3.9 ist diese unter der zusätzlichen Annahme $(P(\omega_1) + P(\omega_2)) = \text{konstant}$ und unter Berücksichtigung von THz-Absorption in Abhängigkeit von der Frequenz und der Kristalllänge dargestellt. Der für die Berechnung verwendete frequenzabhängige Brechungsindex von ZnTe wurde aus dem experimentell durch THz-Spektroskopie gewonnenen Brechungsindex für den als Emitter genutzten ZnTe-Kristall erhalten (vergleiche Abschnitt 5.2.2). In der Literatur sind abweichende Werte für Absorption und Brechungsindex von ZnTe zu finden [Pal, GZM⁺99],

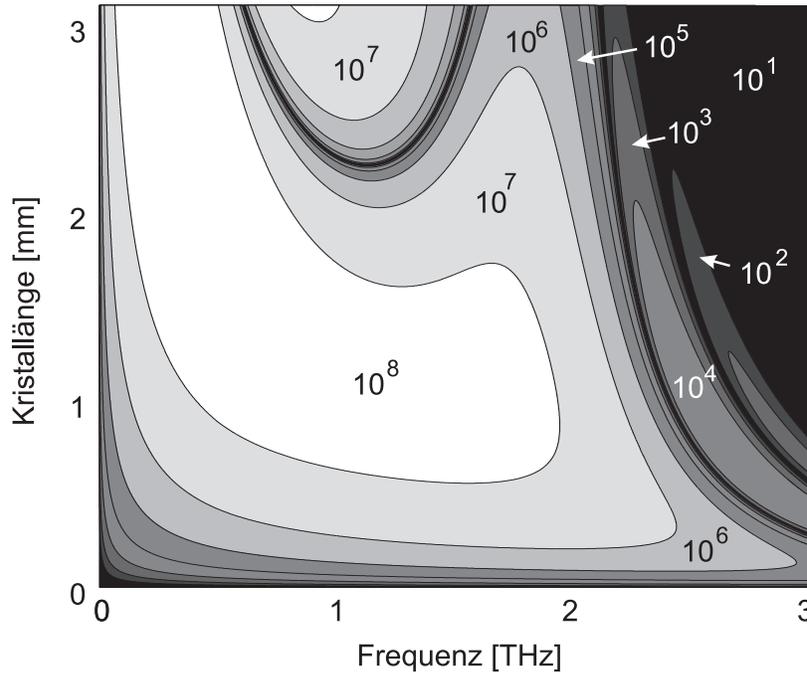


Abbildung 3.9: Kontur-Darstellung der von einem EO-ZnTe-Emitter pro Fläche emittierten THz-Leistung unter Berücksichtigung von THz-Absorption. In der Berechnung wurde die optische Wellenlänge von 775 nm des in dieser Arbeit verwendeten Lasersystems angenommen. Die verschiedenen Graustufen entsprechen jeweils einer zehnfach höheren Emissionsleistung.

was durch unterschiedliche Qualitäten der Kristalle zu erklären ist, aber damit die Allgemeingültigkeit der in Abb. 3.9 gezeigten Ergebnisse einschränkt. Dem Resultat inhärent ist jedoch die Eigenschaft, daß für dickere Kristalle zwar insgesamt mehr THz-Leistung generiert wird (jede Graustufe entspricht einer Zehnerpotenz!), einige Frequenzen aber offenbar trotz größerer Interaktionslänge zwischen optischem Pumpstrahl und THz-Strahl wieder an Energie verlieren. Es gibt aber auch Frequenzen, deren THz-Leistung streng monoton mit der Kristalllänge steigen (hier etwa bei 0,3 THz). Diese Frequenzen besitzen eine perfekte Phasenanpassung (engl. *phasematching*) zwischen $n(\omega_{THz})$ und $n_g(\omega_{opt})$ (vergleiche Anhang E). Für alle anderen Frequenzen stellt sich ab einer bestimmten Interaktionslänge ein Abfallen der generierten THz-Leistung ein. Für hohe Frequenzen (über 2 THz) ist dies deutlich aus Abbildung 3.9 ersichtlich: Schon bei relativ kurzen Kristalllängen nimmt die THz-Leistung ab, anschließend aber wieder zu, was zu einer Oszillation in Abhängigkeit von der Interaktionslänge führt. Ähnlich setzt auch für die nicht phasenangepaßten Frequenzen unterhalb von 2 THz eine Oszillation ein. Allerdings ist nur deren erste Schwingung auf der Abbildung zu erkennen, da sie erst für Kristalllängen oberhalb 2 mm beginnt. Betrachtet man nun zwei benachbarte Maxima einer Frequenz, so sind sie durch die sogenannte Kohärenzlänge separiert, die sich aus (3.28) ergibt zu

$$l_c = \frac{2\pi}{\Delta k} \quad (3.29)$$

Die Kohärenzlänge l_c ist damit ein Maß für die maximale Kristalllänge, die noch nützlich

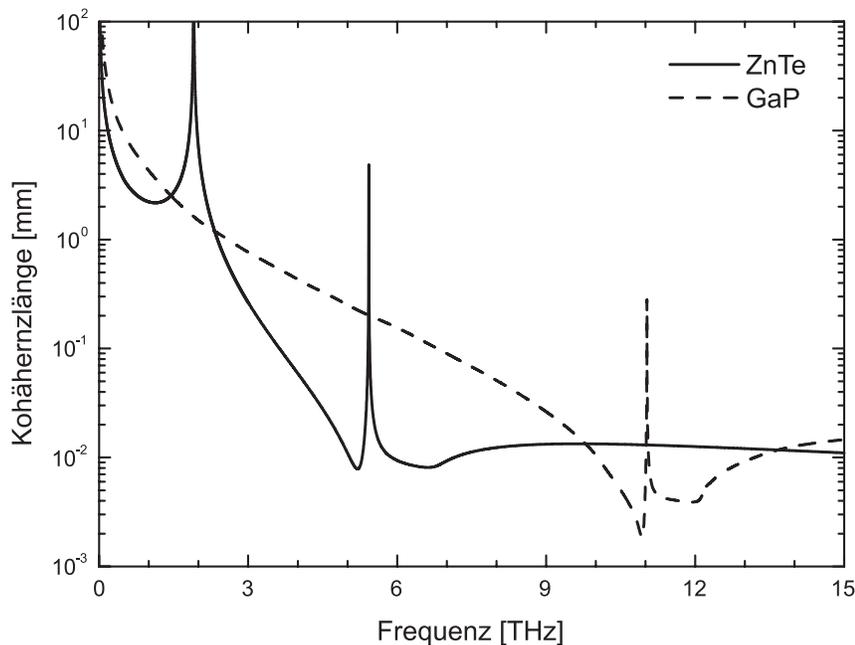


Abbildung 3.10: Aus dem experimentell gefundenen Brechungsindex berechnete Kohärenzlänge von ZnTe bzw. GaP. Bei 1,9 THz bzw. 5,4 THz für ZnTe und 11 THz für GaP sind resonante optische Phononenabsorptionen die Ursache für die rapide Änderung der Kohärenzlänge.

zur THz-Generierung ist. Mit $k(\omega) = \omega n(\omega)/c$ und (E.7) ergibt sich

$$l_c = \frac{\lambda}{|n_g(\omega_1) - \lambda_1 \left[\frac{dn}{d\lambda} \right]_{\omega_1} - n(\omega_3)|} \quad (3.30)$$

was sich mit dem in [NWH96] angegebenen Resultat deckt. Mit den in [Pal] angegebenen frequenzabhängigen experimentell gefundenen Brechungsindizes für ZnTe und GaP läßt sich nun die Kohärenzlänge für eine Zentralfrequenz des optischen Pumpimpulses von 775 nm berechnen (Abb. 3.10), wie sie das in dieser Arbeit verwendete Lasersystem liefert. Beide EO-Emitter zeigen einen rapiden Abfall der Kohärenzlänge hin zu hohen Frequenzen, bis auf einen bis zu sehr hohen Frequenzen (>50 THz) praktisch konstanten Wert von etwa $10 \mu\text{m}$. Die lokalen Maxima der Kohärenzlänge von ZnTe bei 1,9 THz bzw. 5,4 THz und von GaP bei 11,0 THz resultieren aus der starken Absorption durch resonant angeregte Gitterschwingungen. Die phasenangepaßt generierte THz-Strahlung bei 2 THz wird also durch die hohe Absorption im Kristall selbst wieder zu einem großen Teil absorbiert. Wie in Abschnitt 5.2.2 und in [LHSN99, GZM⁺99] ausführlich besprochen, handelt es sich bei der 1,9 THz-Resonanz in ZnTe um angeregte transversale optische Phononen bzw. bei der 5,4 THz-Resonanz um longitudinale optische Phononen, wie auch bei der 11 THz-Resonanz in GaP. Die aus dieser resonanten Absorption stammende anomale Dispersion und der resultierenden Brechungsindexänderung führt zu der gezeigten rapiden Änderung der Kohärenzlänge.

Unlängst wurden diese bis dahin nur theoretisch vorhergesagten hohen Bandbreiten für

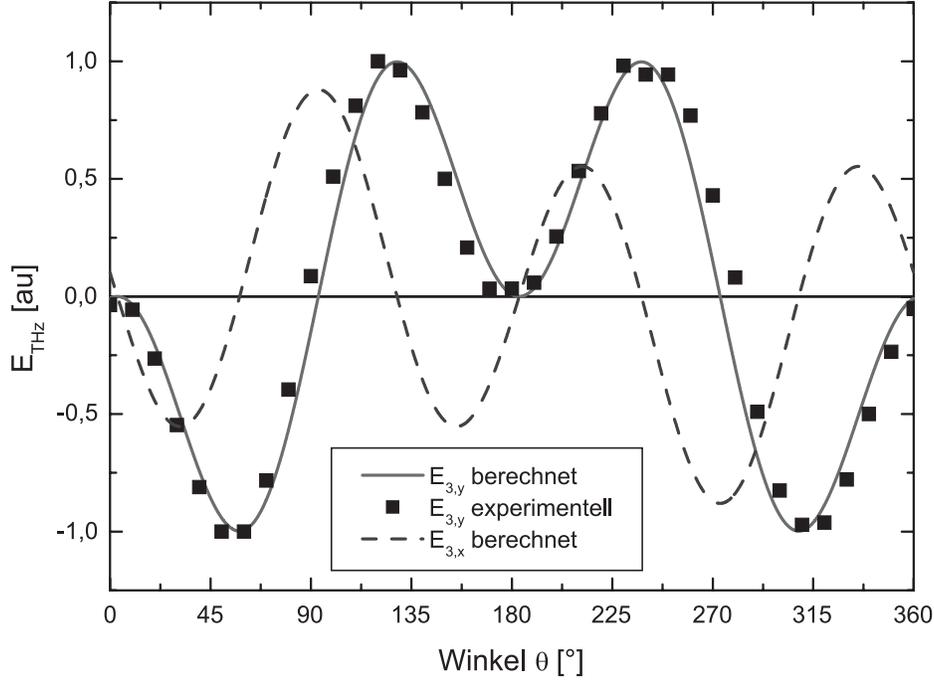


Abbildung 3.11: Abhängigkeit des emittierten THz-E-Feldes vom Winkel θ zwischen Kristallorientierung und Polarisation des optischen Pumpstrahls.

dünne Kristalle experimentell bestätigt. Leitenstorfer *et al.* konnten die Emission von bis zu 70 THz aus einem 8 μm dünnen Kristall unter Benutzung eines 10 fs Pumpimpulses nachweisen [LHSN99].

3.3.2 Winkelabhängigkeit

Betrachtet man den in (3.23) eingeführten Suszeptibilitätstensor d_{ijk} , so läßt sich dem Austausch von E_j und E_k keine physikalische Relevanz zuschreiben, womit $d_{ijk} = d_{ikj}$ folgt. Weitere Symmetrieüberlegungen unter der Annahme einer kubischen Kristallsymmetrie (ZnTe und GaP sind kubisch) und die Kontraktion der Indizes ijk zu ij liefern eine 3x6 Matrix, deren Elemente $d_{14} = d_{25} = d_{36}$ und alle anderen identisch Null sind [Yar89]. Wie zuvor beschrieben, soll das raumfeste Koordinatensystem so definiert sein, daß z die Propagationsrichtung ist, damit x senkrecht zur Tischoberfläche steht und y der Polarisationsrichtung des optischen Pumpstrahls entspricht. Betrachtet man nun die Rotation des Emittierkristalls um die z -Achse, so findet man eine starke Winkelabhängigkeit der emittierten THz-Leistung. Mit der zusätzlichen Annahme, daß der Kristall parallel zur (110) Ebene gespalten ist, was sowohl für den hier verwendeten ZnTe als auch GaP-Kristall zutrifft, findet man [CZ99]

$$E_{3y} \sim d_{14} E_1 E_2 (-3 \cos^2 \varphi \cos \theta \sin^2 \theta + \sin^2 \varphi (2 \sin^2 \theta \cos \theta - \cos^3 \theta)) \quad (3.31)$$

$$E_{3x} \sim d_{14} E_1 E_2 (\cos^2 \varphi \sin \theta (\sin^2 \theta - 2 \cos^2 \theta) + 3 \sin^2 \varphi \sin \theta \cos^2 \theta) \quad (3.32)$$

wobei φ der Winkel zwischen der Polarisation des optischen Pumpstrahls und der y -Achse ist (im folgenden wird $\varphi=0$ angenommen). θ ist der Winkel zwischen der y -Achse und der kristallographischen $\langle 0,0,1 \rangle$ Richtung des Kristalls. Abbildung 3.11 zeigt im Vergleich mit experimentell gefundenen Daten eine gute Übereinstimmung. Die praktische Deckungsgleichheit zwischen experimentellem und theoretischem E_{3y} deutet auf einen sehr polarisationssensitiven Detektor hin, der auf die y -Polarisation der THz-Strahlung optimiert ist.

3.3.3 Sättigungsverhalten

Bei der Herleitung von Gleichung (3.22) wurde angenommen, daß der optische Pumpstrahl während des gesamten Generationsprozesses eine konstante Energie und Frequenz besitzt. Da aber ein Energie- und Impulstransfer vom optischen Pumpstrahl in den generierten THz-Strahl stattfindet, muß diese Annahme für hohe optische Intensitäten fallengelassen werden, da mit steigender Pumpintensität auch der Generationsprozeß effizienter wird und der optische Pumpstrahl versiegt. In [Yar89] ist eine Herleitung, beginnend bei Gleichung (3.21), für die nichtlineare Frequenzverdopplung gegeben, der als Annahme perfekte Phasenanpassung ($\Delta k = 0$) und $\omega_1 = \omega_2$ zur Vereinfachung der resultierenden gekoppelten nichtlinearen Differentialgleichungen vorausgeht. Es folgt

$$\frac{dA_3'}{dz} = \frac{1}{2}\kappa (A_1^2(0) - A_3'^2) \quad (3.33)$$

wobei $A_l = \sqrt{n_l/\omega_l} E_l$ mit $l = 1, 2, 3$, $A_3 = -iA_3'$ und

$$\kappa \equiv d_{14} \sqrt{\left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right) \frac{\omega_1^2 \omega_3}{n_1^2 n_3}} \quad (3.34)$$

Als Lösung der Differentialgleichung (3.33) ergibt sich

$$A_3'(z) = A_1(0) \tanh(\kappa A_1(0)z) \quad (3.35)$$

Damit läßt sich nun die Konversionseffizienz angeben

$$\frac{P\omega_3}{P\omega_1} = \frac{|A_3(z)|^2}{|A_1(0)|^2} = \tanh^2(\kappa A_1(0)z) \quad (3.36)$$

Da der Generationsprozeß der THz-Strahlung gerade auf der Differenz zwischen ω_1 und ω_2 beruht, ist die Gültigkeit der für diese Lösung getroffenen Annahme $\omega_1 = \omega_2$ hier fraglich. Läßt man diese Annahme fallen, wird die Lösung der Differentialgleichung deutlich komplexer und führt zu einem elliptischen Integral, dessen Lösung sich nicht mehr in geschlossener Form angeben läßt [She]. Eine numerische Anpassung an die experimentell gefundenen Daten des ZnTe-Emitters liefert aber ein deutlich schlechteres Resultat, so daß in Abb. 3.12 die Anpassung von Gleichung (3.35) an die experimentellen Daten gezeigt ist, wobei sowohl A_1 als auch κ mit einem Vorfaktor gefittet wurden. Aufgrund der nahen Zerstörschwelle wurde nur maximal die Hälfte der zur Verfügung stehenden Pumpleistung genutzt (250 μ J). Der verwendete Kristall hat eine Fläche von 0,25 cm² und eine Dicke von 1 mm. Für niedrige optische Intensitäten ist der ohne Sättigung zu erwartende quadratische Zusammenhang zwischen optischer und THz-Intensität zu erkennen. Für hohe Pumpleistungen ist der durch

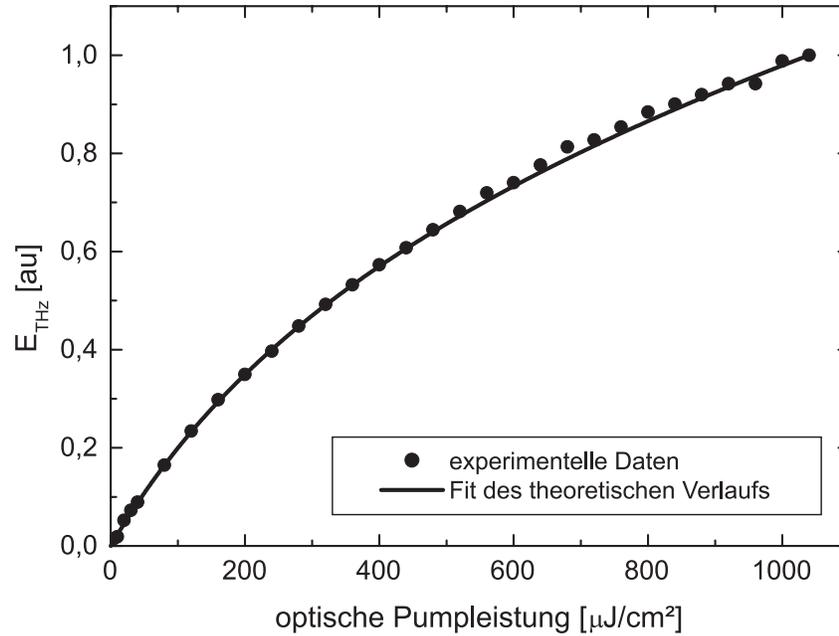


Abbildung 3.12: Durch EO-Emission von ZnTe erzeugte THz-Feldstärke gegen optische Pumpleistung bei 775 nm. Die durchgezogene Linie ist eine Anpassung des theoretisch für die Frequenzverdopplung mittels eines EO-Kristalls vorhergesagten Sättigungsverhaltens an die experimentellen Daten.

(3.35) vorausgesagte lineare Zusammenhang evident.

Für GaP konnten keine experimentellen Daten gewonnen werden, da der Kristall bei hohen Leistungsdichten von etwa $400 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ zerstört wurde, die der ZnTe-Kristall auch langfristig ohne erkennbare Schäden tolerierte.

3.3.4 Spektrum und zeitlicher Verlauf

Abb. 3.13 zeigt den zeitlichen Verlauf des von den EO-Emittern ZnTe und GaP bei $500 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ optischer Pumpleistung emittierten THz-Pulses. Beim Vergleich der beiden Emitter fällt zunächst die etwa 100-mal schlechtere Konversionseffizienz bzw. die etwa 35-mal geringere emittierte THz-Feldstärke des GaP-Kristalls auf. Dieser Faktor ist alleine durch den niedrigeren elektrooptischen Koeffizienten nicht zu erklären, der nach Leitenstorfer *et al.* [LHSN99] etwa um den Faktor 5 unter dem von ZnTe liegen sollte. Der hier zusätzlich beobachtete Faktor 5 ist möglicherweise ein Indiz für eine frühere Sättigung von GaP, zumal die Zerstörschwelle, wie bereits erwähnt, deutlich unter der von ZnTe liegt und die Pumpleistung der hier gezeigten Messung oberhalb der langfristig tolerierten Leistung lag.

Der zeitliche Verlauf des Hauptpulses der beiden Emitter zeigt zahlreiche Übereinstimmungen. Gemäß (2.4) würde man eine Pulsform erwarten, die hauptsächlich durch die zweite

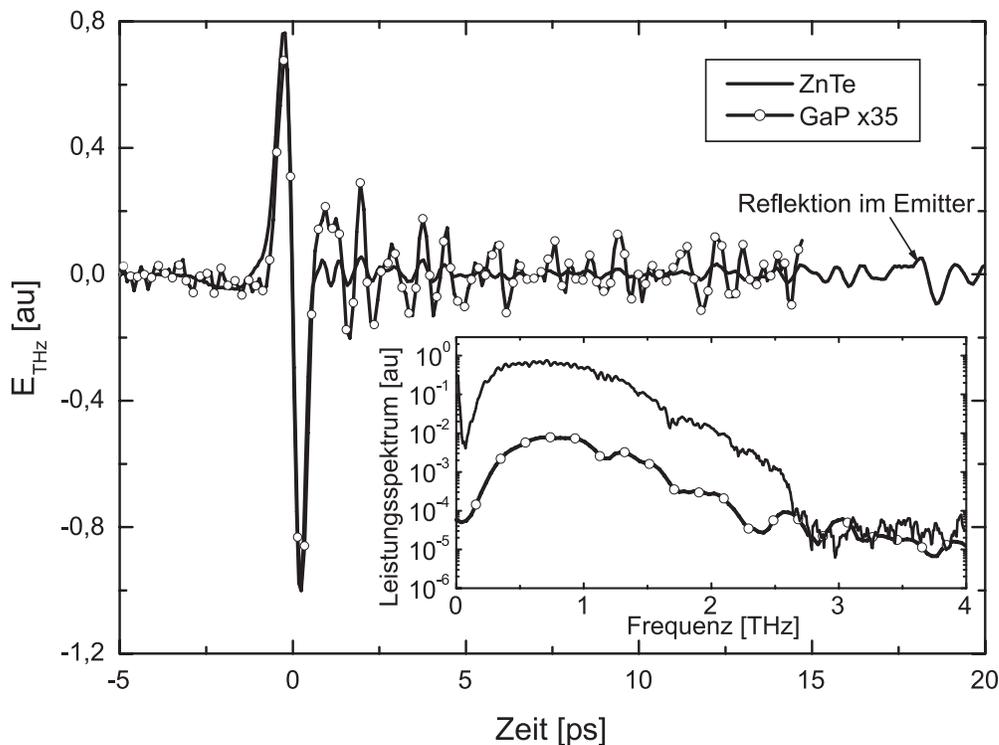


Abbildung 3.13: Zeitlicher Verlauf und daraus berechnetes Frequenzspektrum der EO-Emitter ZnTe und GaP. Das GaP-Signal ist 35-fach vergrößert dargestellt, um den Vergleich der Pulsformen zu erleichtern. Die stärkeren Oszillationen des GaP-Emitters vor dem Hauptpuls sind bedingt durch das höhere relative Rauschniveau, während die Schwingungen nach dem Hauptpuls primär durch Wasserabsorptionen verursacht sind, da nur bei der Messung des ZnTe-Emitters mit trockenem Stickstoff geflutet wurde. Das scheinbar glattere Spektrum des GaP-Emitters resultiert aus dem zeitlich kürzeren Meßbereich und der dadurch geringeren Frequenzauflösung.

zeitliche Ableitung der Einhüllenden des optischen Pumpstrahls bestimmt ist. Der Intensitätsverlauf des optischen Pulses kann hier als gaußförmig angenommen werden, und tatsächlich wird auch eine volle Schwingungsperiode von beiden Kristallen emittiert im Gegensatz zu der Halbschwingung extern vorgespannter Antennen. Zusammen mit der annähernden Punktsymmetrie im Ursprung (Nulldurchgang des emittierten Feldes, also Maximum des Pumpulses) kommt dies der Ableitung einer Gaußfunktion sehr nahe. Die deutlich stärkeren Nachschwingungen des GaP-Emitters resultieren aus den Wasserabsorptionen (siehe Abschnitt 5.1.3), die durch Fluten des Versuchsaufbaus mit trockenem Stickstoff bei der Emission mit ZnTe vermieden wurden. Im gezeigten Spektrum sind diese Wasserlinien aufgrund des zeitlich nur kurzen Scans und der daraus resultierenden geringen Frequenzauflösung stark verbreitert und daher nicht deutlich ausgeprägt.

Ähnlich wie bei den auf GaAs-Wafern beruhenden Emittlern der vorangegangenen Abschnitte wird auch hier ein Teil der Strahlung an der Rückseite des Kristalls und ein zweites Mal

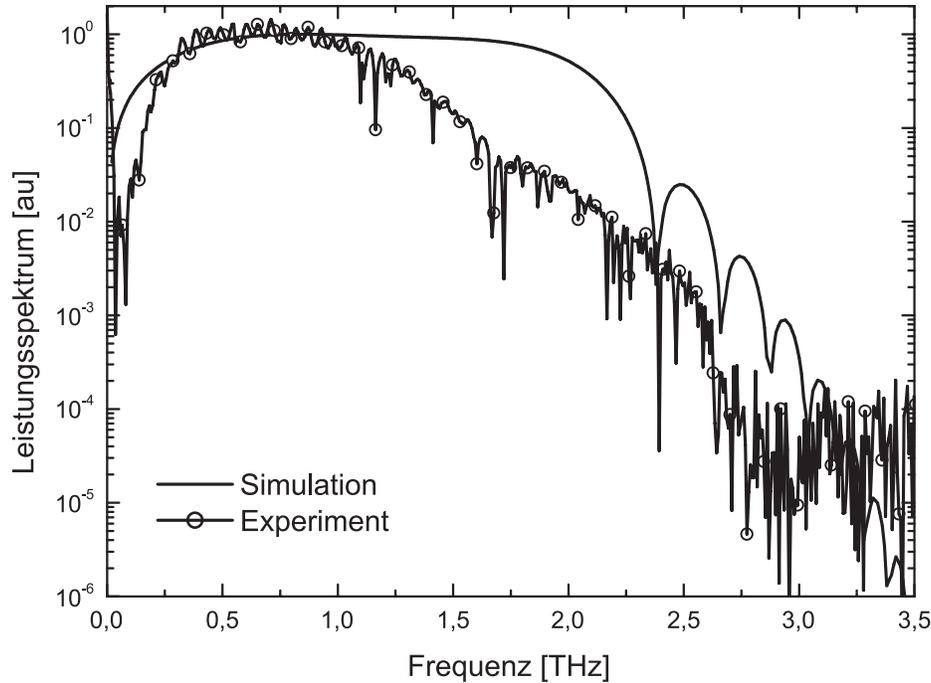


Abbildung 3.14: Halblogarithmische Darstellung des berechneten und experimentell bestimmten Frequenzverlaufs des EO-ZnTe-Emitters. Zur Verbesserung der Übersichtlichkeit wurde nur jeder fünfte Meßpunkt als Kreis dargestellt. Die Oszillationen im experimentell gefundenen Verlauf resultieren aus Etalon-Oszillation. In der Simulation wurde die Reflexion an der ZnTe-Luft-Grenzschicht nicht berücksichtigt. Weiterhin sind deutliche, durch Wasserdampf im Versuchsaufbau verursachte Absorptionslinien zu erkennen.

an der Vorderseite reflektiert und fällt dementsprechend etwa 18 ps später auf den Detektor, was einem Brechungsindex von etwa 3,7 entspricht bei einer Kristalldicke von 1 mm. Im Rahmen der Meßgenauigkeit kann, abgesehen von der deutlich geringeren Konversionseffizienz des GaP-Kristalls, kein deutlicher Unterschied im zeitlichen oder Frequenzverlauf der emittierten THz-Strahlung der beiden EO-Emitter festgestellt werden. Dies kann zum einen an der begrenzten Detektorbandbreite liegen, zum anderen aber auch an der dominierenden Beschränkung durch die geringe Bandbreite des optischen Pumpimpulses (siehe Abschnitt 2.5), die trotz einer theoretisch größeren Bandbreite von GaP (siehe Abb. 3.10) keine höheren Frequenzen zuläßt.

Abb. 3.14 zeigt den Vergleich zwischen der durch (3.28) vorhergesagten Bandbreite unter Berücksichtigung der THz-Absorption und dem gemessenen Frequenzspektrum des ZnTe-Emitters. Die für die Berechnung verwendeten Parameter entsprechen den für Abb. 3.9 verwendeten Werten. Die Verwendung des in [Pal] oder [GZM⁺99] angegebenen komplexen Brechungsindex liefert aufgrund der geringeren Absorption eine größere Bandbreite.

Für den Frequenzbereich unterhalb von 1 THz ist eine gute Übereinstimmung zu erken-

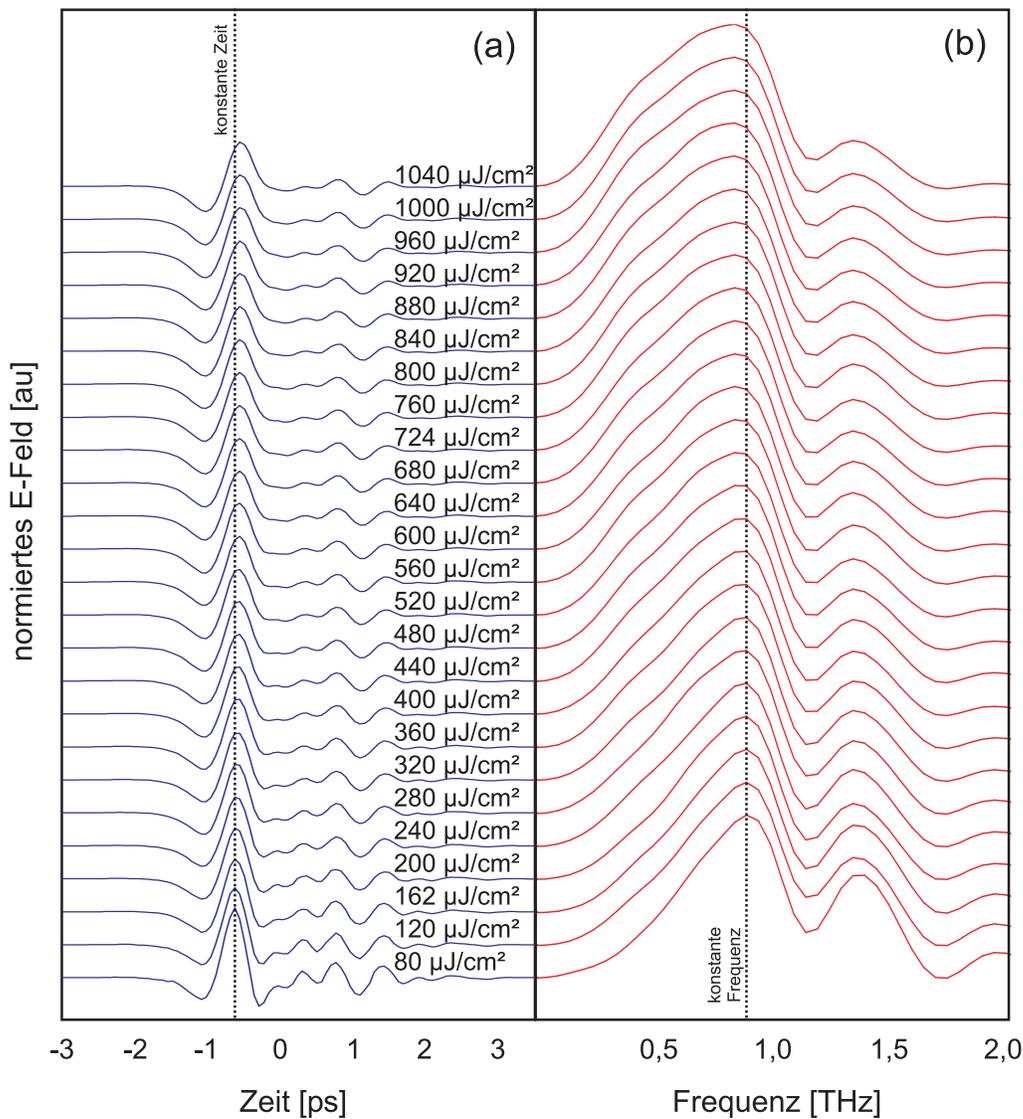


Abbildung 3.15: Abhängigkeit (a) der emittierten THz-Pulsform bzw (b) des emittierten Frequenzspektrums von der optischen Leistungsdichte. Die gezeigten Daten sind normiert auf die gleiche Fläche unter der Pulsform bzw. dem Frequenzverlauf.

nen, hingegen ist oberhalb von 1 THz eine steigende Diskrepanz zu beobachten. Da auch für den vorgespannten GaAs-Emitter ein Abfallen der experimentell beobachteten Bandbreite im Vergleich zur Simulation zu beobachten ist (vergleiche Abb. 3.4), kann analog die Abweichung durch die unzureichende Bandbreite des Detektors erklärt werden.

Die in Abb. 3.15 gezeigte Abhängigkeit der Pulsform des emittierten THz-Pulses von der optischen Pumpleistung zeigt mit steigender Pumpleistung eine deutliche Verschiebung des THz-Spektrums hin zu niedrigeren Frequenzen sowie ein durch die dann längere Schwingungsperiode später eintreffendes Hauptmaximum. Die niedrigeren Frequenzen

können durch die mit steigender Pumpleistung nicht linear skalierbare Polarisierbarkeit verstanden werden, da durch das nun effektiv anliegende Feld die Ladungsträger nicht mehr so schnell beschleunigt und niedrigere Frequenzen emittiert werden.

3.4 Plasma

In diesem Abschnitt wird ein in unserer Arbeitsgruppe entwickelter neuartiger THz-Emitter vorgestellt, der auf Plasma-Emission aus elektrisch vorgespannter Luft beruht [LJR00]. Die Emission von kohärenten THz-Pulsen aus optisch generiertem Plasma wurde zuerst von Hamster *et al.* berichtet [HSGF93, HSGF94].

3.4.1 Plasmaerzeugung

Durch intensive Laserstrahlung erzeugte Plasmen wurden ausführlich als Quelle elektromagnetischer Strahlung untersucht. Dabei wurde Strahlung von sehr hohen Harmonischen der Laserwellenlänge - sub-Pikosekunden-Röntgenstrahlung und sogar harte Röntgenstrahlen mit Energien über 1 MeV - bis hinab ins Ferninfrarote mit Wellenlängen im THz detektiert [Ham93]. In diesen Experimenten wurde das Plasma von einem 120 fs Puls erzeugt, mit Energien von bis zu 0,5 J und daraus resultierenden Intensitäten von 10^{19} W/cm². Im Unterschied zu den von uns durchgeführten Experimenten wurde das Plasma in Edelgasen (Helium und Argon) erzeugt und nicht extern vorgespannt. Die elektromagnetische Strahlung resultiert dabei aus ponderomotiven Kräften (vergleiche [Kib66]) innerhalb des Laser-Fokus, durch die eine extrem schnelle Separation der Ladungsträger stattfindet. Durch diese Ladungsträgerbewegung wird ähnlich wie im Stromstoß-Modell eine EM-Strahlung emittiert, die proportional zur Beschleunigung der Ladungsträger ist (siehe Gleichung (2.2) und Abb. 3.16a und b).

Um die Intensität, Frequenz und Abstrahlcharakteristik der emittierten Strahlung abzuschätzen, kann ein hydrodynamisches Modell herangezogen werden, dessen numerische Lösungen gut mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimmen [Ham93, HSGF94]. Insbesondere wird, wie in Abb. 3.16b angedeutet, eine um die Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls kegelförmige THz-Abstrahlung gefunden. In Vorwärtsrichtung wird aus Symmetrie-Gründen hingegen keine Strahlung emittiert.

Neben dieser Frequenzteilung wurde auch Frequenzvervielfachung genutzt, um hochfrequente Pulse aus Gasen [LLK⁺96] und Halbleitern [HZP99] zu generieren. Dabei propagiert eine durch den Laserpuls generierte Front, bestehend aus einer Grenzschicht aus ionisierten und nicht ionisierten Atomen, durch eine Anordnung von elektrisch geladenen Kondensatoren, wobei Energie aus dem zeitlich konstanten, örtlichen "Wechselstromfeld" der Kondensatoren in ein sich parallel und phasengleich mit der Wellenfront ausbreitendes Wechselfeld konvertiert wird.

In dem hier beschriebenen Experiment wird (Abb. 3.16c) an das im Laserfokus generierte Plasma zusätzlich ein starkes statisches elektrisches Feld angelegt. Analog zu der

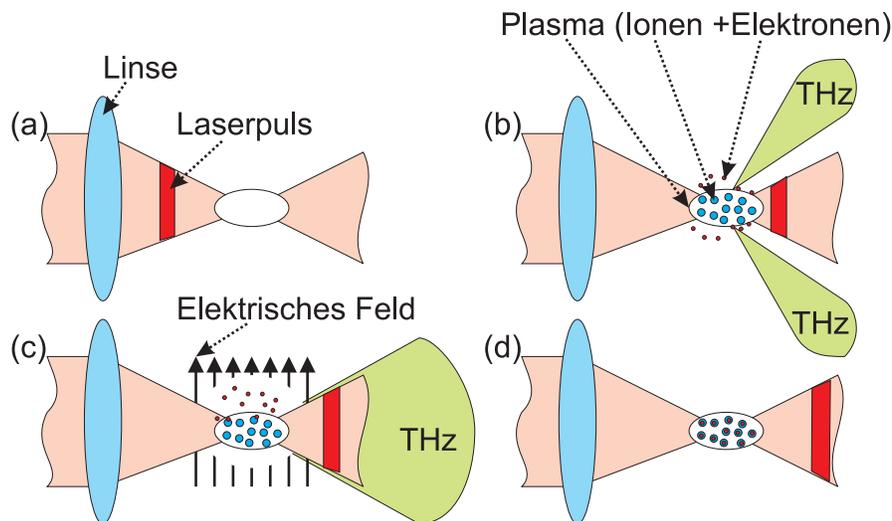


Abbildung 3.16: Generationsprozeß von THz-Strahlung durch ein optisch generiertes Plasma. (a) Erzeugung des Plasmas durch eine Linse kurzer Brennweite. (b) Im Fokus werden durch die Energiedichte von bis zu 10^{16} W/cm² Elektronen und Ionen getrennt. Die exakte Lösung der Maxwellgleichungen liefert eine ponderomotive Kraft, die die Elektronen und Ionenrumpfe beschleunigt und damit EM-Strahlung generiert. (c) Ein extern angelegtes Feld beschleunigt Elektronen und Ionenrumpfe, wodurch EM-Strahlung senkrecht zum Vorspannungsfeld emittiert wird. (d) Elektronen und Ionen rekombinieren auf der Zeitskala von ps.

Kondensator-Anordnung ist zu erwarten, daß ein externes Vorspannen des im Laserfokus generierten Plasmas - ähnlich einem einzelnen Kondensator - eine Steigerung der emittierten THz-Intensität liefert (Abb. 3.16c). Zu beachten ist dabei, daß die Richtung des abgestrahlten THz-Pulses nun parallel zur Ausbreitungsrichtung des Laserpulses ist.

3.4.2 Spektrum und zeitlicher Verlauf

Abb 3.19d zeigt den zeitlichen Verlauf des vom vorgespannten Plasma emittierten THz-Pulses. Dabei befand sich das Plasma zwischen zwei Kupferelektroden mit einem Abstand von 0,8 mm. Die Elektroden waren mit 850 V vorgespannt, so daß ein externes elektrisches Feld von 10,6 kV/cm anlag. Der Hauptpuls ist gefolgt von etwa 10 ps anhaltenden Oszillationen, die größtenteils durch Absorptionen der Wassermoleküle in Luft verursacht werden.

In Abb. 3.17a ist die Abhängigkeit der maximalen Signalamplitude von der angelegten Vorspannung dargestellt. Die verbleibende Emission ohne Vorspannung entspricht der oben beschriebenen THz-Emission durch ponderomotive Kräfte. Diese Interpretation wird gestützt von der Beobachtung, daß die Signalform nahezu unabhängig von der Vorspannung ist, außer bei niedrigen Werten (Abb 3.18a). Der ponderomotive Anteil ist dabei in Vorwärtsrichtung nur detektierbar, da ein endlicher Raumwinkel in nicht perfekter Symmetrie

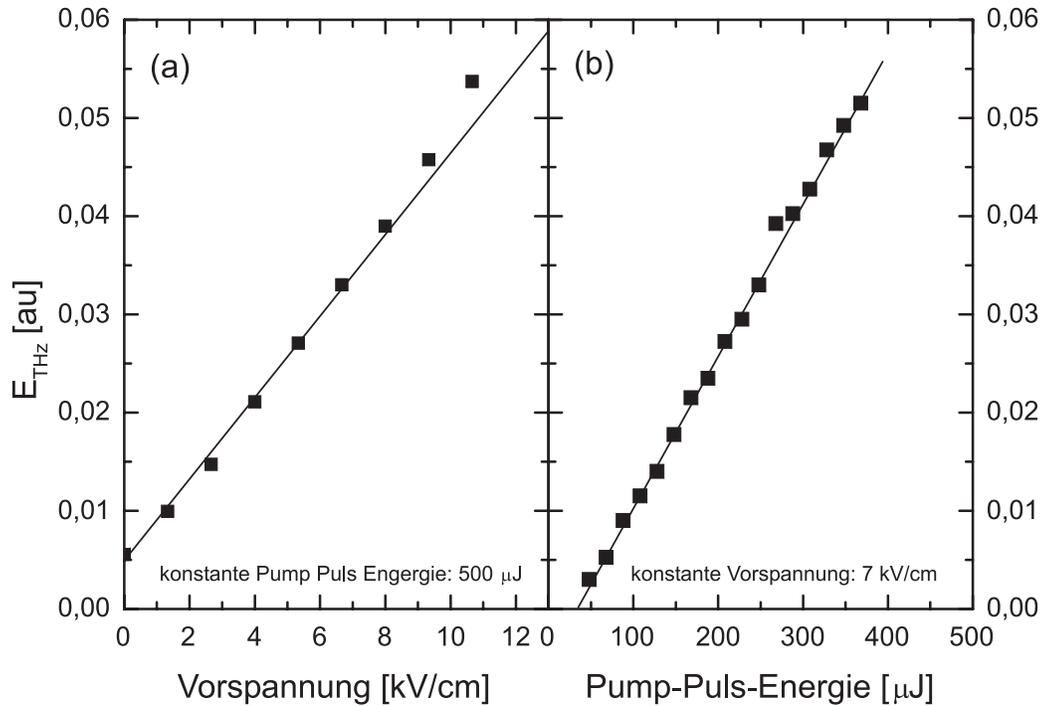


Abbildung 3.17: *Abhängigkeit der THz-Emission von vorgespanntem Plasma von der (a) Vorspannung (b) Pump-Puls-Energie. Die experimentellen Daten (Punkte) sind linear gefittet (Linie).*

auf den Detektor abgebildet wird. Zudem sieht man ein Schieben des maximalen Wertes im Amplitudenspektrum hin zu höheren Frequenzen für niedrigere Vorspannungen (Abb 3.18b). Die Abweichung vom linearen Zusammenhang für hohe Vorspannungen, die nahe an der Durchbruchspannung der Luft liegen, zeigt eine Verbesserung der Konversionseffizienz, da schon ohne optischen Puls beinahe die Feldionisation erreicht ist.

Abb. 3.17b zeigt den praktisch linearen Zusammenhang zwischen der Pump-Puls-Energie und der detektierten EM-THz-Strahlung. Die Extrapolation der Geraden auf die Abszisse liefert einen unteren Grenzwert für die THz-Emission bei etwa $40 \mu\text{J}$. Dies entspricht einer Energiedichte von etwa 10^{15} W/cm^2 , nimmt man einen $10 \mu\text{m}$ optischen Fokus an. Im einfachen Stromstoß-Modell ist die emittierte THz-Strahlung direkt proportional zur Anzahl der Ionen bzw. Elektronen. Unterhalb einer Energiedichte von 10^{15} W/cm^2 ist eine Multiphotonen-Absorption zur Ionisation der Atome nötig. Dieser nichtlineare Prozeß resultiert aus einem Zusammenhang höherer Ordnung zwischen der Laserpuls-Energie und der Anzahl der ionisierten Atome [AMSC91, LJR]. Oberhalb einer Energiedichte von etwa 10^{15} W/cm^2 liegt Tunnelionisation im elektrischen Feld des Laserfeldes vor. In diesem Regime wurde ein linearer Zusammenhang zwischen Ionenzahl und Intensität beobachtet. Der damit erwartete lineare Anstieg der THz-Feldstärke wurde experimentell bestätigt, wie aus Abb.

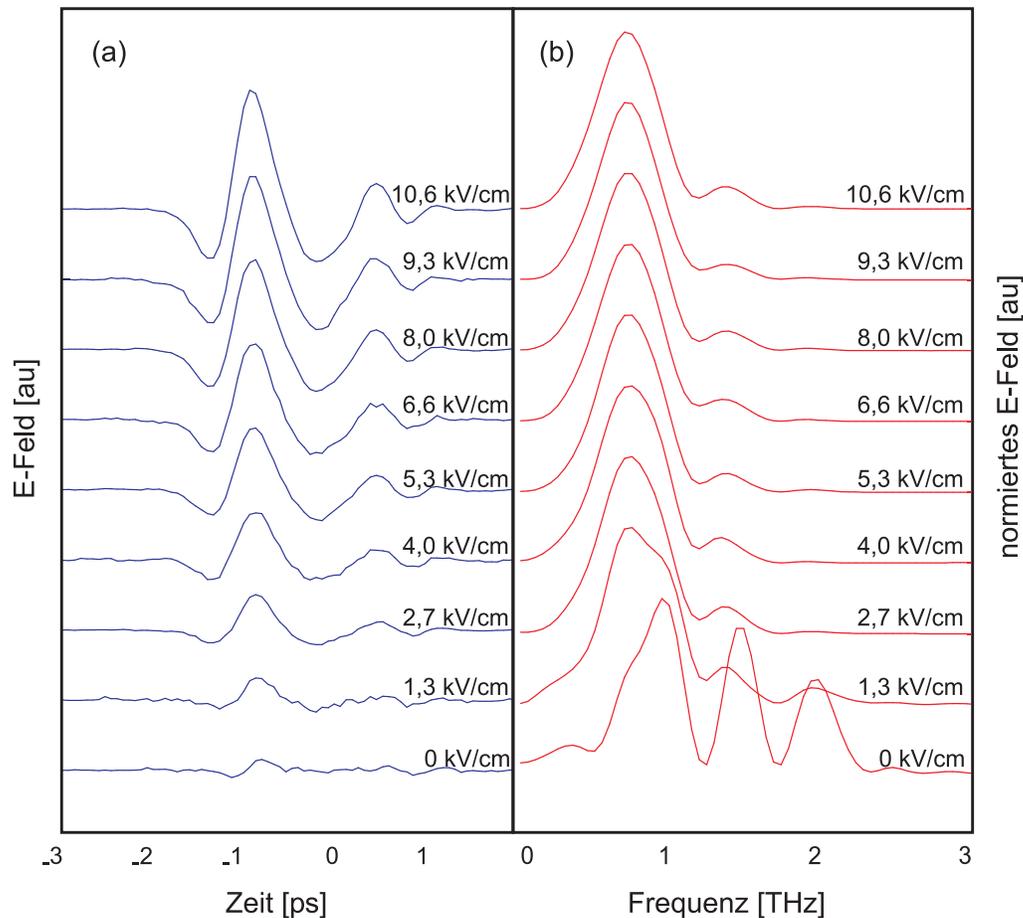


Abbildung 3.18: (a) detektiertes THz-E-Feld für verschiedene Vorspannungen des Plasma-Emitters. Die zeitliche Null ist willkürlich gelegt. (b) korrespondierendes Amplituden-Frequenzspektrum; der maximale Wert ist auf Eins normiert. Durch die geringe Frequenzauflösung verbreiterte Wasserabsorptionen bei 1,2 und 1,7 THz sind deutlich bei 0 kV/cm zu erkennen.

3.17 ersichtlich ist. Auch scheint die Pulsform bzw. das Frequenzspektrum unabhängig von der Pulsenergie zu sein (Daten nicht gezeigt).

3.5 Vergleich und Ausblick

Um für zukünftige Anwendungen einen möglichst guten Emittter wählen zu können, sollen im folgenden die vorgestellten Emittter verglichen und Möglichkeiten zur weiteren Verbesserung eruiert werden. Da eines der Haupteinsatzgebiete sicherlich die THz-TDS (Time Domain Spektroskopie) sein wird, ist der Schwerpunkt auf das Signal-Rausch-Verhältnis (engl. *s/n* - signal to noise) und die zur Verfügung stehende Bandbreite gelegt. Das angegebene *s/n* bezieht sich auf eine Lockin-Zeitkonstante von 30 ms und eine zwanzigfache Wiederholung

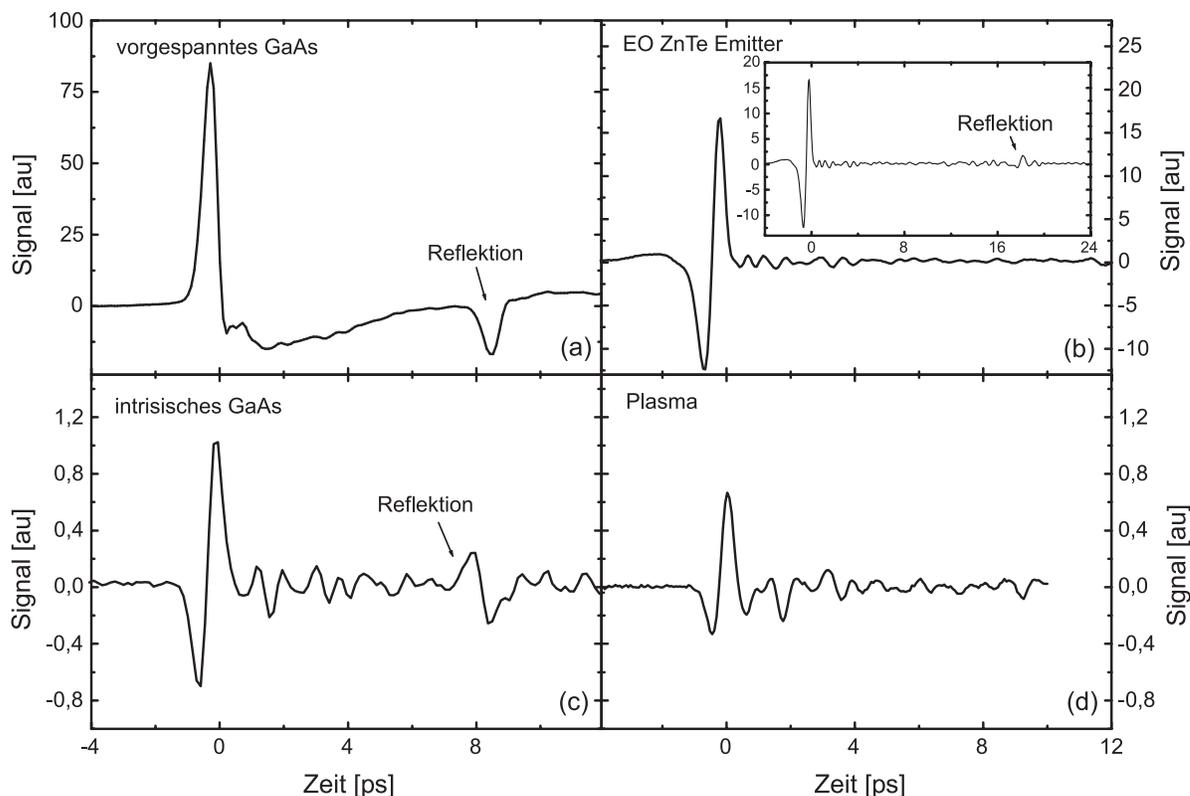


Abbildung 3.19: Zeitlicher Verlauf der THz-Pulsform (a) mit 1 kV/cm extern vorgespanntem GaAs (b) dreifach vergrößerte Pulsform eines EO-ZnTe-Emitters (c) 50-fach vergrößerte Pulsform von intrinsischem GaAs (d) 50-fach vergrößerte Pulsform von mit 10 kV/cm vorgespanntem Plasma. Bei (a) und (b) wurde der Versuchsaufbau mit trockenem Stickstoff geflutet. Die Maßstäbe der vier Graphen sind vergleichbar.

der Messung mit anschließender Mittelung.

3.5.1 Zeitlicher Verlauf

Vergleicht man den zeitlichen Verlauf der emittierten Pulse (Abb. 3.19), so unterscheiden sie sich stark in der maximalen Signalamplitude. Die Vergleichbarkeit ist dabei aber etwas durch die Tatsache eingeschränkt, daß die Messungen nicht in einer Meßreihe aufgenommen werden konnten, sondern - bedingt durch den Umbau des Experiments - an verschiedenen Tagen gemacht wurden. Durch unterschiedliche Justage, unterschiedlich gute Optimierung des in allen hier gezeigten Messungen verwendeten elektrooptischen Detektors kann die Detektionseffizienz schwanken. Diese Unsicherheit sollte aber in keinem Fall mehr als einen Faktor zwei ausmachen.

Die Reflektionen sind ein weiteres für die Spektroskopie wichtiges Merkmal der Emittor. Wie bereits in Abschnitt 3.1.3 erwähnt, verursachen sie Etalon-Oszillationen im Spektrum, die den Vergleich der Referenz- und Probenmessung erschweren, wie noch ausführlich in Abschnitt 5 besprochen wird. Da der Abstand der Reflektion zum Hauptpeak durch die Dicke

und den Brechungsindex des Emitters bestimmt ist, kommt die Reflektion im vorgespannten und intrinsischen GaAs-Emitter nach 8 ps, im EO-ZnTe-Emitter nach 18 ps. Will man die Etalon-Oszillationen durch kurze Messungen vermeiden, die die Reflektion nicht enthalten, so wird die Frequenzauflösung dadurch auf etwa 62 GHz bzw. 30 GHz beschränkt (Nyquist Theorem).

Zumindest für die beiden GaAs-Emitter gibt es eine andere Möglichkeit, die relative Stärke der Reflektion zu vermindern. Baut man den Versuch so auf, daß die reflektierte statt der transmittierten THz-Strahlung für die Spektroskopie genutzt wird, so erhält man sogar eine größere Signalamplitude, da - wie (3.3) zeigt - die in beide Richtungen emittierte Strahlung die gleiche Amplitude besitzt, die transmittierte aber Absorption und Dispersion in GaAs erfährt. Zudem wird die transmittierte Welle in Hauptpuls und Reflektion durch den Halbleiter-/Luftübergang geteilt.

3.5.2 Frequenzspektrum

Um die Frequenzspektren der Emitter zu vergleichen, bieten sich zwei Kriterien an: 1. Die absolute emittierte THz-Leistung und, da es in der Spektroskopie hauptsächlich auf das s/n ankommt, 2. die Leistung nach Normierung auf das Rauschniveau. Bedingt durch die begrenzte Detektorbandbreite wird dieses für alle Emitter oberhalb von 3 THz erreicht (Abb. 3.20). Die Spektren des intrinsischen GaAs-Emitters und des Plasmas zeigen starke Wasserabsorptionen bei 1,2, 1,7 und 2,2 THz, da der experimentelle Aufbau nicht wie bei den anderen beiden Emittieren mit trockenem Stickstoff gespült wurde (siehe auch Abschnitt 5.1.3). Die gemessene Bandbreite der Emitter ist hauptsächlich durch die Bandbreite des Detektors beschränkt, was den parallelen Abfall der Spektren hin zu hohen Frequenzen erklärt. Damit läßt sich leider nur schwer eine auf experimentellen Daten basierende Aussage über die maximalen Frequenzen der Emitter treffen. In der Form der Spektren zeigt nur der extern vorgespannte GaAs-Emitter einen deutlich anderen Verlauf, mit höheren Anteilen bei Frequenzen unterhalb von 100 GHz.

Im Gegensatz zu den Signalamplituden, bei denen der vorgespannte GaAs-Emitter über das gesamte Frequenzspektrum die höchste Leistung abstrahlt, ist der stärkste Emitter hinsichtlich s/n der EO-ZnTe-Emitter mit einem s/n über 100000:1 im Leistungsspektrum (vergleiche Abb. 3.20b). Betrachtet man insbesondere das s/n bei den besonders interessanten Frequenzen oberhalb von einem THz, ist der EO-Emitter um beinahe eine Größenordnung überlegen. Dieser Unterschied im s/n läßt sich durch ein höheres Rauschniveau des extern vorgespannten GaAs-Emitters erklären, verursacht durch die angelegten 3 kV des Hochspannungsnetzteils und den im 1 kHz Takt des Lasers modulierten Photostrom. Hier könnte theoretisch durch eine effiziente Abschirmung eine Größenordnung im s/n gewonnen werden, was sich in der Praxis aber als schwierig erweist. Zudem muß für den Vergleich berücksichtigt werden, daß der EO-Emitter aufgrund der nahen Zerstörschwelle des Kristalls nur mit der Hälfte der optischen Pulsenergie gepumpt wurde. Die Unterschiede im Rauschniveau der anderen Emitter sind durch die verschiedenen Lockin-Verstärker-Sensitivitäten erklärbar (siehe hierzu Abschnitt 4.3.1).

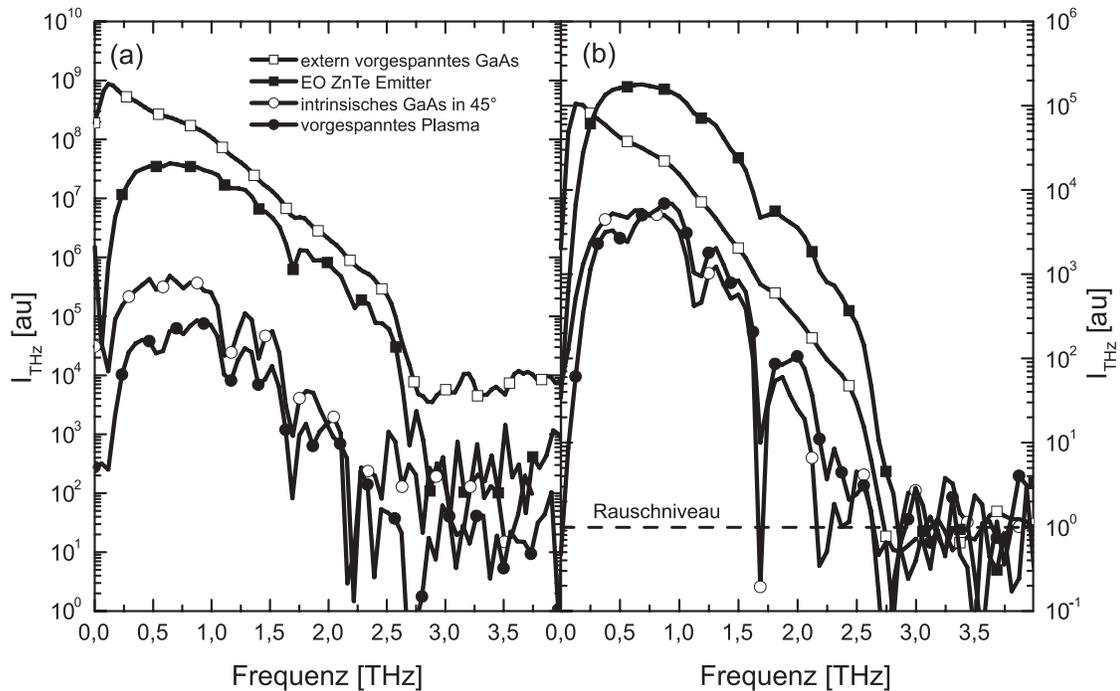


Abbildung 3.20: Halblogarithmische Darstellung des spektralen Verlaufs der verschiedenen Emittier. Zur besseren Übersichtlichkeit wurde nur jeder fünfte Meßpunkt im Kurvenverlauf als Punkt wiedergeben. Bei den Messungen des EO-Emittiers und des vorgespannten GaAs-Emittiers wurde der Versuchsaufbau mit trockenem Stickstoff gespült. Bei 1,2, 1,7 und 2,2 THz sind starke Wasserabsorptionen zu sehen. Alle Messungen wurden mit einer Lockin-Verstärker-Zeitkonstante von 30 ms gemessen und zusätzlich 20-mal gemittelt. (a) Leistungsspektrum der verschiedenen Emittier auf willkürlicher, aber vergleichbarer Skala (b) Die Spektren sind normiert auf das Rauschniveau oberhalb von 3 THz, um die Vergleichbarkeit hinsichtlich s/n herzustellen.

3.5.3 Sättigungsverhalten

Abb 3.21a zeigt das Sättigungsverhalten der Emittier. Dabei ist die maximale Signalamplitude jedes Emittiers auf Eins normiert. In Abb 3.21b ist die Ableitung der emittierten Feldstärke nach der optischen Pumpleistung dargestellt als ein Maß für die zusätzlich gewonnene Signalamplitude durch erhöhte Pumpleistung. Es wird deutlich, daß die beiden GaAs-Emittier schon bei sehr geringen Leistungen anfangen zu sättigen und eine Erhöhung der optischen Pumpleistung von $100 \mu\text{J}$ auf $500 \mu\text{J}$ nicht einmal mehr eine Verdopplung der emittierten Signalamplitude liefert. Auch der EO-ZnTe-Emittier sättigt, obgleich deutlich weniger als die GaAs-Emittier, insbesondere wenn man in Betracht zieht, daß diese 36-mal größer sind und damit die Leistungsdichte 36-mal niedriger ist als beim EO-Emittier. Das Plasma mit der höchsten Leistungsdichte zeigt keinen Hinweis auf Sättigung.

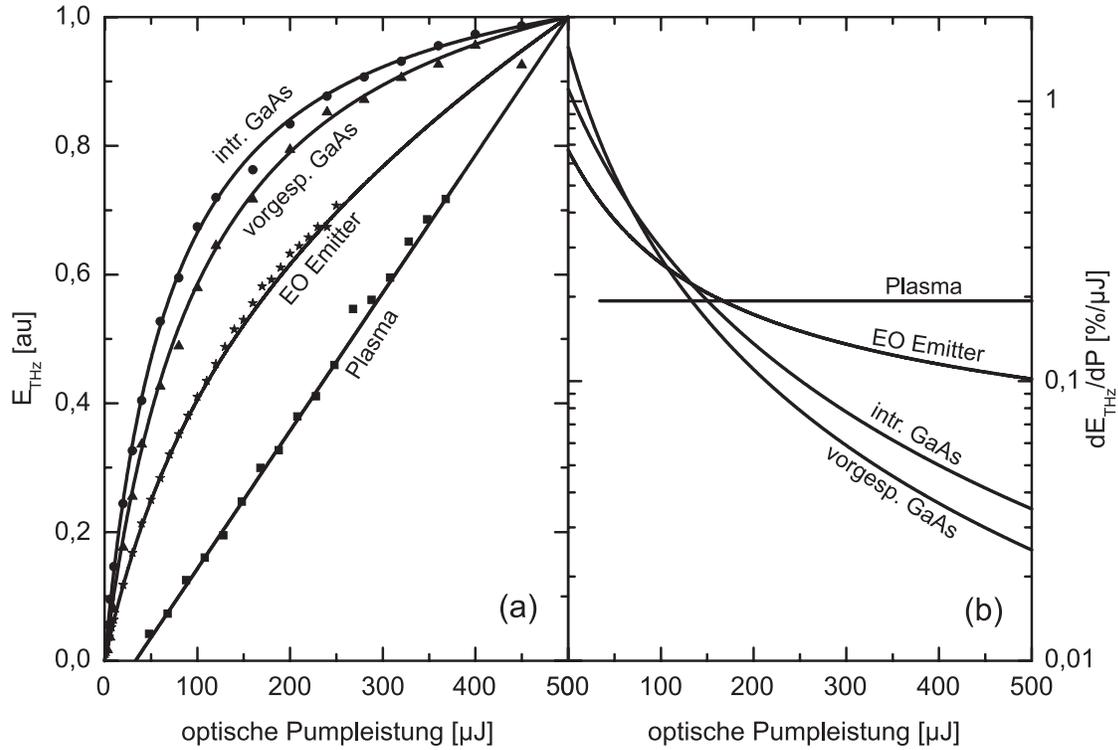


Abbildung 3.21: Vergleich des Sättigungsverhaltens der Emittier. (a) Emittierte THz-Amplitude gegen optische Pumpleistung. Die Punkte zeigen experimentelle Daten, die durchgezogenen Linien sind die in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Anpassungen. (b) Ableitung der Fitfunktionen als Maß für die Änderung mit steigender Pumpleistung.

3.5.4 Flächenabhängigkeit

Eine Möglichkeit den Sättigungseffekt abzuschwächen besteht in der Vergrößerung des Emittiers, so daß auf eine Einheitsfläche des Emittiers weniger optische Leistung fällt. Damit wird aber nicht zwangsläufig eine höhere Konversionseffizienz erzielt. Dies wird deutlich, wenn man die Flächenabhängigkeit des Sättigungsverhaltens betrachtet. Für GaAs wurde in Abschnitt 3.1.2 gezeigt, daß der Sättigungsverlauf in guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten gemäß (3.8) die funktionale Form

$$E_{THz} = \alpha \frac{\beta P_{opt}/A_E}{\beta P_{opt}/A_E + 1} \quad (3.37)$$

besitzen. Dabei ist A_E die Fläche des Emittiers und P_{opt} die Leistung des optischen Pulses.

Für den EO-Emitter wurde ein Zusammenhang gemäß

$$E_{THz} = \alpha \sqrt{\frac{P_{opt}}{A_E}} \tanh \left(\beta \sqrt{\frac{P_{opt}}{A_E}} \right) \quad (3.38)$$

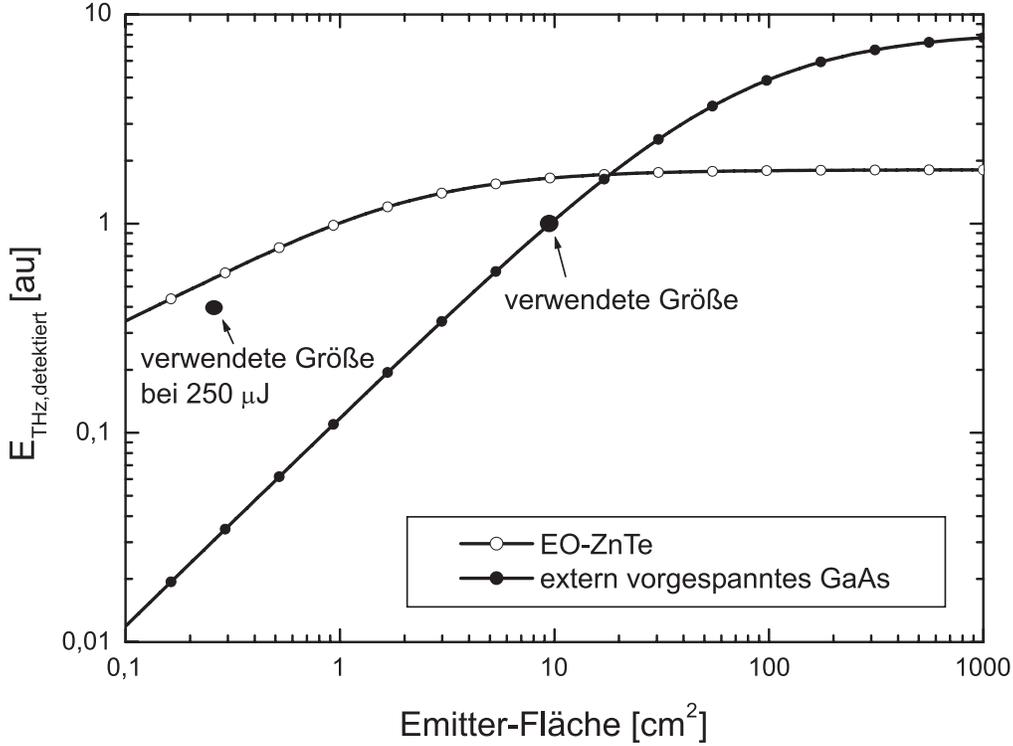


Abbildung 3.22: Berechnete Abhängigkeit des detektierten Signals von der Größe des vorgespannten GaAs- bzw. EO-Emitters für eine optische Pulsenergie von 500 μJ unter Berücksichtigung von Sättigungseffekten.

gefunden. Für beide Emitters ist demnach im Grenzfall für kleine optische Pumpleistungen eine Abhängigkeit gemäß $E_{\text{THz}} \propto P_{\text{opt}}/A_E$ zu erwarten bzw. mittels des Poyntingschen Theorems $P_{\text{THz}} = P_{\text{opt}}^2/A_E$. Dies entspricht aber nicht der detektierten THz-Feldstärke. Wie Gleichung (2.7) zeigt, ist das detektierte Signal

$$E_{\text{THz},d} \propto \sqrt{\frac{P_{\text{THz}}}{A_d}} \propto \sqrt{\frac{P_{\text{opt}}^2}{A_d A_E}} \quad (3.39)$$

wobei A_d der Fokusfläche auf dem Detektor und P_{THz} der Leistung des THz-Pulses entspricht. Wie in Abschnitt 2.6 gezeigt wurde, ist gemäß (2.18) $A_d \propto 1/A_E$ und damit $E_{\text{THz},d} \propto P_{\text{opt}}$ unabhängig von der Fläche des Detektors!

Da die Emitters bereits stark sättigen, kann das Sättigungsverhalten bei der Betrachtung der Flächenabhängigkeit nicht vernachlässigt werden. Durch Einsetzen der Anpassung des gefundenen Sättigungsverhaltens (3.37) und (3.38) sowie der Fokusgröße (2.18) in (3.39) erhält man die in Abb. 3.22 gezeigten Flächenabhängigkeiten des EO- und des vorgespannten GaAs-Emitters. Für kleine Emitters (Emitters mit einer Seitenlänge in der Größenordnung der Wellenlänge der emittierten Strahlung und kleiner) müssen zusätzlich kohärente Phänomene des Emissionsprozesses berücksichtigt werden, durch die weitere Faktoren in die

Flächenabhängigkeit eingeführt werden [VRW94].

Eine Vergrößerung der Emitterfläche könnte ein bis zu vierfach (EO-Emitter) bzw. siebenfach (GaAs-Emitter) größeres Signal liefern. Durch experimentelle Beschränkungen ist eine deutliche Vergrößerung des GaAs-Emitter aufwendig aber vielversprechend. Für den EO-Emitter ist eine Vergrößerung bis auf eine Fläche außerhalb des Sättigungsbereichs unproblematisch.

3.5.5 Diskussion und Ausblick

Im folgenden soll eine Zusammenfassung der verschiedenen Leistungsdaten und Verbesserungsmöglichkeiten hinsichtlich größerer Leistung und höherer Bandbreite gegeben werden. Tabelle 3.1 zeigt noch einmal die wichtigsten Merkmale der Emitter¹.

Für den extern vorgespannten GaAs-Emitter ist eine naheliegende Möglichkeit zur Leistungssteigerung die Erhöhung des angelegten Feldes. Wie in Abb. 3.2 gezeigt, ist bis 1 kV/cm keine Abweichung vom linearen Zusammenhang zwischen emittierter Feldstärke und Vorspannung zu erkennen. Erst für Vorspannungen über 4 kV/cm wurde eine Sättigung bei einer optischen Pumpleistung von $8 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ beobachtet [DZA92, Win99], für höhere Pumpleistungen wurde der Zusammenhang als linear bis zur maximal angelegten Vorspannung von 10 kV/cm beschrieben [BRT94], was einer Verzehnfachung der Signalamplitude und damit einem Faktor 100 im Leistungsspektrum entspräche! Limitierend für die maximal angelegte Spannung ist der einsetzende Funkenschlag von den Elektroden auf den Halbleiter, der für den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten GaAs-Emitter schon ab etwa 1,5 kV/cm auftrat (Abhängig von der jeweiligen Luftfeuchtigkeit). Eine Möglichkeit, diese Beschränkung zu umgehen, besteht in der Verwendung eines gepulsten Hochspannungsnetzteils, das synchron mit den Laserpulsen getriggert wird. Damit konnten in anderen Gruppen Felder von über 10 kV/cm angelegt werden. Allerdings handelt man sich mit der hohen Spannung zugleich auch eine weitere Verschlechterung des Rauschniveaus ein, so daß große Sorgfalt auf elektrische Abschirmung gelegt werden muß. In der Praxis erweist sich eine effiziente Abschirmung aber als schwierig.

Betrachtet man weiterhin das Sättigungsverhalten des vorgespannten GaAs-Emitters, so wäre eine Vergrößerung der Emitterfläche wünschenswert, da z.B. bei einer Verzehnfachung die optische Leistungsdichte um den gleichen Faktor sinken würde. Damit wäre eine Verfünffachung der insgesamt abgestrahlten Feldstärke möglich. Durch experimentelle Beschränkungen scheint aber eine Emittergröße von mehr als 5×5 cm nur schwer realisierbar, so daß hier allenfalls eine Verdopplung realistisch wäre. Allerdings schiebt die Bandbreite, wie in Abschnitt 3.1.3 gezeigt, mit sinkender Pumpleistung zu niedrigeren Werten, wodurch Bandbreite verlorengehe.

¹Durch die Verwendung neuer optischer Komponenten konnte vor kurzem in unserer Arbeitsgruppe die Amplitude des THz-Feldes des Plasma-Emitters bis auf 4% des Wertes für extern vorgespanntes GaAs erhöht werden.

	ext. v. GaAs	EO-ZnTe	intr. GaAs	Plasma
Emitter Fläche	10 cm ²	0,25 cm ²	10 cm ²	0,0001 cm ²
opt. Pulsenergie	500 μJ	250 μJ	500 μJ	500 μJ
Amplitude	100 %	39 %	1,7 %	1,0 %
max s/n absolut	110000:1	180000:1	5800:1	6900:1
s/n abs. bei 0,5 THz	42000:1	163000:1	5000:1	2700:1
s/n abs. bei 1,0 THz	15400:1	130000:1	3200:1	5500:1
s/n abs. bei 2,0 THz	300:1	3600:1	25:1	100:1
max s/n relativ	100 %	170 %	6 %	7 %
s/n rel. bei 0,5 THz	100 %	390 %	12 %	7 %
s/n rel. bei 1,0 THz	100 %	840 %	21 %	35 %
s/n rel. bei 2,0 THz	100 %	1200 %	8 %	33 %
s/n im Zeitbereich	3680:1	1550:1	630:1	250:1
10 % Bandbreite	0,03-1,05 THz	0,16-1,55 THz	0,13-1,49 THz	0,23-1,53 THz
Maximum bei	125 GHz	687 GHz	687 GHz	874 GHz
mittlere Frequenz	420 GHz	780 GHz	700 GHz	840 GHz
I_{THz} bei 0,5 THz	100 %	1,2 %	$9,9 \cdot 10^{-2}$ %	$8,2 \cdot 10^{-3}$ %
I_{THz} bei 1,0 THz	100 %	27 %	2,5 %	$7,0 \cdot 10^{-2}$ %
I_{THz} bei 2,0 THz	100 %	44 %	1,1 %	$8,1 \cdot 10^{-2}$ %
E_{THz} maximal	1600 V/cm	630 V/cm	27 V/cm	16 V/cm
Energie pro Puls	820 pJ	740 pJ	0,04 pJ	0,06 pJ

Tabelle 3.1: Vergleich der in den vorangegangenen Abschnitten besprochenen THz-Emitter. Die Zeile Amplitude zeigt die maximale Signalamplitude des emittierten THz-Feldes. Das Signal-Rausch-Verhältnis (s/n) ist dem Leistungsspektrum entnommen und bezieht sich auf das Verhältnis zwischen der Leistung bei der angegebenen Frequenz bzw. der maximalen Leistung und dem Rauschniveau. Das s/n im Zeitbereich hingegen ist aus der mittleren Standardabweichung des E_{THz} -Feldes der zwanzig Messungen berechnet. Die 10 % Bandbreite ist der Bereich des Spektrums, der mindestens noch 10 % der Leistung des Maximalwertes enthält. I_{THz} ist die THz-Leistung relativ zum extern vorgespannten GaAs-Emitter für die angegebenen Frequenz. Die Berechnung von E_{THz} und der Energie pro Puls ist ausführlich in Abschnitt 4.2.2 erläutert.

Wie schon in Abschnitt 3.2 besprochen, ist ein unmittelbarer Anstieg der emittierten Feldamplitude um den Faktor zwei zu erwarten, wenn man den intrinsischen Emitter in den Brewster Winkel stellt. Analog zum extern vorgespannten Emitter wäre aufgrund des sehr ähnlichen Sättigungsverhaltens auch eine analoge Verbesserung zu erwarten, wenn man einen größeren Emitter wählt. Allerdings gelten hier die gleichen experimentellen Einschränkungen, so daß wiederum nur etwa ein Faktor zwei vorstellbar ist. Zudem ist der Verlust von Bandbreite durch die sinkende Pumpleistung noch stärker als bei vorgespanntem GaAs (siehe Abschnitt 3.2.2)

Auch beim EO-Emitter bietet sich eine Vergrößerung der Fläche aufgrund der Sättigung an. Da er nicht so stark sättigt wie GaAs, ist das Verbesserungspotential zwar kleiner, außer der Notwendigkeit eines größeren Kristalls existieren aber keine experimentellen Hindernisse. Zudem ließe sich ohne Gefährdung des Kristalls die gesamte Pulsenergie nutzen, was bei einer zehnmal größeren Fläche eine Steigerung der Feldstärke um einen Faktor 4 erwarten ließe. Eine Vergrößerung um den Faktor zehn könnte dann eine härtere Fokussierung der hohen Frequenzen unter Verwendung des gleichen Parabolspiegels liefern (vergleiche Abschnitt 2.6), wovon vor allem bildgebende Verfahren, aber auch THz-TDS profitieren könnten.

Vor allem durch die Verwendung kürzerer optischer Pulse kann die emittierte Bandbreite deutlich erweitert werden (siehe Abschnitt 2.5). Geht man von kürzeren Pulsen gleicher Energie aus, wird durch die höhere optische Intensität auch die erzeugte THz-Pulsleistung steigen. Im Gegensatz dazu bietet die Verwendung dünnerer Kristalle nur eine geringe Erweiterung der Bandbreite für die verwendeten optischen Pulslängen. Die emittierte Feldstärke hingegen fällt linear mit der Kristalldicke, nimmt man ideale Phasenanpassung und keine Absorption an. Für eine substantielle Erweiterung der Bandbreite um einige THz ist aber sowohl die Verwendung kürzerer Pulse als auch dünnerer Kristalle notwendig.

Der Plasma-Emitter ist der einzige Emitter, der bei den gegebenen Leistungen nicht sättigt. Damit scheint er prädestiniert zu sein für niedrig repetierliche Systeme ≤ 10 Hz mit um Größenordnungen höheren Leistungsdichten. Zudem konnte durch Erhöhung des Luftdrucks von 1 auf 5 bar eine deutliche Verstärkung der emittierten Feldamplitude um den Faktor 7-8 erreicht werden. Diese Verbesserung ist hauptsächlich durch die höhere Durchbruchspannung und daraus resultierenden möglichen höheren Vorspannungen erreicht worden. Diese und weitere Ideen zur Optimierung des Emitters sind Gegenstand aktueller Arbeit unserer Forschungsgruppe.

Kapitel 4

THz-Detektoren

Nachstehend werden zwei Verfahren zur Detektion von frei propagierenden THz-Pulsen beschrieben und miteinander verglichen.

Im ersten Teil wird der Nachweis von THz-Strahlung mittels konventioneller Halbleiterdetektoren - wie sie in Abschnitt 2.2.1 kurz vorgestellt wurden - vertieft diskutiert. Der zweite Teil rekurriert auf die Darstellung des elektrooptischen (EO-) Detektors in Abschnitt 2.2.2 und erörtert die Eignung dieses Verfahrens für die verwendete Apparatur. In Teil drei werden beide Verfahren gegenübergestellt und Verbesserungsmöglichkeiten eruiert.

4.1 Antennen

Die häufig zur Detektion von THz-Pulsen verwendeten mikrometergroßen Dipolantennen sind für das hier verwendete Lasersystem prinzipiell weniger geeignet als für die gebräuchlichen hochrepetierlichen Systeme. Die geringen Maße des optischen Schalters machen eine harte Fokussierung des optischen Probe-Strahls auf die Metalleiterlücke der Antenne notwendig. Durch die hohen Leistungsdichten der hier verwendeten Laserpulse werden jedoch unmittelbar Atome aus der Oberfläche gerissen (ablatiert) und damit die Antenne zerstört. Daher ist es notwendig, den Laserstrahl sehr weit abzuschwächen, so daß die Antenne auch langfristig nicht beschädigt wird [JWS⁺96].

Hier kamen daher millimetergroße Antennen zum Einsatz, die ursprünglich als Flächen zur Kontaktierung (Bonden) der mikrometergroßen Antennen gedacht waren. Sie bestehen aus zwei quadratischen $500\ \mu\text{m}$ Metallflächen im Abstand von $100\ \mu\text{m}$ auf einem Halbleitersubstrat (siehe Abb. 4.1). Auf diese $100\ \mu\text{m}$ Lücke werden sowohl Laserlicht als auch THz-Strahlung fokussiert. Die THz-Strahlung wird dabei zunächst durch einen Offaxis-Parabolspiegel und zusätzlich mittels einer auf der Antenne angebrachten Siliziumlinse fokussiert. Die Siliziumlinse erlaubt dabei durch den im Vergleich zur Luft höheren Brechungsindex eine härtere Fokussierung. Da sie aber optisch undurchlässig ist, muß der THz-Puls von der Rückseite der Antenne auf die Lücke fokussiert werden.

Trotz dieser Reduktion der optischen Leistungsdichte durch die Vergrößerung der Antennenfläche ist ein weiteres Abschwächen notwendig, um unter der Zerstörschwelle der Antenne zu bleiben. Abb. 4.2b zeigt eine mit einer optischen Leistung von ca. $5\ \text{mW}$ - also etwa $5\ \mu\text{J}$ pro Puls - zerstörte Antenne. Der optische Fokus betrug dabei etwa $70\ \mu\text{m}$ und wurde

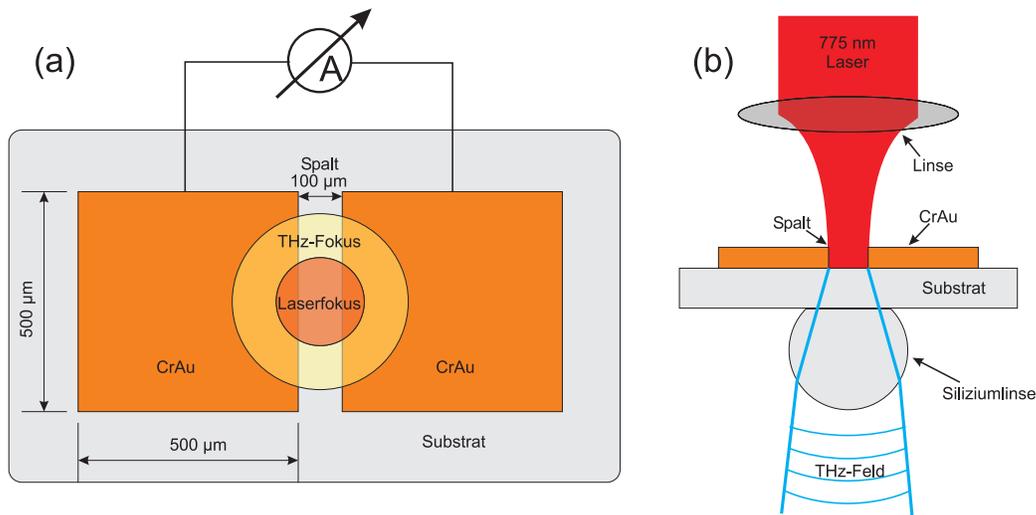


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung der Detektorantenne

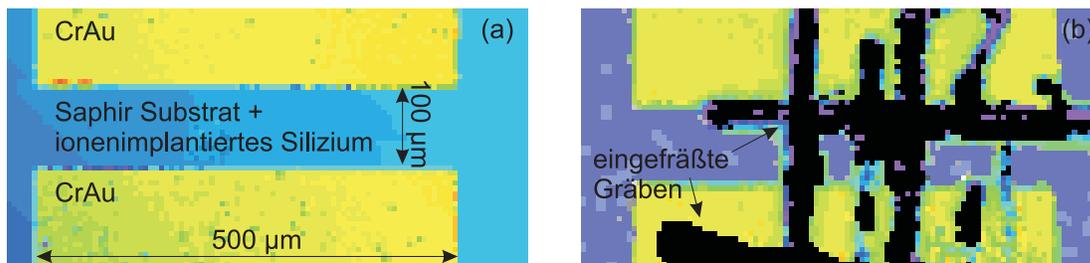


Abbildung 4.2: (a) Aufnahme der THz-Antenne unter dem Interferenzmikroskop (b) nach Zerstörung durch zu intensive optische Probeleistung.

bei der Justage über die Antenne bewegt, wodurch tiefe Gräben in die Antennenoberfläche gefräßt wurden. Die nachfolgenden Messungen wurden mit einer etwa dreimal geringeren optischen Anregungsdichte durchgeführt.

Wie schon in Abschnitt 3.1 besprochen, werden durch das auftreffende Laserlicht im Halbleiter Ladungsträger generiert. Durch dieses Überbrücken der nichtleitenden Lücke kann bei Eintreffen des THz-Pulses über das externe Amperemeter Strom fließen, getrieben durch das elektrische THz-Feld. Um das frequenzabhängige charakteristische Antwortverhalten dieses Detektorsystems modellieren zu können, muß 1. das zeitliche Verhalten der Photoladungsträger, 2. die Empfangscharakteristik der Dipolantenne sowie 3. die Impedanzankopplung der Antenne beachtet werden.

Das zeitliche Verhalten der Photoladungsträger in Halbleitern wurde schon im Rahmen der Emission großflächiger Antennen im Abschnitt 3.1 behandelt, dessen Stromstoß-Modell auch hier Gültigkeit besitzt. Insbesondere die Oberflächenleitfähigkeit $\sigma_s(t)$ (3.10) kann übernommen werden, einzig müssen - bedingt durch den anderen Halbleiter - andere Zeit-

konstanten τ_c und τ_s verwandt werden.

Mittels des Ohmschen Gesetzes erhält man damit einen Ausdruck für den durch das Amperemeter fließenden Strom

$$Q(\tau) = \int I(t, \tau) dt = \int U(t) \sigma_s(t - \tau) dt = U(t) * \sigma(t) \quad (4.1)$$

wobei $U(t)$ die an der Antennenlücke anliegende Spannung, $I(t, \tau)$ der Strom und $Q(\tau)$ die gesammelte Ladung sind. τ ist dabei die zeitliche Verzögerung zwischen Pump- und Probe-Strahl. Da der Stromfluß mit Hilfe eines Lockin-Verstärkers mit einer Zeitkonstante von 30 ms gemessen wird, kann die zeitliche Änderung des Stroms nicht aufgelöst werden und der gemessene Strom ist proportional zur Ladung $Q(\tau)$.

Die an der Antennenlücke induzierte Spannung läßt sich mathematisch darstellen als Faltung der frequenzabhängigen Empfangscharakteristik der Antennen $H(\omega)$ und der Fourier-Transformierten des THz-Pulses $E'_{THz}(\omega)$

$$U(t) \sim \int H(\omega) E'_{THz}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (4.2)$$

Die Empfangscharakteristik einer Antenne hängt von zahlreichen Parametern wie Antennengeometrie, Länge, Leitfähigkeit etc. ab. Daher ist es schwierig, einen analytischen Ausdruck für $H(\omega)$ herzuleiten, es hat sich aber gezeigt [PMW98], daß für kleine Antennen relativ zum THz-Fokus $H(\omega) = 1$ und für große Antennen $H(\omega) \sim i\omega$ eine gute Approximation bilden.

Um dieses Ergebnis mit den experimentell gefundenen Daten vergleichen zu können, muß berücksichtigt werden, daß der optische Probestrahl nur teilweise von Halbleiter und Substrat absorbiert wird, so daß an der Rückseite der Antenne ein Teil des transmittierten Strahls reflektiert wird und ein zweites Mal auf die Lücke trifft. Dieser optische Puls ist zwar schwächer als der erste, generiert aber dennoch genügend Photoladungsträger, um ein deutliches zweites Signal zu liefern, falls zugleich der THz-Puls auf die Lücke trifft. Dieses zweite Signal erscheint früher auf der Zeitachse der Messung, da das Signal detektiert wird, obwohl der THz-Puls relativ zum ersten Puls zu spät kommt. Dies kann in der Simulation durch Superposition eines zweiten, verzögerten und schwächeren Signal berücksichtigt werden

$$Q_{det}(\tau) = Q(\tau) + \alpha Q\left(\tau - \frac{2c}{n} d\right) \quad (4.3)$$

wobei d die Dicke und n der Brechungsindex des Substrats sind. α ist ein Faktor, der sich unter anderem aus der Absorption bzw. Reflektion des optischen Strahls, aber auch der Pulsverbreiterung durch Dispersion zusammensetzt und angepaßt wird.

Abb. 4.3 zeigt die mit der beschriebenen Antenne gemessene Pulsform des intrinsischen GaAs-Emitters, der in Abschnitt 3.2 ausführlich behandelt wurde, zusammen mit der Anpassung des entwickelten Modells. Als Ausgangsbasis für den Fit (als E_{THz}) dienten die in Abb. 3.19c gezeigten Daten des gleichen Emitters, gemessen mit der EO-Detektion. Wie

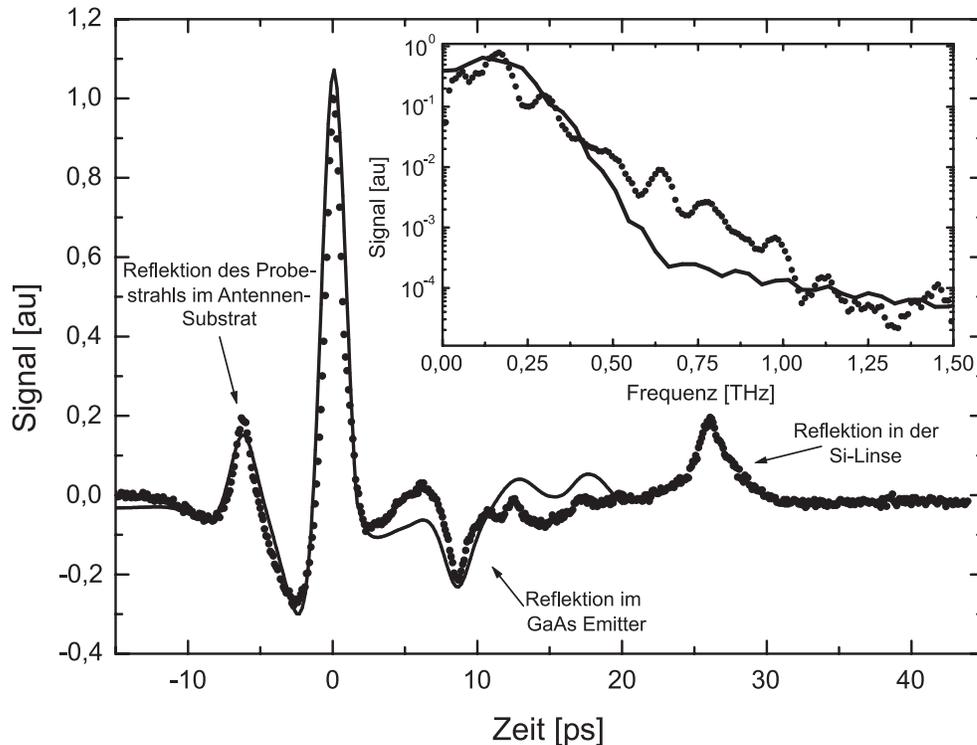


Abbildung 4.3: Gemessene (Punkte) und berechnete (durchgezogene Linie) THz-Wellenform. Im Einsatz sind die entsprechenden Leistungsspektren dargestellt.

im folgenden Abschnitt gezeigt wird und wie in [CBL⁺98, PMW98] beschrieben, liefert die EO-Detektion im Rahmen der Bandbreite eine gute Wiedergabe des tatsächlichen E-Feldes. Daher sollte sie insbesondere aufgrund der geringeren Bandbreite der Antenne als Annahme genügen. Angepaßt wurden die Parameter α sowie ein Vorfaktor für $H(\omega) = i\omega$. Für die Zeitkonstanten wurden die in [PMW98] angegebenen Werte von $\tau_c = 1,3$ ps und $\tau_s = 180$ fs angenommen.

Die Hauptmerkmale der Messung werden durch den Fit gut wiedergegeben, der exakte zeitliche Verlauf wird aber nicht reproduziert. Der Vergleich der beiden Frequenzspektren in Abb. 4.3 verdeutlicht, daß für höhere Frequenzen das Modell versagt, was durch die stark vereinfachte Empfangscharakteristik $H(\omega)$ erklärt werden kann. Nicht berücksichtigt ist eine weitere Reflektion, die der THz-Puls in der Siliziumlinse erfährt und die - bedingt durch die Krümmung der Luft-Silizium Grenzfläche - ein weiteres diffuses detektiertes Signal liefert.

Vergleicht man das Frequenzverhalten der Antenne mit dem mikrometergroßer Antennen (z.B. von Jepsen in [Jep96] mit Frequenzen über 2 THz), so fällt eine deutlich geringere Bandbreite auf. Da eine photokonduktive Antenne auch als elementarer Hertzscher Dipol verstanden werden kann, ist der Zusammenhang zwischen Antennenlänge und Frequenzverhalten unmittelbar erklärbar. Vergleichende Messungen von Smith *et al.* [SAN88] zeigten

für 200 μm SOS Antennen ein Maximum im Frequenzspektrum bei 340 GHz, während es für 100 μm bzw. 50 μm bei 525 GHz respektive 750 GHz lag. Dieses Ergebnis paßt gut zum hier gefundenen Maximum bei 160 GHz der verwendeten 1100 μm Antenne.

Messungen mit vorgespanntem GaAs und Plasma als Emitter zeigten im Vergleich zu dem intrinsischen Emitter ein nochmals deutlich schlechteres Signal-Rausch-Verhältnis. Offenbar ist das Detektionssystem mit Antennen empfindlicher gegenüber niederfrequenten elektrischen Störungen als der im nächsten Abschnitt behandelte EO-Detektor. Folglich verursacht das Vorspannen mit mehreren kV ein starkes Rauschen im Detektor (Daten nicht gezeigt). Zum Zeitpunkt des Versuchsaufbaus mit Antennen als Detektor stand noch kein EO-Emitter-Kristall zur Verfügung, somit liegen für diese Kombination keine Daten vor.

4.2 Elektrooptischer Detektor

Wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, beruht die EO-Detektion auf dem linearen elektrooptischen Effekt, der eine Änderung des Brechungsindex proportional zum anliegenden elektrischen Feld verursacht. Diese Änderung des Brechungsindex, die durch einen auf den Kristall treffenden THz-Puls bewirkt wird, verursacht eine veränderte Ausbreitungsgeschwindigkeit der EM-Strahlung, die durch Messung der Phasenverögerung eines optischen Probe-Pulses bestimmt werden kann. Dabei erfährt die optische Komponente des Probe-Strahls, die parallel zum anliegenden THz-Feld polarisiert ist, einen geänderten Brechungsindex, während die Komponente senkrecht zum THz-Feld gleichbleibt. Diese Phasenverzögerung zwischen den Polarisationsrichtungen entspricht dem Effekt eines doppelbrechenden Kristalls und damit einer Polarisationsdrehung.

Beim Durchlaufen des Kristalls ändert sich die Phase der Welle $\exp(i(kz - \omega t))$ gemäß $\phi = kz = n\omega z/c = 2\pi nL/\lambda$ (mit L als Kristalldicke). So ergibt sich eine relative Phasendifferenz der Polarisationsrichtungen

$$\Delta\phi = \phi_x - \phi_y = 2\pi L(n_x - n_y)/\lambda \quad (4.4)$$

Bevor näher auf den elektrooptischen Effekt des Detektorkristalls eingegangen wird, soll zunächst der Analysator zur Messung dieser Polarisationsdrehung betrachtet werden.

4.2.1 Analysator

Abb. 4.4 zeigt eine schematische Darstellung des Analysators. Der Laserstrahl wird von zwei Photodioden detektiert, nachdem er durch einen polarisierenden Strahlteiler in einen x-polarisierten und einen y-polarisierten Strahl aufgeteilt wurde. Die Dioden sind direkt¹ mit dem hochohmigen Differenzeingang eines Lockin-Verstärkers verbunden, so daß das Lockin-Signal

$$I_d = E_x^2 - E_y^2 \quad (4.5)$$

¹Es erwies sich als unnötig, die Dioden vorzuspannen, da die Geschwindigkeit der Photodioden aufgrund der geringen Repetitionsrate des Lasers von nur einem kHz keinen Einfluß auf die Messung hat.

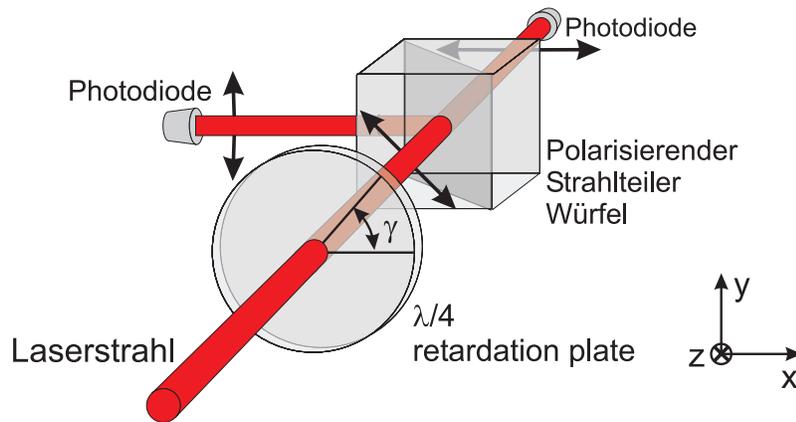


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung des Analysators.

gemessen wird². Durch eine $\lambda/4$ Verzögerungsplatte vor dem Strahlteiler kann durch Änderung des Winkels γ die Polarisation des optischen Probestrahls so eingestellt werden, daß ohne Polarisationsdrehung im EO-Kristall die Polarisation vor dem Strahlteiler 45° und damit das Differenzsignal der Photodioden Null ist.

Um die Abhängigkeit des detektierten Signals von der Polarisationsänderung $\Delta\phi$ bestimmen zu können, bietet sich der Jones-Kalkulus [Yar89] zur Berechnung der Analysator-Charakteristik an. Da es mit dem Analysator prinzipiell nur möglich ist, relative Phasenunterschiede zwischen den Polarisationsrichtungen zu messen, kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit der optische Strahl als

$$E_{in} \sim \left(\exp\left(-\frac{i\Delta\phi}{2}\right), \exp\left(\frac{i\Delta\phi}{2}\right) \right) \quad (4.6)$$

dargestellt werden. Gemäß dem Jones-Kalkulus ergibt sich für die $\lambda/4$ Verzögerungsplatte

$$\mathbf{W} = \mathbf{R}(-\gamma) \mathbf{W}_0 \mathbf{R}(\gamma) \quad (4.7)$$

$$= \begin{pmatrix} \cos -\gamma & \sin -\gamma \\ -\sin -\gamma & \cos -\gamma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\frac{\pi}{4}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\pi}{4}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \gamma & \sin \gamma \\ -\sin \gamma & \cos \gamma \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

$$= \begin{pmatrix} (2i \cos^2(\gamma) + 1 - i)/\sqrt{2} & i\sqrt{2} \cos(\gamma) \sin(\gamma) \\ i\sqrt{2} \cos(\gamma) \sin(\gamma) & -(2i \cos^2(\gamma) - 1 - i)/\sqrt{2} \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

Mit $E_{\lambda/4} = \mathbf{W}E_{in}$ erhält man nun das E-Feld nach Durchlaufen der $\lambda/4$ Verzögerungsplatte. Zusammen mit (4.5) ergibt sich daraus das vom Lockin-Verstärker detektierte Signal

$$I_d \sim 2 \sin(2\gamma) \left(1 - \sin \Delta\varphi - 2 \cos^2 \frac{\Delta\varphi}{2} + 4 \cos^2 \frac{\Delta\varphi}{2} \cos^2 \gamma - 2 \cos^2 \gamma \right) \quad (4.10)$$

²Das Signal der Photodioden ist proportional zur optischen Intensität [Dem00]

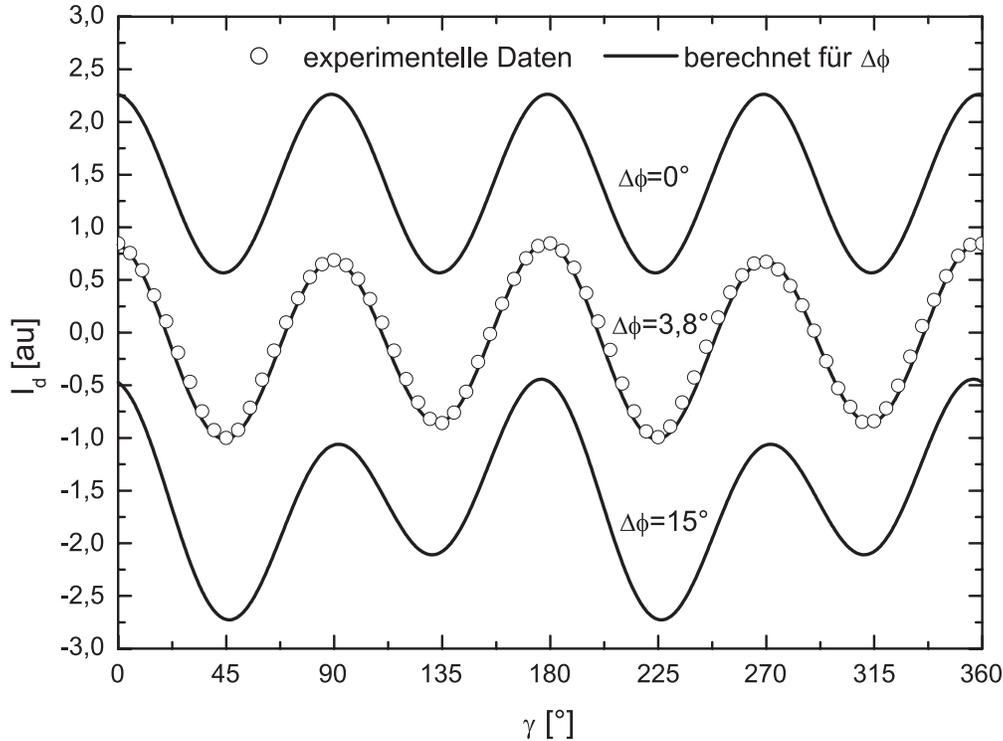


Abbildung 4.5: Abhängigkeit des am Lockin-Verstärker detektierten Signals von dem Winkel γ der Verzögerungsplatte für verschiedene Phasenverzögerungen $\Delta\phi$. Ein Anpassen an die gemessene Abhängigkeit (Kreise) liefert für $\Delta\phi = 3,8^\circ$ die beste Übereinstimmung. Die Zeitverzögerung des Probepulses wurde konstant gehalten, so daß mit $\Delta\phi = 3,8^\circ$ die maximale Phasenverzögerung im THz-Signalmaximum gemessen wurde.

Abb. 4.5 zeigt die Abhängigkeit von γ für verschiedene Phasenverzögerungen $\Delta\phi$. Beim Vergleich mit experimentellen Daten³, die durch Drehen der Verzögerungsplatte bei konstanter Verzögerung zwischen THz- und Probepuls aufgenommen wurden, findet man für $\Delta\phi = 3,8^\circ$ eine gute Übereinstimmung. Gemäß (4.4) ergibt sich damit für den als Detektor kristall verwendeten ZnTe-Kristall mit einer Dicke von $L = 1$ mm eine Brechungsindexdifferenz von $\Delta n = 8,1 \cdot 10^{-6}$, was einer relativen Änderung von $2,8 \cdot 10^{-4} \%$ entspricht.

Laut (4.10) besteht kein linearer Zusammenhang zwischen gemessenem Lockin-Verstärker-Signal und der Phasenverzögerung durch den elektrooptischen Effekt. Dennoch kann im allgemeinen eine stetige Funktion wie (4.10) für kleine Werte in guter Näherung als linear betrachtet werden. Unter dieser Annahme ist das gemessene Lockinverstärker-Signal direkt proportional zur Phasenverzögerung. Der Fehler, der durch diese Annahme verursacht wird,

³Als THz Emittter wurde hier der mit 3 kV extern vorgespannte GaAs Emittter verwendet, wie er in Abschnitt 3.1 beschrieben ist.

läßt sich leicht durch Subtraktion des linearen Terms finden

$$\left| I_d - \frac{\partial I_d}{\partial \phi} \phi \right| = 2 \sin(2\gamma) (1 - \sin \Delta\phi + 4 \cos^2 \frac{\Delta\phi}{2} \cos^2 \gamma - 2 \cos^2 \frac{\Delta\phi}{2} - 2 \cos^2 \gamma + \phi (\cos \Delta\phi - \sin \Delta\phi) + 2 \Delta\phi \cos^2 \gamma \sin \Delta\phi) \quad (4.11)$$

Da der THz-Puls, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, mit 500 Hz (also der halben Laserrepetitionsrate) zerhackt ist, detektiert der Lockin-Verstärker, der das 500 Hz Signal als Referenz erhält, nur die Differenz und nicht den Gleichstromanteil. Daher muß zusätzlich von (4.11) der Wert für $\Delta\phi = 0$ subtrahiert werden, der sich aus (4.10) zu $4|-\cos(\gamma) \sin(\gamma) + 2 \cos^3(\gamma) \sin(\gamma)|$ ergibt. Damit läßt sich schließlich, wie in Abb. 4.6 gezeigt, der Fehler durch die Nichtlinearität berechnen. Dargestellt ist die Abweichung des Meßwertes relativ zur Phasenverzögerung. Da die Abstimmung der $\lambda/4$ Verzögerungsplatte niemals perfekt sein kann, ist der Fehler zusätzlich für drei leicht falsch eingestellte γ Werte gezeigt. Für die gefundene maximale Phasenverzögerung von $\Delta\phi \approx 4^\circ$ sollte demnach der Fehler deutlich unter einem Prozent liegen und kann damit vernachlässigt werden. Im weiteren wird daher angenommen, daß $I_d \approx \Delta\phi$ ist.

Eine weitere mögliche Fehlerquelle für die Linearität des Analysators ist die Sättigung der Photodioden durch die intensive optische Strahlung. Trotz Variation der optischen Probeintensität über mehrere Größenordnungen konnte aber keine Abhängigkeit des Signalverlaufs festgestellt werden, so daß dieser Effekt vernachlässigt werden kann.

Aus der gewonnenen Phasenverzögerung läßt sich eine Abschätzung für das Detektionslimit der Modulationstiefe $\Delta I/I$ der optischen Intensität auf den Photodioden angeben: Aus der maximalen Phasenverzögerung für vorgespanntes GaAs von $\Delta\phi \approx 4^\circ$ ergibt sich für das rund 100 mal kleinere E-Feld des Plasma-Emitters (vergleiche Tabelle 3.1) ein Wert von $\Delta I/I = 4,2 \cdot 10^{-4}$. Aufgrund des s/n bei der Messung des Plasma-Emitters von 1:250 könnte noch eine Modulation von $\Delta I/I = 1,7 \cdot 10^{-6}$ nachgewiesen werden. Dieser Wert wird häufig als Benchmark für einen Detektionsaufbau genutzt. Im Vergleich zu den meisten veröffentlichten Werten liegt der für das hier verwendete System gefundene Wert in einer ähnlichen Größenordnung.

4.2.2 THz-Pulsenergie

Anhand der gefundenen maximalen Phasenverzögerung⁴ von $\Delta n = 8,1 \cdot 10^{-6}$ kann mittels (2.6) die Pulsenergie der THz-Strahlung abgeschätzt werden. Berücksichtigt man die Reflexion eines Anteils von $r = 47\%$ der THz-Strahlung an der Luft-ZnTe-Grenzschicht, wie man ihn aus den Fresnel-Gleichungen erhält, ergibt sich

$$E_{THz}(\tau_{max}) = \frac{\Delta n}{r_{41} n^3 (1 - r)} \quad (4.12)$$

Mit den Werten $r_{41} = 4,04 \cdot 10^{-12}$ m/V und $n = 2,853$ für ZnTe [WZ96] erhält man $E_{THz} = 1,6$ kV/cm im Fokus des Parabolspiegels im ZnTe Kristall. Dieser Wert kann aber nur als untere Grenze der THz-Feldstärke betrachtet werden, denn die Formel berücksichtigt weder Absorption und Phasenfehlانpassung noch Kristallimperfectionen, die gerade

⁴gemessen für den extern vorgespannten GaAs-Emitter.

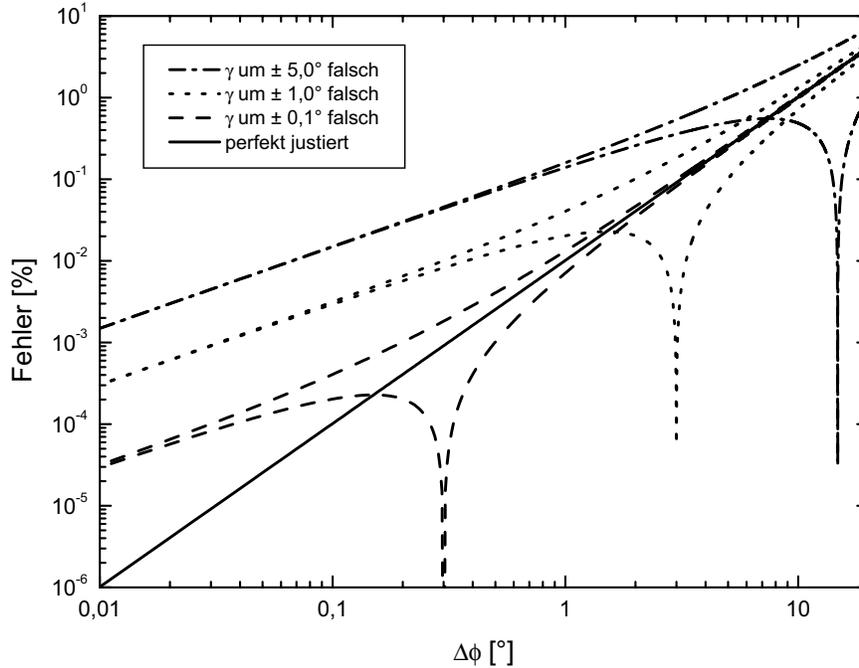


Abbildung 4.6: Logarithmische Darstellung des durch die Annahme $I_d \approx \Delta\phi$ verursachten Fehlers relativ zu $\Delta\phi$. Durchgezogen dargestellt ist der Fehler für eine ideal abgegliche $\lambda/4$ Verzögerungsplatte. Zusätzlich sind drei Kurven für einen um $0,1^\circ$, 1° und 5° fehlerhaften Abgleich gezeigt.

für dicke Kristalle, wie den hier verwendeten, eine deutliche Verkleinerung der Phasenverzögerung bewirken. Mittels des Poynting-Theorems läßt sich nun die Leistungsdichte S bestimmen [Hec94], woraus sich unmittelbar die Strahlungsleistung P des THz-Pulses unter Verwendung der Fokusfläche A berechnen läßt

$$P = S \cdot A = \frac{c\epsilon_0}{2} |E_{THz}|^2 \cdot A \quad (4.13)$$

Da es sich bei dem THz-Puls nicht um eine sinusförmige Schwingung handelt, wurde der Faktor $1/2$, der sich aus der zeitlichen Mittelung ergibt, nicht berücksichtigt [Win99]. Für die Fokusfläche erhält man aus dem ABCD-Formalismus (2.18) als untere Grenze für eine mittlere Frequenz von 420 GHz einen Fokusradius von 1,8 mm und damit $A = 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2$ und $P \approx 580 \text{ J/s}$. Schließlich läßt sich die Spitzenenergie pro Puls $W_{max} = 820 \text{ pJ}$ abschätzen, indem man (4.13) mit der mittleren Pulslänge multipliziert, die sich aus der mittleren Frequenz zu 2,4 ps ergibt (vergleiche Tabelle 3.1).

Obwohl für die anderen Emittter keine entsprechende Messungen von $\Delta\phi$ vorliegen, läßt sich doch eine analoge Abschätzung durchführen, da - wie gezeigt - das detektierte Signal am Lockinverstärker in guter Näherung der Phasenverzögerung entspricht $E_{THz} \propto \Delta\phi \sim I_d$ und folglich das Amplitudenverhältnis (siehe Tabelle 3.1) gleich dem Verhältnis der Phasen-

verzögerungen ist. Die so erhaltenen Ergebnisse⁵ sind in Tabelle 3.1 aufgeführt.

4.2.3 Spektrale Bandbreite des EO-Detektors

Analog zur EO-Emission ist auch bei der Detektion die in Abschnitt 3.3.1 beschriebene Phasenanpassung zwischen optischem Probe- und THz-Puls mitentscheidend für die spektrale Bandbreite des Detektors. Nur eine Detektorkristalldicke der Kohärenzlänge l_c trägt konstruktiv zur Detektion bei. Bei dickeren Kristallen wird die nach der Strecke l_c erzeugte Phasenverzögerung durch den entstandenen Gangunterschied zwischen optischer und THz-Strahlung nach und nach wieder zunichte gemacht, da der optische Probestrahl nun die zweite THz-Halbwelle sieht (zur Vereinfachung cw-THz angenommen) und sich das Vorzeichen des elektrooptischen Effekts umdreht. Nach einer Strecke von $2l_c$ hat der optische Probestrahl (unter Vernachlässigung von Absorption, Pumpversiegen etc.) relativ zum Wert ohne THz-Strahl keine Phasenverzögerung mehr, die THz-Welle wechselt wieder das Vorzeichen, und der Detektionsmechanismus beginnt von vorne.

Gallot et al. [GG99] sowie Bakker et al. [BCK⁺98] zeigen, daß sich dieser Prozeß quantitativ beschreiben läßt als

$$I_d(\tau) \propto r_{41} \int_0^L dz \int_{-\infty}^{\infty} dt I_{opt}(t - \tau, z) E_{THz}(t, z) \quad (4.14)$$

Das innere Integral kann dabei verstanden werden als das Signal, das durch den zeitlichen und örtlichen Überlapp der optischen Intensität mit dem THz-Feld durch den linearen elektrooptischen Effekt des Kristalls generiert wird. Das äußere Integral summiert die in den verschiedenen Kristalltiefen erzeugten Signale auf, wobei durch die z -Abhängigkeit von I_{opt} und E_{THz} die Phasenanpassung berücksichtigt wird. Analog zum Experiment erhält man schließlich das detektierte Signal durch Variation der Verzögerung τ zwischen I_{opt} und E_{THz} .

Die zwei Variablen t und z in (4.14) sind nicht unabhängig, sondern über die Ausbreitungsgeschwindigkeit c/n verknüpft. Substituiert man damit $t' = t + nz/c$ in (4.14) und berücksichtigt die optische und THz-Absorption $\exp(-\alpha z)$ im Kristall, so erhält man

$$I_d(\tau) \propto r_{41} \int_0^L dz \int_{-\infty}^{\infty} dt' I_{opt}(t') E_{THz} \left(\frac{n_{THz} - n_g}{c} z + t' + \tau \right) e^{-\alpha_{opt} z} e^{-\alpha_{THz} z} \quad (4.15)$$

Hierbei ist n_g die optische Gruppengeschwindigkeit, die der Ausbreitungsgeschwindigkeit der optischen Einhüllenden entspricht, wie in Anhang D beschrieben.

Damit läßt sich die in Abb. 4.7 gezeigte Detektionssensitivität berechnen, Werte für den frequenzabhängigen Brechungsindex und die Absorption sind [Pal] und [WZ96] entnommen. Dargestellt ist die Sensitivität der Detektion für die gleiche einfallende THz-Feldamplitude bei verschiedenen Frequenzen relativ zum Grenzwert für niedrige Frequenzen. Aufgrund der „Nähe“ der Phononenresonanz von ZnTe bei 5,3 THz (vergleiche Abschnitt 5.2.2) und der einhergehenden schnellen Änderung des Absorptionskoeffizienten und der Brechungsindizes und damit der Phasenanpassung unterscheiden sich die Sensitivitäten bei ZnTe deutlich stärker bei unterschiedlichen Kristalldicken als bei GaP.

⁵Aus den mittleren Frequenzen und den Emittergrößen ergeben sich die Fokussflächen: EO-Emitter $\Rightarrow A = 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$, Intrinsischer Emitter $\Rightarrow A = 3,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2$ und Plasma-Emitter $\Rightarrow A = 3,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2$.

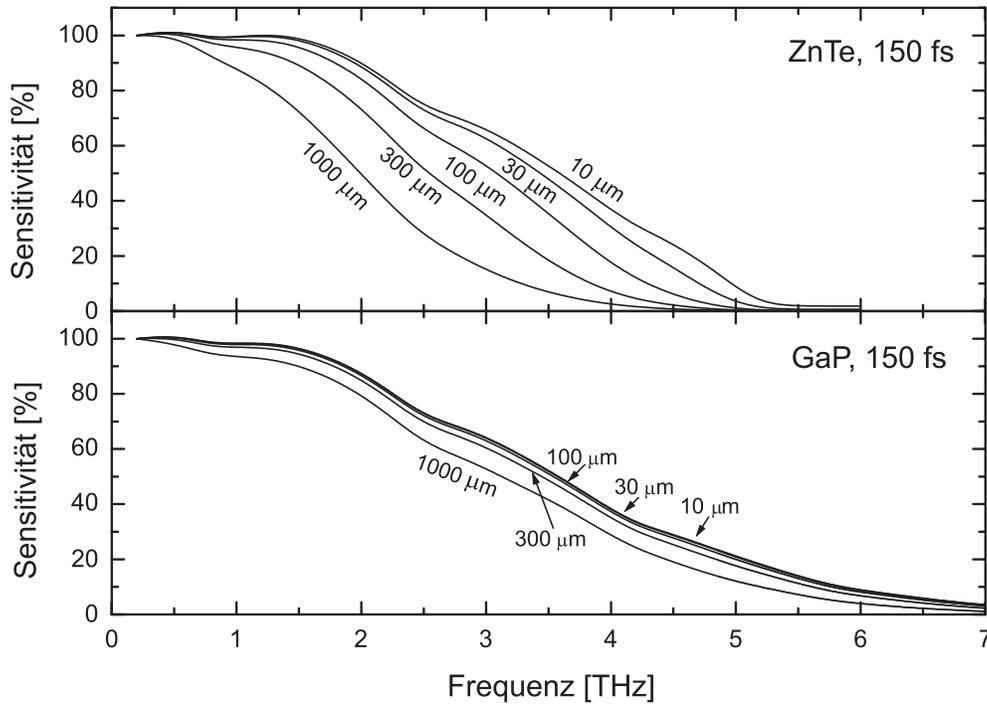


Abbildung 4.7: Berechnete Sensitivität des EO-ZnTe- bzw. GaP-Detektors für verschiedene Detektorkristalldicken. Die Werte sind relativ zum detektierten Signal bei niedrigen Frequenzen und gleicher THz-Feldstärke dargestellt. Als optischer Probepuls wurde ein 775 nm Puls mit einer FWHM von 150 fs angenommen (entsprechend dem Puls des verwendeten Lasersystems).

Beim experimentellen Vergleich zwischen den EO-ZnTe- und GaP-Detektoren (Abb. 4.8) ist zunächst der große Unterschied von einer Größenordnung der Absolutwerte im detektierten Signal I_d und damit in der Phasenverzögerung eklatant. Größtenteils ist dies durch den kleineren elektrooptischen Koeffizienten von GaP ($r_{41} = 0,97 \cdot 10^{-12}$ m/V [Yar89]) im Vergleich zu ZnTe ($r_{41} = 4,04 \cdot 10^{-12}$ m/V [WZ96]) zu erklären, der gemäß (4.14) linear in I_d eingeht. Dadurch bedingt ist das s/n im Leistungsspektrum um zwei Größenordnungen schlechter als bei ZnTe, wie in der nicht normierten Darstellung der Spektren im Einsatz von Abb. 4.8 abzulesen ist. Der zeitliche Verlauf der detektierten THz-Strahlung beider Detektoren gibt die Charakteristika des verwendeten vorgespannten GaAs-Emitters übereinstimmend wieder. Die kleineren Unterschiede konnten nicht eindeutig einer Eigenschaft des Detektors zugeordnet werden. Aufgrund des schlechteren s/n ist ein Vergleich der enthaltenen Frequenzkomponenten schwierig, die höheren Frequenzanteile von GaP oberhalb von 2 THz relativ zum Maximum können aber erahnt werden.

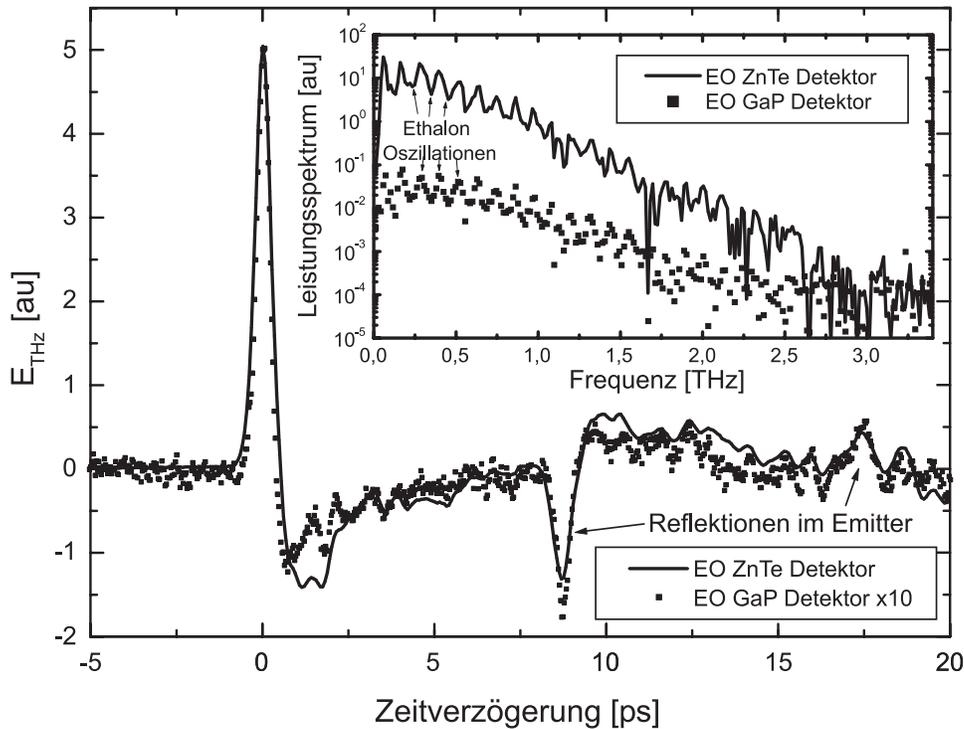


Abbildung 4.8: Zeitlicher Verlauf der mit ZnTe bzw. GaP als EO-Detektoren gemessenen THz-Strahlung. Als Emittor wurde extern vorgespanntes GaAs verwendet. Die mit GaP gemessenen Werte sind in 10-facher Vergrößerung dargestellt, um den Vergleich der Daten zu erleichtern. Im Einsatz ist das aus dem zeitlichen Verlauf berechnete Leistungsspektrum ohne Vergrößerung der GaP-Werte dargestellt. Die Kristalldicke beider Detektoren beträgt 1 mm.

4.2.4 Abhängigkeit der Bandbreite von der Probe-Pulslänge

Für die Bandbreite des Detektors ist neben der Kristalldicke die Länge des Probe-Pulses maßgeblich. Wie in Abschnitt 2.5 gezeigt, enthält ein Puls endlicher Länge nur Frequenzen bis zu einer maximalen Frequenz, die bei fs-Pulsen in der Größenordnung von einigen THz liegen. Anschaulich ist klar, daß ein THz-Puls, der mit einer optischen Pulslänge abgetastet wird, die deutlich länger ist als seine Wellenlänge, „herausgemittelt“ wird und folglich nicht detektiert werden kann.

Gleichung (4.14) enthält diesen Zusammenhang zwischen optischer Pulslänge und der Bandbreite des Detektors durch die optische Intensität $I_{opt}(t)$ und erlaubt damit die Berechnung der Bandbreite für verschiedene optische Pulsängen (vergleiche Abb. 4.9). Dabei ist die optische Einhüllende jeweils als gaußförmig angenommen. Die Sensitivität ist analog der Darstellung in Abb. 4.8 relativ zu dem Wert für niedrige Frequenzen dargestellt. Um die Phasen Anpassung als Einflußfaktor klein zu halten, wurden die Berechnungen für einen sehr dünnen Kristall von $10\mu\text{m}$ Dicke durchgeführt.

Auffällig ist zunächst der deutliche Abfall der Sensitivität im Bereich der Phononenre-

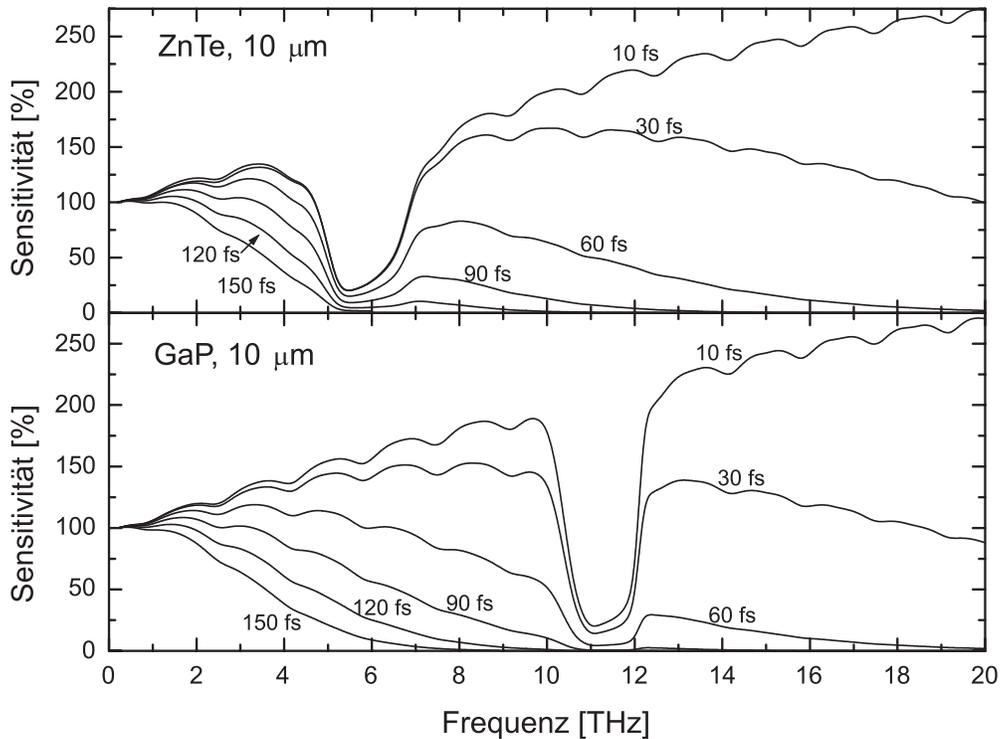


Abbildung 4.9: Berechnete Sensitivität des EO-ZnTe- bzw. GaP-Detektors mit einer Kristalldicke von $10\ \mu\text{m}$ für verschiedene Probepuls-Längen. Die Werte sind relativ zum detektierten Signal bei niedrigen Frequenzen und gleicher THz-Feldstärke dargestellt. Die Angaben für die Pulslänge beziehen sich auf das FWHM eines gaußförmigen Pulses.

sonanz von ZnTe bei $5,3\ \text{THz}$ bzw. GaP bei $11\ \text{THz}$. Die bei kurzen Pulsen ersichtlichen Oszillationen in Abhängigkeit von der Frequenz sind bedingt durch die Kohärenzlänge l_c , die über die Ausbreitungsgeschwindigkeit mit der Frequenz verknüpft ist.

Im Gegensatz zur Erhöhung der Bandbreite durch Verwendung dünnerer Kristalle wird die Phasenverschiebung bei kürzeren Pulsen nicht kleiner, so daß das Signal und damit das Signal-Rausch-Verhältnis gleichbleiben. Die optische Intensität auf den Photodioden würde bei gleicher Probeleistung sogar höher, was aber zu keiner Verbesserung führt, da die Dioden ohnehin schon nahe an der Sättigung betrieben werden und die Leistungsdichte durch zusätzliche Abschwächung wieder vermindert werden müßte.

4.3 Ausblick

Der direkte Vergleich zwischen elektrooptischer Detektion und Detektion mit Antennen fällt für das verwendete Lasersystem eindeutig zugunsten der EO-Detektion aus. Sowohl hinsichtlich s/n als auch bezüglich der Bandbreite ist die EO-Detektion überlegen.

Antennen bieten zwar prinzipiell den Vorteil der lückenloseren Frequenzbereichsabdeckung im Vergleich zur EO-Detektion, da die verwendeten EO-Detekorkristalle Phononenresonan-

zen im Bereich einiger THz aufweisen, jedoch ist das Optimierungspotential bei Antennen geringer. Um die Detektionsbandbreite der Antennen zu erhöhen, wäre es notwendig, das Antwortverhalten der Photoladungsträger zu beschleunigen bzw. die Ladungsträgerlebensdauer zu verringern. Da die verwendeten Antennen aber bereits ionenimplantiert wurden, um durch die dadurch eingeführten Traps die Rekombinationszeit zu beschleunigen, bleibt nicht mehr viel Verbesserungspotential, da das Material bei höheren Ionisationsraten bereits amorph wird. Eine Alternative ist die Verwendung eines Halbleiters mit schnelleren Ladungsträger-Rekombinationszeiten wie low temperature grown GaAs (LT-GaAs). Durch auf den Laser abgestimmtes Antennendesign und eine Miniaturisierung ist weiterhin eine Abstimmung der Dipollänge auf die zu detektierenden THz-Frequenzen denkbar, jedoch wird die Dipollänge im allgemeinen nur als untere Grenze für die Bandbreite des Detektors angesehen [CBL⁺98] und würde folglich nicht die Möglichkeit eröffnen, höhere Frequenzen zu detektieren. Zudem wird die Fokussierung der THz-Strahlung durch die kleinere photokonduktive Lücke kritischer. Prinzipiell sollte das Erreichen einer zu hochrepetierlichen Laser-Systemen vergleichbaren Bandbreite möglich sein. Das im Vergleich zur EO-Detektion wesentlich schlechtere s/n der Antennendetektion läßt sich schwerer optimieren. Aufgrund dieses recht eindeutigen Ergebnisses soll im folgenden daher nur auf die Verbesserungsmöglichkeiten der EO-Detektion eingegangen werden.

4.3.1 Dynamische Lockin-Bereichsanpassung

Die bereits beim Vergleich der verschiedenen Emittier angeführte Beobachtung (siehe auch Abb. 3.20), daß das Rauschniveau vom Meßbereich des verwendeten Lockins abhängig ist, führt zu der naheliegenden Idee, den Meßbereich dynamisch dem zu messenden Signal anzupassen. Wie Abb. 4.10 verdeutlicht, kann durch diese einfache Maßnahme das s/n verbessert werden. Abb. 4.10a zeigt das gemessene Signal ohne Anpassung des Lockin-Bereichs. Während der gesamten Messung befand sich der Vorverstärker des Lockin-Verstärkers im 3 mV-Bereich. Die Messung wurde zehnmals wiederholt und gemittelt, die dabei gefundene Standardabweichung ist in Abb. 4.10b für jede Zeitverzögerung dargestellt. Das Rauschen ist dabei nicht gleichmäßig über den Zeitbereich verteilt, sondern steigt leicht bei vorhandenem Signal an.

Die in Abb. 4.10c gezeigte Messung wurde in fünf Schritten durchgeführt. Zunächst wurde der Bereich vor dem Hauptsignal in einem kleinen Meßbereich, also mit einer hohen Vorverstärkung, gemessen und zehnfach gemittelt. Der folgende Hauptpeak wurde in einem 30-fach höheren Meßbereiche bzw. einer niedrigeren Vorverstärkung gemessen und wiederum zehnfach gemittelt. Auch die drei folgenden Meßbereiche wurden so gewählt, daß das maximale Signal gerade noch innerhalb des Meßbereichs liegt. Da bei der EO-Detektion mit diesem Lasersystem niemals Langzeit-Drifts des Meßsignals beobachtet wurden, ist das nachträgliche nahtlose Aneinanderhängen dieser Messungen unproblematisch. In Abb. 4.10d ist das mit dieser Meßmethode erreichte Rauschen dargestellt, das deutlich unter der einfachen Messung ohne Bereichsumschaltung liegt. Die folgende Tabelle schlüsselt die einzelnen s/n Verhältnisse der fünf Bereiche auf, wobei für die Gesamtmessung eine Verbesserung um den Faktor 2,4 erreicht wurde. Sämtliche in dieser Arbeit gezeigten Daten wurden ohne diese dynamische Lockin-Bereichsanpassung gemessen.

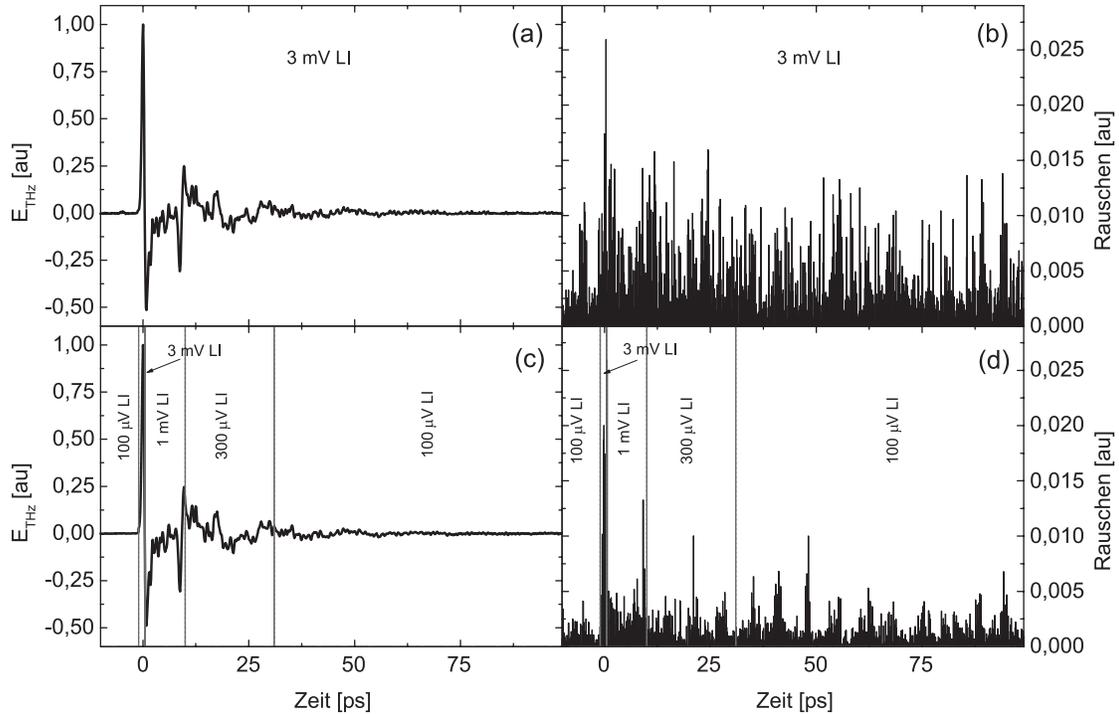


Abbildung 4.10: Vergleich der Messung mit und ohne dynamische Lockin-Bereichsanpassung. Die gezeigten Pulse wurden von vorgespannten GaAs emittiert und mit ZnTe als EO-Detektor gemessen. (a) der Lockin-Bereich betrug während der gesamten Messung 3 mV. (b) zeigt die aus 10 Messungen ermittelte Standardabweichung. (c) der Lockin-Bereich wurde viermal gewechselt, so daß das jeweils maximale Signal gerade noch innerhalb dieses Bereichs lag. (d) zeigt die aus 10 Messungen ermittelte Standardabweichung.

Bereich Nr.	dyn. LI Bereich	dyn. S/N	S/N
1	100 μ V	1977	755
2	3000 μ V	333	279
3	1000 μ V	904	421
4	300 μ V	1678	573
5	100 μ V	1683	730

4.3.2 Bandbreite

Für die Bandbreite der EO-Detektion sind (vergleiche Abschnitt 4.2) primär zwei Faktoren von Bedeutung: Die Detektorkristalldicke und die optische Probe-Pulslänge. Da das s/n mit abnehmender Kristalldicke schlechter wird (für optimale Phasenanpassung ohne Absorption nimmt es linear ab, vergleiche (4.14)), stellt sich die Aufgabe, einen Kompromiß zwischen Bandbreite und s/n zu finden. Ein allgemeingültiges Optimum kann es dabei nicht geben, da die Anforderungen an die benötigte Bandbreite und das s/n von der jeweiligen Anwendung abhängen. Wie ein Vergleich von Abb. 4.7 mit Abb. 4.9 zeigt, ist für das verwendete Lasersystem aber weniger die Kristalldicke der einschränkende Faktor für die Bandbreite

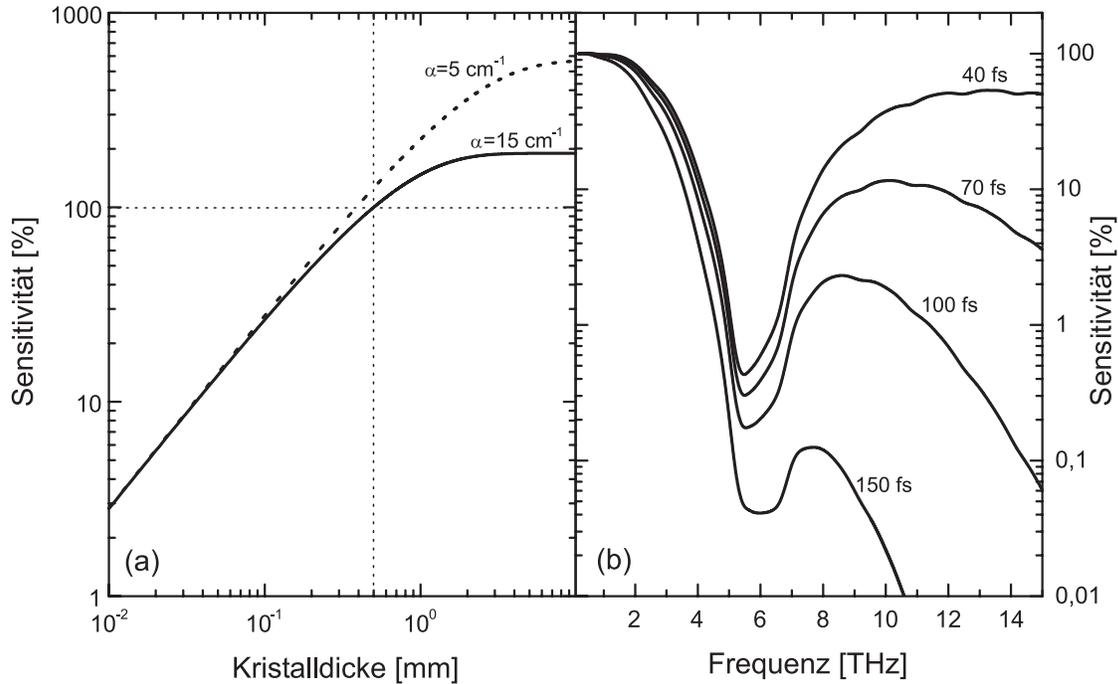


Abbildung 4.11: (a) Berechnete Abhängigkeit der Sensitivität der EO-Detektion von der Kristalldicke für ZnTe unter der Annahme von idealer Phasenanpassung in doppellogarithmischer Darstellung. Die Werte sind relativ zu einer Kristalldicke von $500 \mu\text{m}$ und einer THz-Absorption von $\alpha=15 \text{ cm}^{-1}$, wie sie THz-TDS Messungen an dem hier verwendeten ZnTe-Kristall ergaben (Vergleiche Abschnitt 5.2.2) (b) Berechnete Sensitivität des EO-ZnTe-Detektors mit einer Dicke von $500 \mu\text{m}$ für verschiedene optische Probe-Pulslängen. Die Werte sind relativ zum detektierten Signal bei niedrigen Frequenzen und gleicher THz-Feldstärke dargestellt.

als vielmehr die Pulslänge. Eine Verkürzung der optischen Pulslänge bei gleichbleibender Pulsenergie wirkt sich zudem nicht negativ auf das s/n aus, so daß eine kürzere Pulslänge uneingeschränkt wünschenswert wäre.

Bei der Wahl einer Kristalldicke muß zwangsläufig ein Kompromiß zwischen s/n und Bandbreite geschlossen werden. Abb. 4.11a verdeutlicht den Zusammenhang zwischen der Sensitivität bzw. s/n und der Kristalldicke, der sich durch einfache Integration über die Kristalldicke unter Berücksichtigung von THz-Absorption zu $-(\exp(-\alpha L) - 1)/\alpha$ mit L als Kristalldicke ergibt. Die zu beobachtende Sättigung verdeutlicht, daß selbst für eine ideale Phasenanpassung ab einer gewissen Dicke – bedingt durch THz-Absorption – kein Zugesinn an s/n mehr erreicht wird. Für den hier verwendeten Kristall mit einer Absorption von $\alpha = 15 \text{ cm}^{-1}$ für niedrige Frequenzen (Vergleiche Abschnitt 5.2.2) liegt dieser Bereich etwa oberhalb $0,5 \text{ mm}$. Wie Abb. 4.7 verdeutlicht, kann durch diese Halbierung der Kristalldicke bereits eine Erweiterung der Bandbreite um einige 100 GHz erwartet werden,

während der s/n nach Abb. 4.11a maximal um 32 % schlechter wird. Für eine nicht ideale Phasenanpassung ist der Zusammenhang komplexer und die Sensitivität bzw. das s/n kann sogar steigen für dünnere Kristalle.

Da die Kristalldicke von 500 μm gerade in dem Bereich beginnender Sättigung liegt, scheint der geringe Verlust an s/n ein guter Kompromiß für die gewonnene Bandbreite zu sein, zumal eine deutliche Erweiterung des Frequenzbereichs über die Phononenresonanz hinaus nur durch die Verwendung von kürzeren Pulsen möglich ist. Abb. 4.7b zeigt die theoretisch erzielbare Bandbreite eines 500 μm dicken ZnTe Kristalls für verschiedene optische Bandbreiten. Zur Berechnung wurde analog Abb. 4.7 und Abb. 4.9 (4.15) verwendet.

4.3.3 Detektorkristall

Ein weiterer Ansatz zur Verbesserung der EO-Detektion ist die Verwendung anderer Detektorkristalle. Der Vergleich zwischen GaP und ZnTe im Rahmen dieser Arbeit fiel eindeutig zugunsten von ZnTe aus, hauptsächlich durch den viermal höheren elektrooptischen Koeffizienten von ZnTe und dem daraus resultierenden besseren s/n . Jedoch ist GaP eine gute Alternative, um Messungen im Bereich der Phononenabsorptionen von ZnTe bei etwa 5,2 THz durchführen zu können.

In der Vergangenheit wurden zahlreiche weitere Kristalle auf ihre Eignung als EO-Detektorkristall hin untersucht, wobei sich z.B. die „klassischen“ EO-Kristalle LiTaO_3 und LiNbO_3 als schlechter im Vergleich zu ZnTe erwiesen [WJS⁺97]. Eine kürzlich veröffentlichte Arbeit von Han et al. [HTPZ00] zeigt aber die Überlegenheit des organischen Kristalls DAST im Vergleich zu ZnTe für Frequenzen von 7-20 THz für das verwendete Ti:Saphire-Lasersystem. Wiederum ist dies hauptsächlich auf den höheren elektrooptischen Koeffizienten von DAST zurückzuführen, der mit einem Wert von $75 \cdot 10^{-12}$ V/m bei einer Wellenlänge von 800 nm um beinahe das zwanzigfache größer ist als der von ZnTe. Eine Prüfung der Eignung für niedrig repetierliche Lasersysteme steht noch aus. Allerdings ist die niedrige Zerstörschwelle von DAST hinlänglich bekannt, so daß er primär zu EO-Detektion und weniger zur EO-Emission geeignet scheint.

Kapitel 5

Spektroskopie

5.1 Grundlagen

Die THz-Time-Domain-Spectroscopy (THz-TDS) ist eine der wichtigsten Anwendungen der THz-Technologie. Das Interesse an spektroskopischen Verfahren in diesem Frequenzbereich wuchs gerade in den letzten Jahren stark durch Entwicklungen in den Bereichen der Hochfrequenz-Halbleitertechnik, Halbleiter-Quantenstrukturen, organischen Molekülen oder auch bei Supraleitern.

Mit den beschriebenen THz-Quellen und Detektoren steht eine breitbandige, kohärente Strahlenquelle zur Verfügung, die im Vergleich zu herkömmlichen Verfahren der Fern-Infrarot-Spektroskopie eine einfachere Handhabung und ein überlegenes Signal-zu-Rauschverhältnis bietet. Ein prinzipieller Vorteil ist die gleichzeitige Gewinnung von Amplituden- und Phaseninformation der THz-Strahlung mit der THz-TDS, woraus - wie im folgenden gezeigt wird - Absorption und Brechungsindex ohne Anwendung der Kramers-Kronig-Relation [Jac75] berechnet werden können.

5.1.1 Versuchsaufbau

Im Vergleich zu dem Versuchsaufbau der vorangegangenen Kapitel (Abb. 2.3) wird zur THz-TDS ein Zwischenfokus der THz-Strahlung benötigt, da typische Proben einen kleineren Durchmesser haben als die nicht fokussierte THz-Strahlung. Der Versuchsaufbau wurde dazu durch zwei weitere Parabolspiegel im THz-Strahlengang ergänzt. Abb. 5.7 zeigt den Versuchsaufbau mit den für alle Messungen in diesem Kapitel verwendeten vorgespannten GaAs-Emitter und EO-ZnTe-Detektor.

Um an einer Probe THz-TD-Spektroskopie durchzuführen, wird diese exakt an der Stelle des THz-Zwischenfokus positioniert. Die so gewonnenen THz-Daten werden mit einer Messung ohne Probe verglichen, um die zeitlich Verzögerung sowie die Abschwächung durch die Probe berechnen zu können. Bei beiden Messungen muß eine Apertur gleichen Durchmessers verwendet werden, um den gleichen Anteil der THz-Strahlung durch Probe sowie Luft transmittieren zu lassen. Die exakte Positionierung gewinnt mit kleineren Proben an Bedeutung, da der THz-Fokus eine frequenzabhängige endliche Ausdehnung hat und ein zunehmend größerer Teil durch den Rand der Probe abgeschnitten wird. Wird die Referenzmessung ohne Probe mit einer Apertur an einer geringfügig anderen Position durchgeführt,

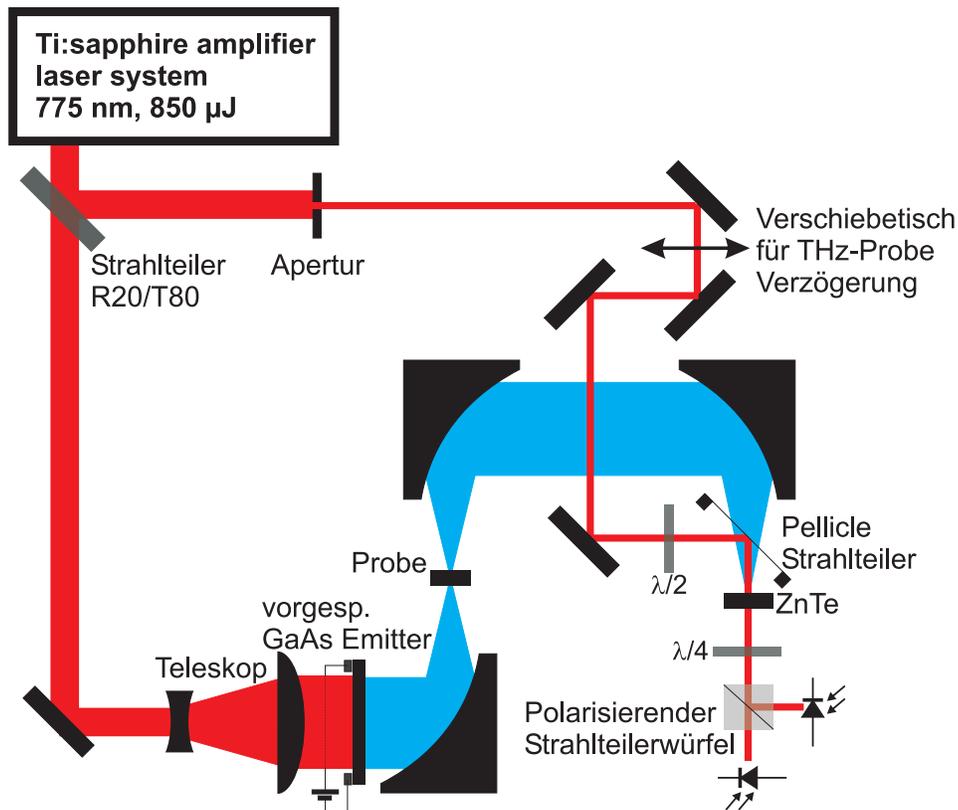


Abbildung 5.1: Versuchsaufbau des THz-Spektrometers. Zusätzlich zu den Aufbauten zur Untersuchung der verschiedenen Emittoren und Detektoren der vorangegangenen Kapitel wurden zwei weitere Parabolspiegel in den THz-Strahlengang eingebaut, so daß die Proben in dem entstandenen Zwischenfokus in Transmission untersucht werden können.

werden andere Frequenzanteile transmittiert und das Ergebnis der THz-TDS verfälscht.

Die Größe des THz-Fokus spielt dementsprechend in der THz-Spektroskopie eine wichtige Rolle. Aufgrund der größeren Wellenlänge läßt sich THz-Strahlung im Vergleich zur optischen Strahlung nur sehr viel schwächer fokussieren. Als Faustregel wird häufig ein Fokussdurchmesser in der Größenordnung der Wellenlänge als untere Grenze der Fokussierbarkeit angenommen.

Auch für bildgebende Verfahren ist eine Minimierung des THz-Fokussdurchmessers von essentieller Bedeutung. Die Probe wird dabei mittels eines zweidimensionalen Rasterscans an verschiedenen Positionen spektroskopiert. Die unterschiedlichen Absorptionswerte ergeben dann ein flächiges Bild der THz-Transmission. Je kleiner der THz-Fokus bei dieser Messung ist, desto höher ortsauflösend kann die Messung sein, wobei die maximale Auflösung gerade dem Fokussdurchmesser entspricht.

5.1.2 Datenanalyse

Mißt man nacheinander die THz-Pulsform mit (E_{sam}) und ohne Probe (E_{ref}) im Strahlengang, so kann aus der Verzögerung und der Dämpfung der Brechungsindex bzw. der

Absorptionskoeffizient berechnen werden.

Ohne Beschränkung der Allgemeinheit läßt sich der THz-Puls als Superposition ebener Wellen der Form

$$E(t, z) = A_0 e^{i(\tilde{k}(\omega)z - \omega t)} \quad (5.1)$$

darstellen, wobei \tilde{k} die komplexe Wellenzahl ist. Da nur die Phasendifferenz eine physikalische Bedeutung hat, läßt sich die Betrachtung auf die Strecke unterschiedlicher Brechungsindizes bzw. Absorptionskoeffizienten beschränken, mithin die Probe. Damit begrenzt sich die zurückgelegte Wegstrecke auf die Dicke der Probe $z = d$. Für die Referenzmessung nimmt man weiterhin an, daß Luft elektromagnetische Strahlung nicht absorbiert und der komplexe Brechungsindex eins ist $\Rightarrow \tilde{n} = n + i\kappa = 1$. Somit ergibt sich für die Referenzmessung mit $\tilde{k} = \tilde{n}\omega/c$

$$E_{ref} = A_0 e^{-i\omega t} e^{i\omega d/c} \quad (5.2)$$

Für die Messung mit Probe muß berücksichtigt werden, daß diese nicht nur frequenzabhängig absorbiert, sondern auch an beiden Grenzflächen reflektiert und dadurch zusätzlich abgeschwächt wird. Die *Fresnel-Gleichungen* [Hec94] liefern die Transmissionskoeffizienten

$$t_{\text{Luft} \rightarrow \text{Probe}} = \frac{2}{\tilde{n} + 1} \quad (5.3)$$

$$t_{\text{Probe} \rightarrow \text{Luft}} = \frac{2\tilde{n}}{\tilde{n} + 1} \quad (5.4)$$

Damit läßt sich das elektrische Feld nach dem Durchlaufen der Probe schreiben als

$$E_{sam} = A_0 \frac{4\tilde{n}}{(\tilde{n} + 1)^2} e^{-i\omega t} e^{i\frac{\tilde{n}\omega d}{c}} \quad (5.5)$$

Betrachtet man nun das Verhältnis der beiden Wellen (5.5) und (5.2), so erhält man

$$\tilde{\Upsilon} = \frac{E_{sam}}{E_{ref}} = \frac{4\tilde{n}}{(\tilde{n} + 1)^2} e^{i\frac{(\tilde{n}-1)\omega d}{c}} \quad (5.6)$$

Diese Gleichung läßt sich nicht analytisch nach \tilde{n} auflösen. Numerische Lösungsverfahren wie das Newton-Verfahren bieten eine Möglichkeit, den komplexen Brechungsindex zu berechnen. Im Falle schwach absorbierender Proben kann der Anteil der Absorption jedoch bei der Transmission durch die Grenzschichten vernachlässigt werden und \tilde{n} in (5.3) durch n ersetzt werden. Über die Eulerische Beziehung $e^{i\varphi} = \tilde{a} \Rightarrow \varphi = \arctan \frac{\Im(\tilde{a})}{\Re(\tilde{a})}$ kann nun eine Lösung in geschlossener Form angegeben werden. Für den Brechungsindex ergibt sich

$$n = 1 + \frac{c}{\omega d} \left(\arctan \left(\frac{\Im(\tilde{\Upsilon})}{\Re(\tilde{\Upsilon})} \right) + m\pi \right) \quad (5.7)$$

Da der arctan nicht eineindeutig ist, ergibt sich eine unbekannte Anzahl an Phasensprüngen $m\pi$, die sich nur durch die zusätzliche Annahme der Stetigkeit der Phasenänderung auflösen läßt. Ist der zeitliche Meßbereich groß und damit die Frequenzauflösung hoch genug, sollten Phasensprünge $> \pi/2$ nur durch dieses mathematische Artefakt bedingt sein und rechnerisch durch Subtraktion rückgängig gemacht werden.

Nr.	ν [THz]	Nr.	ν [THz]	Nr.	ν [THz]
1	0,556	8	1,410	15	1,869
2	0,751	9	1,449	16	1,922
3	0,991	10	1,605	17	2,040
4	1,098	11	1,659	18	2,162
5	1,161	12	1,669	19	2,196
6	1,210	13	1,718	20	2,220
7	1,300	14	1,795	21	2,264

Tabelle 5.1: In [HVD66] gemessene Wasserabsorptionslinien. Es wurden keine Angaben über Intensitäten gemacht.

Für die Absorption ist im Gegensatz zum Brechungsindex nur der Absolutbetrag und nicht die Phase von Bedeutung, womit sich aus (5.6)

$$e^{-\kappa d} = |\tilde{\Upsilon}| \frac{(n+1)^2}{4n} \quad (5.8)$$

ergibt. Auflösen nach dem reellen Extinktionskoeffizienten liefert

$$\alpha/2 = \kappa = -\frac{1}{d} \ln \left(|\tilde{\Upsilon}| \frac{(n+1)^2}{4n} \right) \quad (5.9)$$

Der Absorptionskoeffizient α [cm^{-1}] gibt den auf der Strecke von 1 cm absorbierten Bruchteil der Intensität an.

5.1.3 Wasserabsorptionen

Mittels der THz-Spektroskopie lassen sich nicht nur Festkörper untersuchen, sondern auch Flüssigkeiten und Gase. Der THz-Frequenzbereich ist dabei von besonderem Interesse, da Rotationsübergänge in Molekülen resonant mit diesen Frequenzen angeregt werden können, so daß auf das dynamische Verhalten geschlossen werden kann.

Die meisten der in dieser Arbeit gezeigten Daten wurden zusätzlich durch den in der Luft befindlichen Wasserdampf beeinflusst. Wassermoleküle besitzen im Frequenzbereich zwischen 500 GHz und 2,3 THz etwa 20 starke und scharfe Absorptionslinien. Die in Tabelle 5.1 gezeigten Daten stammen aus [HVD66].

Eine Möglichkeit, Wasserabsorption zu vermeiden, besteht im Fluten des Experiments mit trockenem Stickstoff. Die dadurch gewonne Verbesserung ist deutlich in Abb. 5.2 zu erkennen. Nicht nur verschwinden die nach dem Hauptpuls folgenden Oszillationen größtenteils, sondern insgesamt kommt 11% mehr Signal im Detektor an. Zwar sind die offensichtlichen Linien im Spektrum des Pulses mit normaler Luft sehr scharf, man erkennt jedoch durch Berechnung der Transmission (Abb. 5.3), daß alle Frequenzen oberhalb von etwa 0,8 THz-Energie verlieren. Transmissionen über 100 % sind durch Rauschen der Messungen zu erklären. Vergleicht man die scharfen Absorptionslinien mit den Referenzwerten aus Tabelle

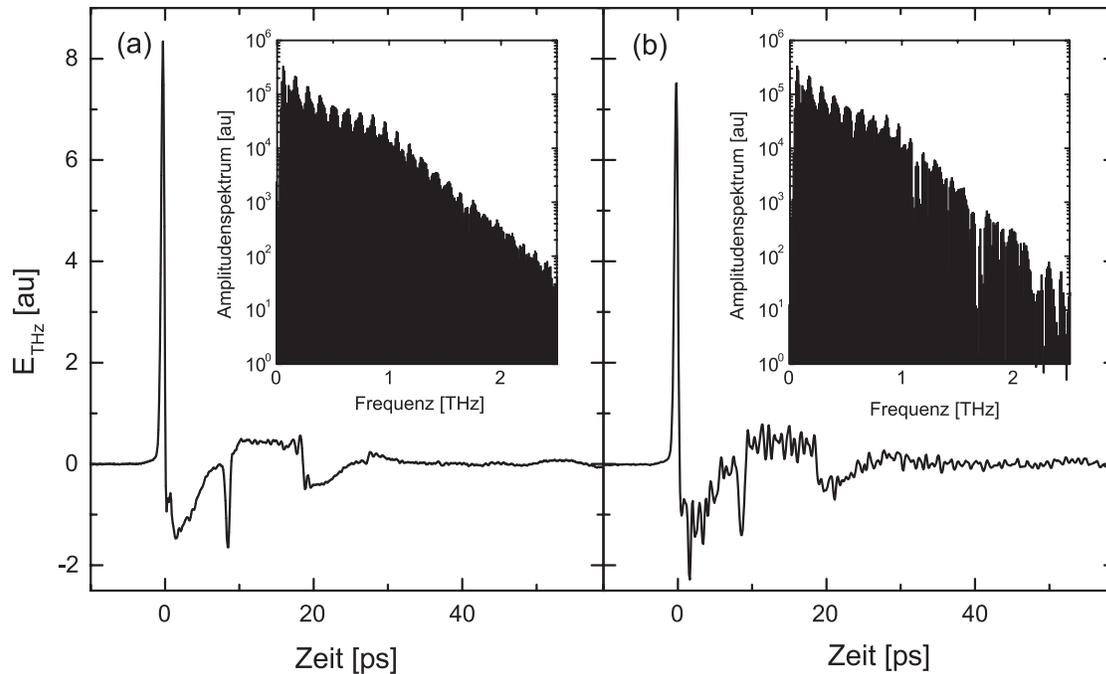


Abbildung 5.2: THz-Puls emittiert von einem mit 1 kV/cm vorgespannten GaAs-Emitter. Der Puls propagiert durch 80 cm (a) trockenem Stickstoff, (b) Laborluft mit 55 % Luftfeuchtigkeit. Die zwei deutlichen Peaks bei 8,5 ps bzw. nach 17 ps sind Reflektionen des Hauptpeaks im Emitter. Im Einsatz ist das entsprechende Fourierspektrum (Amplitudenspektrum) halblogarithmisch dargestellt.

5.1, so findet man eine gute Übereinstimmung. Zusätzlich ist aber eine breite Absorption für Frequenzen oberhalb von etwa 0,8 THz zu erkennen, die bis zu einem Viertel der Energie absorbiert.

5.2 THz-TD-Spektroskopie

Eine der wichtigsten Eigenschaften für die technologische Anwendungen von Halbleitern ist die Ladungsträgerdynamik. Insbesondere die Ladungsträgerkonzentration, die frequenzabhängige Mobilität und die Plasmafrequenz sind für Hochfrequenzbauteile von besonderem Interesse. Die THz-TD-Spektroskopie ist eine relativ neue Methode zur Messung dieser Eigenschaften, die im Vergleich zu den gängigen Methoden im Gigahertz-Bereich (z.B. GUNN-Dioden und Bolometer) ein viel breiteres Frequenzspektrum abdecken und in den vormals nur schwer zugänglichen THz-Bereich vorstoßen. Mittels der spektroskopisch gewonnenen frequenzabhängigen Brechungsindizes und Absorptionskoeffizienten lassen sich mit einfachen Modellannahmen, wie z.B. dem Drudemodell, die Plasmafrequenz, Ladungsträgerdichte und die effektive Stoßrate bestimmen.

Im folgenden soll das in den vorangegangenen Abschnitten beschriebene Verfahren der THz-

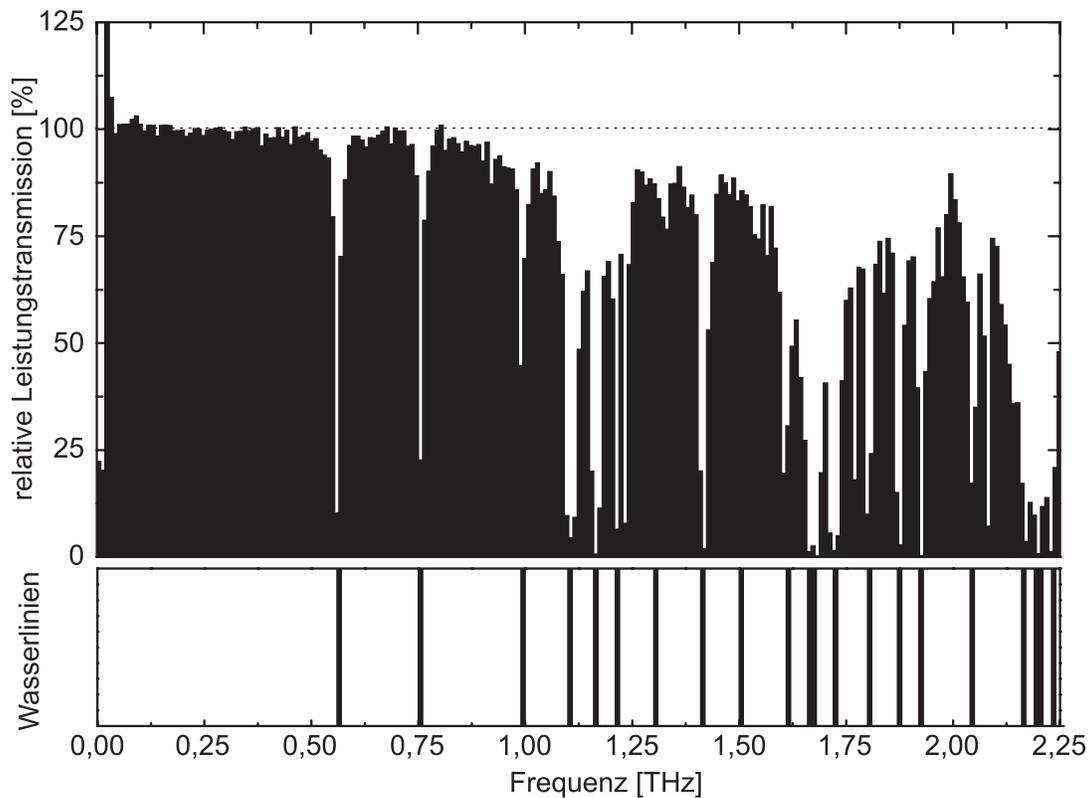


Abbildung 5.3: Der obere Graph zeigt die frequenz aufgelöste Transmission von THz durch 80 cm Laborluft relativ zu 80 cm Stickstoff. Im unteren Graph sind die Absorptionslinien von Wasserdampf dargestellt, wie sie in [HVD66] gemessen wurden.

TDS zur Messung des komplexen Brechungsindex der zwei Halbleiter GaAs und ZnTe genutzt werden. Diese Halbleiter wurden gewählt, um einen Vergleich mit veröffentlichten Daten zu ermöglichen und damit die Zuverlässigkeit und Auflösung des Versuchsaufbaus bestimmen zu können.

5.2.1 GaAs

Im Gegensatz zu anderen Halbleitern wie z.B. Silizium ist es schwer, GaAs elektrisch zu charakterisieren, da die Schottky-Barriere beim Metall-Halbleiterübergang zwischen Probe und Probenkontakten ein nichtohmsches Verhalten aufweist. GaAs war daher einer der ersten Halbleiter, deren Hochfrequenzeigenschaften mittels THz-TDS bestimmt wurden. Inzwischen sind Messungen für verschiedene Typen veröffentlicht. Die hier verwendete GaAs-Probe stammt von dem gleichen 380 μm dicken Wafer, der auch im Rahmen dieser Arbeit zur Erzeugung von THz-Strahlung benutzt wurde (siehe Abschnitt 3.1). Die genauen Spezifikationen des Wafers konnten leider nicht mehr in Erfahrung gebracht werden, es handelt sich aber um hochreines, nicht dotiertes GaAs.

Um sicherzustellen, daß sämtliche gemessene THz-Strahlung vor der Detektion durch die Probe lief, wurde diese auf einer 3 mm-Apertur befestigt und die Referenzmessung entspre-

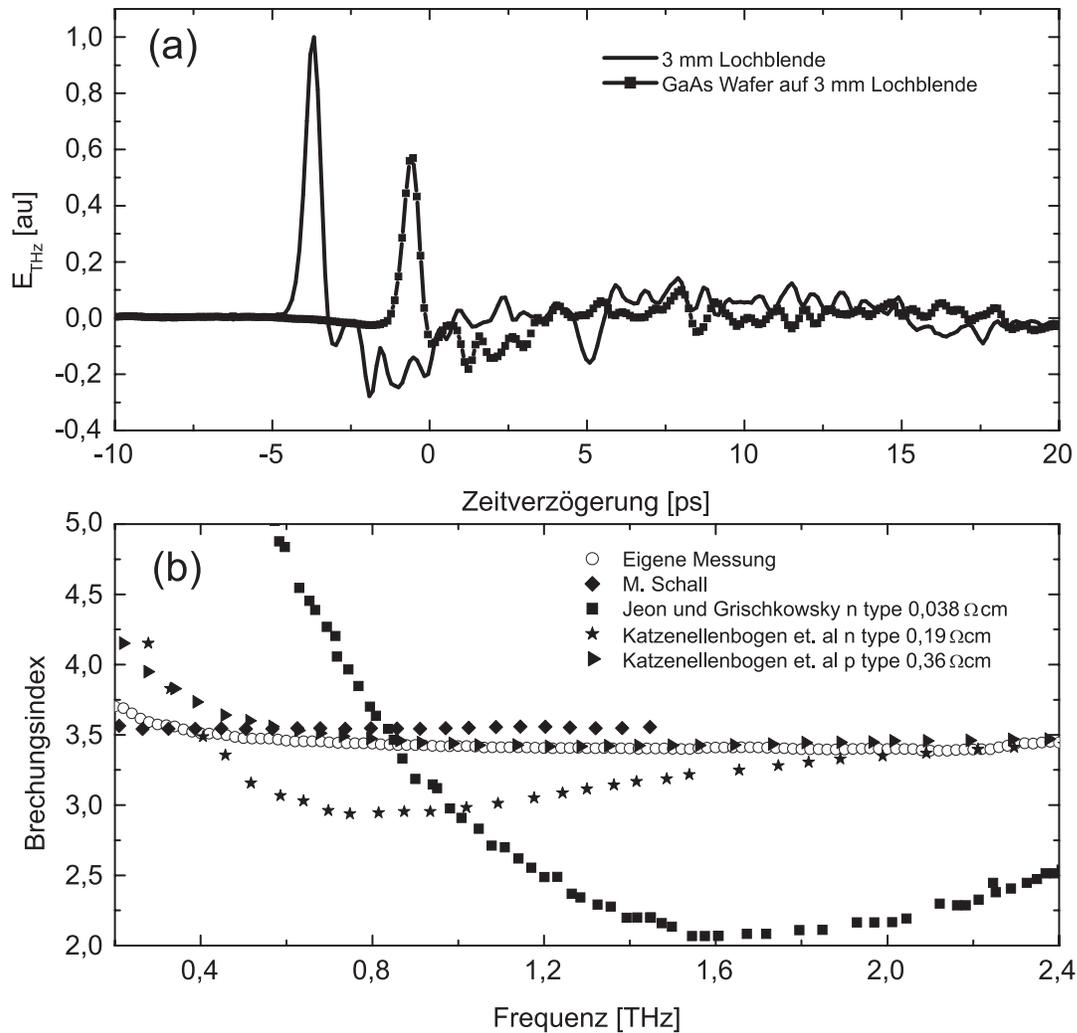


Abbildung 5.4: THz-TDS an hochohmigem GaAs. (a) Zeitlicher Verlauf des detektierten THz-Feldes mit und ohne Probe. (b) Vergleich des aus den in (a) gezeigten zeitlichen Daten gewonnenen Brechungsindex mit in [Sch96], [JG98] bzw. [KG92] publizierten Werten.

chend mit der gleichen Apertur an exakt gleicher Position ohne GaAs durchgeführt. Die ersten 30 ps der detektierten THz-Felder sind in Abb. 5.4a dargestellt. Es ist ein deutlicher zeitlicher Versatz von über 3,5 ps für den Hauptpeak zu erkennen, der durch den im Vergleich zu Luft höheren Brechungsindex der Probe verursacht wird. Mittels (5.7) lässt sich damit der frequenzabhängige Brechungsindex der Probe bestimmen, wie in Abb. 5.4b dargestellt. Im Vergleich zu den aus [JG98] und [KG92] stammenden Daten zeigt der Brechungsindex eine geringere Frequenzabhängigkeit, die für Frequenzen über 0,8 THz aber gut mit den von Katzenellenbogen et al. gemessenen Werten für P dotiertes GaAs mit einem spezifischen Widerstand von 0,36 Ωcm übereinstimmt.

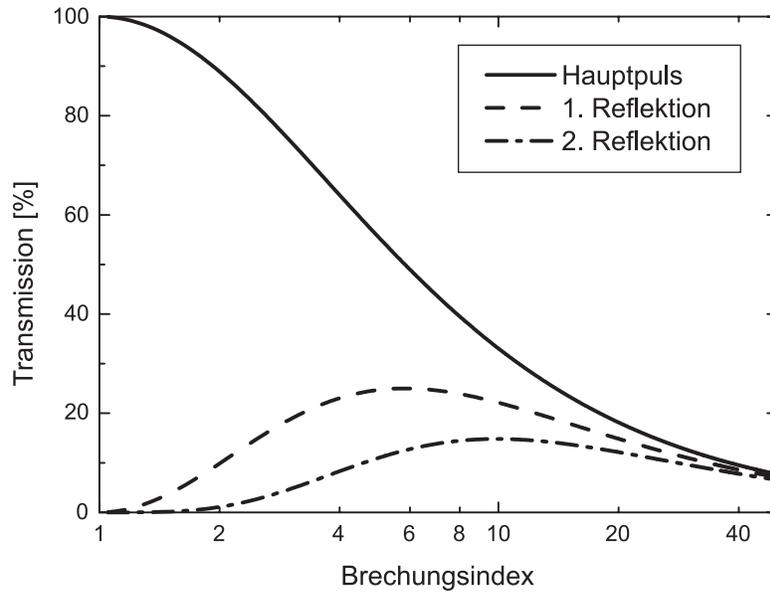


Abbildung 5.5: Amplituden-Transmission durch die Grenzflächen Luft-Probe und Probe-Luft gemäß dem Snelliuschen Gesetz sowie Anteile der entstehenden Reflektionen für verschiedene Brechungsindizes der Probe.

Die Messung des Absorptionskoeffizienten stellte sich als außerordentlich schwierig heraus. Dies erscheint zunächst in Anbetracht des großen Unterschieds in der Signalamplitude der Messung mit und ohne Probe unverständlich (Abb. 5.4a), berücksichtigt man jedoch wie in (5.9) die Reflektion der THz-Strahlung an Grenzflächen, so findet man, daß diese Abschwächung des Hauptpulses praktisch vollständig durch Reflektionsverluste an den Grenzflächen zu erklären ist. Gemäß der Snelliusschen Gesetze [Hec94] wird beim Durchlaufen zweier Grenzflächen, also z.B. Luft-Probe und Probe-Luft, nur ein Anteil von $4n/(n+1)^2$ transmittiert, wobei ein Teil der nichttransmittierten Strahlung in nachfolgenden Reflektionen später auf den Detektor trifft. Diese Reflektionen können, wie in Abb. 5.5 gezeigt, für hohe Brechungsindizes praktisch die Stärke des Hauptpulses erreichen.

Betrachtet man den Anteil, der für den gemessenen Brechungsindex von GaAs von etwa 3,4 im Hauptpuls transmittiert wird (etwa 70 %), so kommt dies dem Verhältnis der beiden in Abb. 5.4a gezeigten Pulse (etwa 56 %) recht nahe. Nimmt man eine frequenzunabhängige Absorption an, so entsprechen die verbleibenden 20% einem $\alpha \sim 13 \text{ cm}^{-2}$, was in der gleichen Größenordnung liegt, wie die in [Sch96] angegebenen frequenz aufgelösten Werte zwischen eins und zehn. Ein Vergleich mit den in [JG98] und [KG92] berichteten Werten von über 100 ist aufgrund der Dotierung des dort verwendeten Materials nicht sinnvoll. Die Berechnung der frequenz aufgelösten Absorption gemäß (5.9) lieferte ein stark verrauschtes Bild (Daten nicht gezeigt). Um hier eine verlässliche Aussage treffen zu können, müßte durch die Verbesserung des Meßsystems oder dickere Proben ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis erzielt werden.

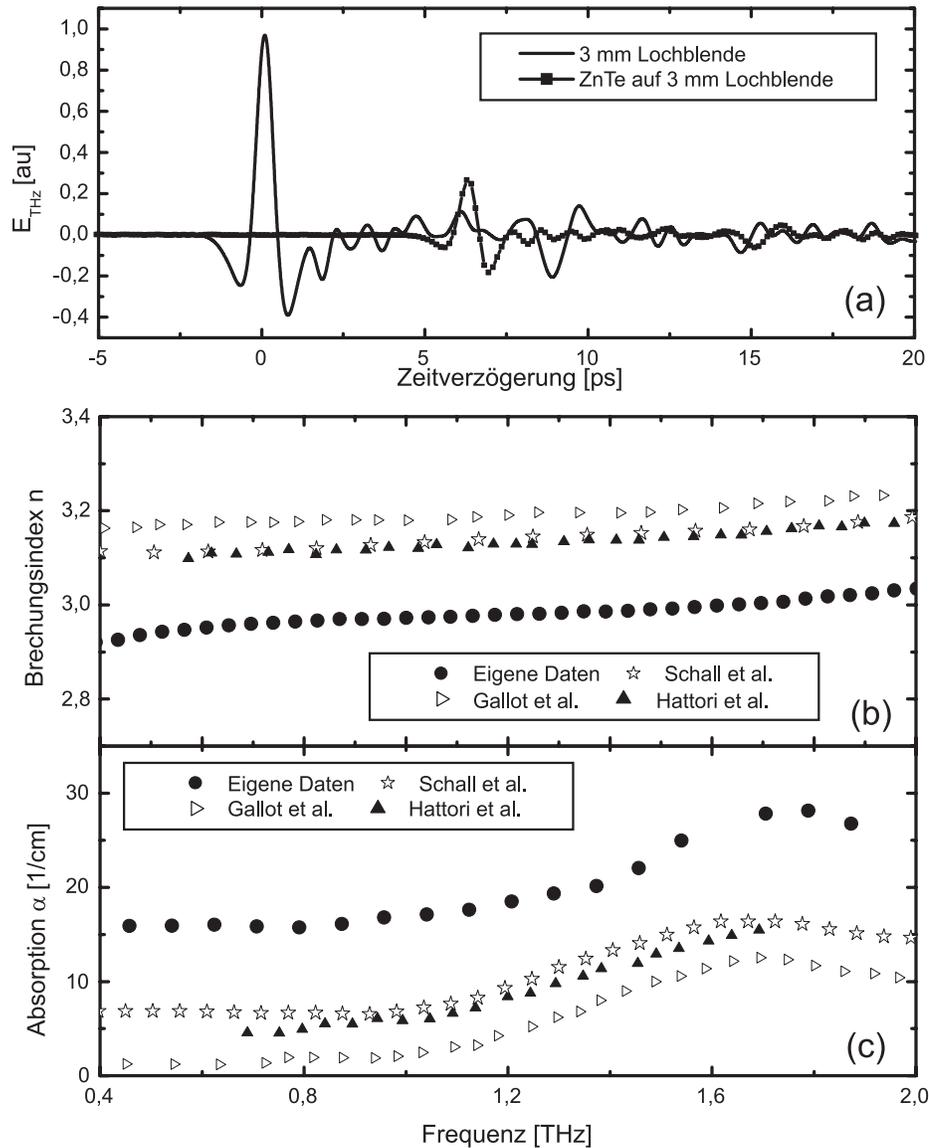


Abbildung 5.6: THz-TDS an ZnTe (a) zeitlicher Verlauf des detektierten THz-Signals mit und ohne Probe. (b) Daraus berechneter Brechungsindex und (c) Absorptionskoeffizient α im Vergleich zu publizierten Werten.

5.2.2 ZnTe

Der auch für die EO-Detektion und Emission genutzte ZnTe-Kristall ist ebenso wie GaAs ein interessanter Untersuchungsgegenstand für die THz-TDS, da daraus gewonnene Erkenntnisse zum besseren Verständnis und zur Optimierung des Versuchsaufbaus beitragen können. So ist, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, der Brechungsindex des EO-Kristalls ein entscheidender Faktor bei der Phasenanpassung und für die Bandbreite der emittierten bzw. detektierten THz-Strahlung maßgeblich.

Wie auch bei der Messung von GaAs wurde die Probe auf einer Apertur von 3 mm im Durchmesser angebracht, um die Transmission sämtlicher auf den Detektor treffender THz-Strahlung sicherzustellen. Ein Ausschnitt des zeitlichen Verlaufs des detektierten THz-Feldes mit und ohne Probe ist in Abb. 5.6a dargestellt. Aus (5.7) und der Annahme einer Kristalldicke von 1 mm läßt sich damit der Brechungsindex des ZnTe-Kristalls berechnen (Abb. 5.6b).

Der Frequenzverlauf des Brechungsindex wird dominiert von der resonanten Absorption durch transversal optische Phononen bei 5,32 THz, die mit steigender Frequenz einen exponentiellen Anstieg des Brechungsindex bewirkt, dessen Ausläufer bis hinab zu einem THz erkennbar sind. Ein einfaches Modell beschreibt diesen Zusammenhang durch die Annahme, daß die Gitterpunkte sich wie ein harmonischer Oszillator verhalten, wodurch sich die frequenzabhängige elektrische Konstante zu

$$\epsilon(\Omega) = \epsilon_{el} + \frac{\epsilon_{st}\Omega_{TO}^2}{\Omega_{TO}^2 - \Omega^2 + 2i\gamma\Omega} = (n + ik)^2 \quad (5.10)$$

ergibt. Dabei ist ϵ_{st} ein Maß für die Stärke der Absorption bei $\Omega_{TO}/2\pi = 5,32$ THz und wird als $\epsilon_{st} = 2,58$ und $\epsilon_{el} = 7,44$ mit einer Linienbreite von $\gamma/2\pi \leq 0,025$ THz in [GZM⁺99] angegeben. Ein Fit des Modells an die hier gezeigten Meßdaten lieferte aufgrund der geringen Bandbreite bis 2 THz nur unbefriedigende Ergebnisse. Der Vergleich des Brechungsindex mit in [GZM⁺99], [SHK] und [HHMT73] veröffentlichten Daten zeigt für die Frequenzabhängigkeit eine gute Übereinstimmung bis auf eine konstante Differenz von etwa 0,16 oder 7 % relativ zum Brechungsindex von Luft. Diese Differenz liegt deutlich über dem durch die Unsicherheit bei der Messung der Kristalldicke zu erwartenden Fehler und deutet auf einen Unterschied im Kristall hin, der möglicherweise durch die Hydroskopie des Kristalls verursacht sein könnte.

Die aus Abb. 5.6a ersichtliche Abschwächung des transmittierten Pulses auf etwa 27 % ist im Gegensatz zu GaAs nur zu einem kleineren Teil durch die Reflektion an Grenzflächen zu erklären, die nur - nimmt man einen Brechungsindex von 2,9 an - etwa 26 % der Strahlung reflektieren (siehe Abb. 5.5), womit eine etwa 63-prozentige Abschwächung durch Absorption in der Probe verursacht ist. In Abb. 5.6c ist der frequenzabhängige Absorptionskoeffizient dargestellt, der sich gemäß (5.9) aus dem zeitlichem Verlauf des detektierten Signals berechnen läßt. Um Etalon-Oszillationen zu vermeiden, wurden die Daten nur aus einem kleinen zeitlichen Fenster um den Hauptpuls gewonnen, das die Reflektion nicht beinhaltet, woraus aber auch eine geringere Frequenzauflösung resultiert. Im Gegensatz zum Brechungsindex ist die Absorption durch eine schwächere transversale akustische Phononen-Resonanz bei 1,6 THz dominiert, die für das Maximum verantwortlich ist. Außerhalb des Meßbereichs liegt eine weitere Resonanz des akustischen Astes bei 3,7 THz, deren Ausläufer noch bis 2 THz reicht. Die für den Brechungsindex bedeutendere transversal-optische Phononenresonanz ist für die Absorption erst oberhalb von 4 THz von Bedeutung (siehe [GZM⁺99]).

Im Vergleich zu den von [GZM⁺99], [SHK] und [HHMT73] publizierten Absorptionskoeffizienten ist eine ähnliche Frequenzabhängigkeit zu erkennen, der Absolutwert aber etwa um einen Faktor zwei höher. Wie bereits bei der Diskussion des Brechungsindex angedeu-

tet, kann dies durch die Hydroskopie des ZnTe-Kristalls bedingt sein, der zum Zeitpunkt der Messung schon mehrere Jahre der Luft ausgesetzt war. Das aus der Luft eingelagerte Wasser kann die hohe Absorption verursachen.

5.3 Optisch gepumpte THz-Zeitbereichs-Spektroskopie

Eine naheliegende Erweiterung der THz-TDS liegt in der zusätzlichen optischen Anregung der Probe. Nutzt man für diese Anregung wiederum einen kurzen Laserpuls, so läßt sich durch Variation der Verzögerung zwischen der optischen Anregung und dem THz-Puls eine Zeitauflösung der THz-TDS erreichen. Das zeitliche Auflösungsvermögen ist hauptsächlich durch die verschiedenen Pulslängen bestimmt und kann im sub-Pikosekunden-Bereich liegen.

Analog zur THz-TDS ohne optische Anregung lassen sich zu jeder Verzögerung des optischen Pumpimpulses¹ die frequenzauflöste Absorption und der Brechungsindex der Probe bestimmen. Für Halbleiter bietet sich damit die Möglichkeit - anhand einfacher Modelle, wie dem Drude-Modell - die zeitliche Entwicklung essentieller Parameter, wie der Plasmafrequenz ω_p , der komplexen elektrischen Leitfähigkeit σ und der Elektronenbeweglichkeit μ , nach der optischen Anregung zu bestimmen. Mit der Veränderung der Wellenlänge, Bandbreite und Intensität des optischen Pumpimpulses kann weiterhin die Abhängigkeit von diesen Parametern zu jedem Zeitpunkt nach der optischen Anregung untersucht werden.

Im folgenden soll die Eignung des beschriebenen THz-Spektrometers zur optisch gepumpten THz-TDS durch erste Messungen gezeigt werden. Der in Abb. 5.1 gezeigte Versuchsaufbau mußte dazu erweitert werden, um die Probe zu verschiedenen Zeitpunkten relativ zum THz-Puls mit dem optischen Pumpimpuls beleuchten zu können.

5.3.1 Versuchsaufbau

Abb. 5.7 zeigt den um den optischen Pumpstrahl erweiterten Aufbau des THz-Spektrometers. Der optische Pumpimpuls wird direkt nach dem Laserausgang durch einen Strahlteiler abgezweigt und durch eine variable Apertur abgeschwächt. Ein zweiter mechanischer Verschiebetisch verzögert den optischen Pumpimpuls derart, daß er in der Nullposition des Verschiebetisches zeitgleich mit dem THz-Puls auf die Probe trifft.

Ein kritischer Parameter bei der Justage des Versuchsaufbaus ist der Überlapp zwischen optischem Pump- und THz-Puls auf der Probe. Damit sämtliche THz-Strahlung, die auf den Detektor fällt, durch die optisch angeregte Probe transmittiert wird, muß die optische Spotgröße größer sein als der THz-Fokus oder als die Probe selbst.

Von entscheidender Bedeutung für die zeitliche Auflösung des Systems ist die Kollinearität des optischen Pumpstrahls mit der THz-Strahlung. Ist dies nicht der Fall, so wird durch ihre endliche Ausdehnung die Probe nicht mit einer gleichmäßigen Zeitdifferenz zur THz-Strahlung beleuchtet. Eine einfache trigonometrische Überlegung zeigt, daß die zusätzlich zurückgelegte Strecke l eines Teils der optischen Phasenfront für einen Winkel α relativ zur THz-Strahlung und Probe sich ergibt zu $l = d \tan \alpha$. Dabei ist d der Probendurchmesser. Schon für einen Fehler von $\alpha = 5^\circ$ und $d = 1$ cm ergibt sich eine Zeitdifferenz

¹Der optische anregende Puls wird häufig als optischer Pumpimpuls bezeichnet.

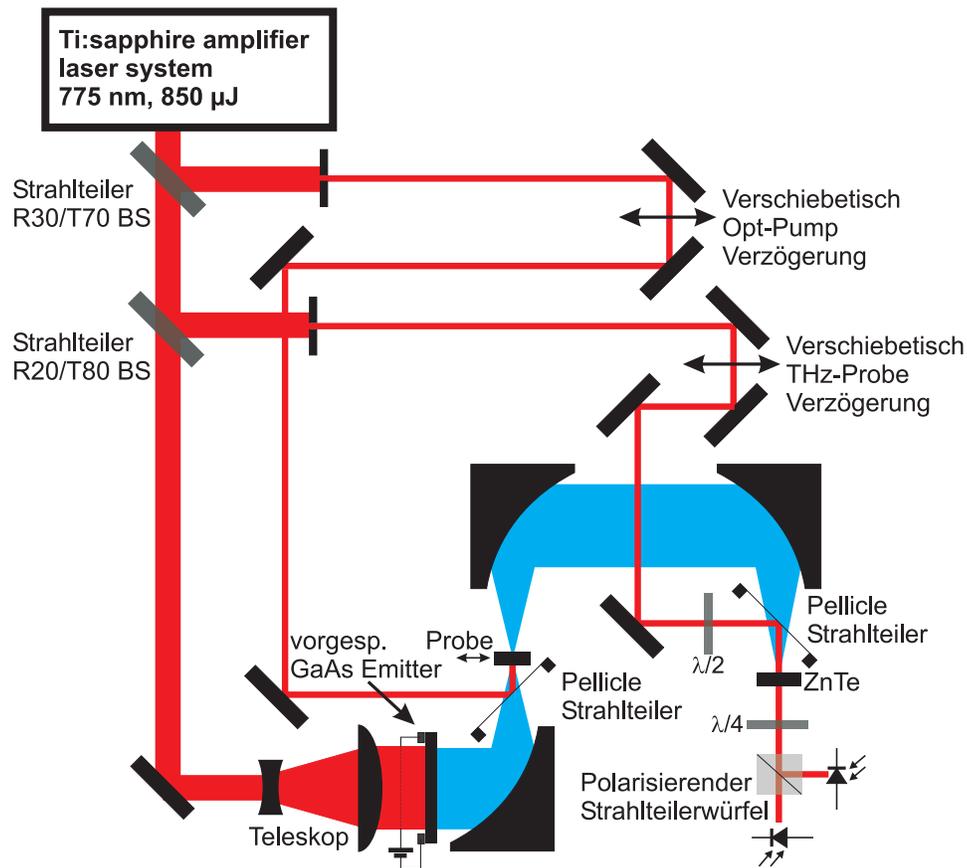


Abbildung 5.7: Versuchsaufbau für zeitaufgelöste THz-TD-Spektroskopie. Zur optischen Anregung der Probe wird ein Teilstrahl über einen zusätzlichen Verschiebetisch geführt, um die zeitliche Verzögerung zwischen optischem Pump- und THz-Probestrahl variieren zu können.

von 3 ps zwischen erstmaligem Auftreffen der optischen Phasenfront auf der einen Seite der Probe und letzmaligem Auftreffen auf der anderen Seite! Um unterhalb des durch die THz-Pulslänge bestimmten Auflösungsvermögens zu liegen, darf der Fehler in der Justage für diese Probengröße also nicht mehr als etwa 1° betragen.

5.3.2 LT-GaAs

Bei tiefen Temperaturen gewachsenes GaAs (engl. Low temperature grown GaAs - LT-GaAs) wurde in den letzten Jahren zunehmend intensiver untersucht aufgrund zahlreicher Anwendungen in schnellen elektronischen und optoelektronischen Bauteilen.

LT-GaAs wird bei Temperaturen von etwa 200°C - 400°C mittels molekular beam epitaxy (MBE) gewachsen, also deutlich unter den Wachstumstemperaturen von hochreinem GaAs von etwa 600°C . Diese niedrigeren Temperaturen führen zu einem Arsen-Überschuss von bis zu 2 %. Diese As-Atome agieren als tiefe Störstellen in der Bandstruktur, in denen Photoladungsträger gefangen werden können. Die Dichte der Störstellen beträgt einige $10^{20}/\text{cm}^3$. Das Material ist deshalb niederohmig. Der Ladungsträgereinfang optisch angereg-

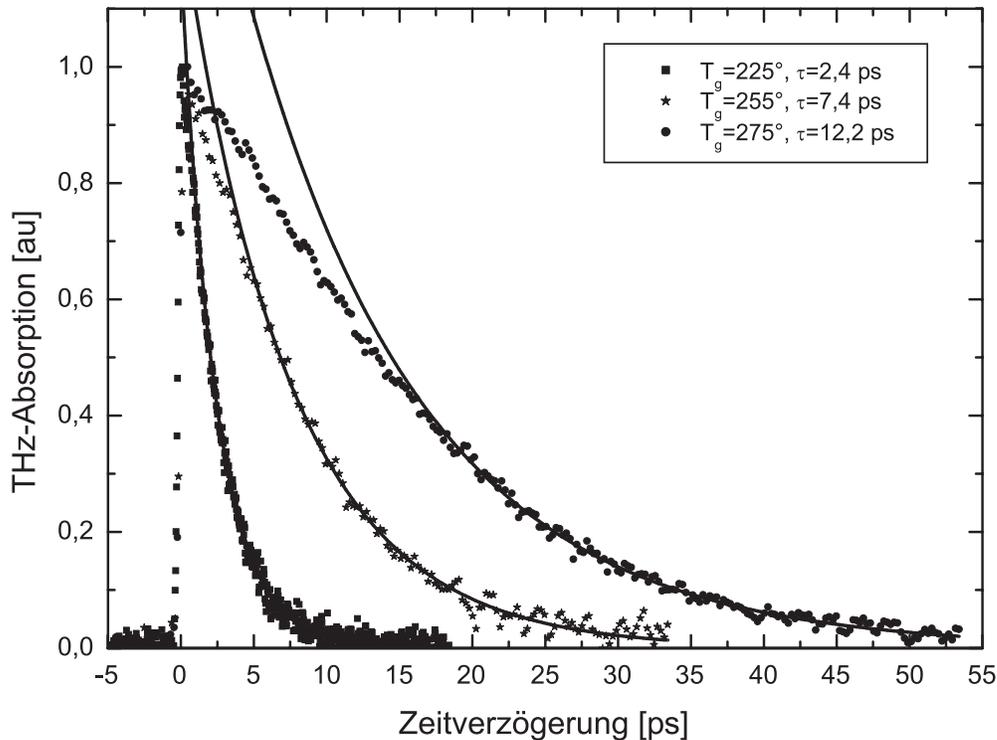


Abbildung 5.8: Änderung der THz-Amplituden-Absorption nach optischer Anregung für LT-GaAs verschiedener Wachstumstemperaturen T_g . Die durchgezogenen Linien sind Anpassungen des Ratenmodells, aus denen sich die angegebenen Rekombinationszeiten τ ergeben.

ter Ladungsträger geschieht jedoch deutlich schneller als die Ladungsträger-Rekombination in normalem GaAs und kann sogar nur einige hundert fs betragen. Da für optoelektronische Bauteile in der Regel hochohmiges Material wünschenswert ist, gilt das Hauptinteresse der Untersuchung von ausgeheiltem LT-GaAs. Der Ausheilprozess reduziert die Störstellendichte auf ca. 10^{18} cm^{-3} . Die Störstellen-Reduktion findet auf Kosten der Bildung von typischerweise 3 nm großen kristallinen As-Ausscheidungen statt. Man erhält so hochohmiges LT-GaAs mit nicht wesentlich geänderten Ladungsträger-Einfangzeiten.

Im Gegensatz zu optischen Pump-Probe-Experimenten (die übliche Methode, Relaxationszeiten zu bestimmen), ist man bei der THz-TDS nicht sensitiv auf eingefangene Ladungsträger bzw. k-Raum-Abhängigkeiten, da elektromagnetische Strahlung mit THz-Frequenzen nur von freien (mobilen) Ladungsträgern absorbiert wird. Beobachtet wird daher nur der Relaxationsprozess aus Leitungs- bzw. Valenzband.

Die im Rahmen dieser Arbeit spektroskopierten LT-GaAs Proben wurden gewachsen von der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. G. Döhler aus dem Institut für Technische Physik der Uni-

versität Erlangen. Die Wachstumstemperaturen betragen $T_g = 225^\circ$, 255° und 275° C mit einer anschließenden Ausheiltemperatur von $T_a = 600^\circ$ C. Die Proben wurden auf Glassubstrat aufgebracht und haben einen Durchmesser von etwa 1,6 mm und eine Filmdicke von $1 \mu\text{m}$.

Abb. 5.8 zeigt die normierte THz-Absorption der Proben für verschiedene Zeitverzögerungen zwischen optischem Pump- und THz-Probe-Strahl. Der optische Pumpimpuls entspricht dem Laserpuls mit einer Wellenlänge von 775 nm und einer FWHM von 150 ps. Die optische Anregungsdichte betrug $16 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Während der Messung wurde die THz-Probe-Verzögerung konstant auf der maximalen Feldstärke der THz-Emission gehalten.

Es wird deutlich, daß die Ladungsträger-Rekombinationszeit mit niedrigerer Wachstumstemperatur abnimmt. Dies deckt sich mit der erwarteten Zunahme tiefer Störstellen, die durch Einfangen der Photoladungsträger die Rekombinationszeiten beschleunigen. Um diesen Effekt zu quantifizieren, kann ein einfaches Ratengleichungsmodell angenommen werden, demzufolge die Zahl der Rekombinationen proportional zur Zahl der Ladungsträger im Leitungsband ist $dN/dt \propto -\tau^{-1} N$, womit sich $N \propto \exp(-N/\tau)$ ergibt. Die Anpassung von τ an die Messdaten ist in Abb. 5.8 angegeben und als durchgezogene Linie gezeigt. Aufgrund der Abweichung von dem exponentiellen Verlauf für Zeiten kurz nach der optischen Anregung wurden jeweils die ersten 30% der Messdaten nicht in die Anpassung einbezogen. Für höhere Pumpleistungen nimmt die Abweichung deutlich zu (Daten nicht gezeigt). Möglicherweise kann sie durch Zwei-Photonen-Absorptionsprozesse erklärt werden, die eine wesentlich höhere Anregung der Photoladungsträger in das Leitungsband bewirken. Dieses Phänomen ist aber noch aktueller Gegenstand der Forschung unserer Arbeitsgruppe, so daß hier noch keine definitive Aussage getroffen werden kann.

Der Vergleich der so gefundenen Rekombinationszeiten mit von Prabhu et al. [PR97] veröffentlichten Werten (unter anderem $\tau = 1,6$ ps für $T_g = 300^\circ$ C und $T_a = 600^\circ$ C, ebenfalls mit einem THz-Spektrometer gemessen) zeigt, daß die Proben aus Erlangen deutlich „langsamer“ sind. Die Ursache hierfür ist wahrscheinlich in Details des Ausheilprozesses zu suchen.

Ein Vergleich mit normalem Volumen-GaAs (Abb. 5.9), das in dieser Arbeit zur Generierung von THz-Strahlung genutzt wurde, verdeutlicht nochmals die schnellere Rekombinationszeit von LT-GaAs. Durch die beschränkte Länge des mechanischen Verschiebetisches war es nicht möglich, eine deutliche Abnahme der Photoladungsträger zu beobachten. Über den dargestellten Zeitbereich von 200 ps nach der optischen Anregung nahm die THz-Transmission nur um 4 % ab. Eine Anpassung des Ratengleichungsmodells liefert $\tau = 4$ ns, was aufgrund der großen Unsicherheit durch den kleinen Zeitbereich nur als grobe Abschätzung gelten kann, aber gut mit Literaturwerten übereinstimmt ([PR97],[Oth98] geben Werte ≥ 1 ns an).

Die in Abb. 5.9 gezeigten Daten sollen neben dem Vergleich zwischen LT-GaAs und GaAs die Abschätzung des mit dem Versuchsaufbau erreichten Signal-Rausch-Verhältnisses ermöglichen. Durch die Dicke des verwendeten GaAs von $300 \mu\text{m}$ und der größeren optischen Anregungsdichte ist die THz-Absorption höher als bei LT-GaAs. Die gezeigten Meßpunkte ergeben sich aus der Mittelung über 30 Laserpulse durch den Lockin (Zeitkonstante 30 ms).

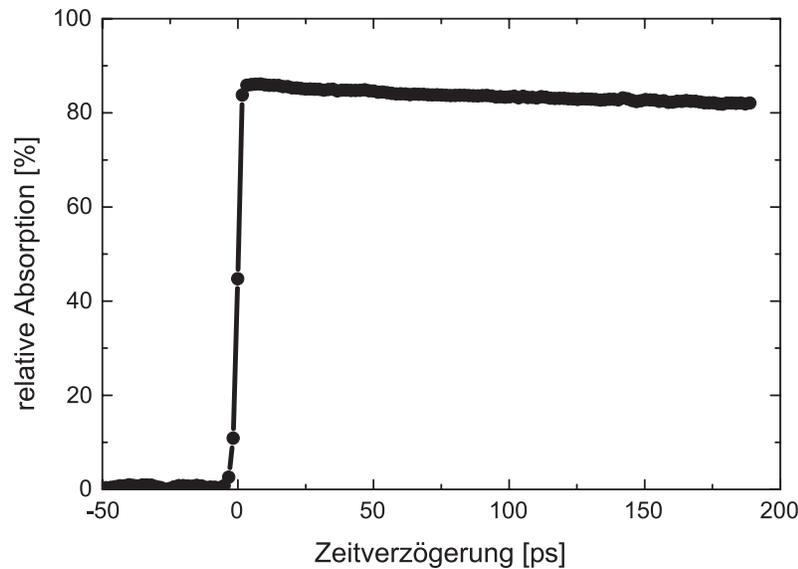


Abbildung 5.9: Änderung der THz-Amplituden-Absorption nach optischer Anregung für Volumen-GaAs. Der Einsatz zeigt eine Vergrößerung der Anstiegsflanke bei eintreffendem optischen Puls. Die optische Anregungsdichte betrug $25 \mu\text{J}/\text{cm}^2$.

Es wurde keine zusätzliche Mittelung durchgeführt, womit sich schon für eine „Einzelmessung“ ein s/n von 900:1 ergibt. Für das zeitliche Auflösungsvermögen des Versuchsaufbaus läßt sich aus der Anstiegszeit der Flanke von LT-GaAs bei eintreffendem optischen Puls eine Obergrenze ≤ 500 fs angeben.

5.4 Ausblick

Die in Abschnitt 3.5.5 angeführten Verbesserungsmöglichkeiten des THz-Emitters, respektive in 4.3 des THz-Detektors in Hinblick auf Signal-Rausch-Verhältnis und Bandbreite, gelten in gleicher Form auch für das THz-Spektrometer. Insbesondere bietet sich der EO-Emitter mit überlegenem s/n über 200 GHz (um bis zu einer Größenordnung) zur Erweiterung des Frequenzspektrums und zur Verbesserung der Signalqualität an. Um das Frequenzspektrum aber deutlich über 3 THz auszudehnen, ist die Verkürzung der optischen Pulslänge unumgänglich.

Die in diesem Kapitel diskutierten Messungen repräsentieren nur einen Ausschnitt der mit dem vorgestellten Versuchsaufbau möglichen Meßmethoden. Besonders die optisch gepumpte THz-TDS bietet zahlreiche weitere Möglichkeiten, wie die naheliegende Messung des zeitlichen Verlaufs des THz-Pulses für jede Verzögerung zwischen optischem Pump- und THz-Probe-Puls. Mit diesen Daten ist die Berechnung der frequenz aufgelösten dielektrischen Konstante zu jedem Zeitpunkt nach der optischen Anregung möglich. Einfache Modelle wie das Drude-Modell für Halbleiter liefern daraus den zeitlichen Verlauf der Plasmafrequenz,

der Ladungsträgermobilität und der Ladungsträgerdichte.

Durch die Nutzung eines Optical Parametric Amplifier - OPA, wie er unserer Arbeitsgruppe als Erweiterung des CPA-2001 Lasers zur Verfügung steht, können weitere interessante Parameter wie die Wellenlänge, die Bandbreite und Intensität des optischen Pumpimpulses über weite Bereiche variiert werden. Zusammen mit der demonstrierten sub-Pikosekunden-Auflösung und gutem Signal-Rausch-Verhältnis ist das vorgestellte THz-Spektrometer zur Untersuchung ultraschneller Phänomene hervorragend geeignet.

Kapitel 6

Zusammenfassung

In der vorliegenden Diplomarbeit wurden verschiedene THz-Emissions- und Detektionsverfahren im Hinblick auf ihre Eignung für das verwendete regenerativ verstärkte Lasersystem verglichen. Als der Emittor mit der höchsten Konversionseffizienz und dementsprechend den höchsten THz-Pulsenergien erwies sich der großflächige, extern vorgespannte GaAs-Emittor. Bezüglich des für viele Anwendungen wichtigeren Signal-Rausch-Verhältnisses hingegen zeigt sich für Frequenzen oberhalb von etwa 200 GHz der EO-ZnTe-Emittor als überlegen. Weder der intrinsische Emittor, noch das vorgespannte Plasma ließen eine vergleichbare Eignung erkennen.

Für die THz-Detektion ist das Ergebnis eindeutig: Die EO-Detektion ist für das verwendete Lasersystem der Detektion mit Halbleiter-Antennen sowohl hinsichtlich Signal-zu-Rauschverhältnis als auch Bandbreite überlegen.

Zur Steigerung der emittierten Bandbreite und der detektierten Feldstärke der Emissionsverfahren bestehen verschiedene Ansätze:

- Durch Kompression der optischen *Pulslänge* kann bei allen Emissionsverfahren eine deutliche Erweiterung der Bandbreite und – bei gleichbleibender optischer Pulsenergie – ein intensiverer THz-Puls generiert werden. Da der optische Puls aber bei dem verwendeten Lasersystem bereits bandbreitenbegrenzt ist, erweist sich dieser Ansatz als schwierig, kann aber z.B. mittels einer Weißlichtquelle erreicht werden. Ohne Pulskompression ist eine deutliche Erweiterung des Frequenzbereichs über 4 THz hinaus nicht möglich.
- Die *Emittorgröße* bietet sowohl bei der EO-Emission als auch für den vorgespannten GaAs-Emittor die Möglichkeit einer Verbesserung der detektierten THz-Feldstärke. Die Flächenabhängigkeit von vorgespanntem GaAs und der EO-Emission unterscheidet sich aufgrund des unterschiedlichen Sättigungsverhaltens deutlich. Durch eine Verdopplung der Fläche des vorgespannten GaAs Emittors ist 80% mehr Signal zu erwarten. Der EO-Emittor hingegen zeigt bedingt durch eine geringere Sättigung eine weniger stark ausgeprägte Flächenabhängigkeit (25 % Verbesserung für eine Verdopplung der Fläche). Für den EO-Emittor ist eine Vergrößerung um das Zehnfache realisierbar, während für den GaAs-Emittor die Verfügbarkeit hinreichend großer optischer

Komponenten limitierend ist.¹

- Linear mit der Erhöhung der *elektrischen Vorspannung* kann die Konversionseffizienz des GaAs-Emitters verbessert werden. Beschränkt wird dieser Ansatz durch Funkenüberschlag, dessen Einsetzen aber durch die Verwendung gepulster Hochspannungsquellen retardiert werden kann. Als kritisch stellt sich dabei die elektrische Abschirmung heraus, die eine deutliche Erhöhung des Rauschniveaus nach sich zieht.
- Bedingt durch Phasenfehlانpassung bietet die Verwendung eines *dünnere EO-Kristalls* das Potential, die Bandbreite des EO-Emitters zu erhöhen. Die insgesamt emittierte THz-Leistung sinkt jedoch bei einer Reduzierung der Kristalldicke. Analog läßt sich die THz-Leistung durch dickere Kristalle erhöhen, jedoch ist der hier verwendete Kristall bereits in einem durch Absorption verursachten Sättigungsbereich.

Eine Verbesserung der EO-Detektion kann hauptsächlich durch zwei Ansätze erreicht werden:

- Durch die Verwendung *kürzerer optischer Pulse* kann die Bandbreite erhöht werden. Die für die Emission diskutierten Beschränkungen gelten entsprechend.
- Analog zur EO-Emission kann durch Reduzierung der *Kristalldicke* die Bandbreite auf Kosten eines schlechteren Signal-Rausch-Verhältnisses erhöht bzw. durch dickere Kristalle das Signal-zu-Rauschverhältnis zu Lasten der Bandbreite verbessert werden.

In der zweiten Hälfte dieser Arbeit wurden erste Anwendungen der realisierten Apparatur demonstriert. Die Zuverlässigkeit und das hohe Signal-zu-Rauschverhältnis erster THz-TDS Messungen wurden durch den Vergleich des gewonnenen komplexen Brechungsindex von ZnTe und GaAs mit veröffentlichten Daten belegt. Die nutzbare Bandbreite reichte dabei von etwa 0,3 THz bis 2,4 THz. Durch die zusätzliche optische Anregung konnte bei der Untersuchung von LT-GaAs-Proben eine Obergrenze für das zeitliche Auflösungsvermögen von unter 500 fs bestimmt und ein Signal-zu-Rauschverhältnis von 900:1 für eine Einzelmessung nachgewiesen werden.

Im Hinblick auf zukünftige Anwendungen kann eine verhältnismäßig einfache Verbesserung der Apparatur durch die Verwendung eines etwa 3 cm² großen, 500 μm dicken EO-Emitter- und 500 μm dicken Detektorkristalls als guter Kompromiß zwischen Signal-zu-Rauschverhältnis und Bandbreite angesehen werden.

Durch denkbare Erweiterungen des Versuchsaufbaus steht eine Fülle weiterer Meßverfahren zur Verfügung. So kann durch eine Änderung der Strahl-Geometrie THz-TDS bzw. optisch gepumpte THz-TDS in Reflektion durchgeführt werden, wodurch Spektroskopie an stark absorbierenden Proben ermöglicht wird. Eine Erweiterung zu einem bildgebenden System kann über zwei Ansätze erfolgen: Mittels mechanischen Verfahrens der Probe durch den THz-Fokus kann durch Messung der Absorption für jeden Bildpunkt ein zweidimensionales

¹Die Größe des GaAs-Wafers an sich stellt keine echte Beschränkung dar, da durch die Zusammensetzung eines „Mosaiks“ ein großer Emitter aus kleinen Teilen konstruiert werden kann.

Bild der Probe erstellt werden. Ein potentiell sehr viel schnelleres System besteht aus der flächigen Detektion der Phasen-Retardierung (EO-Detektion) mittels einer CCD-Kamera, die prinzipiell mit nur einem THz-Puls ein ganzes hochauflösendes Bild aufnehmen kann. Da für derartige Apparaturen hohe THz-Intensitäten notwendig sind, scheint das realisierte System für diese Anwendung prädestiniert.

Physikalisch sehr reizvoll aber experimentell aufwendig ist eine Erweiterung in Richtung zeitaufgelöster Elektronen-Spin-Resonanz. In Abhängigkeit von einem angelegten Magnetfeld können Energieniveau-Aufspaltungen auftreten, die Frequenzen über 1 THz entsprechen. Eine zeitaufgelöste Messung der Spin-Dynamik mittels Pump-Probe-Experimenten könnte interessante Beiträge auf diesem Gebiet leisten.

Anhang A

Zeit- / Bandbreiten-Produkt

Bei der Messung der optischen Pulslänge z.B. mittels Autokorrelation oder FROG wird meist der zeitliche Abstand zwischen dem zweimaligem Erreichen der halben Pulshöhe (FWHM - Full Width at Half Maximum) als Pulslänge $t_{1/2}$ angegeben. Entsprechend läßt sich im Frequenzspektrum eine FWHM $\omega_{1/2}$ definieren. Nimmt man einen gaußförmigen Pulsverlauf an (ein Gaußpuls bleibt auch nach Fouriertransformation ein Gaußpuls; insofern ist unerheblich, ob man im Frequenz- oder Zeitbereich beginnt) , so erhält man mittels

$$\exp\left(-(\omega/\Delta\omega)^2\right) = \frac{1}{2} \quad (\text{A.1})$$

den Zusammenhang zwischen dem Gaußschen $\Delta\omega$ (halbe Breite bei Abfall auf 1/e relativ zum Maximum) und $\omega_{1/2}$

$$\omega_{1/2} = 2 \Delta\omega \sqrt{\ln 2} \quad (\text{A.2})$$

Einsetzen in den Gaußpuls liefert

$$\exp\left(-(\omega/\Delta\omega)^2\right) = \exp\left(-(\omega/\omega_{1/2})^2 4 \ln 2\right) \quad (\text{A.3})$$

Die Fouriertransformation in den Zeitbereich ergibt

$$\exp\left(-(\omega/\omega_{1/2})^2 4 \ln 2\right) \longleftrightarrow \frac{\omega_{1/2} \sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \exp\left(-\omega_{1/2}^2 t^2 / 16 \ln 2\right) \quad (\text{A.4})$$

Der Vergleich mit $\exp\left(- (t/t_{1/2})^2 4 \ln 2\right)$ liefert das Zeit- / Bandbreiten-Produkt

$$\frac{\omega_{1/2}^2}{16 \ln 2} = \frac{4 \ln 2}{t_{1/2}^2} \quad (\text{A.5})$$

$$f_{1/2} t_{1/2} = \frac{4 \ln 2}{\pi} \quad (\text{A.6})$$

$$\Delta\omega = \frac{4 \sqrt{\ln 2}}{t_{1/2}} \quad (\text{A.7})$$

das natürlich nur für Gaußsche Pulsformen gilt.

Anhang B

Autokorrelation des optischen elektrischen Feldes

In diesem Anhang soll in Anlehnung an [GG99] die Notation $A_{opt}(\omega)$ für das komplexe elektrische Feld des optischen Pulses verwandt werden. Die Autokorrelation $C(\omega_3)$ ist definiert als

$$C(\omega_3) = \int_{-\infty}^{+\infty} A_{opt}^*(\omega) A_{opt}(\omega - \omega_3) d\omega \quad (\text{B.1})$$

Nimmt man eine gaußförmige Einhüllende (also einen gaußförmigen Intensitätsverlauf) an

$$A_{opt}(\omega) = \exp\left(-\left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right)^2\right) \quad (\text{B.2})$$

so ergibt sich aus (B.1)

$$C(\omega_3) = \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right)^2\right) \exp\left(-\left(\frac{\omega - \omega_3}{\Delta\omega}\right)^2\right) d\omega \quad (\text{B.3})$$

$$= \left[\frac{\Delta\omega \sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} \exp\left(-\frac{\omega_3^2}{2\Delta\omega^2}\right) \operatorname{erf}\left(\frac{2\omega - \omega_3}{\sqrt{2}\Delta\omega}\right)^2 \right]_{\omega=-\infty}^{\omega=+\infty} \quad (\text{B.4})$$

$$= \frac{\sqrt{\pi} \Delta\omega}{\sqrt{2}} \exp\left(-\frac{\omega_3^2}{2\Delta\omega^2}\right) \quad (\text{B.5})$$

Um dieses Ergebnis in Abhängigkeit von der FWHM des Pulses schreiben zu können, wird das Zeit-/ Bandbreitenprodukt (A.7) benötigt, womit

$$C(\omega_3) \propto \exp\left(-\frac{\omega_3^2 t_{1/2}^2}{32 \ln 2}\right) \quad (\text{B.6})$$

Anhang C

Fokusradius

Im folgenden soll an Hand des ABCD-Matrix-Formalismus [Jep96, Yar89] der frequenzabhängige Fokusradius hinter einer Linse hergeleitet werden. Dabei wird von einem Emitter im Abstand d vor der Linse ausgegangen, der Strahlung kollinear emittiert, d.h. mit einem unendlichen Krümmungsradius der Phasenfront $R(z)$. Die Notation entspricht [Yar89] bis auf den Strahlradius r . Ein Schema ist in Abb. 2.6 dargestellt.

Aus der Anfangsbedingung folgt

$$\frac{1}{q_0} = -i \frac{\lambda}{\pi r_0^2} \quad (\text{C.1})$$

$$q_0 = i \frac{\pi r_0^2}{\lambda} \equiv i z_0 \quad (\text{C.2})$$

$$z_0 \equiv \frac{\pi r_0^2}{\lambda} \quad (\text{C.3})$$

Der ABCD-Matrix-Formalismus liefert für die Propagation durch ein homogenes Medium den Zusammenhang

$$q_1 = q_0 + d \quad (\text{C.4})$$

$$q_1 = i z_0 + d \quad (\text{C.5})$$

$$\frac{1}{q_1} = \frac{1}{i z_0 + d} = \frac{d - i z_0}{d^2 + z_0^2} \quad (\text{C.6})$$

bzw. für eine Linse der Brennweite f

$$\frac{1}{q_2} = \frac{1}{q_1} - \frac{1}{f} \quad (\text{C.7})$$

$$= \frac{d - i z_0}{d^2 + z_0^2} - \frac{1}{f} = \frac{d - i z_0 - (d^2 + z_0^2)/f}{d^2 + z_0^2} \quad (\text{C.8})$$

$$= \frac{D - i z_0}{d^2 + z_0^2} \quad (\text{C.9})$$

mit $D \equiv d - (d^2 + z_0^2)/f$

$$q_2 = \frac{d^2 + z_0^2}{D - i z_0} = (d^2 + z_0^2) \frac{D + i z_0}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.10})$$

$$q_3 = (d^2 + z_0^2) \frac{D + iz_0}{D^2 + z_0^2} + d' \quad (\text{C.11})$$

$$= \frac{D(d^2 + z_0^2) + d'(D^2 + z_0^2)}{D^2 + z_0^2} + i \frac{z_0(d^2 + z_0^2)}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.12})$$

Da im Fokus der Krümmungsradius der Phasenfront wieder unendlich ist, ergibt sich die Bedingung $q_3 = \Im(q_3)$ und damit

$$q_3 = i \frac{z_0(d^2 + z_0^2)}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.13})$$

Die Lösung der Gleichung

$$\frac{1}{q_3} = -i \frac{D^2 + z_0^2}{z_0(d^2 + z_0^2)} = i \frac{\lambda}{\pi r_3^2} \quad (\text{C.14})$$

liefert durch Auflösung nach dem Fokusradius r_F

$$r_F^2 = r_3^2 = \frac{\lambda z_0}{\pi} \frac{d^2 + z_0^2}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.15})$$

$$= \frac{\lambda \pi r_0^2}{\pi \lambda} \frac{d^2 + z_0^2}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.16})$$

$$= r_0^2 \frac{d^2 + z_0^2}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.17})$$

Aus der Bedingung $q_3 = \Im(q_3)$ erhält man auch die Position des Fokus d_F mit (C.12)

$$\frac{D(d^2 + z_0^2) + d'(D^2 + z_0^2)}{D^2 + z_0^2} = 0 \quad (\text{C.18})$$

$$d_F = d' = - \frac{D(d^2 + z_0^2)}{D^2 + z_0^2} \quad (\text{C.19})$$

Anhang D

Gruppenbrechungsindex

Die Einhüllende (bzw. die Modulation) einer optischen Welle breitet sich mit einer Geschwindigkeit aus, die sich im allgemeinen von der Phasengeschwindigkeit v der optischen Trägerwelle im Medium unterscheidet. Diese Ausbreitungsgeschwindigkeit der Modulation und damit der Intensität ist gegeben als [Hec94]

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} \quad (\text{D.1})$$

Offensichtlich muß man damit auch einen neuen Brechungsindex einführen, den Gruppenbrechungsindex

$$n_g \equiv c/v_g \quad (\text{D.2})$$

der sich in dispersiven Medien ($dn/d\omega \neq 0$) deutlich vom Brechungsindex n unterscheiden kann. Setzt man nun (D.1) in (D.2) ein, so erhält man

$$n_g = c \frac{dk}{d\omega} \quad (\text{D.3})$$

und mit $k = n\omega/c$

$$n_g = \frac{d}{d\omega} (n\omega) \quad (\text{D.4})$$

$$= n + \omega \frac{dn}{d\omega} \quad (\text{D.5})$$

Die Abhängigkeit von der Wellenlänge erhält man durch $\omega = kc/n$ und $k = 2\pi/\lambda$ zu

$$n_g = n - \frac{\omega \lambda^2}{2\pi c} \frac{dn}{d\lambda} \quad (\text{D.6})$$

$$= n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} \quad (\text{D.7})$$

Für optische Medien nimmt der Brechungsindex im Bereich normaler Dispersion mit der Frequenz zu ($dn/d\omega > 0$), so daß $v_g < v$.

Anhang E

EO-Phasen Anpassung

Wie in Abschnitt 3.3 erläutert, beruht die EO-Emission auf Frequenzmischen. Dabei wird die Frequenz eines Photons aus dem optischen Pumpstrahl gerade um die Frequenz des generierten THz vermindert. Da dabei Impulserhaltung gelten muß, ergibt sich

$$\hbar k(\omega_{opt}) = \hbar k(\omega_{opt} - \omega_{THz}) + \hbar k(\omega_{THz}) \quad (\text{E.1})$$

Auch der Detektionsprozeß der dynamischen Doppelbrechung durch das anliegende THz-Feld kann als Frequenzmischen betrachtet werden (siehe Abschnitt 4.2), wobei die Frequenz des optischen Photons durch Mischen mit den THz-Photonen um dessen Frequenz erhöht oder vermindert wird. Entsprechend ergeben wieder durch Impulserhaltung die Bedingungen

$$\hbar k(\omega_{opt}) + \hbar k(\omega_{THz}) = \hbar k(\omega_{opt} + \omega_{THz}) \quad (\text{E.2})$$

$$\hbar k(\omega_{opt}) = \hbar k(\omega_{opt} - \omega_{THz}) + \hbar k(\omega_{THz}) \quad (\text{E.3})$$

was der Gleichung des Emissionprozesses entspricht. Da $\omega_{THz} \ll \omega_{opt}$, gilt in guter Näherung

$$k(\omega_{opt} \pm \omega_{THz}) \approx k(\omega_{opt}) \pm \omega_{THz} \frac{dk(\omega_{opt})}{d\omega} \quad (\text{E.4})$$

Damit ergibt sich sowohl aus (E.1) als auch aus (E.2)

$$k(\omega_{THz}) = \omega_{THz} \frac{dk(\omega_{opt})}{d\omega} \quad (\text{E.5})$$

was mittels $k = n\omega/c$ und (D.5) zu der Bedingung für Phasen Anpassung führt.

$$n(\omega_{THz}) = \frac{d}{d\omega} [n(\omega) \omega]_{\omega=\omega_{opt}} \quad (\text{E.6})$$

$$= n(\omega_{opt}) + \omega_{opt} \frac{dn(\omega_{opt})}{d\omega} = n_g(\omega_{opt}) \quad (\text{E.7})$$

Die Phasengeschwindigkeit der THz-Strahlung muß also sowohl im EO-Generations- wie auch im Detektionsprozeß der Gruppengeschwindigkeit der optischen Strahlung für optimale Phasen Anpassung gleichen.

Literaturverzeichnis

- [AMSC91] S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chin, *Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression*, J. Opt. Soc. Am. B **8** (1991), no. 4, 858–867.
- [BCK⁺98] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, and X.-C. Zhang, *Distortion of terahertz pulses in electro-optic sampling*, J. Opt. Soc. Am. B. **15** (1998), no. 6, 1795–1801.
- [Bri00] *Encyclopedia Britannica 2000*, CD, 2000.
- [BRT94] P. K. Benicewicz, J. P. Roerts, and A. J. Taylor, *Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased photoconductors*, J. Opt. Soc. Am. B **11** (1994), no. 12, 2533–2546.
- [CBL⁺98] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata, J. Wynn, L. Pfeiffer, and J. B. Stark, *Coherent terahertz radiation detection: Direct comparison between free-space electro-optic sampling and antenna detection*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998), no. 4, 444–446.
- [CZ99] Q. Chen and X.-C. Zhang, *Polarization modulation in optoelectronic generation and detection of terahertz beams*, Appl. Phys. Letters **74** (1999), no. 23, 3435–3437.
- [Dem00] Wolfgang Demtröder, *Laserspektroskopie*, vol. 4, Springer, 2000.
- [DZA92] Justin T. Darrow, Xi-Cheng Zhang, and David H. Auston, *Saturation Properties of Large-Aperture Photoconducting Antennas*, IEEE Journal of Quantum Electronics **28** (1992), no. 6, 1607–1616.
- [GG99] G. Gallot and D. Grischkowsky, *Electro-optic detection of terahertz radiation*, J. Opt. Soc. Am. B **16** (1999), no. 8, 1204–1212.
- [Gre91] Walter Greiner, *Klassische Elektrodynamik*, vol. 5, Harri Deutsch, 1991.
- [Gri93] D. Grischkowsky, *Nonlinear generation of sub-psec pulses of THz electromagnetic radiation by optoelectronics - applications to time-domain spectroscopy*, Frontiers in nonlinear optics **The Sergei Akhmanov Memorial Volume** (1993), 196–227.

- [GSD⁺92] B. I. Greene, P. N. Saeta, Douglas R. Dykaar, S. Schmitt-Rink, and Shun Lien Chuang, *Far-Infrared Light Generation at Semiconductor Surfaces and Its Spectroscopic Applications*, IEEE Journal of Quantum Electronics **28** (1992), no. 10, 2302–2312.
- [GZM⁺99] G. Gallot, Jiangquan Zhang, R. W. McGowan, Tae-In Jeon, and D. Grischkowsky, *Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation*, Appl. Phys. Letters **74** (1999), no. 23, 3450–3452.
- [Ham93] Harold Hamster, *Generation of Sub-Picosecond Terahertz Radiation by Laser-Produced Plasmas*, Ph.D. thesis, University of California at Berkeley, University Microfilms, Inc. 300 North Zeeb Road, Ann Arbor MI 48106-1346, 1993.
- [HDZ⁺90] B. B. Hu, J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and P. R. Smith, *Optically steerable photoconducting antennas*, Appl. Phys. Lett. **56** (1990), no. 10, 886–888.
- [Hec94] E. Hecht, *Optik*, vol. 3, Addison-Wesley, 1994.
- [HHMT73] T. Hattori, Y. Homma, A. Mitsuishi, and M. Tacke, Opt. Commun. **7** (1973), 229.
- [HSGF93] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, and R. W. Falcone, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), 2725.
- [HSGF94] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, and R. W. Falcone, *Short-Puls terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas*, Physical Review E **49** (1994), no. 1, 671–677.
- [HTPZ00] P. Y. Han, M. Tani, F. Pan, and X.-C. Zhang, *Use of the organic crystal DAST for terahertz beam applications*, Optics Letters **25** (2000), no. 9, 675–677.
- [HVD66] R. T. Hall, D. Vrabec, and J. M. Dowling, *A High-Resolution, Far Infrared Double-Beam Lamellar Grating Interferometer*, Appl. Opt. **5** (1966), 1147.
- [HZP99] D. Hashimshony, A. Zigler, and K. Papadopoulos, Appl. Phys. Lett **74** (1999), 1669.
- [JA75] A. M. Johnson and D. H. Auston, *Microwave switching by picosecond photoconductivity*, IEEE J. Quantum Electronics **11** (1975), 283–287.
- [Jac75] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics*, vol. 2, John Wiley, 1975.
- [Jep96] Peter Uhd Jepsen, *Generation and applications of THz radiation*, Ph.D. thesis, Aarhus University, September 1996.
- [JG98] Tae-In Jeon and D. Grischkowsky, *Characterization of optically dense, doped semiconductors by reflection THz time domain spectroscopy*, Appl. Phys. Letters **72** (1998), no. 23, 3032–3034.

- [JWS⁺96] P. Jepsen, C. Winnewisser, M. Schall, V. Schyja, S. R. Keiding, and H. Helm, *Detection of THz pulses by phase retardation in lithium tantalate*, Physical Review E **53** (1996), no. 4, 3052–3054.
- [KG92] N. Katzenellenbogen and D. Grischkowsky, *Electrical characterization to 4 THz of N- and P-type GaAs using THz time-domain spectroscopy*, Appl. Phys. Letters **61** (1992), no. 7, 840–842.
- [Kib66] T. W. B. Kibble, *Mutual Refraction of Electrons and Photons*, Physical Review **150** (1966), no. 4, 1060–1069.
- [LHS⁺99] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox, *Femtosecond Charge Transport in Polar Semiconductors*, Physical Review Letters **82** (1999), no. 25, 5140–5143.
- [LHSN99] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, and M. C. Nuss, *Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: Experiment and theory*, Appl. Phys. Lett. **74** (1999), no. 11, 1516–1518.
- [LJR] T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, *Springer Series of Ultrafast Phenomena XII*, vol. XII, Springer.
- [LJR00] T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, *Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air*, Applied Physics Letters **77** (2000), no. 3.
- [LLK⁺96] C. H. Lai, R. Liou, T. C. Katsouleas, P. Muggli, R. Brogle, C. Joshi, and W. B. Mori, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 4764.
- [Nol93] W. Nolting, *Elektrodynamik*, Grundkurs: Theoretische Physik, vol. 3, Verlag Zimmermann-Neufang, 1993.
- [NWH96] Ajay Nahata, Aniruddha S. Weling, and Tony F. Heinz, *A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling*, Appl. Phys. Lett. **69** (1996), no. 16, 2321–2323.
- [Oth98] Andreas Othonos, *Probing ultrafast carrier and phonon dynamics in semiconductors*, Journal of Applied Physics **83** (1998), no. 4, 1789–1830.
- [Pal] Edward D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*.
- [PMW98] Sang-Gyu Park, M. R. Melloch, and A. M. Weiner, *Comparison of terahertz waveforms measured by electro-optic and photoconductive sampling*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998), no. 22, 3184–3186.
- [PR97] S. S. Prabhu and S. E. Ralph, *Carrier dynamics of low-temperature-grown GaAs observed via THz spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **70** (1997), no. 18, 2419–2421.
- [SAN88] P. R. Smith, D. H. Auston, and M. C. Nuss, *Subpicosecond photoconducting dipole antennas*, IEEE J. Quantum Electron. **24** (1988), 255–260.

- [Sch96] Michael Schall, *Aufbau eines Terahertz-Spektrometers und Bestimmung optischer Eigenschaften von Materialien im Frequenzbereich zwischen 100 GHz und 1,5 THz*, Master's thesis, Albert-Ludwigs-Universität, Freiburg im Breisgau, Mai 1996.
- [SG93] Peter N. Saeta and Benjamin I. Greene, *Short terahertz pulses from semiconductor surfaces: The importance of bulk difference-frequency mixing*, Appl. Phys. Lett. **63** (1993), no. 25, 3482–3484.
- [She] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*.
- [SHK] M. Schall, H. Helm, and S. R. Keiding, *Far infrared properties of electro-optic crystals measured by THz time-domain spectroscopy*, zur Veröffentlichung eingereicht.
- [SJ00] Michael Schall and Peter Uhd Jepsen, *Photoexcited GaAs surfaces studied by transient terahertz time-domain spectroscopy*, Optics Letters **25** (2000), no. 1, 13–15.
- [VRW94] Kai Victor, Hartmut G. Roskos, and Christian Waschke, *Efficiency of submillimeter-wave generation and amplification by coherent wave-packet oscillations in semiconductor structures*, Journal of the Optical Society of America B **11** (1994), no. 2, 2470.
- [Win99] Carsten Winnewisser, *Elektrooptische Detektion von ultrakurzen elektromagnetischen Pulsen*, Ph.D. thesis, Albert-Ludwig-Universität Freiburg, März 1999.
- [WJS⁺97] C. Winnewisser, P. Uhd. Jepsen, M. Schall, V. Schyja, and H. Helm, *Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃, LiNbO₃ and ZnTe*, Appl. Phys. Lett. **70** (1997), no. 23, 3069–3071.
- [WZ96] Q. Wu and X.-C. Zhang, *Ultrafast electro-optic field sensors*, Appl. Phys. Lett. **68** (1996), no. 12, 1604–1606.
- [XZA92] L. Xu, X.-C. Zhang, and D. H. Auston, *Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials*, Appl. Phys. Lett. **61** (1992), no. 15, 1784–1786.
- [Yar89] Amnon Yariv, *Quantum Electronics*, vol. 3, John Wiley, 1989.
- [YRS71] K. H. Yang, P. L. Richards, and Y. R. Shen, Appl. Phys. Lett. **19** (1971), 320.
- [ZDH⁺90] X.-C. Zhang, J. T. Darrow, B. B. Hu, D. H. Auston, M. T. Schmidt, P. Tharp, and E. S. Yang, *Optically induced electromagnetic radiation from semiconductor surfaces*, Appl. Phys. Lett. **56** (1990), no. 22, 2228–2230.
- [ZHDA90] X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow, and D. H. Auston, *Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor surfaces*, Appl. Phys. Lett. **56** (1990), no. 11, 1011–1013.