

Aufbau und Charakterisierung eines NOPAs im nahen bis mittleren infraroten Spektralbereich

Florian Baltrusch

Universitätsbachelorarbeit zur Erlangung des akademischen Grades

> Bachelor of Science (B. Sc.)

> > im Studiengang Physik

eingereicht am 23. September 2022 im Fachgebiet der ultraschnellen Dynamik kondensierter Materie am Institut für Physik und Astronomie der Universität Potsdam

| 1. Gutachter | Prof. Dr. Matias Bargheer |
|--|---------------------------|
| $\mathbf{a} \mathbf{a} \mathbf{a} \mathbf{b} \mathbf{a}$ | |

2. Gutachter Dr. Axel Heuer

Betreuer

Dr. Marc Herzog

Bei einem NOPA handelt es sich um ein Gerät zur Verstärkung von Laserpulsen. Die Wellenlängen dieser Pulse können durch den NOPA mit wenig Aufwand verändert werden, um sich verschiedenen Anwendungsanforderungen anzupassen. Im Fall des hier aufgebauten NOPAs werden Pulse im nahen bis mittleren infraroten Spektralbereich verstärkt. Im Zuge dieser Arbeit wird die Funktionsweise sowie der Aufbau eines NOPAs veranschaulicht werden. Außerdem wird eine Charakterisierung der erzeugten Laserpulse folgen, welche abschließend einem Anwendungstest in Form eines Anrege-Abfrage-Experiments (engl. pump-probe-experiment) unterzogen werden.

Inhaltsverzeichnis

| Ζι | ısam | menfas | sung | iii |
|----|-------------------------|---------|---|-----|
| In | halts | verzeic | hnis | v |
| 1 | Ein | leitung | | 1 |
| 2 | Theoretische Grundlagen | | | 3 |
| | 2.1 | Laserp | oulse in Medien | 3 |
| | | 2.1.1 | Allgemeines zu Laserpulsen | 3 |
| | | 2.1.2 | Chirp | 5 |
| | | 2.1.3 | GVD und GDD | 7 |
| | | 2.1.4 | Elemente mit negativer GDD | 8 |
| | 2.2 | Funkti | ionsweise und Anwendung nichtlinearer Kristalle | 9 |
| | | 2.2.1 | Allgemeines zu nichtlinearen Kristallen | 9 |
| | | 2.2.2 | Sellmeier-Gleichung | 10 |
| | | 2.2.3 | Phasenanpassung | 11 |
| | | 2.2.4 | Erzeugung zweiter harmonischer Schwingungen | 13 |
| | | 2.2.5 | Summen- und Differenzfrequenz | 14 |
| | 2.3 | Verstä | rkung von Laserpulsen bestimmter Wellenlängen | 15 |
| | | 2.3.1 | Verstärkung mit Hilfe von Weißlicht | 15 |
| | | 2.3.2 | Weißlichtkontinuumserzeugung | 16 |
| | | 2.3.3 | Räumlicher Überlapp | 17 |
| | | 2.3.4 | Zeitlicher Überlapp | 19 |
| | | 2.3.5 | Kreuz- und Autokorrelation | 19 |
| 3 | Auf | bau des | s NOPAs | 21 |
| | 3.1 | Funkti | ionsweise der verbauten Komponenten | 21 |
| | | 3.1.1 | Eingang des Laserstrahls in den NOPA | 22 |
| | | 3.1.2 | Erzeugung von 400 nm Licht | 22 |
| | | 3.1.3 | Weißlichterzeugung | 22 |
| | | 3.1.4 | Verstärkungsstufe 1 des NOPAs | 23 |
| | | 3.1.5 | Verstärkungsstufe 2 des NOPAs | 24 |
| | | 3.1.6 | Typ der Phasenanpassung im NOPA | 24 |
| | | 3.1.7 | Absorption von BBO und KTP | 25 |

| 4 | 4 Charakterisierung des NOPAs 27 | | | 27 |
|----|----------------------------------|---------|---|----|
| | 4.1 Allgemeine Vorgehensweise | | | 27 |
| | 4.2 | Chara | ıkterisierung der IR-Pulse | 27 |
| | | 4.2.1 | IR-Spektrometer Rohdaten | 27 |
| | | 4.2.2 | Bestimmung der NOPA Leistungen | 28 |
| | | 4.2.3 | Bandbreite der IR-Pulse | 30 |
| | 4.3 | Kreuz | korrelationen für verschiedene NOPA-Wellenlängen | 31 |
| | | 4.3.1 | Bandbreite und Pulsdauer bei der XC | 31 |
| | 4.4 | Autok | correlationen für verschiedene Kompressoreinstellungen | 32 |
| | | 4.4.1 | Ergebnisse der Autokorrelation | 33 |
| | | 4.4.2 | Zusammenhang von Pulsdauer und NOPA-Leistung | 34 |
| | | 4.4.3 | Bestimmung der Pulsdauer des Lasers | 34 |
| | 4.5 | Überp | prüfung der Energieerhaltung | 35 |
| | | 4.5.1 | Überprüfung der Energieerhaltung bei der XC | 35 |
| | | 4.5.2 | Überprüfung der Energieerhaltung bei signal und idler im | |
| | | | infraroten Spektralbereich | 36 |
| | 4.6 | Berec | hnung der IR-Pulsdauer | 38 |
| | | 4.6.1 | Gaußsche Fehlerfortpflanzung der IR-Pulsdauern | 40 |
| | | 4.6.2 | Gaußsche Fehlerfortpflanzung des fourierlimitierten Pulses | 41 |
| 5 | Anv | vendur | ngstest | 43 |
| | 5.1 | Anreg | ge-Abfrage-Experiment | 43 |
| | | 5.1.1 | Zwei-Temperatur-Modell | 44 |
| | | 5.1.2 | Ergebnisse der Anrege-Abfrage-Messungen | 44 |
| | | 5.1.3 | Interpretation der beobachteten Oszillation | 47 |
| | | 5.1.4 | Interpretation als Brillouin-Streuung | 47 |
| | | 5.1.5 | Interpretation als Schichtdickenoszillation der Goldschicht | 48 |
| 6 | Aus | blick a | uf weitere Schritte | 51 |
| | 6.1 | Chirp | des IR-Pulses mit Saphir kompensieren | 51 |
| 7 | Faz | it | | 53 |
| ы | terat | ur | | 55 |
| | corut | ~ 1 | | 55 |
| Ei | gens | tändigl | keitserklärung | 59 |

Einleitung

Um bei einem Anrege-Abfrage-Experiment (engl. pump-probe-experiment) Stoffe anregen zu können, benötigt man verschiedene Wellenlängen für verschiedene Stoffe. Je nach System sind mehr oder weniger spezifische Anregungen gewünscht, um gezielte Prozesse in Materialien untersuchen zu können. Metalle absorbieren hier typischerweise breitbandig, wohingegen bei Halbleitern die Absorption von der Bandlücke abhängt. Eine derart gezielte Anregung ist ebenfalls wichtig, wenn ein bestimmtes Material in einer Heterostruktur angeregt werden soll. Mit Hilfe eines nicht kollinearen optischen parametrischen Verstärkers (engl. noncollinear optical parametric amplifier, nachfolgend NOPA) lassen sich die gewünschten Wellenlängen sowohl kontinuierlich durchstimmen als auch kurze Pulse von unter zehn Femtosekunden (nachfolgend fs) erzeugen. Kurze Pulse sind hierbei von Vorteil, da so Prozesse auf kürzeren Zeitskalen untersucht werden können. Des Weiteren sind die durch den NOPA erzeugten Pulse sehr energiereich, wodurch sich auch nichtlineare Effekte in Materialien studieren lassen.

Im Verlauf dieser Arbeit wurde ein bereits vorhandener, aber nicht funktionstüchtiger, NOPA neu aufgebaut und justiert. Dieser NOPA sendet Licht im nahen bis mittleren infraroten Spektralbereich aus. Der hierfür notwendige experimentelle Aufbau, sowie die Funktionsweise der entscheidenden Komponenten wird in den nachfolgenden Kapiteln veranschaulicht werden. Mit Hilfe einer Auto- und Kreuzkorrelation werden anschließend die vom NOPA ausgesendeten Infrarotpulse charakterisiert werden. Zusätzlich wird der Aufbau einem Anwendungstest in Form eines Anrege-Abfrage-Experiments unterzogen werden. Abschließend wird ein Ausblick auf weitere Verbesserungsmöglichkeiten des Aufbaus gegeben werden.

Bevor mit dem Aufbau und der Charakterisierung des NOPAs begonnen werden kann, werden in diesem Kapitel die hierfür notwendigen theoretischen Grundlagen gelegt werden.

2.1 Laserpulse in Medien

In diesem Kapitel wird erklärt werden, was unter einem Laserpuls vorzustellen ist und wie sich dieser in Medien verhält. Ein besonderes Augenmerk liegt hierbei auf der wellenlängenabhängigen Phasengeschwindigkeit des Lichtes. Diese kann zum Zerfließen eines Laserpulses führen, was durch entsprechende Kompressoren wieder rückgängig gemacht werden kann.

2.1.1 Allgemeines zu Laserpulsen

Unter einem Laserpuls versteht man ein in seiner Amplitude zeitlich gaußverteiltes elektromagnetisches Feld. Mathematisch kann ein solcher Puls mit minimaler Pulsdauer wie folgt beschrieben werden:

$$E(t) = E_0 \underbrace{\exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right)}_{\text{Einhüllende}} \underbrace{\exp(-i\omega_0 t)}_{\text{Trägerfrequenz}}$$
(2.1)

 E_0 ist hierbei die maximale Amplitude, τ die Breite und ω_0 die Schwingungsfrequenz des elektrischen Feldes. Mit Hilfe der Fourier-Transformation kann die Gleichung 2.1 aus der Zeitdomäne in eine Frequenzdarstellung überführt werden. Diese Gleichung der Einhüllenden lautet dann wie folgt:

$$\tilde{E}(\omega) = E_{\omega_0} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{2\eta^2}\right)$$
(2.2)

Da der Puls in dieser Darstellung im Frequenzraum angegeben ist, handelt es sich bei η um die spektrale Breite. Zu beachten ist, dass sowohl die Breiten τ als auch η in Standardabweichungen der Einhüllenden angegeben sind. Im Laufe dieser Arbeit

=

werden jedoch alle Breiten in FWHM (engl. Full Width at Half Maximum) angegeben werden. Im Gegensatz zur Standardabweichung ist dies die gesamte Breite der Einhüllenden auf halber Maximalhöhe. Allgemein funktioniert die Umrechnung von der Standardabweichung σ in FWHM wie folgt:

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

$$\Rightarrow \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma^2}\right) = \exp\left(-\frac{t^2}{2\frac{(FWHM)^2}{(2\sqrt{2 \ln(2)})^2}}\right) = \exp\left(-\frac{4 \ln(2)t^2}{(FWHM)^2}\right)$$
(2.4)

Anschaulich sieht ein solcher Laserpuls in der Zeitdomäne so aus:



Abbildung 2.1: Normierter Realteil des elektrischen Feldes aufgetragen gegen eine allgemeine Zeitachse

In dieser Abbildung ist die Schwingungsfrequenz ω zeitunabhängig. Sollte sich der Puls jedoch durch ein Medium bewegen, in welchem sich die Ausbreitungsgeschwindigkeiten verschiedener Wellenlängen unterscheiden, kann es zu einem sogenannten (nachfolgend sog.) Chirp kommen. Dieser wird im nächsten Unterabschnitt behandelt werden.

2.1.2 Chirp

Breitet sich eine elektromagnetische Welle in einem Medium aus, so hängt ihre Phasengeschwindigkeit c von dem Brechungsindex n des Mediums ab. Hierbei gilt:

$$c = \frac{c_0}{n} \tag{2.5}$$

Im Vakuum ist n = 1, daher hat Licht dort seine Vakuumslichtgeschwindigkeit c_0 .

Der Brechungsindex kann nun jedoch von der Wellenlänge λ des Lichtes abhängen, d.h. verschiedene Lichtwellenlängen haben im selben Medium unterschiedliche Geschwindigkeiten. Im Falle normaler Dispersion von z.B. sichtbaren Lichtes in Glas eilen die langwelligen Teile des Lichtes den kurzwelligen voraus. In diesem Fall spricht man von einem positiven Chirp (engl. up-chirp). Umgekehrt spricht man von einem negativen Chirp (engl. down-chirp), wenn die kurzwelligen Anteile des Lichtes den langwelligen vorauseilen. In beiden Fällen zerfließt der Laserpuls bzw. zieht sich auseinander. Mathematisch muss in diesem Fall die Gleichung 2.1 mit einem linearen Chirpparameter γ erweitert werden. Die Gleichung lautet dann:

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) \exp\left(-i\omega_0 t - \frac{i}{2}\gamma t^2\right)$$
$$= E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) \exp\left(-i\left(\omega_0 + \frac{1}{2}\gamma t\right)t\right)$$
$$= E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) \exp(-i\varphi(t)t)$$

Bei $\varphi(t)$ handelt es sich um die zeitliche Phase des Laserpulses. Analog existierte eine Phase $\varphi(\omega)$ im Frequenzraum,. Betrachtet man nun einen positiven Chirp, dann sind sowohl $\dot{\omega}$ als auch $\ddot{\varphi}$ größer als null. Umgekehrt wären bei einem negativen Chirp beide Größen kleiner als null. Die nachfolgende Abbildung veranschaulicht diesen hinzugefügten positiven oder negativen Chirp.



(a) Normierter Realteil des elektrischen Feldes
 (b) Normierter Realteil des elektrischen Feldes
 aufgetragen gegen eine allgemeine Zeitachse aufgetragen gegen eine allgemeine Zeitachse
 mit positivem Chirp

Abbildung 2.2

In dieser Abbildung ist zu erkennen, dass bei einem positiven Chirp die langwelligen Teile des Lichtes den kurzwelligen vorauseilen. Daher sind sie auf der Zeitachse weiter links aufgetragen, da sie zu früheren Zeiten auftreffen. Bei einem negativen Chirp eilen umgekehrt die kurzwelligen Lichtanteile den langwelligen voraus.

Um den Chirp eines Laserpulses vollständig zu beschreiben, werden mehrere Parameter benötigt. Die Zusammenhänge dieser Parameter sind in der nachfolgenden Tabelle dargestellt.

| | Puls ohne Chirp | Puls mit Chirp |
|-------------------------|---|---|
| Pulsdauer | $	au = 	au_F$ | $\tau = \tau_F \sqrt{1 + \beta^2 \eta^4}$ |
| Bandbreite | $\eta = rac{1}{	au_F}$ | $\eta = \frac{1}{\tau_F}$ |
| Linearer Chirpparameter | $\gamma = \frac{\partial \omega}{\partial t} = 0$ | $\gamma = \beta \frac{\eta^2}{\tau^2}$ |

Tabelle 2.1: Parameter in σ zur Beschreibung eines Laserpulses mit Chirp

Nach der Heisenbergschen Unschärferelation hat jeder Puls eine minimale Pulsdauer. Diese untere Schranke wird die fourierlimitierte Pulsdauer τ_F genannt. η ist die spektrale Bandbreite des Pulses, und bei β handelt es sich um die quadratische spektrale Phase. Insbesondere hängt der lineare Chirpparameter γ nicht linear von β ab, da auch τ von β abhängt. Für β gilt:

$$\beta \coloneqq \frac{d^2 \varphi(\omega)}{d\omega^2} \tag{2.6}$$

Des Weiteren wird durch die Heisenbergsche Unschärferelation vorhergesagt, dass kurze Pulse eine große Bandbreite haben müssen. Demnach sind die Dispersionseffekte für kurze Pulse gravierender, da für große η gilt: $\tau \sim \eta^4$.

2.1.3 GVD und GDD

Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (engl. group velocity dispersion, nachfolgend GVD) beschreibt die Änderung der Gruppengeschwindigkeit v_g für verschiedene Frequenzen. Für die Gruppengeschwindigkeit gilt allgemein:

$$v_g = \frac{d\omega}{dk}$$

Daher gilt umgekehrt:

$$\frac{1}{v_a} = \frac{dk(\omega)}{d\omega} \qquad \qquad \left[\frac{s}{m}\right] \qquad (2.7)$$

$$\Rightarrow \text{GVD} = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v_g} \right) = \frac{d^2 k(\omega)}{d\omega^2} = \frac{d^2}{d\omega^2} k_0 n(\omega) \qquad \left[\frac{s^2}{m} \right]$$
(2.8)

$$\Rightarrow \text{GDD} := \text{GVD} \,\Delta z = \frac{d^2 \varphi}{d\omega^2} \equiv \beta \qquad [s^2] \qquad (2.9)$$

Die Gruppenlaufzeit
dispersion (engl. group delay dispersion, nachfolgend GDD) beschreibt das Produkt aus der GVD und der zurückge
legten Wegstrecke Δz durch ein Medium. Dies entspricht genau der quadratischen spektralen Phase
 β , welche bereits in Gleichung 2.6 eingeführt wurde.

Da die GDD durch die zweite Ableitung der spektralen Phase des Laserpulses gegeben ist, taucht nur dann ein Chirp auf, wenn die Phase mindestens zweiten Grades ist, d.h. ihre zweite Ableitung nach ω verschieden von null ist. Das bedeutet, dass entgegen der intuitiven Erwartung, ein linearer Geschwindigkeitsunterschied verschiedener Wellenlängen keinen Chirp verursacht, sondern nur eine zeitliche Verschiebung des Pulses bewirkt. Dies ist in der nachfolgenden Abbildung 2.3 (b) dargestellt.



Abbildung 2.3

Die gestrichelte schwarze Gaußkurve stellt den Zeitnullpunkt des Pulses ohne Phasenverschiebung dar. Die rotgestrichelte Gaußkurve zeigt den verschobenen Zeitnullpunkt nach einer linearen Phasenverschiebung an. Demnach bewirkt eine lineare Phase keinen Chirp, sondern führt nur, wie bei der schlichten Propagation durch das Vakuum, zu einer zeitlichen Verzögerung des Laserpulses.

2.1.4 Elemente mit negativer GDD

Da in einem experimentellen Aufbau ein Laserpuls mehrere Spiegel und Linsen passiert, erhält dieser Puls unweigerlich einen Chirp, welcher meist positiv ist. Um diesen zu kompensieren, müssen Elemente mit negativer GDD verbaut werden. Bei diesen handelt es sich üblicherweise um Gitterkompressoren, Prismenkompressoren oder dielektrische Multilagenspiegel (engl. chirped mirrors). Außerdem weisen gewisse dielektrische Materialien wie z.B. Saphir (Summenformel Al₂O₃) aufgrund dort befindlicher Resonanzen von infrarotaktiven Phononen eine von Natur aus negative GDD im mittleren bis fernen Infrarotbereich auf. (Quelle [8])

In dem zum Betreiben des NOPAs verwendeten Spectra-Physics Spitfire F-5K Laser ist ein Gitterkompressor verbaut. Dieser funktioniert wie folgt:



Abbildung 2.4: Links einfallender unkomrimierter Puls wird durch Gitterkompressor komprimiert

Es ist klar zu erkennen, dass der langwellige rote Strahl einen längeren Weg als die kurzwelligeren zurücklegen muss. So wird die positive GDD, also das Vorauseilen des langwelligen roten Strahls, kompensiert. Daher kann so der einfallende Puls mit Chirp bis auf sein Fourierlimit komprimiert werden.

2.2 Funktionsweise und Anwendung nichtlinearer Kristalle

In diesem Abschnitt wird auf die Bedeutung nichtlinearer Kristalle eingegangen werden und die Funktionsweise der wichtigsten Prozesse erklärt.

2.2.1 Allgemeines zu nichtlinearen Kristallen

Neben der Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindexes kann dieser außerdem für verschiedene räumliche Ausbreitungsrichtungen in einem Kristall unterschiedlich sein. Solche Materialien nennt man doppelbrechend. Ein Beispiel hierfür ist ein Beta-Bariumborat-Kristall mit der Summenformel β -BaB₂O₄ (nachfolgend BBO). BBOs haben allgemein eine optische Achse. Die Ebene, die durch diese optische Achse und der Ausbreitungsrichtung des Lichtes aufgespannt wird, nennt man den Hauptschnitt. Schwingt das elektrische Feld des einfallenden Lichtes parallel zum Hauptschnitt, dann wird es als außerordentlich polarisiert (engl. extraordinary polarization) oder e-polarisiert bezeichnet. Schwingt das elektrische Feld senkrecht zum Hauptschnitt, so wird das Licht als ordentlich polarisiert (engl. ordinary polarization) oder o-polarisiert bezeichnet.

Des Weiteren bezeichnet man Kristalle mit nur einer optischen Achse als uniaxial. Ist außerdem der außerordentliche Brechungsindex n_e kleiner als der ordentliche

Brechungsindex n_o , dann handelt es sich um einen negativ uniaxialen Kristall. Diese verschiedenen Brechungsindizes macht man sich bei der Phasenanpassung zunutze, welche in dem späteren Unterabschnitt 2.2.3 vorgestellt wird.

2.2.2 Sellmeier-Gleichung

Die wellenlängenabhängigen Brechungsindizes können in einem bestimmten Wellenlängenbereich durch die sog. Sellmeier-Gleichungen für den jeweiligen Kristall angenähert werden. Allgemein lautet die Sellmeier-Gleichung:

$$n^{2}(\lambda) = 1 + \sum_{i=1}^{3} \frac{x_{i}\lambda^{2}}{\lambda^{2} - \lambda_{i}^{2}}$$

Die Koeffizienten x_i und λ_i werden für jeden Stoff empirisch ermittelt. Die Koeffizienten x_i sind hierbei dimensionslos, wohingegen die Koeffizienten λ_i die Einheit einer Länge in μ m haben. Die verwendeten Sellmeier-Koeffizienten für einen BBO sind in den nachfolgenden Gleichungen abzulesen: (Quelle [9])

$$n_e^2 = 2.3730 + \frac{0.0128}{\lambda^2 - 0.0156} - 0.0044 \lambda^2$$
$$n_o^2 = 2.7405 + \frac{0.0184}{\lambda^2 - 0.0179} - 0.0155 \lambda^2$$

Die graphische Darstellung der Sellmeier-Gleichungen des doppelbrechenden BBOs sieht wie folgt aus:



Abbildung 2.5: Brechungsindex eines BBOs in Abhängigkeit von der Lichtwellenlänge

Der verwendete BBO ist negativ uniaxial, da der außerordentliche Brechungsindex (hier blau dargestellt) kleiner als der ordentliche Brechungsindex (hier rot dargestellt) ist und ein BBO nur eine optische Achse hat.

2.2.3 Phasenanpassung

Die Phasenanpassung eines nichtlinearen Kristalls bewirkt, dass sich zwei gewünschte Lichtwellenlängen mit der gleichen Phasengeschwindigkeit in dem Kristall ausbreiten, sodass $n_e(\lambda_1) = n_o(\lambda_2)$. Diese Brechungsindizes verändert man, indem man den Winkel θ zwischen dem einfallenden Laserstrahl und der optischen Achse des Kristalls variiert. Diese Kippung bewirkt, dass sich zwei gewünschte Lichtwellenlängen mit der gleichen Geschwindigkeit in dem Kristall ausbreiten, da $n_e(\lambda_1) = n_o(\lambda_2)$. Wenn die beiden Brechungsindizes gleich sind, dann sind nach der Gleichung 2.5 auch ihre Phasengeschwindigkeiten gleich. Dies führt dazu, dass sich diese beiden Wellen auch nach längerer Propagation konstruktiv überlagern können. Man spricht hier von einer angepassten Phasengeschwindigkeit, die Gruppengeschwindigkeiten können jedoch weiterhin unterschiedlich sein. Dieser Fall ist in der nachfolgenden Abbildung mit den entsprechenden Sellmeier-Gleichungen am Beispiel eines BBOs dargestellt.



Abbildung 2.6: Phasenanpassung durch Neigung des BBOs

Durch das Kippen des BBOs wird der außerordentliche Brechungsindex verschoben. Für einen bestimmten Neigungswinkel des BBOs ist der außerordentliche Brechungsindex für 400 nm Photonen gleich dem ordentlichen Brechungsindex für 800 nm Photonen. Es gilt also:

$$n_{e,400} = n_{o,800} \approx 1,6614$$
$$\implies \frac{c_0}{n_{e,400}} = \frac{c_0}{n_{o,800}} \equiv c$$

Interessanterweise folgt die Phasenanpassung für die involvierten Photonen direkt aus der Impulserhaltung, denn:

$$\vec{p} = \hbar \vec{k} = \hbar \vec{k}_1 + \hbar \vec{k}_2$$

$$\hbar n_{400} k_{400} = \hbar n_{800} k_{800} + \hbar n_{800} k_{800} \qquad |k = \frac{2\pi}{\lambda}$$

$$\Rightarrow \frac{n_{400}}{\lambda_{400}} = \frac{n_{800}}{\lambda_{800}} + \frac{n_{800}}{\lambda_{800}} \qquad |c = \frac{c_0}{n}$$

$$\Rightarrow \frac{1}{c_{400}\lambda_{400}} = \frac{1}{c_{800}\lambda_{800}} + \frac{1}{c_{800}\lambda_{800}} \qquad |\lambda_{400} = \frac{\lambda_{800}}{2}$$

$$= \frac{2}{c_{800}\lambda_{800}} \qquad |\lambda_{400} = \frac{\lambda_{800}}{2}$$

$$\Rightarrow c_{400} = c_{800}$$

Aus der Impulserhaltung folgt also eine angepasste Phasengeschwindigkeit.

Es wird nun zwischen verschiedenen Typen der Phasenanpassung unterschieden. Für die für uns relevanten negativ uniaxialen Kristalle existieren drei Typen der Phasenanpassung. Hierbei verwendet man für die drei an dem nichtlinearen Prozess beteiligten Photonen die Namen "Pump", "signal", und "idler". Die Konvention ist so, dass $\lambda_p \leq \lambda_s \leq \lambda_i$. Entscheidend für den Phasenanpassungstyp ist, welche Photonen e- und welche o-polarisiert sind.

| Pump | signal | idler | Тур |
|------|--------|-------|------|
| e | 0 | 0 | Ι |
| e | 0 | e | II A |
| e | e | 0 | II B |

Tabelle 2.2: Typen der Phasenanpassung für negativ uniaxiale Kristalle

Bei den Typen II A und II B besteht der Unterschied lediglich in der Vertauschung der Polarisationszustände von signal und idler.

2.2.4 Erzeugung zweiter harmonischer Schwingungen

So wie die Impulserhaltung grundlegend bei der Phasenanpassung ist, verläuft die Erzeugung zweiter harmonischer Schwingungen (engl. second harmonic generation, nachfolgend SHG), oder kurz zweiter Harmonischer, nach dem Grundsatz der Energieerhaltung. Hierbei werden in einem nichtlinearen Kristall zwei Photonen gleicher Frequenz kombiniert. Diese regen ein virtuelles Niveau (nachfolgend VN) an, welches anschließend ein Photon mit der doppelten Energie d.h. der doppelten Frequenz der einfallenden Photonen emittiert. Veranschaulicht sieht das so aus:



Abbildung 2.7: Erzeugung zweiter Harmonischer

In dieser Abbildung 2.2.4 ist die Erzeugung zweiter Harmonischer zu erkennen.

Hierbei kombinieren die beiden Photonen mit der Frequenz ω_1 (rot) zu einem Photon der doppelten Frequenz ω_2 (blau).

Aus dem nichtlinearen Kristall treten sowohl die angesprochenen 400 nm Photonen als auch die transmittierten 800 nm Photonen aus. Aus experimenteller Sicht ist eine Verdopplungseffizienz von ca. einem Drittel zu erwarten.

Entscheidend für diesen Prozess ist die durch das Licht hervorgerufene Polarisation *P* in dem Kristall, die sich wie folgt berechnen lässt:

$$P = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E E + \dots \right)$$

Hierbei ist ε_0 die elektrische Feldkonstante, χ die elektrische Suszeptibilität und *E* die elektrische Feldstärke.

Im Falle einer nichtlinearen Polarisation werden die Elektronen nicht mehr in harmonischen sondern in nichtlinearen Potentialen ausgelenkt. Ist das der Fall, dann sind in einem BBO die $\chi^{(2)}$ -Terme die ausschlaggebenden.

2.2.5 Summen- und Differenzfrequenz

Sind nun die Frequenzen der beiden ein- bzw. ausfallenden Photonen verschieden, so spricht man entweder von einer Summen- oder Differenzfrequenzerzeugung (engl. sum/difference frequency generation, nachfolgend SFG/DFG).



Abbildung 2.8

Bei der SFG kombinieren zwei Photonen zu einem, wohingegen bei der DFG ein Photon in zwei zerfällt. Im Gegensatz zur SHG können sich hier die Wellenlängen beider Eingangsphotonen unterscheiden.

Grundsätzlich sind hier alle Kombinationen von Photonen denkbar, welche die Energieerhaltung erfüllen. Gelten muss:

$$E = \hbar \omega_{\text{ges}} = \hbar \omega_i + \hbar \omega_j$$

Welche Photonenpaare dann tatsächlich erzeugt werden, hängt von der bereits angesprochenen Phasenanpassung, sowie dem zeitlichen Überlapp mit dem Weißlicht ab. Die Funktionsweise hiervon wird im nachfolgenden Abschnitt erläutert werden.

2.3 Verstärkung von Laserpulsen bestimmter Wellenlängen

In diesem Abschnitt werden die Funktionsweisen der im NOPA verbauten Komponenten vorgestellt werden. Dies beinhaltet die Verstärkung von Laserpulsen und die Rolle von Weißlicht bei diesen Prozessen. Außerdem wird genauer auf die Bedeutung von räumlichem und zeitlichem Überlapp eingegangen werden. Danach wird der experimentelle Aufbau einer Auto- bzw. Kreuzkorrelation vorgestellt werden, mit welchem sich die infraroten (nachfolgend IR) Pulse aus dem NOPA charakterisieren lassen.

2.3.1 Verstärkung mit Hilfe von Weißlicht

In dem für diese Arbeit aufgebauten NOPA laufen in beiden Verstärkungsstufen DFG-Prozesse ab. Um bei diesen eine ausgewählte Lichtwellenlänge zu verstärken, benötigt man Weißlicht, welches als Grundlage bzw. als sog. "seed" dient. Diese Grundlage legt fest, welche energieerhaltenden Photonenpaare erzeugt werden. Da es sich um Weißlicht handelt, ist es nicht monochromatisch, sondern hat eine Bandbreite und somit eine Zentralfrequenz. Diese sollte nicht mit der Zentralfrequenz ω_2 des verstärkten Weißlichtes verwechselt werden, welche durch den zeitlichen Überlapp aus dem Unterabschnitt 2.3.4 festgelegt wird.



Abbildung 2.9: Weißlicht als seed mit der Zentralfrequenz ω_2

Das Weißlicht stimuliert den gewünschten DFG-Prozess, indem das eingestrahlte Photon in zwei Photonen zerfällt, wobei eines dieser beiden Photonen genau die Frequenz ω_2 hat. Die Wellenlänge des anderen ist durch die Energieerhaltung festgelegt.

Diese Art und Weise der DFG erinnert an die stimulierte Emission bei einem Laser. Allerdings sind die Prozesse verschieden, da bei der DFG keine Besetzungsinversion von Elektronen vorliegen muss, da diese für den Prozess nicht ihr Energieniveau im Atom wechseln müssen. Es handelt sich bei der DFG also um einen nicht-resonanten Prozess.

2.3.2 Weißlichtkontinuumserzeugung

Das angesprochene Weißlicht entsteht, in dem es mit einer hohen Intensität *I*, bspw. in eine Saphir-, YAG- oder Glasplatte, fokussiert wird. Diesen Vorgang nennt man Weißlichtkontinuumserzeugung (engl. white light generation, nachfolgend WLG). Die hohe Intensität ist hierbei entscheidend, da diese zu dem sog. Kerr-Linsen-Effekt führt. Der Kerr-Linsen-Effekt besagt, dass hohe Intensitäten den Brechungsindex beeinflussen. Es gilt:

$$n(I) = n_0 + n_1 I$$

Dadurch kommt eine Selbstfokussierung des Lichtes zu Stande, da hohe Intensitäten durch den veränderten Brechungsindex stärker fokussiert werden.



Abbildung 2.10: Weißlichtkontinuumserzeugung mit Hilfe einer YAG-Platte

In dieser Abbildung 2.11 ist zu erkennen, wie aus 800 nm Photonen in einer YAG-Platte Weißlicht erzeugt wird. Die Intensität I(t) kann allgemein wie folgt beschrieben werden:

$$I(t) = I_0 \ e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} e^{-i\varphi}$$

Hierbei ist τ die Pulsdauer und φ die Phase. Für diese Phase gelten folgende Zusammenhänge:

$$\varphi = \omega t - kz$$

$$\Rightarrow \omega(t) = \dot{\varphi} \qquad \text{Außerdem gilt für k:}$$

$$k = \frac{n(t)}{c_0} \omega_0$$

$$\Rightarrow \varphi = \omega_0 t - \frac{\omega_0}{c_0} n(t) z$$

$$\Rightarrow \dot{\varphi} = \omega_0 \left(1 - \frac{z}{c_0} n_z \frac{dI(t)}{dt}\right)$$

$$= \omega_0 + \delta \omega$$

Durch ein zeitlich veränderliches I(t) ändert sich also die Phase. Daher spricht man auch von Selbstphasenmodulation. Diese zeitliche Intensitätsänderung ist für kurze Pulse besonders groß. Bei z handelt es sich um die Propagationslänge durch das Medium.

Das Licht kann jedoch nicht beliebig stark fokussiert werden, da nach der Gaußschen Strahlenoptik das Licht eine Strahltaille ausbildet. Auch hier verhindert die Heisenbergsche Unschärferelation eine weitere Fokussierung des Strahls, wodurch dieser zu divergieren beginnt. Dem entgegen wirkt dann der Kerr-Linsen-Effekt, weswegen sich die Fokussierung in einer temporären Waage hält. Dadurch verläuft das Licht in dem Kristall in einem Schlauch, was als Filamentierung bezeichnet wird.

2.3.3 Räumlicher Überlapp

Um eine nichtlineare Wechselwirkung im Material zu erhalten, muss sich das Weißlicht mit dem Pump im nichtlinearen Kristall treffen. Hier spricht man von einem räumlichen Überlapp. Bei einem optischen parametrischen Verstärker (engl. optical parametric amplifier, nachfolgend OPA) verlaufen Pump und Weißlicht kollinear. Dadurch ist der räumliche Überlapp in dem verwendeten nichtlinearen Kristall gewährleistet. Bei einem NOPA verlaufen die Strahlen nicht kollinear. Demnach schneiden sich die beiden Strahlen. Geschieht dies in einem BBO, so hat der Nichtkollinearitätswinkel Ψ Einfluss auf die Phasenanpassung.



Abbildung 2.11: Verkippungswinkel θ der optischen Achse in Abhängigkeit von der Wellenlänge für verschiedene Nichtkollinearitätswinkel Ψ (Quelle [25])

Es ist zu erkennen, dass für einen Nichtkollinearitätswinkel von $\Psi = 3, 7^{\circ}$ die Phasenanpassung für optische Wellenlängen durch eine Verkippung des BBO-Kristalls kaum angepasst werden muss. Dies führt zu einer potentiell großen Bandbreite des verstärkten Lichtes, was wiederum sehr kurze Pulsdauern ermöglicht. Besonders relevant ist der Winkel Ψ für Licht im Sichtbaren. Zu langen Wellenlängen gehend flachen alle Kurven ab, weshalb im infraroten der Winkel Ψ nicht mehr entscheidend ist.

2.3.4 Zeitlicher Überlapp

Neben dem räumlichen Überlapp muss auch ein zeitlicher Überlapp vorhanden sein.



Abbildung 2.12: Zeitlicher Überlapp für Farbauswahl im NOPA; Pump (lila), Weißlicht (regenbogenfarben)

Verlängert oder verkürzt man nun die Wegstrecke des Pump, so verschiebt sich dieser auf der Zeitachse in der Abbildung 2.12. Es werden die Wellenlängen verstärkt werden, die mit dem Pump-Puls zeitlich überlappen, da nur diese die nichtlineare Wechselwirkung mit dem Pumplicht erfahren können. Daher bestimmt der zeitliche Überlapp das ω_2 in der Abbildung 2.9. Der zeitliche Überlapp legt also die Wellenlänge des zu verstärkenden Lichtes fest. Zu dieser Wellenlänge muss auch die Phasenanpassung des nichtlinearen Kristalls passen, damit die richtigen Wellenlängen konstruktiv interferieren.

2.3.5 Kreuz- und Autokorrelation

Um die Pulsdauer τ der verstärkten Pulse zu bestimmen, verwendet man das Verfahren einer sog. Kreuzkorrelation (engl. cross correlation, nachfolgend XC). Hierbei werden Photonen über zwei verschiedene Strahlwege in einem nichtlinearen Kristall gekreuzt. Unabhängig voneinander werden beide Photonen durch den Kristall transmittiert werden. Wenn die Photonen zeitgleich in dem Kristall vorliegen, dann können die Photonen nach dem Prinzip der SFG zu einem kombinieren. Aufgrund

der Impulserhaltung verläuft dieser Strahl zwischen den beiden Transmittierten. Die Intensität dieses Strahls kann nun in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung der beiden ursprünglichen Pulse gemessen werden. In dem Spezialfall, dass sich die Wellenlängen der einfallenden Photonen gleichen, spricht man von einer Autokorrelation (engl. auto correlation, nachfolgend AC).



Abbildung 2.13: Allgemeine Autokorrelation

In der obigen Abbildung 2.13 ist der Aufbau einer nicht kollinearen Autokorrelation zu erkennen. Wäre Strahl 1 verschieden von Strahl 2, so würde es sich um eine Kreuzkorrelation handeln. Besonders zu beachten ist hier die mit gestrichelten Linien dargestellte Verschiebebühne, denn in dem Fall, dass die Laserpulse beider Strahlen gleichzeitig auf den BBO treffen, entsteht ein weiterer Strahl. Dieser entsteht aus einer Kombination von jeweils einem Photon der beiden Strahlen. Aus diesem lässt sich in Verbindung mit einer Kreuzkorrelation nach der Formel 4.4 die Pulsdauer der Infrarotstrahlen aus dem NOPA bestimmen. In diesem Kapitel wird der Aufbau des NOPAs vorgestellt werden. Hierbei wird besonders auf die Aufgabe der einzelnen Komponenten eingegangen werden.

3.1 Funktionsweise der verbauten Komponenten

Der Großteil dieser Arbeit bestand darin, einen funktionstüchtigen NOPA aufzubauen und ihn in den bestehenden experimentellen Aufbau zu integrieren. Als Grundlage diente ein Aufbau aus einer Arbeitsgruppe aus der Ludwig-Maximilians-Universität München aus dem Lehrstuhl für BioMolekulare Optik. (Quelle [7]) Auf Grund von jahrelanger Nichtnutzung war dieser jedoch nicht funktionsfähig. Meine Aufgabe bestand nun darin, den NOPA neu aufzubauen und zu justieren. Außerdem sollte der Aufbau für eine Verwendung im nahen bis mittleren infraroten Spektralbereich nutzbar gemacht werden. Der Aufbau des NOPAs sieht folgendermaßen aus:



Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des NOPAs

In dieser Abbildung 3.1 ist der beschriftete Aufbau des NOPAs zu erkennen. Die Abkürzungen S_1 bis S_{10} stehen für die nummerierten Spiegel. In den nachfolgenden Unterabschnitten wird auf den Aufbau und die Funktionsweise der einzelnen Komponenten eingegangen.

3.1.1 Eingang des Laserstrahls in den NOPA

Der verwendete Spectra-Physics Spitfire F-5K Laser mit einer Repetitionsrate von 5 kHz emittiert Licht bei einer Wellenlänge von 800 nm. Den NOPA erreichen ca. 345,5 mW, die auf den ersten Spiegel S₁ treffen. Dieser Spiegel reflektiert $\approx 1\%$ des auftreffenden Lichtes, welches für die Weißlichterzeugung verwendet wird. Die transmittierten 99% werden für die Erzeugung von 400 nm Licht und später für das Pumpen der zweiten Verstärkungsstufe verwendet.

3.1.2 Erzeugung von 400 nm Licht

In dem BBO 1 findet SHG Typ-I (hier 2.2.4 nachzulesen) statt, um 400 nm Licht zu erzeugen. Die kombinierte Leistung der 400 nm und 800 nm Photonen nach dem Durchqueren des BBOs beträgt 301,8 mW. An dem zweiten Spiegel S₂ wird der Strahl nach Wellenlängen getrennt. Die 800 nm werden mit einer Leistung von 185,1 mW transmittiert. Die kurzwelligeren 400 nm Anteile werden mit einer Leistung von 115 mW reflektiert. So ergibt sich eine Verdopplungseffizienz von ca. 38%. Dieser Wert liegt über dem angestrebten Wert von einem Drittel.

3.1.3 Weißlichterzeugung

Die an den Spiegeln S₁ und S₄ reflektierten 3,4 mW werden für die Weißlichterzeugung verwendet. Der Filter und die Blende sorgen für eine Regulierung der Leistung, um das Weißlicht in Hinsicht auf Intensität, Stabilität und spektraler Verteilung zu optimieren. Der mittels dieser Elemente abgeschwächte Laserstrahl wird auf eine YAG-Platte fokussiert. In dieser tritt der sog. Kerr-Linsen-Effekt und die damit verbundene Selbstphasenmodulation auf, wie in dem Unterabschnitt 2.3.2 nachzulesen ist. Das Material YAG wird verwendet, weil es im infraroten Spektralbereich mehr Photonen als Saphir erzeugt. Dies ist in der nachfolgenden Abbildung dargestellt.



Abbildung 3.2: Vergleich der spektralen Energiedichte von YAG und Saphir (Quelle [6])

In dieser Abbildung 3.2 ist die spektrale Energiedichte in pJ pro nm in Abhängigkeit von der Wellenlänge zu erkennen. Die YAG-Kurve (blau) liegt im nahinfraroten Spektralbereich deutlich über der Saphir-Kurve (grün). Daher wurde YAG als Material für die WLG gewählt.

Die im NOPA verbaute Linse 1 fokussiert die 800 nm Photonen in die YAG-Platte, damit Weißlicht entsteht. Die Linse 2 sorgt für eine Fokussierung des Weißlichtes im BBO 2. Der Nichtkollinearitätswinkel Ψ zwischen dem Weißlicht und dem 400 nm Pump sorgt für eine bessere Phasenanpassung, wie in dem Unterabschnitt 2.3.3 erläutert wurde. Der Nichtkollinearitätswinkel ist im Infraroten jedoch nicht mehr so entscheidend wie im Sichtbaren. Dieser Winkel Ψ ist es, der einen OPA (optischen parametrischen Verstärker) von einem NOPA (**nicht kollinearen** optischen parametrischen Verstärker) unterscheidet.

3.1.4 Verstärkungsstufe 1 des NOPAs

Die erste Verstärkungsstufe des NOPAs, oder kurz Stufe 1, läuft im BBO 2 ab. Hier passiert die in Unterabschnitt 2.3.1 erklärte DFG mit seed. Das in der Abbildung 2.9 dargestellte Licht mit der Frequenz ω_3 wird blockiert. Der mit dem 400 nm Pump überlappende Teil des Weißlichtes mit der Frequenz ω_2 wird durch den DFG-Prozess verstärkt und trifft auf den Spiegel S₅. Diese Frequenzen können verändert werden, indem der BBO 2 gekippt wird. Diesen Prozess nennt man Phasenanpassung, wie in dem Unterabschnitt 2.2.3 erläutert wurde. Passend dazu muss der zeitliche Überlapp verändert werden. Das geschieht über die Verschiebebühne, auf welcher ein konkaver Spiegel S₂ befestigt ist, der die 400 nm zum BBO hin fokussiert. Die Funktionsweise hiervon wurde in Unterabschnitt 2.3.4 erklärt. Die Linse 3 sorgt für eine Fokussierung des Strahls in Richtung des BBO 3.

3.1.5 Verstärkungsstufe 2 des NOPAs

In der zweiten Verstärkungsstufe im BBO 3 des NOPAs, oder kurz Stufe 2, findet so wie in der Stufe 1 DFG Typ-I mit seed statt. Im Gegensatz zur Stufe 1 werden hier jedoch die in der Stufe 1 verstärkten Nahinfrarotphotonen mit den 800 nm Photonen kollinear überlappt. Das nahinfrarote Licht aus der ersten Stufe hat eine Ausgangsleistung von maximal 2,2 mW. Die 185,1 mW des 800 nm Strahls verlaufen über die Spiegel S₇, S₈, S₉ und S₁₀. Auf diesem Strahlweg passieren die 800 nm Photonen eine $\frac{\lambda}{2}$ -Wellenplatte, welche die Polarisation des Lichtes um 90° dreht. Der Spiegel S₉ ist auf einer weiteren Verschiebebühne montiert, sodass der zeitliche Überlapp (siehe Unterabschnitt 2.3.4) zwischen den 800 nm Pump-Puls und dem nahinfraroten seed-Puls angepasst werden kann. Auch dieser Spiegel ist konkav, damit der 800 nm Strahl zum BBO 3 hin fokussiert wird. Um die Frequenz des aus dem NOPA austretenden Licht mit Phasenanpassung 2.2.3 zu verändern, kann auch der BBO 3 gekippt werden.

3.1.6 Typ der Phasenanpassung im NOPA

Wie in der Tabelle 2.2 abzulesen ist, können in dem negativ uniaxialen BBO 3 drei Typen der Phasenanpassung ablaufen. Diese hängen von den Polarisationen der einfallenden Strahlen ab. In unserem Fall laufen im NOPA folgende Prozesstypen ab:

Der 800 nm Strahl verlässt den Laser horizontal polarisiert, d.h. parallel zur Tischoberfläche. Das erzeugte Weißlicht hat demnach die gleiche Polarisation. Da im BBO 1 SHG Typ-I abläuft, sind die frequenzverdoppelten 400 nm Photonen vertikal polarisiert, d.h. senkrecht zum Tisch. Im BBO 2 überlappen also nun das horizontal polarisierte Weißlicht mit dem vertikal polarisierten 400 nm Pump. Da dort DFG Typ-I abläuft, ist der verstärkte idler horizontal polarisiert, also orthogonal zum Pump.

Um die Namensgebung von signal und idler zu verdeutlichen, folgt nun ein beispielhaftes Szenario:

Seien die in der Stufe 1 sich überlappenden Photonen 400 nm Pump mit den durch den zeitlichen Überlapp festgelegten 1200 nm des Weißlichtes. Dann entsteht durch Energieerhaltung bei der DFG sichtbares rotes Licht mit einer Frequenz von 600 nm, welches in der Abbildung 2.9 als ω_3 bezeichnet wird. Wegen der Impulserhaltung

und des Nichtkollinearitätswinkels Ψ verlassen diese Photonen den BBO 2 schräg nach oben, bevor sie blockiert werden. In der Stufe 2 überlappen sich nun die aus dem Weißlicht verstärkten 1200 nm, welche "idler" genannt werden, mit den 800 nm des Lasers, welche als "Pump" bezeichnet werden. Durch Energieerhaltung entstehen hier idler-Photonen mit einer Wellenlänge von 2400 nm. In der Abbildung 2.9 entspräche das dem Licht der Frequenz ω_3 . Das in der Abbildung 2.9 mit ω_2 bezeichnete Licht, also die Verstärkung des Nahinfraroten, heißt hier "signal".

3.1.7 Absorption von BBO und KTP

Der in Abbildung 3.1 dargestellte Aufbau kommt bei langwelliger Einstellung an seine Grenzen, da der BBO 3 beginnt das ausgesendete Licht zu absorbieren. Hier kann ein KTP mit der Summenformel KTiOPO₄ eingesetzt werden, da dieser erst im langwelligeren Spektralbereich beginnt zu absorbieren. Die Transmissionsspektren beider Materialien für einen Zentimeter Dicke sind in der nachfolgenden Abbildung mit Hilfe der Software "SNLO" (Quelle [21]) dargestellt worden.



Abbildung 3.3

In diesen beiden Abbildungen ist die Transmissivität des Materials in Abhängigkeit von der Wellenlänge dargestellt. Der wesentliche Unterschied zwischen dem BBO und dem KTP besteht darin, dass der BBO bei 3000 nm schon fast vollständig das Licht absorbiert, wohingegen der KTP fast vollständig transmittiert. Der KTP ist also für die langwelligen NOPA-Einstellungen besser geeignet.

4 Charakterisierung des NOPAs

In diesem Kapitel wird der NOPA charakterisiert werden. Hierfür werden die Ergebnisse verschiedenster Messungen vorgestellt und analysiert.

4.1 Allgemeine Vorgehensweise

Um den NOPA zu charakterisieren wurden eine Auto- und eine Kreuzkorrelation durchgeführt. Durch die Autokorrelation erhält man Informationen über die Pulsdauer des verwendeten Lasers . Außerdem wurden für verschiedene Kompressoreinstellungen des Lasers die Ausgangsleistungen des NOPAs untersucht. Mit Hilfe der Kreuzkorrelation können Informationen über die den NOPA verlassenden Infrarotstrahlen erlangt werden, wie z.B. die Pulsdauer. Die Kreuzkorrelation wurde für verschiedene Wellenlängen, d.h. für verschiedene NOPA-Einstellungen, untersucht.

Alle gemessenen Werte sind mit Unsicherheiten behaftet, welche mit Fehlerbalken an den jeweiligen Messpunkten dargestellt sind. Diese Fehlerbalken geben in allen Abbildungen das 95%-Konfidenzintervall an. Das bedeutet, dass der "wahre" Wert mit einer Wahrscheinlichkeit von 95% zwischen der oberen und unteren Grenze des Fehlerbalkens liegt. Diese numerischen Fehler sind jedoch oft so klein, dass sie innerhalb des verwendeten Symbols liegen und daher kaum zu erkennen sind.

4.2 Charakterisierung der IR-Pulse

In diesem Abschnitt werden die IR-Pulse auf ihre Parameter, d.h. Leistung, Bandbreite, Pulsdauer und Fourierlimit, untersucht werden.

4.2.1 IR-Spektrometer Rohdaten

Die Spektren der aus dem NOPA kommenden Pulse sehen wie folgt aus:



Abbildung 4.1: Rohdaten der IR-Strahlen aus dem NOPA

In der Abbildung 4.1 sind die normierten Spektren zu erkennen, welche der NO-PA für verschiedene Einstellungen aussendet. Die zusammengehörigen Paare von signal und idler sind in der gleichen Farbe dargestellt. Der Partner des kurzwelligsten gelben Peaks ist aus zwei Gründen nicht zu erkennen. Zum einen endet die Sensitivität des IR-Spektrometers laut Hersteller bei 2500 nm. Peaks bei größeren Wellenlängen können also nicht gemessen werden. Zum anderen beginnt der im NOPA (siehe Abbildung 3.1) verbaute BBO 3 das langwellige Licht zu absorbieren. Um dieses Problem zu umgehen, könnte man als nichtlinearen Kristall einen KTP verwenden, da dieser erst bei größeren Wellenlängen absorbiert. Die Absorptionsspektren der beiden Materialien wurden in den Abbildungen 3.3 (a) und 3.3 (b) dargestellt.

4.2.2 Bestimmung der NOPA Leistungen

Zu jedem der normierten Peaks in der Abbildung 4.1 wurde die Leistung gemessen. Dies geschah mit einer Diode ([22]), einem thermischen Messkopf ([24]) und einem Powermeter ([1]). Die Diode kann nur Wellenlängen bis 1800 nm registrieren, wohingegen der Messkopf jede der verwendeten Wellenlänge detektiert. Sowohl die erste Verstärkungsstufe im NOPA als auch den signal der zweiten Verstärkungsstufe konnten mit der Diode gemessen werden. Um nun die Leistung des idlers der zweiten Verstärkungsstufe zu messen, musste die gesamte ausgesendete Leistung mit dem Messkopf gemessen werden und anschließend davon die Leistung der ersten Verstärkungsstufe abgezogen werden. Diese Methode ist vor allem bei den in der Abbildung 4.1 schwarz dargestellten Peaks problematisch, da die Wellenlängen von signal und idler dicht zusammenliegen. Sollte die Wellenlänge des idlers die angesprochenen 1800 nm unterschreiten, dann wird er sowohl von der Diode als auch von dem thermischen Messkopf gemessen. Daher stellt die Differenz der Messwerte in diesem Fall nicht mehr die idler-Leistung dar.

Eine weitere Schwierigkeit besteht darin, dass die Ausgangsleistungen zwischen ca. 5% bis 10% um den angegebene Wert schwankten. Daher sind die Leistungen in den Abbildungen auch nicht mit einem numerischen Fehlerbalken versehen, da diese Fehler deutlich kleiner als die Schwankungen sind. In der nachfolgenden Abbildung sind die NOPA-Leistungen graphisch dargestellt.



Abbildung 4.2: Leistungen der IR-Strahlen aus dem NOPA

In dieser Abbildung 4.2 sind die NOPA-Leistungen in Abhängigkeit von der eingestellten Wellenlänge aufgetragen. Bei der ersten NOPA-Stufe ist eine klare abfallende Tendenz mit zunehmender Wellenlänge in der Leistung zu erkennen. Diesen Trend haben beide Messgeräte unabhängig voneinander bestätigt. Bei einer konstanten Photonenanzahl ist diese Tendenz auch zu erwarten, da sich die Photonenenergie antiproportional zur Wellenlänge verhält. Die zur zweiten Stufe gehörigen Leistungen lassen keinen klaren Trend erkennen. Bei den idler-Werten ist das auch nicht verwunderlich, da dort die ersten beiden Werte wegen des Sensitivitätsbereiches der Diode nicht genau bestimmt werden konnten. Daher sind diese beiden Messpunkte mit nicht ausgefüllten Symbolen dargestellt. Zusätzlich dazu hängt die Leistung der zweiten Verstärkungsstufe wesentlich von der Justierung des NOPAs ab. Da nicht alle Justierungen im gleichen Maße optimiert sind, überdecken diese Unterschiede einen möglicherweise zu beobachtenden Trend. Wie aus der Veröffentlichung von Bradler et al. [7] hervorgeht, ist, wie für die erste Stufe auch, für die zweite Stufe ein Leistungsabfall mit zunehmender Wellenlänge zu erwarten. Dies spiegelt die hier aufgenommene Datenlage jedoch nicht wider.

4.2.3 Bandbreite der IR-Pulse

Die Peaks in Abbildung 4.1 haben unterschiedliche Bandbreiten η , welche durch eine Gauß-Anpassung ermittelt wurden. Wie sich die Bandbreite mit der Wellenlänge verändert, ist in der nachfolgenden Abbildung graphisch dargestellt.



Abbildung 4.3: Bandbreiten der IR-Strahlen aus dem NOPA

In dieser Abbildung 4.3 sind die Bandbreiten der Laserpulse der ersten Verstärkungsstufe (gelb), des signals der zweiten Verstärkungsstufe (blau) und des idlers der zweiten Verstärkungsstufe (rot) dargestellt. Daraus lässt sich das bereits angesprochene Fourierlimit mit dem in der Tabelle 2.1 angeführten inversen Zusammenhang von Bandbreite und Pulsdauer berechnen. Hier ist jedoch zu beachten, dass dieser Zusammenhang für die Standardabweichung σ und nicht für FWHM gilt. Mit dem Zusammenhang aus der Gleichung 2.4 kann dies folgendermaßen umgerechnet werden:

$$\tau_{\sigma} = \frac{1}{\eta_{\text{FWHM}}} = \frac{\tau_{\text{FWHM}}}{2\sqrt{2 \ln(2)}}$$
$$\Rightarrow \eta_{\sigma} = \frac{2\sqrt{2 \ln(2)}}{\tau_{\text{FWHM}}} = \frac{\eta_{\text{FWHM}}}{2\sqrt{2 \ln(2)}}$$

Daraus folgt:

$$\tau_{\rm FWHM} = \frac{8 \ln(2)}{\eta_{\rm FWHM}} \tag{4.1}$$

Aus den mit dem IR-Spektrometer gemessenen Bandbreiten kann mit Hilfe der Gleichung 4.1 die fourierlimitierte Pulsdauer errechnet werden. Diese wird in der Abbildung 4.11 grün dargestellt werden. Nun gilt es, die tatsächliche IR-Pulsdauer zu berechnen und diese mit dem Fourierlimit zu vergleichen.

4.3 Kreuzkorrelationen für verschiedene NOPA-Wellenlängen

Das Ziel der Kreuzkorrelation ist es, die kombinierte Bandbreite und Pulsdauer der 800 nm Photonen mit den IR-Photonen aus dem NOPA zu untersuchen. Anschließend wird daraus mit Hilfe der Autokorrelation die reine IR-Pulsdauer bestimmt werden und mit dem Fourierlimit verglichen.

4.3.1 Bandbreite und Pulsdauer bei der XC

Für jede NOPA-Wellenlänge, d.h. alle Spektren aus der Abbildung 4.1, wurde eine Kreuzkorrelation durchgeführt. Bei dieser korrelierten der 800 nm Laserstrahl mit jeweils einem IR-Strahl aus dem NOPA. Dadurch konnten Pulsdauer und Bandbreite mit numerischen Unsicherheiten gemessen werden. Die Ergebnisse sind in der nächsten Abbildung dargestellt.



Abbildung 4.4: Bandbreite und Pulsdauer der XC

In dieser Abbildung sind die Bandbreiten für signal (blau) und idler (rot) in nm, sowie die Pulsdauern für signal (gelb) und idler (lila) in fs angegeben. Interessanterweise nehmen die Bandbreite η und die Pulsdauer τ bei einer Wellenlängenverschiebung in die gleiche Richtung beim signal ab. Im Gegensatz dazu verhalten sich beim idler Pulsdauer und Bandbreite gegenläufig. Dies wäre nach dem inversen Zusammenhang aus aus der Tabelle 2.1 auch zu erwarten. Dieser Zusammenhang bezieht sich nur auf die fourierlimitierte Pulsdauer. Die den NOPA verlassenden Pulse sind nicht fourierlimitiert, weil sie durch Spiegel und Linsen einen Chirp erhalten.

4.4 Autokorrelationen für verschiedene Kompressoreinstellungen

Um Informationen über die IR-Strahlen des NOPAs zu erhalten ist es wichtig zu wissen, wie lang die Pulse des den NOPA betreibenden Lasers sind. Außerdem ist interessant, wie sich die Pulsdauern und NOPA-Leistungen mit verschiedenen Kompressoreinstellungen ändern. Um diese Informationen zu erhalten wurde eine Autokorrelation durchgeführt.

4.4.1 Ergebnisse der Autokorrelation

Die Ergebnisse der Autokorrelation sind in der nachfolgenden Abbildung dargestellt.



Abbildung 4.5: Ergebnisse der Autokorrelation

In dieser Abbildung 4.5 sind die Pulsdauer (lila) und die NOPA-Leistungen der Stufe 1 (gelb), des signals Stufe 2 (blau) und des idlers Stufe 2 (rot) in Abhängigkeit von der Kompressoreinstellung des Lasers dargestellt. Der Laserkompressor wird mit einer gewissen Anzahl von "clicks" verstellt. Des Weiteren sind in der Abbildung zwei Messreihen dargestellt. Die erste Messreihe (gefüllte Symbole) ist in größeren Intervallen über einen weiteren Bereich gemessen worden. Die zweite Messreihe (leere Symbole) ist in einem engeren Bereich um den Punkt "0 clicks", d.h. um das Leistungsoptimum aufgenommen worden. Diese zweite Messreihe wurde drei Stunden nach der ersten angefertigt. Leider scheint diese Zeitspanne schon für thermische Verschiebungen in dem verwendeten Laser zu genügen, da vor allem bei den Pulsdauern Unterschiede zur ersten Messreihe auftreten.

4.4.2 Zusammenhang von Pulsdauer und NOPA-Leistung

Zu erwarten ist, dass das Maximum der NOPA-Leistung und das Minimum der Pulsdauer bei der gleichen Kompressoreinstellung liegen. Dies liegt daran, dass nichtlineare Prozesse mit höherer Intensität stark zunehmen. Daher sollte bei der kürzesten Pulsdauer, also der höchsten Energie pro Zeit, die NOPA-Leistung maximal sein. Das ist jedoch nur im idealisierten Fall so, da der Laserstrahl zur Autokorrelation weniger Spiegel und Linsen passiert als der Strahl, der den NO-PA erreicht. Die Dispersionsunterschiede der beiden Strahlwege sind demnach nicht vernachlässigbar klein. Daher erhalten die Pulse auf den beiden Strahlwegen unterschiedliche GDD (hier nachzulesen 2.1.3). Demnach müssen die Kompressoreinstellungen für beide Strahlwege unterschiedlich sein, um die Leistung oder Pulsdauer zu optimieren. Genau das ist in der Abbildung 4.5 zu erkennen, denn das Pulsdauerminimum liegt bei -10 clicks, wohingegen das Leistungsmaximum der Definition nach bei 0 clicks liegt.

4.4.3 Bestimmung der Pulsdauer des Lasers

Um die Pulsdauer des verwendeten Lasers (nachfolgend τ_{800}) zu bestimmen, muss die in der Abbildung 4.5 dargestellte Pulsdauer der Autokorrelation τ_{AC} durch $\sqrt{2}$ geteilt werden. Dies ist in der folgenden Abbildung dargestellt.



Abbildung 4.6: Zusammenhang zwischen τ_{AC} und τ_{800}

In der obigen Abbildung 4.6 ist der Zusammenhang der Pulsdauer der Autokorrelation und der des Lasers zu erkennen. Die mathematische Ursache hierfür lautet wie folgt:

$$I_{\rm AC} \sim \int I_{800}(t) \ I_{800}(t - \Delta t) \ dt$$
 (4.2)

Die Halbwertsbreite der Autokorrelationsintensität ist nach der Gleichung 4.2 um den Faktor $\sqrt{2}$ größer als bei den 800 nm Laserphotonen. Alle nachfolgenden Messungen wurden mit der Kompressoreinstellung der zweiten Messreihe bei 0 clicks durchgeführt. Demnach ist diese dazu gehörige Pulsdauer die relevante für alle späteren Rechnungen.

4.5 Überprüfung der Energieerhaltung

In beiden Stufen des NOPAs laufen DFG-Prozesse ab, wohingegen bei der Kreuzkorrelation SFG geschieht. Bei all diesen Prozessen muss Energieerhaltung gelten.

Diese Energieerhaltung kann an zwei Stellen überprüft werden. Zum einen kann die Kreuzkorrelationswellenlänge von XC-signal und XC-idler sowohl gemessen als auch berechnet werden. Zum anderen können die Infrarotwellenlängen von signal und idler gemessen und berechnet werden. Hier erwarten wir sehr große Übereinstimmung zwischen den gemessenen und berechneten Werten.

4.5.1 Überprüfung der Energieerhaltung bei der XC

Bei der XC findet SFG statt. Kreuzkorreliert werden die 800 nm Photonen aus dem Laser mit den IR-Photonen aus dem NOPA. Da aus dem NOPA signal und idler Photonen mit der Wellenlänge λ_{IR} austreten, werden auch bei der Kreuzkorrelation XC-signal und XC-idler zu sehen sein. Dies bedeutet, dass wir für die Kreuzkorrelationswellenlängen folgende Werte erwarten, wie aus der Energieerhaltung folgt.

$$\lambda_{\rm XC} = \frac{\lambda_{\rm IR} \cdot \lambda_{\rm 800}}{\lambda_{\rm IR} + \lambda_{\rm 800}}$$

Vergleicht man diese theoretisch erwarteten Werte mit den Messwerten, erhält man folgendes Ergebnis:



Abbildung 4.7: Energieerhaltung bei der XC, verwendetes Spektrometer (Quelle [3])

In dieser Abbildung sind die Kreuzkorrelationswellenlänge $\lambda_{\rm XC}$ von signal und idler in Abhängigkeit von den IR-Wellenlänge $\lambda_{\rm IR}$ des NOPAs dargestellt, welche ebenfalls in signal und idler zu unterscheiden sind. Es ist eine hervorragende Übereinstimmung zwischen den theoretischen Werten und den Messwerten zu erkennen.

4.5.2 Überprüfung der Energieerhaltung bei signal und idler im infraroten Spektralbereich

Hier wird nun die Energieerhaltung in der zweiten Verstärkungsstufe des NOPAs überprüft. Bei dieser finden, wie auch bei der ersten NOPA Stufe, DFG-Prozesse statt. Demnach besteht aufgrund der Energieerhaltung zwischen der signal- und idler-Wellenlänge folgender Zusammenhang:

$$\lambda_i = \frac{\lambda_s \cdot \lambda_{800}}{\lambda_s - \lambda_{800}}$$

Bei dem Vergleich dieser theoretischen Werte mit den Messwerten ist eine nicht vernachlässigbare Diskrepanz zu erkennen:



Abbildung 4.8: Energieerhaltung bei IR signal und idler

Dargestellt in dieser Abbildung ist die idler-Wellenlänge in Abhängigkeit von der signal-Wellenlänge. Hier gibt es klare Unterschiede zwischen den theoretischen Werten und den Messwerten. Da der verwendete Laser nachweislich Photonen mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm emittiert und die Energieerhaltung bei den Messungen mit einem anderen Spektrometer im sichtbaren Spektralbereich erfüllt ist, könnte der Fehler in der Kalibrierung des IR-Spektrometers (Quelle [2]) liegen. Sowohl eine Wellenlängenverschiebung von ca. +50 nm als auch eine Änderung der Linearität von ca. +3,5% würden zu einem zufriedenstellenden Ergebnis führen, wie in der nachfolgenden Abbildung gezeigt ist.



Abbildung 4.9

In diesen beiden Abbildung ist dargestellt, was eine Verschiebung der Messwerte um +50 nm oder um +3,5% bewirken würde. Die hellblau Linie kennzeichnet den Fit der ursprünglichen Daten. Um herauszufinden, ob eine fehlerhafte Kalibrierung vorliegt, wurde das IR-Spektrometer erneut kalibriert. Hierfür wurde eine Kalibrierungslampe des Herstellers verwendet, welche Licht bekannter Wellenlänge emittiert. Die Kalibrierung hat folgendes ergeben:



Abbildung 4.10: Kalibrierung des IR-Spektrometers

In dieser Abbildung ist die durch die Kalibrierungslampe erwartete Wellenlänge gegen die gemessene Wellenlänge aufgetragen. Bei bereits perfekter Kalibrierung ist eine Gerade (orange) mit der Steigung 1 zu erwarten. Die Messwerte liegen fast perfekt auf dieser Geraden, was bedeutet, dass das IR-Spektrometer bereits gut kalibriert war. Das ist sehr überraschend, da so ungeklärt bleibt, was die Verschiebung der Daten in der Abbildung 4.8 verursachte.

4.6 Berechnung der IR-Pulsdauer

Mit Hilfe der Autokorrelation wurde die Pulsdauer τ_{800} des Lasers bestimmt und mit Hilfe der Kreuzkorrelation wurde die Kreuzkorrelationsbreite τ_{XC} bestimmt.

Diese Kreuzkorrelationsbreite berechnet sich wie folgt:

$$\tau_{\rm XC} = \sqrt{\tau_{800}^2 + \tau_{\rm IR}^2} \tag{4.3}$$

Somit ergibt sich für die Pulsdauer τ_{IR} des IR-Strahls aus dem NOPA folgende Formel:

$$\tau_{\rm IR} = \sqrt{\tau_{XC}^2 - \tau_{800}^2} \tag{4.4}$$

Das bedeutet, dass $\tau_{\rm XC}$ stets größer als τ_{800} sein muss, da sonst $\tau_{\rm IR}$ komplexe Werte annähme. Leider spiegelt sich das in den nachfolgend abgebildeten Messwerten so nicht wider.



Abbildung 4.11: Vergleich der vorliegenden Pulsdauern

In dieser Abbildung 4.11 sind die Pulsdauern des XC-signals (blau), des XC-idlers (rot), die Pulsdauer des Lasers (gelb) und die fourierlimitierte Pulsdauer (grün) gegen die IR-Wellenlänge aufgetragen. Die Werte für τ_{800} sind konstant, da dieser Wert aus der zweiten Autokorrelationsmessung entstand und wellenlängenunabhängig ist. Leider ist dieser Wert oft größer als τ_{XC} . Das ist sehr seltsam, daher können keine Werte für τ_{IR} berechnet werden. Es ist jedoch zu erkennen, dass die Werte für τ_{800} und τ_{XC} dicht beieinander liegen. Nach der Gleichung 4.3 ließe das die Vermutung zu, dass die Pulsdauern der Infrarotstrahlen aus dem NOPA deutlich kürzer als die Pulsdauer der 800 nm Photonen seien. Somit könnten sich die IR-Pulsdauern durchaus im Bereich des berechneten Fourierlimits bewegen.

Obwohl eine Berechnung der IR-Pulsdauern nicht möglich war, zeigt der nächste Unterabschnitt nichtsdestoweniger, wie man von den τ_{IR} -Werten die Unsicherheit berechnen würde.

4.6.1 Gaußsche Fehlerfortpflanzung der IR-Pulsdauern

Als Vorbereitung für die Gaußsche Fehlerfortpflanzung wird die Formel 4.4 einmal nach τ_{800} und einmal nach τ_{XC} abgeleitet werden:

$$\frac{\partial \tau_{\text{IR}}}{\partial \tau_{800}} = \frac{1}{2\sqrt{\tau_{XC}^2 - \tau_{800}^2}} (-2 \tau_{800})$$
$$= \frac{-\tau_{800}}{\sqrt{\tau_{XC}^2 - \tau_{800}^2}} =: a$$

$$\frac{\partial \tau_{\rm IR}}{\partial \tau_{\rm XC}} = \frac{1}{2\sqrt{\tau_{XC}^2 - \tau_{800}^2}} 2 \tau_{\rm XC}$$
$$= \frac{\tau_{\rm XC}}{\sqrt{\tau_{XC}^2 - \tau_{800}^2}} =: b$$

Die eben definierten Koeffizienten a und b müssen wie folgt verwendet werden, um die Ungenauigkeit U_{IR} der Pulsdauer des IR-Pulses berechnen zu können:

$$U_{\rm IR} = \sqrt{(a \, U_{800})^2 + (b \, U_{\rm XC})^2} \tag{4.5}$$

Für U_{800} gilt:

$$U_{800} = \frac{U_{\rm AC}}{\sqrt{2}}$$

Die Messwerte aus der Abbildung 4.11 müssen offenbar weitere Fehler als die numerischen enthalten, da eine Pulsdauer der IR-Pulse existieren muss. Eine mögliche Fehlerquelle ist die bzgl. der Abbildung 4.5 bereits angesprochene thermische Verschiebung des Lasers. Das tauchte in diesem Fall schon nach drei Stunden auf. Zwischen der Auto- und der Kreuzkorrelation sind jedoch mehrere Tage vergangen. In dieser Zeitspanne wurde der Laser sogar ausgeschaltet. So könnte es passiert sein, dass sich der Laserkompressor verstellt hat und so eine kürzere Pulsdauer τ_{800} des Lasers für die Kreuzkorrelation als für die Autokorrelation verwendet wurde.

4.6.2 Gaußsche Fehlerfortpflanzung des fourierlimitierten Pulses

Unter Verwendung des gleichen Verfahrens wie bei der Unsicherheit von τ_{IR} muss die Gleichung 4.1 nach η_{FWHM} abgeleitet werden:

$$\frac{\partial \tau_{\rm FWHM}}{\partial \eta_{\rm FWHM}} = -\frac{8\ln(2)}{\eta_{\rm FWHM}^2} =: c \tag{4.6}$$

Mit Hilfe dieses Koeffizienten
 cergibt sich die Unsicherheit der fourierlimitierten Puls
dauer $U_{\tau_{\rm FWHM}}$ wie folgt:

$$U_{ au_{
m FWHM}} = \sqrt{(c \ U_{\eta_{
m FWHM}})^2} = c \ U_{\eta_{
m FWHM}}$$

Diese numerischen Fehler wurden in der Abbildung 4.11 an den grünen Graphen der fourierlimitierten Pulsdauer angefügt. Wie zu erkennen ist, sind die Fehlerbalken kaum sichtbar.

Um den in den bestehenden Aufbau integrierten NOPA zu testen, wurde ein Anrege-Abfrage-Experiment durchgeführt. In diesem Kapitel wird erklärt werden, wie ein solches Anrege-Abfrage-Experiment aufgebaut ist. Anschließend wird das sog. Zwei-Temperatur-Modell vorgestellt werden, um damit das Signal einer Messung zu interpretieren.

5.1 Anrege-Abfrage-Experiment

Bei einem Anrege-Abfrage-Experiment werden zwei Laserpulse mit einem Zeitversatz auf eine Probe fokussiert. Der Anregepuls erzeugt eine spezifische Anregung der Probe, z.B. Inter- oder Intrabandübergänge der Elektronen oder Phononenanregungen. Diese spezifischen Anregungen verändern dann Größen wie die Reflektivität, die Transmissivität oder den Brechnungsindex der Probe. Die Vermessung dieser Eigenschaftsveränderungen durch den Abfragepuls erlauben Rückschlüsse auf die zugrundeliegenden physikalischen Prozesse, welche mit Hilfe der Verschiebebühne zeitlich aufgelöst werden können. Ein solcher schematischer Aufbau ist in der nachfolgenden Abbildung dargestellt:



Abbildung 5.1: Allgemeiner Aufbau eines Anrege-Abfrage-Experiments

In dem in dieser Arbeit durchgeführten Experiment wurde die Transmissivitätsänderung $\frac{\Delta T}{T_0}$ gemessen. Außerdem läuft der Anregepuls und nicht der Abfragepuls über die Verschiebebühne, da so das Signal bei Erschütterungen durch die Verschiebung nicht über den Detektor wandert.

5.1.1 Zwei-Temperatur-Modell

Um die ablaufenden physikalischen Prozesse bei einem Anrege-Abfrage-Experiment zu verstehen, kann das sog. Zwei-Temperatur-Modell herangezogen werden. Bei diesem handelt es sich um eine Modellierung, welche die Kopplung von Elektronen und Phononen berücksichtigt. Bei einem Anrege-Abfrage-Experiment werden die Leitungsbandelektronen angeregt, und nach einer gewissen Thermalisierungszeit von typischerweise wenigen 100 fs, besitzen sie eine deutlich erhöhte Temperatur. Dies ist in der Form eines schnellen Anstiegs in der Transmissionsmessung zu erkennen, da sich das Transmissionsverhalten des untersuchten Materials bei Erwärmungen durch die starke Umverteilung der Leitungsbandelektronen und die damit verbundenen Modifikationen der optischen Konstanten verändert. Die Elektronen und die Phononen weisen jeweils unterschiedliche Temperaturen auf, weshalb man dieses Modell als Zwei-Temperatur-Modell bezeichnet. Die erwärmten Elektronen geben anschließend ihre Wärme an die Phononen des Goldes ab. Dieser Prozess verursacht einen näherungsweise exponentiellen Abfall der Änderung des Transmissionssignals, da die Phononen im Falle von Gold vorrangig sensitiv auf die Temperaturänderungen des Elektronengases sind. (Quelle [13])

5.1.2 Ergebnisse der Anrege-Abfrage-Messungen

Die Durchführung eines ersten Anrege-Abfrage-Experiments wurde an einer 20 nm dicken Goldschicht auf einem Siliziumdioxid (SiO₂) Substrat durchgeführt. Die Anregewellenlänge des signals betrug 1260 nm und die Anregewellenlänge des idlers betrug 2200 nm.



Abbildung 5.2: Erste pump-probe-Messung von 20 nm Au auf SiO₂

In dieser Abbildung 5.2 ist die Änderung der Transitivität der Probe in Abhängigkeit

des relativen Zeitversatzes vom Anrege- und Abfragepuls dargestellt. Der schnelle Anstieg bei ca. $\Delta t = 0$ kommt durch die Anregung der Elektronen zustande. Diese Anregung führt zu einer Änderung der dielektrischen Funktion und somit zu einer Änderung des Brechungsindexes. Daher ändert sich der Transmissionsgrad nach dem Anregen der Probe. Die Elektronen geben im Laufe mehrerer Pikosekunden ihre Wärme an die Phononen des Festkörpers ab. Erkennbar ist dieser Prozess an dem näherungsweise exponentiellen Abfall in der Transmissivitätsänderung. Dieser exponentielle Abfall ist jedoch nur eine Näherung, da angenommen wird, dass die Wärmekapazität der Elektronen temperaturunabhängig wäre. Bei den verwendeten Wärmekapazität pro Volumen. (Quelle [14]) Bei Raumtemperatur von 300 K gilt:

$$C_{e}(T) = \gamma T_{e}$$

$$\approx C_{e}(300 \text{ K}) = 71 \frac{\text{J}}{\text{m}^{3} \text{ K}^{2}} 300 \text{ K} = \text{const.} \qquad |C_{e} << C_{\text{ph}}|$$

$$\Rightarrow \tau = \frac{C_{e}}{g} = \frac{21, 3 \cdot 10^{3} \frac{\text{J}}{\text{m}^{3} \text{K}}}{2, 1 \cdot 10^{16} \frac{\text{W}}{\text{m}^{3} \text{K}}} \approx 1 \text{ ps}$$

Hierbei ist γ die Sommerfeldkonstante und g die Elektron-Phonon Kopplungskonstante. Die Fluenz F des Anregepulses betrug 1,9 $\frac{mJ}{cm^2}$. Der hier errechnete Wert für die Abklingzeit τ des Signals kann mit dem gemessenen τ_m verglichen werden. Dafür wurden an die Graphen aus Abbildung 5.2 Exponentialfunktionen angelegt und damit für signal und idler die Abklingzeit bestimmt. Die Messungen ergaben:

$$\tau_{m,s} = 2,783 \text{ ps} \pm 0,099 \text{ ps}$$

 $\tau_{m,i} = 2,669 \text{ ps} \pm 0,146 \text{ ps}$
 $\tau_m \approx 3 \tau$

Die gemessene Abklingzeit ist also ca. dreimal größer als der theoretisch erwartete Wert. Diese Abweichung entsteht durch die Näherung, dass sich die Wärmekapazität der Elektronen mit der Temperatur nicht verändere. Diese Näherung ist sehr ungenau, da durch den Anregepuls die Elektronen stark erwärmt werden. Außerdem suggerieren die angegebenen numerischen Unsicherheiten als 95%-Konfidenzintervall einen zu kleinen Fehler, da die angesprochenen Näherungen dort keine Berücksichtigung finden. Zusätzlich dazu sind die Werte im Rahmen ihrer Unsicherheiten konsistent. Das deutet daraufhin, dass die beobachteten Effekte bei der Anregung durch signal und idler gleichen Ursprungs sind. Bei beiden geben die heißen Elektronen ihre Wärme an die Phononen ab. Neben dem exponentiellen Abfall ist in der Abbildung 5.2 auch eine Oszillation der Transmissivität ab ca. 10 ps zu erkennen. Um diese Oszillation genauer zu untersuchen, wurde eine zweite Messung über einen längeren Zeitraum aufgenommen:



Abbildung 5.3: Zweite pump-probe-Messung von 20 nm Au

Auch hier ist die Änderung der Transmissivität der Probe in Abhängigkeit des relativen Zeitversatzes vom Anrege- und Abfragepuls dargestellt. In der Transmissivitätsänderung des signal-Abfragepulses ist zwischen 20 ps und 80 ps eine deutliche Oszillation zu erkennen, welche auch beim Strahl des idlers zu erahnen ist. Um die Periodendauer dieser Schwingung herauszufinden, wurde die Oszillation zwischen 20 ps und 100 ps fouriertransformiert. Das Ergebnis davon ist in der nachfolgenden Abbildung dargestellt:



Abbildung 5.4: Fourier-Transformation der Oszillation

In dieser Abbildung 5.4 ist die Amplitude in Abhängigkeit von der Frequenz dargestellt. Da es sich um die Fourier-Transformation einer exponentiell gedämpften Oszillation handelt, wurde der erkennbare Peak durch eine Lorentzkurve approximiert. Die Zentralfrequenz dieses Peaks, d.h. die Oszillationsfrequenz der Schwingung aus der Abbildung 5.3, liegt bei ca. 66 GHz, was einer Periodendauer T von rund 15 ps entspricht. Der vermutete Ursprung dieser Oszillation wird im nächsten Unterabschnitt behandelt.

5.1.3 Interpretation der beobachteten Oszillation

Typischerweise kann die beobachtete Oszillation zwei Ursachen haben. Zum einen kann die Ursache eine Schallwelle im Substrat sein, welche durch die Schichtdickenoszillation, d.h. eine periodische Expansion und Kompression, der Goldschicht hervorgerufen wird. Dieses Phänomen wird bildlich auch als Atmung bezeichnet. Zum anderen könnte ein mit der Brillouin-Streuung verbundener Mechanismus die Oszillation erklären. Bei der Brillouin-Streuung wird das einfallende Licht an der akustischen Schallwelle im Substrat gestreut. Wenn mindestens zwei Teilstrahlen dieses Lichtes mit dem an der Oberfläche reflektierten interferieren, dann würde das zu einer Oszillation des Materials führen.

5.1.4 Interpretation als Brillouin-Streuung

Um Brillouin-Streuung zu messen, ist üblicherweise eine Reflektionsmessung sensitiver als die hier verwendete Transmissionsmessung. Allerdings kann auch bei der Transmissionsmessung ein solches Signal erkennbar sein. Sofern es sich um Brillouin-Streuung handelt, berechnet sich die Periodendauer T des Signals wie folgt: (Quelle [5])

$$T = \frac{\lambda}{2c_s n(\lambda)\sin(\theta)}$$
(5.1)

Hierbei ist c_s die Schallgeschwindigkeit in SiO₂ (Quelle [20]), $n(\lambda)$ der Brechungsindex von SiO₂ und θ Auftreffwinkel des Strahls auf die Probe. Bei 20 °C und einer Wellenlänge von 1260 nm beträgt der Brechungsindex von SiO₂ 1,45 und bei 2200 nm beträgt er 1,44. (Quelle [16]) In dem verwendeten Aufbau traf der Strahl senkrecht, d.h. im 90°-Winkel, auf die Probe. Für die signal- und idler-Abfragestrahlen ergeben sich somit folgende Periodendauern:

$$T_s = 72, 29 \text{ ps}$$

 $T_i = 127, 10 \text{ ps}$

Diese Periodendauern sind deutlich größer als die berechnete Periodendauer von ca. 15 ps. Außerdem verändert sich nach der obigen Formel 5.1 die Periodendauer mit der Wellenlänge. Unter der Annahme, dass der Brechungsindex von SiO₂ unabhängig von der Wellenlänge ist, wäre die Periodendauer proportional zur Wellenlänge. Die Oszillationsperioden von signal und idler sehen in den Abbildungen 5.2 und 5.3 jedoch ungefähr gleich aus. Daher handelt es sich bei der Ursache der beobachteten Schwingung nicht um Brillouin-Streuung.

5.1.5 Interpretation als Schichtdickenoszillation der Goldschicht

Da die Brillouin-Streuung nicht die Ursache der Oszillation darstellt, könnte die Schichtdickenoszillation der Goldschicht die Ursache sein. Wenn die Elektronen in dem Material durch den Anregestrahl erwärmt werden, dann entsteht ein innerer Druck in dem Material. Von den Grenz- und Oberflächen des Goldes werden Expansionswellen ausgesendet. Diese bewegen sich durch die Goldschicht und werden an den Rändern hin und her reflektiert, was insgesamt zu einer Schichtdickenoszillation führt. Diese Schwingung bildet sich aus, wenn die akustische Anpassung von der Probe und dem Substrat schlecht ist, d.h. der Reflektionskoeffizient an der Grenzschicht groß ist. Der Reflektionskoeffizient R_I der Intensität berechnet sich wie folgt: (Quelle [15])

$$R_{I} = \left(\frac{\rho_{2}c_{2} - \rho_{1}c_{1}}{\rho_{2}c_{2} + \rho_{1}c_{1}}\right)^{2} \qquad |z_{i} = \rho_{i}c_{i}$$

$$R_{I} = \left(\frac{z_{2} - z_{1}}{z_{2} + z_{1}}\right)^{2} \qquad |R_{I} = R_{A}^{2}$$

$$R_{A} = \frac{z_{2} - z_{1}}{z_{2} + z_{1}}$$

Bei R_A handelt es sich um den Reflektionskoeffizenten der Amplitude und z ist die akustische Impedanz des Materials. Mittels folgender Werte ergibt sich für die

Reflektivität an der Grenzschicht zwischen dem SiO₂ (1) und dem Au (2):

$$\rho_{1} = (2, 19 - 2, 66) \frac{g}{cm^{3}} \qquad (Quelle [11])$$

$$\overline{\rho}_{1} = 2, 425 \frac{g}{cm^{3}}$$

$$c_{1} = 6010 \frac{m}{s} \qquad (Quelle [20])$$

$$\Rightarrow z_{1} \approx 14, 57 \cdot 10^{3} \frac{g m}{cm^{3} s}$$

$$\rho_{2} = 19, 32 \frac{g}{cm^{3}} \qquad (Quelle [10])$$

$$c_{2} = 3447 \frac{m}{s} \qquad (Quelle [23])$$

$$\Rightarrow z_{2} \approx 66, 60 \cdot 10^{3} \frac{g m}{cm^{3} s}$$

$$\Rightarrow R_{A} = \frac{z_{2} - z_{1}}{z_{2} + z_{1}} \approx 0, 64$$

Der Reflektionskoeffizient von 64% ist ausreichend groß, damit es zu mehreren Schichtdickenoszillationen in dem Material kommen kann. Das ist konsistent mit den aufgenommenen Daten.

Diese Information kann dafür verwendet werden, um die mit 20 nm angegebene Dicke *d* der Goldschicht zu überprüfen. Die Schallwellen bewegen sich während einer Schwingungsperiode entlang der doppelten Dicke der Probe mit konstanter Geschwindigkeit. Diese Geschwindigkeit ist genau die Schallgeschwindigkeit c_s des Goldes entlang der entsprechenden Ausbreitungsrichtung. (Quelle [23])

$$T = \frac{2d}{c_s}$$
$$\Rightarrow d = \frac{c_s T}{2} = \frac{3447 \text{ m}}{2} \text{ 15 ps}}{2} \approx 26 \text{ nm}$$

Es zeigt sich, dass an der untersuchten Stelle die Probe etwas dicker als 20 nm ist. Der berechnete Wert ist jedoch mit Unsicherheiten behaftet, da eine [111]-Ausbreitungsrichtung angenommen wurde. Außerdem neigt Gold zu Inselwachstum, wodurch Bereiche von Bergen und Tälern entstehen. Die Probe ist also an verschiedenen Stellen unterschiedlich dick. Daher handelt es sich bei den 26 nm um eine mittlere Schichtdicke.

Kurze Pulse sind bei einem Anrege-Abfrage-Experiment von Vorteil, weil so die Zeitauflösung der Messung erhöht wird. Eine mögliche Verbesserung des Aufbaus bestünde darin, den Chirp der IR-Pulse zu kompensieren. Hierfür benötigt man ein Element mit negativer Dispersion, wie in dem Unterabschnitt 2.1.4 erklärt wurde. Um die IR-Pulse zu kompensieren, könnte Saphir verwendet werden, denn dieses Material zeigt eine negative GVD im Infraroten auf.

6.1 Chirp des IR-Pulses mit Saphir kompensieren

Um den Chirp der IR-Pulse zu berechnen, muss die Pulsdauer der IR-Pulse bekannt sein. Diese konnte jedoch nicht bestimmt werden, da vermutlich thermische Schwankungen in dem Laser zu inkonsistenten Messwerten geführt haben. Demnach wäre es ein weiterer wichtiger Schritt, dass Verhalten des Lasers genauer zu untersuchen und falls nötig, einer vollständigen Justage zu unterziehen.

Will man den Chirp berechnen, so muss man die fourierlimitierte Pulsdauer mit der gemessenen vergleichen. Dabei nutzt man folgenden Zusammenhang aus der Tabelle 2.1:

$$au_{
m IR} = au_F \sqrt{1 + eta^2 \eta^4}$$

 $\Rightarrow au_{
m IR}^2 = rac{1}{\eta^2} + eta^2 \ \eta^2$

Daraus ergibt sich für die quadratische spektrale Phase β :

$$\beta^{2} = \frac{\tau_{\rm IR}^{2} - \frac{1}{\eta^{2}}}{\eta^{2}} = (\tau_{\rm IR}^{2} - \tau_{F}^{2})\tau_{F}^{2}$$
(6.1)

Es ist zu beachten, dass diese
s β sich auf in Standardabweichungen angegebene Pulsdauern bezieht.

Mit Hilfe dieser Gleichung 6.1 kann der lineare Chirpparameter γ über folgenden Zusammenhang ausgerechnet werden:

$$\begin{split} \gamma &= \beta \; \frac{\eta^2}{\tau_{\rm IR}^2} \\ &= \frac{\beta}{\tau_F^4 \; (1 + \beta^2 \; \eta^4)} \end{split}$$

Durch die Stärke der Abweichung des IR-Pulses vom Fourierlimit können Rückschlüsse auf den Chirp gezogen werden. Dadurch ist berechenbar, wie dick eine Saphirplatte mit negativer GVD sein müsste, um diesen Chirp zu kompensieren. Solch eine Berechnung funktioniert wie folgt:

Folgenden Wert nimmt die negative GVD von Saphir bei 2000 nm an: (Quelle [17])

$$\text{GVD} = -121.71 \ \frac{fs^2}{mm}$$

Multipliziert man diese GVD mit der Propagationslänge Δz durch das Material, erhält man das benötigte negative β_{Saphir} . Um den Chirp des IR-Pulses zu kompensieren, muss folgendes gelten:

$$\beta + \beta_{\text{Saphir}} = 0$$

Mit Hilfe des Zusammenhangs 2.9 erhält man für die benötigte Dicke Δz des Saphirs:

$$\Delta z = \frac{\beta}{\text{GVD}}$$

Das β in dieser Formel ist das mit der Gleichung 6.1 berechnete.

Im Verlauf dieser Arbeit wurde ein lange ungenutzter und damit nicht mehr funktionsfähiger NOPA neu justiert und aufgebaut und damit funktionsfähig gemacht. Anschließend wurde der NOPA charakterisiert und in den bestehenden Anrege-Abfrage-Aufbau integriert. Es wurde auch gezeigt, dass sich mit den Nahinfrarotphotonen aus dem NOPA ein Anrege-Abfrage-Experiment realisieren lässt. Dafür wurde eine dünne Goldschicht untersucht, an welcher sich eine Schichtdickenoszillation beobachten ließ. Dieser Aufbau könnte nun Anwendung in der Untersuchung des photoinduzierten Isolator-Metall-Übergangs von z.B. Vanadiumoxid (VO₂) (Quelle [18]) oder Niobdioxid (NbO₂) (Quelle [19]) finden.

Allerdings sind einige Fragen ungeklärt geblieben. Hierzu zählen die vermutlichen thermischen Verschiebungen des Lasers, welche zu unterschiedlichen Pulsdauern bei der Autokorrelation geführt haben. Dies könnte die Ursache für die nicht Bestimmbarkeit der IR-Pulsdauern sein. Hinzu kommen die Diskrepanzen bei den gemessenen IR-Wellenlängen im Vergleich zu den erwarteten durch Energieerhaltung. Diese Probleme sollten vor Anwendungen durch erneutes genaues Messen behoben werden.

Literatur

- [1] 843-R Economy Handheld Laser Power Meter. URL: https://www.newport.com/f/843-reconomical-handheld-laser-power-meter (besucht am 12. 09. 2022) (siehe Seite 28).
- [2] AVANTES. AvaSpec-NIR256-2.5-HSC-EVO. URL: https://www.avantes.com/products/ spectrometers/nirline/avaspec-nir256-512-2-5-hsc-evo/ (besucht am 20.09.2022) (siehe Seite 37).
- [3] AVANTES. Multi-Channel Spectrometers. URL: https://www.avantes.com/products/ spectrometers/starline/multi-channel-spectrometers/ (besucht am 20.09.2022) (siehe Seite 36).
- [4] GC Bhar, U Chatterjee und S Das. Tunable near-infrared radiation by difference frequency mixing in beta barium borate crystal. Applied physics letters 58:3 (1991), 231–233 (siehe Seite 25).
- [5] Andre Bojahr, Marc Herzog, Steffen Mitzscherling, Lena Maerten, Daniel Schick, J Goldshteyn, Wolfram Leitenberger, R Shayduk, P Gaal und Matias Bargheer. Brillouin scattering of visible and hard X-ray photons from optically synthesized phonon wavepackets. Optics express 21:18 (2013), 21188–21197 (siehe Seite 47).
- [6] Maximilian Bradler, Peter Baum und Eberhard Riedle. Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-μJ pump pulses. Applied Physics B 97:3 (2009), 561–574 (siehe Seite 23).
- [7] Maximilian Bradler, Christian Homann und Eberhard Riedle. Mid-IR femtosecond pulse generation on the microjoule level up to 5 μm at high repetition rates. Optics letters 36:21 (2011), 4212–4214 (siehe Seite 21, 30).
- [8] N Demirdöven, M Khalil, O Golonzka und A Tokmakoff. Dispersion compensation with optical materials for compression of intense sub-100-fs mid-infrared pulses. Optics letters 27:6 (2002), 433–435 (siehe Seite 8).
- [9] David Eimerl, L Davis, Stephan Velsko, EK Graham und A Zalkin. Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate. *Journal of applied physics* 62:5 (1987), 1968–1983 (siehe Seite 10).
- [10] NN Greenwood und A Earnshaw. Chemie der Elemente VCH. Verlag, Weinheim, 1988 (siehe Seite 49).
- [11] Krug H. Siliciumdioxid. URL: https://roempp.thieme.de/lexicon/RD-19-02447 (besucht am 20.09.2022) (siehe Seite 49).

- [12] Göran Hansson, Håkan Karlsson, Shunhua Wang und Fredrik Laurell. Transmission measurements in KTP and isomorphic compounds. Applied optics 39:27 (2000), 5058–5069 (siehe Seite 25).
- [13] Tal Heilpern, Manoj Manjare, Alexander O Govorov, Gary P Wiederrecht, Stephen K Gray und Hayk Harutyunyan. Determination of hot carrier energy distributions from inversion of ultrafast pump-probe reflectivity measurements. Nature communications 9:1 (2018), 1–6 (siehe Seite 44).
- [14] J Hohlfeld, S-S Wellershoff, J Güdde, U Conrad, V Jähnke und E Matthias. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. *Chemical Physics* 251:1-3 (2000), 237–258 (siehe Seite 45).
- [15] Lev Davidovich Landau und Evgenii Mikhailovich Lifshitz. Fluid Mechanics: Landau and Lifshitz: Course of Theoretical Physics, Volume 6. Bd. 6. Elsevier, 2013 (siehe Seite 48).
- [16] Ian H Malitson. Interspecimen comparison of the refractive index of fused silica. Josa 55:10 (1965), 1205–1209 (siehe Seite 47).
- [17] Irving H Malitson und Marilyn J Dodge. Refractive-index and birefringence of synthetic sapphire. In: Journal Of The Optical Society Of America. Bd. 62. 11. AMER INST PHYSICS CIRCULATION FULFILLMENT DIV, 500 SUNNYSIDE BLVD, WOODBURY 1972, 1405–1405 (siehe Seite 52).
- [18] Vance R Morrison, Robert P Chatelain, Kunal L Tiwari, Ali Hendaoui, Andrew Bruhács, Mohamed Chaker und Bradley J Siwick. A photoinduced metal-like phase of monoclinic VO2 revealed by ultrafast electron diffraction. Science 346:6208 (2014), 445–448 (siehe Seite 53).
- [19] Denis Music, Andreas M Krause und Pär AT Olsson. Theoretical and Experimental Aspects of Current and Future Research on NbO2 Thin Film Devices. *Crystals* 11:2 (2021), 217 (siehe Seite 53).
- [20] Jimena Olivares, Enrique Wegmann, Jose Capilla, Enrique Iborra, Marta Clement, Lucia Vergara und Robert Aigner. Sputtered SiO 2 as low acoustic impedance material for Bragg mirror fabrication in BAW resonators. In: 2009 IEEE International Frequency Control Symposium Joint with the 22nd European Frequency and Time forum. IEEE. 2009, 316–321 (siehe Seite 47, 49).
- [21] AS-Photonics. *SNLO*. URL: https://as-photonics.com/products/snlo/ (besucht am 14.09.2022) (siehe Seite 25).
- [22] Power Detector, Wand-Style, Ge, 780-1800 nm, OD3 Attenuator, DB15. URL: https://www.newport.com/p/818-ST2-IR--DB (besucht am 12.09.2022) (siehe Seite 28).
- [23] Daniel Royer und Eugene Dieulesaint. Elastic waves in solids I: Free and guided propagation. Springer Science & Business Media, 1999 (siehe Seite 49).

- [24] *Thermopile Sensor, 10 W, 16 mm, 0.19-11 μm.* URL: https://www.newport.com/p/919P-010-16 (besucht am 12. 09. 2022) (siehe Seite 28).
- [25] Daniel Wegkamp. Schnelle Elektronendynamiken an Grenzflächen untersucht mit einer NOPA-basierenden Femtosekunden- Lichtquelle, (2009) (siehe Seite 18).

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Bachelorarbeit ohne fremde Hilfe verfasst, mehr als die genannten Quellen nicht benutzt und die den Quellen wörtlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Berlin, 22. September 2022

Florian Baltrusch