

## 2 Theoretische Grundlagen

Für die Durchführung der Experimente in dieser Arbeit wurden zwei Messmethoden der Oberflächenphysik verwendet. Während die Photoelektronenspektroskopie Informationen über die elektronische Struktur der Proben liefert, können mit der Rastertunnelmikroskopie die Oberflächenstrukturen der Probe im Ortsraum dargestellt werden.

Aufgrund der unterschiedlichen theoretischen Grundlagen beider verwendeter Methoden ist dieses Kapitel zweigeteilt. Der erste Teil beschäftigt sich mit der Photoelektronenspektroskopie und der speziellen Anregung in den vorliegenden Experimenten. Im zweiten Teil wird die Theorie der Rastertunnelmikroskopie dargestellt.

### 2.1 Photoelektronenspektroskopie

Die Methode der zeitaufgelösten 2-Photonen Photoemission erlaubt es, Informationen über das zeitliche Verhalten der Elektronen an Oberflächen zu erhalten. Dabei kann nicht nur die Dynamik von Substrat-Zuständen, sondern auch deren Veränderung durch die Wechselwirkung mit Adsorbaten untersucht werden.

Zur Anregung der Photoelektronen wurde ein Kurzpuls-Lasersystem aufgebaut und optimiert, mit dem Pulse bis zu 15 fs Länge erzeugt werden können. Mit Hilfe dieses Ultrakurzzeitlasers fanden sowohl zeitaufgelöste (engl. *time resolved*: TR-2PPE) als auch zeitunabhängige (2PPE) 2-Photonen Photoemissionsmessungen statt. Zur Darstellung der theoretischen Grundlagen wird nach einer kurzen Einführung in das Lasersystem auf die theoretischen Grundlagen der Photoelektronenspektroskopie, insbesondere der 2-Photonen Photoemission eingegangen.

#### 2.1.1 Lasersystem

Ein Aufbau, mit dem schon seit einigen Jahren kurze Pulse erzeugen werden können, wird mit einem Titan-Saphir Laser realisiert. Mit solch einem Lasersystem können kurze Laserpulse im Femtosekundenbereich mit sehr hohen Ausgangsleistungen und großer Stabilität erzeugt werden. Diese Vorteile haben den Titan-Saphir Laser zu einer vielseitig verwendeten Lichtquelle werden lassen.

Die genaue Darstellung des Aufbaus des Titan-Saphir Lasers ist in der Diplomarbeit Gabriel [1] beschrieben. Zum besseren Verständnis soll jedoch im folgenden eine kurze Beschreibung der wichtigsten Prinzipien des Laseraufbaus und der Erzeugung von Laserpulsen gegeben werden:

- Titan-Saphir Laser
- Pulserzeugung
  - Kerr-Lens-Modelocking
  - Sättigbarer Absorber
- Prismenkompensation
- Frequenzverdopplung

##### 2.1.1.1 Titan-Saphir Laser (Ti:Sa Laser)

Das Kernstück eines Titan-Saphir Lasers besteht aus einem Saphirkristall ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), der mit einer schwachen Dotierung (0,05 bis 0,2 %)  $\text{Ti}_2\text{O}_3$  versehen ist. Diese Dotierung bestimmt über das  $3d^1$ -Elektron des  $\text{Ti}^{3+}$ -Ions die Absorptions- und Fluoreszenzeigenschaften des Lasers.

Aufgrund des breiten Absorptionsspektrums des Ti:Sa-Kristalls (Abbildung 2.1a) von ca. 450 bis 600 nm mit einem Absorptionsmaximum von ca. 500 nm, eignet sich ein  $\text{Ar}^+$ -Laser im Multiline-Modus mit seinen Emissionslinien bestens zum Pumpen des Laserkristalls. Das Emissionsspektrum (Abbildung 2.1b) weist demgegenüber eine Breite von ca. 650 bis 950 nm auf, wobei das Fluoreszenzmaximum bei 800 nm zu finden ist. Das breite Emissionsspektrum erlaubt es, die zentrale Wellenlänge des Laser innerhalb gewisser Grenzen abzustimmen und so unterschiedliche Photonenenergien für die Anregung zu erhalten.

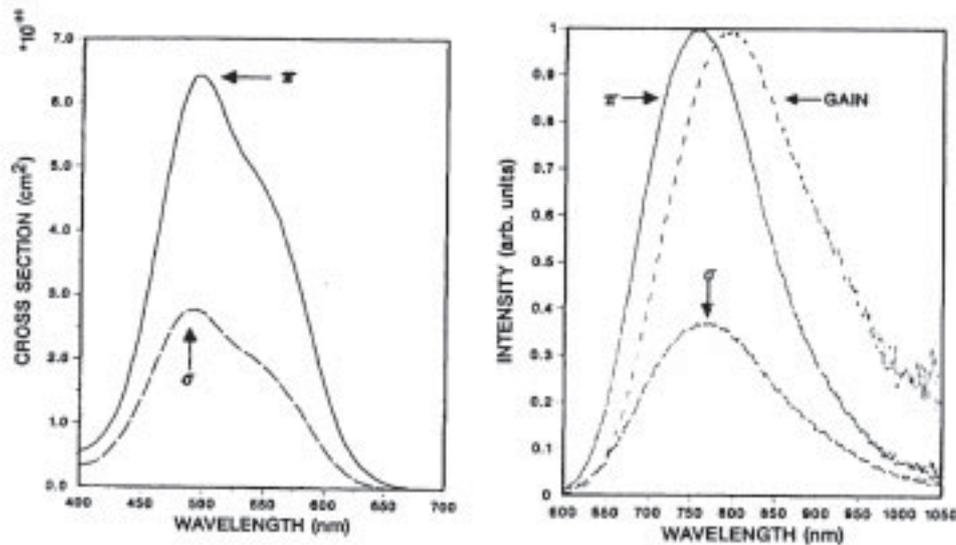


Abbildung 2.1: a) Absorptions- und b) Emissionsspektrum eines Titan-Saphir Kristalls [2]

Bei der Anregung der Laserniveaus durch den Argon-Ionen-Laser wird der Titan-Saphir Kristall nicht unerheblich erwärmt. Durch diese Temperaturzunahme reduziert sich der Wirkungsgrad [3], so dass es notwendig ist, den Titan-Saphir-Kristall ständig mit einer Wasserkühlung auf unter  $18^\circ \text{C}$  zu halten. Die hohe Wärmeleitfähigkeit des Kristalls ermöglicht dabei den Wärmetransport aus dem erwärmten Volumen.

#### 2.1.1.2 Pulserzeugung

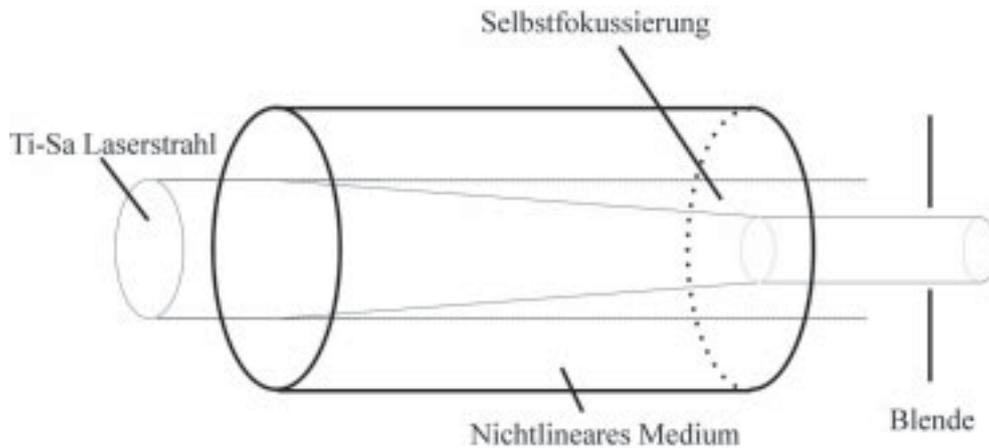
Im Vergleich zum cw-Betrieb (engl.: continuous wave = kontinuierliche Lasertätigkeit) eines Lasers wird beim Pulsmodus durch die induzierte Emission eine fast vollständige Entleerung des angeregten Laserniveaus erreicht. Bis eine erneute Emission stattfinden kann, muss eine gewisse Zeit verstreichen, in der die betreffenden Laserniveaus wieder besetzt werden. Erreicht man eine Synchronisierung der induzierten Emissionen, überlagern sich die Lasermoden und erzeugen scharfe Intensitätsmaxima. Diese Synchronisation der Resonatormoden wird auch als Modenkopplung (engl.: mode-locking) bezeichnet.

Die Kopplung der ausgebildeten Resonatormoden kann auf unterschiedliche Weise erreicht werden. Bei den möglichen Kopplungsmechanismen handelt es sich um die aktive bzw. passive Modensynchronisation, das synchrone Pumpen und das Kerr-Lens-Modelocking. Im folgenden sollen kurz das Kerr-Lens-Modelocking und die passive Modensynchronisation (am Beispiel des sättigbaren Absorbers) dargestellt werden, da sie für den verwendeten Laseraufbau von entscheidender Bedeutung sind. Für eine ausführliche Darstellung der oben genannten Methoden zur Modensynchronisation sei auf die Diplomarbeit Gabriel [1] verwiesen.

##### 2.1.1.2.1 Kerr-Lens-Modelocking (KLM)

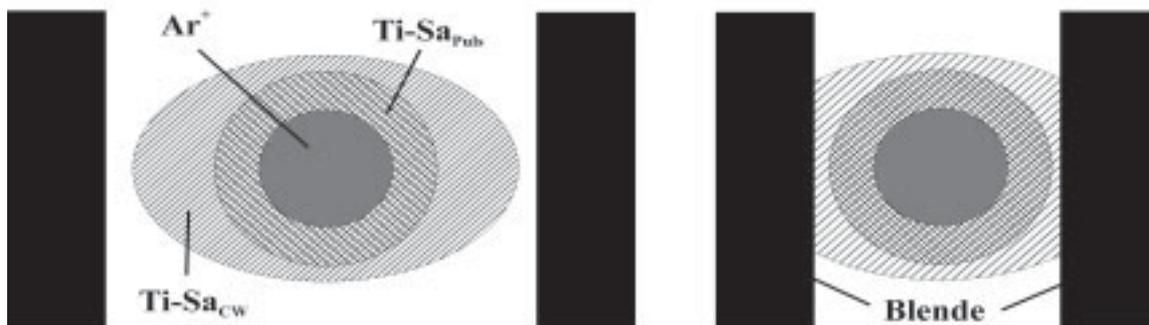
Die Wirkungsweise des Kerr-Lens-Modelockings (KLM) basiert auf der Nichtlinearität des verwendeten Laserkristalls. Durch die hohe Laserleistung im Pulsbetrieb, kann der nichtlineare Brechungsindex  $n_2$  des Titan-Saphir Kristalls nicht vernachlässigt werden. Es

kommt zu einem Selbstfokussierungseffekt des Titan-Saphir Laserstrahls im Kristall, der einen leistungsabhängigen Strahlradius erzeugt (Abbildung 2.2).



**Abbildung 2.2:** Ausbildung einer Strahltaile im Laserkristall aufgrund des Selbstfokussierungseffekts

Dieser Strahlradius ist kleiner als der beim cw-Betrieb der Lasers [4], jedoch größer als der Strahldurchmesser des anregenden  $\text{Ar}^+$ -Laserstrahls (Abbildung 2.3 links). Aufgrund der kleineren Strahltaile der  $\text{Ti-Sa}_{\text{puls}}$  Anregung führt das zu einer größeren Photonendichte und zu einem effektiveren Abräumen der durch den  $\text{Ar}^+$ -Laser erreichten Besetzungsinversion. Das Resultat ist eine größere Verstärkung des modensynchronisierten Zustandes.



**Abbildung 2.3:** Unterschiedliche Bereiche der Anregung im Titan-Saphir Kristall; a) Im Zentrum ist die starke Fokussierung des  $\text{Ar}^+$ -Lasers dargestellt. Deutlich ist der geringere Querschnitt des Kerr-Lens-Modelockings im Vergleich zum cw-Betrieb des Lasers zu erkennen. b) Durch Erhöhung des Verlusts für den cw-Betrieb mit Hilfe von Blenden dominiert das KLM als anregender Prozess

Trotz der effektiveren Wirkungsweise des KLM Prozess dominiert die Ausbildung des cw-Modus im Resonator. Um dem KLM-Betrieb einen Vorteil zu verschaffen, muss der Verlust für den cw-Betrieb so weit erhöht werden, dass sich die Anregung im Strahlquerschnitt als die effektivere Lasertätigkeit herausstellt. Dies kann dadurch geschehen, dass Blenden diesen Verlust künstlich erzeugen, indem sie den Bereich im Kristall abdecken, der für den cw-Betrieb erforderlich ist (Abbildung 2.3b).

Bei Verwendung des KLM ist zu beachten, dass der Pulsmodus nicht selbststartend ist. Zum Übergang vom cw- in den Pulsbetrieb ist eine Leistungsfluktuation im Resonator notwendig. Diese "Störung" kann beispielsweise durch leichtes Klopfen auf einen der Endspiegel erreicht werden. Nach dem Starten und einer optimalen Einstellung kann anschließend mit dem KLM eine stabile Modensynchronisation über Stunden beobachtet werden.