

Freie Universität



Berlin

Second Harmonic Generation mittels
Rasternahfeldmikroskopie:
Aufbau und erste Messungen

Im Fachbereich Physik
der Freien Universität Berlin
eingereichte Dissertation

von
Georgios Ctistis
aus Berlin
Mai 2006

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	5
2.1 Wechselwirkung von Licht mit Materie	5
2.1.1 Lineare und Magnetooptik	6
2.1.2 Nichtlineare optische Effekte	11
2.1.3 Explizite Form des Suszeptibilitätstensors	18
2.2 Lichtausbreitung in Glasfasern	22
2.2.1 Lichtpropagation und Modenbedingung	22
2.2.2 Pulse, Dispersion und Nichtlinearitäten	25
2.3 Grundlagen der Mikroskopie	31
2.3.1 Klassische Mikroskopie und Beugungslimit	31
2.3.2 Nahfeldmikroskopie	34
3 Experimentelles	41
3.1 Vergleich der Messgeometrien	41
3.2 Das Rasternahfeldmikroskop	44
3.2.1 Abstandsregelung	45
3.2.2 Optischer Teil des Rasternahfeldmikroskops	47
3.3 Nahfeldsonden	50
3.3.1 Erzeugung einer Faserspitze	50
3.3.2 Erzeugung der sub- λ Apertur	53
3.4 Integration des SNOMs in das fs-Lasersystem	54
3.4.1 Das fs-Lasersystem	54
3.4.2 Aufbau der Pulskompression	57
3.4.3 Prismenkompressor und Gesamtaufbau	60
3.4.4 Erste Testmessungen	63

4	Polarisationsuntersuchungen des Nahfeldes	67
4.1	Aufbau der Apparatur	68
4.2	Abstandsabhängigkeit hinter einer Apertur	70
4.3	Kartierung der Polarisation	73
4.4	Zusammenfassung	82
5	Pulspropagation in Glasfasern	85
5.1	Eingangsüberlegungen	86
5.2	Pulsverbreiterung durch die Optik	88
5.3	Verbreiterung in der Glasfaser	89
5.4	Einfluss der Kompressionsstrecke	95
5.5	Zusammenfassung	97
6	SHG im Nahfeld	99
6.1	Nichtlinearitäten einer Glasfaser	99
6.2	Vergleich der Betriebsmodi	101
6.2.1	Unbedampfte Faser	101
6.2.2	Bedampfte Faser	106
6.2.3	Vergleich von unterschiedlichen Bedampfungsmaterialien	108
6.3	SHG-Messungen an Metallfilmen im Nahfeld	110
6.3.1	Probenherstellung und Signalsoptimierung	110
6.3.2	Dünne Silberfilme	111
6.3.3	Dünne Kobaltfilme	113
6.4	Zusammenfassung	117
7	Zusammenfassung und Ausblick	119
	Anhang	123
A	Linearer und nichtlinearer Brechungsindex	123
B	Herleitung der nichtlinearen Einhüllenden-Gleichung	126
C	Herleitung der Pulsverbreiterung über den Variationsansatz	129

Abbildungsverzeichnis	133
Literaturverzeichnis	137
Danksagung	143
Vorträge, Poster und Veröffentlichungen	145
Kurzfassung	147
Lebenslauf	149

Kapitel 1

Einleitung

Die Messung nichtlinearer optischer Effekte, speziell die Erzeugung und Detektion der zweiten Harmonischen, hat sich seit ihrer erstmaligen experimentellen Beobachtung im Jahre 1961 [1] und der darauf folgenden theoretischen Beschreibung [2-4], zu einem Standardwerkzeug der Materialcharakterisierung entwickelt. Dabei kommt der hohen Grenz- und Oberflächensensitivität bei der Messung besondere Bedeutung zu [5-8], da sich damit elektronische [9, 10] und magnetische [11-19] Eigenschaften dünner Filme untersuchen lassen. Heutzutage liegt ein besonderes Augenmerk auf Prozessdynamiken [13, 20-22], die mit Hilfe von ultrakurzen Pulsen gemessen werden. Eine direkte Messung elektronischer und magnetischer Eigenschaften von Nanostrukturen – Objekte, deren Abmessungen kleiner als die Wellenlänge ist – entzieht sich jedoch der Methode, da sie über den beleuchteten Bereich der Probe integriert. Selbst in SH-Mikroskopieaufbauten führt die Beugungsbegrenzung zu einer ungenügenden Auflösung.

Erst mit der, Anfang der 1980er Jahre entwickelten, Rastersondentechnik [23-25] konnte diese Limitierung umgangen werden. Die Möglichkeit mit Hilfe der Rastertunnelmikroskopie Oberflächen in atomarer Auflösung abzubilden, ließ diese Messmethode schnell zu einem Standard in der Oberflächencharakterisierung werden. Das optische Beugungslimit umgeht man mit Hilfe der Messung des optischen Nahfeldes im Rasternahfeldmikroskop (*SNOM*). Die dabei erzielte Auflösung hängt nicht mehr von der eingestrahnten Wellenlänge ab, so dass Strukturen von unter 50nm aufgelöst werden können [26]. Damit wurde es ermöglicht, Spektroskopie an Nanostrukturen ebenso durchzuführen [27], wie magnetooptische Eigenschaften dünner Filme zu untersuchen [28-30].

Ein Zusammenführen beider Methoden liefert also eine Möglichkeit, die nichtlinearen Oberflächeneffekte mit der hohen Ortsauflösung des *SNOMs* zu kombinieren und wird deshalb *SH-SNOM* genannt [31]. Erste experimentelle Erfolge wurden von Smolyaninov *et al.* [32, 33] Ende

der 1990er Jahre berichtet. Die Mehrzahl der darauf folgenden Untersuchungen beschäftigte sich mit der Erzeugung der zweiten Harmonischen im Nahfeld an Nanostrukturen [34-36] oder rauen Metalloberflächen [32]. Es wurden bisher jedoch nur wenige Messungen zur Untersuchung magnetischer Eigenschaften im Nahfeld unternommen [37-38], die das prinzipielle Potenzial des *SH-SNOMs* aufzeigten.

Gleichzeitig offenbarten diese Messungen auch die Schwächen der Methode, die in diesem Fall auf die verwendeten Messgeometrien zurückzuführen ist – einen Vergleich der Betriebsmodi findet man in Kap. 3.1. Bei Wegner *et al.* [38] fand die Messung im sogenannten *collection mode* mit einer unbedampften Faser statt. Die Autoren erhielten zwar einen magnetischen Kontrast, doch die Auflösung entsprach maximal $\lambda/2$. Dickson *et al.* [37] führten ihr Experiment im sogenannten aperturlosen Modus durch. Da Probe und Messspitze hierbei mit dem fs-Laser beleuchtet werden, treten mehrere sich überlagernde Effekte (Wechselwirkung Probe-Spitze, Licht-Probe und Licht-Spitze) in Erscheinung; sie erzeugen das Gesamtsignal und eine Interpretation der Daten ist äußerst schwierig, wenn nicht gar aussichtslos.

Das ehrgeizige Ziel der hier vorliegenden Arbeit war, die Unzulänglichkeiten in den oben genannten *SH-SNOM*-Messungen zu eliminieren, so dass am Ende eine Auflösung im Bereich typischer Werte des *SNOMs* (ca. 100-200 nm) mit einer eindeutigen Identifikation des magnetooptischen SH-Signals von dünnen magnetischen Schichten erreicht wird.

Die dazu gewählte Geometrie ist der *illumination mode*. Hierbei wird der Lichtpuls durch die Faser zur Probenoberfläche geführt, so dass diese nur lokal beleuchtet wird. Durch den sich so ergebenden senkrechten Lichteinfall, wird die Möglichkeit zur Messung der einzelnen Elemente des nichtlinearen Suszeptibilitätstensors, die für ein SHG- und MSHG-Signal verantwortlich sind, zwar eingeschränkt, doch man gewinnt die Möglichkeit, die Herkunft des nichtlinearen Signals eindeutig zu bestimmen.

Die aus dem Aufbau folgenden experimentatorischen Schwierigkeiten sind vielfältig und müssen zur Etablierung des Messprinzips gelöst werden: Zum einen gilt es die Dispersion der fs-Pulse in der Faser zu kompensieren, wobei nicht nur die Gruppengeschwindigkeitsdispersion eine Rolle spielen wird, sondern auch nichtlineare Effekte in der Faser, die durch die hohen Pulsennergien hervorgerufen werden. Dabei ist es wünschenswert, möglichst kurze Pulse auf die Oberfläche treffen zu lassen, da dadurch die Intensität der Pulse ausreichend hoch ist, um die zweite Harmonische anzuregen. Zum anderen darf die eingestrahlte Laserleistung aber nicht zu hoch werden, da sonst die Bedampfung der Faser – und damit auch die Apertur – zerstört werden. Eine Balance beider Parameter ist also für die Messung essentiell, jedoch finden sich in der

Literatur keine Messungen, die diese Effekte eingehender analysieren. Ein weiterer wichtiger Punkt beinhaltet die Einkopplung des Lichtes in die Faser. Ist die Einkopplung nicht perfekt, ist eine Auskopplung der Intensität an der Bedampfung zu erwarten. Zudem ist die Polarisation des Lichtes, die zur Messung der magnetooptischen Effekte entscheidend ist, in der Glasfaser starken Änderungen durch Spannungsdoppelbrechung unterworfen, die bei unzureichender Einkopplung noch verstärkt werden. Schließlich muss dann auch noch überprüft werden, ob die Spitze selbst ein SH-Signal generiert oder ob das erzeugte Signal der zweiten Harmonischen eindeutig der Probenoberfläche zugeordnet werden kann.

In der vorliegenden Arbeit wurden die oben genannten Schwierigkeiten behoben, und es konnte gezeigt werden, dass eine Messung dünner Metallschichten im *illumination mode* die gleiche Effizienz der SH-Erzeugung erreicht, wie bei Messungen im Fernfeld, ohne dabei die Ortsauflösung zu verlieren.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: In Kapitel 2 wird auf die theoretischen Grundlagen der linearen und nichtlinearen Wechselwirkung von Licht mit Materie, mit dem Spezialfall der Pulsausbreitung in Glasfasern eingegangen sowie auf die nahfeldmikroskopischen Grundlagen.

Im darauf folgenden Kapitel (Kap. 3) wird die experimentelle Realisierung des *SH-SNOMs* abgehandelt. Dazu werden die notwendigen Aufbauten, die eine Integration des *SNOMs* in das fs-Lasersystem verlangte, detailliert beschrieben.

Es schließt sich die Darstellung der experimentellen Ergebnisse an. Zuerst wird der Frage nach der Polarisation im Nahfeld mit Hilfe eines Modellexperimentes nachgegangen (Kap. 4), um zu klären, inwieweit das Nahfeld hinter einer Glasfaserspitze polarisiert ist. Es folgt die Darstellung der Experimente zur Pulsausbreitung in der Glasfaser (Kap. 5). Hier wird gezeigt, welche Wechselwirkungen in der Glasfaser stattfinden und wie die Verbreiterung in Abhängigkeit der Eingangsleistung und Faserlänge kompensiert werden muss.

Abschließend werden die Messungen im Nahfeld dargelegt (Kap. 6). Dabei werden die nichtlinearen Effekte in der Glasfaser und der Glasfaserspitze ebenso untersucht (Kap. 6.1 und 6.2), wie auch der Einfluss des Bedampfungsmaterials (Kap. 6.2.3) auf die SH-Erzeugung. Messungen an dünnen Silber- (Kap. 6.3.2) und Kobaltschichten (Kap. 6.3.3), deren SHG eindeutig der Probe zugeordnet werden kann, komplettieren die Untersuchungen.

Schließlich werden die gewonnenen Resultate noch einmal zusammengefasst (Kap. 7).

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die theoretischen Grundlagen, die für ein Verständnis der in dieser Arbeit behandelten Themengebiete notwendig sind, erarbeitet werden. Es kann jedoch kein Anspruch auf Vollständigkeit gestellt werden, da dies den Rahmen der Arbeit sprengen würde. Zunächst wird sich der Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie (Kap. 2.1) gewidmet, wobei der Schwerpunkt auf den magnetooptischen Effekten einerseits und der nichtlinearen Wechselwirkung zwischen Licht und Materie andererseits liegen wird. In diesem Zusammenhang wird speziell noch auf die Lichtausbreitung in Glasfasern eingegangen werden (Kap. 2.2), ehe zum Abschluss die Beschreibung der Mikroskopie und insbesondere der Nahfeldmikroskopie (Kap. 2.3) erfolgt.

2.1 Wechselwirkung von Licht mit Materie

Die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie wird mit Hilfe der Maxwell-Gleichungen [39] beschrieben (Gl. 2.1).

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\
 \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} & \nabla \times \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{j}
 \end{aligned}
 \tag{Gl. 2.1}$$

Dabei stellen \mathbf{E} und \mathbf{B} das elektrische bzw. magnetische Feld, \mathbf{D} und \mathbf{H} die dielektrische Verschiebung bzw. die magnetische Feldstärke dar, \mathbf{j} und ρ geben die Stromstärke und die elektrische Ladung an. Die Größen sind nun untereinander über die sog. Materialgleichungen [40, 41] verknüpft, wobei die Materialgröße der elektrischen Suszeptibilität χ_e , die sich im späteren Verlauf als besonders wichtig erweisen wird, in Erscheinung tritt.

Die Maxwell-Gleichungen lassen sich nun in Wellengleichungen für das elektrische und magnetische Feld überführen [40, 41]; die beobachtbaren Wechselwirkungen zwischen dem Licht und der Materie treten dann als Randwertbedingungen, die zur Lösung der Wellengleichungen dienen, auf.

2.1.1 Lineare und Magnetooptik

Bei der Einstrahlung von Licht auf Materie treten im Allgemeinen Transmission, Reflexion und Absorption auf. Zur ihrer Beschreibung führt man einen komplexen Brechungsindex ein:

$$\tilde{n}^2 = (n - i\kappa)^2 = \mu\tilde{\epsilon} \quad (\text{Gl. 2.2})$$

Dabei steckt die Information des Materials in dem komplexen dielektrischen Tensor $\tilde{\epsilon}$, der die Form

$$\tilde{\epsilon} = 1 + \chi_e - \frac{i\sigma}{\epsilon_0\omega} \quad (\text{Gl. 2.3})$$

mit σ der elektrischen Leitfähigkeit, annimmt. Zur Beschreibung des Verhaltens der Feldkomponenten an der Grenzfläche bedient man sich der Fresnel-Gleichungen:

$$\begin{aligned} t_p &= \frac{2 \cdot n_i \cdot \cos\vartheta_i}{n_t \cdot \cos\vartheta_i + n_i \cdot \cos\vartheta_t} & r_p &= \frac{n_t \cdot \cos\vartheta_i - n_i \cdot \cos\vartheta_t}{n_t \cdot \cos\vartheta_i + n_i \cdot \cos\vartheta_t} \\ t_s &= \frac{2 \cdot n_i \cdot \cos\vartheta_i}{n_i \cdot \cos\vartheta_i + n_t \cdot \cos\vartheta_t} & r_s &= \frac{n_i \cdot \cos\vartheta_i - n_t \cdot \cos\vartheta_t}{n_i \cdot \cos\vartheta_i + n_t \cdot \cos\vartheta_t} \end{aligned} \quad (\text{Gl. 2.4})$$

die die Transmission und Reflexion von polarisiertem Licht (s und p stehen für senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene polarisiert (s. Abb. 2.1)) mit den Materialkonstanten verknüpfen.

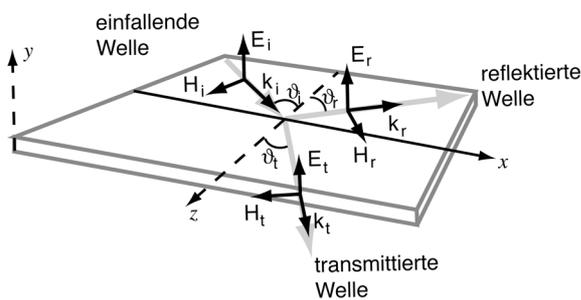


Abbildung 2.1: Zur Erklärung der einzelnen Größen in den Fresnel-Formeln (Gl. 2.4). Die Indizes stehen für einfallend (i), reflektiert (r) und transmittiert (t). \mathbf{k} ist der Wellenvektor in Ausbreitungsrichtung.

Eine Besonderheit tritt nun auf, wenn man von einem optisch dichteren Medium in ein optisch dünneres tritt, wenn also $n_i > n_t$ – wie es für den Übergang Glas-Luft gilt – ist. Aus Gleichung 2.4 folgt, dass unter einem bestimmten Winkel ϑ_i die Transmissionskoeffizienten verschwinden, das Licht also totalreflektiert wird. Man erhält dabei eine sogenannte quergedämpfte (oder auch evaneszente) Welle. Aus Stetigkeitsüberlegungen für die

einzelnen Felder ergibt sich jedoch ein messbarer Feldbeitrag in der xy -Richtung des optisch

dünnere Mediums. Die messbare Feldstärke fällt dabei exponentiell mit dem Abstand von der Grenzfläche ab (s. Abb. 2.2(a)). Die Welle propagiert also nicht in das zweite Medium, sondern, aus Energieüberlegungen folgernd, entlang der Grenzfläche. Das evaneszente Feld lässt sich

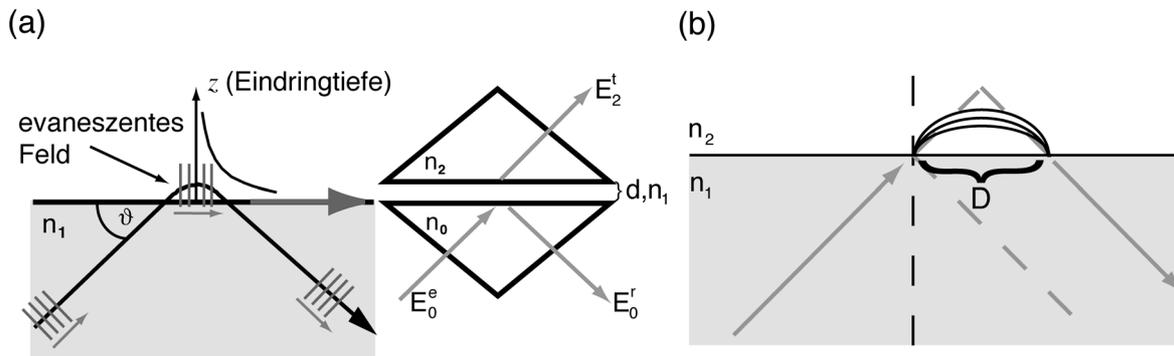


Abbildung 2.2: (a) Links: Darstellung des Strahlverlaufs bei der Totalreflexion. Es entsteht ein evaneszentes Wellenfeld, das sich parallel zur Oberfläche ausbreitet und senkrecht dazu exponentiell abfällt. Rechts: Frustrierte Totalreflexion, auch optisches Tunneln genannt. n gibt den Brechungsindex der Materialien an und d ist die Größe des Luftspaltes zwischen den Prismen. (b) Parallelversatz eines Lichtstrahles bei der Totalreflexion: Goos-Hänchen-Shift (mit D gekennzeichnet).

unter Zuhilfenahme eines zweiten Materials (s. Abb. 2.2(a), rechts) in eine propagierende Welle umwandeln. Dieser Effekt wird als frustrierte Totalreflexion bezeichnet und wurde 1863 von Quincke [42] experimentell gezeigt.

Ein zweites Merkmal der Totalreflexion ist, dass sich bei der Berechnung des Energietransportes der Beitrag senkrecht zur Oberfläche zeitlich herausmittelt, obwohl selbst nicht Null, während er parallel dazu nicht verschwindet. Die Folge ist ein messbarer Strahlversatz [43], der in Abb. 2.2(b) dargestellt ist und über

$$D = \frac{b \cdot n_2 \cdot \lambda_0}{\sqrt{n_1^2 \cdot \sin^2 \vartheta - n_2^2}} \quad (\text{Gl. 2.5})$$

bestimmt werden kann. Des Weiteren tritt bei Totalreflexion ein Phasenunterschied zwischen den Reflexionskoeffizienten auf, der z.B. linear polarisiertes Licht in elliptisches umwandelt. Betrachtet man nun die Absorption an nichtmetallischen Kristallen, so wird Licht verschiedener Polarisation unterschiedlich absorbiert. Der Grund dieses Dichroismus ist eine Anisotropie des dielektrischen Tensors. Ein anderer Effekt, der in den anisotropen Kristallen auftritt, ist die Doppelbrechung, bei der das Licht entlang verschiedener Kristallorientierungen unterschiedlich gebrochen wird. Eine ausführliche theoretische Beschreibung dieser Effekte findet man in [40] und soll hier nicht weiter betrachtet werden. Es soll nur erwähnt werden, dass die Anisotropie des dielektrischen Tensors dazu führt, dass beim Durchgang von linear polarisiertem Licht durch das optisch aktive Material eine Drehung der Polarisation stattfindet; im Allgemeinen

entsteht elliptisch polarisiertes Licht.

Diese Anisotropie lässt sich aber auch in das Material induzieren, in dem man es z.B. einem externen Magnetfeld aussetzt. Die nun beobachtbaren magnetooptischen Effekte, werden, je nachdem, ob sie in Transmission oder Reflexion stattfinden, Faraday¹- und Kerr-Effekt genannt [44, 45]. Abbildung 2.3(a) zeigt diese Effekte schematisch. Die Ursache für das Auftreten des ma-

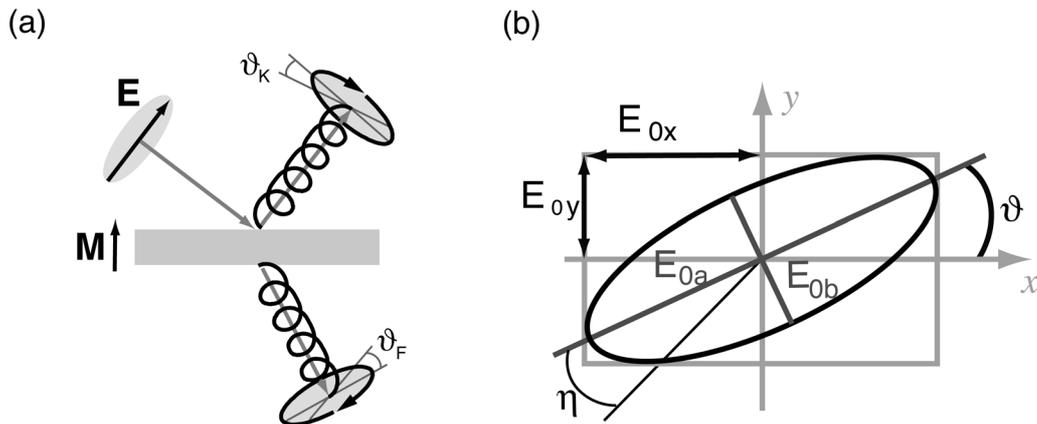


Abbildung 2.3: (a) Faraday- und polarer Kerr-Effekt. Der Winkel ϑ bezeichnet die Drehung der Polarisation und wird Faraday- bzw. Kerr-Rotation genannt. (b) Nähere Betrachtung der Polarisationsellipse. ϑ und η geben die Rotation bzw. die Elliptizität wieder.

magnetooptischen Faraday-Effektes, ist ein Unterschied des Brechungsindex für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht – lineare Polarisation kann man sich als Überlagerung von rechts- und linkszirkularer Polarisation vorstellen. Der resultierende Drehwinkel ist in erster Näherung linear vom Magnetfeld und von der Dicke des durchstrahlten Materials abhängig, so dass sich die Faraday-Rotation schreiben lässt als:

$$\vartheta_F = V \cdot l \cdot B \quad , \quad (\text{Gl. 2.6})$$

wobei V die sog. Verdet-Konstante, B das angelegte äußere Magnetfeld in z -Richtung und l die Länge des Materials ist.

Es existieren zwei Ansätze, ein klassischer und ein rein quantenmechanischer, die das Auftreten der magnetooptischen Effekte erklären. Da beide Ansätze in der Literatur für sich stehen, werden sie im Folgenden kurz vorgestellt.

Klassisch gelingt mit Hilfe der Elektrodynamik eine makroskopische Erklärung der Anisotropie [46, 47]. Dabei geht man von der Lorentz-Theorie [48] gebundener Elektronen in einem Mag-

1. Nur wenn \mathbf{k} und \mathbf{M} in einer Ebene liegen. Stehen sie hingegen senkrecht zueinander, handelt es sich um den Voigt-Effekt.

netfeld aus, in der sich die Bewegungsgleichung schreiben lässt als:

$$\frac{\partial^2 \mathbf{r}}{\partial t^2} + \gamma \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} + \omega_0^2 \mathbf{r} = \frac{e}{m} \mathbf{E}_0 e^{i(\omega t - kz)} + \omega_c \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t} \times \mathbf{e}_z . \quad (\text{Gl. 2.7})$$

Dabei ist m die Elektronenmasse, γ die Dämpfung, $\omega_0^2 = \frac{f}{m}$ die ungestörte Resonanzfrequenz und $\omega_c = \frac{eB}{m}$ die Zyklotronresonanz. In Gl. 2.7 wurde weiterhin o.B.d.A. das äußere Magnetfeld in z -Richtung wirkend angenommen. In Komponenten erhält man so ein System gekoppelter Differentialgleichungen, die eine ungestörte Bewegung in z -Richtung voraussagen. Außerdem zeigen sie eine Bewegungsänderung in der x - und y -Richtung, hervorgerufen durch die Lorentz-Kraft.

$$\begin{aligned} m \cdot \ddot{x} + \gamma \cdot \dot{x} + \omega_0^2 x &= \frac{e}{m} E_x e^{i\omega t} + \omega_0 \dot{y} \\ m \cdot \ddot{y} + \gamma \cdot \dot{y} + \omega_0^2 y &= \frac{e}{m} E_y e^{i\omega t} - \omega_0 \dot{x} \\ m \cdot \ddot{z} + \gamma \cdot \dot{z} + \omega_0^2 z &= 0 \end{aligned} \quad (\text{Gl. 2.8})$$

Wechselt man nun in die oben erwähnte zirkulare Basis, so lässt sich Gl. 2.8 lösen und liefert einen Ausdruck für die komplexe dielektrische Funktion der Form:

$$\tilde{\epsilon}_{\pm}(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 \pm \omega \omega_c + i\gamma \omega} . \quad (\text{Gl. 2.9})$$

Geht man wieder in die lineare Darstellung zurück, transformiert man also $\tilde{\epsilon}_{\pm}$ zu $\tilde{\epsilon}$, so erhält der dielektrische Tensor die Form [47]:

$$\tilde{\epsilon} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \tilde{\epsilon}_+ + \tilde{\epsilon}_- & -i(\tilde{\epsilon}_+ - \tilde{\epsilon}_-) \\ i(\tilde{\epsilon}_+ - \tilde{\epsilon}_-) & \tilde{\epsilon}_+ + \tilde{\epsilon}_- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} \end{bmatrix} . \quad (\text{Gl. 2.10})$$

Damit kann man die magnetooptischen Effekte als magnetfeldinduzierte Anisotropie des Dielektrizitätstensors auffassen. In Verbindung mit Gl. 2.2 erhält man unterschiedliche Brechungsindizes für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht. Für den komplexen Faraday-Winkel erhält man somit:

$$\tilde{\vartheta}_F = \frac{\pi d}{\lambda_0} (\tilde{n}_+ - \tilde{n}_-) . \quad (\text{Gl. 2.11})$$

Weiterhin gilt:

$$\tilde{n}_+^2 - \tilde{n}_-^2 = \tilde{\epsilon}_+ - \tilde{\epsilon}_- = -\frac{2}{\epsilon_0 \omega} \tilde{\alpha}_{xy} , \quad (\text{Gl. 2.12})$$

was zu $\tilde{\vartheta}_F = -\frac{d}{2\epsilon_0 c} \cdot \frac{\tilde{\alpha}_{xy}}{\tilde{n}}$ führt. Mit der Definition des komplexen Winkels $\tilde{\vartheta}_F = \vartheta_F - i\eta_F$, erhält

man die reellen Messgrößen der Faraday-Rotation und -Elliptizität gemäß:

$$\begin{aligned}\vartheta_F &= -\frac{d}{2\varepsilon_0 c} \cdot \frac{n\sigma_{1xy} - \kappa\sigma_{2xy}}{n^2 + \kappa^2} \\ \eta_F &= \frac{d}{2\varepsilon_0 c} \cdot \frac{\kappa\sigma_{1xy} + n\sigma_{2xy}}{n^2 + \kappa^2}.\end{aligned}\tag{Gl. 2.13}$$

Diese sind mit den Nichtdiagonalelementen des Leitfähigkeitstensors verknüpft. Aus Symmetrieüberlegungen [46, 49] schließt man, dass die Diagonalelemente des Tensors nur gerade Potenzen und die Nichtdiagonalelemente nur ungerade Potenzen des Magnetfeldes enthalten, was die Relation in Gl. 2.6 bestätigt.

Die mikroskopische Erklärung wird von der Quantentheorie geleistet. Ihre Ursache liegt bei nichtmagnetischen Materialien in der Zeeman-Aufspaltung von Niveaus im Magnetfeld. Bei magnetischen Materialien liegt die Ursache in der starken Kopplung zwischen dem Spin- und Bahnmoment der Elektronen. Betrachtet man den Fall, bei dem die Niveaus weit auseinander liegen, also den Bereich der Interbandübergänge, so erhält man als Hamilton-Operator den Ausdruck (vgl. [49]):

$$H(t) = \sum_i \frac{1}{2m} \left[\boldsymbol{\pi}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}_L(\mathbf{r}_i, t) \right]^2 + V(\mathbf{r}_i) + V_{eff}(\mathbf{r}_i), \tag{Gl. 2.14}$$

wobei $\boldsymbol{\pi}_i = \mathbf{p}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}_M(\mathbf{r}_i) + \frac{\hbar(g-1)}{4mc^2} [\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V]$ der kinetische Impulsoperator, V das Zentralpotential und \mathbf{A} das magnetische Vektorpotential sind.

Berechnet man in erster Ordnung Störungsrechnung die Übergangswahrscheinlichkeiten, so ergibt sich ein Unterschied zwischen rechtszirkular und linkszirkular polarisiertem Licht, aus dem der Zusammenhang mit den Leitfähigkeitstensen folgt:

$$\begin{aligned}\sigma_{1xx} &= \frac{\pi e^2}{\hbar \omega m^2 V} \sum_f \sum_i |\langle f | \pi_x | i \rangle|^2 [\delta(\omega_{fi} - \omega) + \delta(\omega_{fi} + \omega)] \\ \sigma_{2xy} &= \frac{\pi e^2}{4\hbar \omega m^2 V} \sum_f \sum_i (|\langle f | \pi_+ | i \rangle|^2 - |\langle f | \pi_- | i \rangle|^2) [\delta(\omega_{fi} - \omega) + \delta(\omega_{fi} + \omega)].\end{aligned}\tag{Gl. 2.15}$$

Mit Hilfe der Kramers-Kronig-Transformationen lassen sich dann die fehlenden Tensorelemente berechnen.

Möchte man die beobachteten Daten quantitativ richtig deuten, so muss man neben den Inter- auch die Intrabandübergänge berücksichtigen, da diese wie z.B. in Metallen sehr große Beiträge liefern können [49-52].

Es existiert ein weites Anwendungsfeld für die magnetooptischen Effekte. Der Faraday-Effekt

wird z.B. bei optischen Modulatoren eingesetzt, mit denen man störende Rückreflexionen in die benutzte Laserquelle unterbindet. Der Kerr-Effekt wird technisch zum Auslesen von Speicherinformationen auf magnetooptischen Speichermedien (MO-Disk) benutzt. In der Forschung werden magnetooptische Effekte eingesetzt, um Magnetisierungen und – mit Hilfe von Ultrakurzzeitpulsen – Magnetisierungsdynamiken zu ergründen. Auch lassen sich beim Schichtwachstum *in situ* Magnetisierungsuntersuchungen an dünnen Schichten durchführen und so die Natur der Probenmagnetisierung ergründen [53]. Dabei ist man nicht auf das sichtbare Spektrum beschränkt. Im Röntgenbereich wird diese Methode Magnetisch-zirkularer Röntgen-Dichroismus (*XMCD*) genannt. Auch im nichtlinearen Fall, also bei der Bestrahlung der Probe mit ultrakurzen Lichtpulsen findet man magnetooptische Effekte, die dann um ein vielfaches größer sind als im linearen Fall [19].

Auf diese und weitere nichtlineare Effekte, soll im nächsten Abschnitt eingegangen werden.

2.1.2 Nichtlineare optische Effekte

Die bisher besprochenen Effekte waren durch eine lineare elektrische Suszeptibilität des Materials gekennzeichnet. Steigt die Intensität des auftreffenden Lichtes über ein gewisses Maß hinaus an, so kann die Wechselwirkung nicht mehr über einen linearen Zusammenhang erklärt werden. Vielmehr machen sich nichtlineare Effekte immer stärker bemerkbar. Auf diese neu auftretenden Effekte soll im Folgenden eingegangen werden, da beim Experimentieren mit *fs*-Laserpulsen diese explizit angeregt und untersucht werden. Die Darstellung erfolgt in Anlehnung an die von Boyd [54], so dass der interessierte Leser für ein vertieftes Studium an diese verwiesen wird.

Die Erweiterung, die man in der nichtlinearen Optik im Vergleich zur Behandlung linearer Phänomene durchführt, betrifft den Suszeptibilitätstensor. Man erhält für ihn – und damit auch für die Polarisation – die Beziehung:

$$\chi(E) = \chi^{(1)} + \chi^{(2)}E + \chi^{(3)}EE + \dots \quad (\text{Gl. 2.16})$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0\chi^{(1)}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \varepsilon_0\chi^{(2)}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \varepsilon_0\chi^{(3)}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \dots$$

Der erste Term ($\propto \chi^{(1)}$) stellt die bekannte lineare Polarisation dar. Die restlichen Summanden werden als nichtlineare Polarisation $\mathbf{P}^{NL}(\mathbf{r}, t)$ zusammengefasst. $\chi^{(m)}$ mit ($m \geq 2$) bedeutet dabei die nichtlineare Suszeptibilität m -ter Ordnung. Da sie wie die lineare Suszeptibilität tensoriellen Charakter besitzt, wird das Auftreten nichtlinearer Effekte entscheidend von der Symmetrie des Materials beeinflusst.

Als einfaches und besonders wichtiges Beispiel im Hinblick auf die getätigten Experimente sei hier erwähnt, dass bei Inversionssymmetrie eines Materials die Suszeptibilitäten gerader (und insbesondere der zweiten) Ordnung „verboten“ sind. Nimmt man nämlich $P^{NL} = \chi^{(2)}EE$ und $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ an und unterzieht beide Größen einer Punktspiegelung, so ändert sich in beiden Gleichungen das Vorzeichen. Dies kann aber nur dann erfüllt werden, wenn $P^{NL} = 0$

$$-P^{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(-E(t))(-E(t)) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(E(t))(E(t)) = P^{NL} \quad (\text{Gl. 2.17})$$

und damit auch $\chi^{(2)} \equiv 0$, $\chi^{(2)}$ also identisch verschwindet.

Durch den Charakter der Nichtlinearität des Suszeptibilitätstensors werden Felder, im Gegensatz zum linearen Fall, unterschiedlicher Frequenzen miteinander wechselwirken. Betrachtet man ein solches Feld mit zwei Frequenzkomponenten

$$E(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{2}[(E(\mathbf{x}, \omega_1)e^{i\omega_1 t} + E(\mathbf{x}, \omega_2)e^{i\omega_2 t} + cc)], \quad (\text{Gl. 2.18})$$

so erhält man:

$$\begin{aligned} P^{(2)}(\mathbf{x}, t) &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E(\mathbf{x}, t) E(\mathbf{x}, t) \\ \text{SHG:} &= \frac{1}{2}[\mathbf{P}(\mathbf{x}, 2\omega_1) \cdot e^{i2\omega_1 t} + cc] \\ &+ \frac{1}{2}[\mathbf{P}(\mathbf{x}, 2\omega_2) \cdot e^{i2\omega_2 t} + cc] \\ \text{SHG:} & \\ \text{SFG:} &+ \frac{1}{2}[\mathbf{P}(\mathbf{x}, \omega_1 + \omega_2) \cdot e^{i2(\omega_1 + \omega_2)t} + cc] \\ \text{DFG:} &+ \frac{1}{2}[\mathbf{P}(\mathbf{x}, \omega_1 - \omega_2) \cdot e^{i2(\omega_1 - \omega_2)t} + cc] \\ \text{OR:} &+ \frac{1}{2}[\mathbf{P}(\mathbf{x}, 0) + cc] \quad , \end{aligned} \quad (\text{Gl. 2.19})$$

wenn man sich nur die nichtlineare Polarisation 2. Ordnung anschaut. Es werden also Polarisationsfelder bei verschiedenen Frequenzkomponenten erzeugt. Zum einen erhält man Summen- und Differenzfelderzeugung (SFG, DFG), zusätzlich dazu noch die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG); zum anderen aber auch ein statisches Gleichfeld, welches der optischen Gleichrichtung (OR) des Feldes entspricht. Damit nun diese Polarisationswellen an die elektromagnetische koppeln und als Quelle einer neuen Welle dienen können, müssen sie phasenangepasst zu dieser laufen. Als Phasen Anpassungsbedingung erhält man:

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 = 0 \quad , \quad (\text{Gl. 2.20})$$

was auch als Impulserhaltung im Photonenbild erklärt werden kann.

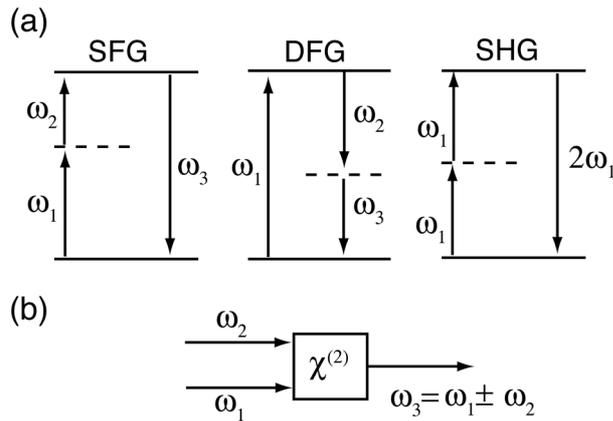


Abbildung 2.4: (a) Prozesse der Summen- (SFG) und Differenzfrequenz- (DFG) sowie der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) im Photonenbild mit Anfangs- und Endniveau.

(b) Schematische Darstellung der Wechselwirkung, die zur Erzeugung der zweiten Harmonischen führt.

Abbildung 2.4 zeigt die gerade beschriebenen Prozesse im Photonenbild. Wie für den eben erwähnten quadratischen nichtlinearen Fall, erhält man eine Vielzahl von Prozessen, wenn man höhere Nichtlinearitäten betrachtet. Für kubische Nichtlinearitäten erhält man dabei Prozesse wie die Erzeugung der dritten Harmonischen (THG), Selbstphasenmodulation (SPM) und optischen Kerr-Effekt sowie Vier-Wellen-Mischung (FWM) und andere Prozesse. Eine genauere Betrachtung ausgewählter nichtlinearer Prozesse, soll weiter unten geführt werden. Zuerst soll aber noch einmal auf die Entstehungsprozesse dieser Nichtlinearitäten eingegangen werden. Phänomenologisch geht man dabei von der Lorentz-Theorie gebundener Elektronen aus, die sich in einem anharmonischen Zentralpotential eines Atoms der Form $U \propto \frac{1}{2}\omega^2 x^2 + \frac{1}{3}\omega^3 x^3$ bewegen. Nimmt man weiterhin für das eingestrahlte Feld eine Kombination zweier Felder an (vgl. Gl. 2.18), so erhält man die Bewegungsgleichung eines getriebenen harmonischen Oszillators:

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} + \omega_0^2 x + ax^2 = -\lambda \cdot \frac{e}{m} E, \quad (\text{Gl. 2.21})$$

mit a der Anharmonizität und λ als Parameter², dessen Lösungen $x^{(2)}$ die oben gezeigten Effekte beschreiben.

Quantenmechanisch lassen sich die nichtlinearen Prozesse, wie in Abb. 2.5 gezeigt, als Multiphotonprozesse darstellen. Die Suszeptibilitäten werden nun störungstheoretisch über den Erwartungswert des Dipolmomentes berechnet:

$$\begin{aligned} \langle \hat{p} \rangle &= \langle \psi | \hat{p} | \psi \rangle \\ \Rightarrow \langle \hat{p}^{(1)} \rangle &= \langle \psi^{(0)} | \hat{p} | \psi^{(1)} \rangle + \langle \psi^{(1)} | \hat{p} | \psi^{(0)} \rangle \\ \langle \hat{p}^{(2)} \rangle &= \langle \psi^{(0)} | \hat{p} | \psi^{(2)} \rangle + \langle \psi^{(1)} | \hat{p} | \psi^{(1)} \rangle + \langle \psi^{(2)} | \hat{p} | \psi^{(0)} \rangle \end{aligned} \quad (\text{Gl. 2.22})$$

Aus diesen ergeben sich nun folgende Bestimmungsgleichungen für die lineare und quadratische Suszeptibilität³:

2. Zur Lösung sei hier auf [54] verwiesen.

3. Für die Durchführung der Rechnung sei der interessierte Leser auf die Literatur verwiesen [z.B. 54].

$$\begin{aligned}
\chi_{ij}^{(1)}(\omega_p) &= \frac{N}{\hbar} \sum_m \left(\frac{\mu_{gm}^i \mu_{mg}^j}{\omega_{mg} - \omega_p} + \frac{\mu_{gm}^j \mu_{mg}^i}{\omega_{mg}^* - \omega_p} \right) \\
\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_p + \omega_q, \omega_p, \omega_q) &= \frac{N}{\hbar} \wp_I \sum_{m,n} \frac{\mu_{gn}^i \mu_{nm}^j \mu_{mg}^k}{(\omega_{ng} - \omega_p - \omega_q)(\omega_{mg} - \omega_p)} \\
&\quad + \frac{\mu_{gn}^j \mu_{nm}^i \mu_{mg}^k}{(\omega_{mg} - \omega_p)(\omega_{ng}^* + \omega_q)} \\
&\quad + \frac{\mu_{gn}^j \mu_{nm}^k \mu_{mg}^i}{(\omega_{mg}^* + \omega_p + \omega_q)(\omega_{ng}^* + \omega_q)}
\end{aligned} \tag{Gl. 2.23}$$

wobei \wp_I der intrinsische Permutationsoperator ist, μ_{ab} das Übergangsdipolmoment zum jeweiligen Übergang und $\hbar\omega_{ab}$ die Energie des jeweiligen Überganges darstellt. Zum Verständnis der Prozesse, die in Gl. 2.23 beschrieben werden, sind in Abb. 2.5 die Energiediagramme mit den dazugehörigen Übergängen dargestellt.

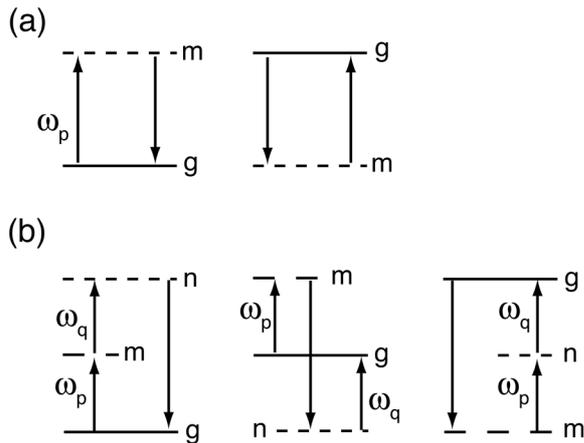


Abbildung 2.5: (a) Energiediagramme für den resonanten und nichtresonanten Übergang für $\chi_{ij}^{(1)}$. (b) Resonante Übergänge für den Fall der Summenfrequenzerzeugung ($\chi_{ijk}^{(2)}$).

Es soll noch erwähnt werden, dass es sich bei den hier dargestellten Übergängen nicht zwingend um atomare Übergänge handeln muss. Vielmehr findet eine resonante Erhöhung des SHG-Effektes statt, wenn reelle Zustände involviert sind.

Als nächstes soll nun ein genauer Einblick auf einige für diese Arbeit wichtige nichtlineare Prozesse gegeben werden. Dazu gehören für $\chi^{(2)}$ die Erzeugung der zweiten Harmonischen und für $\chi^{(3)}$ die Selbstphasenmodulation und der optische Kerr-Effekt.

Betrachten wir uns zunächst die Effekte, die durch die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung hervorgerufen werden. Die dielektrische Funktion in einem nichtlinearen Medium unter Abwesenheit der quadratischen Suszeptibilität ist gegeben als:

$$\epsilon_r = \epsilon_r^L + \epsilon_r^{NL} = 1 + \chi^{(1)} + \chi^{(3)} EE \tag{Gl. 2.24}$$

Berechnet man daraus den Brechungsindex über $n^2 = \epsilon_r$, so ergibt sich näherungsweise ein

intensitätsabhängiger Brechungsindex der Form [54]:

$$\begin{aligned} n &\cong \sqrt{\varepsilon_r^L} + \frac{\varepsilon_r^{NL}}{2\sqrt{\varepsilon_r^L}} = n_0 + \frac{\chi^{(3)} E^2}{2n_0} \\ &= n_0 + \frac{\chi^{(3)}}{cn_0^2 \varepsilon_0} I = n_0 + n_2 I \quad , \end{aligned} \quad (\text{Gl. 2.25})$$

wobei n_2 direkt ein Maß für die nichtlineare Suszeptibilität 3. Ordnung darstellt. Dieser nichtlineare Brechungsindex führt nun dazu, dass beim Durchgang eines Laserpulses durch eine Glasfaser, dieser, wie weiter unten besprochen werden wird, sich in der Zeit- und der Frequenzdomäne ändert. Ein weiterer Effekt dieses sogenannten optischen Kerr-Effektes ist, dass ein intensiver Strahl beim Durchgang durch das nichtlineare Medium eine Fokussierung erfährt. Dieser Effekt wird durch die Änderung der Phasengeschwindigkeit hervorgerufen; er bewirkt auch eine Änderung der Phase der einzelnen Frequenzkomponenten eines Lichtpulses. Diese Phasenänderung ist von der durchlaufenen Strecke im Material und auch von der Eingangintensität des Pulses, also dessen Flankensteilheit abhängig. Für die Selbstphasenmodulation ergibt sich ein Wert von:

$$\Delta\varphi = n_2 \cdot k_0 \cdot I \cdot d \quad . \quad (\text{Gl. 2.26})$$

Weiterführende Betrachtungen werden anhand der Pulsausbreitung in Glasfasern weiter unten vorgenommen.

Nun soll das Augenmerk ganz auf die Erzeugung der zweiten Harmonischen gerichtet werden. Nach der Entwicklung der ersten Laser [55, 56] Anfang der 1960er Jahre, gab es auch erste Abhandlungen zu den zu erwartenden nichtlinearen Prozessen [2, 3]. Seitdem hat sich die SH-Erzeugung als äußerst wichtiges experimentelles Mittel etabliert. Vor allem bei der Untersuchung von dünnen Schichten und Grenzflächen [5, 6, 57, 58] sowie magnetischen Materialien [11-14] verbessert sich die Sensitivität der Messung und man gewinnt somit auch neue Erkenntnisse über die Struktur der beobachteten Effekte.

Die Erzeugung ist jedoch an die Phasenbedingung (Gl. 2.20) geknüpft. Geht man wieder von dem einfallenden Feld $\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{2}[(E(x, \omega_1)e^{i\omega_1 t} + E(x, \omega_2)e^{i\omega_2 t} + cc)]$ aus, nimmt dann noch die Näherung der sich nur langsam ändernden Einhüllendenfunktion (*slowly varying amplitude approximation*), so erhält man die Wellengleichung in der Form:

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}_j}{\partial z^2} - \frac{\varepsilon^{(1)}(\omega_j)}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 \tilde{E}_j}{\partial t^2} = \frac{4\pi \partial^2 \tilde{P}_j}{c^2 \partial t^2} \quad . \quad (\text{Gl. 2.27})$$

Dabei schreibt sich die nichtlineare Polarisation als $\tilde{P}^{NL} = \tilde{P}_1(z, t) + \tilde{P}_2(z, t)$ mit den einzel-

nen Termen:

$$P_1 = 4 \cdot d \cdot A_2 \cdot A_1 \cdot e^{i(k_2 - k_1)z}$$

$$P_2 = 2 \cdot d \cdot A_1^2 \cdot e^{i2k_1z} \quad (\text{Gl. 2.28})$$

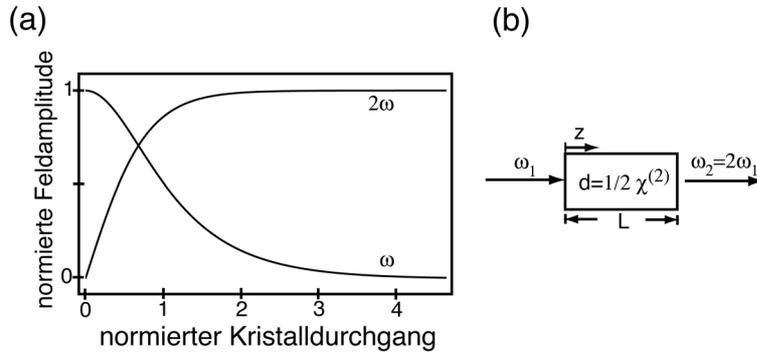


Abbildung 2.6: (a) Konversion der Fundamentalfrequenz in die zweite Harmonische für perfekte Phasenanpassung. (b) Geometrische Veranschaulichung der SHG beim Kristalldurchgang. L ist die Kristalllänge, d der reduzierte Suszeptibilitätstensor.

A ist die Amplitude des elektrischen Feldes und d stellt den reduzierten Suszeptibilitätstensor dar [54]. Setzt man Gl. 2.28 in Gl. 2.27 ein, so ergeben sich Differentialgleichungen für die Amplituden der Felder mit der Phasenbedingung $\Delta k = 2k_1 - k_2$. Rechnet man die zu erwartende Intensität jeder Welle aus $I_j = \frac{n_j c}{2\pi} |A_j|^2$,

so erhält man elliptische Funktionen für die Amplituden (vgl. [2]). Ihre graphische Lösung ist in Abb. 2.6(a) gezeigt. Man erkennt, dass mit wachsendem Kristalldurchgang das SH-Feld gegenüber dem fundamentalem Feld an Stärke gewinnt.

Viel wichtiger als die SH-Erzeugung im Volumen ist heutzutage jedoch die Generierung der zweiten Harmonischen an Grenz- und Oberflächen [5, 6], da ihr bei der Erforschung dünner Schichten und Multilagensysteme besondere Bedeutung zukommt. Die Größe des betrachteten Effektes lässt sich dabei mit dem des Volumens vergleichen, was oft die Zuordnung des entstandenen Lichtes erschwert, denn auch bei kubischen Materialien kann, wenn auch nur wenig, SH-Licht erzeugt werden. Dieses hat seinen Ursprung in den elektrischen Quadrupol- und magnetischen Dipolanteilen der nichtlinearen Polarisation des kubischen Kristalls, die sich folgendermaßen schreiben lässt:

$$P_i(2\omega) = \chi_{ijk}^d E_j(\omega) E_k(\omega) + \chi_{ijkl}^q E_j(\omega) \nabla_k E_l(\omega) \quad (\text{Gl. 2.29})$$

Hierbei gibt der erste Term den Dipol- und der zweite Term den quadrupolähnlichen Anteil an der Polarisation an. Der physikalische Ursprung dieser Ober- bzw. Grenzflächennichtlinearität liegt einerseits in der Unstetigkeit der senkrechten Komponente des auftreffenden elektrischen Feldes [4, 59].

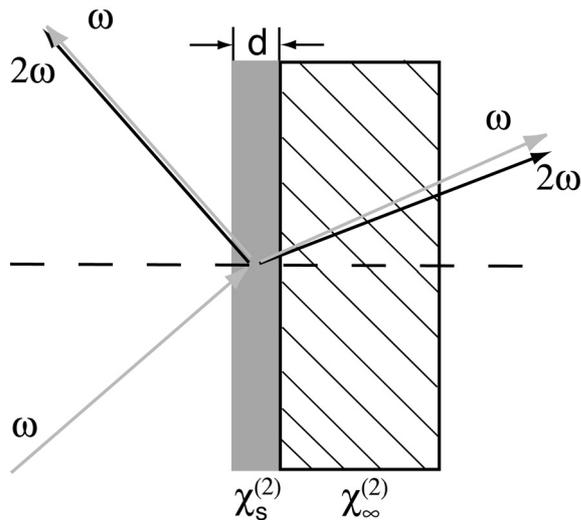


Abbildung 2.7: Erzeugung der zweiten Harmonischen an der Oberfläche eines Festkörpers. d ist dabei die Dicke der Oberfläche, an der die Symmetriebrechung stattfindet. ω ist das Feld bei der Grundwellenlänge, 2ω das bei der zweiten Harmonischen. Die Brechung erfolgt aufgrund unterschiedlicher Brechungsindizes unterschiedlich (vgl. [3]).

Diese Unstetigkeit hat einen dominierenden Einfluss bei Grenzflächen, die nicht vom Volumen zu unterscheiden sind, wie es bei Flüssigkeiten und Gasen der Fall ist. Andererseits findet an Grenzflächen eine strukturelle Änderung – eine sog. strukturelle Unstetigkeit – statt, was eine Symmetriebrechung im Vergleich zum Volumen zur Folge hat. Diese strukturelle Änderung vollzieht sich nicht abrupt im Festkörper, sondern in einem Bereich weniger Atomlagen Dicke, ist aber stets viel kleiner als die Wellenlänge des eingestrahlt Lichtes (vgl. Abb. 2.7). Die Antwort des Systems kann über eine Störungsrechnung bestimmt werden und damit auch die Größe und Richtungen der ausfallenden elektrischen

Feldstärken berechnet werden [3, 6]. Dabei ist noch zu beachten, welchen Ursprung das SH-Feld hat. Bei Metallen wurde von Rudnick und Stern [60] der Einfluss der Leitungselektronen, die einen sog. „nichtlinearen Strom“ an der Grenzfläche erzeugen, untersucht. Für die nichtlineare Polarisation ergibt sich [8]

$$P_{NL}(\mathbf{r}, 2\omega) = \alpha(\mathbf{r}, \omega)\mathbf{E} \times \mathbf{H} + \beta(\mathbf{r}, \omega)\mathbf{E} \cdot [\nabla \cdot \mathbf{E}]. \quad (\text{Gl. 2.30})$$

Bei Halbleitern dienen die freien Bindungen („dangling bonds“) als Quelle der Symmetriebrechung. Sind Atome oder Moleküle auf einer Oberfläche adsorbiert, so sind sie für die Entstehung eines SH-Feldes verantwortlich; es lassen sich sogar Submonolagen eines Adsorbats auf der Oberfläche nachweisen. Dabei spielt die Orientierung der Adsorbatmoleküle im Vergleich zur Polarisation des Lichtes eine große Rolle und man kann diese bestimmen [5, 57].

An der Ober- bzw. Grenzfläche eines Materials verschwindet die nichtlineare Suszeptibilität 2. Ordnung also nicht ($\chi^{(2)} \neq 0$). Eine gute Zusammenfassung der nichtverschwindenden Elemente des Suszeptibilitätstensors für verschiedene Symmetrieklassen findet man in [54].

Diese Grenzflächenempfindlichkeit kann man sich nun zunutze machen, um neben der Morphologie auch andere Eigenschaften von Oberflächen und dünnen Filmen zu charakterisieren, z.B. elektronische und magnetische Eigenschaften sowie deren Ursprung.

2.1.3 Explizite Form des Suszeptibilitätstensors

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, dass die Entstehung eines SH-Signals von der Symmetrie des Suszeptibilitätstensors abhängt, wird in diesem zuerst die allgemeine Form des Tensors für eine isotrope Oberfläche mit Magnetisierung und dann für den speziellen Fall senkrechten Einfalls, der auch beim *SNOM* benutzt wird, gegeben.

Allgemeine Form

Wie in Gl. 2.19 gezeigt, lässt sich die nichtlineare Polarisation 2. Ordnung schreiben als $P_i^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k$, wobei die Indizes über die kartesischen Koordinaten laufen. Die 27 Elemente des Tensors reduzieren sich auf 18, da die Felder E_j und E_k ununterscheidbar sind und damit $E_j E_k = E_k E_j$ gilt. Es ergibt sich also eine Gleichung der Form:

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & \chi_{xyz} & \chi_{xzx} & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & \chi_{yyz} & \chi_{yzy} & \chi_{yyx} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & \chi_{zyz} & \chi_{zzx} & \chi_{zxy} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x E_x \\ E_y E_y \\ E_z E_z \\ 2E_y E_z \\ 2E_z E_x \\ 2E_x E_y \end{bmatrix}, \quad (\text{Gl. 2.31})$$

wobei der Einfachheit halber der Index zur Andeutung der nichtlinearen Ordnung fallengelassen wurde. Bei Oberflächen – z -Achse definiert die Probennormale – reduziert die vorherrschende Symmetrie die Anzahl der nichtverschwindenden Elemente weiter – im isotropen Fall auf fünf. Der Suszeptibilitätstensor für eine isotrope Oberfläche hat die Form:

$$\chi^{(2)} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xzx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{Gl. 2.32})$$

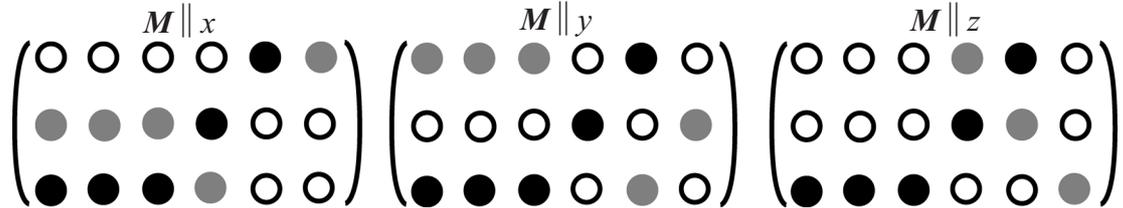
von denen aber nur drei Elemente unabhängig sind [54].

Tritt in dem Material noch eine Magnetisierung auf, so erhält man eine Erhöhung der Anzahl nichtverschwindender Elemente durch eine Reduktion der Oberflächensymmetrie [61, 62]. Während dessen bleibt die Symmetrie des Volumens unberührt, da \mathbf{M} ein axialer Vektor ist. Die Elemente des Suszeptibilitätstensors zeichnen sich nun durch ihre Symmetrie bei Vorzeichenänderung der Magnetisierung aus und man unterscheidet in gerade und ungerade Elemente:

$$\chi^e(\mathbf{M}) = \chi^e(-\mathbf{M}) \quad (\text{gerade})$$

$$\chi^o(\mathbf{M}) = -\chi^o(-\mathbf{M}) \quad (\text{ungerade}).$$

Für die isotrope Oberfläche ergeben sich für die verschiedenen Magnetisierungsrichtungen:



wobei die schwarzen Kreise die nichtverschwindenden Elemente gerader Ordnung und die grauen Kreise die ungerader Ordnung darstellen.

Zur Festlegung, ob unter den experimentellen Bedingungen ein SHG-Signal beobachtet werden kann, muss neben $\chi^{(2)}$ auch die Geometrie – Einfallswinkel und Ausfallswinkel, sowie Polarisationswinkel – mitberücksichtigt werden; man erhält für das elektrische Feld in p- bzw. s-Polarisation und für den Fall einer isotropen Oberfläche [63]⁴:

$$E_S^{2\omega} = \frac{4i\omega}{c} A_S \cdot \chi_{xzx} \cdot f_s E_s E_p \quad (\text{Gl. 2.33})$$

$$E_P^{2\omega} = \frac{2i\omega}{c} A_P \cdot [\varepsilon^{2\omega} \cdot \chi_{zxx} \cdot F_S E_s^2 + (\varepsilon^{2\omega} \cdot \chi_{zxx} \cdot F_S f_c^2 - 2\chi_{xzx} \cdot f_s f_c F_C + \varepsilon^{2\omega} \chi_{zzz} F_S f_s^2) E_p^2]$$

$$\text{wobei} \quad E_s = E_0 t_s \sin \varphi \quad \text{und} \quad E_p = E_0 t_p \cos \varphi \quad \text{gilt.}$$

Eine äquivalente Beschreibung, findet sich in [9] und lautet:

$$E^{2\omega} = \frac{2i\omega}{c} F^{2\omega} \chi^{(2)} f^\omega |E^\omega|^2 \delta z \quad (\text{Gl. 2.34})$$

wobei F und f die sog. Fresnelschen-Faktoren sind und die Form:

$$\mathbf{F}^{2\omega} = \begin{bmatrix} A_P F_C \cos \Phi \\ A_S \sin \Phi \\ A_P N^2 F_S \cos \Phi \end{bmatrix} \quad \text{und} \quad \mathbf{f}^\omega = \begin{bmatrix} f_c^2 t_p^2 (\cos \varphi)^2 \\ t_s^2 (\sin \varphi)^2 \\ f_s^2 t_p^2 (\cos \varphi)^2 \\ 2f_s t_p t_s \cos \varphi \sin \varphi \\ 2f_s f_c t_p^2 (\cos \varphi)^2 \\ 2f_c t_p t_s \cos \varphi \sin \varphi \end{bmatrix} \quad (\text{Gl. 2.35})$$

haben und δz die Schichtdicke der Interaktion beschreibt. Φ und φ sind dabei Ausgangs- und

4. Für eine genaue Herleitung der nachfolgenden Formeln wende sich der Leser an [63].

Eingangspolarisation. Die Abkürzungen in den Gl.2.33 und 2.35 lauten ausgeschrieben:

$$A_{P,S} = \frac{2\pi T_{P,S}}{\cos\vartheta} \quad f_s = \frac{\sin\vartheta}{n} \quad f_c = \sqrt{1-f_s^2} \quad t_p = \frac{2\cos\vartheta}{n\cos\vartheta+1} \quad t_s = \frac{2\cos\vartheta}{\cos\vartheta+nf_c}$$

Eine ausführliche Herleitung der sich daraus ergebenden Tensorelemente ist in [144] gegeben, auf die hier nur verwiesen werden soll.

Experimentell ist nicht die elektrische Feldstärke sondern die daraus resultierende Intensität wichtig. Für magnetische Proben schreibt sich die Intensität als $I_{u,d} \propto |E^e \pm E^o|^2$, wobei in einer Magnetfeldrichtung das + (*u*), in die andere das - (*d*) Zeichen zu nehmen ist. Sind also beide Komponenten vorhanden, so lässt sich über den sog. Kontrast ρ die Magnetisierung der Probe bestimmen

$$\begin{aligned} I_{u,d} &= |E^e|^2 + |E^o|^2 \pm 2|E^e||E^o| \\ \rho &= \frac{2(I_u - I_d)}{I_u + I_d} \quad \text{(Gl. 2.36)} \\ &= \frac{4|E^e||E^o|}{|E^e|^2 + |E^o|^2} \end{aligned}$$

Spezielle Form des Tensors für die SNOM-Messungen

In der verwendeten SNOM-Geometrie ist der Einfallswinkel $\vartheta = 0$. Damit vereinfacht sich Gl. 2.35 zu

$$F^{(2\omega)} = \frac{4\pi}{N+1} \begin{bmatrix} \cos\Phi \\ \sin\Phi \\ 0 \end{bmatrix} \quad \text{und} \quad f^\omega = \left(\frac{2}{n+1}\right)^2 \begin{bmatrix} (\cos\varphi)^2 \\ (\sin\varphi)^2 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ \sin 2\varphi \end{bmatrix}, \quad \text{(Gl. 2.37)}$$

so dass sich für das austretende elektrische Feld (Gl. 2.34) folgendes ergibt:

$$E^{(2\omega)} \propto \begin{bmatrix} \cos \Phi \\ \sin \Phi \\ 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^2 \chi_{xxx} (\cos \varphi)^2 + E_y^2 \chi_{xyy} (\sin \varphi)^2 + E_x^2 E_y^2 \chi_{xxy} \sin 2\varphi \\ E_x^2 \chi_{yxx} (\cos \varphi)^2 + E_y^2 \chi_{yyy} (\sin \varphi)^2 + E_x^2 E_y^2 \chi_{yyx} \sin 2\varphi \\ E_x^2 \chi_{zxx} (\cos \varphi)^2 + E_y^2 \chi_{zyy} (\sin \varphi)^2 + E_x^2 E_y^2 \chi_{zxy} \sin 2\varphi \end{bmatrix} \quad (\text{Gl. 2.38})$$

Man erkennt, dass nur noch eine Abhängigkeit von der ein- und ausfallenden Polarisationsrichtung des Lichtes gibt. Diese ist jedoch unbestimmt, da keine ausgezeichnete Einfallsebene in dieser Messanordnung existiert. Besitzt das Material jedoch eine nichtverschwindende Magnetisierung, so kann man die Polarisationsrichtung hinsichtlich \mathbf{M} definieren. Es würde also p -polarisiertes Licht parallel zur Magnetisierung sein. Für die einzelnen Messgeometrien ergeben sich folgende nichtverschwindende Tensorelemente:

$$\begin{array}{ccc} p \rightarrow P & s \rightarrow P & mix \rightarrow P \\ \left(\begin{array}{cccccc} \bullet & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \end{array} \right) & \left(\begin{array}{cccccc} \circ & \bullet & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \end{array} \right) & \left(\begin{array}{cccccc} \bullet & \bullet & \circ & \circ & \circ & \bullet \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \end{array} \right) \\ s \rightarrow S & p \rightarrow S & mix \rightarrow S \\ \left(\begin{array}{cccccc} \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \bullet & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \end{array} \right) & \left(\begin{array}{cccccc} \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \bullet & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \end{array} \right) & \left(\begin{array}{cccccc} \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \\ \bullet & \bullet & \circ & \circ & \circ & \bullet \\ \circ & \circ & \circ & \circ & \circ & \circ \end{array} \right) \end{array}$$

Dabei geben kleine Buchstaben die Einfallspolarisation wieder, während große Buchstaben die ausfallende Polarisation beschreiben. Würde man mit dem *SNOM* eine isotrope Oberfläche beleuchten, so würde man kein Signal von dieser erhalten (vgl. Gl. 2.32), da die dort nichtverschwindenden Tensorelemente bei dieser Messgeometrie nicht abgefragt werden. Bei vorhandener Magnetisierung gibt es hingegen nichtverschwindende Elemente, die gemessen werden können. Für die einzelnen Richtungen der Magnetisierung gibt Tab. 2.1 die vorhandenen Elemente an.

Man erkennt, dass nur *in-plane* Magnetisierungen detektierbar sind. Außerdem sind alle abgefragten Tensorelemente ungerader Natur, so dass das gemessene SHG-Signal allein von der Magnetisierung der Probe hervorgerufen wird. Eine Messung des magnetischen Kontrastes, wie er in Gl. 2.36 angegeben ist, ist in dieser Geometrie für eine isotrope Oberfläche aufgrund der fehlenden geraden Tensorelemente nicht durchführbar. Es lässt sich also nur ein Intensitätsun-

terschied zwischen nichtmagnetisierter und vollständig magnetisierter Probe feststellen. Eine Änderung der Oberflächengeometrie würde indes den Suszeptibilitätstensor ändern und bei magnetischen Proben nicht nur *in-plane* sondern auch *out-of-plane* Magnetisierungen mit dem *SNOM* detektierbar werden lassen.

Tab. 2.1: Nichtverschwindende Tensorelemente für eine magnetisierte isotrope Oberfläche in den einzelnen Messkonfigurationen (vgl. Abb. 2.1).

	$p \rightarrow P$	$s \rightarrow S$	$p \rightarrow S$	$s \rightarrow P$	$mix \rightarrow P$	$mix \rightarrow S$
$M \parallel x$	–	χ_{yyy}	χ_{yxx}	–	χ_{xxy}	χ_{yxx}, χ_{yyy}
$M \parallel y$	χ_{xxx}	–	–	χ_{xyy}	χ_{xxx}, χ_{xyy}	χ_{yxy}
$M \parallel z$	–	–	–	–	–	–

2.2 Lichtausbreitung in Glasfasern

Nachdem im vorhergehenden Abschnitt allgemein auf die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie eingegangen worden ist, beschäftigt sich dieses Kapitel mit der für die Verwendung des *SNOMs* wichtigen Lichtausbreitung in dielektrischen Wellenleitern – speziell in Glasfasern. Dabei wird ebenfalls die Ausbreitung ultrakurzer Pulse, wie sie im Experiment verwendet werden, behandelt.

2.2.1 Lichtpropagation und Modenbedingung

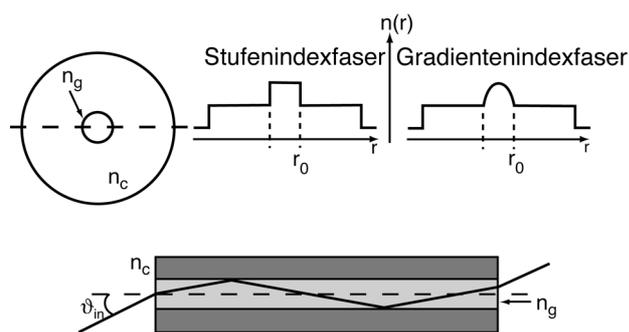


Abbildung 2.8: Oben: Brechungsindexprofil einer Stufen- bzw. Gradientenindexfaser. Unten: Einfaches Bild der Wellenleitung durch Totalreflexion.

Die Funktion der Faser als Wellenleiter wird dadurch erreicht, dass ein hochbrechendes Glas von einem niederbrechenden umschlossen wird (vgl. Abb. 2.8). Der Brechungsindexübergang vom Kern (*core*) in den Mantel (*cladding*) kann dabei stetig (Gradientenindexfaser) oder unstetig (Stufenindexfaser) erfolgen. Genau genommen hat man nun zwei Wellenleiter, die das Licht mit Hilfe der

internen Totalreflexion führen können, da der Kern und der Mantel jeweils von einem Material mit niedrigerem Brechungsindex umschlossen sind. Es wird jedoch stets die Lichtleitung durch den Kern ausgenutzt, da dort die Bedingungen zur „sauberen“ Wellenleitung erfüllt werden.

Dies bedeutet im Fall einer *single-mode* Glasfaser, dass nur im Kern eine einzige Mode propagieren kann (s.u.). Der Akzeptanzwinkel für das Einkoppeln in den Kern wird durch die Winkel der Totalreflexion also durch den Brechungsindexunterschied zwischen Kern und Mantel bestimmt:

$$\vartheta_{in} < n_g \sqrt{1 - (\sin \vartheta_{TR})^2} = \sqrt{n_g^2 - n_c^2} = NA \quad . \quad (\text{Gl. 2.39})$$

Hierbei ist ϑ_{in} der Eintrittswinkel, der kleiner als die numerische Apertur (NA) der Faser sein muss. Bei den verwendeten *single-mode* Fasern ergibt sich ein Wert für die numerische Apertur von $NA = 0,1$. Ist der Eintrittswinkel größer, so wird das Licht nicht mehr im Kern, sondern vornehmlich im Mantel geleitet. Dies stellt somit große Anforderungen an die Einkoppeloptik, da für typische Kerndurchmesser von 2- 4 μm die Positionierung des fokussierten Lichtstrahles mit einer Genauigkeit von besser als 1 μm erreicht werden muss, um die Lichtleitung vornehmlich im Kern stattfinden zu lassen. Dabei ist zu beachten, dass aufgrund des Gaußschen Profils des Lichtstrahles, eine theoretische Einkoppeleffizienz von etwa 82% erreichbar ist.

Normalerweise wird in einem Wellenleiter die Propagation unendlich vieler Moden unterstützt. Um nun die tatsächliche Anzahl der unterstützten Moden aus den Wellenleiterdaten zu bestimmen, oder um den Wellenleiter so zu konstruieren, dass er nur noch eine Mode propagieren lässt, muss die Wellengleichung gelöst werden. Da die Glasfaser zylindersymmetrisch ist, wechselt man in Zylinderkoordinaten und erhält:

$$\frac{\partial^2 U}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial U}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \cdot \frac{\partial^2 U}{\partial \varphi^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} + n^2 k_0^2 U = 0 \quad , \quad (\text{Gl. 2.40})$$

wobei $n^2 k_0^2 = \frac{\omega^2 \epsilon}{c^2}$

und U die Komponenten des elektrischen oder magnetischen Feldes beschreibt.

Bevor nun auf die Lösung von Gl. 2.40 mit Hilfe des Separationsansatzes eingegangen wird, sollen noch einmal die Randbedingungen erwähnt werden, die zur Berechnung angesetzt werden. Das Licht wird in einen zylindrischen Leiter eingestrahlt und an dessen Grenze – hier nicht Luft sondern ein zweiter Leiter – totalreflektiert. Damit sollte ein exponentieller Abfall im umgebenden Medium, wie in Abb. 2.2 gezeigt, erfolgen. Die gleiche Rechnung kann aber getrennt auch für den Mantel durchgeführt werden, da dort an der Grenze zur Luft ebenfalls Totalreflexion stattfinden kann. Die sich dann ergebenden Bedingungen zur Lösung würden jedoch den Rahmen der Arbeit sprengen, so dass sich nur auf die Lösung des oben erwähnten einfachen Falles der Kernleitung konzentriert wird.

Der Ansatz zur Lösung von Gl. 2.40 lautet:

$$\tilde{U}(r, \omega) = A(\omega)F(\rho)\Phi(\varphi)e^{i\beta z}, \quad (\text{Gl. 2.41})$$

wobei β die Propagationskonstante ist. Die Wellengleichung zerfällt dann in zwei Gleichungen:

$$\frac{d^2\Phi}{d\varphi^2} + m^2\Phi = 0 \quad \Rightarrow \Phi = e^{\pm im\varphi} \quad m \in \mathbb{Z} \quad (\text{Gl. 2.42})$$

$$\frac{d^2F}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho} \cdot \frac{dF}{d\rho} + \left(n^2 k_0^2 - \beta^2 - \frac{m^2}{\rho^2} \right) = 0 \quad \text{mit} \quad n = \begin{cases} n_g & \rho \leq r_0 \\ n_c & \rho > r_0 \end{cases}$$

Die Gleichung für $F(\rho)$ stellt die Besselsche Differentialgleichung dar, die durch die verschiedenen Werte der Brechungsindizes in zwei Untergleichungen zerfällt. Für den Bereich des Faserkernes ($\rho \leq r_0$) ergeben sich als Lösungen des Radialteiles:

$$F(\rho) = C_1 J_m(\kappa\rho) + C_2 N_m(\kappa\rho) \quad (\text{Gl. 2.43})$$

mit $\kappa = \sqrt{n_g^2 k_0^2 - \beta^2}$.

Dabei sind N_m die Neumann- und J_m die Besselfunktionen. Der Summand mit den Neumann-Funktionen fällt jedoch aufgrund der Forderung eines endlichen Wertes im Kernmittelpunkt heraus, so dass die Radialfunktion in der Kernregion allein durch die Bessel-Funktionen erster Art beschrieben werden können.

Für den Fall $\rho > r_0$, also in der Mantelregion, erhält man für die Radialfunktion Lösungen der Form:

$$F(\rho) = K_m(\gamma\rho) \quad (\text{Gl. 2.44})$$

mit $\gamma = \sqrt{\beta^2 - n_c^2 k_0^2}$.

K_m sind dabei die Bessel-Funktionen zweiter Art, die das erwartete exponentielle Abklingverhalten zeigen. Abbildung 2.9 zeigt das Verhalten der Bessel-Funktionen erster und zweiter Art. Die Randbedingungen für die Stetigkeit der Tangentialkomponenten des elektrischen und magnetischen Feldes an der Grenze von Kern und Mantel ($\rho = a$) liefert nun eine Eigenwertgleichung, mit deren Hilfe sich die geführten Moden berechnen lassen [64]:

$$\left(\frac{J_m'(\kappa a)}{\kappa J_m(\kappa a)} + \frac{K_m'(\gamma a)}{\gamma K_m(\gamma a)} \right) + \left(\frac{J_m'(\kappa a)}{\kappa J_m(\kappa a)} + \frac{n_c^2 K_m'(\gamma a)}{n_g^2 \gamma K_m(\gamma a)} \right) = \left(\frac{m\beta k_0 (n_g^2 - n_c^2)}{a n_g \kappa^2 \gamma^2} \right)^2 \quad (\text{Gl. 2.45})$$

wobei die wichtige Beziehung $\kappa^2 + \gamma^2 = (n_g^2 - n_c^2)k_0^2$ verwendet wurde.

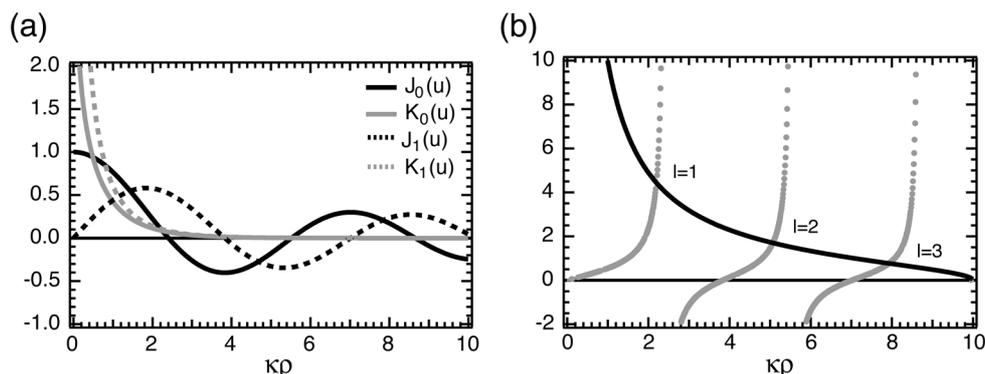


Abbildung 2.9: (a) Darstellung der ersten zwei Ordnungen der Funktionen $J_m(\kappa\rho)$ und $K_m(\kappa\rho)$. Während die erste oszillatorisches Verhalten aufweist, fällt die zweite exponentiell ab. (b) Graphische Darstellung der Modengleichung (Gl. 2.45). Die rechte Seite der Gleichung ist schwarz dargestellt, die linke Seite grau (für $m=0$).

Die Lösung von Gl. 2.45 erfolgt graphisch und ist in Abb. 2.9(b) gezeigt. Jeder Eigenwert β_{ml} entspricht nun einer Mode, die in der Glasfaser geführt werden kann. Ein zur Beschreibung wichtiger Parameter ist dabei die sogenannte „cut-off“-Frequenz V :

$$V = k_0 a \sqrt{n_g^2 - n_c^2} . \quad (\text{Gl. 2.46})$$

Sie gibt an, ob eine Mode noch geführt wird oder nicht. Es zeigt sich, dass es immer mindestens eine Mode gibt, die in einem Wellenleiter geführt wird ($l=1$). Für den Fall einer schwachen Führung, wie es in der Glasfaser durch den geringen Unterschied der Brechungsindizes der Fall ist, weist das Feld durch den streifenden Einfall fast keine longitudinalen Komponenten auf, es ist näherungsweise komplett TE (TM) polarisiert. Die niedrigste Mode, die also geführt wird, ist die TEM_{00} -Mode, auch mit HE_{11} beschrieben. Dabei erhält man einen kritischen Wert für die cut-off-Frequenz von $V=2,405$, was einem Radius von $r_0 \approx 2\mu m$ entspricht. *Single-mode*-Glasfasern weisen nun typischerweise einen Durchmesser von etwa $4\mu m$ auf. Diese geführte fundamentale Mode ist näherungsweise linear polarisiert, so dass im strengeren Sinne immer zwei orthogonal zueinander polarisierte Moden geführt werden können.

In den Anwendungen ist es nun wichtig nur diese eine Mode (TEM_{00}) in der Faser zu führen. Hat man nämlich eine Multimodefaser, so kommt es bei Einspeisung von monochromatischem Licht aufgrund der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten der einzelnen Moden zu Dispersion (Modendispersion). Diese Laufzeitunterschiede (bis zu 10ns/km) können bei einem Lichtpuls dazu führen, dass dieser in mehrere Pulse zerfällt und es dann zur Überlagerung unterschiedlicher Teilpulse kommen kann. Ein anderer Vorteil bei der Benutzung einer *single-mode* Glasfaser besteht darin, dass die geführte TEM_{00} -Mode polarisiert ist. Im Idealfall sind

dabei die beiden orthogonalen Polarisationszustände aufgrund der gleichen Propagationskonstanten entartet, so dass eingespeistes linear polarisiertes Licht auch wieder linear polarisiert austritt. Im Normalfall gibt es jedoch kleine Störungen im Kern, insbesondere leichte Variationen in der Form und im Durchmesser entlang der Faser, so dass die Entartung aufgehoben wird. Somit erhält man beim Durchgang des Lichtes immer leicht elliptisch polarisiertes Licht. Diese Aufhebung der Entartung macht man sich aber bei polarisationserhaltenden Fasern zunutze, indem man von vornherein den Kern elliptisch gestaltet. Damit zwingt man das Licht, seinen Polarisationszustand zu behalten, wenn er bei Einspeisung entlang einer der Hauptachsen liegt.

2.2.2 Pulse, Dispersion und Nichtlinearitäten

Nachdem die Bedingungen für eine Leitung von Licht durch eine Glasfaser im vorherigen Abschnitt erläutert wurden, wird nun die Propagation von Lichtpulsen und die daraus resultierenden Effekte behandelt. Die Herleitung der zum Verständnis notwendigen Gleichungen ist an [54] angelehnt und wird im Anhang B durchgeführt.

Die Pulspropagation durch ein optisches Medium wird vornehmlich durch Effekte zweier Kategorien beeinflusst, wenn man die Absorption in der Faser vernachlässigt. Zum einen handelt es sich um lineare dispersive Effekte, die durch die Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex bedingt werden [65-69], zum anderen um nichtlineare Effekte, die aus der Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex herrühren [65, 70-76]. Während dispersive Effekte vornehmlich eine Veränderung der Pulsform – bei unverändertem Spektrum des Pulses – zur Folge haben, tritt bei den nichtlinearen Effekten eine spektrale und meistens auch eine räumliche Änderung der Strahlstruktur ein [77].

Die Effekte treten durch das Zusammenspiel der Polarisation mit dem elektrischen Feld in der Wellengleichung

$$-\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{P}}}{\partial t^2} \quad (\text{Gl. 2.47})$$

auf, wobei bei Laserintensitäten, die kleiner als die entsprechenden Felder für die Coulomb-Anziehung der Kerne im Medium sind (10^{16} W/cm²), ein linearer Zusammenhang zwischen $\tilde{\mathbf{E}}$ und $\tilde{\mathbf{P}}$ angenommen wird. Nimmt man für das elektrische Feld die Beziehung

$$\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \tilde{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t) \cdot e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \quad (\text{Gl. 2.48})$$

an, wobei $\tilde{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t)$ eine sich langsam ändernde Einhüllendenfunktion ist [*slowly varying amplitude approximation (SVA)*], so lässt sich beim Übergang in den Frequenzraum die Wellenglei-

chung (Gl. 2.47) zu:

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z} + [k^2(\omega) - k_0^2] \right) A(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{4\pi}{c^2} \omega^2 P(\mathbf{r}, \omega) e^{ik_0 z} \quad (\text{Gl. 2.49})$$

mit $\nabla_{\perp}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ und $k^2(\omega) = \varepsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2}$ umschreiben. Das Verhalten des Lichtpulses im dispersiven Medium wird nun mit Hilfe der Funktion $k(\omega)$ beschrieben. Eine Reihenentwicklung, Anwendung der SVA-Approximation und Rückführung der Gleichung in die Zeitdomäne – vgl. Rechnung im Anhang B – führt auf die in der Literatur als nichtlineare Einhüllendengleichung (*nonlinear envelope equation*) bekannte Form der Wellengleichung:

$$\left[\left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} \right)^{-1} \cdot \nabla_{\perp}^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z'} + 2k_0 \tilde{D} \right] \tilde{A}(\mathbf{r}, t) = -\frac{4\pi\omega_0^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega} \frac{\partial}{\partial t} \right) \tilde{p}(\mathbf{r}, t), \quad (\text{Gl. 2.50})$$

die nun alle auftretende Effekte beinhaltet. Die linear dispersiven Effekte werden durch den Term \tilde{D} abgedeckt, während die nichtlinearen Terme auf der rechten Seite der Gleichung durch \tilde{p} beschrieben werden. Der erste Summand auf der linken Seite gibt eine Kopplung von Zeit und Raum an, die durch die Modenstruktur des Pulses im Medium bedingt ist, soll aber im Folgenden nicht weiter betrachtet werden.

Als erstes sollen nun die dispersiven Effekte und deren Auswirkung auf Pulsform und -breite behandelt werden. Dazu werden zunächst die nichtlinearen Terme (\tilde{p}) und höhere Dispersionsordnungen vernachlässigt – es wird nur $k_2 = d^2k/d\omega^2$, die sog. Gruppengeschwindigkeitsdispersion (*GVD-Parameter*; vgl. Anhang A), berücksichtigt. Dies führt zu einer Reduktion von Gl. 2.50 zu:

$$\left[\frac{\partial}{\partial z'} - i \frac{k_2}{2} \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} \right] \tilde{A}(z, \tau) = 0 \quad (\text{Gl. 2.51})$$

Nimmt man für den einfallenden Puls eine Gauß-förmige Einhüllendenfunktion an

$$A(0, \tau) = \exp\left(-\frac{1+iC}{2} \left(\frac{\tau}{\tau_0} \right)^2 \right), \quad (\text{Gl. 2.52})$$

wobei der Parameter C ein lineares Ansteigen ($C>0$) bzw. Abfallen ($C<0$) der Momentanfrequenz innerhalb des Pulses (*up-* bzw. *down-chirp*) beschreibt und betrachtet man die Entwicklung der Einhüllenden als Funktion der Strecke, so erhält man die Beziehung:

$$A(z, \tau) = \frac{\tau_0}{\sqrt{\tau_0^2 - ik_2 z (1+iC)}} \exp\left(\frac{(1+iC)\tau^2}{2(\tau_0^2 - ik_2 z (1+iC))} \right). \quad (\text{Gl. 2.53})$$

Man erkennt, dass der Puls immer noch Gauß-förmig ist, doch seine Breite wird durch die Dispersion vergrößert. Die Abhängigkeit der Pulsbreite von der Faserlänge z , dem Anfangschirp C

und der Dispersion k_2 ergibt sich aus Gl. 2.53 zu:

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{\left(1 + \frac{Ck_2 z}{\tau_0^2}\right)^2 + \left(\frac{k_2 z}{\tau_0^2}\right)^2} \quad (\text{Gl. 2.54})$$

Das Verhalten ist in Abb. 2.10 noch einmal illustriert. Man erkennt, dass ein Puls mit einem down-chirp in der Faser erst auf seine minimale, bandbreitenbegrenzte Länge zusammenläuft, ehe er wieder auseinanderläuft. Im Gegensatz dazu dispergiert ein Puls mit einem up-chirp gleich. Dieses Verhalten kann man ausnutzen, um den Effekt der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (*GVD*) zu kompensieren. Gewöhnlich definiert man eine Längenskala, die sog. Dispersionslänge $L_D = \tau_0^2/|k_2|$, die angibt, bei welchem Materialdurchgang sich die Pulsbreite verdoppelt. Arbeitet man in einem Bereich, in dem die *GVD* kompensiert ist, bei Glasfasern wäre das bei einer Wellenlänge von etwa $1,3\mu\text{m}$ der Fall, so spielen höhere Ordnungen der Dispersion eine dominierende Rolle bei der Pulsverbreiterung. Betrachtet man auch die nächste auftretende Dispersionsordnung, also Effekte dritter Ordnung (*TOD*), so erhält man für die Änderung der Pulsbreite einen ähnlichen Zusammenhang wie bei der *GVD*.

Beide Effekte zusammen ergeben:

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{\left(1 + \frac{Ck_2 z}{\tau_0^2}\right)^2 + \left(\frac{k_2 z}{\tau_0^2}\right)^2 + (1 + C^2)^2 \left(\frac{k_3 z}{\tau_0^3}\right)^2} \quad (\text{Gl. 2.55})$$

Abb. 2.10(c) zeigt dieses Verhalten qualitativ. Miyagi und Nishida [67] haben gezeigt, dass bei dominierender *TOD* während der Pulspropagation auch eine Veränderung des Pulsprofils eintritt. Es ergibt sich eine Asymmetrie und ein oszillatorisches Verhalten der Einhüllenden (Abb. 2.10(d)). Da dieser Effekt im Experiment jedoch nicht beobachtet wurde, soll hier nicht weiter auf ihn eingegangen werden.

Als nächstes sollen nun auch die nichtlinearen Effekte berücksichtigt werden. Diese werden, wie oben erwähnt, durch den Polarisationssterm in Gl. 2.50 erzeugt, wobei im isotropen Fall $P_{NL} = \epsilon_0 \chi^{(3)} |E|^2 E$ gilt. Eigentlich findet auch bei den nichtlinearen Effekten eine Dispersion statt, doch wird diese erst bei Pulsbreiten, die der Antwortzeit des Systems entsprechen (ca 1 fs), relevant, so dass sie hier nicht betrachtet wird.

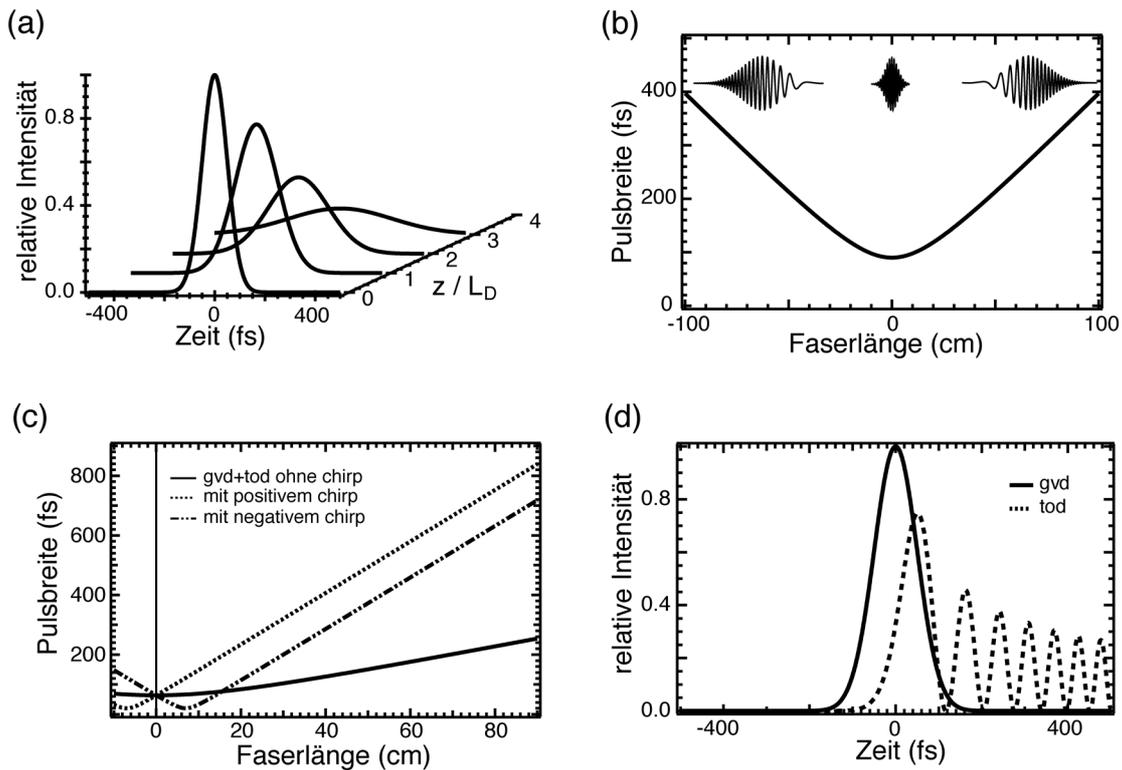


Abbildung 2.10: (a) Verhalten eines Gaußschen Pulses beim Durchgang durch ein nichtlineares Medium. Man erkennt, dass sich der Puls während des Durchganges stark verbreitert. (b) Effekt der Gruppengeschwindigkeitsdispersion auf einen Puls bei positiver GVD ($k_2 > 0$): Ein Puls mit „down-chirp“ wird erst auf seine minimale, banbreitenbegrenzte Länge zusammenlaufen und dann mit zunehmendem „up-chirp“ auseinanderlaufen. (c) Verhalten der Pulsbreite in Abhängigkeit von der Faserlänge beim Zusammenspiel von GVD und TOD mit und ohne anfänglichem Chirp der Pulse. (d) Effekt der TOD auf die Pulsform: Während die GVD keinen Effekt auf die Einhüllende hat, wird der Puls durch den Effekt der TOD asymmetrisch und bekommt ein oszillatorisches Verhalten.

Für alle nichtlinearen Effekte liegt die Ursache in der Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex $n = n_{lin} + n_2 \cdot I$, wobei der nichtlineare Brechungsindex n_2 mit der nichtlinearen Suszeptibilität 3. Ordnung verbunden ist über [78]:

$$n_2 = \frac{3}{8n} \text{Re}(\chi_{xxxx}^{(3)}) \quad . \quad (\text{Gl. 2.56})$$

Mit seiner Hilfe lässt sich nun die nichtlineare Einhüllendengleichung (Gl. 2.50) zu einer nichtlinearen Schrödinger-Gleichung (NLSE) umschreiben:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + ik_2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} - \frac{in_2 \omega_0}{c} |A(z, \tau)|^2 \right) A(z, \tau) = 0 \quad . \quad (\text{Gl. 2.57})$$

Vernachlässigt man in Gl. 2.57 zuerst die dispersiven Effekte – hier wurde nur der GVD-Term berücksichtigt – so kann man den Effekt der Selbstphasenmodulation (SPM) direkt bestimmen und auswerten. Dabei zeigt sich, dass sich der zeitliche Intensitätsverlauf des Pulses nicht än-

dert, vielmehr erfährt der Puls eine intensitätsabhängige Phasenänderung der Form

$$A(z, \tau) = A(0, \tau) \cdot e^{i\phi(t)} \quad (\text{Gl. 2.58})$$

mit $\phi(t) = \frac{n_2 \omega_0}{c} \cdot I(t) \cdot z$.

Die Pulseinhüllende ändert sich also nicht, jedoch wird bei $n_2 > 0$ die Phase proportional zur Momentanintensität verzögert, was nichts anderes bedeutet, als dass der Puls einen Chirp erfährt. An der vorderen Flanke des Pulses werden die optischen Zyklen auseinander gezogen, während sie auf der hinteren Flanke gestaucht werden. Die Stärke dieses Effektes hängt dabei von der Spitzenintensität und der Pulsdauer ab. Das Resultat dieses Chirps, durch die *SPM* erzeugt, ist eine spektrale Verbreiterung des Pulses. Als Maß für diese Verbreiterung definiert man, analog zur Dispersionslänge, eine „nichtlineare Länge“

$$L_{NL} = \left(\frac{n_2 \omega_0 P_0}{c A_{eff}} \right)^{-1}, \quad (\text{Gl. 2.59})$$

wobei A_{eff} die effektiv beleuchtete Fläche angibt, die stark von der Modenstruktur abhängt und für den Fall von *single-mode*-Fasern mit ihrem Kernradius skaliert.

Betrachtet man auch wieder die dispersiven Effekte in Gleichung 2.57, so lässt sich die nichtlineare Schrödinger-Gleichung nur numerisch lösen. Es ergeben sich zwei mögliche Pulsausbreitungsformen, die durch das Vorzeichen der Gruppengeschwindigkeit bedingt werden. Für den Fall normaler Dispersion ($k_2 > 0$) wird sich der Puls aufgrund des Zusammenspiels von *GVD* und *SPM* zeitlich und spektral verbreitern. Das zeitliche Auseinanderlaufen findet dabei schneller statt, als es unter Einfluss nur eines Effektes tun würde. Potasek *et al.* [70] haben für diesen Fall die Verbreiterung näherungsweise bestimmt zu:

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + \sqrt{2} \phi_{max} d_{eff} + \left(1 + \frac{4}{3\sqrt{3}} \phi_{max}^2 \right) d_{eff}^2} \quad (\text{Gl. 2.60})$$

mit den Abkürzungen $\phi_{max} = \frac{n_2 \omega_0}{c} A_0^2 \cdot L_{eff}$, $d_{eff} = \frac{k_2 z}{\tau_0^2}$ und $L_{eff} = \left(\frac{1 - e^{-\gamma z}}{2\gamma} \right)$, wobei γ der Verlustkoeffizient der Faser ist. Der Grund für dieses schnellere Auseinanderlaufen liegt darin, dass die Selbstphasenmodulation neue Frequenzen im Puls generiert, die dann ebenfalls dispergieren (vgl. Abb. 2.11). Gleichung 2.60 gilt jedoch strenggenommen nur für kleine Werte von ϕ_{max} , also für kleine Spitzenintensitäten oder relativ lange Pulse ($\tau > 1 \text{ ps}$).

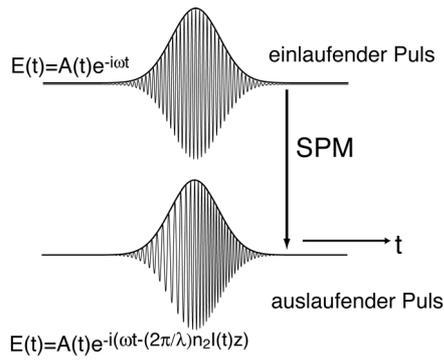


Abbildung 2.11: Effekt der Selbstphasenmodulation auf einen Puls: Die Einhüllende ändert sich nicht, die momentane Phase wird jedoch proportional zur momentanen Intensität verzögert, was die Erzeugung neuer Frequenzkomponenten an den Flanken zur Folge hat.

Will man nun auch die kürzeren Pulse in Betracht ziehen, so bietet sich der Ansatz von Anderson [79] an, der einen Variationsansatz zur Lösung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung benutzt, wobei sich die zu variierende Lagrange-Funktion schreibt als:

$$L = \frac{i}{2} \left[\psi \frac{\partial}{\partial x} \psi^* - \psi^* \frac{\partial \psi}{\partial x} \right] - \alpha \left| \frac{\partial \psi}{\partial \tau} \right|^2 + \frac{\kappa}{2} |\psi|^4 \quad (\text{Gl. 2.61})$$

$$\text{mit } \psi = A \exp \left(-\frac{\tau^2}{2a^2(x)} + ib(x)\tau^2 \right)$$

Dabei lässt er den Chirp-Parameter ($b(x)$) sowie die Pulsbreite ($a(x)$) variieren. Das Ergebnis ist eine implizite Gleichung der Pulsbreite in Abhängigkeit von der Propagationsdistanz [79]:

$$x \sqrt{2} \mu = \frac{1}{\sqrt{1+\xi}} \sqrt{(y-1) \left(y + \frac{1}{1+\xi} \right)} + \frac{1}{2} \xi (1+\xi)^{-3/2} \cdot \ln \left[\frac{2(1+\xi) \left[(y-1) \left(y - \frac{1}{1+\xi} \right) \right]^{1/2} + 2(1+\xi)y - \xi}{2+\xi} \right] \quad (\text{Gl. 2.62})$$

Dabei gibt ξ das Verhältnis zwischen dispersiven und nichtlinearen Effekten an.

Die in dieser Arbeit bestimmte Pulsverbreiterung beim Zusammenspiel von *GVD* und *SPM* wurde mit Hilfe dieses Ansatzes bestimmt. Die explizite Form wurde dadurch gewonnen, dass zur Lösung der erhaltenen gekoppelten Differentialgleichungen ein Potenzreihenansatz verwendet wurde und dieser bis zum zweiten Glied berücksichtigt worden ist (s. Anhang C). Das so erhaltene Resultat für die Pulsbreite lautet:

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + \frac{2k_2 Cz}{\tau_0^2} + \left(\frac{k_2^2(1+C^2)}{\tau_0^2} + \frac{k_2 \gamma E_0}{\sqrt{2}\tau_0} \right) \cdot \frac{z^2}{\tau_0^2}}, \quad (\text{Gl. 2.63})$$

wobei das Produkt γE_0 die Nichtlinearitäten beinhaltet und damit den Term der *SPM* darstellt. Abbildung 2.12 zeigt nun einen Vergleich der durchgeführten Rechnung mit dem impliziten Ergebnis von Anderson. Man erkennt, dass es kaum Abweichungen zwischen den beiden Resultaten gibt, so dass eine Verwendung von Gleichung 2.63 im weiteren Verlauf der Arbeit gerechtfertigt ist.

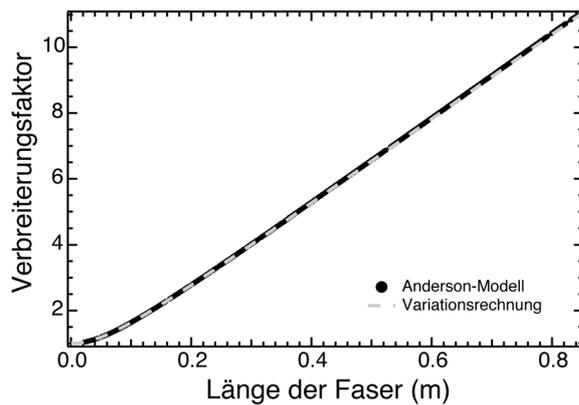


Abbildung 2.12: Pulsverbreiterungsfaktor in Abhängigkeit von der durchlaufenen Materialdicke. Vergleich der Ergebnisse von Anderson [79] und mittels des hier durchgeführten Potenzreihenansatzes.

Der Fall anormaler Dispersion ($k_2 < 0$) ist physikalisch und auch in der Anwendung von besonderem Interesse. In diesem Bereich ist es nämlich möglich, dass sich die Effekte von *SPM* und *GVD* gegenseitig aufheben. Dies führt dazu, dass ein Lichtpuls dann ungestört durch das Medium propagieren kann, also keine Änderung im Zeit- und Frequenzprofil erfährt. Diese stabilen Lösungen der *NLSE* sind bekannt als Solitonen und erfreuen sich regen Interesses [z.B. 65] werden aber im weiteren Verlauf keine Rolle spielen, da wir uns exper-

imentell im Bereich normaler Dispersion befinden.

2.3 Grundlagen der Mikroskopie

Nachdem in den letzten beiden Abschnitten vornehmlich die Interaktion von Licht mit Materie behandelt wurde, wird sich das nachfolgende Kapitel mit den Grundlagen der Mikroskopie beschäftigen. Dabei soll Anfangs kurz auf die Grundlagen der „klassischen“ Mikroskopie eingegangen werden, ehe dann der Übergang zu nahfeldmikroskopischen Betrachtungen vollzogen wird.

2.3.1 Klassische Mikroskopie und Beugungslimit

Seit Ende des 16. Jahrhunderts werden Mikroskope zur Vergrößerung kleiner Objekte verwendet. Das dabei zugrunde liegende Prinzip hat sich seitdem nicht geändert. Ein beleuchtetes Objekt wird mit Hilfe einer Linse (Objektiv) in die Zwischenbildebene reell vergrößert, ehe es dann mit einer Lupe (Okular) betrachtet wird. Die daraus gewonnene Gesamtvergrößerung des Objektes hängt dabei von den Einzelvergrößerungen der beiden verwendeten Linsen und damit von den Abmessungen des Mikroskops ab. Man erhält:

$$V = V_{Obj} \cdot V_{Oku} = \frac{L}{f_{Obj}} \cdot \frac{D}{f_{Oku}} \quad (\text{Gl. 2.64})$$

Diese Vergrößerung kann jedoch nicht unbegrenzt fortgeführt werden, was bedeutet, dass optische Mikroskope Objekte nur bis zu einer bestimmten Größe noch auflösbar darstellen können.

Der Grund liegt zum einen in der endlichen Größe der verwendeten Linsen und der daraus resultierenden Abbildungsfehler, zum anderen in dem Verhältnis der Größe des zu mikroskopierenden Objektes zur Lichtwellenlänge. Wird dieses Verhältnis klein, so treten verstärkt Beugungseffekte auf, die kleinere Strukturen ununterscheidbar werden lassen. Rayleigh [80] entwickelte ein Kriterium, mit dem eine Abschätzung der Größe noch auflösbarer Objekte möglich wurde. Dabei werden die Einzelbeugungsbilder einer runden Blende betrachtet (vgl. Abb. 2.13), die sogenannten Airy-Scheiben. Auflösbar sind zwei Objekte, wenn das erste Minimum der Airy-Scheibe des ersten Objektes mit dem Hauptmaximum des zweiten Objektes zusammenfällt. Der sich daraus ergebende minimale Abstand lautet:

$$\Delta x \geq 1,22 \cdot \frac{\lambda}{2 \cdot NA} \quad (\text{Gl. 2.65})$$

mit $NA = n \sin \vartheta$ der numerischen Apertur des Mikroskops (z.B. [40]).

Diese Begrenzungsbedingung der Auflösung erhält man mathematisch aus Fourier-optischen Betrachtungen und soll hier in Anlehnung an [81, 82] dargestellt werden. Für einen infinitesimal dünnen Spalt, der durch eine δ -Funktion beschrieben wird, erhält man für sein Ortsfrequenzspektrum:

$$f(k) = \int_{-\infty}^{\infty} \delta(x-x') e^{ikx} dx = e^{ikx'} \quad (\text{Gl. 2.66})$$

Betrachtet man sich diesen Spalt durch ein Mikroskop, so wird nie das gesamte Ortsfrequenzspektrum der Quelle den Spalt passieren. Der Wellenvektor für die propagierenden Wellen ist nämlich durch die Beziehung

$$|\mathbf{k}|^2 = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = \frac{n^2 \omega^2}{c_0^2} \quad (\text{Gl. 2.67})$$

festgelegt, wobei n der Brechungsindex des Mediums, ω die Frequenz und c_0 die Geschwindigkeit des Lichtes darstellen.

Aufgrund des nun existierenden begrenzten Öffnungswinkels wird auch das Ortsfrequenzspektrum eingeschränkt werden. Es wird ein maximaler Wellenvektor \mathbf{k} der Form $k_{x,max} = \frac{n\omega \sin \vartheta}{c_0}$ existieren, der bei der Rücktransformation in den Ortsraum die Integrationsgrenzen bilden wird:

$$f(x) = \int_{-k_{x,max}}^{k_{x,max}} e^{ikx'} e^{-ikx} dk = 2 \cdot \frac{\sin\left(\frac{\omega}{c_0} \sin \vartheta (x-x')\right)}{x-x'} \quad (\text{Gl. 2.68})$$

so dass sich als Bild der δ -Funktion eine *sinc*-Funktion der Breite

$$\Delta x = \frac{\pi c_0}{n\omega \sin \vartheta} = \frac{\lambda}{2NA} \quad (\text{Gl. 2.69})$$

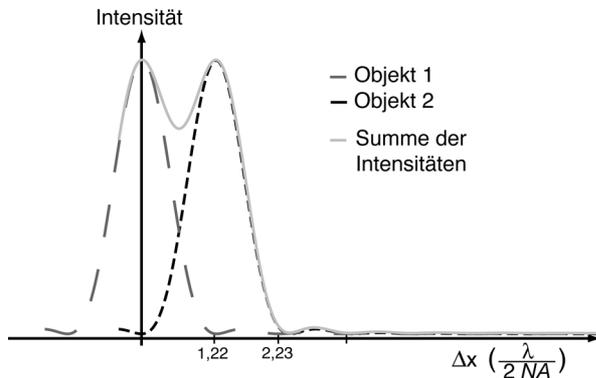


Abbildung 2.13: Zum Rayleigh-Kriterium: Die beiden punktförmigen Objekte sind gerade noch auflösbar, wenn das Maximum des Beugungsbildes vom zweiten Objekt in das erste Minimum vom ersten fällt.

ergibt, was dem Rayleigh-Kriterium entspricht. Es lassen sich jetzt nicht nur die Bilder von δ -Funktionen, sondern auch von ausgedehnten Objekten bestimmen [82]. Es zeigt sich, dass sich das Bild aus der Faltung der Gegenstandsfunktion mit der Systemantwortfunktion berechnen lässt

$$g(x) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x-x') \cdot \frac{\sin\left(x' \frac{\omega}{c_0} \sin \vartheta\right)}{x'} dx \quad (\text{Gl. 2.70})$$

Da jedes noch so kleine Objekt eine endliche Breite durch das beobachtende System erhält, stellt sich nun die Frage, wie man die Auflösung erhöhen kann, um noch kleinere Objekte beobachtbar zu machen. Betrachtet man Gleichung 2.69, so scheinen zwei Methoden sinnvoll und auf Anhieb realisierbar: Zum einen sollte sich die numerische Apertur des Systems vergrößern lassen. Dadurch vergrößert man den Akzeptanzwinkel und damit $k_{x, \max}$ für ankommendes Licht. Dies wird mit Hilfe von Immersionsöl in sog. „*Immersionsmikroskopen*“ erreicht, bei dem das zu beobachtende Objekt in das hochbrechende Öl getaucht wird. Die erzielte Vergrößerung ist dabei um einen Faktor 1,5 bis 2 größer als bei normalen Lichtmikroskopen. Zum anderen kann die Wellenlänge weiter verkleinert werden. Arbeitet man dabei nicht nur mit Licht sondern auch mit Elektronen, so kann die Wellenlänge bis auf einige nm verringert werden. Dies ist leicht ersichtlich, wenn man sich die de-Broglie-Beziehung ins Gedächtnis ruft, die einem Impuls eines Teilchens, eine Wellenlänge zuordnet [83]. Dieses Verfahren findet in der Elektronenmikroskopie Verwendung.

Den eben genannten Verfahren zur Verbesserung der Ortsauflösung scheinen jedoch prinzipielle Grenzen gesetzt zu sein, sei es durch apparativen Aufwand oder durch die Restriktion der beobachtbaren Proben. Es gibt jedoch noch eine dritte Möglichkeit die Auflösung zu verbessern, die nicht aus Gl. 2.69 resultiert und im Folgenden vorgestellt werden soll.

2.3.2 Nahfeldmikroskopie

Wie oben gezeigt wurde, hängt die Auflösungsbegrenzung eines Mikroskops mit der Einschränkung des Integrationsbereiches zusammen, die ihrerseits aus der Bedingung für propagierende Wellen (Gl. 2.67) resultiert. In Abbildung 2.2(a) wurde gezeigt, dass es neben den propagierenden auch nichtpropagierende „evaneszente“ Wellen gibt, wenn man einen Körper beleuchtet. Diese sind dadurch gekennzeichnet, dass die Feldstärke exponentiell mit dem Abstand vom Objekt abnimmt und sie deshalb sehr stark in der Nähe des Objektes lokalisiert sind (Abb. 2.14(a)). Die exponentielle Abnahme des Feldes ist aber gleichbedeutend mit einem imaginären Wert des Wellenvektors in dieser Richtung (im Allgemeinen k_z). Für Gl. 2.67 bedeutet dies:

$$k_x^2 + k_z^2 = \left(\frac{n\omega}{c_0}\right)^2 \quad (\text{Gl. 2.71})$$

$$\Rightarrow k_x^2 = \left(\frac{n\omega}{c_0}\right)^2 - k_z^2 > k_{x, \max}^2 ,$$

wie Vigoureux und Courjon [82] zeigen konnten. Mit dem imaginär werdenden k_z wird der Integrationsbereich durch ein verändertes $k_{x, \max}$ vergrößert. Indem evaneszente Wellen mitberücksichtigt werden, kann also die Auflösung des Mikroskops entscheidend vergrößert werden. Wie Wolf und Nieto-Vesperinas [84] zeigten, treten evaneszentes und propagierendes Feld bei einem beleuchteten Objekt und einer sub- λ -Apertur gleichzeitig auf (vgl. Abb. 2.14 (a) und (b)). Die Frage, die es noch zu klären gilt, ist, wie man diese evaneszenten Moden nun detektieren kann, da sie schließlich nicht propagieren. Die Lösung zu diesem Problem ist schematisch in Abb. 2.14 (c) und (d) dargestellt. Ein zweites Objekt, das in den Nahfeldbereich des ersten Objektes gebracht wird, wirkt seinerseits durch Anregung als Streuzentrum und erzeugt somit ein Nah- und Fernfeld. Dieses detektierbare Fernfeld 2 beinhaltet aufgrund seines Ursprungs sowohl die Information des Nahfeldes 1 als auch die des 2. Objektes. Man kann also das erste Objekt „mikroskopieren“, muss sich aber immer vor Augen halten, dass die „Messspitze“ ebenfalls einen Einfluss ausübt.

Betrachtet man sich wieder die Fourier-Darstellung (vgl. hierzu auch Abb. 2.14(d)), so lässt sich das Absolutfeld in der Entfernung ε vom ersten Spalt (Objekt 1) berechnen zu:

$$E_1(x, \varepsilon) = \int_{-\infty}^{\infty} dk_x \tilde{E}(k_x, 0) e^{-i\varepsilon\sqrt{k^2 - k_x^2}} e^{-ik_x x} \quad (\text{Gl. 2.72})$$

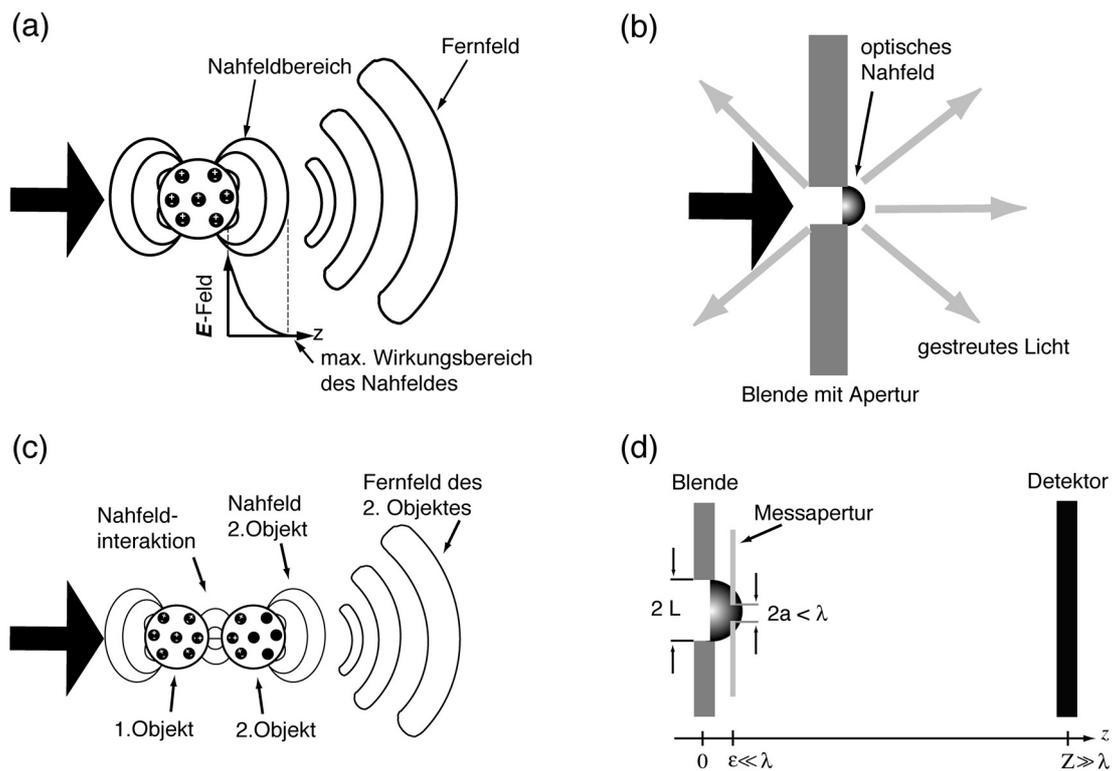


Abbildung 2.14: (a) Zur Erklärung des Nahfeldes durch Streuung an einem kleinen Objekt. Die Feldlinien, die noch am Objekt gebunden sind, markieren den Nahfeldbereich. Das Abklingen der Feldstärke geschieht in einer Entfernung, die mit dem Durchmesser des Objektes skaliert (nach [85]). (b) Schematische Darstellung der Streusituation an einer sub- λ Apertur (nach [85]). (c) Zur Erklärung der Nahfelddetektion mittels eines zweiten Objektes. In das Nahfeld des ersten Objektes wird ein zweites gebracht, dass nun durch Interaktion seinerseits ein Nah- und Fernfeld erzeugt. Diese hängen aber von der Struktur des ersten Objektes ab, so dass eine Bestimmung von diesem möglich wird (nach [85]). (d) Schematische Darstellung an einer Blende, was als Prinzip für ein Rasternahfeldmikroskop (SNOM) dient. Zur Erklärung der Größen siehe Text.

Nimmt man nun eine Apertur der Breite $2a$ im Abstand $z = \varepsilon$ (Objekt 2), so ist ihr Feld gegeben als $E_{Ap}(x, \varepsilon) = E_1 \cdot C(x, -a, a)$, wobei C die zweite Öffnung als Rechteckfunktion darstellt. Das sich nun ergebende gesamte propagierende Feld (Fernfeld 2) hat die Form:

$$E_2(x, z) = \int_{-\omega/c}^{\omega/c} dk_x e^{-ik_x x} e^{-i(z-\varepsilon)\sqrt{k^2 - k_x^2}} \quad (\text{Gl. 2.73})$$

$$+ \int_{-\infty}^{\infty} dk'_x \tilde{E}(k'_x, 0) e^{(-i)\varepsilon\sqrt{k^2 - k_x'^2}} \cdot \frac{2 \sin(k_x - k'_x) a}{(k_x - k'_x)} .$$

Betrachtet man sich vereinfachend nur eine spezielle Ortsfrequenz der Form:

$$E_{end}(x, z) = E e^{i\varepsilon\sqrt{k^2 - K^2}} \int_{-\omega/c}^{\omega/c} dk_x e^{-ik_x x} e^{-i(z-\varepsilon)\sqrt{k^2 - k_x^2}} \cdot \frac{2 \sin(k_x - K)a}{(k_x - K)} \quad (\text{Gl. 2.74})$$

Es ist nun leicht zu zeigen, dass Gl. 2.74 auch für $K > \omega/c$ ungleich Null ist, so dass diese Ortsfrequenzen bei der Bildentstehung ebenfalls eine Rolle spielen. Aus der Gleichung erkennt man außerdem, dass zwei Größen das Feld stark beeinflussen. Zum einen ist dies die Aperturbreite a des zweiten Objektes, zum anderen der Abstand ε der beiden Objekte zueinander. Die größte Auflösung wird sich somit für ein möglichst kleines Objekt erzielen lassen, das sehr nah an dem zu messenden Gegenstand ist.

Es existieren zwei Möglichkeiten das vorgestellte optische Nahfeldmikroskop (*NOM*) zu realisieren (eine gute Zusammenfassung findet sich in [86]). Im ersten Fall wird eine Glasfaser in das Nahfeld des beleuchteten Objektes positioniert und das so erzeugte Licht (Fernfeld 2) durch diese hindurch zum Detektor geleitet (*collection mode*). Der Signalweg lässt sich auch umkehren und in diesem Fall beleuchtet man das Objekt mit Hilfe des Nahfeldes, das aus der Spitze der Faser kommt (vgl. Abb. 2.15). Dieser Modus, als *illumination mode* bekannt, wird auch in der in dieser Arbeit benutzten Apparatur verwendet. Wie man in Abb. 2.15 erkennt, wird das zur Objektbeleuchtung benutzte Nahfeld schon in der Faser erzeugt. Das geschieht dadurch, dass bei der Verjüngung des Kerndurchmessers dieser eine kritische Schwelle unterschreitet und somit selbst die HE_{11} -Mode nicht mehr bei der Propagation unterstützt, d.h. die Faser fungiert nicht mehr als Wellenleiter. Es findet nun eine Totalreflexion statt und dabei wird das evaneszente Feld erzeugt. Da das Feld exponentiell abfällt, reicht seine Ausdehnung noch in den Raum vor der Faser. Dabei ist die Reichweite von dem Aperturdurchmesser der Faser und der Länge der Spitze abhängig. Bringt man eine Probe in dieses Nahfeld, so werden, wie schon oben gezeigt wurde, propagierende Wellen erzeugt, die dann mit einem Photomultiplier detektiert werden können. Rastert man die Probe nun in x - und y -Richtung ab, erhält man ein optisches Bild der Oberfläche. Das so entstandene Mikroskop trägt den Namen *Rasternahfeldmikroskop* (*SNOM*). Es konnte experimentell [24, 87, 88] gezeigt werden, dass die erreichbare Auflösung wie erwartet nur von dem Aperturdurchmesser abhängt.

$$\begin{aligned}
E_x &= ikz - \frac{2}{\pi} ikau \left\{ 1 + v \operatorname{atan} v + \frac{1}{3} \frac{1}{u^2 + v^2} + \frac{x^2 - y^2}{3a^2(u^2 + v^2)(1 + v^2)} \right\} \\
E_y &= -\frac{4ikxyu}{3\pi a^2(u^2 + v^2)(1 + v^2)^2} & E_z &= \frac{4ikxv}{3\pi(u^2 + v^2)(1 + v^2)} \\
H_x &= -\frac{4xyv}{\pi a^2(u^2 + v^2)(1 + v^2)^2} & H_z &= -\frac{4ayu}{\pi a^2(u^2 + v^2)(1 + v^2)} \\
H_y &= 1 - \frac{2}{\pi} \left\{ \operatorname{atan} v + \frac{v}{u^2 + v^2} \right\} + \frac{2(x^2 - y^2)v}{\pi a^2(u^2 + v^2)(1 + v^2)^2} \quad ,
\end{aligned} \tag{Gl. 2.75}$$

wobei x, y, z die kartesischen Koordinaten sind, u, v, φ die oblat sphäroidale Koordinaten und k und a der Wellenvektor bzw. der Aperturradius sind. Zwischen den einzelnen Koordinatensystemen kann man folgende Transformationsvorschriften anwenden:

$$z = auv \quad x = a\sqrt{(1-u^2)(1+v^2)} \cos \varphi \quad y = a\sqrt{(1-u^2)(1+v^2)} \sin \varphi$$

wobei $0 \leq u \leq 1$, $-\infty < v < \infty$ und $0 \leq \varphi \leq 2\pi$ gilt. Insbesondere gilt dann $v = 0$ innerhalb der Apertur, $u = 0$ auf dem Schirm oder $u = 1$ in der Aperturmitte sowie $x = y = 0$ im Zentrum der Blendenöffnung. Will man nun die Abstandsabhängigkeit der Felder bestimmen (vgl. Kap. 4.2), so sollte zuerst entlang der Mittelpunktsachse gemessen werden, da für diesen Fall die Gleichungen eine besonders einfache Form annehmen und man die theoretischen Voraussagen mit den experimentell ermittelten Werten vergleichen kann.

$$\begin{aligned}
E_x &= ikz - \frac{2}{\pi} ika \left\{ 1 + v \operatorname{atan} v + \frac{1}{3} \frac{1}{u^2 + v^2} \right\} \\
H_y &= 1 - \frac{2}{\pi} \left\{ \operatorname{atan} v + \frac{v}{1 + v^2} \right\} \\
E_y &= E_z = H_x = H_z = 0
\end{aligned} \tag{Gl. 2.76}$$

Erste experimentelle Untersuchungen fanden mit Mikrowellen in den 1950er Jahren statt [105-107], und die theoretischen Voraussagen konnten bestätigt werden. Mit Aufkommen der Nahfeldmikroskopie in der 1980er Jahren [24] wurden die Voraussetzungen ein wenig geändert. Es gab zwar immer noch die zirkuläre sub- λ Apertur, doch das eingestrahlte Licht kam durch einen Wellenleiter als nicht ebene Welle auf die Öffnung. Leviatan [93] konnte zeigen, dass die Abhängigkeit des Signals vom Abstand drei markante Entfernungen aufweist. Der erste Bereich ($0 \leq z \leq 10a$) wird als Nahbereich bezeichnet und lässt sich nur durch die exakte Feldformulie-

rung (Gl. 2.75) beschreiben. Im sogenannten Zwischenbereich ($10a \leq z \leq \lambda/2$) kann das Verhalten mit Hilfe eines Dipolansatzes approximiert werden, es müssen jedoch auch die Nahfeldkomponenten berücksichtigt werden. Im Fernfeldbereich ($z > \lambda/2$) reichen zur Beschreibung die bekannten propagierenden Dipolfelder aus. Zur Bestimmung der Feldverteilung gibt es aber keine geschlossen analytischen Lösungen mehr, und der Schwerpunkt der theoretischen Untersuchungen liegt heutzutage in der Simulation der austretenden Felder mit Hilfe numerischer Methoden.

Kapitel 3

Experimentelles

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Rasternahfeldmikroskop so in ein fs-Lasersystem eingebunden, dass es dadurch möglich wurde, dünne metallische Filme durch Erzeugung der zweiten Harmonischen an der Oberfläche – bedingt durch das Nahfeld des Lichtes – in Transmission zu untersuchen.

Dieses Kapitel widmet sich nun der Realisierung des durchgeführten Experimentes. Dabei soll zuerst die verwendete Messgeometrie im Vergleich mit anderen Möglichkeiten betrachtet werden (Kap. 3.1). Anschließend wird auf die notwendigen Aufbauten eingegangen, wobei die Funktion einiger wichtiger Elemente näher erläutert wird. Als erstes betrachten wir uns das Rasternahfeldmikroskop (*SNOM*) und seine Realisierung (Kap. 3.2), sowie die Herstellung der Nahfeldsonden (Kap. 3.3), ehe dann das fs-Lasersystem und die Integration des *SNOMs* in selbiges in den Blickpunkt gerückt werden (Kap. 3.4).

3.1 Vergleich der Messgeometrien

Das verwendete *SNOM* wurde als Apertur-*SNOM* im sog. *illumination mode* in der Arbeitsgruppe entwickelt [108, 109] und aufgebaut. Die Frage, die sich nun stellt, ist, warum dieser Betriebsmodus auch im Aufbau mit dem fs-Laser eingesetzt wurde, obwohl durch die Überlegungen zur Pulsausbreitung in Medien (vgl. Kap. 5) klar sein sollte, dass gravierende Schwierigkeiten auftreten müssten.

Betrachten wir uns hierzu die möglichen Messkonfigurationen, die zur Verfügung stehen (Abb. 3.1). Es handelt sich dabei um die aperturlose Konfiguration (Abb. 3.1 (a)) und die beiden Apertur-Konfigurationen des *illumination* und *collection mode* (Abb. 3.1 (b) und (c)).

Beim aperturlosen *SNOM* wird die Spitze eines Rastertunnel- oder eines Rasterkraftmikrosko-

pes über der zu untersuchenden Oberfläche positioniert. Ein Laserstrahl beleuchtet dabei die Probe und die Spitze von der Seite. Nun treten die Nahfeldeffekte bei Annäherung der Spitze an die Probenoberfläche als Felderhöhung zwischen Spitze und Probe auf [31]. Sie hängen dabei stark von der Entfernung der Spitze zur Probenoberfläche sowie von der Spitzengeometrie und dem Material der Spitze ab.

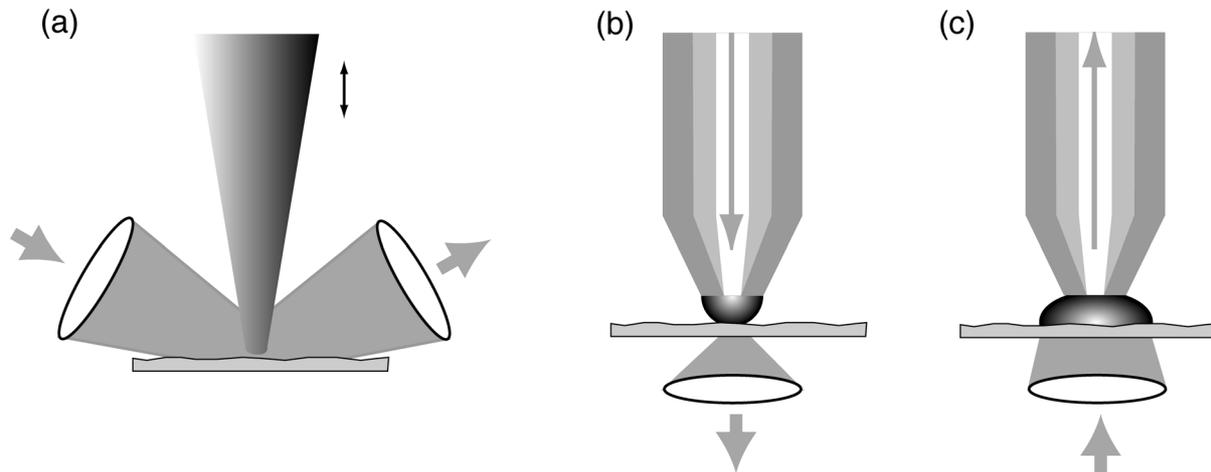


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der am häufigsten verwendeten SNOM-Messkonfigurationen. (a) Aperturloser Aufbau mit seitlicher Beleuchtung von Probe und Spitze. (b) Apertur-SNOM im illumination mode. Die Beleuchtung geschieht durch die Apertur in der Glasfaser. (c) Apertur-SNOM im collection mode. Die Probe wird mit dem Laser beleuchtet und mit Hilfe der Glasfaser wird das Licht aus dem Nahfeldbereich eingesammelt.

Vorteile dieser Messanordnung – auch im Hinblick auf die Verwendung von fs-Lasern als Lichtquelle – sind:

- Eine hohe optische Auflösung, die durch optimierte Spitzengeometrien erreicht wird. Es sind dabei schon Auflösungen im Bereich weniger nm erzielt worden [26].
- Eingangs- sowie Ausgangspolarisation sind definiert einstellbar und damit gut messbar.
- Dadurch, dass nur wenig dispersives Material im Aufbau vorhanden ist, muss man sich keine Gedanken um mögliche Dispersionen und Nichtlinearitäten machen.

Es wird deutlich, dass der Aufbau mit – durch das Fehlen der Glasfaser als Apertur – geringem Aufwand zu realisieren ist. Den erwähnten Vorteilen stehen jedoch für die Qualität der Messung gravierende Nachteile entgegen:

- Die Beleuchtung eines großen Bereiches der Probe führt zu Sekundäreffekten, welche die zu untersuchende Größe überdecken könnten. Zu diesen Effekten zählen eine Aufheizung der Probe – bis hin zur Ablation des Filmes – durch die hohen Intensitäten und Felder sowie eine direkte Wechselwirkung des Laserlichtes mit der Probe.
- Man hat einen hohen Signaluntergrund, der durch das eingestrahlte Licht hervorgerufen wird.

- Die Quelle der nichtlinearen Wechselwirkung, insbesondere die Erzeugung der zweiten Harmonischen, ist nicht mehr lokalisierbar. Vielmehr ist das Signal eine Mischung der Signale der Interaktionen Spitze-Probe, Licht-Spitze und Licht-Probe.

Diese Ununterscheidbarkeit in der Signalentstehung lässt eine zweifelsfreie Interpretation der erzielten Ergebnisse nicht zu, weshalb diese Messgeometrie für den in dieser Arbeit durchgeführten Aufbau nicht verwendet wurde.

Es bleiben somit noch die beiden Geometrien des Apertur-*SNOMs*. Eine gute Auflistung der prinzipiellen Unterschiede des *collection* und *illumination mode* sind in [86] dargestellt. Hier soll nur auf die Unterschiede in Kombination mit fs-Laserpulsen eingegangen werden, die im Folgenden aufgelistet sind:

<i>collection mode</i>	<i>illumination mode</i>
<ul style="list-style-type: none"> • Keine Dispersion oder nichtlineare Effekte vor der Probe. • Beleuchtung eines großen Probenbereiches mit einem fokussierten Laserstrahl. • SH-Signal stammt nicht nur von der Probenoberfläche sondern auch von der Spitze. Es gibt keine Möglichkeit der Unterscheidung. • Durch die für die SH-Erzeugung notwendigen Intensitäten sind nur unbedampfte Glasfasern benutzbar, wodurch jedoch die optische Auflösung verringert wird. • Gute Kontrolle der Eingangspolarisation. • Einfache Realisierung von <i>s</i>- und <i>p</i>-Polarisation zur Auswahl bestimmter Elemente des Suszeptibilitätstensors. 	<ul style="list-style-type: none"> • Dispersion und nichtlineare Effekte treten bedingt durch den Durchgang durch die Glasfaser auf. • Nur der Probenbereich unter der Apertur wird durch das Nahfeld dieser beleuchtet. • SH-Signal, das nur von der Probenoberfläche stammt, ist realisierbar. • Weniger Eingangsintensität durch Fokussierwirkung der Glasfaser notwendig. Dadurch bleiben Bedampfung und Apertur der Faser größtenteils intakt und eine hohe optische Auflösung kann erzielt werden. • Kontrolle der Eingangspolarisation durch Doppelbrechung in der Faser eher schwierig. • Realisierung von <i>s</i>- und <i>p</i>-Polarisation kompliziert aber möglich.

Aus der obigen Aufstellung wird deutlich, dass beide Konfigurationen ihre Vor- und Nachteile besitzen. Dass die Wahl auf den *illumination mode* fiel, liegt darin begründet, dass eine höhere optische Auflösung erzielt werden kann. Außerdem ist die Tatsache, dass der Ursprung des gemessenen SH-Signales zweifelsfrei der Probenoberfläche zugeordnet werden kann, in dem Maße wertvoll, dass die Interpretation auftretender Phänomene erleichtert wird und in den

meisten Fällen eindeutig ist.

Da nun die Gründe für die Verwendung des *illumination mode* als Messkonfiguration erläutert wurden, soll im Nachfolgenden kurz auf den Aufbau des *SNOMs* und die Technik der Abstandskontrolle sowie auf die Herstellung der Aperturen eingegangen werden.

3.2 Das Rasternahfeldmikroskop

Das *SNOM* – nachfolgend, durch das kontinuierliche Laserlicht, auch *cw-SNOM* genannt – ist im engeren Sinne eine Kombination zweier Analysetechniken. Die erste widmet sich der topographischen Darstellung der Probe, die sie durch eine rasterförmige Abtastung der Oberfläche erreicht. Die zweite bezieht sich auf die Analyse der optischen wie auch – mit Hilfe von Magnetfeldern – der magnetooptischen Eigenschaften der Probe. Ein schematischer Aufbau ist in Abbildung 3.2 dargestellt und ausführlich in [108, 109] beschrieben.

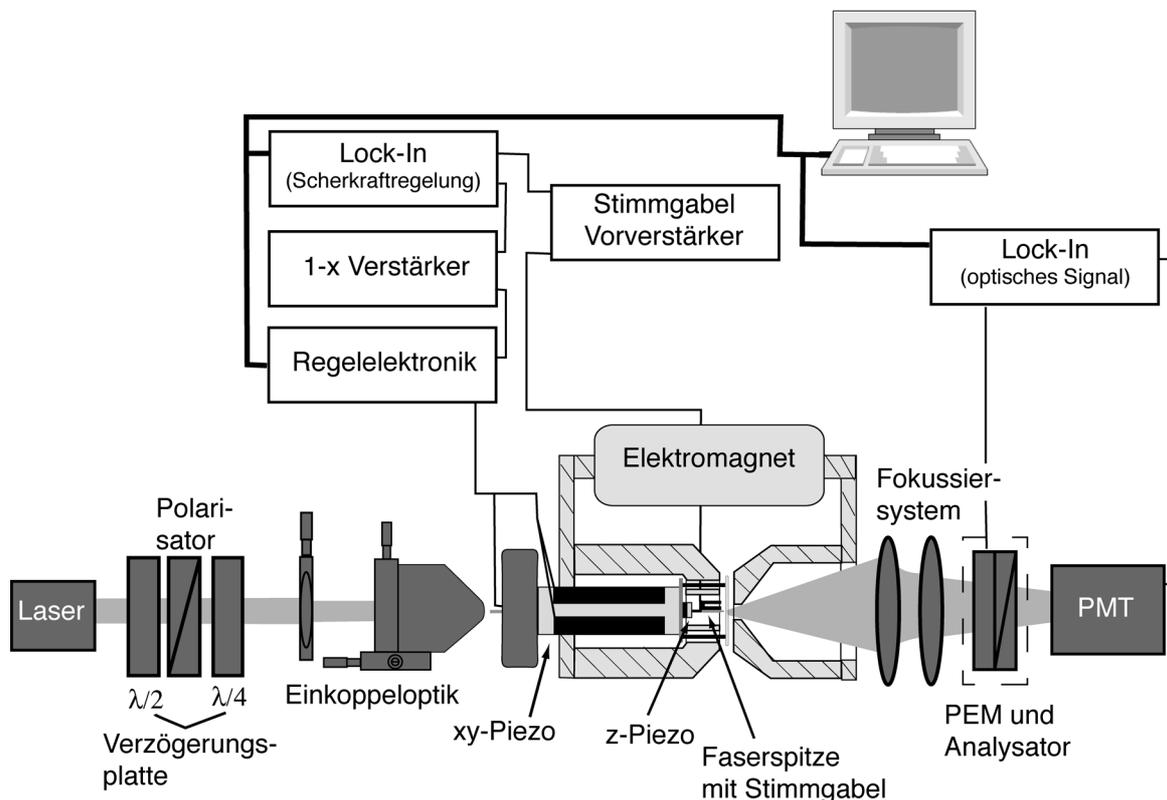


Abbildung 3.2: Schematischer Messaufbau des *SNOMs* in Transmission.

Der für die Topographie zuständige Teil besteht im Wesentlichen aus zwei Piezoröhrchen. Das äußere der beiden, an dem die Probe befestigt wird, ist vierfach segmentiert und kann somit bei geeignet angelegten Spannungen die Probe in *x*- und *y*-Richtung bewegen. Damit ist ein laterales Abtasten der Probenoberfläche möglich. Der zweite Piezo dient der *z*-Auslenkung. Er bewegt dabei die Faser als Messsonde senkrecht zur Probenoberfläche und steuert so den Abstand

zwischen Spitze und Probe. Die Glasfaser ist ihrerseits mit Sekundenkleber an einem Zinken einer Quarzstimmgabel befestigt. Diese, in Resonanz zu Schwingungen angeregt, lässt die Faser nun lateral zur Oberfläche schwingen (Schwingungsamplitude im Bereich 1-5 nm). Nähert sich die so schwingende Faserspitze der Oberfläche, tritt aufgrund der Wechselwirkung zwischen Spitze und Probe eine Dämpfung der Schwingungsamplitude ein [110]. Das Stimmgabelsignal wird nun mittels Lock-In und Regelelektronik ausgewertet. Dabei regelt man die Spannung des z -Piezos so, dass das Regelsignal (also die Amplitude der Stimmgabel) konstant bleibt. Diese eingebrachte Steuerspannung wird vom Computer in Abhängigkeit der x - und y -Position ausgewertet und gibt das topographische Abbild der Oberfläche. Als Beispiel zeigt Abb. 3.3 (a) die Topographie eines Gitters (Bildausschnitt ist $3.7 \times 2.5 \mu\text{m}^2$ groß), das in Glas geätzt wurde. Das Linienprofil, das senkrecht zu den Strukturen aufgenommen wurde, gibt die Daten des Herstellers (Periode von 289 nm mit einer Höhe von etwa 10 nm)¹ gut wieder. Dass die

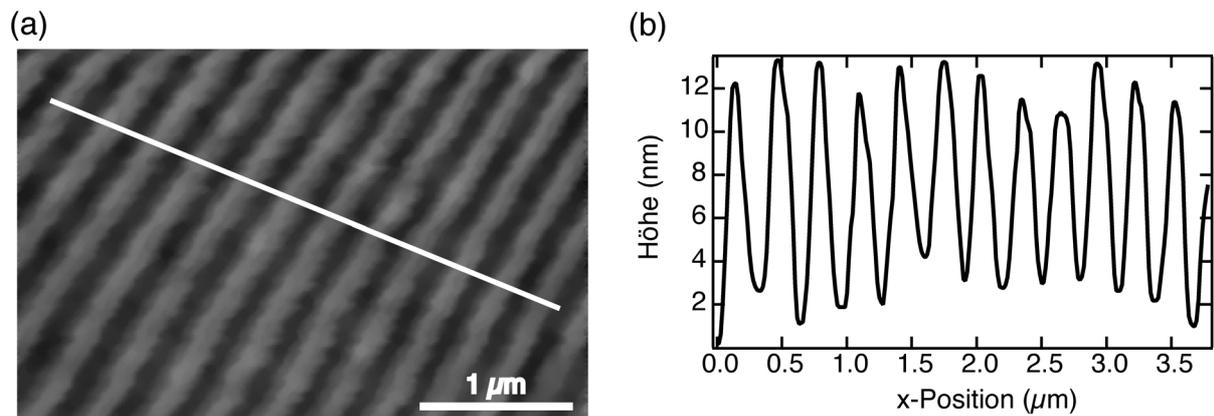


Abbildung 3.3: (a) Topographie eines in Glas geätzten Gitters mit einer Periode von 289 nm, wie sie mit dem SNOM aufgenommen wurde. (b) Linienprofil aus (a), das senkrecht zu den Gitterstrukturen liegt. Die Höhe des Gitters beträgt demnach 10 nm bei einer Periode von etwa 295 nm.

Gitterstufen im unteren Teil des Bildes eine leichte Krümmung aufweisen, liegt daran, dass der xy -Piezo während der Messung noch eine leichte Drift aufwies.

3.2.1 Abstandsregelung

Die Scherkraftregelung versetzt einen also in die Lage, das topographische Profil einer Probe aufzunehmen, in dem die Spitze in einem bestimmten Abstand über die Probenoberfläche rastert. Diesen stellt man mit Hilfe der Rückkoppelung so ein, dass eine bestimmte Stimmgabelamplitude, also ein bestimmter Abstand von der Probe konstant gehalten wird.

1. Angaben der Firma Collischon-Optik, die das Gitter hergestellt hat.

Abbildung 3.4(a) zeigt das Verhältnis der Amplitude zum Abstand Spitze-Probe. Mit ihrer Hilfe können aber auch die Wechselwirkungsmechanismen, die zu dieser Schwingungsdämpfung führen, analysiert werden [111]. Betrachtet man sich das Stimmgabelsignal während der Annäherung, so sieht man eine Amplitudendämpfung bei dissipativer Wechselwirkung und eine Resonanzverschiebung bei elastischer Wechselwirkung. Im Allgemeinen finden jedoch beide Wechselwirkungsvarianten statt (vgl. Abb. 3.4(b)). Eine Auswertung von Real- und Imaginärteil der Schwingung [112] liefert nun Dämpfungs- und Federkonstante und zeigt bei verschiedenen Oberflächen verschiedene Dämpfungsmechanismen [113].

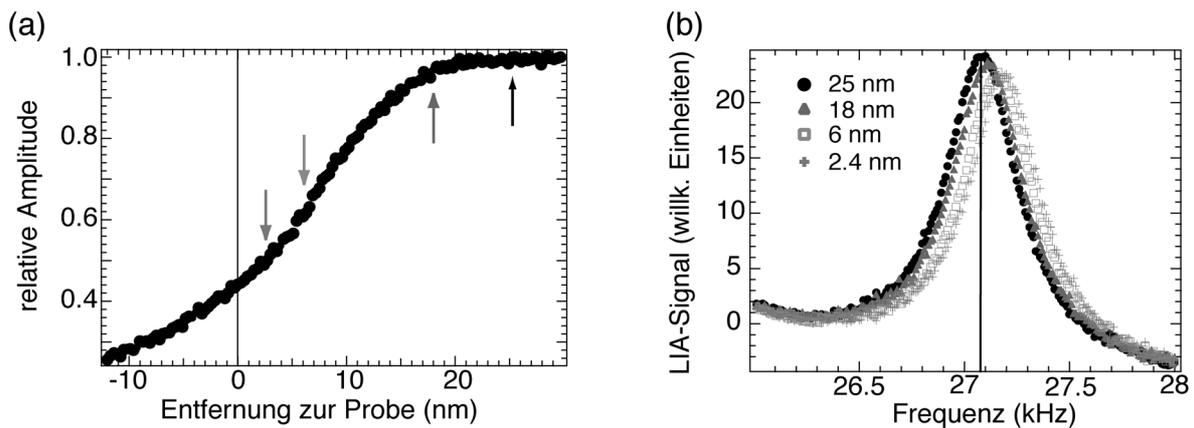


Abbildung 3.4: Aufnahme des Stimmgabelsignals bei Annäherung an eine Cu-Oberfläche in Luft. (a) Distanzkurve bei der in (b) markierten Frequenz. Die Pfeile markieren die Positionen für die Messung der Resonanzkurven in (b). (b) Resonanzkurven in verschiedenen Entfernungen von der Probe. Man erkennt, dass nicht nur eine Amplitudendämpfung stattfindet, sondern auch eine Verschiebung der Resonanzfrequenz.

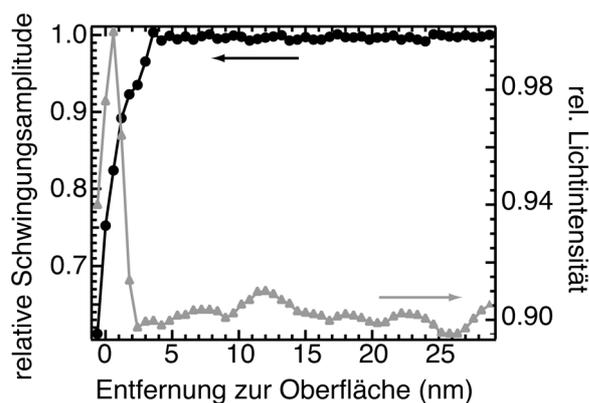


Abbildung 3.5: Distanzkurve gemessen mit beleuchteter Apertur. Dargestellt ist die Stimmgabelamplitude (schwarz) und die Lichtintensität (grau). Man erkennt einen deutlichen Anstieg der Lichtintensität, wenn die Spitze in den Nahfeldbereich der Probe gelangt.

In diesem Zusammenhang soll noch eine zweite Variante der Abstandsregelung erwähnt werden, die meist in Kombination mit der Scherkraftregelung benutzt wird [86]. Führt man die Annäherung an die Probe mit einer beleuchteten Apertur durch, so stellt man fest, dass die gemessene Lichtintensität in Transmission über einen weiten Teil der Annäherung konstant bleibt (Abb. 3.5). Bei Beginn der Wechselwirkung – hier durch die gleichzeitige Aufnahme des Stimmgabelsignals bestimmt – steigt die gemessene Intensität

stark an. Dies ist damit erklärbar, dass das aus der Spitze austretende evaneszente Licht an die

Oberfläche der Probe ankoppelt und somit wieder ein propagierendes Feld erzeugt (vgl. Kap. 2.3.2), was dann als Anstieg in der Intensität detektierbar ist. Es findet also eine Verstärkung des Lichtes statt. Der Abfall, der bei weiterem Annähern sichtbar ist, liegt vermutlich daran, dass die Spitze nun in die Probenoberfläche gedrückt wird und damit das evaneszente Feld gestört wird.

Setzt man sich aber mit dem Rückkoppelmechanismus an die ansteigende Flanke auf einen bestimmten Wert, so lässt sich dieses optische Signal zur Steuerung des Abstandes der Spitze zur Probenoberfläche benutzen.

3.2.2 Optischer Teil des Rasternahfeldmikroskops

Der optische Teil des *SNOMs*, wie in Abb. 3.2 dargestellt, besteht aus einem Beleuchtungs- und einem Analysestrang. Der Teil zur Beleuchtung der Probe besteht aus einem Laser, einer Kombination aus einer $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und einem Glan-Polarisator, mit der die einfallende Intensität und Polarisation kontrolliert werden können und einer $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte zur Kompensation der Elliptizität, die durch die Faser verursacht wird. Zur Einkopplung in die Glasfaser wird eine Linse (Feinjustage des Fokusses) und ein Mikroskopobjektiv, das in alle drei Raumrichtungen bewegt werden kann, benutzt.

Der Analysestrang besteht aus einer oder zwei Sammellinsen, einer drehbaren Einheit aus photoelastischem Modulator (*PEM*) und Glan-Polarisator sowie einem Photomultiplier. Da, durch die Apertur bedingt, sehr geringe Intensitäten gemessen werden und dabei das Signal-zu-Rausch-Verhältnis groß sein soll, bietet es sich an, die zu messende Größe zu modulieren. Bei den mit dem *SNOM* getätigten optischen Messungen ist die Polarisation die Messgröße, so dass sie mit Hilfe des *PEM* moduliert wird. Die Modulation wird dadurch erreicht, dass die Doppelbrechung des im *PEM* befindlichen Quarzplättchens mittels einer akustischen Welle ($f=50\text{kHz}$) verändert wird. Die dabei resultierende Verschiebung zwischen der parallelen und der senkrechten Feldkomponente wird über die Amplitude der akustischen Welle geregelt, so dass eine feste Verzögerung eingestellt werden kann (hier $\lambda/2$). Werden *PEM* und Analysator in einem festen Winkel zueinander ($\varphi=45^\circ$) montiert und die Modulationsfrequenz als Referenz in einen Lock-In gespeist, so liefert die Auswertung des Intensitätssignals bei der einfachen und doppelten Referenzfrequenz [108]

$$\begin{aligned} \omega : \quad & I_{Det} \propto |\sin 2\eta_F| \\ 2\omega : \quad & I_{Det} \propto |\cos 2\eta_F \cdot \sin 2(\vartheta_F - \varphi)| \quad , \end{aligned}$$

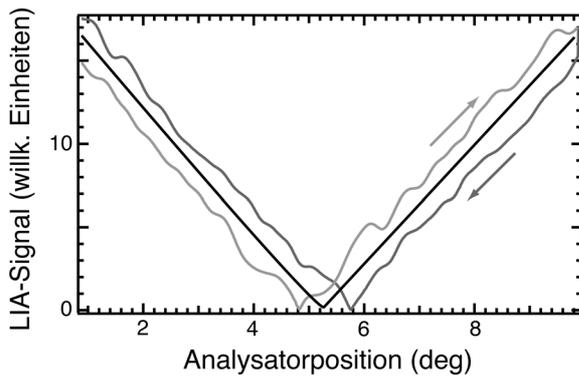


Abbildung 3.6: Experimentell aufgenommene V-Kurven. Es wird im Hin- und Rückweg gemessen, um Messfehler, durch die Zeitkonstante des Lock-Ins auszugleichen. Der Mittelwert der Kurven ergibt das korrekte Minimum (schwarze Kurve).

ein direktes Maß für die Faraday-Elliptizität (η_F) und -Rotation (ϑ_F) sowie deren Änderung während der Messung.

Misst man in einem kleinen Bereich um das Minimum herum, so erhält man sog. „V-Kurven“, die in erster Näherung durch $|\sin x| \approx |x|$ approximiert werden können. Experimentell werden zwei V-Kurven in entgegengesetzter Richtung aufgenommen (Abb. 3.6), da durch die Zeitkonstante des Lock-In eine Verzögerung in der Aufzeichnung eintritt. Der Mittelwert beider Kurvenminima ergibt dann den Nullpunkt und damit ϑ_F .

Stellt man den Analysator auf einen festen Wert in der Nähe des Minimums, lassen sich Bilder mit Polarisationskontrast aufnehmen. Abbildung 3.7(a) zeigt das optische Bild des in Abb. 3.3

mit Polarisationskontrast aufnehmen. Abbildung 3.7(a) zeigt das optische Bild des in Abb. 3.3

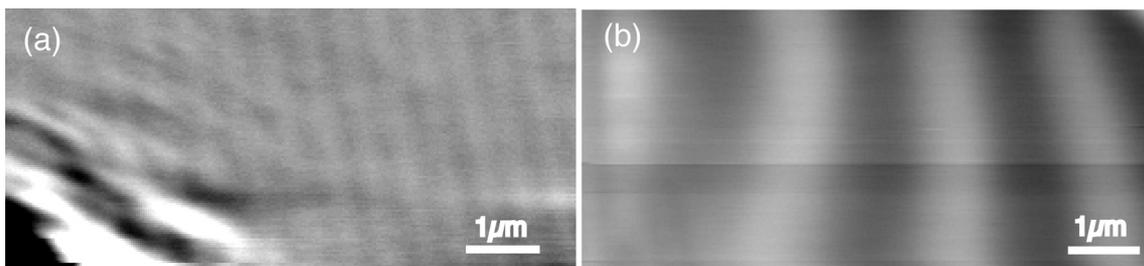


Abbildung 3.7: (a) Optisches Bild des in Abb. 3.3 dargestellten geätzten Gitters. Die Unregelmäßigkeit am linken unteren Rand kommt durch einen Kratzer im Gittersubstrat zustande. (b) Optisches Bild – Bildgröße $7 \times 3 \mu\text{m}^2$ – eines ferromagnetischen Granatfilmes. Die Domänengröße beträgt $1 \mu\text{m}$; die Topographie zeigte keine auflösbare Struktur.

vorgestellten geätzten Glasgitters, bei dem der Kontrast durch Änderungen in der Spannungsdoppelbrechung des Glases, wie auch durch die Nahfelderhöhung an Strukturen hervorgerufen wird. Demhingegen beruht der Kontrast in Abb. 3.7(b) – gezeigt ist die Domänenstruktur eines ferromagnetischen Granatfilmes – auf der magnetooptischen Wechselwirkung zwischen der Magnetisierung der Probe und der Polarisation des Lichtes. Des Weiteren lassen sich mit Hilfe eines Magneten, magnetooptische Hysteresekurven im Nahfeld aufnehmen. Abbildung 3.8 zeigt eine solche Hysteresemessung an einer CoPt-Multilagenprobe. Die Messung erfolgte im *fs-SNOM* auf der Laserlinie ($\lambda=820\text{nm}$). Die in die Kurve gezeichnete graue Linie soll nur der Orientierung dienen. Die ermittelte Faraday-Rotation beträgt 0.2° und stimmt mit vorher bestimmten Drehungen an ähnlichen Filmen [109] überein. Die erwartete Hysterese ist aber nur

mit Mühe erkennbar. Dies liegt an den Schwankungen der Polarisation mit der Zeit, die durch

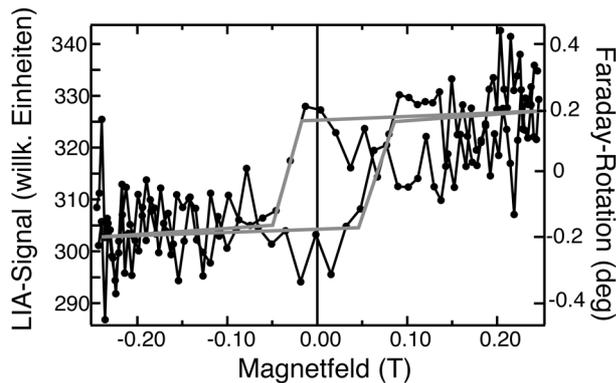


Abbildung 3.8: Magnetooptische Nahfeldhysteresekurve einer CoPt-Multilagenprobe im fs-SNOM. Die graue Linie dient der Orientierung. Man erkennt das niedrige Signal-zu-Rausch-Verhältnis, das durch Polarisationschwankungen hervorgerufen wird.

die Doppelbrechung in der Faser einerseits und nicht perfekter Einkopplung andererseits bedingt werden. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis liegt bei etwa 2:1, was einer Auflösung des SNOMs von 0.1° entspricht. Stellt man diese zeitliche Schwankungen über die Zeit aufgetragen dar (Abb. 3.9(a)), so erkennt man, dass die Drift über den Bereich möglicher in Materialien anzutreffenden Faraday-Rotationen liegt. Will man diese Schwankungen verhindern, so muss man gegen die Ursachen – Doppelbrechung und

Einkopplung – angehen. Der Spannungsdoppelbrechung in der Glasfaser kann man durch einen thermischen Ausheilprozess begegnen [114], jedoch ergab die Verwendung solcher Fasern mit fs-Pulsen (Kap. 5.3) eine Änderung der Wellenleitungseigenschaften mit gleichzeitiger Erhöhung der Pulsbreite, weshalb dieser Schritt nur in dem cw-SNOM ausgeführt werden konnte. Weiterhin zeigte sich, dass durch eine längere Standzeit, die thermisch induzierten Spannungen kompensiert werden konnten. Einen gravierenden Einfluss auf das Polarisationsverhalten hat auch die Einkopplung in die Faser. Nur bei perfekter Einkopplung kann in der Faser die TEM_{00} -Mode ungestört propagieren. Ist die Einkoppleffizienz nicht maximal, so ergeben sich durch die jetzt auftretenden Mantelmoden unvorhersagbare Polarisationsdrehungen. Da bei einer für die Messung fertiggestellten Faser – die Faser ist vorne spitz und bedampft – die Einkopplung mit Hilfe der austretenden Intensität nur geschätzt werden kann, wurde im cw-SNOM eine Erweiterung getestet. Dabei wird das Laserlicht zuerst in ein Stück glatt geschnittener Faser eingekoppelt; hier lässt sich die Einkopplung durch die Identifikation der TEM_{00} -Mode kontrollieren. Die Messfaser wird daraufhin in einem Splice an das kurze Faserstück angebracht. Das austretende Licht aus der ersten Faser wird dabei direkt in die zweite Faser eingekoppelt, ohne die TEM_{00} -Mode zu stören. Damit ist es möglich, die Einkopplung für jede Messung exakt einzustellen. Abbildung 3.9(b) zeigt das zeitliche Verhalten der Polarisation nachdem die Einkopplung kontrollierbar wurde. Im Vergleich zu der Messung in (a) ist die Drift hier geringer, so dass die Auflösung der Messungen stark verbessert werden konnte.

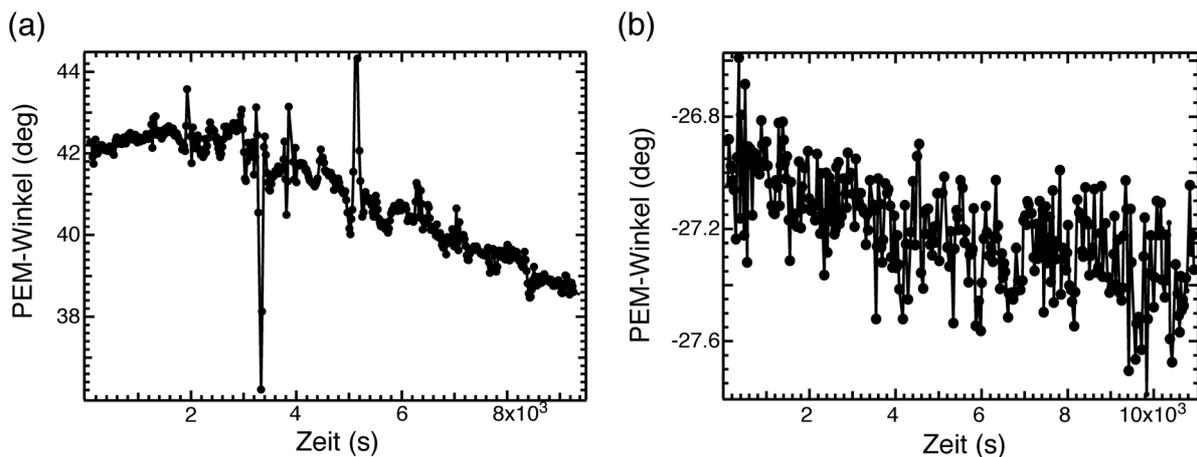


Abbildung 3.9: (a) Zeitliches Verhalten der Polarisation bei nicht kontrollierter Einkopplung. Die Langzeitdrift ließe sich noch herausrechnen, doch die Ereignisse, die zu den Spitzen führen sind nicht vorhersagbar. (b) Zeitliches Verhalten der Polarisation bei kontrollierter Einkopplung. Man erkennt, dass gegenüber (a) keine unkontrollierten Polarisationsänderungen stattfinden.

3.3 Nahfeldsonden

Wie schon oben erwähnt wurde, soll das *SNOM* Proben mit Hilfe des optischen Nahfeldes abtasten, wobei die erzeugende Lichtquelle möglichst kleiner als die Wellenlänge sein soll. Da das Licht durch die Faser zur Probe geführt wird, bietet es sich an, diese für die Nahfelderzeugung zu verwenden. Bei der Herstellung dieser Apertur ist hohe Sorgfalt vonnöten, da sie nicht nur für das optische Auflösungsvermögen von Bedeutung ist. Vielmehr ist die entstehende Konusform der Faser auch für die topographische Auflösung, die eine Faltung aus Spitzenform und Probenoberfläche ist, entscheidend.

Die in der Arbeitsgruppe benutzten Methoden zur Erzeugung der sub- λ Apertur sollen nachfolgend kurz vorgestellt werden. Ein vollständigeres Bild geben folgende Arbeiten wieder [108, 109, 111].

3.3.1 Erzeugung einer Faserspitze

Es wurden zwei Möglichkeiten zur Herstellung einer Glasfaserspitze benutzt, die sich zum Standard entwickelt haben [115-118]. Zum einen handelt es sich dabei um einen chemischen Ätzprozess [115, 116], zum anderen um eine thermomechanische Variante, bei der das Glas aufgeheizt und am Fließpunkt auseinandergezogen wird [117, 118].

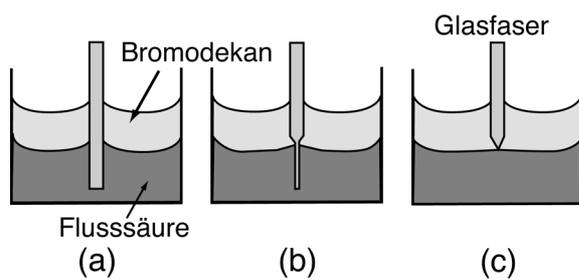


Abbildung 3.10: Verlauf des Ätzprozesses.

- (a) Eintauchen der Faser in die Flüssigkeit.
 (b) Ausbildung des Meniskus, der um so flacher wird, je dünner die Faser beim Ätzvorgang wird.
 (c) Ausbildung der Spitze und Selbstterminierung des Prozesses.

Der Ätzprozess zur Erzeugung einer Spitze ist in Abb. 3.10 dargestellt. Das Gefäß, in das die Glasfaser getaucht wird (a), wird mit 40%iger Flusssäure und einer Deckschicht geringerer Dichte und Grenzflächenspannung – in diesem Fall Bromodekan – gefüllt. Die Deckschicht ist wichtig, um die Faser zu schützen und den sich durch die Haftspannung bildenden Meniskus nach dem Eintauchen der Faser zu kontrollieren (b). Beim Ätzen wird die Glasfaser immer dün-

ner und der Meniskus wird flacher. Nach etwa einer Stunde bildet sich die Spitze aus und der Prozess stoppt selbständig (c). Der Öffnungswinkel der Spitze hängt dabei von der verwendeten Deckschicht ab und beträgt bei Bromodekan etwa 29° [115]. Bei der Benutzung anderer Deckschichtsubstanzen lassen sich je nach gewünschter Anwendung verschiedene Spitzenformen realisieren [85, 86]. Ein Nachteil dieser Methode besteht darin, dass der Öffnungswinkel der Spitze nicht nur auf die Deckschicht sondern auch auf die Reinheit der verwendeten Materialien sensitiv ist. Verunreinigungen führen dazu, dass die Spitzenform und die darauf aufgebraachte Apertur nicht immer reproduzierbar sind. Eine geätzte Faser ist in Abb. 3.12(b) gezeigt.

Die thermomechanische Erzeugung der Glasfaserspitzen erfolgt mit Hilfe eines Mikropipettenziehgerätes (P2000, Sutter Instruments Inc.), dessen Aufbau schematisch in Abb. 3.11 dargestellt ist. Die Glasfaser wird dabei mittels zweier Klemmen im Fokus des Zylinderspiegels gespannt. Der Ziehprozess erfolgt, nachdem die Faser durch einen 10 W CO_2 -Laser soweit aufgeheizt wurde, dass das Glas zu fließen beginnt. Ein Mikroprozessor ermittelt die Fließgeschwindigkeit und löst beim Erreichen eines vorher definierten Wertes den Zugmagneten aus. Die Faser wird dabei ruckartig auseinandergerissen und es entstehen zwei wohldefinierte Spitzen, deren Öffnungswinkel und Länge durch die eingestellten Parameter (Heizleistung und -dauer, Fließgeschwindigkeit und Zugkraft) definiert werden.

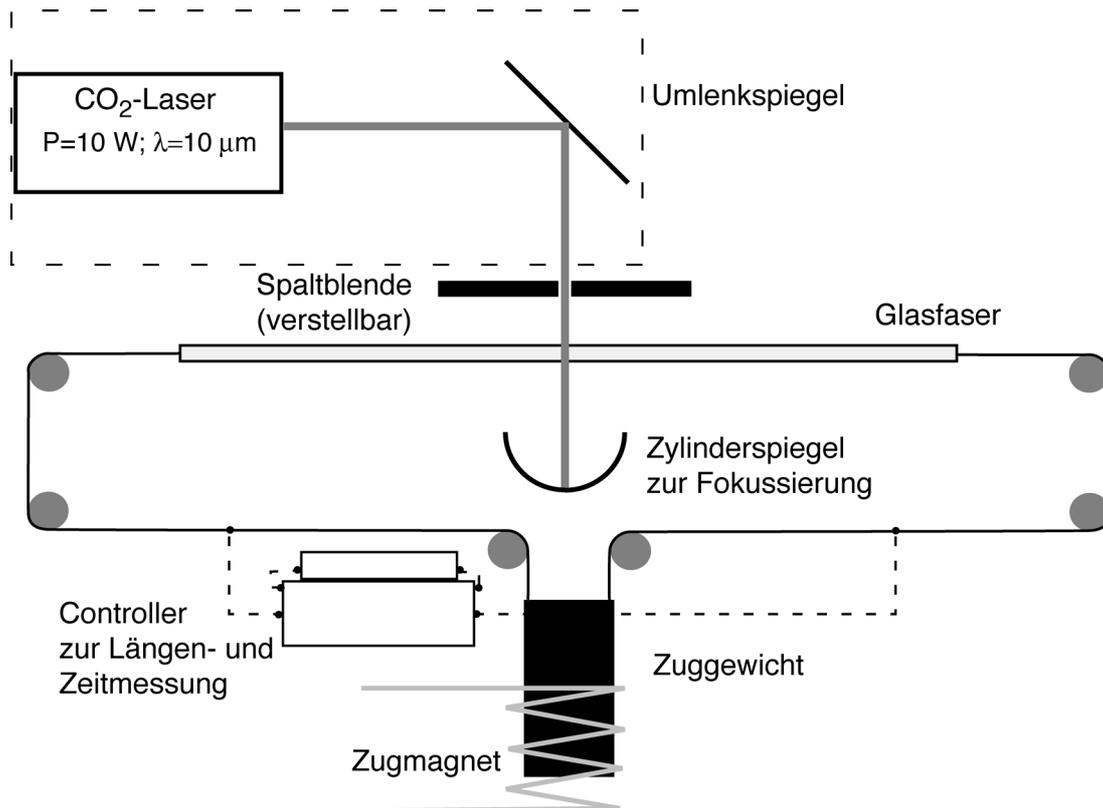


Abbildung 3.11: Schematischer Aufbau des Mikropipettenziehgerätes P2000 der Firma Sutter Instruments [119].

Der Vorteil dieser Herstellung ist, dass sich schnell gut reproduzierbare Spitzen erzeugen lassen. Nachteilig erweist sich jedoch, dass die Spitzen einen geringeren Öffnungswinkel als die geätzten Fasern aufweisen und dadurch relativ lang werden (Abb. 3.12(a)). Dies bedeutet auch, dass sie eine geringere Transmittivität des optischen Nahfeldes besitzen, da der Bereich des Feldabfalls zu groß wird (vgl. auch Kap. 2.3.2). Ein weiterer Nachteil dieser Präparationsmethode liegt in der mechanischen Beanspruchung der Glasfaser. Durch den Ziehprozess entstehen Spannungen im Glas, die aufgrund der auftretenden Spannungsdoppelbrechung die Lichtpolarisation stark beeinflussen. Auch reagieren die Spitzen empfindlicher auf mechanische Belastungen, wie sie beim Kontakt mit der Probe auftreten können, und bersten durch die inneren Spannungen. Möchte man die so erzeugten Fasern dennoch benutzen, empfiehlt sich ein thermischer Ausheilprozess [114], um die Spannungen zu reduzieren.

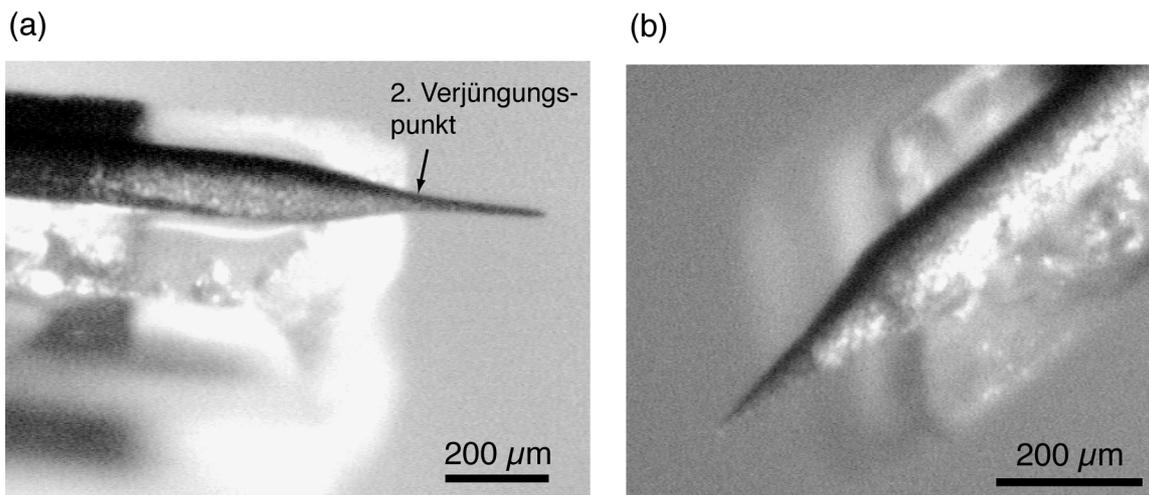


Abbildung 3.12: Mikroskopieaufnahmen von Fasern, die mit den im Text erwähnten Methoden hergestellt und dann mit einer Aluminiumschicht bedeckt wurden. (a) Gezogene Glasfaser. Man erkennt den relativ langgezogenen Spitzenbereich. (b) Geätzte Glasfaser. Die Spitze ist homogener und hat einen größeren Öffnungswinkel.

3.3.2 Erzeugung der sub- λ Apertur

Durch die oben beschriebenen Verfahren erhält man eine wohldefinierte Spitze, mit der sich die Proben topographisch abbilden lassen. Durch die Verjüngung des Kernes kann das Licht jedoch schon vor der Spitze die Faser verlassen, da die Lichtleitereigenschaften verloren gehen. Es treten somit nur sehr wenige evaneszente Moden an der Spitze aus, so dass die optische Auflösung vornehmlich durch das vor der Spitze austretende Licht bestimmt wird. Will man die Auflösung verbessern, so muss das vorzeitige Austreten verhindert werden. Man erreicht dies, indem man eine Metallschicht auf die Faserspitze aufbringt, wodurch das vorher austretende Licht wieder in den Wellenleiter reflektiert wird und sich so die Ausbeute des evaneszenten Feldes erhöht. Die Beschichtung erfolgt in einer Hochvakuumkammer bei einem Basisdruck von $<10^{-7}$ mbar mit Hilfe eines Elektronenstrahlverdampfers (Thermionics). Der Verdampfer befindet sich dabei ca 10° hinter der Faserspitze, so dass beim Aufdampfen der Metalle ein Bereich vorne unbedampft bleibt und so die sub- λ Apertur bildet.

Auf die meisten benutzten Spitzen wird zuerst eine 3 nm dicke Haftschiicht aus Chrom aufgedampft, ehe dann eine Deckschicht aus 100-150 nm Aluminium aufgebracht wird. Für die Benutzung der Fasern im *fs-SNOM* zeigte sich jedoch, dass Aluminium eine ungeeignete Materialwahl darstellt und es wurde Kupfer als deckende Schicht benutzt. Weitere Untersuchungen forderten dann auch den Verzicht der Chromschicht, um die SH-Erzeugung an der Grenzschicht zwischen den Metallen zu unterbinden.

3.4 Integration des SNOMs in das fs-Lasersystem

Dieser Abschnitt widmet sich der Integration des *SNOMs* in das vorhandene fs-Lasersystem. Dabei richtet sich die Aufmerksamkeit zunächst auf das Lasersystem selbst, wobei in diesem Zusammenhang auch die Möglichkeiten zur Pulsanalyse erörtert werden. Mit der Notwendigkeit des Aufbaus einer Pulskompression und deren Realisierung mit Hilfe von Prismen, beschäftigt sich der zweite Teil des Kapitels. Den Abschluss bilden erste Testmessungen.

3.4.1 Das fs-Lasersystem

Das in der Arbeitsgruppe vorhandene Lasersystem besteht aus einem Titan-Saphir-Oszillator (Mira 900F, Coherent), der mittels *mode-locking* Pulse im fs- wie auch ps-Bereich liefert. Er wird von einem Neodym-Vanadat-Laser (Nd:YVO₄; Verdi 10, Coherent) mit einer Leistung von 10 W gepumpt und liefert bei einer Repetitionsrate von 76,3 MHz Pulse mit einer Breite von bis zu $\tau_0=90$ fs im Wellenlängenbereich von 750-950 nm. Die erzielte maximale mittlere Ausgangsleistung bei der in den Experimenten verwendeten Wellenlänge von $\lambda_0=820$ nm beträgt $P_m=1$ W. Dies entspricht bei der oben erwähnten Pulsbreite τ_0 einer Spitzenleistung von $P_0=145$ kW pro Puls oder einer Energie von $E_0=13$ nJ. Man erkennt hieran, dass die benutzten Energien sehr hoch sind, denn auf einen Durchmesser von $4\mu\text{m}$ fokussiert, wie es durch den Faserkerndurchmesser erreicht wird, erreicht die Leistungsdichte einen Wert von $1,1 \cdot 10^{12}$ W pro cm^2 . Zur Umlenkung des Laserstrahles werden dielektrische Spiegel benutzt, die im Bereich des nahen *IR* und Sichtbaren hochreflektiv sind.

Zur Analyse stehen zwei optische Zweige zur Verfügung (Abb. 3.13). Der primäre Zweig dient der Bestimmung der Strahlparameter (Pulsbreite und Zentralwellenlänge) vor der Probe und beinhaltet ein Spektrometer (APE) für die Wellenlängenbestimmung und einen Autokorrelator (APE) für die Bestimmung der Pulsbreite. Die sekundäre Analytik befindet sich hinter der Probe und umfasst einen Doppelgittermonochromator (CVI Laser), der eine spektrale Auflösung von 0,1 nm erreicht, und einen direkt angeschlossenen Photomultiplier (Hamamatsu), der mit Hilfe einer Counterkarte den Nachweis einzelner Photonen erlaubt. Somit wurde es möglich, die geringen Intensitäten der zweiten und dritten Harmonischen zu detektieren. Gleichermäßen ließ sich mit dem Aufbau die Pulsausbreitung in Glasfasern bestimmen (vgl. Kap. 5.3).

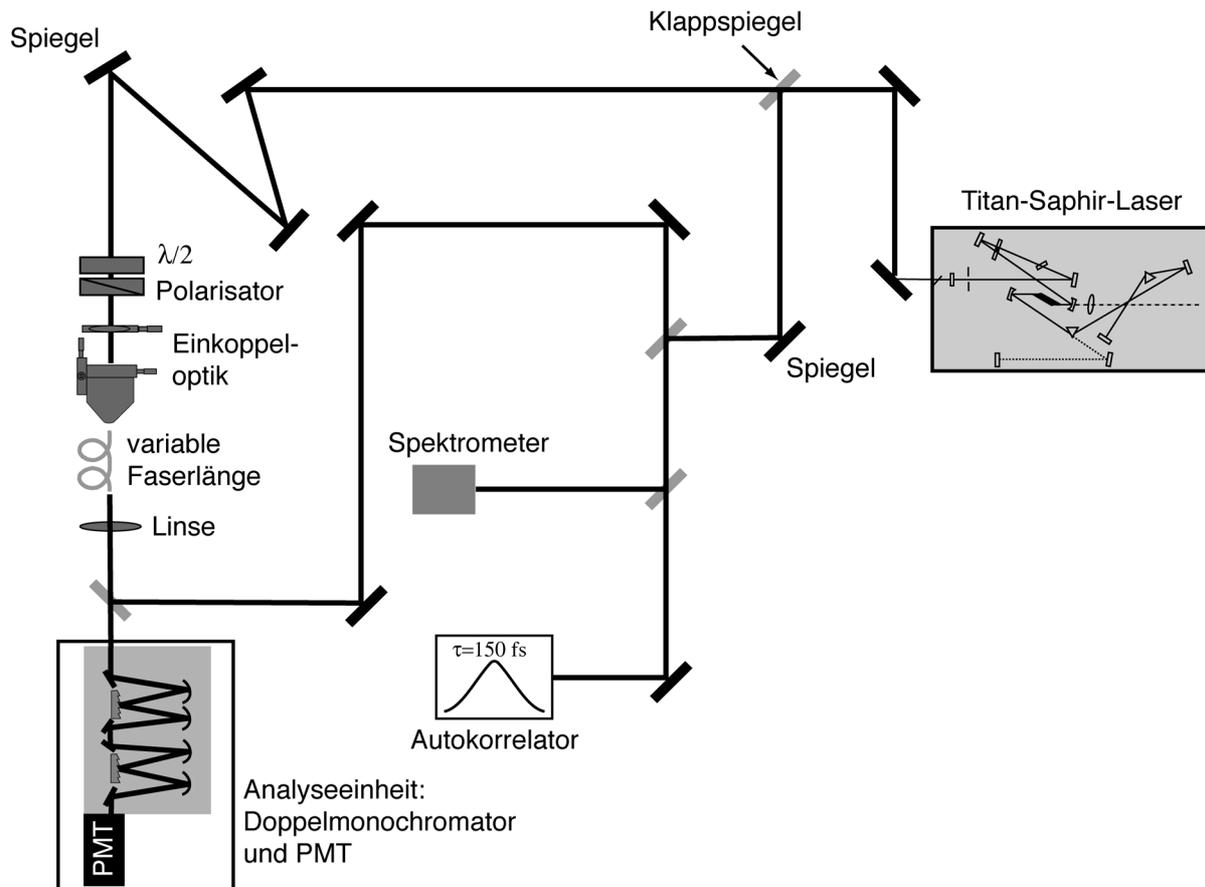


Abbildung 3.13: Schematischer Aufbau des Strahlenganges für das fs-SNOM ohne Kompressionsstrecke.

Wie aus der Abbildung 3.13 ersichtlich ist, ist der vorhandene Autokorrelator, das einzige zur Verfügung stehende Mittel zur Pulsbreitenbestimmung. Um die Aussagekraft der damit ermittelten Pulsbreiten besser zu verstehen, soll an dieser Stelle eine kurze Erläuterung der Funktionsweise erfolgen.

Pulsbreitenbestimmung mittels Autokorrelation

Abbildung 3.14 zeigt den Strahlengang im verwendeten Autokorrelator [120]. Der Strahlverlauf ist dabei mit dem eines Michelson-Interferometers identisch. Die Länge des ersten Interferometerarmes wird mit Hilfe eines Verschiebemotors kontinuierlich verändert. Es wird somit bei jeder Stellung des Motors ein wohldefinierter zeitlicher Abstand (τ) zwischen den beiden Teilpulsen erzeugt. Beide Strahlen werden dann zusammen in einen nichtlinearen optischen Kristall geführt und das nun entstandene SH-Licht wird mit einem Photomultiplier gemessen. Die Intensität der erzeugten zweiten Harmonischen hängt dabei stark von der Überlappung der beiden Pulse ab, also davon, wie groß der zeitliche Abstand zwischen ihnen ist.

Das Grundprinzip des Autokorrelators ist, eine Zeitmessung in eine Längenmessung umzuwandeln. Damit können auch Zeitabstände erfasst werden, die unterhalb der Auflösungsgrenze elektronischer Detektoren liegen, die durch die nötigen Anstiegszeiten auf etwa 50ps begrenzt sind.

Da in diesem Autokorrelator die Signalstärke über das entstandene SH-Licht gemessen wird, handelt es sich um eine sogenannte Korrelation 2. Ordnung. Ein Hauptmerkmal dieser Korrelationsordnung ist, dass die beteiligten Korrelationsfunktionen spiegelsymmetrisch sind. Durch diese Symmetrie kann kein Rückschluss auf die genaue Pulsform getätigt werden, d.h. kleinere

Verformungen sind nicht sichtbar. Damit wird die Analyse nichtlinearer Verbreiterungseffekte auf die Pulsform erschwert. Dafür erhält man einen einfachen Zusammenhang zwischen der

gemessenen und der tatsächlichen Pulsbreite der Form [121]:

$$\Delta\tau_{Puls} = f \cdot \Delta\tau_G \quad . \quad (\text{Gl. 3.1})$$

Dabei gibt f den sogenannten Formfaktor an, der von dem eingehenden Pulsprofil abhängt und in der Größenordnung von 1 liegt. $\Delta\tau_G$ ist die volle Halbwertsbreite der Intensitätsautokorrelationsfunktion 2. Ordnung $G_0^{(2)}$ gemäß:

$$G_0^{(2)}(\tau) = \frac{\int I^2\left(t - \frac{\tau}{T}\right) \cdot I^2\left(t + \frac{\tau}{T}\right) dt}{\int I^4(t) dt} \quad . \quad (\text{Gl. 3.2})$$

Eine Auswahl der wichtigsten Pulsformen und ihrer Autokorrelationsfunktionen sowie der zugehörigen Formfaktoren gibt Tabelle 3.1 wieder. Wie Gl. 3.1 zeigt, ist die vom Autokorrelator ermittelte Pulsbreite ein direktes Maß der realen Pulsbreite.

Wie oben erwähnt, können mit der Anordnung zwar die Pulsbreiten bestimmt werden, doch wie sich der Puls spektral verhält, also ob er gechirpt oder aber das Pulsprofil gestört ist, kann hier-

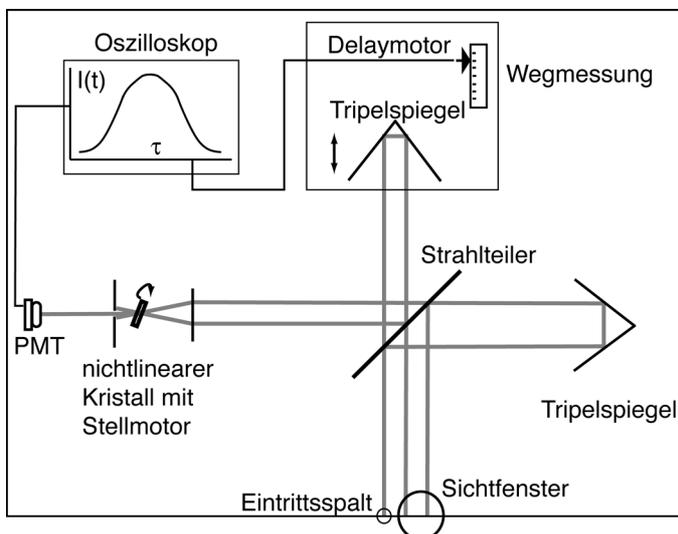


Abbildung 3.14: Strahlengang im verwendeten Autokorrelator [120]. Der zeitliche Abstand der beiden Teilpulse wird mittels Änderung der Länge des oberen Interferometerarmes erreicht. Die Intensität des SH-Signales wird direkt auf die y-Achse eines Oszilloskops gelegt, während die Stellung des Delaymotors ein Maß für die Pulsbreite darstellt.

mit nicht bestimmt werden. Für eine solche Bestimmung müssten gleichzeitig zur Intensitäts- auch die Feldkorrelation und die Korrelation 3. Ordnung ermittelt werden [121] sowie das Spektrum des Pulses. Dabei sollte idealerweise zu jeder Stellung des Delaymotors, also jedem

Tab. 3.1: Intensitätsautokorrelationen G_0 und Formfaktoren f für verschiedene Pulsformen $I(t)$.

$I(t)$	$G_0^{(2)}$	f
Rechteck	$\begin{cases} 1 - \frac{ \tau }{T} & \tau \leq T \\ 0 & \tau > T \end{cases}$	1
Gauß	$e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\tau}{T}\right)^2}$	0,7071
Sekans Hypebolikus	$\frac{3}{\left(\sinh\left(\frac{\tau}{T}\right)\right)^2} \left[\left(\frac{\tau}{T}\right) \coth\left(\left(\frac{\tau}{T}\right) - 1\right) \right]$	0,6482

zeitlichen Pulsabstand, ein Spektrum aufgenommen werden, um mögliche Änderungen in Zeit- und Frequenzdomäne zu kartieren.

3.4.2 Aufbau der Pulskompression

Das Herzstück des benutzten *SNOMs* ist die Glasfaser, durch die das Licht zur Probe geführt wird. Im Betrieb mit fs-Pulsen erweist sich dies als ein schwerwiegendes Problem, da die Faser im benutzten Wellenlängenbereich eine positive Materialdispersion aufweist (vgl. Anhang A), wodurch die Pulse beim Durchgang verbreitert werden (vgl. hierzu Kap. 5).

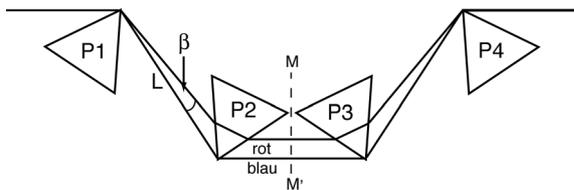


Abbildung 3.15: Prismensequenz zur Erzeugung negativer Dispersion wie von Fork *et al.* vorgeschlagen (nach [122]).

Für die Erzeugung der zweiten Harmonischen sind jedoch hohe Intensitäten erforderlich, die hier durch die Verwendung ultrakurzer Pulse erreicht werden. Um diese kurzen Pulse auch nach dem Durchgang durch die Faser zu erhalten, wurde in Anlehnung an Fork *et al.* [122] ein Prismenkompressor mit vier Prismen aufgebaut

(Abb. 3.15), dessen Wirkungsweise und Aufbau im Folgenden näher beschrieben wird.

Dispersionskompensation mit Prismen

Bei einem Prismenkompressor wird dem steten Auseinanderlaufen der Pulse durch positive

Materialdispersion so begegnet, dass durch die Prismenanordnung eine möglichst einstellbare negative Dispersion erzeugt wird, so dass die resultierende Dispersion verschwindet. Da bei einem dispersiven Material die Brechung verschiedener Wellenlängen unter unterschiedlichen Winkeln erfolgt, nennt man diese Art der Dispersion Winkeldispersion. Durch die Anordnung in Abb. 3.15 wird erreicht, dass die langwelligen Komponenten mehr Material durchlaufen müssen und somit gegenüber den kurzwelligen verzögert werden.

Der Aufbau ist, wie aus Abb. 3.15 ersichtlich, spiegelsymmetrisch zur Ebene MM' , wodurch im Normalfall ein Spiegel die Prismen $P3$ und $P4$ ersetzen wird. Zur Trennung des zurücklaufenden Strahles wird der Spiegel leicht gekippt und das Licht tritt somit aus der optischen Achse heraus. Da beim SNOM die Einkopplung in die Faser sehr empfindlich auf solche Verkippungen aus der Ebene reagiert, wurde hier der komplette Aufbau mit vier Prismen benutzt.

Um die mögliche Kompression, die mit einer so angeordneten Prismensequenz erreicht wird, bestimmen zu können, muss deren Gruppengeschwindigkeitsdispersion errechnet werden. Dazu soll hier der Weg von Fork *et al.* [122] nachgezeichnet werden.

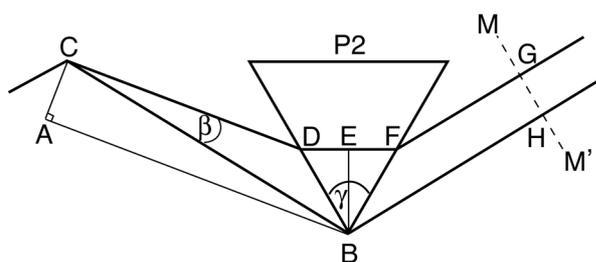


Abbildung 3.16: Konstruktion zur Berechnung der Gruppengeschwindigkeitsdispersion einer Prismensequenz (nach [122]). Für die Rechnung siehe Text.

optischen Weg P :

$$P = \overline{CDE} = l \cdot \cos \beta \quad , \quad (\text{Gl. 3.3})$$

mit l dem Prismenabstand und β dem Öffnungswinkel des Strahles nach dem Durchgang durch das erste Prisma. Weiterhin sind die optischen Wege entlang \overline{EFG} und \overline{BH} identisch durch den symmetrischen Strahlverlauf im Prisma. Da die gesamte Anordnung zwei Mal durchlaufen wird – es sind vier Prismen – ist der optische Weg einen Faktor 2 größer als in Gl. 3.3, so dass sich die Ableitungen nach β zu

$$\frac{dP}{d\beta} = -2l \sin \beta \quad \text{und} \quad \frac{d^2 P}{d\beta^2} = -2l \cos \beta \quad (\text{Gl. 3.4})$$

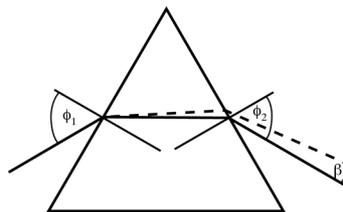
ergeben. Die GVD kann neben der Darstellung in Anhang A auch über die optische Weglänge definiert werden, wenn man berücksichtigt, dass $P = n \cdot l$ ist. Somit ist es wichtig, die Ablei-

Die für die Bestimmung der GVD wichtige Größe ist der optische Weg P der einzelnen Wellenlängen und dessen Ableitung nach dem Öffnungswinkel β (vgl. Abb. 3.16). Betrachtet man die optische Weglänge eines Strahles, der entlang \overline{CDE} läuft, so ist er identisch mit \overline{AB} , da die Strecken \overline{AC} und \overline{BE} auf möglichen Wellenfronten liegen. Somit folgt für den op-

tung von P nach der Wellenlänge zu kennen. Mit Hilfe der Kettenregel und unter Berücksichtigung, dass der Öffnungswinkel auch von der Wellenlänge abhängt, erhält man:

$$\frac{d^2 P}{d\lambda^2} = \left[\frac{d^2 n}{d\lambda^2} \cdot \frac{d\beta}{dn} + \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \cdot \frac{d^2 \beta}{dn^2} \right] \frac{dP}{d\beta} + \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \cdot \left(\frac{d\beta}{dn} \right)^2 \cdot \frac{d^2 P}{d\beta^2} \quad (\text{Gl. 3.5})$$

Um diese Gleichung vollständig auswerten zu können, werden noch die Ausdrücke für die Ableitung des Öffnungswinkels nach dem Brechungsindex benötigt. Dazu werden die Winkelverhältnisse in einem Prisma betrachtet. Der einfallende Winkel φ_1 ist dabei unabhängig vom Brechungsindex, so dass seine Ableitung verschwindet. Unter Zuhilfenahme des Brechungsgesetzes ergibt sich:



$$0 \equiv \frac{d\varphi_1}{dn} = \frac{1}{\cos\varphi_1} \left[\sin\varphi_{1,i} + n \cos\varphi_{1,i} \frac{d\varphi_{1,i}}{dn} \right] \quad (\text{Gl. 3.6})$$

$$\Leftrightarrow -n \cdot \frac{d\varphi_{1,i}}{dn} = \tan\varphi_{1,i} \cdot$$

Dabei wird $\varphi_{1,i}$ über die Winkel im Prisma bestimmt. Da der Winkelunterschied zweier Wellenlängen gleich dem Austrittswinkel φ_2 aus dem Prisma ist, erhält man $\frac{d\beta}{dn} = -\frac{d\varphi_2}{dn}$ und gleichsam $\frac{d^2 \beta}{dn^2} = -\frac{d^2 \varphi_2}{dn^2}$. Mit Gl. 3.6 ergibt sich somit:

$$\frac{d\beta}{dn} = -\frac{2}{n} \tan\varphi_2 = -2 \quad , \quad (\text{Gl. 3.7})$$

wobei die Prismen unter dem Brewsterwinkel beleuchtet werden. Auf ähnliche Weise ergibt sich der Ausdruck für die zweite Ableitung zu:

$$\frac{d^2 \beta}{dn^2} = -4n + \frac{2}{n^3} \quad . \quad (\text{Gl. 3.8})$$

Damit erhält man als Ergebnis der GVD der Prismensequenz den Ausdruck:

$$\frac{d^2 k}{d\omega^2} = \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \cdot 4l \cdot \left[\left[\frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3} \right) \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \right] \sin\beta - 2 \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \cos\beta \right] \quad . \quad (\text{Gl. 3.9})$$

Sie ist proportional zum Abstand l der Prismen. Da der Öffnungswinkel β klein ist, lassen sich die Approximationen $\cos\beta = 1$ und $\sin\beta \ll \cos\beta$ tätigen. Im Normalfall wird also der cos-Term überwiegen, so dass sich mit der Prismenanordnung negative Dispersion erzielen lässt.

Ein Vorteil der Anordnung ist, dass sich bei Verschiebung der Prismen senkrecht zur Basis der Strahlengang und damit die Winkeldispersion nicht ändert und somit eine gewisse Variation der Gesamtdispersion möglich ist.

Eine weitere Möglichkeit der Dispersionskompensation basiert auf der wellenlängenabhängigen Beugung am Gitter [123]. Im Allgemeinen erzielt sie eine viel höhere negative Dispersion (im Bereich 10^5 - 10^6) als die Prismensequenz. Sie ist damit für Kompensationen sehr großer Dispersionen geeignet, jedoch nicht für die in dieser Arbeit erhaltenen kleinen bis mittleren Dispersionen, weshalb von einer Verwendung im Rahmen dieser Arbeit abgesehen wurde.

3.4.3 Prismenkompressor und Gesamtaufbau

Der in dieser Arbeit aufgebaute Prismenkompressor ist in Abb. 3.17 dargestellt.

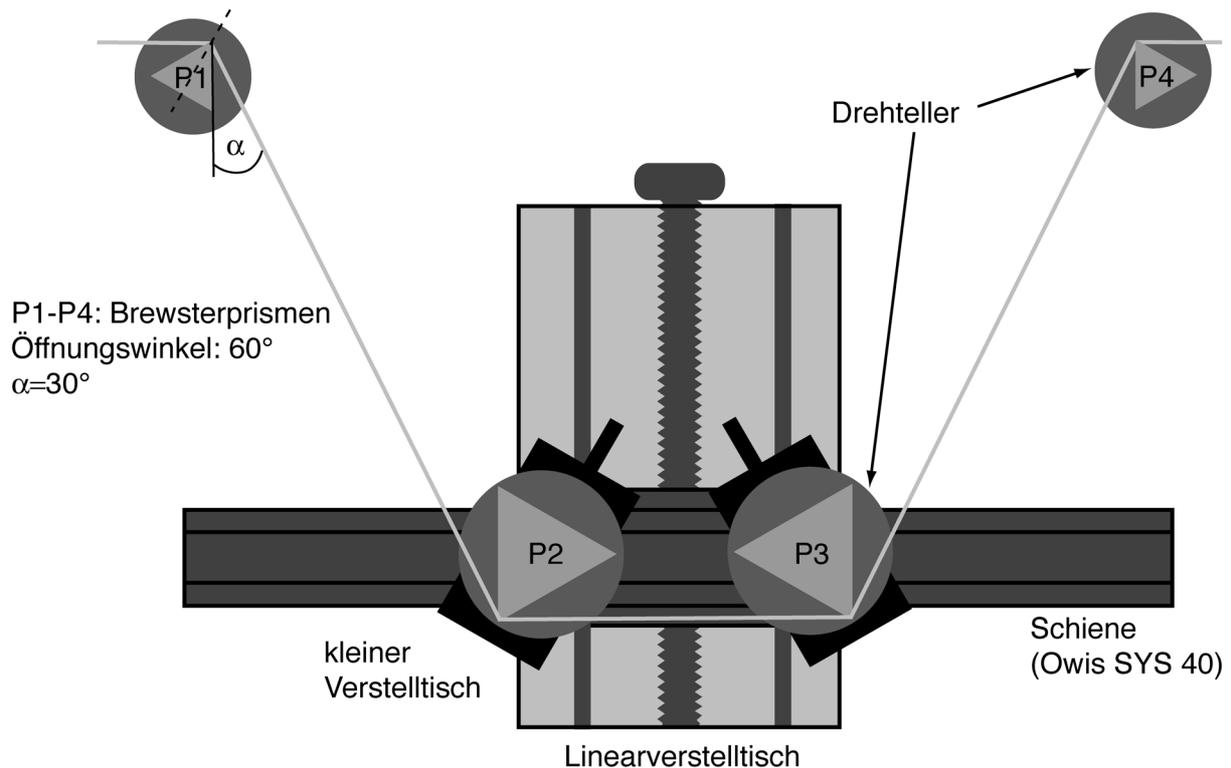


Abbildung 3.17: Aufbau der Prismensequenz als Pulskompressor.

Zuerst musste die Wahl des Materials der Prismen geklärt werden, da, wie aus Gl. 3.9 ersichtlich, die GVD stark vom Brechungsindex abhängt. Dazu wurden die Eigenschaften von Quarzglas und schwerem Flintglas (SF10) miteinander verglichen. Aus den Sellmeier-Gleichungen erhält man für eine Zentralwellenlänge von 820nm die in Tabelle 3.2 angegebenen Werte für den Brechungsindex und die Dispersionen. Man erkennt, dass SF10 als hochbrechendes Material eine viel größere Material- und auch Winkeldispersion als Quarz besitzt.

Tab. 3.2: Materialeigenschaften von Quarz und SF10 (s. Anhang A).

	n	$\frac{dn}{d\lambda}$	$\frac{d^2 n}{d\lambda^2}$	k_2	k_3
Quarz	1,45298	$-16532 \cdot \frac{1}{m}$	$3,57 \cdot 10^{10} \frac{1}{m^2}$	$348,22 \frac{fs^2}{cm}$	$356,5 \frac{fs^3}{cm}$
SF10	1,71028	$-46369 \frac{1}{m}$	$1,57 \cdot 10^{11} \frac{1}{m^2}$	$1536,8 \frac{fs^2}{cm}$	$-1327 \frac{fs^3}{cm}$

Für die in Abb. 3.17 dargestellte Prismensequenz ergeben sich mit Hilfe von Gleichung 3.9 und Tabelle 3.2 folgende Werte für die Gesamtdispersion:

	Quarz	SF10
GVD	$1392,8 \frac{fs^2}{cm} \cdot d - 21,6 \frac{fs^2}{cm} \cdot l$	$6147,3 \frac{fs^2}{cm} \cdot d - 170,9 \frac{fs^2}{cm} \cdot l$

Dabei ist l der Abstand zwischen den Prismen P1 und P2 (und auch zwischen P3 und P4) und d gibt den Materialdurchgang durch alle Prismen an (alle Größen in cm). Für realistische Materialdurchgänge von etwa 1-1.5cm entspräche die Gesamtdispersion einem Wert, der zwischen $5000 fs^2$ und $-10000 fs^2$ liegt, je nach Entfernung der Prismen zueinander. Zum Ausgleich einer im SNOM verwendeten Glasfaser der Länge 12cm, deren Materialdispersion bei $4178,6 fs^2$ liegt, müsste der Prismenabstand entweder $l = 258 cm$ (Quarz) oder $l = 60 cm$ (SF10) betragen. Es wird deutlich, dass mit den SF10-Prismen ein viel kompakterer Aufbau möglich ist.

Also wurden vier SF10-Prismen mit einer Basislänge von 3cm (P1 und P4) und 6cm (P2 und P3) verwendet. Der Öffnungswinkel $\gamma = 60^\circ$ der Prismen ist so gewählt, dass der symmetrische Gang durch das Prisma bei Lichteinfall unter dem Brewsterwinkel erreicht wird, wodurch Reflexionsverluste minimiert werden konnten. Die beiden äußeren Prismen (P1 und P4) sind auf Drehtellern montiert, so dass sich der Ein- und Ausfallswinkel stufenlos einstellen ließ. Die inneren Prismen (P2 und P3) sind ebenfalls auf Drehtellern montiert, die auf kleinen Linearverstellischen (Owis) angebracht sind. Dadurch ließ sich das Prisma senkrecht zur Basis bewegen, wobei der symmetrische Strahlverlauf nicht gestört wurde. Weiterhin ließ sich der Materialdurchgang des Lichtes fein einstellen. Diese Verstellische wurden auf einer Schiene montiert, die ihrerseits auf einem Linearverstellisch angebracht war, so dass eine Feinjustierung des Prismenabstandes und damit der Winkeldispersion erfolgen konnte.

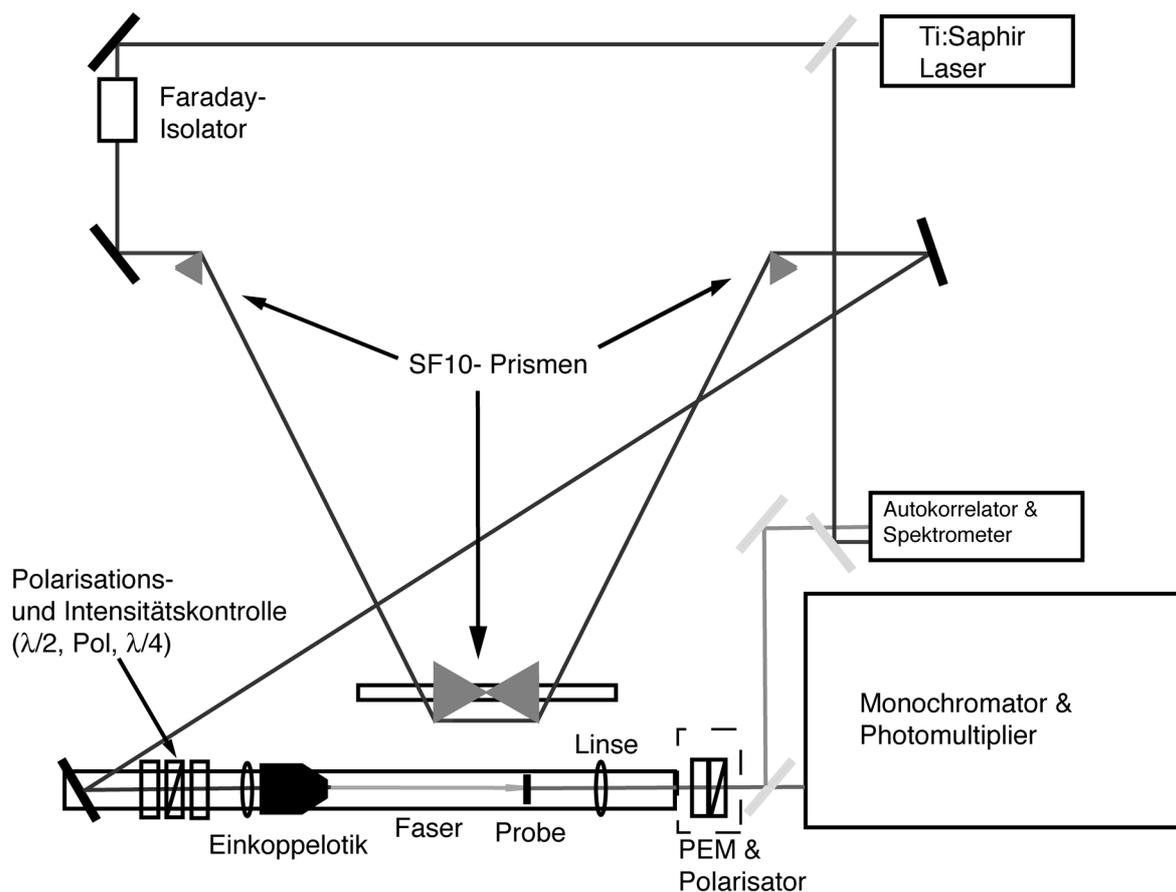


Abbildung 3.18: Schematischer Aufbau und Strahlengang im fs-SNOM nach Einbau der Kompressionsstrecke.

Der gesamte Aufbau für das fs-SNOM ist in Abb. 3.18 abgebildet. Im Vergleich mit Abb. 3.13 ist hier noch die Kompressionsstrecke integriert.

Zur besseren Justage sind die Aufbauten für das SNOM auf einer Schiene montiert, so dass auch eine definierte Ausrichtung der Elemente zueinander gewährleistet ist. Während der Experimente zeigte sich, dass der verwendete Einkoppler von Owis nicht die erforderliche Präzision und Stabilität aufwies, die an die Einkopplung gesetzt wurden, so dass ein neues Positioniersystem von Newport (Ultralign) zum Einsatz kam, das eine Positioniergenauigkeit des Mikroskopobjektivs vor der Glasfaser von unter 50nm erlaubt. Außerdem weist es durch eine massive Bauform eine sehr gute Positionsstabilität auf. Der Faraday-Isolator am Ausgang des Lasers wurde erforderlich, da bei perfekter Justierung des Strahlverlaufes und ebensolcher Einkopplung des Lichtes in die Faser der Rückreflex von der Stirnseite der Faser die Laserstabilität beeinträchtigt.

3.4.4 Erste Testmessungen

Die ersten Testmessungen beinhalteten die Justage der Kompressionsstrecke und Vergleichsmessungen zum Verhalten des *SNOMs* unter fs-Beleuchtung.

Die Einrichtung des Prismenabstandes zur Pulsbreitenminimierung fand mit einer geschnittenen Faser statt, um dem Autokorrelator möglichst viel Licht zur Verfügung zu stellen. Darüber hinaus konnte durch das Profil des Lichtflecks hinter der Faser der Grad der Einkopplung bestimmt werden, da nur bei nahezu kompletter Einkopplung ein TEM_{00} -Reflex sichtbar ist.

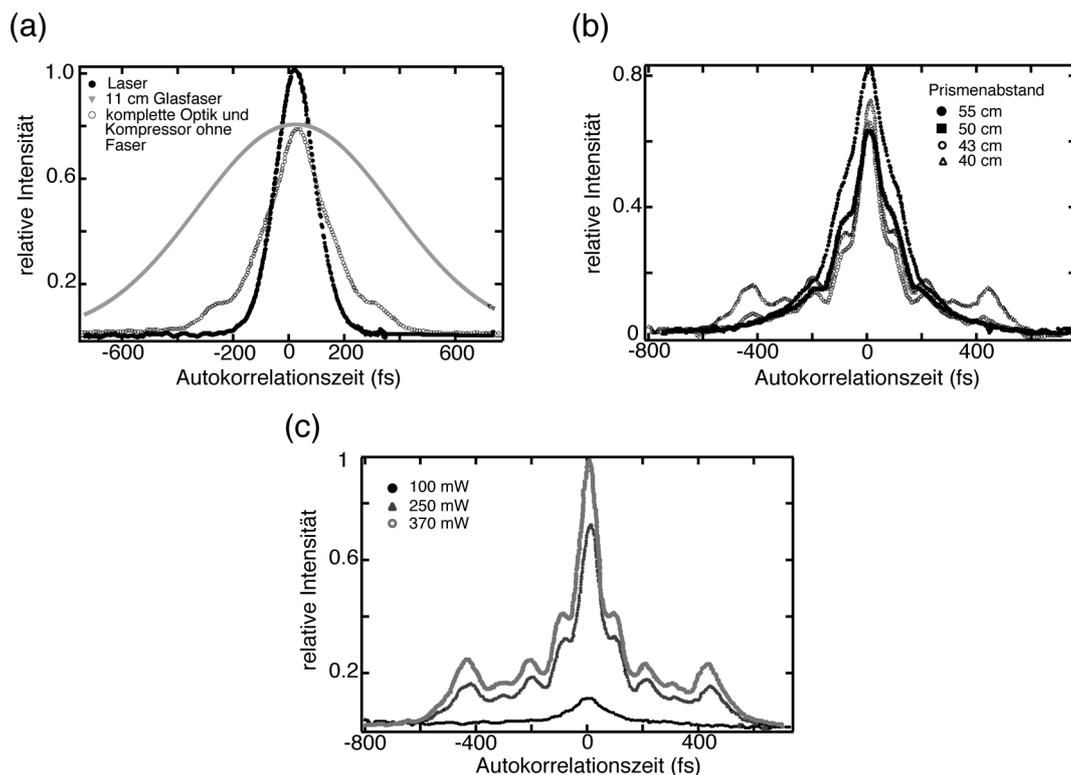


Abbildung 3.19: Autokorrelationsintensitäten zur Pulsbreitenbestimmung. (a) Kontrollmessungen eines reinen Laserpulses, des Pulses nach Durchgang durch 11 cm Glasfaser ohne Kompression und nach Durchgang des Pulses durch die gesamte Optik und Kompressionsstrecke jedoch ohne Faser. (b) Kompression bei verschiedenen Prismenabständen. Die Faserlänge beträgt 11 cm, Eingangsleistung 250 mW. (c) Autokorrelationsintensität bei verschiedenen Eingangsleistungen für eine 11 cm lange Glasfaser und einem Prismenabstand von 40 cm.

Abbildung 3.19 zeigt, wie sich die Autokorrelationssignale bei verschiedenen Prismenabständen und bei verschiedenen Eingangsleistungen verhalten. Dabei sind auch die Kurven für den reinen Laserpuls und eines Pulses nach Durchgang durch 11 cm Glasfaser angegeben (a). Man sieht, dass beide Pulse gaußförmig sind und keine Störungen aufweisen. Die Pulsbreite (FWHM) des Laserpulses beträgt $\tau_0 = 100 \text{ fs}$, während nach dem Faserdurchgang der Puls auf $\tau = 492 \text{ fs}$ (vgl. Kap. 5.3) verbreitert wurde. Zusätzlich ist die Autokorrelation eines Pulses, der die gesamte Optik des Aufbaus und den Kompressor (bei einem Prismenabstand von 60 cm)

passiert hat, gezeigt. Man erkennt zwei Merkmale. Zum einen ist der Puls nicht stark verbreitert worden, zum anderen erkennt man an den Flanken des Peaks eine sich ausbildende Struktur. Über die Ursache dieser Schulter kann nur gemutmaßt werden. Vermutlich findet durch den großen aufgeprägten Chirp infolge des Durchlaufens der Kompressionsstrecke und durch nicht-lineare Effekte aufgrund hoher Leistungen ein Aufbrechen des Pulses statt.

Deutlicher wird dieses Verhalten bei Betrachtung der Autokorrelationskurven in Abb. 3.19(b) für verschiedene Prismenstellungen und einer Faserlänge von etwa 11 cm. Man erkennt, dass die Strukturen an Intensität gewinnen, je kürzer der Abstand der Prismen ist. Dies bedeutet, dass je schlechter die Kompensation der Faserlänge – besser der *GVD* in der Faser – ist, desto mehr wird der Puls durch den Einfluss der Dispersion und nichtlinearer Effekte gestört. Betrachtet man den Abstand der einzelnen Maxima, so liegen sie im Mittel etwa 110 fs auseinander. Da dies einer Strecke von 30-50 μm entspräche, kann es sich nicht um Vielfachreflexionen in den Aufbauten oder in der Faser handeln. Auch ist ein Überlapp zweier nachfolgender Pulse ist unwahrscheinlich, da die Repetitionsrate des Lasers einen Pulsabstand von 13 ns liefert. Damit ist die Erklärung der Nebenmaxima mit Hilfe des Aufbrechens der Pulse am wahrscheinlichsten. In Abb. 3.19(c) ist das Intensitätsverhalten der Pulse bei einem Prismenabstand von 40 cm sichtbar. Die bei niedrigen Leistungen kaum sichtbare Struktur tritt mit steigender Eingangsleistung immer stärker hervor. Dabei ist das Verhältnis der Intensitäten der Seitenmaxima zum Hauptmaximum nahezu konstant. Das Aufbrechen des Pulses kann somit kein reiner Effekt der Intensität sein, da man sonst eine Änderung im Intensitätsverhältnis erwarten würde. Vielmehr liegt es am Einfluss höherer Dispersionsordnungen. Schließlich wird mit der Kompressionsstrecke nur der Einfluss der *GVD* kompensiert. Die anderen Dispersionsordnungen können damit nicht kompensiert werden und gewinnen einen immer höheren Einfluss auf die Pulsverbreiterung.

Eine genaue Auswertung der Pulsform konnte hier nicht getätigt werden, da die Analysemethode nicht ausreichend ist. Vielmehr würde für diese Untersuchung ein *FROG*-Aufbau (*frequency resolved optical gating*) durch die gleichzeitige Aufnahme von Frequenz- und Zeitdomäne ein detaillierteres Bild des Pulses liefern.

Es zeigte sich durch die oben getätigten Experimente, dass ein Prismenabstand von $l = 60 \text{ cm}$ die kürzesten Pulsbreiten hinter der Faser liefern ($\tau = 100 \text{ fs}$ bei 12 cm Faserlänge), so dass im Folgenden die Faser immer auf diese Länge geschnitten wurde.

Die nachfolgenden Messungen wurden durchgeführt, um mögliche Unterschiede zum *cw-SNOM*, die durch die Beleuchtung entstehen, zwischen beiden Aufbauten aufzudecken. Die SH-Erzeugung an Oberflächen ist stark von der Polarisation des Lichtes abhängig, denn mit der

Stellung von Polarisator und Analysator werden verschiedene Elemente des Suszeptibilitätstensors abgefragt. Es ist deshalb notwendig gewesen, das Polarisationsverhalten des SH-Lichtes zu analysieren (Abb. 3.20).

Dazu wurde mit Hilfe einer Glasfaser (geätzt und bedampft) ein 75 Å dicker Film Ag/Glas mit einer Eingangsleistung von 125 mW beleuchtet. Eine Parallelstellung von Polarisator und Analysator ist bei einem Polarisatorwinkel von 0°. Während dann der Analysator auf 90° gedreht wurde, zeigte sich durch eine Abnahme der gemessenen Intensität, dass das austretende Licht die gleiche Polarisation aufweist wie das in die Faser eintretende.

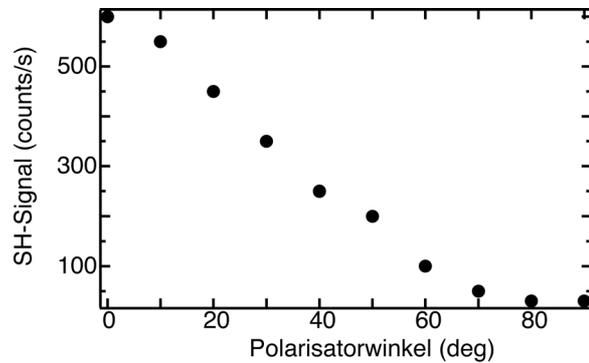


Abbildung 3.20: Polarisationsverhalten der zweiten Harmonischen, die an einer Silberoberfläche erzeugt wurde.

Eine weitere Frage, die geklärt werden musste, war, ob es grundsätzlich möglich ist, eine Topographie bei eingeschalteter fs-Laserbeleuchtung aufzunehmen. Die hohe Feldstärke der Pulse könnte nämlich eine Störung oder Beeinflussung des Anregungs- und Detektionssignals der Stimmgabel hervorrufen. Abb. 3.21 (a) zeigt die Topographie, des schon in Abb. 3.3 gezeigten Gitters. Das Bild zeigt deutlich helle und dunkle Bereiche, die mit dem Ein- und Abschalten des fs-Lasers – es wurde dabei der Strahl vor der Einkoppeloptik blockiert – einhergehen. Bereich 1 stellt dabei die Messung ohne Beleuchtung dar.

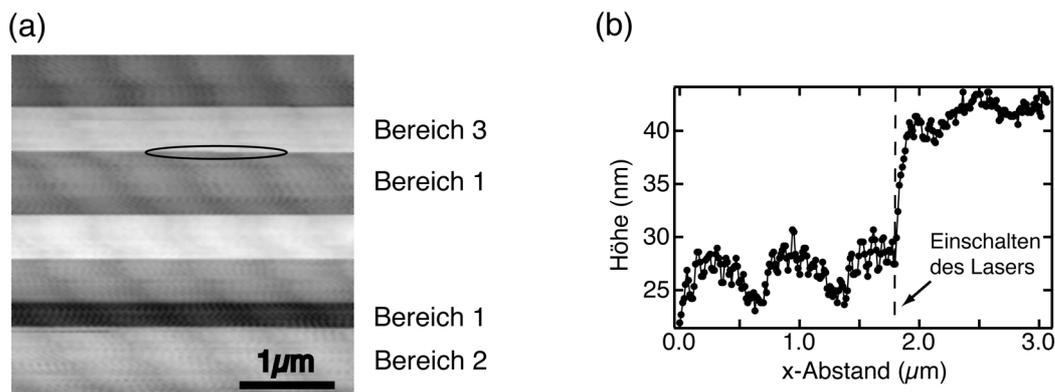


Abbildung 3.21: (a) Topographie des schon in Abb. 3.3 verwendeten Gitters unter fs-Beleuchtung. Dabei wurde der Laser während der Messung ausgeschaltet (Bereich 1), mit geringer Leistung eingeschaltetem Laser (Bereich 2) und bei hoher Leistung eingeschaltetem Laser (Bereich 3). (b) Linienprofil aus dem markierten Bereich in Teilbild (a). Deutlich ist der Sprung bei Lichteinkopplung zu sehen.

Der Bereich 2 ist bei niedriger Laserleistung und Bereich 3 bei hoher Laserleistung (achtfache der Leistung bei Bereich 2) aufgenommen. Betrachtet man sich so ein Einschalten genauer (ovaler Bereich in (a)), nimmt also ein Linienprofil an der Zeile auf (Abb. 3.21(b)), so sieht

man, dass ein Sprung im Moment der Beleuchtung (bei $x = 1,9\mu\text{m}$) erfolgt. Der z -Piezo verkürzt sich und zieht dabei die Faser als Messsonde zurück. Es gibt nun zwei mögliche Erklärungen für das beobachtete Verhalten: eine thermische Ausdehnung der Faser, hervorgerufen durch die hohe Laserleistung, oder eine elektronische Beeinträchtigung durch die hohen Feldstärken. Der interessante Bereich, der eine direkte Antwortzeit der Regelelektronik ist, hat eine zeitliche Dauer von etwa 100ms. Eine Ausdehnung der Faser infolge thermischer Effekte benötigt, wie Untersuchungen mit *cw*-Beleuchtung zeigten [111], eine viel längere Zeitspanne von mehreren Sekunden. Damit scheint die durch den Laserpuls hervorgerufene Feldstärkeänderung die Ursache für den starken Sprung zu sein, jedoch kann eine zusätzliche thermische Ausdehnung der Faser hier nicht ausgeschlossen werden.

Eine detaillierte Untersuchung bei sehr guter Einkopplung sollte diese Fragestellung klären, brachte aber keine eindeutigeren Resultate. Dazu wurde – bei einer sehr guten Einkopplereffizienz von etwa 50% – die Messsonde zuerst in Kontakt zur Probe gefahren und dann bei stetig steigender Eingangsleistung die Reaktion des Systems beobachtet. Es zeigte sich, dass schon bei moderaten Eingangsleistungen von $>20\text{mW}$ der Effekt so groß wurde, dass die Regelelektronik die Spitze aus dem Kontakt zog. Dies geschieht fast instantan, so dass nur die hohe Feldinteraktion dafür verantwortlich sein kann. Bei geringeren Leistungen ($P < 10\text{mW}$) konnte der Einfluss der thermischen Aufheizung beobachtet werden, der auch noch sichtbar bleibt, wenn die Einkoppeleffizienz herabgesetzt ($<45\%$) wird, was ein Indiz dafür ist, dass sich beide Effekte überlagern.

Eine störungsfreie topographische Messung ist jedoch ohne Schwierigkeiten möglich, wenn man die Lasereinkopplung vor dem Annähern an die Probenoberfläche durchführt und die ganze Zeit die Faser beleuchtet.

Kapitel 4

Polarisationsuntersuchungen des Nahfeldes

Für das Verständnis der Funktionsweise eines Rasternahfeldmikroskops ist das Polarisationsverhalten des Lichtes im Nahfeld essentiell: die meisten im Rahmen dieser Arbeit getätigten Messungen basieren auf diesem. Die direkte Messung der Feldvektoren ist jedoch nicht möglich, da man bei den verwendeten Glasfaseraperturen die Intensität und Polarisation des Lichtes in einem Abstand von nur wenigen nm hinter der Apertur bestimmen müsste. Die meisten Untersuchungen, die dieses Thema behandeln, sind deshalb theoretischer Natur [93-104]. Die existierenden experimentellen Arbeiten versuchen indes Rückschlüsse auf das Nahfeld zu ziehen, indem sie das Verhalten des Fernfeldes analysieren [124]. Weitere Analysen gehen über das Streuverhalten an kleinen Objekten [125] sowie über die Analyse der Nahfeldintensität [126, 127]. Ein anderer Ansatz wurde Anfang der 1950er Jahre gewählt, indem das Verhalten von Mikrowellen hinter $\text{sub-}\lambda$ Aperturen untersucht worden ist [105-107]. Dieser Ansatz hat den Vorteil, dass die beteiligten Größenordnungen erfassbar sind, d.h. eine Positionierung des Detektors im Nahfeld hinter der Apertur stellt kein größeres Problem dar, da die Mikrowellen eine Wellenlänge von mehreren mm haben. Bisher beschriebene Experimente betrafen die Abstandsabhängigkeit des Signals, jedoch nicht das Polarisationsverhalten.

Der Ansatz der Untersuchung des Nahfeldes mit Mikrowellen wurde im Rahmen dieser Arbeit aufgegriffen und modifiziert. Da das Verhalten elektromagnetischer Wellen skalierbar ist, sollte es damit möglich sein, ein tieferes Verständnis für die Vorgänge im Rasternahfeldmikroskop zu erhalten. Außerdem sollte sich damit klären lassen, inwieweit die Polarisation an der *SNOM*-Spitze erhalten ist und ob es überhaupt sinnvoll ist, polarisationsabhängige Messungen zu tätigen. Ähnliche oder ähnlich gelagerte Messungen konnten in der Literatur nicht gefunden werden.

Dieses Kapitel gliedert sich folgendermaßen: Nachdem kurz auf den Aufbau des 9GHz-MW-

SNOMs eingegangen wird (Kap. 4.1), werden zuerst die Ergebnisse der abstandsabhängigen Messungen gezeigt (Kap. 4.2), ehe die polarisationsabhängigen Messungen (Kap. 4.3) vorgestellt werden.

4.1 Aufbau der Apparatur

Der zur Charakterisierung des Nahfeldes benutzte Aufbau, ist schematisch in Abbildung 4.1 (a) zu sehen. Die Mikrowellen wurden mit Hilfe eines Reflex-Klystrons (Spindler & Hoyer) erzeugt und hatten eine Wellenlänge von $\lambda=33\text{ mm}$. Das erzeugte Signal wurde mit einem Frequenzgenerator (HAMEG HM8030-S) und einer Frequenz von $\nu=1362\text{ Hz}$ moduliert und konnte so mittels Lock-In-Technik analysiert werden, wobei die Modulationsfrequenz dem Lock-In (Ithaco-Dynatrac 391A) als Referenz diente. Die Stärke des elektrischen Feldes der Mikrowellen wurde mit Hilfe einer schnellen Halbleiter-Schottky-Diode (Agilent, HSMS-8101) gemessen. Die Detektorfläche beträgt dabei $1.4\times 3\text{ mm}^2$. Es sollte hier beachtet werden, dass der Betrag des E -Feldes gemessen wird und nicht sein Quadrat (Intensität), wie es in der Optik mit sichtbarem Licht der Fall wäre. Dies beruht auf der Eigenschaft der Diode, als Gleichrichter für das Mikrowellenfeld zu fungieren. Die Diode wurde ihrerseits mit Epoxidharz in einer dreidimensional verstellbaren metallfreien Halterung befestigt, was es ermöglichte auch durch die Aperturen hindurch das Signal innerhalb des Wellenleiters zu messen und störende Metallhalterungen aus dem Feld zu bringen. Dabei wurde die Diode mittels Mikrometerschrauben positioniert, die auch eine präzise Rasterung im späteren Messverlauf ermöglichten, jedoch eine Drehung der Diode zur Messung der s -Polarisation verhinderte. Um dennoch Messungen in dieser Polarisationsrichtung zu führen, wurde die gesamte restliche Apparatur (Klystron, Wellenleiter und Blende) um 90° gedreht, was geometrisch einer Drehung der Diode entspricht. Als Wellenleiter diente ein 1 m langes Aluminiumrohr mit einem Durchmesser von 10 cm, was etwa 3λ entspricht. Dieser Durchmesser verhält sich wie der Kerndurchmesser einer *single-mode* Glasfaser zur der Wellenlänge von 650 nm. Aluminium wurde deshalb als Material gewählt, da es bei den verwendeten Frequenzen eine fast perfekte Reflektivität besitzt und somit das gesamte eingestrahlte Feld im Wellenleiter geführt wird. Jedoch gibt es einen großen Unterschied zwischen dem Al-Rohr und einer Glasfaser als Wellenleiter. Zwar findet in beiden eine vollständige Reflexion statt, doch gibt es bei dem Al-Rohr als Hohlleiter prinzipiell unendlich viele Moden, die geleitet werden können, während bei der *single-mode* Glasfaser als dielektrischem Wellenleiter nur eine Mode bei der Propagation unterstützt wird.

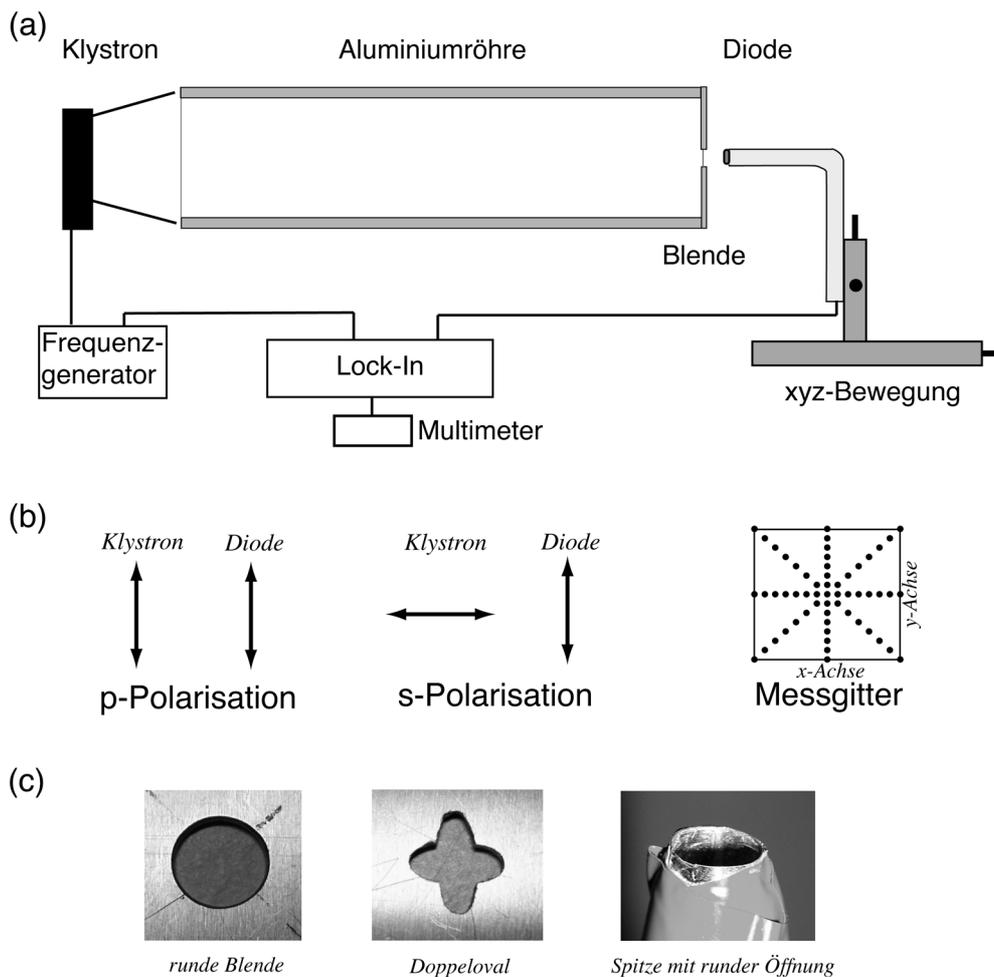


Abbildung 4.1: (a) Schematischer Aufbau des Experimentes. Die Datengewinnung erfolgt mittels Lock-In-Technik. (b) Nomenklatur der polarisationsabhängigen Messungen. *p*-Polarisation: *E*-Feldvektor und Diodenachse sind parallel ausgerichtet. *s*-Polarisation: *E*-Feldvektor und Diodenachse bilden einen Winkel von 90° zueinander. rechts: Zur Kartierung der Feldstärke verwendetes Punktgitter. (c) Bilder benutzter Blenden. links: Zirkuläre Blende mit $\lambda/3$ Durchmesser. mitte: Doppeloval, auch als Kreuzblende bezeichnet, bei dem die lange Achse $\lambda/4$ lang ist und die kurze $\lambda/8$. rechts: Öffnung der modellierten Al-Spitze mit einem Durchmesser von $\lambda/3$.

Die am Ausgang des Wellenleiters benutzten Blenden wurden hergestellt, indem sie in dünnes Aluminiumblech gefräst wurden. Dies sollte die Kantenrauigkeit und daraus resultierende Feldverzerrungen unterbinden. Es wurden runde Blenden mit Durchmessern von $\lambda/2$ bis $\lambda/10$, ovale Blenden und Kreuzblenden [vgl. Abb. 4.1 (c)] bei den Messungen verwendet. Darüber hinaus wurde noch eine konusförmige Spitze aus Aluminiumfolie geformt. Mit ihrem Öffnungswinkel von 25° und einem Aperturdurchmesser von $\lambda/3$, diente sie als Modell einer bedampften Glasfaserspitze, da sie wie letztere während der Verjüngung des Innendurchmessers keine Strahlung vorzeitig austreten lässt.

Die Ausrichtung der Blenden und der Spitze auf den Mittelpunkt der Al-Röhre wurde mit Hilfe

eines Lasers bewerkstelligt. Dabei wurde auch die Diode auf diesen Mittelpunkt positioniert, der dann als Nullpunkt der Messung diente. Für die runden Blenden lag dieser bei den Mikrometerschrauben-Koordinaten (7;7,5) und für die Spitze bei (7;8).

Eine erste Messung ohne jegliche Apertur sollte Klarheit darüber schaffen, wie gut polarisiert die Mikrowellen das Klystron verlassen, denn es war nicht zu erwarten, dass ein Polarisationskontrast von $10^5 - 10^7$, wie es bei einer Laserquelle üblich ist, erreicht werden würde. Die Messung ergab ein Verhältnis $E_s/E_p = 1/30$, was für das verwendete Klystron ein guter Wert ist. Bei der Propagation durch den Wellenleiter nimmt das Verhältnis auf einen Wert von $1/4$ ab. Diese Abnahme erklärt sich durch die Reflexion der Mikrowellen an den inneren Wänden des Al-Rohres. Dabei entsteht elliptisch polarisierte Strahlung mit einer Elliptizität von etwa 10° und einer Drehung der Polarisationsachse im selben Bereich, was im Rahmen reflexionsbedingter Elliptizitäten ist.

4.2 Abstandsabhängigkeit hinter einer Apertur

Die ersten getätigten Messungen untersuchten die Abstandsabhängigkeit des Signals hinter einer runden Aperturblende. Dabei wurde auch die Abhängigkeit vom Aperturdurchmesser gemessen und mit den theoretischen Vorhersagen von Dürig *et al.* [94] verglichen. Alle Blenden zeigen ein qualitativ ähnliches Verhalten, so dass im Folgenden nur auf eine näher eingegangen werden wird.

Abbildung 4.2(a)-(c) zeigt exemplarisch die Messung für die $\lambda/3$ Apertur. Der Sitz der Blende wird dabei von der gestrichelten Linie angegeben und liegt bei $z=9$ mm, was bedeutet, dass das Feld auch innerhalb des Rohres vermessen wurde. Die gesamte Messung deckt dabei einen Entfernungsbereich von unter einer Wellenlänge ab. Es sind deutlich markante Verhaltensweisen sichtbar. Zum einen ist hinter der Blende ein nichtlinearer Abfall zu sehen, zum anderen ist innerhalb des Wellenleiters ein Maximum deutlich sichtbar. Das bei der Messung beobachtete Maximum kommt dadurch zustande, dass sich im Hohlleiter, dadurch dass das Rohr an der Seite der Blende als geschlossen angesehen werden kann, stehende Wellen ausbilden. Das Maximum stellt also ein Maximum dieses stehenden Wellenfeldes dar. Das zweite markante Verhalten, der nichtlineare Abfall hinter der Blende, ist in Abbildung 4.2(c) durch die doppel-logarithmische Auftragung besonders gut zu erkennen. Es wird auch deutlich, dass die dem Abfall zugrunde liegende Gesetzmäßigkeit keine einfache exponentielle oder Potenzabhängigkeit besitzt. Dürig *et al.* haben bei der Auswertung ihrer theoretischen Kurve, die ein qualitativ ähnliches Verhalten zeigt wie Abb. 4.2(c), diese in drei Bereiche aufgeteilt und die beiden letzten Bereiche, den

Nah- und Fernfeldbereich, linear approximiert, um als Potenzen die Werte $-3,7$ und -2 zu erhalten. Führt man die gleiche Auswertung bei den hier erhaltenen Messungen der $\lambda/3$ -Apertur durch, so ergeben sich die Steigungen zu $-5,3$ und $-3,7$ für die p -polarisierte Messung und zu -5 und $-1,6$ für den Fall der s -Polarisation. Es ist deutlich, dass die gemessenen Kurven deutlich andere Gesetzmäßigkeiten zeigen, als die von Dürig *et al.* berechneten.

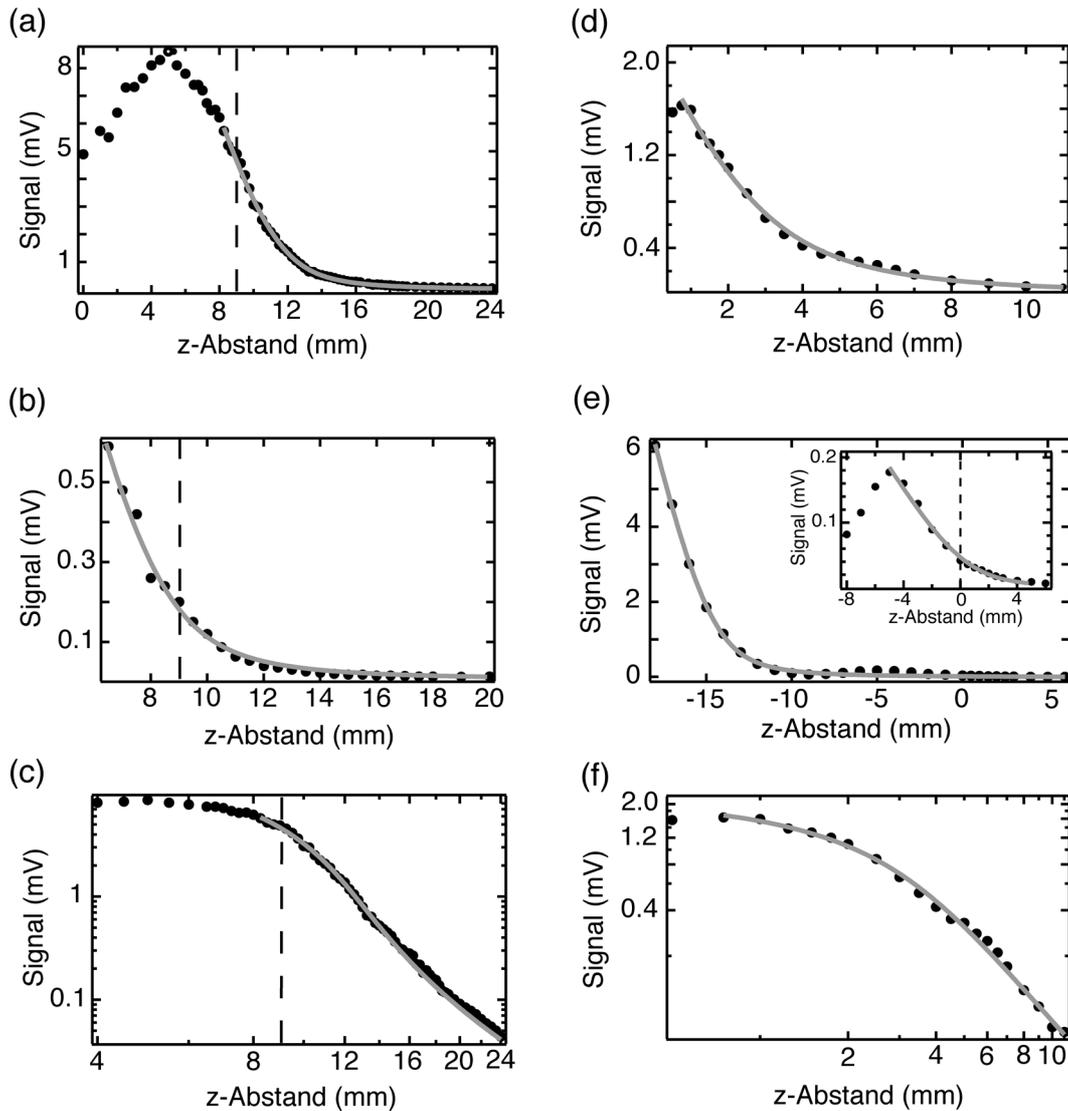


Abbildung 4.2: Abstandsabhängige Messung der runden Blende ($\lambda/3$ -Apertur, (a)-(c)) und der Aluminiumspitze ((d)-(f)). (a) Messung der p -Polarisation. Die gestrichelte Linie gibt die Aperturposition an, die graue Linie den Fit (Gl. 4.1) an die experimentellen Punkte. (b) Messung der s -Polarisation. Die graue Linie gibt wiederum den Fit an. (c) Doppel-logarithmische Darstellung von (a). (d) Messung in p -Polarisation für die in Abb. 4.1(c) dargestellten Spitze, sowie Fit (graue Linie) an die Werte. (e) s -Polarisation. Man erkennt ein lokales Maximum, das im Inset vergrößert dargestellt ist. (f) Doppel-logarithmische Darstellung von (d).

Vergleicht man noch die Steigungen für die anderen Aperturen, so erkennt man, dass bei kleiner werdender Apertur die Steigung größer wird (vgl. Abb. 4.3), das Ergebnis also noch weiter von dem von Dürig *et al.* errechneten abweicht. Vielmehr würde die Messung eine Abstrahlung zeigen, die im Fernfeld nicht dipolartig ist, denn sonst müsste man einen Wert von -2 für die zweite Steigung erhalten. Erklären kann man das beobachtete Resultat nur mit der Annahme, dass die Messung nicht bis in das Fernfeld hinausreicht und hier immer noch das Nahfeld ausgemessen wird.

Daraufhin wurde versucht, die Ergebnisse mit Hilfe der von Dürig verwendeten Theorie, die auf Bethes Arbeit von 1944 zurückgreift [101], anzupassen. Dass auch bei größter Freiheit der Parameter das aus der Theorie erhaltene Verhalten des elektrischen Feldes, das experimentell bestimmte nicht befriedigend zu erklären vermochte, ließ nur den Schluß zu, dass die Bethe-Formulierung nicht korrekt ist. Diese Vermutung bestätigte sich schon Anfang der 1950er Jahre, als Bouwkamp die Theorie vervollständigte (vgl. Kap. 2.3.2):

$$E_x = ikz - \frac{2}{\pi}ika \left[1 + \nu \operatorname{atan} \nu + \frac{1}{3(u^2 + \nu^2)} \right], \quad (\text{Gl. 4.1})$$

wobei u , ν und φ die oblat-sphäroidalen Koordinaten sind. Zwischen dem kartesischen Koordinatensystem und dem oblat-sphäroidalen gelten die Transformationsvorschriften:

$$z = au\nu \quad x = a\sqrt{(1-u^2)(1+\nu^2)} \cos \varphi \quad y = a\sqrt{(1-u^2)(1+\nu^2)} \sin \varphi$$

Diese vollständige Formulierung des elektrischen Feldes, ließ nun eine sehr gute Anpassung an die hier gewonnenen Messergebnisse zu, die auch in der doppel-logarithmischen Darstellung erkennbar ist. Die Fits sind in Abb. 4.2 als graue Linien in die Graphen gezeichnet. Bei der Freiheit des Parameterraumes, die man bei der Anpassung zulässt, ergibt sich jedoch, dass der Aperturradius in der Theorie einen Faktor zwei kleiner ist, als der bei der Messung verwendete. Diese Abweichung kommt vermutlich dadurch zustande, dass die Blende eine endliche Dicke besitzt, auch wenn sie viel kleiner als die Wellenlänge ist, und das Feld an den Kanten eine derartige Beeinflussung erfährt, dass es durch die Apertur propagiert, als besitze diese einen kleineren Radius.

Die Messungen für die Al-Spitze in den beiden Polarisationsrichtungen sind in Abb. 4.2(d)-(f) dargestellt. Die Öffnung der Spitze sitzt diesmal an der Stelle $z=0$ mm. Für die Messung in p -Polarisation (d) ist nur die Messung außerhalb der Spitze dargestellt. Man erkennt wieder ein

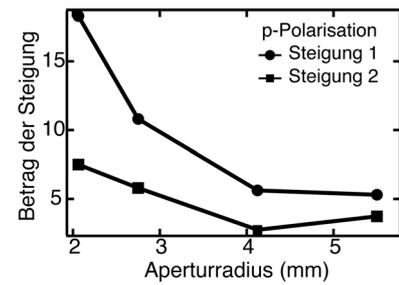


Abbildung 4.3: Verhalten der Steigungen für verschiedene Aperturdurchmesser.

nichtlineares Abfallen der Feldstärke, wie es in der doppel-logarithmischen Auftragung deutlich wird, aber auch eine wiederum sehr gute Beschreibung des Verhaltens durch Gl. 4.1. Es ergibt sich jedoch ein Unterschied des Feldverhaltens zu dem Verhalten bei einer planen Blende. Dieses ist im Falle der s -Polarisation sehr deutlich sichtbar (Abb. 4.2(e)). Man erkennt, dass das Feld innerhalb der Spitze schon an Stärke verliert, jedoch bei etwa $z = -5$ mm ein lokales Maximum erzeugt. Dieses Maximum hat seinen Ursprung vermutlich in der Form der Spitze und der daraus resultierenden Wellenleitung. Es ist anzunehmen, dass an dieser Stelle der innere Durchmesser so klein wird, dass ein freies Propagieren der einzelnen Moden nicht mehr möglich ist und es nur noch eine evaneszente Wellenausbreitung gibt. Ist dies der Fall, so werden die bis dahin übrig gebliebenen Moden aussterben, in unserem Fall also zurückreflektiert, was zu einer Felderhöhung durch positive Interferenz führen kann. Nimmt man nun diesen Punkt als Startpunkt des Feldabfalls, so lässt sich das Abklingverhalten sehr gut mit der Theorie beschreiben (Inset in Abb. 4.2(e)). Dies bedeutet aber auch, dass die Apertur für das elektrische Feld nicht am Ende der Spitze sitzt, sondern am Punkt $z = -5$ mm, was auch mit den Vorstellungen der Entstehung der evaneszenten Wellen in einer Glasfaser zur *SNOM*-Messung einhergeht.

Betrachtet man sich die einzelnen Signalstärken für die einzelnen Polarisationsrichtungen, so fällt auf, dass im Fall der planen Blende das Verhältnis E_s/E_p das gleiche ist wie ohne jegliche Apertur, nämlich $1/4$. Bei der Spitze hingegen erhält man ein Verhältnis von $1/10$, was eine Verbesserung der Polarisation bedeutet. Dies impliziert, dass das sukzessive Ausblenden einzelner Moden eine Art Filterwirkung hat.

4.3 Kartierung der Polarisation

Nachdem die Abstandsabhängigkeit untersucht wurde, wird nun der Frage nachgegangen, wie sich das Feld und seine Polarisation in und hinter einer $\text{sub-}\lambda$ Apertur verhalten. Dabei werden zuerst mit Hilfe der Feldgleichungen die erwarteten Felder in einer runden Blende simuliert, ehe dann das experimentelle Verhalten an planen Blenden (rund, oval und kreuzförmig) und an der modellierten Spitze untersucht wird.

Mit Hilfe von Bouwkamps Lösungen der Wellengleichung (vgl. Kap. 2.3.2 und [102-104]) lässt sich der Feldverlauf für die einzelnen Feldkomponenten innerhalb der Blende simulieren, so dass man die bei der Messung erzielten Resultate besser interpretieren kann.

Abbildung 4.4 zeigt das Ergebnis der Simulation. In (a) sieht man die Feldverteilung für E_x . Da die einfallende Welle in x -Richtung polarisiert ist, erhält man das erwartete Dipolfeld in dieser Richtung. Dementsprechend klar ist auch das Bild, dass sich für die Komponente des \mathbf{H} -Feldes

H_y ergibt, nämlich ein Dipolfeld, das senkrecht zu dem des E -Feldes steht (d).

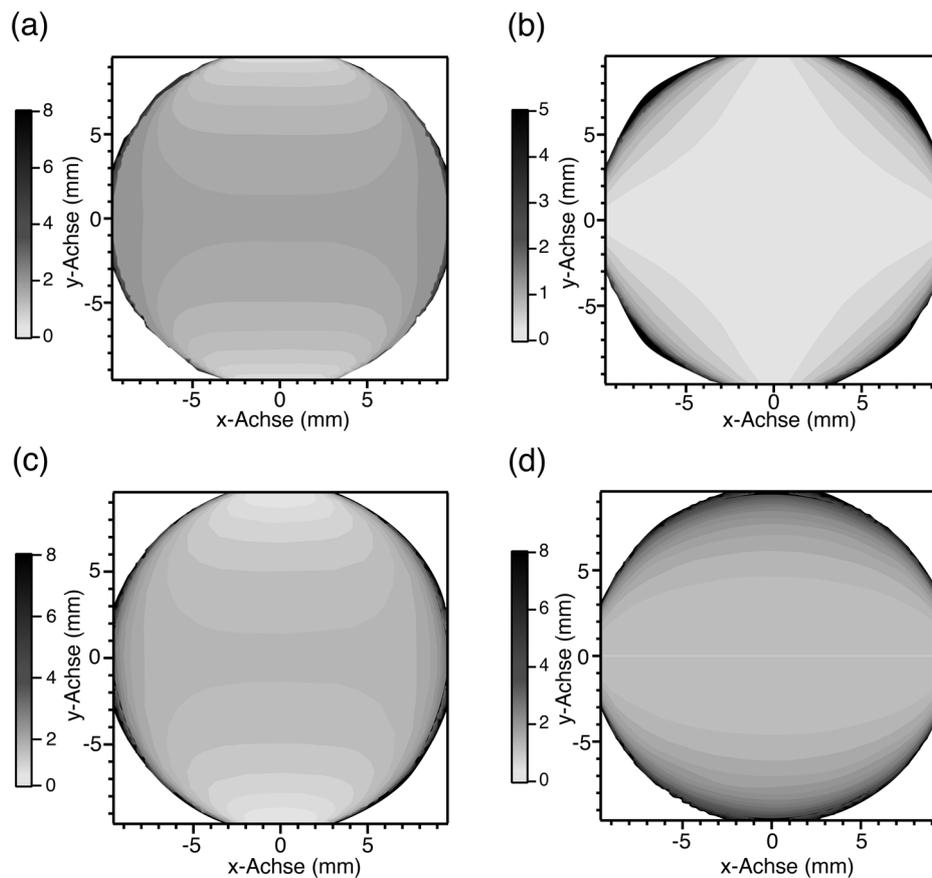


Abbildung 4.4: Mit Hilfe von Gl. 2.73 simulierter Feldverlauf in einer runden Blende für eine in x -Richtung polarisierte Welle: (a) E_x , (b) E_y , (c) Summe von E_x und E_y und (d) H_y .

Ein wenig verwunderlich ist jedoch das Bild, das sich in (b) für die Komponente E_y ergibt. Man erkennt deutlich, dass es sich hier um ein Quadrupolfeld handelt. Dies bedeutet, dass für die elektrische Feldkomponente, die senkrecht zur Polarisation steht, höhere Multipolmomente für die Erzeugung verantwortlich sind. Da ihre Stärke jedoch kleiner als die des Dipolfeldes sind, tragen sie nur wenig zum Gesamtbild bei (c).

Mit diesem Wissen über das Verhalten der Felder in der Blende wurde nun die Feldstärke für eine runde Blende experimentell kartiert. Das so bestimmte Verhalten ist in Abb. 4.5 dargestellt. Es handelt sich dabei um eine Blende mit einem Aperturdurchmesser von $\lambda/4$. Die Messungen wurden in einer Entfernung von 2 mm von der Blende, also noch im Nahfeldbereich getätigt.

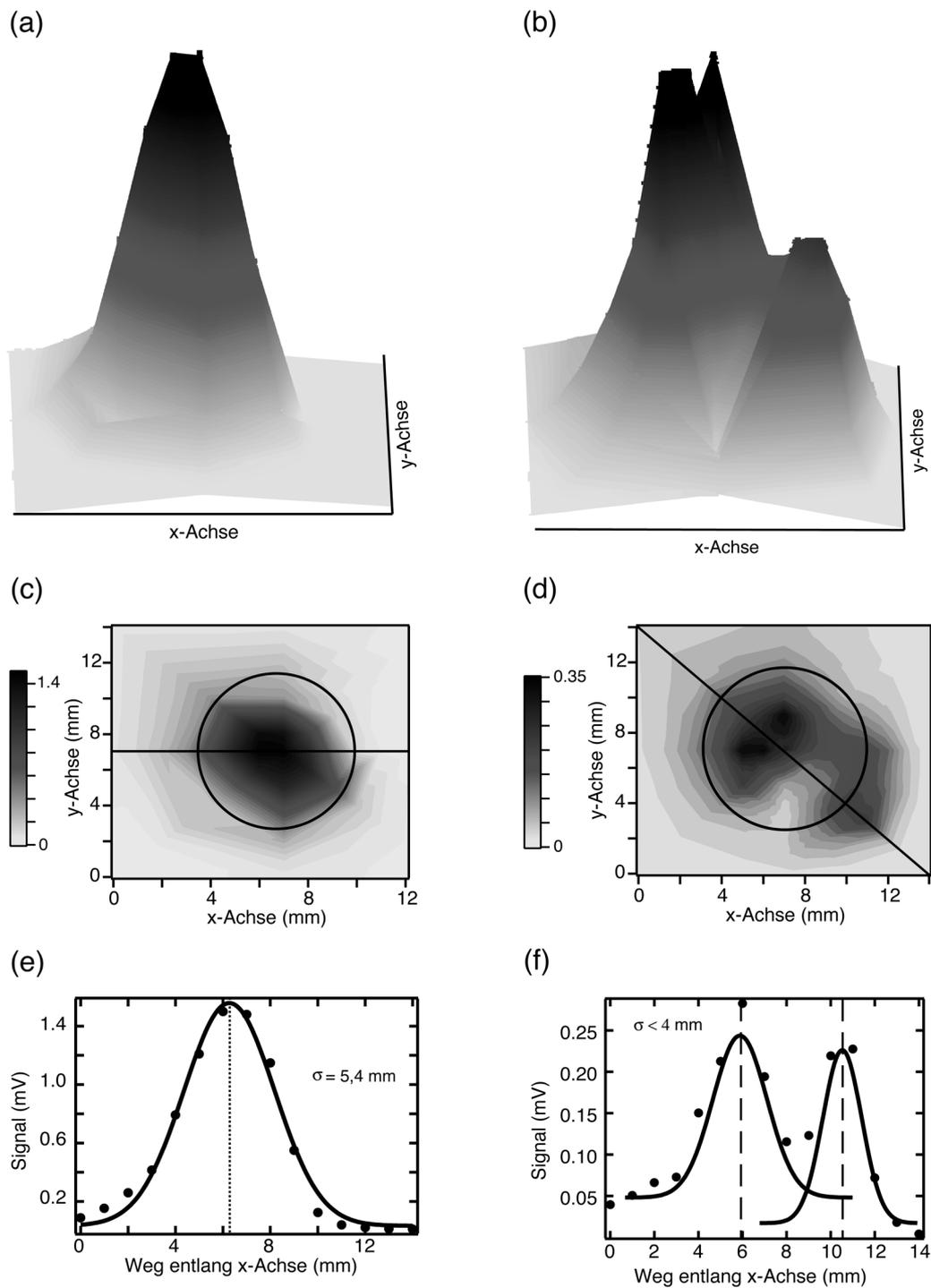


Abbildung 4.5: Kartierung der Feldstärke in einer Entfernung von 2 mm hinter der runden Blende. (a) und (b) 3-dim Darstellung der Messung in p- und s-Polarisation. (c) Isofeldstärkendarstellung von (a). Der Kreis gibt Position und Größe der Apertur während der Messung an. (d) Isofeldstärkendarstellung von (b). Der Kreis gibt wieder Lage und Abmessung der Apertur an. (e) Schnitt durch (c) entlang der schwarzen Linie. Das Profil ist Gauß-förmig mit einer Breite (FWHM) von 5,4 mm. (f) Schnitt durch (d) entlang der schwarzen Diagonalen. Man erkennt deutlich zwei Maxima, deren Breite unterhalb 4 mm liegt.

Die Messung wurde so durchgeführt, dass zuerst in 1 mm Abständen Punkte entlang der x - bzw. y -Richtung aufgenommen wurden und dann in gleicher Dichte Punkte entlang der Hauptdiagonalen (vgl. Abb. 4.1 (b)). Die dargestellten Bilder sind dann durch Interpolation zwischen den einzelnen Punkten als Isofeldstärkediagramm entstanden.

Man erkennt ein deutlich unterschiedliches Verhalten zwischen den verschiedenen Messgeometrien – p - und s -Polarisation. Zunächst fällt auf, dass die Signale unterschiedlich stark sind. Es ist, wie schon bei den Abstandsmessungen, ein Verhältnis von 1/4 zwischen den maximalen Feldstärken sichtbar. Desweiteren haben die erhaltenen Profile ein unterschiedliches Aussehen. Im p -polarisierten Fall erhält man ein Gauß-förmiges Profil mit einer Breite von 5,4 mm (Abb. 4.5 (e)).

Vergleicht man das gemessene Bild mit dem errechneten, so fällt auf, dass sie nicht miteinander korrelieren. Die Messung zeigt eindeutig nicht das Bild eines schwingenden Dipols, wie es erwartet wurde. Zur Erklärung der gemessenen Feldverteilung muss man sich noch einmal den Aufbau in Abb. 4.1 (a) anschauen. Das Reflex-Klystron ist so gebaut, dass es eine *single-mode* Feldverteilung erzeugt (im rechteckigen Querschnitt entspricht dies einer TE_{10} -Mode, die ein Dipolfeld darstellt). Der Übergang in das Rohr vollzieht sich im Experiment abrupt, so dass an dieser Unstetigkeit alle möglichen Moden erzeugt werden. Da der Rohrdurchmesser überdimensioniert ist, wird er auch alle Moden leiten, deren Wellenlänge kleiner sind als der Rohrdurchmesser. Für die Gesamtfeldstärke müssen nun alle Modenverteilungen aufsummiert werden. Das resultierende Bild entspricht einer Gauß-förmigen Verteilung, die auch beobachtet wird.

Das Verhalten der s -Polarisation ist in Abb. 4.5(d) gezeigt. Hier erkennt man zwei Maxima, die eine unsymmetrische Intensitätsverteilung aufweisen. Desweiteren scheint es so, als ob das zweite Maximum sich außerhalb der Apertur befindet, während das erste fast in ihrem Zentrum liegt. Die Schräglage der Maxima (Winkel von 45° zu den Hauptrichtungen) ließe sich am einfachsten durch eine Rotation der Polarisation erklären, obwohl diese viel größer wäre, als man über das Verhältnis der Feldstärken erwarten würde. Eine weitere mögliche Erklärung ist eine Unebenheit in der Blende oder im Wellenleiter selbst, so dass das Feld beim Austritt verzerrt wird. Gegen diese Vermutung spricht jedoch das ungestörte Bild der p -Polarisation. Die wahrscheinlichste Erklärung wird über die Simulation geliefert (Abb. 4.4(b)). Dort erkennt man das Bild eines Quadrupols, was dafür sprechen würde, dass höhere Multipolmomente einen stärkeren Einfluss auf die Feldverteilung haben als im p -polarisierten Fall. Damit würde die gemessene Feldverteilung in Abb. 4.5(b) einem Multipolfeld entsprechen.

Betrachtet man darüber hinaus die Feldverteilungen für verschiedene Entfernungen von der Blende (Abb. 4.6), so sieht man, dass das Feld in beiden Polarisationsrichtungen nur an Stärke verliert, seine Form jedoch beibehält. Da dieses Verhalten für alle untersuchten Aperturformen identisch war, wird die weitere Auswertung bei nur einer Entfernung vorgenommen werden.

Um die These zu untersuchen, dass höhere Multipolmomente für die Feldcharakteristika in der s -Polarisation zuständig sind, wurden Untersuchungen an verschieden geformten Blenden vorgenommen. Während sich bei einer ovalen Blende über das Konturbild keine neuen Erkenntnisse gewinnen ließen, ergab sich für die in Abb. 4.1(c) gezeigte Kreuzblende ein gänzlich anderes Bild.

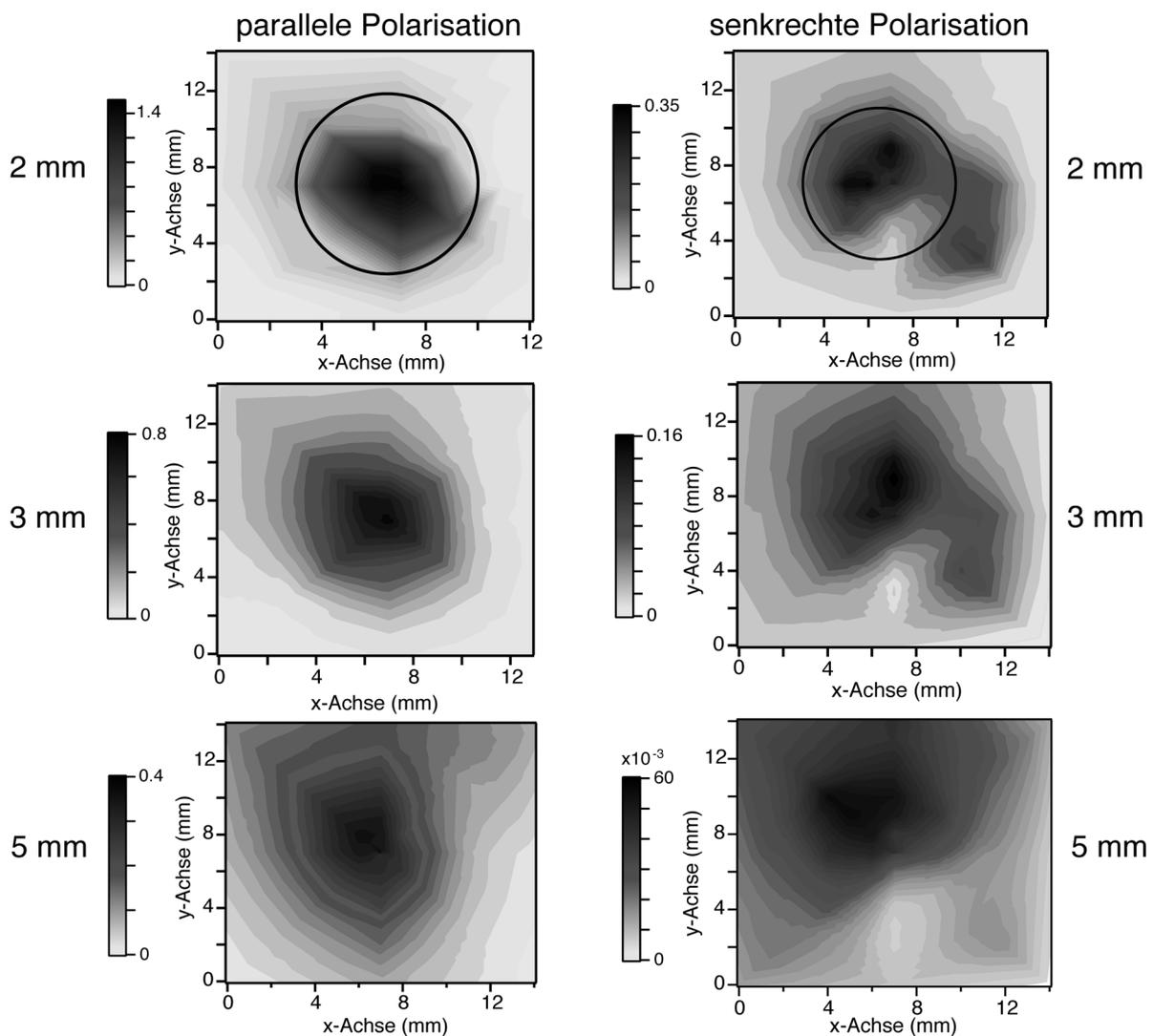


Abbildung 4.6: Verhalten des elektrischen Feldes für verschiedene Entfernungen von der runden Apertur.

Die Messungen für die Kreuzblende sind in Abb. 4.7 dargestellt. Dabei zeigt die linke Spalte die Messungen für die p -Polarisation, während die rechte Spalte die Messungen für die s -Pola-

risation darstellt. Der Unterschied zwischen der oberen und unteren Reihe besteht darin, dass die Orientierung der Blende zwischen den beiden Messungen geändert wurde. Während sie im ersten Fall mit den langen Seiten entlang der Hauptachsen (also der x - und y -Achse) aufgestellt wurde, war ihre Ausrichtung im zweiten Fall um 45° gedreht. In der ersten Messreihe sind keine großen Änderungen der Feldstärken gegenüber der runden Blende sichtbar: Während in p -Polarisation wieder ein rundes Profil sichtbar ist, dessen Schnitt wieder Gauß-förmig mit einer Breite von 5,2 mm ist, erhält man für die Messung in s -Polarisation wieder eine Doppelpeakstruktur. Diese ist wieder um etwa 45° gegenüber den Hauptachsen verdreht. Ihre Intensitätsverteilung ist jedoch umgekehrt zu der der runden Blende, doch wird durch die Lage der Apertur der Grund dafür deutlich – die maximale Intensität geht durch die Öffnung am rechten Arm. Die Breite der beiden Peaks ermittelt sich zu unter 3 mm. Im Unterschied zur runden Blende sind die beiden Peaks hier schärfer voneinander getrennt. Im Konturendiagramm erkennt man in der Mitte der Apertur eine Art Knoten. Die Aperturform hat keinen qualitativen Einfluss auf das Feldverhalten.

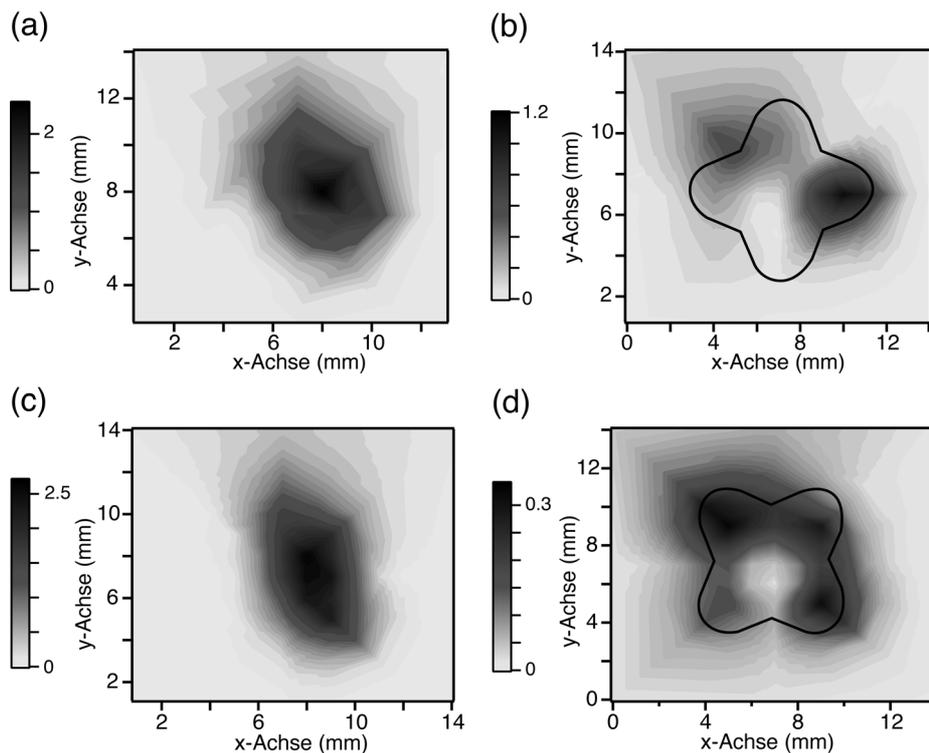


Abbildung 4.7: Feldstärkekartierung einer Kreuzblende in 2 mm Entfernung von der Blende. (a) p -Polarisation bei senkrecht positionierter Blende. (b) s -Polarisation. Eingezeichnet ist auch die Lage der Blende. (c) p -Polarisation bei um 45° gedrehter Apertur. (d) s -Polarisation. Eingezeichnet ist wiederum die Apertur in Größe und Lage.

Im Gegensatz dazu stehen die Messungen an der um 45° gedrehten Blende. Diese wurden in Angriff genommen, weil sich bei den Messungen in s -Polarisation die Maxima auf einer Achse

befanden, die um 45° gegenüber den Hauptachsen verkippt war. Während sich für die p -Polarisation keine Änderung im Bild ergibt – Gauß-förmiges Profil mit einer Breite von etwa 4 mm – erhält man für den s -polarisierten Fall vier Maxima, die an den Enden der Blende liegen, und einen Knoten der Feldstärke in der Aperturmitte (Abb. 4.7(d)). Betrachtet man die Breiten entlang einer Diagonalen, so erhält man zwei gut gegeneinander aufgelöste Maxima mit einer Breite (FWHM) von etwa 2 mm. Das Bild, das man hier erhält, entspricht dem eines elektrischen Quadrupols oder, im Modenbild gesprochen, einer TE_{21} -Mode. Damit bestätigt sich die Vermutung, dass das Feld in der s -Polarisation eher durch höhere Multipolmomente (höhere Moden) gebildet wird und damit sensitiver auf die Form der Apertur reagiert.

Als nächstes wurde zum Vergleich mit den experimentellen Gegebenheiten beim *SNOM* die Feldstärkeverteilung hinter der Spitze kartiert. Wie man in Abb. 4.8 erkennt, erhält man ein ähnliches Verhalten wie bei der planen, runden Apertur. Für die p -Polarisation erhält man wiederum eine Kreissymmetrie in der Feldverteilung, was wieder für eine Gauß-förmige Mode spricht (Abb. 4.8 (a),(c)). Der Schnitt zeigt wieder eine Gauß-förmige Verteilung der Feldstärke mit einer Breite von 6,8 mm, was wiederum schmaler als der Aperturdurchmesser von 11 mm ist. Im s -polarisierten Fall sind zwei Maxima sichtbar, die, wie bei der runden Blende, in einem Winkel von 45° gegen die Hauptachsen verkippt sind. Beide Maxima liegen jetzt innerhalb der Blende und sind ein wenig vom Zentrum weg nach oben verschoben. Vermutlich ist dies ein Artefakt der Konusgeometrie, die etwas unsymmetrisch angebracht war. Der Schnitt (Abb. 4.8 (f)) zeigt wiederum eine Doppelpeakstruktur, die, wie im Falle der runden Blende auch, asymmetrisch ist und eine Breite von etwa 4 mm aufweist. Betrachtet man sich das Verhältnis der Maximalwerte der Feldstärken in s - und p -Polarisation, so erhält man einen Wert von 1/10. Dieser ist, wie oben erwähnt, deshalb besser als der Wert an der planen Blende, da die Spitze eine Art Filterwirkung besitzt und höhere Modenterme dort aussterben.

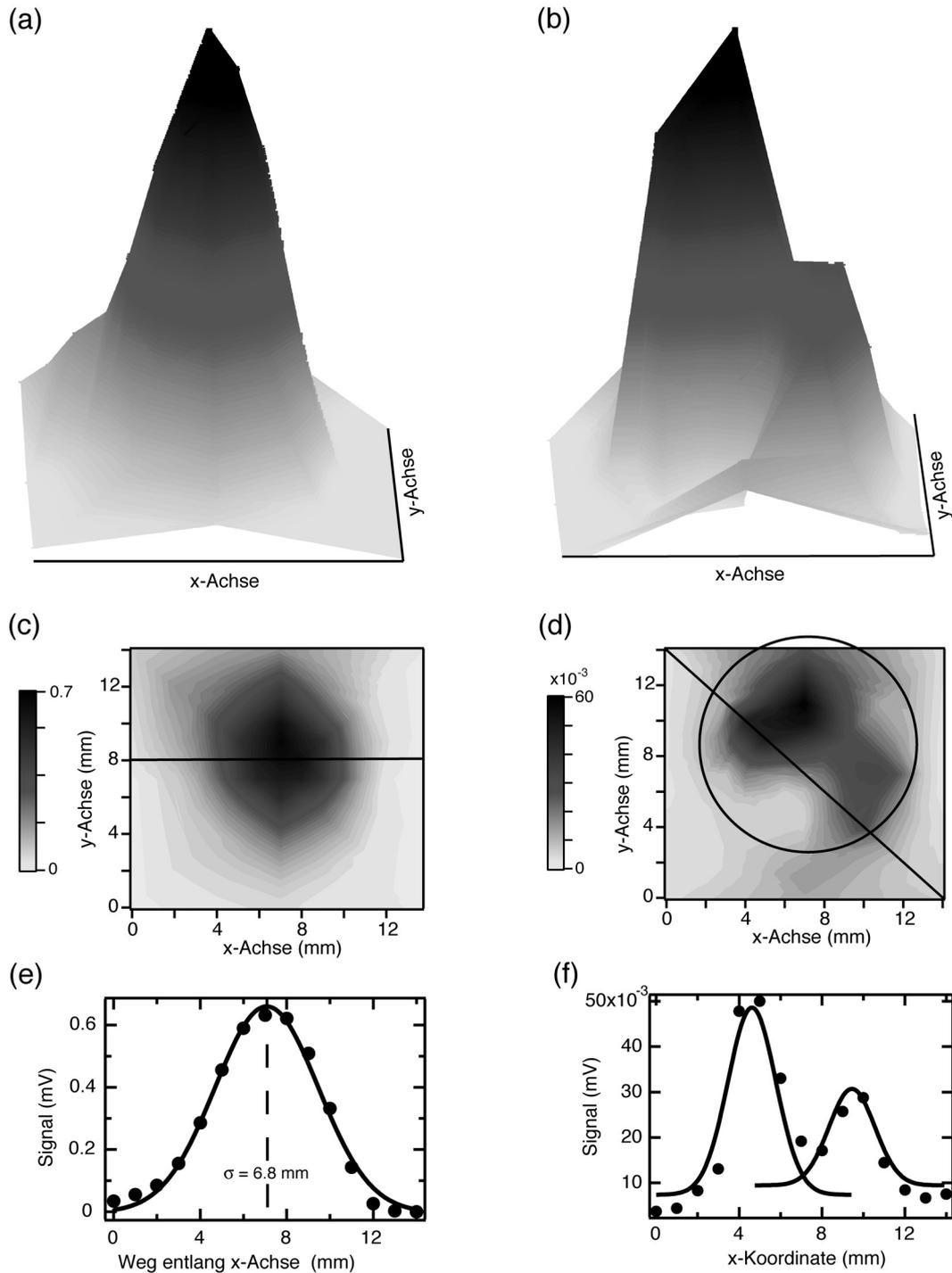


Abbildung 4.8: Kartierung der Feldstärke für eine Spitze mit einem Aperturdurchmesser von $\lambda/3$ und in einer Entfernung von 2 mm von der Öffnung. (a) und (b) 3-dim Darstellung der Messung in p- und s-Polarisation. (c) und (d) Isofeldstärkedarstellungen von (a) und (b). Die Lage und Größe der Apertur ist in (d) eingezeichnet. (e) Schnitt entlang der Geraden in (c). Es ergibt sich ein Gauß-förmiges Maximum. (f) Schnitt entlang der Geraden in (d). Deutlich treten zwei Maxima mit asymmetrischer Signalstärke hervor.

Bisher wurde nur die Entwicklung der einzelnen Feldstärkekomponenten dargestellt. In der Praxis sind jedoch die Gesamtfeldstärke, die Gesamtpolarisation und der resultierende Grad der

Polarisation wichtig, denn nur so kann man feststellen, ob es überhaupt sinnvoll ist, polarisationsabhängige Messungen hinter einer sub- λ Apertur zu tätigen. Diese Auswertung soll nun für die runde Blende mit einem Durchmesser von $\lambda/4$ und für die Spitze durchgeführt werden und zwar in einer Entfernung von 2mm hinter der Aperturöffnung, was $\lambda/16$ entspricht.

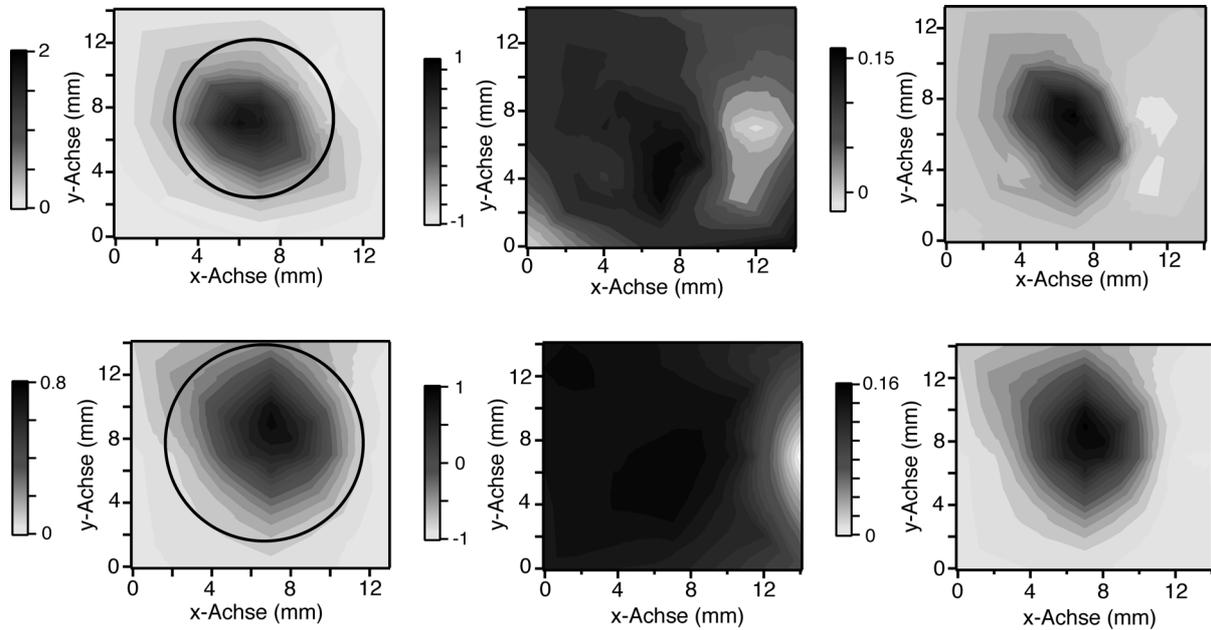


Abbildung 4.9: Aus den einzelnen Feldstärkebildern bestimmte Verteilungen für die Gesamtfeldstärke (links), den Polarisationsgrad (mitte) und die Gesamtpolarisation (rechts). Dabei ist die obere Reihe aus den Messungen an einer runden Blende und die untere Reihe aus den Messungen an der Spitze entstanden. Die Lage und Größe der Aperturen ist in den Bildern für die Gesamtfeldstärke eingezeichnet.

Die Gesamtfeldstärke ergibt sich dabei einfach aus der Summe der beiden Feldstärken E_s und E_p . Da die Felder in der p -polarisierten Messrichtung um einen Faktor 4 (Blende) bzw. 10 (Spitze) größer sind als die für die s -Polarisation sehen die Feldverteilungen qualitativ denen der p -Polarisation ähnlich (Abb. 4.9 links). Man erkennt ebenfalls, dass der Großteil der Feldstärke innerhalb der Apertur zu finden ist, während sie außerhalb sehr schnell gegen Null geht. Aus der Gesamtfeldstärke und den einzelnen Feldstärken lässt sich für jeden Punkt ein sogenannter Polarisationsgrad angeben:

$$P = \frac{E_p - E_s}{E_p + E_s} \quad (\text{Gl. 4.2})$$

In dieser Darstellung erhält man für vornehmlich p -polarisiertes Feld positive Werte, für ein vorwiegend s -polarisiertes Feld negative Werte. Abbildung 4.9 (mitte) zeigt die erhaltenen Resultate für die Blende und die Spitze. Man erkennt einen deutlichen Unterschied zwischen den beiden Aperturen, der durch die unterschiedlichen Signalstärken in den beiden Fällen hervorgerufen wird. Das Bild der Spitze (unten) zeigt einen großen Bereich, vornehmlich innerhalb der Apertur, der fast vollständig p -polarisiert ist. Erst außerhalb der Apertur und da auch nur auf der

Seite, wo das zweite Maximum in der s -Polarisation lag (vgl. Abb. 4.8 (d)), wechselt die Polarisation zu s . Das Verhalten an der runden Blende lässt viel mehr Strukturen erkennen. Innerhalb der Apertur herrscht vornehmlich p -Polarisation, jedoch wird sie zum Rand hin unbestimmter. Außerhalb des rechten Randes erhält man einen Bereich, der komplett s -polarisiert ist. Aus diesen beiden Bildern lassen sich schon erste Rückschlüsse darüber ziehen, welche Apertur besser für Polarisationsmessungen im Nahfeld geeignet ist. Um eine endgültige Aussage darüber zu treffen, wurde als nächstes die Gesamtpolarisation bestimmt, die die mit der Gesamtfeldstärke gewichtete Polarisation ist (Abb. 4.9 rechts). Im Experiment tragen aber nicht nur Anteile der innerhalb des Aperturdurchmessers liegenden Felder zum Ergebnis bei, es wird vielmehr über einen Bereich auch außerhalb der Apertur integriert. In diesem Fall bedeutet dies, dass die Gesamtpolarisation über das gesamte Bild integriert werden muss:

$$\int \text{Gesamtpol} = \int \frac{P \cdot \text{Gesamtint}}{\text{Gesamtint}} \quad (\text{Gl. 4.3})$$

Die sich daraus ergebenden Werte für den Polarisationsgrad sind: 45% für die Blende und etwa 90% für die Spitze. Der relativ niedrige Wert für die Blende spiegelt direkt das Verhältnis von E_s/E_p wider und ist für eine polarisationsempfindliche Messung eher ungeeignet. Demhingegen hat man eine gut definierte Polarisation hinter der Spitze, die auch Polarisationsmessungen ermöglicht.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde gezeigt, dass es mit der aufgebauten Apparatur möglich ist, die elektrischen Felder hinter einer sub- λ Apertur abstands- und polarisationsabhängig auszumessen. Es konnte so eine polarisationsempfindliche Kartierung der elektrischen Feldstärke im Nahfeld stattfinden, die mit den theoretischen Vorhersagen verglichen werden konnte.

Die zuerst ermittelte Abstandsabhängigkeit hinter einer runden Blende konnte sehr gut mit den mit Hilfe der Bouwkamp-Theorie getätigten Rechnungen erklärt werden. Es konnte weiterhin gezeigt werden, dass die getätigten Messungen nur im Nahfeldbereich stattfanden und damit die notwendige Bedingung für die Polarisationsmessungen im Nahfeld erfüllten. Die Experimente an der Aluminiumspitze zeigte ebenfalls eine gute Übereinstimmung mit der Theorie. Hier zeigte sich ein Unterschied zwischen den beiden Polarisationsrichtungen, was darauf hindeutet, dass die Messungen in s -Polarisation empfindlicher auf propagierende Moden im Wellenleiter, in diesem Fall deren Aussterben, wie auch auf Aperturgeometrien reagiert.

Bei der Kartierung der Polarisation traten die Unterschiede der Wellenleitung in dem Rohr im Vergleich der Wellenleitung in einer Glasfaser deutlich hervor. In dem Rohr fand aufgrund der un stetigen Geometrieänderung – vom rechteckigen Reflex-Klystron in das runde Rohr – und dem Umstand, dass der Rohrdurchmesser überdimensioniert war, eine Leitung aller möglichen Moden statt. Die gemessene Feldstärkeverteilung hinter der Apertur entsprach somit der Feldverteilung in den Moden, was zu einer Gauß-förmigen Verteilung im p -polarisierten Fall führte. Die Messungen in s -Polarisation zeigten, dass hier höhere Moden als in p -Polarisation für die Feldverteilungen verantwortlich sind, weshalb auch kein Gauß-förmiges Profil zustande kam. Darüber hinaus zeigte sich die s -Polarisation empfindlicher auf die Aperturgeometrie, was dazu führt, dass je nach Form und Stellung der Apertur einzelne Moden herausgefiltert werden können.

Die Aluminiumspitze zeigte indes kein qualitativ unterschiedliches Verhalten zur runden Blende. Nur das Verhältnis der Feldstärken E_s/E_p zeigte einen höheren Wert, was vom Aussterben einzelner Moden in der Spitze herrührt.

Der letzte Teil, der die Gesamtpolarisation hinter der Blende und der Spitze analysiert, zeigt, dass im Nahfeld ein Polarisationskontrast zwischen p - und s -Polarisation von bis zu 90% existiert. Damit ließe sich im *SNOM* eine polarisationsabhängige Messung durchführen.

Kapitel 5

Pulspropagation in Glasfasern

Dieser Abschnitt widmet sich den experimentellen Ergebnissen, die zur Pulsausbreitung in Glasfasern gewonnen wurden. Die getätigten Untersuchungen waren im Hinblick auf die Anwendungen mit dem *fs-SNOM* notwendig, da zur *SHG*-Erzeugung hohe Pulsenergien benötigt werden, ohne dabei die Faserspitze oder die Probenoberfläche zu zerstören. Normalerweise erreicht man dies, in dem man möglichst kurze Pulsbreiten benutzt und somit der in das Material deponierten Energiemenge (in Form von Wärme) genügend Zeit lässt, abtransportiert zu werden, womit eine Aufheizung vermieden wird. Da jedoch beim Durchgang durch die Glasfaser der Puls verbreitert wird, ist die genaue Kenntnis der zur Verbreiterung führenden Mechanismen als auch die erzielten Pulsbreiten essentiell. Zwar existieren in der Literatur ähnliche Untersuchungen, doch handelt es sich dabei vornehmlich um Solitonenerzeugung und deren Propagation [65, 76, 128, 129]. In der Wellenlängen- und Leistungsregion des Ti:Saphir-Lasers wurden lediglich Untersuchungen bei sehr geringen Leistungen [68] oder speziellen Geometrien [130-133] durchgeführt.

Das Kapitel wird sich folgendermaßen gliedern: Zuerst wird die theoretisch zu erwartende Verbreiterung des Pulses diskutiert, ehe die experimentell gewonnenen Ergebnisse für die Energie- und Längenabhängigkeit der Pulsbreite mit diesen berechneten Resultaten verglichen werden. Dabei wird auch auf den Unterschied zwischen den getemperten und den ungetemperten Fasern eingegangen werden. Den Abschluss des Kapitels bilden die Ergebnisse nach Aufbau der Puls-kompressionsstrecke.

5.1 Eingangsüberlegungen

Die Glasfaser, als Material betrachtet, zeigt bei der benutzten Wellenlänge von 820nm, wie in Anhang A demonstriert, positive Dispersion. Dies bedeutet, dass ein einlaufender bandbreitenbegrenzter Puls verbreitert wird. Die Fragen, die sich nun stellen, sind, welche Effekte zur Verbreiterung führen und wie breit der Lichtpuls am Faserausgang sein wird. Um abschätzen zu können, ob die Verbreiterung dispersiver oder nichtlinearer Natur oder vielleicht doch eine Mischform beider ist, bietet es sich an, die zugehörigen charakteristischen Längen zu betrachten. Die Dispersionslänge L_D hängt dabei direkt vom *GVD*-Parameter ab, während die nichtlineare Länge L_{NL} durch die einfallende Pulsenergie und den nichtlinearen Brechungsindex des Fasermaterials bestimmt ist.

Beide Größen – L_D und L_{NL} – ergeben sich zu:

$$L_D = \frac{\tau_0^2}{|k_2|} = 23,3 \text{ cm}$$

$$L_{NL} = \left(\frac{n_2 \omega_0 P_0}{c A_{eff}} \right)^{-1} = 0,3 \text{ cm} \quad ,$$

für die in dieser Arbeit verwendeten Werte ($\lambda=820\text{nm}$, $P_{mittel}=150\text{mW}$, $\tau_0=90\text{fs}$). Die effektive Fläche A_{eff} wird durch den Faserkernradius bestimmt, und die Werte des *GVD*-Parameters bzw. des nichtlinearen Brechungsindex n_2 werden den Berechnungen in Anhang A entnommen. Man erkennt an den Werten deutlich, dass die nichtlinearen Effekte die Verbreiterung für gebräuchliche Faserlängen dominieren werden. Für Längen, die im Bereich von L_D liegen oder größer sind, wird jedoch der Einfluss der Gruppengeschwindigkeitsdispersion zunehmen, so dass sich *GVD* und *SPM* am Ende gleichermaßen für dessen Verbreiterung verantwortlich zeichnen. Es müssen bei der Behandlung also beide Effekte berücksichtigt werden. Eine Solitonenerzeugung ist nicht zu erwarten, da im agierenden Wellenlängenbereich beide Effekte eine positive Verbreiterung verursachen und sich somit nicht gegenseitig aufheben werden. Der im Weiteren benutzte funktionale Zusammenhang zwischen Pulsbreite, Faserlänge und Pulsenergie lautet (s. auch Gl. 2.63):

$$\begin{aligned} \tau(z) &= \tau_0 \sqrt{1 + \frac{2k_2 Cz}{\tau_0^2} + \left(\frac{k_2^2(1+C^2)}{\tau_0^2} + \frac{k_2 \gamma E_0}{\sqrt{2}\tau_0} \right) \cdot \frac{z^2}{\tau_0^2}} \\ &= \tau_0 \sqrt{1 + \frac{2Cz}{L_D} + \left(\frac{k_2(1+C^2)}{L_D} + \frac{1}{\sqrt{2}L_D L_{NL}} \right) \cdot \frac{z^2}{\tau_0^2}} \quad , \end{aligned} \quad \text{(Gl. 5.1)}$$

wobei C der Chirp-Parameter, k_2 der GVD - und γ der nichtlineare Parameter sind. Die daraus resultierenden Verläufe sind in Abbildung 5.1 dargestellt. Teilbild (a) zeigt dabei die Längenabhängigkeit der Pulsbreite. Wie erwartet ist der Anstieg anfangs quadratisch und wechselt für große Längen zu einem linearen Verhalten. Die Steilheit der Kurve wird dabei durch die Pulsenergie E_0 bestimmt. Man sieht, dass bei steigender Pulsenergie die Pulsbreite viel schneller ansteigt. Bei eingeschaltetem Chirp wird sich die Kurve entlang der x -Achse verschieben, wie es in Abb. 2.10 gezeigt wurde. Für die energetische Abhängigkeit der Pulsbreite, wie sie in Teilbild (b) zu sehen ist, erhält man das erwartete wurzelförmige Verhalten. Dabei ist noch zu beachten, dass die Pulsbreite bei sonst gleicher Pulsenergie steigt, wenn die durchlaufene Materialstrecke ebenfalls ansteigt (vgl. Teilbild (a)).

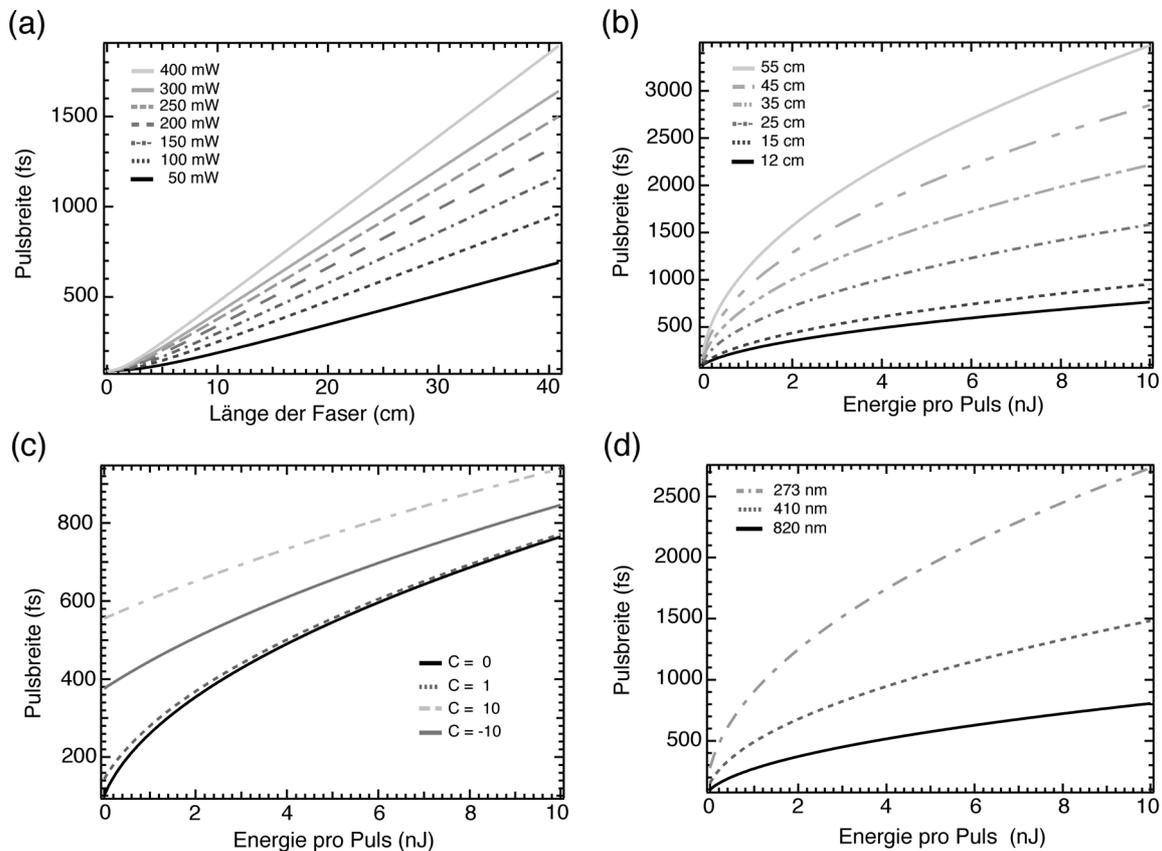


Abbildung 5.1: Theoretische Kurven zur Pulsverbreiterung nach Gl. 5.1. (a) Verbreiterung eines anfänglich 90fs breiten Pulses in Abhängigkeit von der durchlaufenen Faserlänge für verschiedene mittlere Leistungen des Laserstrahles bei 820nm. (b) Abhängigkeit der Pulsbreite von der eingehenden Pulsenergie für verschiedene Faserlängen. (c) Wie in (b), jedoch nur für eine 12cm lange Glasfaser und mit verschiedenen Chirpparametern. (d) Pulsbreite in Abhängigkeit von der Pulsenergie bei einer 12cm langen Glasfaser. Zusätzlich ist hier noch die Abhängigkeit von den nichtlinearen Parametern in Form verschiedener Wellenlängen dargestellt.

Abbildung 5.1(c) zeigt, wie sich die Pulsbreite in Abhängigkeit von der Pulsenergie bei verschiedenen Chirpgrößen verhält. Deutlich ist zu erkennen, dass bei eingeschaltetem Chirp die Pulsbreite auf jeden Fall größer sein wird als ohne Chirp, wobei die Abweichung zum chirplo-

sen Fall für kleine Pulsenergien am größten ist. In Teilbild (d) ist schließlich noch die Abhängigkeit der Verbreiterung vom nichtlinearen Koeffizienten γ dargestellt. Sie ist wichtig, da bei den verwendeten Pulsenergien nichtlineare Umwandlungsprozesse in der Faser stattfinden und dementsprechend auch die dritte Harmonische erzeugt wird. Betrachtet man sich den Durchgang eines Pulses mit dieser Wellenlänge ($\lambda = 273 \text{ nm}$), so wirken auf ihn andere Parameter als für den Puls bei der Grundwellenlänge (vgl. Anhang A). Es ändert sich nämlich sowohl der GVD-Parameter als auch der nichtlineare Brechungsindex. Da beide Größen einen höheren Wert annehmen, ist mit einer schnelleren Verbreiterung, wie sie auch in Abb. 5.1(d) zu sehen ist, zu rechnen.

Vermutlich wird eine Kombination der erwarteten Einzeleffekte für die reale Pulsverbreiterung, die im Folgenden untersucht wird, verantwortlich sein.

5.2 Pulsverbreiterung durch die Optik

Die in diesem Rahmen stattgefundenen Untersuchungen wurden mit dem Aufbau, wie er in Abschnitt 3.4 besprochen wurde, durchgeführt. Die benutzte Wellenlänge lag bei $\lambda_0 = 820 \text{ nm}$, während als Eingangsleistungen Werte zwischen $P_m = 10 \text{ mW}$ und 1 W dienten. Die mittels Autokorrelation gemessene Eingangspulsbreite lag bei $\tau = (150 \pm 2) \text{ fs}$, was einer realen Pulsbreite von $\tau = (90 \pm 2) \text{ fs}$ entspricht. Es soll hier noch einmal darauf hingewiesen werden, dass zur Pulsanalyse nur der Autokorrelator zur Bestimmung der Pulsbreite zur Verfügung stand und keine Auswertung des räumlichen Profils des Pulses möglich war.

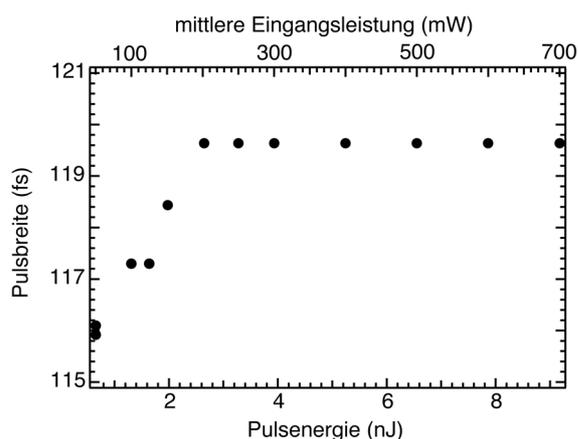


Abbildung 5.2: Experimentell ermittelte Abhängigkeit der Pulsbreite von der einfallenden Leistung des Pulses für die optischen Elemente.

Als erstes wurde die Veränderung der Pulsbreite untersucht, die von den im Aufbau benutzten optischen Elementen herrührt. Hier ist ein Effekt allein durch die Materialdispersion der verwendeten Linsen zu erwarten, aber auch eine Verbreiterung und Veränderung des Pulsprofils durch die bei der Fokussierung auftretende Aufteilung der Puls- und Phasenfronten [134, 135]. Das experimentelle Ergebnis ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Es sind deutlich zwei Bereiche auflösbar. Im ersten

Bereich (bis zu einer mittleren Leistung von etwa 200 mW) erkennt man ein fast lineares Ansteigen der Pulsbreite mit steigender Eingangsleistung auf etwa 120 fs – entspricht einer relati-

ven Änderung von 20%. Der zweite Bereich, der sich daran anschließt, zeigt keine weitere Änderung der Pulsbreite. Dies ist ein wenig verwunderlich, da sich aus Gl. 5.1 ein eher streng monoton ansteigendes Verhalten ergibt. Weiterhin ist die gesamte Änderung der Pulsbreite nur sehr gering; sie wird fast komplett vom Fehler des Autokorrelators (in diesem Messbereich 2 fs) verdeckt. Vermutlich spielen hier nicht die dispersiven und nichtlinearen Eigenschaften des Materials die tragende Rolle (eine Anpassung der Daten blieb erfolglos), sondern die Änderung des Pulsprofils aufgrund der Kollimierung des Pulses durch die Einkoppeloptik. Dies konnte jedoch nicht weiter verfolgt werden, da der Autokorrelator das räumliche Pulsprofil nicht bestimmen kann und im zeitlichen keine Abweichung vom Gauß-Profil zeigte. Eine weitere mögliche Erklärung könnte sich über die Fokussierung des Laserstrahles ergeben und dem daraus resultierenden optischen Kerr-Effekt. Im Fokus kann die einhergehende Intensitätssteigerung den Brechungsindex im Linsenmaterial lokal ändern, was zu einer Änderung der Dispersionseigenschaften führt und somit auch zu einer Veränderung in der Propagation der Puls- und Phasenfronten. Allerdings müssten sich die Effekte bei höheren Eingangsenergien herausmitteln, um das beobachtete Verhalten zu erklären, was jedoch recht unwahrscheinlich ist. Eines lässt sich aber aus der Messung folgern: Für die nachfolgenden Experimente mit eingebauter Glasfaser, ist die hier ermittelte Pulsbreite als Eingangspulsbreite anzunehmen und nicht die bandbreitenbegrenzte des Lasers, auch wenn der Unterschied von 30 fs marginal erscheinen mag.

5.3 Verbreiterung in der Glasfaser

Die ersten Versuche zur Pulspropagation in einer *single-mode* Glasfaser betrafen die Abhängigkeit von der Eingangsintensität. Aufgrund der erwarteten Verbreiterung, wurde die Faser im Hinblick auf den Einbau in das *SNOM* auf eine Länge von 12 cm minimiert und an beiden Enden flach geschnitten in den Strahlengang eingebaut. Beim Einkoppeln wurde eine Effizienz von etwa 50% erzielt, wie es in Abb. 5.3 (a) gezeigt ist. Es wurde dabei ein deutlich sichtbarer HE_{11} -Reflex durch die Faser geleitet, was für eine gute Einkopplung spricht. Diese wurde während des Experimentes konstant gehalten und ständig überprüft, da eine Propagation durch den Mantel unerwünschte Eigenschaften zeigen würde. Neben einer veränderten Materialdispersion müsste auch die dann auftretende Modendispersion mitberücksichtigt werden, die bei Weiterleitung der HE_{11} -Mode im Kern wegfällt.

Abbildung 5.3 (b) zeigt das Verhalten der Pulsbreite in Abhängigkeit von der einfallenden Pulsenergie. Dabei ist das Hochfahren (schwarze Kreise) und Herunterfahren (graue Quadrate) der Eingangsleistung während des Experimentes gezeigt. Man erkennt, dass sich die Pulsbreiten

der beiden Teile des Experimentes kaum unterscheiden.

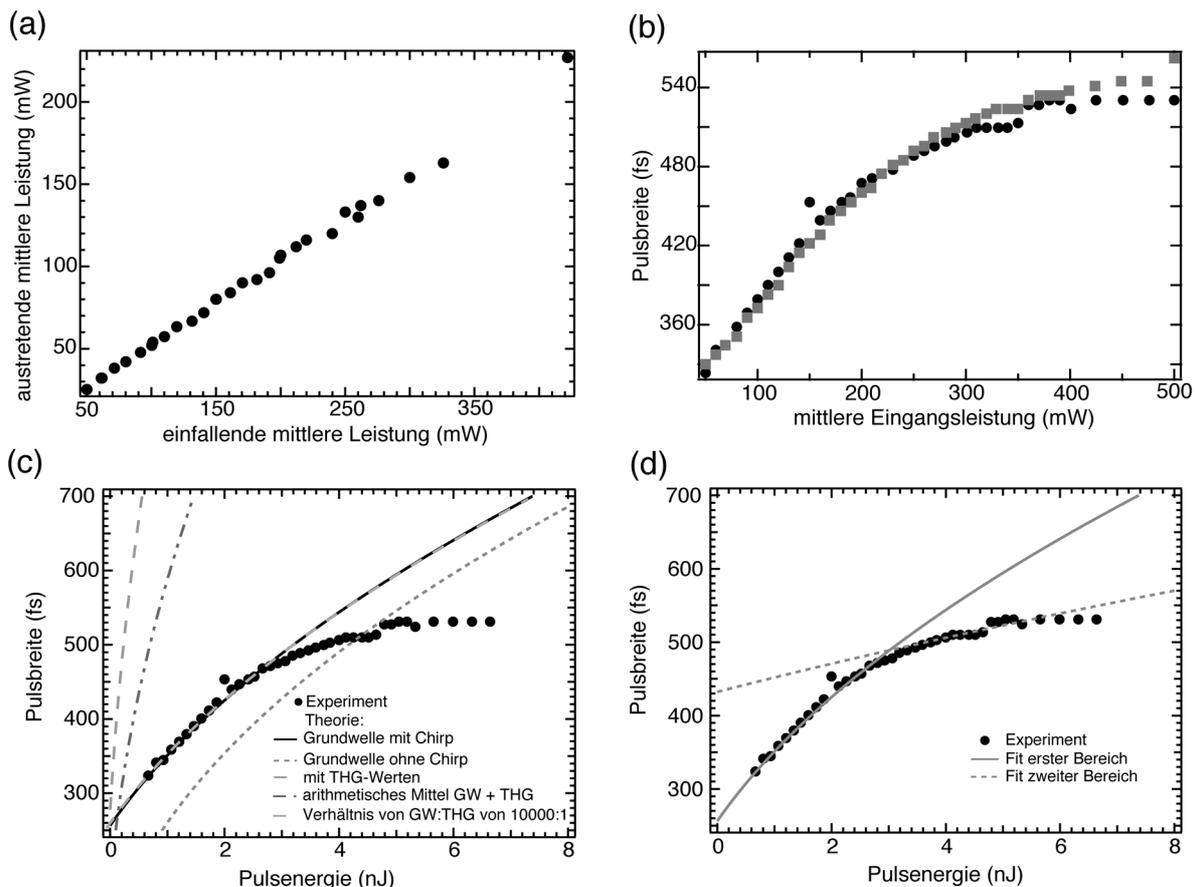


Abbildung 5.3: (a) Experimentell ermittelte Einkoppeleffizienz in die single-mode Glasfaser bestimmt über die ein- und ausfallende mittlere Leistung. (b) Abhängigkeit der Pulsbreite von der einfallenden mittleren Leistung für eine 12cm lange Faser. (c) Vergleich zwischen Experiment und theoretischen Kurven aus Gl. 5.1 mit verschiedenen Parametern. (d) Anpassung der theoretischen Kurven an das Experiment mit Hilfe von zwei verschiedenen Propagationsbereichen und Gl. 5.1.

Die dabei auftretenden Fehler in der Bestimmung der Pulsbreite und der Pulsenergie werden durch die Größe der Punkte mehr als gut abgedeckt. Es lässt sich daraus folgern, dass in der Faser keine strukturellen Veränderungen derart stattfinden werden, dass die Propagation davon beeinflusst wird und man sich somit im Experiment unterhalb der Zerstörschwelle des Materials befinden wird.

Der Verlauf der Energieabhängigkeit der Pulsbreite zeigt ein deutlich nichtlineares Verhalten. Dies wurde erwartet (vgl. Abb. 5.1 (b)) und soll ein wenig näher untersucht werden. Versucht man die Abhängigkeit der Pulsbreite mit Hilfe von Gl. 5.1 zu verstehen, so ergibt sich das in Abb. 5.3(c) dargestellte Ergebnis. Neben der experimentell ermittelten Kurve, sieht man noch die versuchten Anpassungen. Man erkennt, dass die Theorie nur den vorderen Bereich – bis zu einer mittleren Eingangsleistung von ca. 250mW (Pulsenergie etwa 3nJ) – befriedigend beschreiben kann (durchgezogene schwarze Linie). Es stellt sich heraus, dass in Gl. 5.1 der Chirp

des Pulses nicht vernachlässigt werden darf, da sonst die Anpassung nicht gelingt (kleingestrichelte mittelgraue Linie). Hierbei wurden k_2 (GVD-Parameter) und γ (nichtlinearer Parameter) mit den Werten des Glases (fused silica/Quarzglas) für die Grundwellenlänge ($\lambda_0=820\text{nm}$) angesetzt und die Eingangspulsbreite wurde der in Kap. 5.2 diskutierten entnommen. Den hinteren Teil der experimentellen Kurve ($E>3\text{nJ}$) konnte dieser Ansatz jedoch nicht erklären. Daraufhin wurde der Einfluss der beiden festgehaltenen Parameter – GVD- und nichtlinearer Parameter – untersucht. Es ist bekannt, dass nichtlineare Prozesse beim Durchgang des Lichtpulses durch die Faser stattfinden, die bei der Propagation berücksichtigt werden müssen. In diesem Fall bedeutet dies, dass neben der Grundwelle auch die dritte Harmonische durch die Faser läuft (die Erzeugung der zweiten Harmonischen ist symmetrieverboten). Für eine Wellenlänge von $\lambda=273\text{nm}$ sind die Größen für k_2 und γ jedoch viel größer als bei der Grundwellenlänge (vgl. Anhang A). Setzt man diese nun ein ($k_2=1973\text{fs}^2/\text{cm}$; $\gamma\approx 0.03\text{m/W}$), so erhält man eine Kurve, die viel zu steil im Vergleich zum Experiment verläuft (hellgrau gestrichelt). Wenn man sich überlegt, dass natürlich auch die Grundwellenlänge eine Rolle spielen muss, so müsste man die sich so ergebenden Materialparameter mischen; dazu wird ein Mittelwert der Werte der Grundwellenlänge und der dritten Harmonischen gebildet. Bei einer Gewichtung der Werte, die dem gemessenen Intensitätsverhältnis der beiden Wellenlängen entspricht, fällt die so errechnete Kurve (hellgrau) mit der ersten (Grundwelle mit Chirp; schwarze Kurve) zusammen.

Damit ist zwar die Propagation im ersten Teil erklärt, doch man hat keinen Anhaltspunkt, wieso die Kurve ab einer Pulsenergie von etwa 3nJ stärker abknickt als erwartet. Verändert man die Eingangspulsbreite um einen Faktor 3 (also auf etwa 300fs), so lässt sich der zweite Bereich der experimentellen Kurve gut beschreiben (Abb. 5.3(d)). Der Grund dafür liegt vermutlich im optischen Kerr-Effekt, bei dem durch nichtlineare Wechselwirkungen eine Änderung der Materialparameter erfolgt und damit einhergehend eine weitere Fokussierung des Strahles. Außerdem haben die veränderten Materialparameter bei breiten Pulsen einen anderen Einfluss auf das Ausbreitungsverhalten, als für die kurzen Pulse, dadurch dass die Spitzenleistungen in den Pulsen geringer sind. Eine weitere Möglichkeit würde Streuung an Dotierungen und Unreinheiten im Kernmaterial in Betracht ziehen.

Da solche Untersuchungen zur Bestimmung von Größen wie n_2 , k_2 oder $\chi^{(3)}$ für derart große Materialdurchgänge und Pulsbreiten bisher nicht unternommen wurden, kann hier keine befriedigende Erklärung gegeben werden. Es sollte aber noch beachtet werden, dass für die Anpassung der Kurven ein recht breiter Parameterraum zur Verfügung steht und damit eine wirklich eindeutige Bestimmung der Konstanten unmöglich ist. Eine Klärung könnte unter Zuhilfenah-

me einer räumlichen Pulsanalytik stattfinden, da die zeitliche Analyse mit Hilfe des Autokorrektors keine Störungen des Pulsprofils anzeigte. Eine solche Analytik müsste am besten neben der zeitlichen gleichzeitig auch eine Frequenzanalyse sowie eine räumliche Darstellung des Pulses ermöglichen. Viele nichtlineare Effekte, wie z.B. *SPM*, haben nämlich nur einen Einfluss auf das Frequenzverhalten des Pulses, ohne das zeitliche Verhalten zu stören. Die räumliche Darstellung lässt Schlussfolgerungen auf ein mögliches Aufbrechen des Pulses und auf mögliche Modendispersionen – bei nicht perfekter Einkopplung – zu. Damit ließe sich auch der Einfluss vom nichtlinearen Brechungsindex und damit auch der nichtlinearen Suszeptibilität befriedigend erklären. Solche Analyseaufbauten sind unter dem Namen *FROG* (*frequency resolved optical gating*) bekannt. Ein solcher Aufbau konnte in der vorliegenden Arbeit jedoch nicht realisiert werden.

Die eben gezeigten Messungen der Pulsbreitenabhängigkeit von der einfallenden Pulsenergie wurden nicht nur für die anfänglich benutzte Faserlänge von 12 cm durchgeführt, sondern auch für verschiedene Längen von 10-70 cm. Es war somit möglich, gleichzeitig zur Energie- auch die Längenabhängigkeit der Pulsbreite zu bestimmen. Dazu wurden zwei Ansätze verfolgt. Zum einen wurde jeweils eine neue Faser auf die benötigte Länge geschnitten und nach der Messung nicht mehr benutzt, zum anderen wurde eine Faser benutzt, die während der Messreihe immer weiter verkürzt wurde. Da die Ergebnisse untereinander reproduzierbar waren und es keine sichtbaren Unterschiede zwischen den beiden Vorgehensweisen gab, kann wiederum geschlossen werden, dass es keine strukturellen Transformationen in der Faser gegeben hat.

Die Ergebnisse einer repräsentativen Messreihe sind in Abb. 5.4(a) dargestellt. Man erkennt deutlich den monotonen Anstieg der Pulsbreite bei längeren Fasern wie auch bei steigender Eingangsenergie der Pulse. Der Wert bei einer Faserlänge von 0 m bedeutet, dass die Eingangspulsbreite verwendet wurde. Die Fehlergrenzen sind wiederum durch die Größe der Punkte gegeben. Zur besseren Veranschaulichung der Anpassung der Theorie an die experimentellen Kurven sind in den Teilbildern (b) und (c) je eine Kurve, die aus (a) entnommen wurden, dargestellt. Dabei fand die Anpassung mit Hilfe von Gl. 5.1 statt, bei der die Materialparameter und die Eingangsenergie konstant gehalten wurden. Man erkennt, dass, bis auf ein paar kleine Abweichungen im mittleren Längensegment, die Verläufe gut durch die Theorie erklärt werden können. Dabei konnte gezeigt werden, dass die Pulse nicht bandbreitenbegrenzt sind, es besteht ein anfänglicher Chirp, worauf auch die Voruntersuchungen hindeuteten. Lässt man diesen Chirp nahezu konstant bei allen Energien, so sieht man, dass sich die Eingangspulsbreiten zu

höheren Werten hin verschieben, d.h. höhere Eingangsenergien liefern höhere Pulsbreiten.

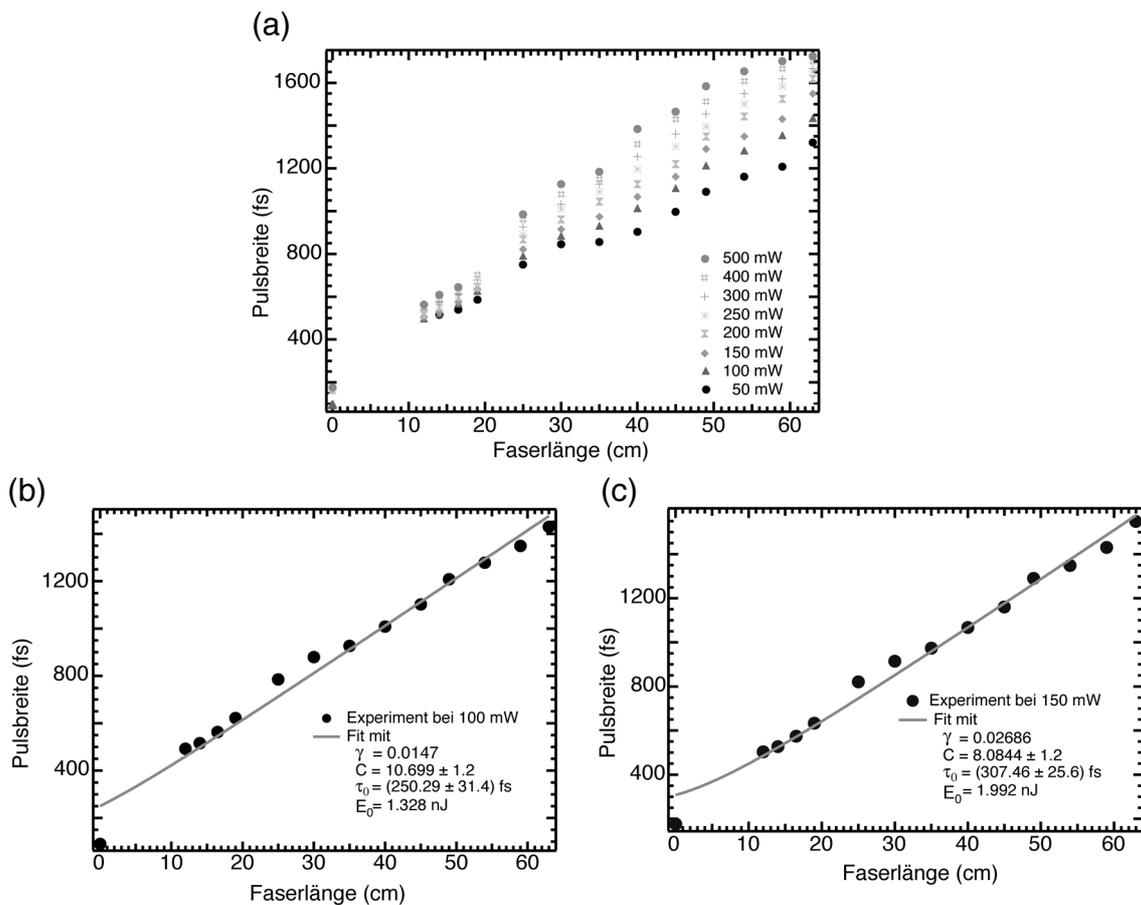


Abbildung 5.4: (a) Experimentelle Ergebnisse der Pulsbreitenabhängigkeit von der Faserlänge für verschiedene Eingangsenergien. (b) Experiment bei 100mW und zugehörige Anpassung (Gl. 5.1). (c) Experiment bei 150mW mit getätigter Anpassung (Gl. 5.1).

Die Erklärung für dieses Phänomen liefert wieder die Fokussierung, allerdings erklärt sie nicht die hohen Abweichungen von dem bandbreitenbegrenzten Fall. Es konnte wiederum keine Störung im zeitlichen Pulsprofil detektiert werden, so dass angenommen wird, dass die Propagation weitgehend störungsfrei verläuft. Ein wichtiger Punkt sei hier noch einmal angeführt. Zur Anpassung der Theorie wurden für die Materialkonstanten die Werte bei der Grundwellenlänge genommen. Lässt man z.B. den *GVD*-Parameter ebenfalls frei variieren so ergeben sich andere Resultate, bis hin zu einer vermeintlichen Abhängigkeit des *GVD*-Parameters von der einfallenden Pulsenergie. Man sollte jedoch Vorsicht ob solcher Resultate walten lassen, da eine Änderung einer Materialkonstanten unweigerlich eine Änderung der anderen zur Folge hat. Da aber diese Änderungsabhängigkeit nichtlinearer Materialgrößen von den linearen nicht bekannt bzw. kaum untersucht ist, wird der Parameterraum zur Erklärung der Ereignisse unüberschaubar groß.

Da nun bekannt war, wie sich der Puls in den beim *SNOM* verwendeten *single-mode* Glasfasern

verhalten würde, wurde noch eine weitere im Transmissions-*SNOM* der Arbeitsgruppe verwendete Glasfaser getestet. Es handelt sich dabei um getemperte Glasfasern (vgl. auch Kap. 3.2.2), bei denen der Temperprozess dazu dient, Unreinheiten und vermeintliche Streuzentren aus dem

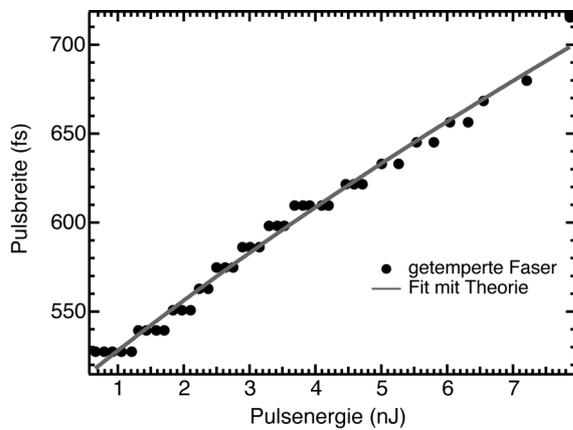


Abbildung 5.5: Abhängigkeit der Pulsbreite von der Eingangspulsenergie für eine getemperte 12 cm lange single-mode Glasfaser. Die durchgezogene Linie zeigt einen Fit mit Hilfe von Gl. 5.1.

erkennt man im Graphen, dass die Pulsbreiten nun deutlich größer sind als bei der ungetemperten Glasfaser. Die theoretische Anpassung erfolgte jedoch, wie aus der Abbildung ersichtlich, problemlos, was daran liegt, dass im Vergleich zur „normalen“ Faser hier keine zwei Bereiche erkennbar sind. Dies kommt vermutlich durch den Temperprozess zustande. Einen hohen Einfluss auf die Propagation haben die Spannungen in der Glasfaser, die im ungetemperten Fall zu Spannungsdoppelbrechung führen, was eine lokale Anisotropie im Brechungsindex zur Folge hat. Beim thermischen Ausheilprozess werden diese Spannungen und damit auch die Anisotropien minimiert. Vermutlich werden diese Anisotropien bei hohen Pulsenergien eine Änderung der Propagationsparameter bewirken, was die Abflachung der Kurve in Abb. 5.3 bei den hohen Energien und ein gänzlich Fehlen dieses zweiten Bereiches im getemperten Fall erklären würde.

Dass die Pulsbreiten im getemperten Fall deutlich größer sind als im ungetemperten, liegt vermutlich in der Änderung des Brechungsindexprofils zwischen Kern und Mantel – durch Diffusionsprozesse beim Tempern weicht das Stufenindexprofil auf. Dies verändert Leitungseigenschaften der Faser deutlich, so dass ein größerer Teil des Gaußschen Pulsprofils in den Mantel hinein reicht. Eine daraus resultierende Modendispersion kann jedoch weitgehend ausgeschlossen werden, da auch hier ein deutliches HE_{11} -Profil sichtbar war. Im weiteren Verlauf konnten leider keine großen Längenabhängigkeitsuntersuchungen getätigt werden, da die Fa-

Kernbereich zu befördern, wie auch Spannungen im Glas auszuheilen. Damit sollte sich die Pulsausbreitung in der Glasfaser verändern. Abbildung 5.5 zeigt den Verlauf der Pulsbreite in Abhängigkeit von der Eingangsenergie. Die im Experiment sichtbaren Stufen sind dabei auf das Auflösungsvermögen des Autokorrektors in diesem Messbereich zurückzuführen. Die Pulsbreiten, die für ein Ansteigen bzw. Abnehmen der Pulsenergie beim Experiment gewonnen wurden, unterscheiden sich nicht; ihre Kurven liegen übereinander. Weiterhin

sen für das Tempern schon eine bestimmte Länge besaßen und danach nur kürzer geschnitten werden konnten. Aufgrund der viel höheren Pulsbreiten wurden die getemperten Fasern für die weitere Benutzung als ungeeignet angesehen und nicht weiter verwendet.

5.4 Einfluss der Kompressionsstrecke

Die oben durchgeführten Experimente zeigten deutlich, dass, um eine Probe mit sehr kurzen Pulsen im Nahfeld durch eine Glasfaser hindurch zu beleuchten, eine Notwendigkeit darin bestand, den Puls vorher zu komprimieren (vgl. Kap. 3.4). Zur Analyse, ob der Aufbau die erforderlichen Pulsbreiten liefert, wurde wieder die Energieabhängigkeit der Pulsbreite untersucht; eine längenabhängige Messung wurde nicht durchgeführt, da die Kompressionsstrecke zur Kompensation eines bestimmten Materialdurchgangs konzipiert ist (Kap. 3.4.4).

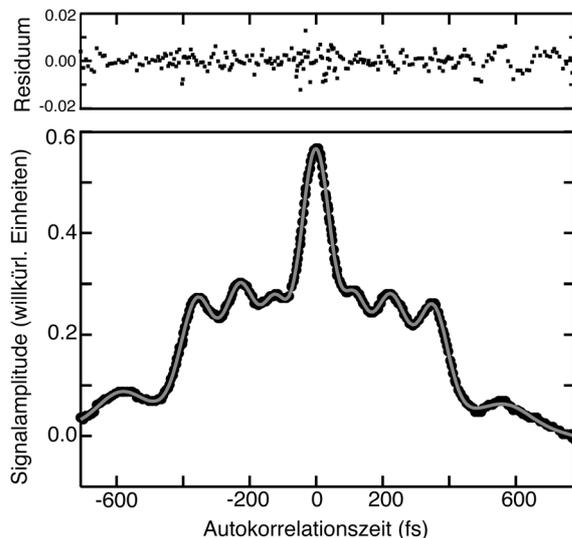


Abbildung 5.6: Pulsprofil, wie es im Autokorrelator sichtbar ist, für einen Puls, der durch die Kompressionsstrecke und die Glasfaser lief. Zusätzlich noch ein Fit mit mehreren Gauß-Profilen.

In Abb. 5.6 ist das Pulsprofil, wie es im Autokorrelator sichtbar war, bei einer Eingangsleistung von 300mW zu sehen. Man erkennt sofort, dass das temporale Profil nicht mehr Gauß-förmig und homogen ist. Vielmehr bilden sich neben dem Hauptmaximum mehrere Satellitenmaxima aus. Diese lassen auf ein Aufbrechen des Pulses aufgrund der Wirkungsweise der Kompressionsstrecke und dem damit verbundenen Materialdurchgang schließen. Das gesamte Profil lässt sich nun mit Hilfe mehrerer Gauß-Kurven beschreiben. Die Anpassung erfolgt, wie in Abb. 5.6 sichtbar, ohne große Abweichungen. Nimmt man

das Hauptmaximum als für die Pulsbreite bestimmendes Profil an, so erhält man für den Puls eine Breite von etwa 70fs. Die Breite der anderen Maxima bewegt sich ebenfalls in dem Bereich von 60-70fs. Dies spräche für eine erfolgreiche Pulskompression. Nimmt man hingegen an, dass das gesamte Profil von einer Einhüllenden beschrieben werden sollte, so erhält man für diese Breite einen Wert von 480fs. Dieser Wert läge dann im Bereich einer Propagation ohne Kompressionsstrecke (vgl. Abb. 5.3(b)). Für die Erzeugung der zweiten Harmonischen würde diese Verbreiterung der Pulse um einen Faktor von ca. 7 einen Abfall der Signalintensität um einen Faktor von ca. 50 bedeuten.

Eine genaue Analyse der nun stattfindenden Propagation zeigt Abb. 5.7, bei der die Intensitätsabhängigkeit der Pulsbreite durch eine 12cm lange Faser und vorheriger Kompression dargestellt ist. Es sind Graphen für Eingangsleistungen von 100mW bis 300mW aufgetragen. Ohne die zwischengeschaltete Kompressionsstrecke ist in diesem Leistungsbereich eine Zunahme der Pulsbreite um einen Faktor 1.5 (mit steigender Eingangsleistung) beobachtet worden (Abb. 5.3).

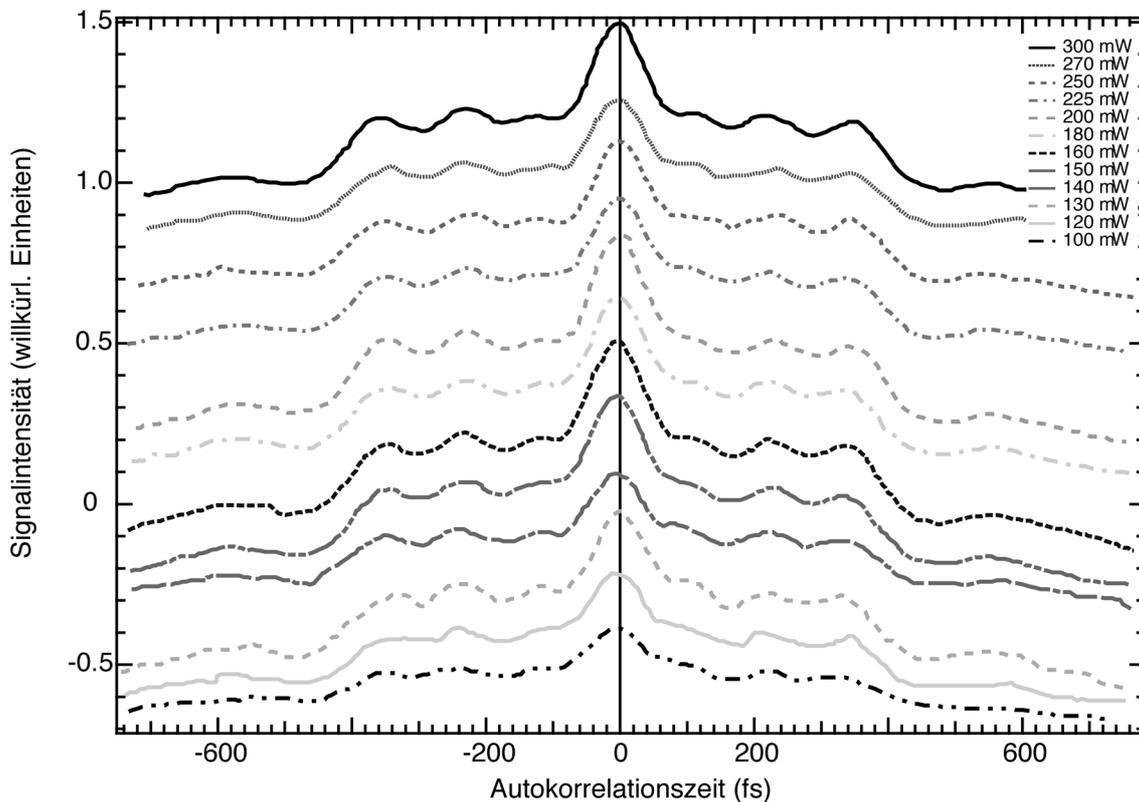


Abbildung 5.7: Pulsprofile bei verschiedenen Energien nach Propagation durch Kompressionsstrecke und einer 12 cm langen Glasfaser.

In diesem Experiment zeigt sich jedoch bis auf eine Zunahme der Profilintensität keine Änderung der Pulsbreite. Dabei bleibt nicht nur die Breite des Hauptmaximums (bei einer Autokorrelationszeit von 0fs) und der Satellitenmaxima konstant – die Analyse mittels Gauß-Profilen ergab: 70fs für die Hauptmaxima, zwischen 60fs und 75fs für die Nebenmaxima – sondern auch die Breite einer das ganze Profil einschließender Einhüllenden; hier ergab die Analyse eine Breite von etwa (475 ± 25) fs. Dieses Verhalten kann nicht erklärt werden, da eine Intensitätsabhängigkeit der Pulsbreite auch mit der Kompressionsstrecke erwartet wurde. Schließlich gleicht diese nur die dispersiven Effekte (Material- und Gruppengeschwindigkeitsdispersion) und nicht die nichtlinearen Effekte – diese sind intensitätsabhängig – aus. Auch eine Erklärung mit Hilfe von Solitonenausbreitung in der Faser, die ein gegenseitiges Aufheben der *GVD* und

SPM bedeutet, kann die Beobachtung nicht erklären, da diese ebenfalls eine Intensitätsabhängigkeit aufweist.

Weitere Einzelheiten über die Natur der erzeugten Unabhängigkeit von der Intensität und das temporale Aufbrechen des Pulses könnte eine Analyse des räumlichen Pulsprofils ergeben, da mit ihr Klarheit darüber gewonnen werden würde, ob der Puls als ein Puls oder als ein Zug von Einzelpulsen am Ende der Faser ankommt.

5.5 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde die Ausbreitung von fs-Pulsen in einer *single-mode* Glasfaser untersucht und mit dem theoretischen Modell verglichen. Die Experimente fanden bei einer Wellenlänge von $\lambda=820\text{nm}$ statt und deckten den kompletten Leistungsbereich des Titan-Saphir-Lasers ab.

Die Untersuchung zeigte, dass auch die optischen Elemente, die zur Einkopplung des Lichtes in den Faserkern benötigt werden, einen Einfluss auf die Pulsbreite bei steigender Eingangsleistung haben und vornehmlich auf Fokussierungseffekte zurückzuführen sind.

Bei der Betrachtung der Propagation durch die Faser wurde neben der Eingangsleistung auch die Faserlänge variiert. Die Erklärung mit Hilfe der theoretischen Modelle, die *GVD* und *SPM* berücksichtigen, zeigte eine zum Teil gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Die Längenabhängigkeit der Pulsbreite konnte damit gut erklärt werden, jedoch zeigten sich Abweichungen bei der Anpassung an intensitätsabhängige Messungen. Diese deuten auf eine Änderung der Faserparameter bei hohen Energien hin, die durch die durch Spannungen hervorgerufene Doppelbrechung im Glas induziert werden. Bestätigung findet diese Erklärung durch die Messungen an getemperten Glasfasern, die sehr gut durch die Theorie beschreibbar sind, da bei ihnen durch den thermischen Ausheilprozess die Spannungen des Glases abgebaut werden. Eine weitere Verwendung der getemperten Fasern erwies sich jedoch als nicht vorteilhaft, da die gemessenen Pulsbreiten größer waren als bei den nicht getemperten.

Der Einbau der Kompressionsstrecke zeigte eine Aufspaltung des Pulses im Autokorrelator. Die Pulsbreite hinter der Faser, gemessen am Hauptmaximum, zeigte eine erfolgreiche Kompression der Lichtpulse, wie auch eine Unabhängigkeit ihrer Breite von der einfallenden Lichtleistung. Eine genauere Untersuchung dieses Phänomens konnte jedoch nicht durchgeführt werden.

Kapitel 6

SHG im Nahfeld

Nachdem die im vorangegangenen Kapitel untersuchte Pulsausbreitung in den Glasfasern den Einsatz einer Kompressionsstrecke zur Erlangung kurzer Pulsbreiten am Faserende verlangte, konnte nach deren Einbau die Erzeugung der zweiten Harmonischen an dünnen metallischen Filmen untersucht werden.

Es werden zuerst die beiden möglichen Betriebsmodi – *illumination* und *collection mode* – miteinander verglichen (Kap. 6.2), ehe anschließend die Messungen an dünnen Silber- und Kobaltfilmen vorgestellt werden (Kap.6.3). Bevor jedoch auf diese Ergebnisse eingegangen wird, erfolgt zunächst eine Diskussion des Spektrums an einer glatt geschnittenen Glasfaser (Kap. 6.1), um eine Interpretation der späteren Spektren zu erleichtern.

6.1 Nichtlinearitäten einer Glasfaser

Die durch eine Glasfaser transportierte Laserleistungen sind aufgrund der starken Fokussierung – natürliche Fokussierung durch den Faserkerndurchmesser – sehr hoch. Bei einer Einkoppeleffizienz von 50% erhält man bei einer geschnittenen Glasfaser eine durchschnittliche Laserfluenz von etwa 5 mJ/cm^2 , bei einer Eingangsleistung von 200 mW, die ausreichend ist, um nichtlineare Prozesse auf Oberflächen, aber auch in der Faser selbst (vgl. Kap. 5) anzuregen. Um diese spektralen Effekte nun ohne den späteren Einfluss einer Spitze und der Metallbedampfung untersuchen zu können, wurden Spektren hinter einer glatt geschnittenen Glasfaser aufgenommen und mit dem Spektrum des Lasers verglichen. Beide Spektren sind in Abb. 6.1 dargestellt. Dabei zeigt Abb. 6.1(a) das Ti:Saphir-Spektrum im Bereich von 350-975 nm. Es sind deutlich zwei Charakteristika erkennbar. Zum einen handelt es sich um die beiden Laserlinien bei 820 nm und bei 875 nm, zum anderen um die breite Fluoreszenz des Ti:Saphir-Kris-

talls im Bereich zwischen 600nm und 750nm. Darüber hinaus zeigt das Spektrum keine weiteren Linien.

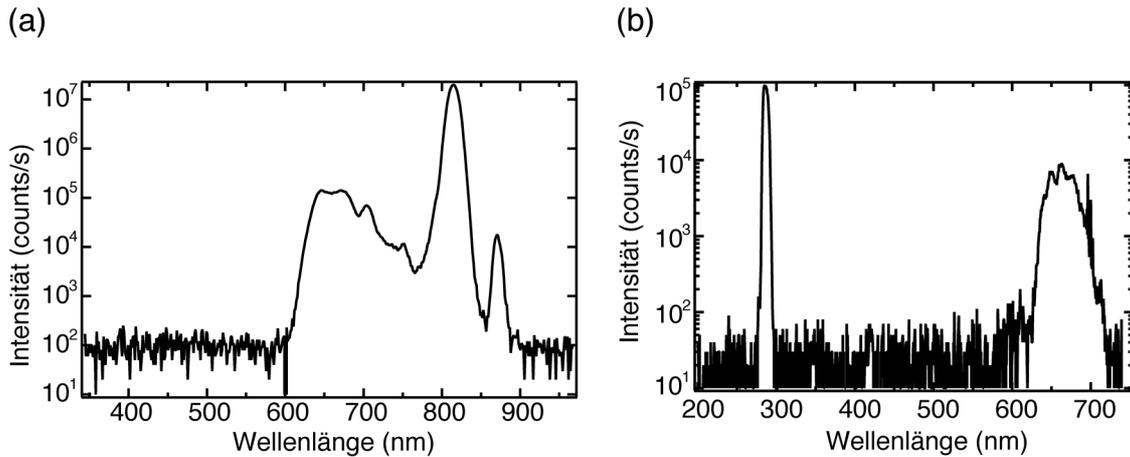


Abbildung 6.1: (a) Aufgenommenes Laserspektrum. Neben den beiden Laserlinien bei 820nm und 875nm ist deutlich die Fluoreszenz des Ti:Saphir-Kristalls im Bereich zwischen 600nm und 750nm zu sehen. (b) Spektrum von 200-750nm hinter einer glatt geschnittenen Faser bei einer Eingangsleistung von 100mW. Bei einer Wellenlänge von 273nm ist das THG-Signal sichtbar.

Teilbild (b) stammt nach dem Durchgang des Lichtes durch eine 12 cm lange Glasfaser bei einer mittleren Eingangsleistung von $P_m = 100 \text{ mW}$ ($= 2.3 \text{ mJ/cm}^2$). Die Darstellung deckt einen Bereich von 200-750nm ab. Der Bereich, der die Laserlinie beinhaltet, zeigte keine Änderung im Laserübergang, so dass er hier nicht mit abgebildet wurde. Wieder ist im Spektrum die Laserfluoreszenz im Bereich von 600-750nm sichtbar. Außerdem zeigt sich hier ein zusätzlicher Peak bei einer Wellenlänge von 273nm, der nicht dem Ti:Saphir-Spektrum zugeordnet werden kann. Es handelt sich dabei um die verdreifachte Frequenz der Laserlinie, die in der Glasfaser durch nichtlineare Effekte erzeugt wurde. Dass nicht auch die zweite Harmonische erzeugt wurde, ist durch die Überlegungen in Kap. 2.1.2 einsichtig. Im Volumen der Glasfaser existiert eine Inversionssymmetrie, wodurch alle Suszeptibilitäten gerader Ordnung verschwinden und die Suszeptibilität dritter Ordnung die erste nichtverschwindende ist.

Neben dem THG-Signal ist kein weiterer Unterschied zum Laserspektrum sichtbar. Aufgrund seiner Intensität wird aber der Einfluss des TH-Lichtes auf die Proben nicht vernachlässigbar sein, so dass man ihn bei der Interpretation der in den folgenden Abschnitten vorgestellten Spektren mitberücksichtigen muss.

6.2 Vergleich der Betriebsmodi

Nachdem gezeigt wurde, dass in der Faser die dritte Harmonische des eingestrahlichten Lichtes erzeugt wird, wird im Folgenden untersucht, welche zusätzlichen Effekte durch die Verjüngung der Faser zu einer Spitze und ihrer Metallbedampfung auftreten. Dazu werden Spektren ohne und mit einer Probe sowohl im *illumination* als auch im *collection mode* gemessen und miteinander verglichen. Zuletzt wird der Einfluss des Bedampfungsmaterials untersucht.

6.2.1 Unbedampfte Faser

Zwar ist eine unbedampfte Faser für spätere *SNOM*-Messungen ungeeignet, doch sind die Experimente zum Verständnis wichtig, da mit der Spitzenerzeugung die Fasergeometrie geändert wird, was einen Verlust der Wellenleitereigenschaften nach sich zieht. Außerdem wird durch die Geometrie eine Feldverstärkung an der Spitze erwartet und damit einhergehend eine Verstärkung nichtlinearer Effekte, die sich im Spektrum widerspiegeln sollten.

Die Experimente fanden bei einer mittleren Eingangsleistung von $P_m=600\text{mW}$ statt, was zwar einen Faktor sechs größer als bei der glatten Faser ist, doch muss hier auch die Transmittivität der Spitze, die bei etwa 10^{-3} liegt, mitberücksichtigt werden. Man erreicht damit bei den obigen Eingangsleistungen eine Laserfluenz von $\approx 30\mu\text{J}/\text{cm}^2$. In Abbildung 6.2 sind die Spektren

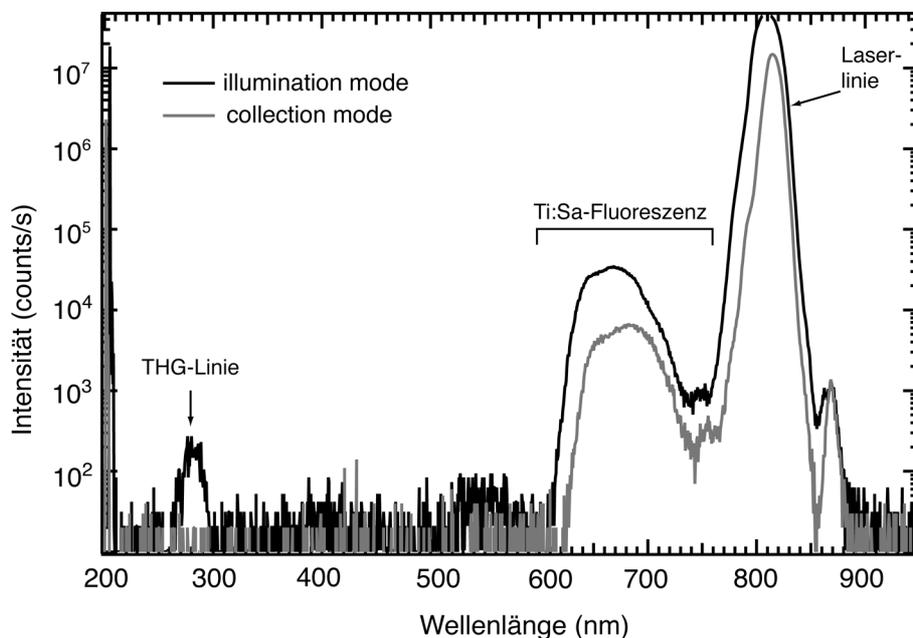


Abbildung 6.2: Spektren hinter einer geätzten und unbedampften Faser bei Beleuchtung mit einer Eingangsleistung von 600mW. In beiden Spektren sind Laselinie und -fluoreszenz deutlich sichtbar. Im illumination mode tritt zusätzlich noch die THG-Linie auf, die im collection mode nicht existiert.

für den *illumination* und *collection mode* in einem Bereich von 200-950nm dargestellt. In beiden Spektren sind deutlich die Laserlinie und die Ti:Saphir-Fluoreszenz ohne Störungen sichtbar. Der Unterschied liegt im THG-Signal. Während es im *illumination mode* existent ist, fehlt von ihm im *collection mode* jede Spur. Dies lässt sich mit der Transmittivität der Spitze erklären, da im *collection mode* nur noch ein Bruchteil des Laserlichtes in die Faser eingekoppelt wird. Die dann transportierte Laserleistung reicht nicht aus, um nichtlineare Effekte auszulösen, die in einem auflösbaren THG-Signal münden würden.

Da die Spektren keine weiteren Unterschiede zur glatt geschnittenen Faser zeigen, lässt sich folgern, dass die Spitze keine weiteren detektierbaren nichtlinearen Effekte erzeugt.

Es bleibt noch die Frage offen, was bei Annäherung einer Probe an die Spitze geschieht, da nun mit einer Felderhöhung und mit einer Ankopplung des evaneszenten Feldes an die Oberfläche zu rechnen ist. Dieser Frage wurde zuerst mit einer Glasprobe – einfaches Objektträgerglas – nachgegangen, da es auch als Substrat für die aufgedampften Metallfilme diente.

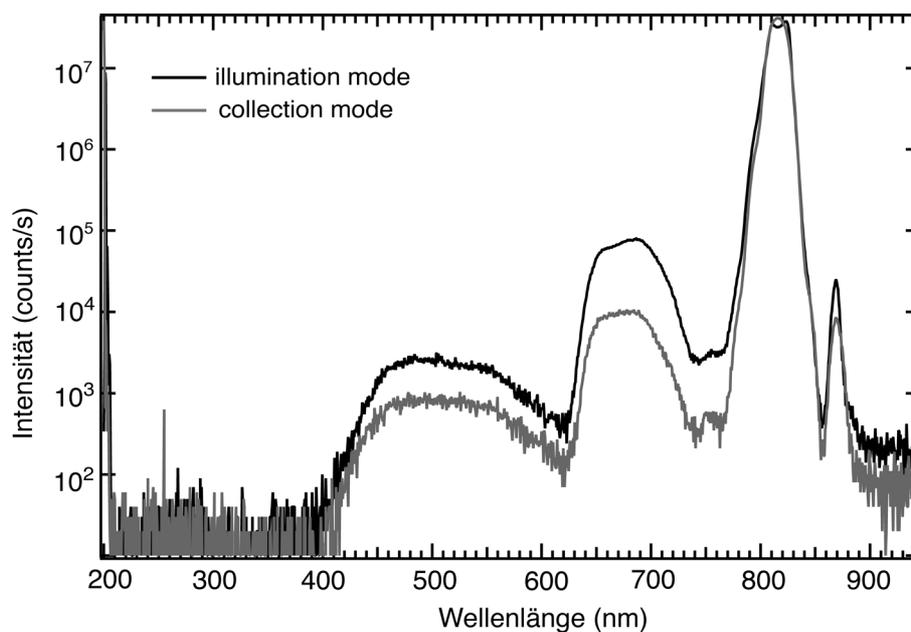


Abbildung 6.3: Spektren bei Kontakt einer Faserspitze mit einer Glasprobe. Beide Spektren haben den gleichen qualitativen Verlauf. Zusätzlich zu den vom Laser stammenden Strukturen ist hier eine breite Struktur im sichtbaren Wellenlängenbereich sichtbar.

Die zugehörigen Spektren sind in Abb. 6.3 dargestellt. Wiederum erkennt man die Laserlinie und -fluoreszenz. Außerdem verhalten sich im Vergleich zu den Spektren ohne Probe die Spektren diesmal qualitativ gleich. Das THG-Signal im *illumination mode* wurde von der Glasprobe absorbiert und erscheint deswegen nicht im Spektrum. Die wichtigste erkennbare Neuerung ist die Struktur im sichtbaren Wellenlängenbereich (400-750nm). Die Ursache dieses „Weißlichtspektrums“ ist in den Bestandteilen des Glases zu suchen. Handelsübliches Objektträgerglas

enthält neben SiO_2 auch Na_2O und CaO sowie Spuren anderer Metallionen. Unter intensitätsschwacher Beleuchtung werden diese Bestandteile keinen Unterschied zu den Eigenschaften reinen Quarzglas aufweisen, zumindest nicht im Bereich von 350-1100 nm [136]. In diesem Fall sind aber nichtlineare Effekte dominant, zum einen wegen der hohen Laserintensitäten und damit einhergehenden Feldern an der Spitze, zum anderen wegen der Absorption der THG-Linie. Durch deren Zusammenspiel entsteht dieses Fluoreszenzspektrum des Glases. Dass dieses Spektrum wirklich durch die Nahfeldeffekte erzeugt und verstärkt wird, zeigt sich in Abb. 6.4.

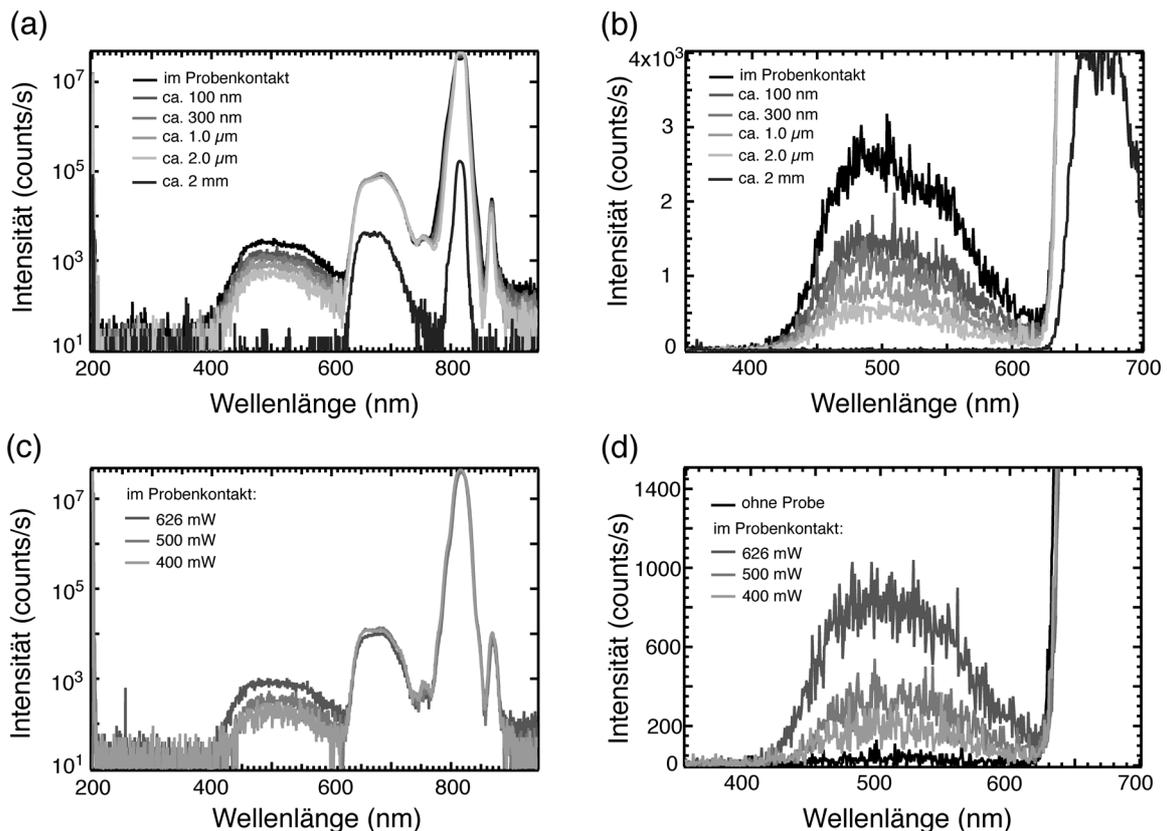


Abbildung 6.4: Im collection mode aufgenommene Spektren mit einem Glassubstrat als Probe. (a) Entfernungsabhängige Messung bei einer Eingangsleistung von 400 mW. (b) Ausschnittsvergrößerung aus (a) im sichtbaren Wellenlängenbereich. (c) Leistungsabhängige Messung, bei der die Spitze in Kontakt mit der Probe war. (d) Ausschnittsvergrößerung von (c).

Die Teilbilder (a) und (b) zeigen eine Messung in Abhängigkeit des Abstandes zwischen Proben-Spitze. Die Eingangsleistung wurde konstant gehalten und betrug 400 mW. Die Spektren zeigen eine deutliche nichtlineare Abnahme der Intensität des Fluoreszenzspektrums (Teilbild (b)) – dabei handelt es sich vermutlich um eine einfache Potenzgesetzmäßigkeit; eine genaue Quantifizierung konnte leider nicht vorgenommen werden – während die vom Laser stammenden Strukturen kaum Intensitätsunterschiede aufweisen (Teilbild (a)); die Abnahme der Intensität der Laserlinie bei einer Entfernung von 2 mm ist der nicht nachgeführten Sammellinse und des Heraustretens der Faserspitze aus dem Fokuspunkt zuzuschreiben. Diese Abnahme korreliert

also mit der Abnahme der durch die Spitze verursachten Felderhöhung und -konzentration. Diese sind aber noch groß genug, um selbst in $2\mu\text{m}$ Entfernung einen messbaren Effekt zu verursachen. Dies hängt vermutlich damit zusammen, dass die Laserfluenz durch die Fokussierung selbst in dieser Entfernung ausreichend hoch ist. In 2mm Entfernung koppeln die Felder von der Probe nicht mehr an die Spitze an, so dass keine Fluoreszenzen mehr angeregt werden können und somit die Intensität des „Weißlichtspektrums“ auf Null abfällt.

Einen weiteren Anhaltspunkt für die Nichtlinearität der Erzeugung dieser Fluoreszenzen liefert die Intensitätsabhängigkeit des Spektrums (Abb. 6.4(c), (d)). Während sich die Intensitäten der Laserlinie und -fluoreszenz gemäß der Einstrahlleistung um einen Faktor 1.5 ändern, zeigt sich beim sichtbaren Kontinuum ein Abfall um einen Faktor 5. Wäre seine Erzeugung nur von der Laserintensität beeinflusst, so hätte auch hier der gleiche Abfall, wie für die Laserparameter stattfinden müssen.

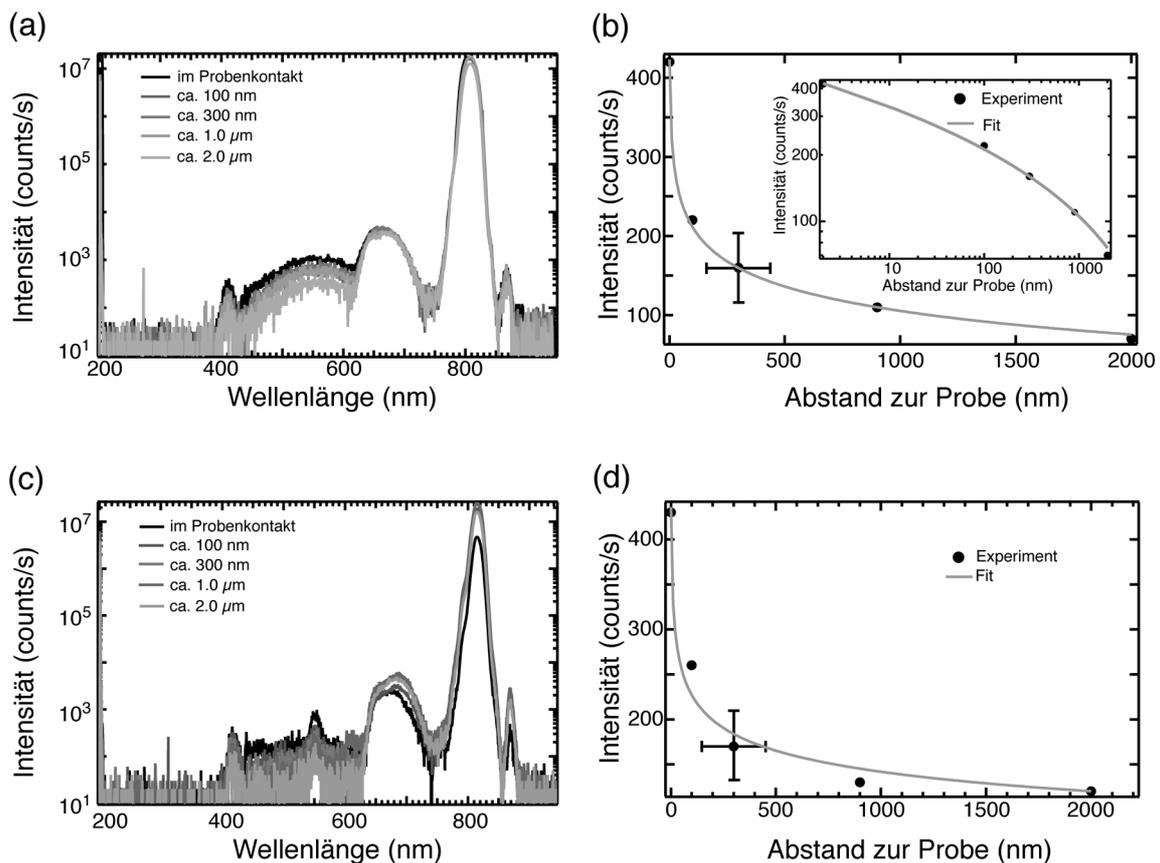


Abbildung 6.5: Spektren an einer 150\AA dicken Ag-Schicht in verschiedenen Abständen Spitze-Probe. (a) Illumination mode: Erkennbar ist neben dem „Weißlichtspektrum“ auch eine SHG-Linie. (b) Abstandsabhängigkeit des SHG-Signals im illumination mode. Inset: Doppellogarithmische Darstellung. (c) Collection mode-Spektrum. (d) Abstandsabhängigkeit des SHG-Signals aus (c). Die Fit-Kurven in (b) und (d) ergeben sich aus einer Potenzfunktion.

Obwohl das Objektträgerglas durch das entstehende „Weißlichtspektrum“ als Substratmaterial nicht geeignet erscheint, wurde dennoch eine 150 Å dicke Ag-Schicht unter *UHV*-Bedingungen ($p < 10^{-9}$ mbar) auf diesem aufgedampft. Es sollte damit getestet werden, ob auch unter diesen Bedingungen – der Anstieg des Weißlichtbereiches beginnt bereits bei 400 nm – ein SHG-Signal auflösbar ist oder ob es im Kontinuum untergehen würde.

Abbildung 6.5 zeigt die abstandsabhängig aufgenommenen Spektren im *illumination* und *collection mode* ((a) bzw. (c)) mit einer 12 cm langen und geätzten Faser. Die Spektren decken wieder einen Bereich von 200-920 nm ab, und es sind wieder die bekannten spektralen Merkmale des Lasers, sowie die oben besprochene Fluoreszenz des Glassubstrates sichtbar. Letzteres weist im Vergleich zu den Spektren ohne Probe (Abb. 6.4) eine veränderte Form auf. Ferner ist das Maximum des Kontinuums nicht mehr bei 470 nm, sondern bei 550 nm lokalisiert. Dies deutet auf eine Änderung des Fluoreszenzverhaltens hin und ist nur durch die nun präsente Silberschicht erklärbar. Es handelt sich dabei vermutlich um eine Photolumineszenz vom Silber in diesem Bereich – wie sie schon für Gold-Nanopartikel beobachtet wurde [137] – die ihren Ursprung in der Beleuchtung der Schicht mit dem THG-Licht haben dürfte.

In beiden Spektren erkennt man noch eine Linie bei 410 nm, die, da sie vorher nicht sichtbar war, eindeutig aus der Silberschicht stammen muss. Es ist das an der Probe erzeugte SH-Signal. Die Abstandsabhängigkeit der Intensität dieser Linie ist in den Teilbildern (b) und (d) für den *illumination* bzw. den *collection mode* dargestellt. Man erkennt den erwarteten nichtlinearen Abfall der Signalstärke. Die Abhängigkeit lässt sich jedoch nicht genau, wegen der großen Unsicherheit in der Abstandsmessung, quantifizieren. Erwartet wird ein exponentieller Abfall, der hier nicht eindeutig gegeben ist. Vielmehr zeigt das Experiment einen Potenzverlauf des Signals (inset in Teilbild (b)), der auch von Smolyaninov *et al.* [32] im aperturlosen Betrieb beobachtet wurde. Die Abweichung von dem erwarteten exponentiellen Verlauf lässt sich dadurch erklären, dass nicht nur Nahfeldeffekte für die SH-Erzeugung verantwortlich sind. Das vor der Spitze austretende Licht – durch Verlust der Leitungseigenschaft des Faserkernes – ist immer noch intensiv genug, um diese nichtlinearen Prozesse zu erzeugen, so dass hier eine Überlagerung zweier Effekte sichtbar wird. Dies verdeutlicht, warum eine Bedampfung der Faser nötig ist. Die Effekte, die durch das austretende Licht verursacht werden, sollen eliminiert werden.

An dieser Stelle soll noch ein Effekt diskutiert werden, der bisher nicht betrachtet wurde. Es handelt sich dabei um die thermische Aufheizung des Materials, die nicht unberücksichtigt bleiben darf, denn bei zu hohen Eingangsleistungen findet eine Ablation der Ag-Schicht statt. Dies geschieht, da das Silber auf einem thermischen Isolator aufgedampft ist. Das Ableiten der Wär-

memenge, die mit jedem Lichtpuls auf die Schicht deponiert wird – die Pulse haben einen zeitlichen Abstand von 13 ns – kann nicht schnell genug erfolgen, was ein Aufheizen bewirkt. Man müsste dementsprechend auch spektrale Auswirkungen der thermischen Prozesse sehen – eine Deutung des Kontinuums als rein thermischen Spektrums (Schwarzkörperstrahlung) scheidet aufgrund der dazu erforderlichen Temperaturen von über 6000 °C aus – die aber vermutlich gänzlich im infraroten Wellenlängenbereich liegen.

6.2.2 Bedampfte Faser

Es konnte im vorangegangenen Abschnitt gezeigt werden, dass man mit einer unbedampften Faser die zweite Harmonische an einer Silberoberfläche erzeugen und auch im Spektrum identifizieren kann, auch wenn dies nicht allein durch Nahfeldeffekte bewirkt wird. Im Hinblick auf das *fs-SNOM* ist die damit erzielbare Auflösung unzureichend, so dass als nächstes metallbedampfte Faserspitzen untersucht werden.

Vor der Verwendung dieser bedampften Fasern muss der Einfluss des Metallfilmes – auch eine mögliche SH-Erzeugung an der Spitze – auf das Spektrum ebenso analysiert werden, wie die durch die hohen Intensitäten erwarteten thermischen Effekte an der Schicht.

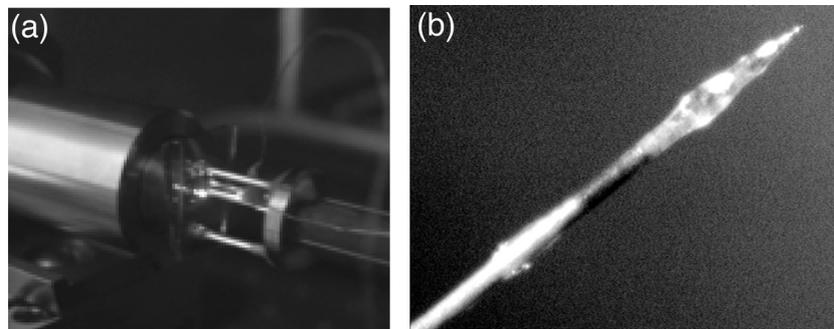


Abbildung 6.6: (a) Bild des Aufbaus im *collection mode*. Das Mikroskopobjektiv fokussiert das Licht auf die Probe, ehe es mit der Faser eingesammelt wird. Hier ist ein Leuchten am Kontaktpunkt zu erkennen, dass von der Ablation der Bedampfung herrührt. (b) Die in (a) verwendete Faser nach Versuchsdurchführung. Deutlich ist die Ablation der Metallschicht zu sehen, wie auch ein partielles Schmelzen des Glases an der Spitze.

Es zeigte sich, dass der *collection mode* mit einer bedampften Glasfaser nicht durchführbar ist. Selbst bei geringen Eingangsleistungen ($P < 20 \text{ mW}$), fing die Spitze sichtbar orange, bei hohen Leistungen ($P > 200 \text{ mW}$) sogar weiß, an zu leuchten (vgl. Abb. 6.6(a)). Durch die hohe Leistungsdichte im Fokus des Mikroskopobjektivs, wird das Metall so weit aufgeheizt, dass es schließlich verdampft. Abbildung 6.6(b) zeigt die Faserspitze nach so einem Versuch. Man erkennt deutlich, dass an der Spitze keine Metallbedampfung mehr vorhanden ist. Weiterhin wird

deutlich, dass das Glas selbst an der Spitze schmolz und beim Wiedererstarren die sichtbare Form angenommen hat.

Mit diesem Verhalten sind Nahfeldmessungen nicht durchführbar, zumal auch der zu messende Metallfilm bei den erzeugten Temperaturen vom Substrat verdampft.

Demgegenüber zeigt sich der Betrieb im *illumination mode* aussichtsreicher. Zwar wird bei hohen Eingangsleistungen ($P > 200 \text{ mW}$) ebenfalls ein rot-oranges Leuchten der Glasfaser Spitze mit gleichzeitiger Ablation des Metallfilmes der Probe wie auch der Bedampfung beobachtet, doch reichen die unterhalb der Leuchtgrenze eingestrahelten Laserleistungen aus, um genügend SH-Signal zu erzeugen. Abbildung 6.7(a) zeigt eine intensitätsabhängige Reihe von Spektren für eine 12 cm lange, geätzte und mit Aluminium bedampfte Faser ohne Probe.

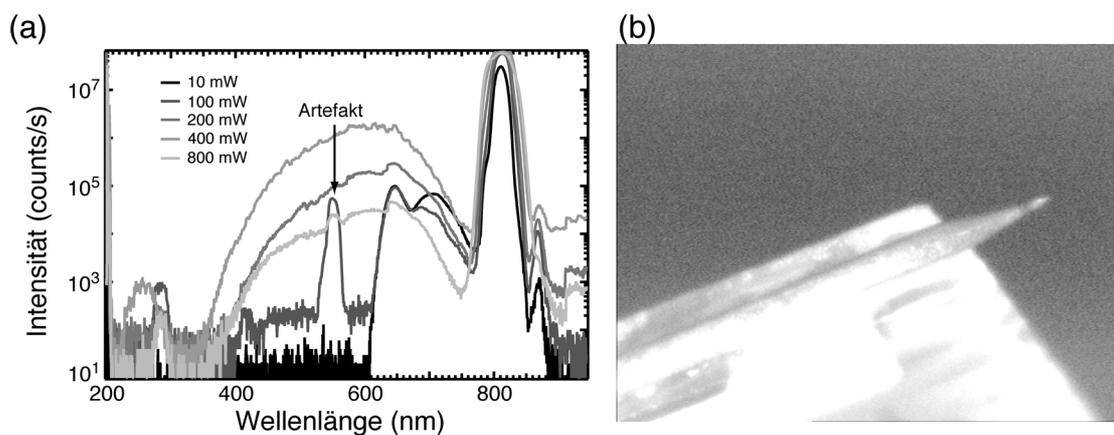


Abbildung 6.7: (a) Spektren bei verschiedenen Eingangsleistungen für eine Al-bedampfte Glasfaser. Deutlich ist das Anwachsen des Kontinuums zw. 350 nm und 800 nm sichtbar. (b) Bild der Faser nach den Messungen aus (a). Im Gegensatz zum *collection mode* ist hier nur ein Fehlen des Metallfilmes an der Spitze zu sehen.

Es sind nun mehrere Merkmale sichtbar. Für kleine Eingangsleistungen ($P = 10 \text{ mW}$) ist nur das Laserspektrum ohne weitere Strukturen erkennbar. Selbst das THG ist nicht sichtbar, da wir uns unterhalb der Erzeugungsschwelle befinden. Für $P = 100 \text{ mW}$ fällt zum einen die sichtbare THG-Linie auf. Zum anderen ist das bekannte Kontinuum im Bereich 400-600 nm sichtbar (bei der deutlichen Linie bei 550 nm handelt es sich um einen Reflex im Gittermonochromator). Außerdem ist auch ein SHG-Signal bei 410 nm im Spektrum auflösbar. Da es bei der unbedampften Faser nicht existierte, kann die Erzeugung der zweiten Harmonischen der Metallbedampfung zugeordnet werden (s.u.). Steigert man die einfallende Intensität weiter, so sieht man, dass das Kontinuum rasch an Intensität gewinnt und sogar die Fluoreszenz des Ti:Saphirs überdeckt. Dieses Verhalten korreliert mit einem Leuchten an der Faserspitze, das von orange-rot ($P = 200 \text{ mW}$) bis zu weiß-violett ($P = 800 \text{ mW}$) reicht.

Weiterhin ist eine Veränderung des THG-Signales sichtbar; im Spektrum bildet sich eine hoch-

energetische Schulter aus, die vermutlich durch Anregungen unterhalb von 800 nm stammt. Das SHG-Signal verschwindet derweil völlig in dem anwachsenden Kontinuum. Eine Ablation der Bedampfung, wie in Abb. 6.7(b) sichtbar, würde ebenfalls das Verschwinden der SHG-Linie erklären, da dann kein Metall mehr für die explizite Erzeugung der zweiten Harmonischen anwesend ist.

6.2.3 Vergleich von unterschiedlichen Bedampfungsmaterialien

Wie oben gezeigt, ist der *illumination mode* der geeignete Betriebsmodus für das *fs-SNOM*. Jedoch ist Aluminium als Bedampfungsmaterial der Glasfaser ungeeignet, da schon bei moderaten Eingangsleistungen ein deutliches SH-Signal generiert wird. Es kann damit für Messungen nicht verwendet werden, da es keine Unterscheidungsmöglichkeit der Quelle des SH-Signals geben würde.

Warum Aluminium ein so hohes SHG-Signal zeigt, kann mit Hilfe der Bandstruktur [138] und dem daraus abgeleiteten Absorptionsspektrum [139] erklärt werden, die in Abb. 6.8 dargestellt

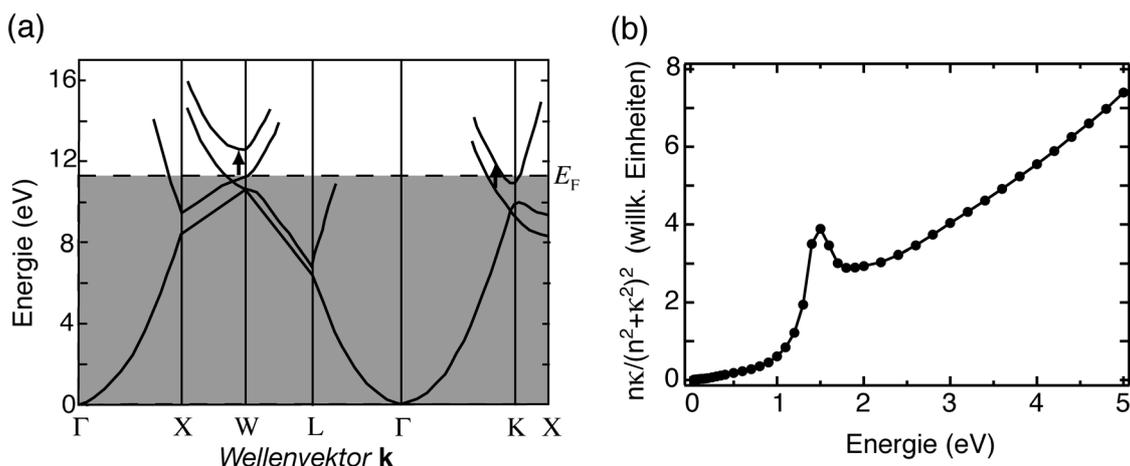


Abbildung 6.8: (a) Bandstruktur des Aluminiums (nach [138]). Der grau schraffierte Bereich gibt die besetzten Bänder an. (b) Absorptionsspektrum von Aluminium im Bereich 0.2-5 eV (nach [139]). Man erkennt das Absorptionsmaximum bei 1.5 eV, das den in (a) markierten Interbandübergängen entspricht.

sind. Das Maximum des Absorptionsspektrums bei 1.5 eV (=820 nm) hängt mit Interbandübergängen – sichtbar durch Pfeile in der Bandstruktur (Abb. 6.8(a)) – zusammen, die durch die an diesen Stellen parallel laufenden Bänder und der sich daraus ergebenden hohen Zustandsdichte resultiert. Da die eingestrahlte Wellenlänge gerade diesem Übergang entspricht, resultiert eine resonante Erhöhung des SH-Signals. Erklären kann man dies, wenn man sich die SH-Erzeugung als Zwei-Photonen-Prozess vorstellt. Das erste Photon regt ein Elektron in einen reellen Zwischenzustand, in dem die Lebensdauer ausreichend hoch ist, um noch ein Photon zu absorbieren.

ren, an, was zu einer Erhöhung des SH-Lichtes führt (vgl. auch Kap. 2.1.2).

Die Suche nach einem geeigneten Metall zur Bedampfung der Faser gestaltet sich schwierig, da an der Oberfläche alle Metalle SH-Licht generieren werden. Zur Voraussage der SHG-Ausbeute muss die Oberflächengeometrie ebenso bekannt sein, wie die elektronischen Eigenschaften des Filmes. Der hier beschrittene Weg liegt im Vergleich der linearen optischen Eigenschaften und speziell der Absorption. Dabei sollte im Bereich der Anregungsenergie möglichst keine Absorption liegen, damit eine resonante Erhöhung der SH-Erzeugung unterdrückt werden kann.

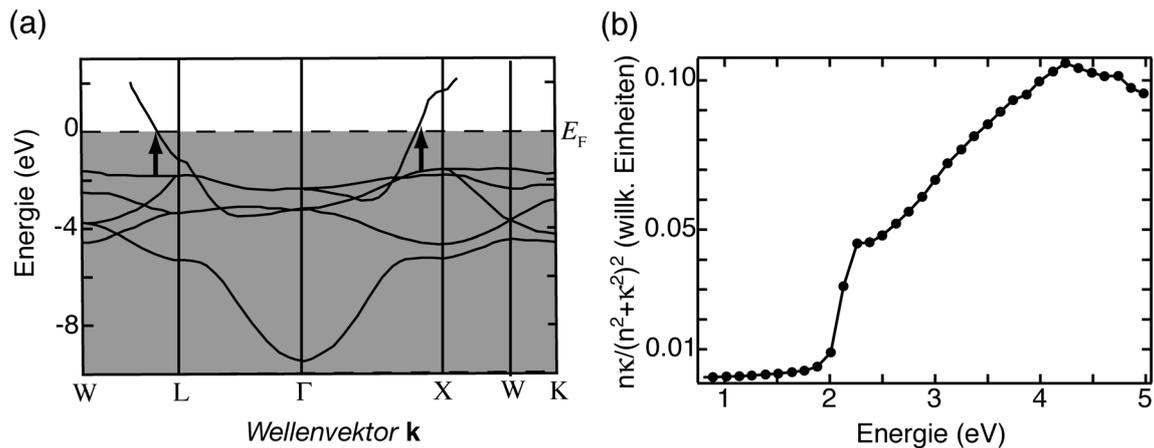


Abbildung 6.9: (a) Bandstruktur von Kupfer (nach [140]). (b) Absorptionsspektrum von Kupfer (nach [139]). Der Absorptionspeak bei 2.25 eV entspricht den in (a) eingezeichneten Übergängen.

Die Wahl fiel auf Kupfer, dessen Bandstruktur und Absorptionsspektrum in Abb. 6.9 dargestellt sind. Zwar gehört Kupfer zu den gut untersuchten SH-erzeugenden Materialien [141-143], doch liegt die Absorption vom d-Band in das Leitungsband mit 2.25 eV oberhalb der Einstrahlenergie von 1.5 eV, so dass keine resonante Erhöhung erwartet wird.

Zum Vergleich mit der Aluminiumbedampfung (Abb. 6.7) wurden entsprechende Spektren leistungsabhängig auch von einer Cu-bedampften Faser aufgenommen (Abb. 6.10). Die Spektren zeigen deutlich die Laserlinie und ein schwach ausgeprägtes Kontinuum von 500-700 nm. Das letztere scheint nur eine geringe Abhängigkeit von der einfallenden Leistung zu haben. Dabei handelt es sich vermutlich um Fluoreszenzen im Kupfer, die durch Intrabandübergänge im Leitungsband (vgl. hierzu auch [137]) hervorgerufen werden. Das entscheidende Merkmal dieser Spektren ist jedoch das Fehlen jeglicher Intensität bei der Frequenz der zweiten Harmonischen. Falls SH-Licht erzeugt wird, liegt es unterhalb der Detektionsgrenze und wird somit bei der Interpretation der SHG an Oberflächen keine Rolle spielen. Auch hier muss – wie im Fall der Al-Bedampfung – auf die einfallende Leistung geachtet werden, da bei Leistungen oberhalb $P_m=300\text{mW}$ der Metallfilm wiederum mit einem orangenen Leuchten verdampfte.

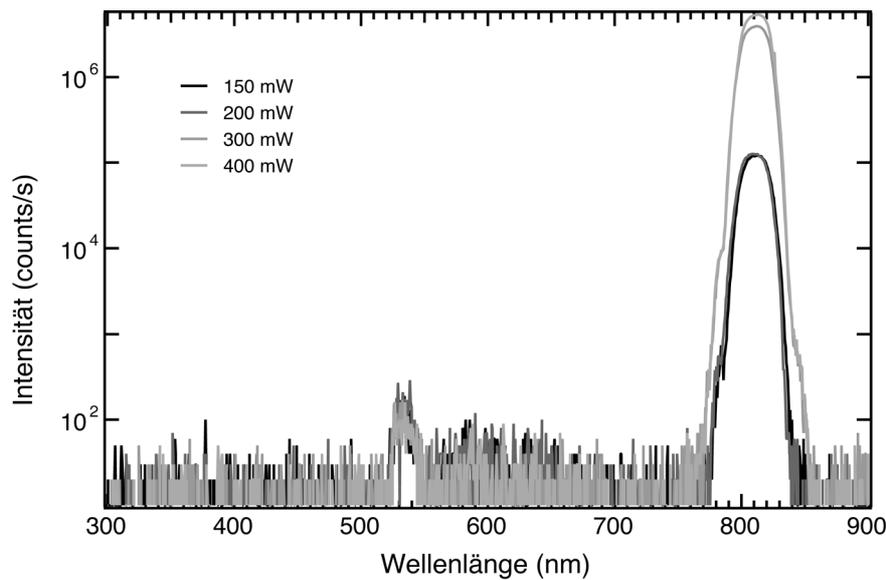


Abbildung 6.10: Leistungsabhängige Spektren einer Cu-bedampften Faser. Es ist eine leichte Erhöhung im sichtbaren Spektralbereich zu sehen, doch keine Anzeichen einer SH-Erzeugung.

6.3 SHG-Messungen an Metallfilmen im Nahfeld

Nachdem die Voruntersuchungen gezeigt haben, dass es mit einer bedampften Faser – als geeignete Wahl erwies sich Kupfer – möglich ist, ohne SHG von der Faserspitze Probenoberflächen im Nahfeld zu untersuchen, wird in diesem Abschnitt die Erzeugung der zweiten Harmonischen an Silber- und Kobaltfilmen gezeigt.

Bevor auf die Resultate eingegangen wird, soll an dieser Stelle noch die Probenherstellung und die Optimierung der Signalintensitäten für die Messung erläutert werden.

6.3.1 Probenherstellung und Signalsoptimierung

Da das *fs-SNOM* in Transmission betrieben wird, musste die Dicke der Metallschichten so gewählt werden, dass die Proben noch transparent sind. Als Substrat diente Quarzglas, das zuerst chemisch gereinigt und vor dem Aufdampfprozess im *UHV* bei ca. 350 °C ausgegast wurde. Das Aufdampfen der Schichten geschah in einer Elektronenstrahlverdampfungsanlage bei einem Druck von $<10^{-9}$ mbar. Die Aufdampfzeiten betragen 1 Å/s für Silber und 3 Å/s für Kobalt; die Schichtdicken beliefen sich auf 75 Å bzw. 150 Å für Ag und 50 Å, 75 Å und 100 Å für Co, wobei auf das Kobalt noch eine 15 Å dicke Pt-Deckschicht als Oxidationsschutz aufgebracht wurde.

RHEED-Untersuchungen zeigten keine Strukturen, so dass auf amorphes Wachstum der Schichten geschlossen wird.

Bevor die Messungen durchgeführt werden konnten, musste noch sichergestellt werden, dass die Einkopplung des Lichtes in die Faser maximal ist, denn wie im *cw-SNOM* (Kap. 3) hängen die beobachtbaren Effekte auch hier stark von der Einkoppleffizienz ab. Eine gleiche Lösung wie im *cw*-Fall konnte jedoch nicht angewendet werden, da das Öl im Fasersplice dazu führte, dass ein Großteil der Leistung nicht in die Messfaser gelangte, sondern ausgekoppelt wurde. Dies führte dazu, dass das Spline-Röhrchen durch die entstehende Hitze schmolz. Außerdem entstand so, selbst bei geschnittener und unbedampfter Faser, ein deutliches SHG-Signal, wie man in Abb. 6.11(a) erkennt. Für die direkte Einkopplung in die Faser zeigte sich, dass eine Jus-

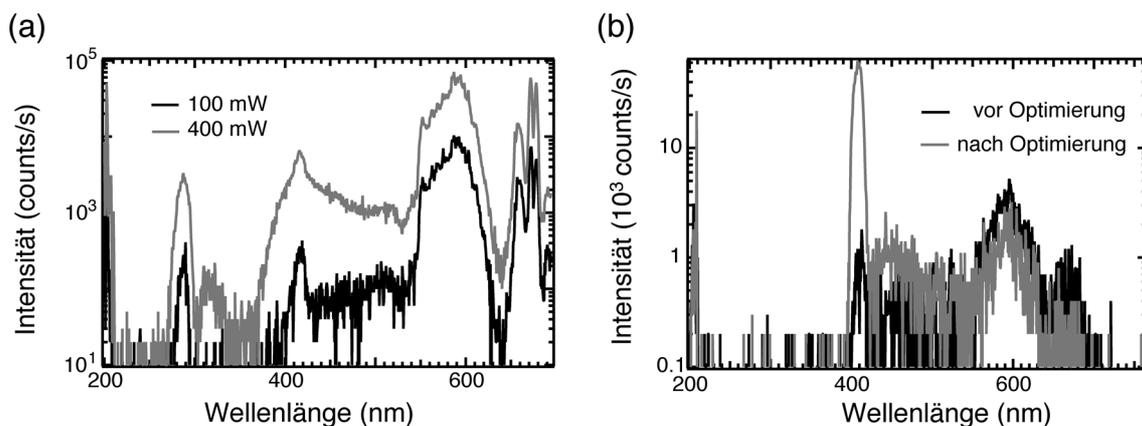


Abbildung 6.11: (a) Leistungsabhängige Spektren hinter einer glatt geschnittenen Faser, die mit einer zweiten Faser durch einen Spline verbunden ist. Deutlich ist das SHG-Signal sowie die hohe Intensität des Kontinuums zu sehen. (b) Spektren einer 75 Å dicken Ag-Schicht bei 150 mW Eingangsleistung. Zwischen den beiden Spektren wurde die Fasereinkopplung auf das SHG-Signal optimiert.

tierung auf eine maximale Intensität der Grundwellenlänge (Abb. 6.11(b), schwarzes Spektrum) nicht zwangsläufig zu einem Maximum in der SHG-Ausbeute führt. Die Strategie besteht nun darin, die Justierung ohne Probe auf ein Maximum im THG-Signal durchzuführen. Dies liefert dann im Kontakt mit der Probe auch ein Intensitätsmaximum im Bereich des SHG (Abb. 6.11(b), graue Linie). Man erkennt, dass ein Signalgewinn von zwei Größenordnungen bei gleicher Eingangsleistung (in diesem Fall 150 mW) erzielt werden kann.

6.3.2 Dünne Silberfilme

Im Folgenden soll das erzeugte Licht der zweiten Harmonischen an dünnen Silberschichten untersucht werden. Dazu wurde mit einer Cu-bedampften Glasfaser die Abstands- und Intensitätsabhängigkeit des Signals untersucht.

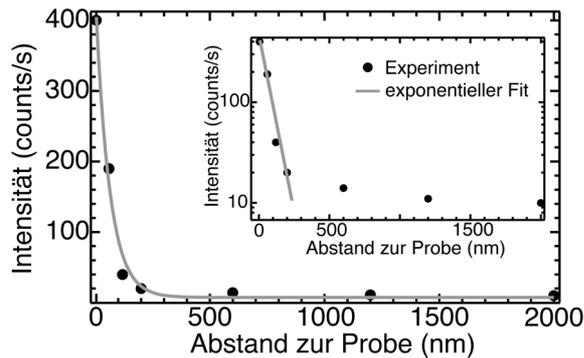


Abbildung 6.12: Abstandsabhängige Messung der SHG-Signalintensität bei einer bedampften Faser und einer 150 Å dicken Ag-Schicht. Im Inset ist deutlich die exponentielle Abhängigkeit des Signales sichtbar (vgl. dazu auch Abb. 6.5).

Für die Messung der Abstandsabhängigkeit wurde die SH-Signalintensität an einer 150 Å dicken Ag-Schicht ausgewertet. In der halb-logarithmischen Darstellung in Abb. 6.12 erkennt man deutlich eine exponentielle Abhängigkeit des Signals. Vergleicht man diese Messung mit den Ergebnissen, die für eine unbedampfte Faser (Abb. 6.5) gewonnen wurden, so kann man hier die Erzeugung der zweiten Harmonischen direkt dem Einfluss des Nahfeldes zuschreiben.

Die Aufnahme der Annäherungskurven zeigte

auch, dass erst nach etwa 75 nm der exponentielle Abfall einsetzt. Dies ist auf die große Fokussierwirkung der Spitze (Aperturdurchmesser ca. 200 nm; Laserfluenz im Bereich $4\mu\text{J}/\text{cm}^2$) und den damit einhergehenden hohen Feldstärken zurückzuführen.

Abbildung 6.13 (a) zeigt die aufgenommenen Spektren über einen Bereich von 200-920 nm. Das auffälligste Merkmal, das alle Spektren gemein haben, ist die geringe Intensität des Kontinuums im Vergleich mit Abb. 6.5. Dies liegt hauptsächlich darin begründet, dass in diesem Fall Quarzglas als Substrat verwendet wurde, welches keine Fluoreszenzen in diesem Wellenlängenbereich zeigt. Der Ursprung des Kontinuums kann hier der Fluoreszenz in der Silberschicht und der Kupferbedampfung zugeschrieben werden. Um nun die Signalintensitäten der 1ω und der 2ω (SHG)-Linie besser miteinander vergleichen zu können, sind sie in Abb. 6.13 (b) ausschnittsweise linear dargestellt. Es fällt auf, dass das 2ω -Signal quadratisch an Intensität gewinnt, während beim 1ω -Signal nur ein linearer Anstieg zu verzeichnen ist (vgl. Abb. 6.13 (c)). Man erkennt auch, dass die Intensität der zweiten Harmonischen deutlich über dem Rauschniveau liegt, so dass Messungen im Nahfeld problemlos möglich sind. Der Vergleich der verschiedenen Schichtdicken zeigte, dass die dünneren Schichten bei gleicher Eingangsleistung ein höheres SHG-Signal erzeugen, was durch die in den dickeren Schichten stattfindende Absorption erklärbar ist.

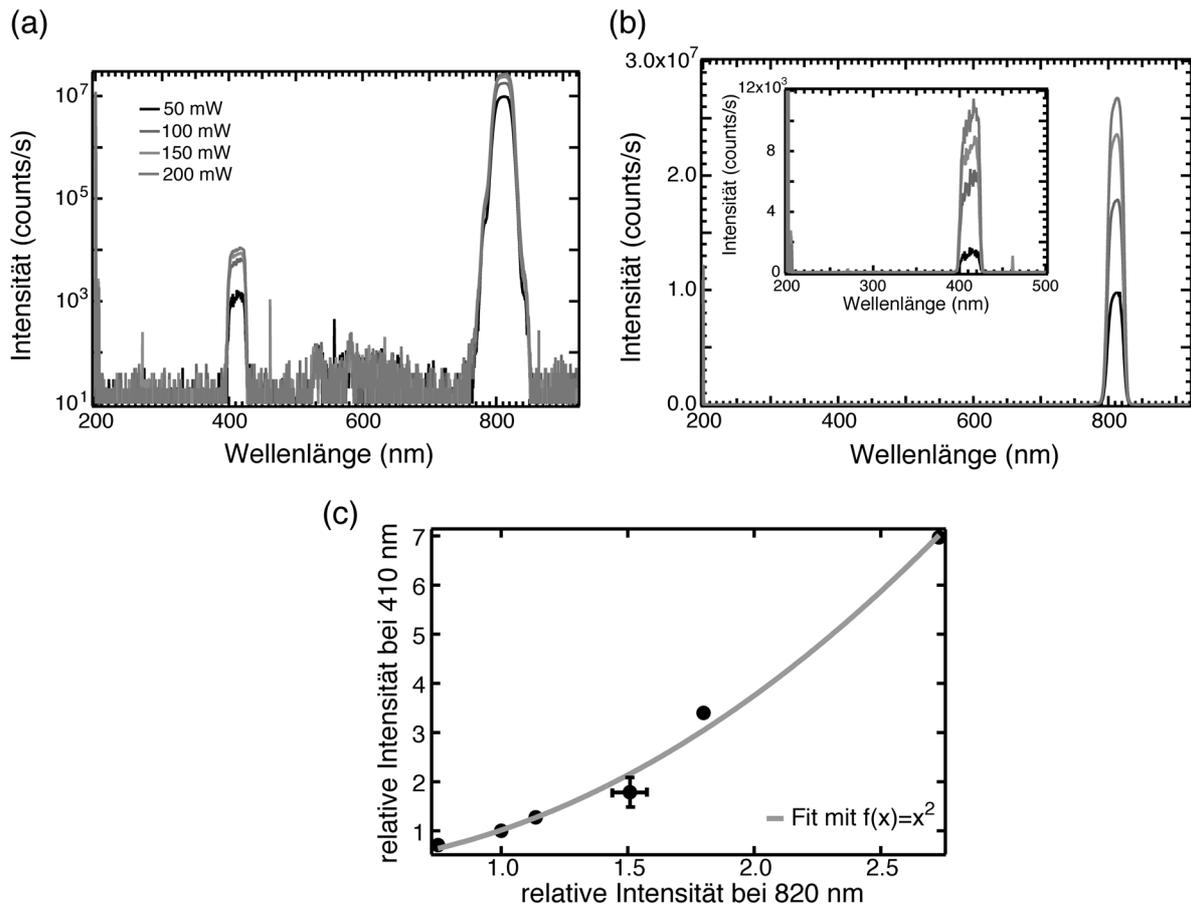


Abbildung 6.13: (a) Leistungsabhängige Messung an einer 75 \AA dicken Ag/Glas-Schicht. Es ist ein deutliches SHG-Signal identifizierbar. (b) Lineare Darstellung von (a). Während die 1ω -Linie eine lineare Leistungsabhängigkeit aufweist, zeigt die 2ω -Linie ein quadratisches Verhalten. (c) Relative Intensitäten der 1 und 2ω -Linie verdeutlichen das quadratische Verhalten.

6.3.3 Dünne Kobaltfilme

Die Wahl, Kobaltfilme mit dem fs -SNOM zu untersuchen, begründet sich auf zwei Tatsachen. Zum einen ist Kobalt ferromagnetisch mit einer bei diesen Schichtdicken parallel zur Oberfläche verlaufenden Magnetisierung, zum anderen gibt es eine Reihe von Fernfeldmessungen zu seinen nichtlinearen (und) magnetischen Eigenschaften [vgl. 144].

Die im Nahfeld gewonnenen Resultate ließen sich so mit der Literatur vergleichen und mögliche Unterschiede zwischen Fern- und Nahfeldmessungen könnten aufgedeckt werden. Außerdem konnten, nachdem die SH-Generierung an Ag-Oberflächen zeigte, dass die Messmethode eindeutige Ergebnisse liefert, Auswirkungen der Magnetisierung auf die Erzeugung der zweiten Harmonischen – und damit die prinzipielle Durchführbarkeit von MSHG-Messungen – untersucht werden, die eine Voraussetzung für die magnetooptische SH-Nahfeldmikroskopie sind.

Zuerst wurde wie im Fall der Silberschicht die Erzeugung der zweiten Harmonischen leistungs- und entfernungsabhängig untersucht. Abbildung 6.14(a) zeigt die für eine 100\AA dicke Co-Schicht aufgenommenen Spektren im Bereich von 200-920 nm. Im Teilbild (b) sind die Bereiche um die Laserlinie und die zweite Harmonische vergrößert dargestellt. Betrachtet man sich die Intensitätsverhältnisse der einzelnen Linien für die verschiedenen Eingangsleistungen (Abb. 6.14 (c)), so erkennt man wieder eine quadratische Abhängigkeit für das SH-Signal, während die Änderung der 1ω -Linie linear verläuft. Somit kann, nachdem das Spektrum ohne Probe keine Anzeichen einer SH-Linie aufwies, das gemessene Signal der Co-Schicht zugeordnet werden.

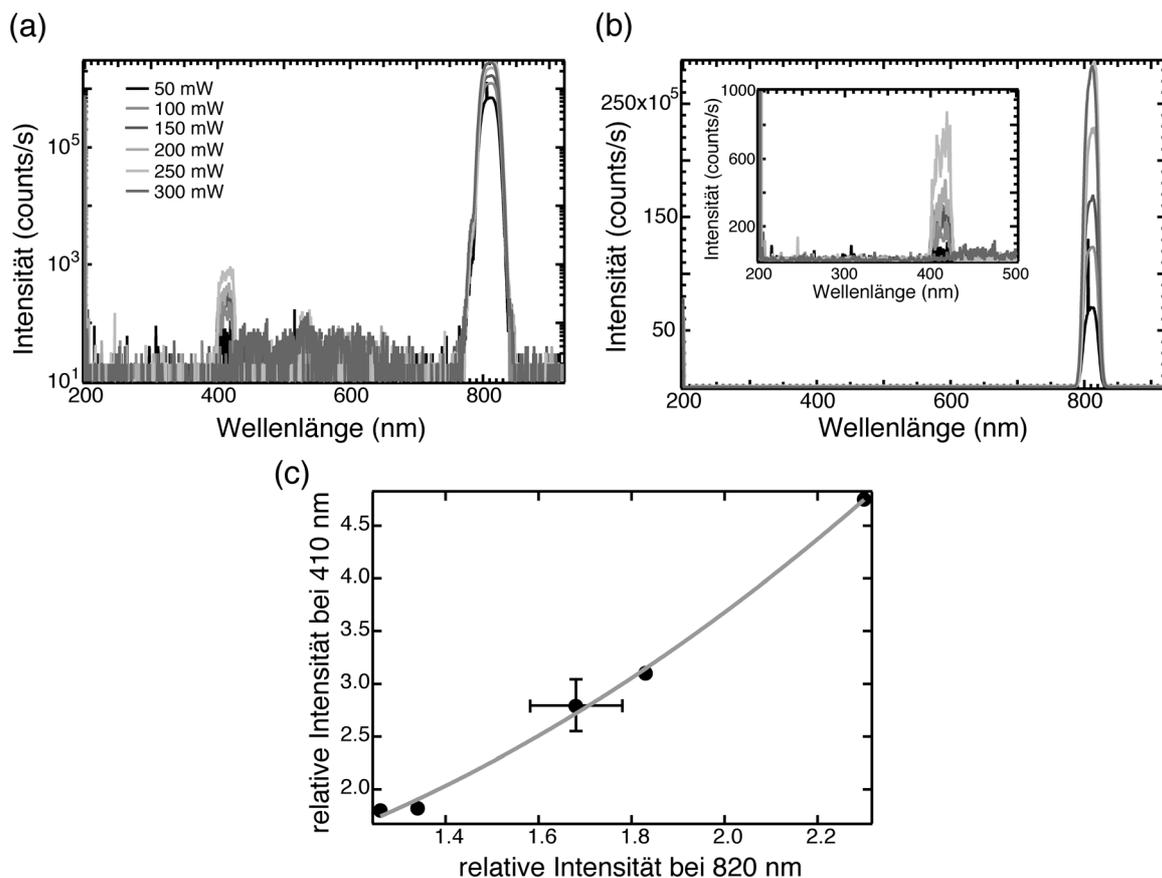


Abbildung 6.14: (a) Leistungsabhängige Messung der Spektren an einer 100\AA dicken Co/Glas-Schicht. (b) Lineare Darstellung von (a) zur besseren Bestimmung der Intensitätsabhängigkeit. (c) Relative Intensitäten der 1 und 2ω -Linie verdeutlichen die quadratische Abhängigkeit.

Die Signalstärke ist im Vergleich zur Silberschicht um eine Größenordnung geringer, so dass eine Eingangsleistung von mindestens 150 mW notwendig ist, um die Linie klar von dem Fluoreszenzkontinuum zu trennen. Der zweite Test – die Abstandsabhängigkeit des SHG-Signals – aus dessen Ergebnis das SH-generierte Licht dem Nahfeld zugeschrieben wird, zeigte die gleiche Gesetzmäßigkeit wie bei der Silberschicht, also einen exponentiellen Abfall ab einer Ent-

fernung von ca. 100nm von der Probenoberfläche. Dadurch verifiziert sich, dass das Signal von der Co-Schicht stammt.

An dieser Stelle soll ein Vergleich mit den von Jähnke [144] ermittelten SH-Intensitäten von Co/Cu(001) getätigt werden, um die Effizienz der SH-Erzeugung im Nahfeld zu ermitteln. Jähnke erzeugte mit einem auf $100\mu\text{m}$ fokussiertem Laserstrahl und einer Laserfluenz von $40\mu\text{J}/\text{cm}^2$ ein SH-Signal von ca. 10^5 cts/s (Messkonfiguration: $p \rightarrow P$). Das mit dem *fs-SNOM* im Nahfeld erzeugte Signal (vgl. Abb. 6.14) von 10^3 cts/s ist um zwei Größenordnungen kleiner. Die folgende Abschätzung zeigt jedoch, dass die Effizienz der SH-Generierung zwischen beiden Messungen identisch ist. Von einer mittleren Eingangsleistung von $P=200\text{mW}$ werden max. 50% in die Faser eingekoppelt und – durch die Transmittivität der Spitze – ein Faktor von 10^{-6} steht am Ende der Spitze zur Verfügung ($E=10^{-15}\text{J}$). Der Aperturdurchmesser ($d \approx 200\text{nm}$) gibt die beleuchtete Fläche an, so dass eine Laserfluenz von $4\mu\text{J}/\text{cm}^2$ auf der Probenoberfläche resultiert. Damit ist man in der Intensität um eine Größenordnung kleiner, was, durch die quadratische Intensitätsabhängigkeit der SHG, den Faktor 100 zwischen den beiden Messungen erklärt.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, dass Jähnke bei einer Polarisationsdrehung auf $s \rightarrow P$ einen Signalabfall von über einer Größenordnung beobachtete. Im *fs-SNOM* kann dies nicht nachvollzogen werden, da durch den senkrechten Einfall des Lichtes auf die Probenoberfläche keine Einfallsebene ausgezeichnet ist, so dass die Polarisation als eine mix-Polarisation aufgefasst werden kann (vgl. Kap. 2.1.3).

Da es gelungen ist, ein SH-Signal von der Co-Probe zu generieren, das außerdem die gleiche Effizienz wie bei Fernfeldmessungen aufweist, konnte der nächste Schritt, die magnetisierungsabhängige Messung, durchgeführt werden.

Hierfür wurde mit Hilfe eines Permanentmagneten der Co-Film *in-plane* aufmagnetisiert und das SH-Signal gemessen. Der zweite Teil der Messung bestand in der Änderung der Magnetfeldrichtung und darauf folgender Messung der Intensität der zweiten Harmonischen. Es sollten somit zwei Ergebnisse sichtbar werden: Zum einen eine Änderung der Intensität nach Aufmagnetisierung der Schicht im Gegensatz zum unmagnetisierten Fall, zum anderen ein magnetischer Kontrast ρ zwischen den beiden Magnetisierungsrichtungen (vgl. Kap. 2.1.3)

$$\rho = \frac{2(I_u - I_d)}{I_u + I_d} .$$

Beide Messungen zeigten jedoch, im Rahmen der Intensitätsschwankungen des Lasers, keine Änderung der Signalstärke.

Dies kann mehrere Ursachen haben, liegt aber nicht an einer fehlenden Probenmagnetisierung, wie lineare Fernfeldmessungen des Faraday-Effektes zeigten. Vielmehr muss es ein Resultat der Oberflächen- und Volumenbeschaffenheit der Co-Schicht sein.

Dazu soll als erstes untersucht werden, welche Tensorelemente zum Signal beitragen. Da der Co-Film während des Wachstums keine Strukturen im *RHEED* zeigte, wird erst einmal eine isotrope Oberfläche angenommen. Betrachtet man sich den Suszeptibilitätstensor und die durch die *SNOM*-Geometrie abgefragten Elemente (vgl. Kap. 2.1.3)

$$\chi_{iso}^{(2)} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xzx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yyz} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \chi_{SNOM}^{(2)} = \begin{bmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & 0 & 0 & 0 & \chi_{yyx} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} ,$$

so erkennt man, dass von einer isotropen Oberfläche kein SHG detektiert werden könnte, da die abgefragten Tensorelemente verschwinden. Ist diese isotrope Schicht jedoch magnetisiert, so werden nun nur ungerade Tensorelemente abgefragt, was ein rein magnetisches SH-Signal bedeuten würde, jedoch würde man keinen magnetischen Kontrast erhalten (vgl. Gl. 2.36).

Die erzielten Ergebnisse können also nicht mit einer isotropen Schicht erklärt werden, da schon im unmagnetisierten Fall ein SH-Signal gemessen wurde, das sich aber nach Aufmagnetisierung der Schicht nicht änderte. Eine Analyse der Co-Schicht zeigte, dass die Oberfläche von Pinholes durchsetzt, also nicht geschlossen war. Damit wird aber der zweite Summand in

$$P_i(2\omega) = \chi_{ijk}^d E_j(\omega) E_k(\omega) + \chi_{ijkl}^q E_j(\omega) \nabla_k E_l(\omega) ,$$

der die Volumenanteile berücksichtigt, dominant werden. Außerdem wird an der rauen und nicht geschlossenen Oberfläche eine partielle Oxidation stattfinden, welche die Magnetisierungseigenschaften an der Oberfläche beeinflussen wird [14]. Auch kann man nicht mehr von einer Oberflächensymmetrie ausgehen, da an den Lochwänden eine andere Symmetrie herrschen wird. Alle aufgezählten Effekte führen zu einer SHG-Erzeugung und zu einer Erhöhung des Nahfeldsignals durch diese topographischen Gegebenheiten. Es wird also eine Überlagerung des topographischen mit dem magnetischen Signal geben, wie auch im linearen Fall, doch inwiefern die Detektion der Magnetisierung im nichtlinearen Fall dadurch beeinflusst wird, konnte noch nicht befriedigend geklärt werden.

6.4 Zusammenfassung

Die in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse zusammenfassend lässt sich sagen, dass es mit dem *fs-SNOM* in Transmission möglich ist, nichtlineare Effekte an Metalloberflächen zu generieren und zu messen. Dabei ist bei Betrieb mit bedampften Fasern der *illumination mode* dem *collection mode* vorzuziehen, da die Faserbedampfung bei den für die SH-Generierung notwendigen Laserleistungen intakt bleibt, was einer größeren optischen Auflösung entspricht.

Im Einzelnen konnte gezeigt werden, dass beim Durchgang der Laserpulse durch die Faser, diese selbst ein nichtlineares Signal, nämlich die dritte Harmonische generiert. Dabei macht es keinen Unterschied, ob die Faser vorne glatt geschnitten ist oder spitz zuläuft. Der einzige Unterschied zwischen den beiden Betriebsmodi besteht darin, dass im *collection mode* durch die Transmittivität der Spitze die Intensität in der Faser zu gering zur Erzeugung nichtlinearer Effekte (insbesondere der dritten Harmonischen) ist.

Die für die Messungen im *SNOM* wichtige Bedampfung der Faser spielt auch in dem Fall des *fs-SNOM* eine große Rolle. Bei der Verwendung von Aluminium erhält man durch eine resonante Bedingung – hervorgerufen durch die verwendete Wellenlänge, die einem Interbandübergang im Aluminium entspricht – ein deutliches SH-Signal von der Bedampfung. Die Wahl des Materials muss also auf solche Effekte abgestimmt werden, denn es soll kein SHG-Signal von der Bedampfung auftreten, welches das Signal von der zu messenden Probe überlagern könnte. Kupfer hat sich für die von uns benutzten Messparameter als geeignet erwiesen. Es hat im verwendeten Wellenlängenbereich keinen Interbandübergang, so dass keine resonante Erhöhung der SHG eintritt.

Mit dieser Wahl ist es gelungen, die Erzeugung der zweiten Harmonischen an dünnen Silber- und Kobaltschichten zu demonstrieren. Dabei zeigte sich, dass durch die hohen Feldstärken an der Spitze die Erzeugung des SH-Lichtes effektiv bis zu einer Entfernung von 100 nm von der Probenoberfläche stattfindet und erst ab größeren Entfernungen exponentiell abnimmt. Des Weiteren erbrachte die intensitätsabhängige Messung die erwartete quadratische Abhängigkeit. Als besonders wichtig für die Effizienz der Erzeugung der zweiten und dritten Harmonischen erwies sich der Einkoppelgrad der Laserpulse in die Glasfaser. Wenige nm Abweichung des Fokuspunktes von dem Kernmittelpunkt, die keinen messbaren Effekt in der Laselinie zeigten, reichten aus, um das Signal um mehr als eine Größenordnung zu verändern. Im Vergleich zu Fernfeldmessungen zeigte sich, dass die SH-Generierung ein Signal mit der gleichen Effizienz erzeugt.

Bei den aufgedampften Filmen wurde zusätzlich noch versucht, die Abhängigkeit des SH-Signals von der Magnetisierungsrichtung zu demonstrieren. Obwohl die Messgeometrie eine Messung der dazu notwendigen Tensorelemente zulässt, konnte kein Effekt aufgelöst werden. Vermutlich lag dies an der Oberflächenbeschaffenheit der präparierten Co-Schicht, die wie im *cw-SNOM* das Signal überdeckte oder die Größe des Effektes ging im Schwanken der Laserintensität unter.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde ein Rasternahfeldmikroskop (*SNOM*) zum Betrieb in Transmission so in ein fs-Lasersystem eingebunden, dass nichtlineare nahfeldoptische Messungen im *illumination mode* möglich wurden. Dabei konnte das entstehende SHG-Signal als eindeutig von der Probe stammend identifiziert werden.

Die Erzeugung des SHG-Signals verlangte jedoch eine vorherige Kontrolle der Pulsbreite beim Durchgang durch die Faser. Da nicht bekannt war, bei welchen Pulsenergien eine auswertbare SH-Generierung an den zu untersuchenden dünnen Schichten stattfinden würde, wurde erstmalig die Pulspropagation durch die Faser für den kompletten Leistungsbereich des Ti:Saphir-Lasers bei verschiedenen Faserlängen untersucht. Dazu wurde, um die erhaltenen experimentellen Werte theoretisch beschreiben zu können, von einer impliziten Darstellung der Verbreiterungseffekte mit Hilfe eines Potenzreihenansatzes ausgehend, eine explizite Darstellung der Abhängigkeit der Parameter hergeleitet. Es stellte sich heraus, dass die erwartete Verbreiterung der Pulse in der Faser vornehmlich durch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion und die Selbstphasenmodulation beschrieben werden können. Darüber hinaus zeigte sich, dass durch die Doppelbrechung in der Faser eine Änderung der Ausbreitungsparameter ab einer Eingangsenergie von 3 nJ erfolgt. Eine genaue Quantifizierung dieser Änderung konnte jedoch nicht erfolgen, da die zur Verfügung stehenden Analysemethoden der Pulsbreitenbestimmung mittels Autokorrelation unzureichend waren. Hierfür würde sich ein *FROG*-Aufbau eignen, da mit ihm gleichzeitig Frequenz- und Zeitprofil sowie das räumliche Profil des Pulses bestimmt werden können.

Aufgrund der gewonnenen Resultate der Pulsverbreiterung wurde mit Hilfe von vier Prismen eine Pulskompressionsstrecke in den Strahlengang eingebaut. Die vollständige Anzahl der Prismensequenz war erforderlich, da ein Verkippen des Strahles, wie es bei der Zwei-Prismen-Konfiguration notwendig ist, zu immensen Problemen bei der Einkopplung des Lichtes in die Faser

führt. Mit der Kompression gelang es, eine Pulsbreite von 100fs für die im Experiment benötigte Faserlänge zu realisieren.

Bei der Propagation der Pulse durch die Glasfaser, zeigte sich durch die Erzeugung der dritten Harmonischen, dass eine nichtlineare Konversion schon innerhalb der Faser stattfindet. Die Spektren enthielten aber keine Anzeichen einer SH-Generierung; auch der Einbau einer spitzen Faser änderte nichts an dem Spektrum. Vielmehr erwies sich die Bedampfung der Faser, mit der die sub- λ Apertur erzeugt wird, als eine Quelle der SHG. Es stellte sich heraus, dass Aluminium bei der benutzten Wellenlänge von 820nm einen Interbandübergang besitzt, was zu einer resonanten Erhöhung der SHG führt. Kupfer hingegen hat einen Interbandübergang bei etwa 2.25eV, so dass in diesem Fall kein messbares SH-Signal generiert wird. Daraufhin wurde die Bedampfung der Glasfasern umgestellt.

Eine Verwendung bedampfter Fasern für den Betrieb im *illumination mode* enthält noch eine weitere Limitierung. Die Experimente zeigten, dass es bei Eingangsleistungen von über 250mW, aufgrund der in der Faser herrschenden hohen Fluenz von etwa $4\mu\text{J}/\text{cm}^2$, zu einer Zerstörung der Bedampfung kommt. Dabei hängt die Zerstörschwelle stark von der Einkoppelgüte ab. Diese kann bei einer sub- λ Apertur jedoch nicht ohne weiteres nachgeprüft werden. Versuche, die Einkopplung zu optimieren und reproduzierbar zu gestalten, zeigten, dass die nichtlineare Erzeugung der dritten Harmonischen eine sehr starke Abhängigkeit von der Einkoppelgüte aufweist, so dass ihre Intensität als Maß genommen werden kann, um eine maximale Einkopplung des Lichtes in die Faser zu erreichen.

Mit diesen Vorarbeiten gelang es, dünne metallische Filme im Nahfeld zu untersuchen. Dabei war im Vornherein nicht klar, ob die gewählte *SNOM*-Geometrie überhaupt ein SHG-Signal von der Oberfläche erzeugen würde, so dass dazu die abzufragenden Tensorelemente des nichtlinearen Suszeptibilitätstensors bestimmt wurden. Die Experimente an dünnen Silber und Kobaltschichten zeigten, dass bei der Messung ein, eindeutig von der Probe stammendes, SH-Signal entsteht, das bis zu einer Entfernung von 100nm von der Probenoberfläche eine konstante Intensität aufweist und danach exponentiell abfällt. Dass der Abfall erst so weit von der Oberfläche entfernt einsetzt, hängt mit der durch die Apertur bedingten hohen Fluenz zusammen, die noch ausreicht, um nichtlineare Effekte zu erzeugen.

Erste MSHG-Messungen an Kobalt blieben leider erfolglos, konnten aber aufgrund eines Defektes des Lasers nicht weiter verfolgt werden. Dass das Kobalt bisher kein MSHG-Signal zeigte, liegt nicht in der Messgeometrie begründet sondern an der Filmqualität. Für definierte Oberflächenbedingungen ohne Oxidation müsste man eigentlich die Messungen im Ultrahoch-

vakuum durchführen, jedoch hätte die apparative Realisierung den Rahmen dieser Arbeit gesprengt. Eine Messung im *UHV* ist aber wünschenswert, da dort eine gezielte und kontrollierte Oberflächenpräparation möglich ist, womit die Empfindlichkeit des *SH-SNOMs* in Abhängigkeit von der Oberflächensymmetrie und den magnetischen Eigenschaften der Probe ausgetestet werden kann.

Gleichzeitig wurde auch ein grundlegendes Experiment zum Verständnis des Nahfeldes und seiner Polarisation durchgeführt. Da bei optischen Abmessungen eine direkte Bestimmung der Polarisation im Nahfeld nicht möglich ist, wurde die Messung mit Mikrowellen durchgeführt, die durch ein Hohlrohr zu einer $\text{sub-}\lambda$ Apertur geführt wurden. Die Ergebnisse zeigten einerseits, dass die Polarisation hinter einer nachmodellierten Spitze sehr gut definiert ist und somit Polarisationsmessungen erlaubt. Andererseits zeigte sich ein deutlich unterschiedliches Verhalten der Wellenleitung, die eine eindeutige Übertragung der Ergebnisse auf die Lichtleitung in einer Glasfaser verhindert. Hierzu sind Verbesserungen dahingehend geplant, dass die Mikrowellenleitung einmodig erfolgt und mit Hilfe eines Füllmaterials ein dielektrischer Wellenleiter simuliert wird.

Anhang

A Linearer und nichtlinearer Brechungsindex

Bei der Behandlung der Pulsausbreitung in nichtlinearen Medien (Kap. 2.2.2) wurde gezeigt, dass die Dispersionsrelation des Brechungsindex eine wichtige, wenn nicht sogar eine tragende Rolle spielt. Der funktionelle Zusammenhang – in diesem Fall für *fused silica*, aus dem die Fasern bestehen, angegeben – wird näherungsweise durch die Sellmeier-Gleichung beschrieben:

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{a\lambda^2}{\lambda^2 - d^2} + \frac{b\lambda^2}{\lambda^2 - e^2} + \frac{c\lambda^2}{\lambda^2 - f^2}}, \tag{A.1}$$

wobei die Konstanten $a-f$ so gewählt werden, dass die Wellenlänge λ in μm angegeben wird [145].

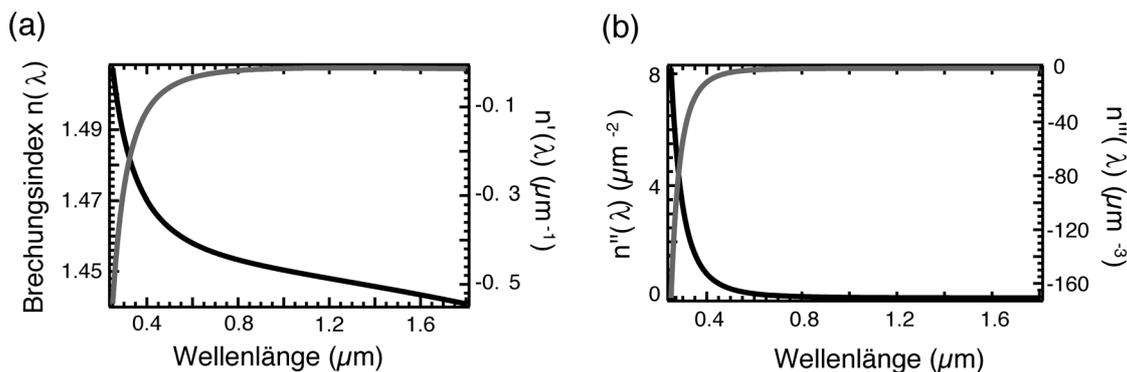


Abbildung A.1: (a) Spektraler Verlauf des Brechungsindex, wie er aus der Sellmeier-Formel bestimmt wird (schwarze Kurve). Als graue Kurve ist die aus dem Brechungsindex berechnete erste Ableitung dargestellt. (b) Zweite (schwarze Kurve) und dritte (grau) Ableitung des Brechungsindex. Die Kurven werden später zur Berechnung der Propagationskonstanten benutzt.

Der Verlauf des Brechungsindex in Abhängigkeit von der Wellenlänge und die ersten drei Ableitungen sind in Abb. A.1 dargestellt. Mit ihrer Hilfe ist es möglich den spektralen Verlauf

der Propagationskonstanten $k_n(\lambda)$ zu bestimmen. Rechnerisch bestimmen sich die Gruppengeschwindigkeit, die Gruppengeschwindigkeitsdispersion und die dritte Ordnung Dispersion zu:

$$k_1 = \frac{dk}{d\omega} \Rightarrow k_1(\lambda) = \frac{1}{c} \left(n(\lambda) - \lambda \frac{d}{d\lambda} n(\lambda) \right) \quad (\text{A.2})$$

$$k_2 = \frac{d^2 k}{d\omega^2} \Rightarrow k_2(\lambda) = \frac{\lambda}{2\pi c^2} \left(\lambda^2 \frac{d^2}{d\lambda^2} n(\lambda) \right) \quad (\text{A.3})$$

$$k_3 = \frac{d^3 k}{d\omega^3} \Rightarrow k_3(\lambda) = \left(-\frac{\lambda^2}{(2\pi)^2 c^3} \right) \left(3\lambda^2 \frac{d^2}{d\lambda^2} n(\lambda) + \lambda^3 \frac{d^3}{d\lambda^3} n(\lambda) \right) \quad (\text{A.4})$$

Den Verlauf von *GVD* und *TOD* stellt Abb. A.2 dar. Deutlich sichtbar ist der Übergang von normaler zu anormaler Dispersion, der sich bei $1,3\mu\text{m}$ vollzieht. Bei dieser Wellenlänge erfährt ein durch eine Glasfaser wandernder Puls keine Dispersion zweiter Ordnung und die höheren Ordnungen gewinnen an Einfluss. Den Bereich anormaler Dispersion macht man sich technisch zunutze, um die Verbreiterung aufgrund der Selbstphasenmodulation zu unterbinden und

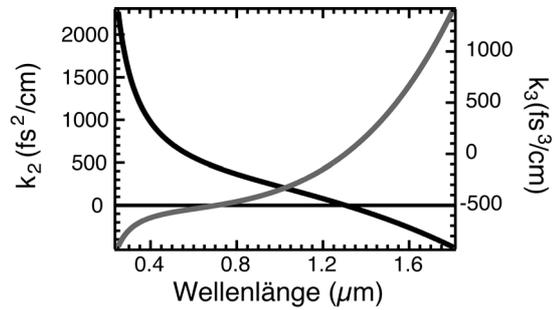


Abbildung A.2: Verhalten von *GVD* (schwarz) und *TOD* (grau). Man sieht, dass bei $1,3\mu\text{m}$ k_2 sein Vorzeichen ändert und damit vom Bereich normaler in den Bereich anormaler Dispersion übergeht.

den Puls dispersionsfrei als sog. Soliton durch die Faser propagieren zu lassen. Die Selbstphasenmodulation ihrerseits ist jedoch kein Effekt der spektralen Dispersion des Brechungsindex, sondern seiner Intensitätsabhängigkeit. Gewöhnlich spaltet man die Schreibweise des Brechungsindex in einen linearen und einen nichtlinearen Term auf:

$$n_{ges} = n_{lin} + n_2 I, \quad (\text{A.5})$$

wobei I die Intensität des einfallenden Lichtes darstellt. Der nichtlineare Brechungsindex ist Bestandteil extensiver theoretischer und experimenteller Forschung [78, 146-153], da er ein direktes Maß für die Systemantwort in Form der nichtlinearen Suszeptibilität über die Beziehung

$$n_2 \propto \frac{1}{n_0^2 \epsilon_0} \chi^{(3)} \quad (\text{A.6})$$

darstellt. Normalerweise existiert noch ein Term, der die Dispersion der Suszeptibilität angibt [54]. Da die benutzten Pulsbreiten jedoch viel größer als die Systemantwortzeit, die bei etwa 1 fs liegt, sind, kann sie vernachlässigt werden. Für die zur Zeit erreichbaren sub-fs Pulse muss bei der Berechnung des nichtlinearen Brechungsindex dieser Term berücksichtigt werden.

Die experimentell ermittelten Werte für n_2 weichen je nach Experimentiermethode stark voneinander ab, so dass die Entwicklung von Modellen erschwert wird. Ein von Adair *et al.* [78] vorgeschlagenes Modell (*PERT: perturbation theory*) gibt eine störungstheoretische analytische Form für die Abhängigkeit des nichtlinearen Brechungsindex von der Wellenlänge an und kann die experimentellen Werte gut beschreiben. Die zweite Näherungsformel für diesen Zusammenhang stammt von Sheik-Bahae *et al.* [146] und geht von der Zwei-Photonen-Absorption und einer Kramers-Kronig-Transformation (*KK*) aus.

$$\frac{n_2(x)}{n_2(0)} = \frac{n(0)}{n(x)} \left[\frac{n^2(x) + 2}{n^2(0) + 2} \right]^4 \cdot \frac{1}{1-x^2} \left[\frac{1-x^2}{1-4x^2} + \frac{1}{2K} \left(\frac{1-x^2}{1-4x^2} - \frac{1 + \frac{x^2}{3}}{1-x^2} \right) \right] \quad (PERT) \quad (A.7)$$

$$n_2(esu) = K' \frac{\sqrt{E_p}}{nE_g^4} \cdot \frac{1}{2x^6} \left[-\frac{3}{8}x^2 \frac{1}{\sqrt{1-x^2}} + 3x\sqrt{1-x} - 2\sqrt[3]{1-x} + 2\Theta(1-2x)\sqrt[3]{1-2x} \right] \quad (KK)$$

Dabei wird x in cm^{-1} gemessen. K' ist eine Konstante, E_g ist die Bandlücke, K hängt mit der Elektronenverteilung zusammen und hat für unseren Fall den Wert 0.5 [78, 146].

Für den experimentell interessanten Fall der Glasfaser wurde die spektrale Abhängigkeit von n_2 mit Hilfe der *PERT*-Gleichung berechnet und der aus den Daten bestimmte Wert für 820nm für die Auswertungen benutzt. Es ergibt sich ein Wert für den nichtlinearen Brechungsindex von etwa $2,8 \cdot 10^{20} m^2/W$, der auch gut mit experimentell bestimmten Werten für eine Wellenlänge von 800nm übereinstimmt. Man erkennt, dass sich der Wert in einem großen

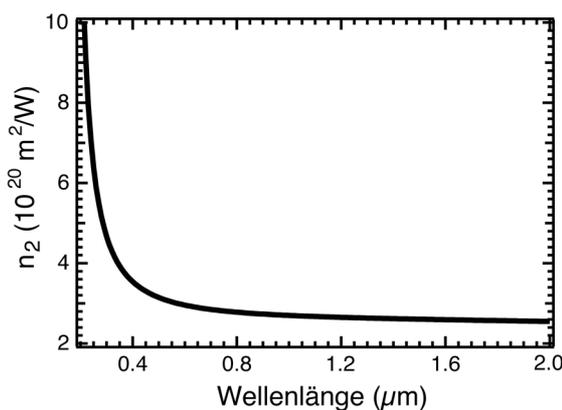


Abbildung A.3: Spektraler Verlauf des nichtlinearen Brechungsindex berechnet nach der *PERT*-Gleichung.

Wellenlängenbereich kaum noch ändert (unterhalb 2%), so dass er bei großen Wellenlängen meist als konstant angesehen wird. Im kurzwelligen Bereich hingegen wird die Änderung aufgrund der im Modell benutzten UV-Resonanz sehr groß.

B Herleitung der nichtlinearen Einhüllenden-Gleichung

In Kap. 2.2.2 wurde gezeigt, dass die nichtlineare Einhüllenden-Gleichung (*nonlinear envelope equation*) die Ausbreitung eines Lichtpulses in einer Glasfaser beschreibt. Im Folgenden soll sie, ausgehend von der Wellengleichung, hergeleitet werden (im cgs-System).

$$-\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{\mathbf{E}} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{\mathbf{P}} \quad (\text{B.1})$$

Dabei lässt sich die Polarisation \mathbf{P} in einen linearen und einen nichtlinearen Teil aufspalten. Bringt man alle linearen Terme in der Wellengleichung auf die linke Seite und die nichtlinearen auf die rechte Seite, so erhält man den Ausdruck (Gl. 2.45):

$$\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{\mathbf{D}}^L = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{\text{NL}} \quad (\text{B.2})$$

$$\text{mit} \quad \tilde{\mathbf{P}} = \tilde{\mathbf{P}}^L + \mathbf{P}^{\text{NL}}$$

$$\text{und} \quad \tilde{\mathbf{D}}^L = \tilde{\mathbf{E}} + 4\pi \tilde{\mathbf{P}}^L$$

Die Felder sind dabei in der Zeitdomäne dargestellt und werden über die Fouriertransformation

$$U(\mathbf{r}, t) = \int U(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (\text{B.3})$$

definiert. Die Relation von \mathbf{D} und \mathbf{E} wird als linear angenommen, so dass die Wellengleichung die Form $\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \varepsilon(\omega) \left(\frac{\omega^2}{c^2} \right) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega)$ im Frequenzraum annimmt. Für die Beschreibung der Phänomene reicht es, wenn man die Amplitude des elektrischen Feldes betrachtet, da man davon ausgeht, dass sich die Einhüllende nicht stark verändern wird. Diese Approximation wird auch *slowly varying amplitude approximation* genannt. Das elektrische Feld lässt sich dann schreiben als $\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \tilde{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t) e^{i(k_0 z - \omega t)}$ oder, wenn man in den Frequenzraum wechselt, als $E(\mathbf{r}, \omega) \equiv A(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) e^{ik_0 z}$. Damit kann man nun die Wellengleichung bezogen auf die Amplitude schreiben als:

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z} + [k^2(\omega) - k_0^2] \right) A(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{4\pi}{c^2} \omega^2 P(\mathbf{r}, \omega) e^{ik_0 z}, \quad (\text{B.4})$$

mit $\nabla_{\perp}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ und $k^2(\omega) = \varepsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2}$. Üblicherweise lässt sich die Funktion $k(\omega)$ der Wellenzahl, die das Verhalten des Pulses im dispersiven Medium beschreibt, über ihre Reihenentwicklung angeben.

$$k(\omega) = k_0 + k_1(\omega - \omega_0) + D \quad \text{mit} \quad D = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!} k_n (\omega - \omega_0)^n \quad (\text{B.5})$$

Hierbei stellen k_0 den Wellenvektor und k_1 das Inverse der Gruppengeschwindigkeit dar. D gibt die Dispersionsterme höherer Ordnung an. Quadriert man $k(\omega)$, so erhält man einen Term D^2 . Dieser wird beim Einsetzen vernachlässigt, da er sehr klein ist, so dass man zur Gleichung

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 A + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} + 2ik_0 \frac{\partial A}{\partial z} + 2k_0 k_1 (\omega - \omega_0) A + 2k_0 D A + 2k_1 D (\omega - \omega_0) A + k_1^2 (\omega - \omega_0)^2 A \\ = -\frac{4\pi}{c^2} \omega^2 P(z, \omega) e^{ik_0 z} \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

gelangt, die nun in die Zeitdomäne zurück transformiert wird.

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_0 \left(\frac{\partial}{\partial z} + k_1 \frac{\partial}{\partial t} \right) + 2ik_1 \tilde{D} \frac{\partial}{\partial t} + 2k_0 \tilde{D} - k_1 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \tilde{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{P} e^{-i(k_0 z - \omega_0 t)}$$

$$\text{mit} \quad \tilde{D} = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!} k_n \left(i \frac{\partial}{\partial t} \right)^n = -\frac{1}{2} k_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \dots \quad (\text{B.7})$$

Der nächste Schritt, der zur Vereinfachung der obigen Gleichung führt, beinhaltet die Darstellung der Polarisation mittels einer langsam variierenden Amplitude, wie es vorhin für das elektrische Feld getan wurde. Damit ergibt sich für die benötigte Ableitung:

$$\begin{aligned} \tilde{P}(\mathbf{r}, t) &= \tilde{p}(\mathbf{r}, t) e^{i(k_0 z - \omega t)} \\ \frac{\partial}{\partial t} \tilde{P} &= \left(-i\omega_0 \tilde{p} + \frac{\partial}{\partial t} \tilde{p} \right) e^{i(k_0 z - \omega t)} = -i\omega_0 \left[\left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \right) \tilde{p} \right] e^{i(k_0 z - \omega t)} \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \tilde{P}(\mathbf{r}, t) = -\omega_0^2 \left[\left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \right)^2 \tilde{p} \right] e^{i(k_0 z - \omega_0 t)},$$

und schließlich für die Wellengleichung:

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + 2ik_0 \left(\frac{\partial}{\partial z} + k_1 \frac{\partial}{\partial t} \right) + 2ik_1 \tilde{D} \frac{\partial}{\partial t} + 2k_0 \tilde{D} - k_1 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \tilde{A}(\mathbf{r}, t) = -\frac{4\pi\omega_0^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \right)^2 \tilde{p} \quad (\text{B.9})$$

Eine weitere Vereinfachung der Gleichungsstruktur erhält man, wenn man das Bezugssystem wechselt. Man geht in das System des bewegten Pulses über und führt die neue Ausbreitungsrichtung und die neue retardierte Zeit gemäß

$$z = z' \quad \tau = t - k_1 z$$

$$\text{und} \quad \frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z'} - k_1 \frac{\partial}{\partial \tau} \quad \frac{\partial}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial t} \quad (\text{B.10})$$

ein.

Transformiert man nun die Wellengleichung in das neue System, so erhält man die Gleichung in der Form:

$$\left[\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z'^2} - 2k_1 \frac{\partial}{\partial z'} \frac{\partial}{\partial \tau} + k_1^2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} + 2ik_0 \left(\frac{\partial}{\partial z'} - k_1 \frac{\partial}{\partial \tau} + k_1 \frac{\partial}{\partial \tau} \right) + 2k_0 \tilde{D} \right. \\ \left. + 2ik_1 D \frac{\partial}{\partial \tau} - k_1^2 \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} \right] \tilde{A}(r, t) = -\frac{4\pi\omega_0^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} \right)^2 \tilde{P} \quad . \quad (\text{B.11})$$

Nun wendet man die *slowly varying amplitude* Approximation an, was dazu führt, dass die Terme mit der zweiten z' -Ableitung wegfallen. Außerdem erkennt man nach einer Neusortierung der Terme, dass viele vom Quotienten k_1/k_0 abhängen. Dieser lässt sich, wenn man Dispersionen vernachlässigt, als $1/\omega_0$ annähern, so dass sich die endgültige Form der nichtlinearen Einhüllenden-Gleichung ergibt:

$$\left[\nabla_{\perp}^2 + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial z'} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} \right) + 2k_0 \tilde{D} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} \right) \right] \tilde{A}(r, t) = -\frac{4\pi\omega_0^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} \right)^2 \tilde{P} \quad . \quad (\text{B.12})$$

C Herleitung der Pulsverbreiterung über den Variationsansatz

Für den Fall, dass lineare und nichtlineare Dispersionseffekte den einfallenden Puls stören und verbreitern, bietet sich für die Lösung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung (*NLSE*) die Variationsrechnung an, wie sie auch von Anderson [79] durchgeführt wurde. Ausgangspunkt sind dabei die *NLSE* in der Form

$$i\frac{\partial U}{\partial z} = \frac{1}{2}k_2\frac{\partial^2 U}{\partial \tau^2} - \gamma P_m |U|^2 U \quad (\text{C.1})$$

und die dazugehörige Lagrange-Funktion

$$L(z, \tau) = \frac{i}{2} \left[U \frac{\partial}{\partial z} U^* - U^* \frac{\partial U}{\partial z} \right] - \frac{k_2}{2} \left| \frac{\partial U}{\partial \tau} \right|^2 - \frac{\gamma P_0}{2} |U|^4, \quad (\text{C.2})$$

wobei U die Einhüllendenfunktion des Pulses ist. Anderson konnte zeigen, dass die Minimierung der Lagrange-Funktion ($\delta \iint L(z, \tau) dz d\tau = 0$) eine Lösung der *NLSE* liefert.

Dazu wird als Einhüllende ein Gauß-Puls der Form

$$U = A(z) \cdot \exp \left[\tau^2 \left(-\frac{1}{2a^2(z)} + ib(z) \right) \right] \quad (\text{C.3})$$

angesetzt. Die Amplitude ($A(z)$), der Chirp ($b(z)$) und die Pulsbreite ($a(z)$) sind dabei variierbar.

Als Lösung der Variation erhält man ein System gekoppelter Differentialgleichungen

$$\begin{aligned} \text{I} \quad & \frac{\partial a}{\partial z} = \mp 2k_2 a(z) b(z) \\ \text{II} \quad & \frac{\partial b}{\partial z} = \pm 2k_2 b^2(z) \mp \frac{k_2}{2a^4(z)} - \frac{\gamma P_0 a_0}{2\sqrt{2}a^3(z)} \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

$$a(z)|A|^2 = E_0 = \text{const} \quad ,$$

wobei die letzte Gleichung die Energieerhaltung darstellt.

Aus I kann man durch Differentiation ebenfalls einen Ausdruck für $\frac{\partial b}{\partial z}$ gewinnen, den man dann in II einsetzen kann.

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 a}{\partial z^2} &= \mp 2k_2 \frac{\partial a}{\partial z} b \mp 2k_2 a \frac{\partial b}{\partial z} = \mp 2k_2 a \frac{\partial b}{\partial z} + 4k_2^2 a b^2 \\ \text{I}' \quad \Leftrightarrow \frac{\partial b}{\partial z} &= \mp \frac{1}{2k_2 a} \frac{\partial^2 a}{\partial z^2} \pm 2k_2 b^2 \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

$$\begin{aligned}
\text{I' in II} \quad & \Rightarrow \mp \frac{1}{2k_2 a} \frac{\partial^2 a}{\partial z^2} \pm 2k_2 b^2 = \pm 2k_2 b^2 \mp \frac{k_2}{2a^4} - \frac{\gamma P_0 a_0}{2\sqrt{2}a^3} \\
\text{III} \quad & \Leftrightarrow \frac{\partial^2 a}{\partial z^2} = \pm \frac{k_2^2}{a^3} + \frac{k_2 \gamma P_0 a_0}{\sqrt{2}a^2}
\end{aligned} \tag{C.6}$$

Für den Fall normaler Dispersion ($k_2 > 0$) fällt das Minuszeichen in Gl. III weg. Dabei stellen P_0 und a_0 die eingehende Pulsleistung und -breite und γ die Nichtlinearitäten des Systems dar. Schaut man sich die Gleichung III an, so kann man einige Aussagen treffen. Im Bereich normaler Dispersion ($k_2 > 0$) ist die rechte Seite stets positiv und somit auch die linke Seite, was weiterhin bedeutet, dass die erste Ableitung von $a(z)$ ebenfalls größer wird. Damit ist $a(z)$ ungebunden und steigt mit größer werdendem z über alle Maßen an. Für $z \rightarrow \infty$ folgt damit $a(z) \rightarrow \infty$, aber auch, dass die zweite Ableitung sehr klein wird. Die erste Ableitung ihrerseits wird vermutlich konstant, so dass $a(z)$ asymptotisch gegen eine Gerade laufen wird.

Zur Lösung von Gleichung III wird nun ein Potenzreihenansatz in $(a^2(z))$ gemacht. Dies ist gerechtfertigt, da die Struktur der Lösung, ausgehend von den bekannten Lösungen ohne den Einfluss der SPM, die gleiche Form aufweist (vgl. Gl. 2.52). Für den Anfang werden dabei nur die ersten zwei Glieder betrachtet.

$$\text{IV} \quad a^2 = c_0 + c_1 z + c_2 z^2 \tag{C.7}$$

Für $z=0$ folgt sofort aus Gl. IV: $c_0 = a_0^2$. Leitet man Gl. IV ab, so erhält man einen Ausdruck für c_1 :

$$2a \frac{\partial a}{\partial z} = c_1 + c_2 z$$

$$\text{mit I und } z=0: \quad \Rightarrow 2a_0(-2k_2 a_0 b_0) = c_1 \tag{C.8}$$

$$c_1 = -4a_0^2 k_2 b_0$$

Mit der Definition für den Chirp ($b_0 = -\frac{C}{2a_0^2}$) erhält man für c_1 : $c_1 = 2k_2 C$.

Die Konstante c_2 erhält man nun über die zweite Ableitung von Gl. IV.

$$\begin{aligned}
2c_2 &= 2a_0 \frac{\partial^2 a_0}{\partial z^2} + 2 \left(\frac{\partial a_0}{\partial z} \right)^2 \\
c_2 &= a_0 \frac{\partial^2 a_0}{\partial z^2} + 4a_0^2 k_2 \frac{C^2}{4a^4} .
\end{aligned} \tag{C.9}$$

Mit Hilfe von Gl. III ergibt sich c_2 zu: $c_2 = \frac{k_2(1+C^2)}{a_0^2} + \frac{k_2\gamma P_0 a_0}{\sqrt{2}a_0}$.

Setzt man nun alle Konstanten ein, so erhält man für die Pulsbreite in Abhängigkeit von der Propagationsdistanz

$$a^2(z) = a_0^2 + 2k_2 Cz + \left(\frac{k_2(1+C^2)}{a_0^2} + \frac{k_2\gamma P_0 a_0}{\sqrt{2}a_0} \right) z^2 + \dots \quad (\text{C.10})$$

Diese Lösung deckt sich im Grenzfall der Abwesenheit nichtlinearer Effekte (wie *SPM*) mit der Gleichung 2.52. Im Vergleich mit Andersons implizitem Resultat, zeigt sich keine Differenz zwischen den beiden Graphen (vgl. Abb. 2.12). Man erkennt, dass die Pulsbreite für kleine z einen wurzelförmigen Verlauf haben wird, während für große z ein lineares Verhalten zu beobachten ist.

Abbildungsverzeichnis

(2.1)	Zur Erklärung der Größen in den Fresnel-Gleichungen	6
(2.2)	Strahlverlauf und Strahlversatz bei der Totalreflexion; evaneszentes Feld und Goos-Hänchen-Shift	7
(2.3)	Faraday- und polarer Kerr-Effekt	8
(2.4)	Nichtlineare Prozesse im Photonenbild	13
(2.5)	Energiediagramme für resonante und nichtresonante Übergänge	14
(2.6)	Nichtlineare Konversionsprozesse in Abhängigkeit der Kristalllänge	16
(2.7)	Erzeugung der zweiten Harmonischen an Oberflächen	17
(2.8)	Wellenleitung durch eine Glasfaser	22
(2.9)	Graphische Lösung der Modengleichung	25
(2.10)	Auswirkungen verschiedener Effekte auf die Pulsbreite beim Durchgang durch ein nichtlineares Medium	29
(2.11)	Effekt der Selbstphasenmodulation	31
(2.12)	Pulsverbreiterung in Abhängigkeit vom Materialdurchgang: Vergleich der Modelle	32
(2.13)	Zum Auflösungskriterium nach Rayleigh	34
(2.14)	Erklärung des Nahfeldbereiches und des Prinzips der Nahfeldmessung	36
(2.15)	Erzeugung des evaneszenten Feldes in einer Glasfaserspitze	38
(3.1)	Schematische Darstellung der <i>SNOM</i> -Messkonfigurationen	42
(3.2)	Aufbau des Transmissions- <i>SNOMs</i>	44
(3.3)	Topographische Aufnahme eines in Glas geätzten Gitters	45
(3.4)	Distanzkurve und Resonanzverschiebung	46
(3.5)	Verstärkungseffekt bei Annäherung der Spitze an die Probe	46
(3.6)	Experimentelle <i>V-Kurve</i> zur Bestimmung der Faraday-Rotation	48
(3.7)	Optische und magnetooptische Aufnahmen mit dem <i>SNOM</i>	48
(3.8)	Hysteresekurve im Nahfeld	49
(3.9)	Polarisationsdrift	50
(3.10)	Der Verlauf des Ätzprozesses	51
(3.11)	Aufbau des Mikropipettenziehgerätes	52
(3.12)	Mikroskopaufnahmen verschieden hergestellter Glasfaserspitzen	53
(3.13)	Strahlengang beim <i>fs-SNOM</i> ohne Kompressionsstrecke	55

(3.14)	Strahlengang im Autokorrelator	56
(3.15)	Prismensequenz zur Erzeugung negativer Dispersion	57
(3.16)	Zur Berechnung der negativen Dispersion der Prismensequenz	58
(3.17)	Aufbau des Pulscompressors	60
(3.18)	Kompletter Strahlengang im <i>fs-SNOM</i>	62
(3.19)	Bestimmung des Einflusses des Pulscompressors auf die Pulsbreite	63
(3.20)	Polarisationsverhalten der SHG	65
(3.21)	Topographicaufnahme unter fs-Laserbeleuchtung	65
(4.1)	Aufbau des <i>MW-SNOMs</i> und Messgeometrien	69
(4.2)	Abstandsabhängige Messungen bei der runden Blende	71
(4.3)	Vergleich der Steigungen bei verschiedenen Aperturdurchmessern	72
(4.4)	Simulation der Feldverteilungen in einer runden Blende	74
(4.5)	Feldstärkekartierung an einer runden Blende in <i>s</i> - und <i>p</i> -Polarisation	75
(4.6)	Feldstärkekartierung für verschiedene Entfernungen von der Blende	77
(4.7)	Feldstärkekartierung an einer Kreuzblende in <i>s</i> - und <i>p</i> -Polarisation	78
(4.8)	Feldstärkekartierung an einer Spitze in <i>s</i> - und <i>p</i> -Polarisation	80
(4.9)	Gesamtfeldstärke, Polarisationsgrad und Gesamtpolarisation für eine Blende und eine Spitze	81
(5.1)	Theoretische Kurven der Abhängigkeiten der Pulsverbreiterung	87
(5.2)	Pulsverbreiterung der gesamten Optik im <i>fs-SNOM</i> -Aufbau	88
(5.3)	Experimentelle Abhängigkeit der Pulsbreite von der Eingangsleistung	90
(5.4)	Abhängigkeit der Pulsbreite von der Faserlänge	93
(5.5)	Pulsverbreiterung in einer getemperten Glasfaser	94
(5.6)	Einfluss der Kompressionsstrecke auf die Pulsbreite	95
(5.7)	Leistungsabhängigkeit der Pulsbreite nach Durchgang durch Kompressor und Faser	96
(6.1)	Laserspektrum ohne und mit Faser	100
(6.2)	Spektren einer geätzten unbedampften Faser im <i>illumination</i> und <i>collection mode</i>	101
(6.3)	<i>Illumination</i> und <i>collection mode</i> -Spektren im Kontakt mit einer Glasoberfläche	102
(6.4)	Leistungs- und Entfernungsabhängigkeit der Spektren im <i>collection mode</i>	103
(6.5)	Leistungs- und entfernungsabhängige Spektren bei Kontakt mit einer Ag-Schicht	104
(6.6)	Bild einer bedampften Faser nach Messung im <i>collection mode</i>	106
(6.7)	Spektren einer Al-bedampften Faser im <i>illumination mode</i>	107
(6.8)	Bandstruktur und Absorptionsspektrum von Aluminium	108
(6.9)	Bandstruktur und Absorptionsspektrum von Kupfer	109
(6.10)	Leistungsabhängige Spektren einer Cu-bedampften Faser	110
(6.11)	Messungen zur Verbesserung der Einkopplung	111
(6.12)	Abstandsabhängigkeit der <i>SHG</i> für bedampfte Fasern	112

(6.13)	SH-Erzeugung an dünnen Ag-Schichten	113
(6.14)	SH-Erzeugung an dünnen Co-Schichten	114
(A.1)	Spektraler Verlauf des Brechungsindex und seiner Ableitungen	123
(A.2)	Spektrales Verhalten von <i>GVD</i> und <i>TOD</i>	124
(A.3)	Verlauf des nichtlinearen Brechungsindex	125

Literaturverzeichnis

- [1] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, *Physical Review Letters* **7**, 118 (1961)
- [2] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, *Physical Review* **127**, 1918 (1962)
- [3] N. Bloembergen and P. S. Pershan, *Physical Review* **128**, 606 (1962)
- [4] S. S. Jha, *Physical Review* **140**, A2020 (1965)
- [5] Y. R. Shen, *Nature* **337**, 519 (1989) und Referenzen darin.
- [6] P. Guyot-Sionnest, W. Chen, and Y. R. Shen, *Physical Review B* **33**, 8254 (1986)
- [7] J. Güdde, J. Hohlfeld, and E. Matthias, *Applied Physics B* **74**, 691 (2002)
- [8] J. E. Sipe, V. C. Y. So, M. Fukui, and G. I. Stegemann, *Physical Review B* **21**, 4389 (1980)
- [9] W. Hübner, K. H. Bennemann, and K. Böhmer, *Physical Review B* **50**, 17597 (1994)
- [10] M. Y. Jiang, G. Pajer, and E. Burstein, *Surface Science* **242**, 306 (1991)
- [11] J. Harmle, L. Polerecky, and J. Ferré, *Physical Review B* **68**, 144401 (2003)
- [12] D. M. Newman, M. L. Wears, R. J. Matelon, and D. McHugh, *Applied Physics B* **74**, 719 (2002)
- [13] J. Hohlfeld, Th. Gerrits, M. Bilderbeek, Th. Rasing, H. Awano, and N. Ohta, *Physical Review B* **65**, 012413 (2001)
- [14] J. Reif, J. C. Zink, C.-M. Schneider, and J. Kirschner, *Physical Review Letters* **67**, 2878 (1991)
- [15] B. Koopmans, A. M. Janner, H. A. Wieranga, Th. Rasing, G. A. Sawatzky, and F. van der Woude, *Applied Physics A* **60**, 103 (1995)
- [16] B. Koopmans, M. G. Koerkamp, and Th. Rasing, *Physical Review Letters* **74**, 3692 (1995)
- [17] H. A. Wieranga, M. W. J. Prins, D. L. Abraham, and Th. Rasing, *Physical Review B* **50**, 1282 (1994)
- [18] U. Pustogowa, W. Hübner, and K. H. Bennemann, *Physical Review B* **48**, 8607 (1993)
- [19] U. Pustogowa, W. Hübner, and K. H. Bennemann, *Physical Review B* **49**, 10031 (1994)

-
- [20] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot, *Physical Review Letters* **89**, 017401 (2002)
- [21] B. Koopmans, J. J. M. Ruigrok, F. Dalla Longa, W.J. M. de Jonge, *Physical Review Letters* **95**, 267207 (2005)
- [22] U. Höfer, *Applied Physics B* **68**, 383 (1999)
- [23] G. Binnig und H. Rohrer, *Helvetica Physica Acta* **55**, 726 (1982)
- [24] D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, *Applied Physics Letters* **44**, 651 (1984)
- [25] A. Lewis, M. Isaacson, A. Harootunian and A. Muray, *Ultramicroscopy* **13**, 227 (1984)
- [26] Y. De Wilde, F. Formanek, and L. Aigouy, *Review of Scientific Instruments* **74**, 3889 (2003)
- [27] V. Emiliani, F. Intonti, C. Lienau, T. Elsaesser, R. Nötzel, and K. H. Ploog, *Physical Review B* **64**, 155316 (2001)
- [28] G. Eggers, A. Rosenberger, N. Held, A. Münnemann, G. Güntherodt, and P. Fumagalli, *Ultramicroscopy* **71**, 249 (1998)
- [29] G. Meyer, T. Crecelius, A. Bauer, I. Mauch, and G. Kaindl, *Applied Physics Letters* **83**, 1394 (2003)
- [30] J. Schoenmaker, M. S. Lancarotte, A. C. Seabra, Y. Souche, and A. D. Santos, *Journal of Microscopy* **214**, 22 (2003)
- [31] A. V. Zayats and I. I. Smolyaninov, *Philosophical Transactions of the Royal Society (London) A* **362**, 843 (2004)
- [32] I. I. Smolyaninov, A. V. Zayats, and C. C. Davis, *Physical Review B* **56**, 9290 (1997)
- [33] I. I. Smolyaninov, A. V. Zayats, and C. C. Davis, *Optics Letters* **22**, 1592 (1997)
- [34] M. K. Lewis, P. Wolanin, A. Gafni, and D. G. Steel, *Optics Letters* **23**, 1111 (1998)
- [35] S. I. Bozhevolnyi, J. Beermann, and V. Coello, *Physical Review Letters* **90**, 197403 (2003)
- [36] S. I. Bozhevolnyi, A. Maidykovski, B. Vohnsen, and V. Zwiller, *Journal of Applied Physics* **90**, 6357 (2001)
- [37] W. Dickson, S. Takahashi, D. McHugh, R. Atkinson, R. Pollard, and A. V. Zayats, *Journal of Applied Physics* **97**, 033505 (2005)
- [38] D. Wegner, U. Conrad, J. Gütde, G. Meyer, T. Crecelius, and A. Bauer, *Journal of Applied Physics* **88**, 2166 (2000)
- [39] J. C. Maxwell, *A Treatise on Electricity and Magnetism*, 2 Vols., Clarendon Press Oxford (1873)
- [40] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, 7th edition, Cambridge University Press (1999)
- [41] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, John Wiley and Sons, New York (1975)
- [42] G. Quincke, *Pogg. Ann.* **117**, 1117 (1863)
- [43] F. Goos und H. Hänchen, *Annalen der Physik* **43** (5), 383 (1943); F. Goos und H. Hänchen, *Annalen der Physik* **1** (6), 333 (1947); F. Goos und H. Lindberg-Hähnchen, *Annalen der Physik* **5** (6), 251 (1949)

- [44] M. Faraday, *Philosophical Transactions of the Royal Society (London)* **136**, 1 (1846)
- [45] J. Kerr, *Rep. Brit. Ass.* **5** (1876); *Philosophical Magazine* **3**, 321 (1877)
- [46] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Elektrodynamik der Kontinua*, 3. Auflage, Akademie-Verlag, Berlin (1975)
- [47] P. Fumagalli, *Magneto-Optic Spectroscopy of Magnetic Thin Films: Influence of Structural Properties on Magnetic Ordering, Exchange, and Coercivity*, Habilitationsschrift, RWTH Aachen (1997)
- [48] H. A. Lorentz, *Versuch einer Theorie der elektrischen und optischen Erscheinungen in bewegten Körpern*, Leiden (1895)
- [49] H. S. Bennett and E. A. Stern, *Physical Review* **137**, A 448 (1965)
- [50] J. L. Erskine and E. A. Stern, *Physical Review B* **8**, 1239 (1973)
- [51] E. A. Stern, *Physical Review Letters* **15**, 62 (1965)
- [52] M. S. Dresselhaus and G. Dresselhaus, *Physical Review* **125**, 499 (1962)
- [53] Z. Q. Qiu and S. D. Bader, *Review of Scientific Instruments* **71**, 1243 (2000)
- [54] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, San Diego (1992)
- [55] A. L. Schawlow and C. H. Townes, *Physical Review* **112**, 1940 (1958)
- [56] T. H. Maiman, *Physical Review* **123**, 1145 (1961); T. H. Maiman, R. H. Hoskins, I. J. D'Haenens, C. K. Asakawa, and V. Evtuhov, *Physical Review* **123**, 1151 (1961)
- [57] T. F. Heinz, H. W. K. Tom, and Y. R. Shen, *Physical Review A* **28**, 1883 (1983)
- [58] R. Murphy, M. Yeganeh, K. J. Song, and E. W. Plummer, *Physical Review Letters* **63**, 318 (1989)
- [59] N. Bloembergen, R. K. Chang, S. S. Jha, and C. H. Lee, *Physical Review* **174**, 813 (1968)
- [60] J. Rudnick and E. A. Stern, *Physical Review B* **4**, 4274 (1971)
- [61] R.-P. Pan, H. D. Wei, and Y. R. Shen, *Physical Review B* **39**, 1229 (1989)
- [62] W. Hübner and K. H. Bennemann, *Physical Review B* **40**, 5973 (1989)
- [63] J. E. Sipe, D. J. Moss, and H. M. van Driel, *Physical Review B* **35**, 1129 (1987)
- [64] D. Marcuse, *Theory of Dielectric Optical Waveguides*, Academic Press, San Diego, CA (1991)
- [65] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, 3rd edition, Academic Press, San Diego, CA (2001)
- [66] D. Marcuse, *Applied Optics* **19**, 1653 (1980); *Applied Optics* **20**, 2696 (1981); *ibid*, 3573
- [67] M. Miyagi and S. Nishida, *Applied Optics* **18**, 678 (1979)
- [68] S. W. Clark, F. Ö. Ilday, and F. W. Wise, *Optics Letters* **26**, 1320 (2001)
- [69] H. Nakatsuka, D. Grischkowsky, and A. C. Balant, *Physical Review Letters* **47**, 910 (1981)
- [70] M. J. Potasek, G. P. Agrwal, and S. C. Pinault, *Journal of the Optical Society of America B* **3**, 205 (1986)
- [71] R. H. Stolen and C. Lin, *Physical Review A* **17**, 1448 (1978)

-
- [72] N. Tzoar and M. Jain, *Physical Review A* **23**, 1266 (1981)
- [73] D. Anderson and M. Lisak, *Physical Review A* **27**, 1393 (1983)
- [74] M. J. Potasek and G. P. Agrawal, *Physical Review A* **36**, 3862 (1987)
- [75] M. Trippenbach and Y. B. Band, *Physical Review A* **57**, 4791 (1998)
- [76] A. Hasegawa and F. Tappert, *Applied Physics Letters* **23**, 142 (1973); *ibid*, 171
- [77] Y. Silberberg, *Optics Letters* **15**, 1282 (1990)
- [78] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, *Optical Materials* **1**, 185 (1992)
- [79] D. Anderson, *Physical Review A* **27**, 3135 (1983)
- [80] Lord Rayleigh, *Philosophical Magazine* (5) **8**, 261 (1879); *Philosophical Magazine* (5) **54**, 167 (1896)
- [81] J. M. Vigoureux, F. Depasse, and C. Girard, *Applied Optics* **31**, 3036 (1992)
- [82] J.M. Vigoureux and D. Courjon, *Applied Optics* **31**, 3170 (1992)
- [83] L. de Broglie, *Annalen der Physik*, **V 10**, 22 (1925)
- [84] E. Wolf and M. Nieto-Vesperinas, *Journal of the Optical Society of America A* **2**, 886 (1995)
- [85] M. Ohtsu and K. Kobayashi, *Optical Near Fields*, Springer- Verlag, Berlin (2004)
- [86] M. Ohtsu *ed.*, *Near-field Nano/Atom Optics and Technology*, Springer-Verlag, Tokyo (1998)
- [87] E. A. Ash and G. Nichols, *Nature* **237**, 510 (1972)
- [88] E. Betzig, A. Harootunian, A. Lewis, and M. Isaacson, *Applied Optics* **25**, 1890 (1986)
- [89] G. Lévêque, G. Colas des Francs, C. Girard, J. C. Weeber, C. Meier, C. Robilliard, R. Mathevet, and J. Weiner, *Physical Review E* **65**, 036701 (2002)
- [90] O. J. F. Martin and N. B. Piller, *Physical Review E* **58**, 3909 (1998)
- [91] C. Girard and A. Dereux, *Reports on Progress in Physics* **59**, 657 (1996)
- [92] C. Girard, C. Joachim, and S. Gauthier, *Reports on Progress in Physics* **63**, 893 (2000)
- [93] Y. Leviatan, *Journal of Applied Physics* **60**, 1577 (1986)
- [94] U. Dürig, D. W. Pohl, and F. Rohner, *Journal of Applied Physics* **59**, 3318 (1986)
- [95] O. J. F. Martin and M. Paulus, *Journal of Microscopy* **250**, 147 (2002)
- [96] A. Castiaux, A. Dereux, J.-P. Vigneron, C. Girard, and O. J. F. Martin, *Ultramicroscopy* **60**, 1 (1995)
- [97] L. Vaccaro, L. Aeschmann, U. Staufer, H. P. Herzig, and R. Dändliker, *Applied Physics Letters* **83**, 584 (2003)
- [98] O. J. F. Martin, *Journal of Microscopy* **194**, 235 (1999)
- [99] C. Girard, J.-C. Weeber, A. Dereux, O. J. F. Martin, and J.-P. Goudonnet, *Physical Review B* **55**, 16487 (1997)
- [100] A. Castiaux, C. Girard, A. Dereux, O. J. F. Martin, and J.-P. Vigneron, *Physical Review E* **54**, 5752 (1996)

- [101] H. A. Bethe, *Physical Review* **66**, 163 (1944)
- [102] C. J. Bouwkamp, *Physical Review* **75**, 1608 (1949)
- [103] C. J. Bouwkamp, *Philips Research Reports* **5**, 321 (1950); *Philips Research Reports* **5**, 401 (1950)
- [104] C. J. Bouwkamp, *Reports on Progress in Physics* **17**, 35 (1954)
- [105] C. L. Andrews, *Physical Review* **71**, 777 (1947)
- [106] C. L. Andrews, *Journal of Applied Physics* **21**, p. 761 (1950)
- [107] M. J. Ehrlich, S. Silver, and G. Held, *Journal of Applied Physics* **26**, 336 (1955)
- [108] G. Eggers, *Aufbau eines magnetooptischen Rasternahfeldmikroskops und Tests an transparenten magnetischen Schichten*, Dissertation, RWTH Aachen (2000)
- [109] U. K. W. Thiele, *Optische Rasternahfeldmikroskopie mit Polarisationskontrast an dünnen magnetischen Schichten im variablen Magnetfeld*, Dissertation, FU Berlin (2002)
- [110] K. Karrai and R. D. Grober, *Applied Physics Letters* **66**, 1842 (1995)
- [111] S. Hoppe, *Rasternahfeldmikroskopie im Ultrahochvakuum*, Dissertation, FU Berlin (2004)
- [112] M. Leuschner, M. Schüttler, and H. Giessen, *Journal of Microscopy* **202**, 176 (2001)
- [113] S. Hoppe, G. Ctistis, J. J. Paggel, and P. Fumagalli, *Ultramicroscopy* **102**, 221 (2005)
- [114] A. Rose, Z. Ren, and G. Day, *Proceedings SPIE* **2360**, 306 (1994)
- [115] P. Hoffmann, B. Dutoit, and R. P. Salathé, *Ultramicroscopy* **61**, 165 (1995)
- [116] A. Sayah, C. Philipona, P. Lambelet, M. Pfeffer, and F. Marquis-Weible, *Ultramicroscopy* **71**, 59 (1998)
- [117] X. Liu, J. Wang, and D. Li, *Review of Scientific Instruments* **69**, 3439 (1998)
- [118] A. Lazarev, N. Fang, Q. Luo, and X. Zhang, *Review of Scientific Instruments* **8**, 3684 (2003)
- [119] Betriebsanleitung: Mikropipettenziehgerät P2000, Sutter Instrument Company, USA
- [120] Betriebsanleitung: Autokorrelator Mini, Angewandte Physik und Elektronik GmbH, Berlin
- [121] J. Hohlfeld, *Autokorrelationsmessungen zur Charakterisierung von Laserpulsen im Picosekunden- und Femtosekundenbereich*, Diplomarbeit, FU Berlin (1992)
- [122] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, *Optics Letters* **9**, 150 (1984)
- [123] E. B. Treacy, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **QE-5**, 454 (1969)
- [124] C. Obermüller, K. Karrai, G. Kolb, G. Abstreiter, *Ultramicroscopy* **61**, 171 (1995)
- [125] E. Betzig and R. J. Chichester, *Science* **262**, 1422 (1993)
- [126] G. Kolb, K. Karrai, and G. Abstreiter, *Applied Physics Letters* **65**, 3090 (1994)
- [127] C. Obermüller and K. Karrai, *Applied Physics Letters* **67**, 3408 (1995)
- [128] K. Hayata and M. Koshiba, *Physikal Review Letters* **71**, 3275 (1993)
- [129] F. G. Omenetto, B. P. Luce, D. Yarotski, and A. J. Taylor, *Optics Letters* **24**, 1392 (1999)

-
- [130] G. Stobrawa, M. Hacker, R. Netz, M. Bischoff, and R. Sauerbrey, *Applied Physics B* **76**, 333 (2003)
- [131] A. Kamata and M. Obara, *Applied Physics A* **78**, 85 (2004)
- [132] F. G. Omenetto, J. W. Nicholson, B. P. Luce, and A. J. Taylor, *Applied Physics B* **70**, S143 (2000)
- [133] F. G. Omenetto, *Femtosecond pulses in optical fibers* in Progress in Optics **44**, E. Wolf ed., Elsevier Science B.V. (2002)
- [134] M. Kempe, U. Stamm, B. Wilhelmi, and W. Rudolph, *Journal of the Optical Society of America B* **9**, 1158 (1992)
- [135] Z. Bor, *Journal of Modern Optics* **35**, 1907 (1988)
- [136] B. G. Bagley, E. M. Vogel, W. G. French, G. A. Pasteur, J. N. Gan, and J. Tauc, *Journal of Non-Crystalline Solids* **22**, 423 (1976)
- [137] M. R. Beversluis, A. Bouhelier, and L. Novotny, *Physical Review B* **68**, 115433 (2003)
- [138] B. Segall, *Physical Review* **124**, 1797, (1961)
- [139] E. Palik ed., *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic Press, San Diego, CA (1985)
- [140] V. L. Moruzzi, J. F. Janak, and A. R. Williams, *Calculated electronic properties of metals*, Pergamon Press, New York (1978)
- [141] C. Schwab, G. Meister, J. Woll, A. Gerlach, and A. Goldmann, *Surface Science* **457**, 273 (2000)
- [142] G. Lüpke, D. Bottomley, and H. M. van Driel, *Physical Review B* **49**, 17303 (1994)
- [143] D. Krause, C. W. Teplin, and C. T. Rogers, *Journal of Applied Physics* **96**, 3626 (2004)
- [144] V. Jähnke, *Untersuchung der strukturellen und magnetischen Eigenschaften ultradünner Ni- und Co- Filme mittels Second Harmonic Generation*, Dissertation, FU Berlin (2000) und dort enthaltene Referenzen
- [145] W. G. Discroll ed., *Handbook of Optics*, McGraw-Hill, New York (1978)
- [146] M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, and E. W. van Stryland, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **27**, 1296 (1991)
- [147] D. Milam and M. J. Weber, *Journal of Applied Physics* **47**, 2497 (1976)
- [148] D. Milam, *Applied Optics* **37**, 546 (1998)
- [149] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, *Physical Review B* **39**, 3337 (1989)
- [150] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. van Stryland, and M. Sheik-Bahae, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**, 1324 (1996)
- [151] K. S. Kim, R. H. Stolen, W. A. Reed, and K. W. Quoi, *Optics Letters* **19**, 257 (1994)
- [152] E. T. J. Nibbering, M. A. Franco, B. S. Prade, G. Grillon, C. Le Blanc, and A. Mysyrowicz, *Optics Communications* **119**, 479 (1995)
- [153] N. L. Boling, A. J. Glass, and A. Owyong, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **QE14**, 601 (1978)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denen meinen Dank aussprechen, die am Entstehen und Gelingen dieser Arbeit maßgeblich beteiligt waren.

Prof. Dr. Paul Fumagalli, der mir die Möglichkeit zur Promotion gab, danke ich für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und für die interessante und herausfordernde Aufgabenstellung. Herr Fumagalli nahm sich immer die Zeit zur Beantwortung meiner Fragen, und seine Denkanstöße zur Lösung von Problemen waren zum Gelingen der Arbeit äußerst hilfreich.

Prof. Dr. Frank Forstmann möchte ich für seine Bereitschaft danken, das Korreferat zu übernehmen, ebenso für die interessanten wissenschaftlichen Diskussionen.

PD Dr. Jens J. Paggel gilt ein besonderer Dank für seine engagierte Betreuung. Mit seinem Ideenreichtum und Sachverstand hat er viel zum Verständnis und Gelingen der Arbeit beigetragen.

Dr. Stefan Hoppe danke ich für seine Hilfe in all meinen, die Elektronik betreffenden, Fragen. Er bewies dabei sehr viel Geduld, so dass ich viel von ihm gelernt habe.

Dr. Holger Lippitz und Dr. Kai Schwinge danke ich für ihre Freundschaft, die mich während des gesamten Studiums begleitete sowie für das Aufbauen, wenn mal etwas schief lief.

Jan Podsiadly sei für seine Hilfe bei Bedienungsfragen rund um den Ti:Saphir-Laser sowie für die Ideen zur Einbindung der optischen Elemente gedankt.

Oliver Schimek danke ich für sein Engagement beim Aufbau des Mikrowellenexperimentes und der Durchführung der Messungen.

Dr. Christian Müller und Dr. Kai Schwinge möchte ich für ihre engagierte und kritische Durchsicht meiner Arbeit danken. Die dabei entstandenen Diskussionen haben viel zur Lesbarkeit beigetragen.

Marion und Hans Badow danke ich für alle administrativen und technischen Hilfestellungen und Arbeiten während meiner gesamten Zeit in der Arbeitsgruppe.

Allen nicht namentlich genannten Mitgliedern der Arbeitsgruppe sei für das gute Arbeitsklima

und die stete Hilfs- und Diskussionsbereitschaft gedankt.

Meiner Lebensgefährtin möchte ich für ihre Unterstützung und besonders für ihre Geduld während der letzten Phase der Arbeit, die einige Entbehrungen mit sich brachte, sehr danken.

Schließlich gilt mein besonderer Dank meinen Eltern und meinem Bruder. Ohne ihre stete Unterstützung, ihre Geduld und ihr Verständnis während der gesamten Zeit des Studiums und der Promotion, hätte diese Arbeit nicht angefertigt werden können.

Vorträge, Poster und Veröffentlichungen

Veröffentlichungen

- G. Ctistis, U. Deffke, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Growth and Structural Properties of Mn films on Si(111)-($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$):Bi
Journal of Magnetism and Magnetic Materials **240**, 420 (2002)
- U. Deffke, G. Ctistis, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Growth of Mn-Bi films on Si(111): Targeting epitaxial MnBi
Journal of Applied Physics **96**, 3972 (2004)
- S. Hoppe, G. Ctistis, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Spectroscopy of the shear force interaction in scanning near-field optical microscopy
Ultramicroscopy **102**, 221 (2005)
- S. Hoppe, G. Ctistis, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Reflection scanning near-field optical microscopy in ultrahigh vacuum
Review of Scientific Instruments **76**, 063704 (2005)
- G. Ctistis, U. Deffke, K. Schwinge, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Growth of Mn films on Si(111)-7 \times 7 and Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$:Bi
Physical Review B **71**, 035431 (2005)
- G. Ctistis, O. Schimek, P. Fumagalli, and J. J. Paggel
Polarization dependent measurement of the near-field distribution of a waveguide with sub-wavelength aperture
Journal of Applied Physics **99**, 014505 (2005)

Vorträge und Vortragsbeteiligungen

- S. Hoppe, G. Ctistis, J. J. Paggel und P. Fumagalli
Einfluss von Adsorbatfilmen und Substratoberflächen auf die „shear force“ Distanzregelung
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Dresden (2003)
- S. Hoppe, G. Ctistis, J. J. Paggel und P. Fumagalli
Warum die shear force Distanzregelung auch im UHV funktioniert
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg (2004)
- G. Ctistis, J. Podsiadly, J. J. Paggel und P. Fumagalli
fs-Laserpulspropagation in single mode Glasfasern
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg (2004)
- O. Schimek, G. Ctistis, J. J. Paggel und P. Fumagalli
Measurement of the near-field distribution of a waveguide with sub-wavelength aperture on a palpable scale
Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Berlin (2005)

Poster und Posterbeteiligungen

- G. Ctistis, J. Podsiadly, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Combination of Scanning Near-Field Optical Microscopy with Second Harmonic Generation
Nanomag-Workshop, Thessaloniki, Griechenland (2002)
- S. Hoppe, G. Ctistis, J. J. Paggel, and P. Fumagalli
Influence of adsorbed films and substrates on the distance control in AFM using shear-force technique
1st German-Japanese Symposium on „Spatially resolved spectroscopy and fabrication of nano-structures for nano-atom photonics“, Berlin (2003)

Kurzfassung

In der vorliegenden Arbeit werden zwei Methoden zur Charakterisierung dünner Schichten miteinander kombiniert. Zum einen handelt es sich um die Rasternahfeldmikroskopie (SNOM), mit deren Hilfe optische und magnetooptische Eigenschaften dünner Schichten mit einer unterhalb des Beugungslimits liegenden Ortsauflösung gemessen werden können, zum anderen um die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) an Oberflächen, die die nichtlinearen Eigenschaften der zu messenden Schicht bestimmt.

Bei der Zusammenführung beider Methoden zum Betrieb im *illumination mode* des SNOMs, musste sichergestellt werden, dass einerseits die Pulsbreiten an der Faserspitze kurz genug bleiben, um möglichst hohe Pulsenergien zur Generierung nichtlinearer Effekte an der Probenoberfläche zu erhalten, andererseits darf die Faserspitze selbst kein SHG erzeugen. Dazu wurden Untersuchungen der Pulspropagation in Glasfasern durchgeführt, die erstmalig den kompletten Leistungsbereich des Ti:Saphir-Lasers abdecken. Die Ergebnisse führten zum Aufbau eines Prismenkompressors, womit eine Pulsbreite von 100 fs hinter der Faser erzielt werden konnte.

In der unbedampften Faser selbst wurde zwar die Generierung höherer Harmonischer beobachtet, doch zeigte die Spitze keine SH-Erzeugung. Da im SNOM bedampfte Faserspitzen benutzt wurden, fand auch eine Untersuchung verschiedener Bedampfungen statt. Während Aluminium ein deutliches SH-Signal erzeugte, zeigte eine mit Kupfer bedampfte Glasfaser keine Anzeichen einer SHG.

Mit diesen Vorarbeiten konnte dann auch die Erzeugung der zweiten Harmonischen an dünnen Silber- und Kobalt-Schichten im Nahfeld demonstriert und eindeutig identifiziert werden, wobei die Effizienz der Erzeugung im gleichen Größenordnungsbereich wie bei Fernfeldmessungen liegt. Damit sind mit dieser Apparatur Untersuchungen orts aufgelöster nichtlinearer optischer Eigenschaften möglich.

Abstract

In this thesis, two experimental methods for surface and interface analysis of thin films were combined, with the aim at measuring nonlinear effects, via second harmonic generation, in the optical near-field.

For the operation of the scanning near-field optical microscope in the illumination mode with fs-laser pulses, a careful investigation of the pulse propagation in the fibre is essential. On the one hand, the pulses have to be short and, therefore, intensive enough to generate nonlinear effects at the sample surface. On the other hand, a generation of second harmonic radiation from the fibre tip has to be prevented. For this reason, measurements of the pulse broadening in the fibre, covering the entire power range of the Ti:sapphire laser, have been performed. The results lead to the setup of a four-prism compression stage yielding a final pulse width of 100 fs behind the fibre.

Using bare fibres, generation of higher harmonics could be observed but neither the bulk nor the tip of the fibre generated a detectable second-harmonic signal. Since metal-coated fibres are used in SNOM measurements, a detailed study of different coating materials was performed, yielding a detectable SHG-signal from the aluminium coating while a copper coating showed no sign of second-harmonic generation. Therefore, the metal coating was changed from aluminium to copper.

With these preparatory works, the near-field second-harmonic generation at thin Ag- and Co-films could be demonstrated and can now be used for the local analysis of nonlinear optical properties of thin metal films.

Lebenslauf

Persönliche Daten:

Georgios Ctistis
geboren am 02. Januar 1975 in Berlin

Schulbildung:

1981 – 1985	Galilei-Grundschule, Berlin
1985 – 1987	Katholische Schule St. Alfons, Berlin
1987 – 1994	Hermann-Ehlers-Oberschule, Berlin

Wehrdienst:

10/1994 – 09/1995	2./Sanitätsbataillon 410, Perleberg
-------------------	-------------------------------------

Studium:

10/1995 – 03/2001	Studium der Physik an der Freien Universität Berlin Abschluss: Diplom
seit 04/2001	Aufbaustudium zur Promotion am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin

Berufliche Tätigkeiten:

04/1997 – 03/2001	Studentische Hilfskraft am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin
04/2001 – 12/2005	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin

