

Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen mittels  
Einzelschuss - VAMPIRE



Dissertation  
zur  
Erlangung des akademischen Grades  
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)  
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Universität Rostock

vorgelegt von  
Karsten Sperlich, geb. am 26.10.1982 in Rostock

Rostock im Dezember 2016

urn:nbn:de:gbv:28-diss2018-0024-0

Gutacher:

Prof. Dr. Heinrich Stolz, Universität Rostock

Prof. Dr. Alexander Heisterkamp, Leibniz Universität Hannover

Datum der Einreichung: 21.12.2016

Datum des Kolloquiums: 17.07.2017

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Beschreibung von Laserpulsen . . . . .	3
2.2	Lineare Effekte . . . . .	4
2.2.1	Brechungsindex, Dispersion, Phasen- und Gruppengeschwindigkeit . . . .	4
2.2.2	Gruppengeschwindigkeitsdispersion . . . . .	5
2.2.3	Gruppenverzögerungsdispersion . . . . .	6
2.3	Nichtlineare Optik . . . . .	7
2.3.1	Generation der zweiten Harmonischen und von Summenfrequenzen . . . .	7
2.3.2	Selbstphasenmodulation . . . . .	8
2.3.3	Phasenanpassung in Kristallen . . . . .	8
2.4	Digitale Kameras . . . . .	9
2.4.1	Möglichkeiten des Ladungstransfers . . . . .	10
2.4.2	Beleuchtungsart . . . . .	11
2.4.3	Elektronenvervielfachung . . . . .	12
2.5	Spektrometer . . . . .	13
2.5.1	Czerny-Turner-Spektrometer . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Verfahren zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse</b>	<b>15</b>
3.1	Interferometrische Verfahren . . . . .	15
3.1.1	SPIDER . . . . .	16
3.2	Spektrale Verfahren . . . . .	17
3.2.1	FROG . . . . .	17
3.2.2	Vom XFROG zum Double-Blind FROG . . . . .	19
3.2.3	Einzelschuss- und Mehrschusstechniken im Vergleich . . . . .	20
3.3	Zusammenfassung . . . . .	22
<b>4</b>	<b>Pulscharakterisierung mittels Einzelschuss - VAMPIRE</b>	<b>25</b>
4.1	VAMPIRE . . . . .	26
4.2	Rekonstruktionsalgorithmus des VAMPIREs . . . . .	27

4.3	Aufbau eines Einzelschuss-VAMPIREs . . . . .	29
4.4	Auswahl der CCD-Kameras . . . . .	38
4.4.1	Messplatz für die Bestimmung der Quanteneffizienz . . . . .	39
4.4.2	Ergebnisse der spektralen Quanteneffizienzmessung . . . . .	41
4.4.3	Ergebnisse der temperaturabhängigen Quanteneffizienz . . . . .	46
4.4.4	Zusammenfassung und Auswahl der Kamera . . . . .	48
4.5	Aufbau der Spektrometer . . . . .	49
4.5.1	Dimensionierung des Spektrometers für UV- / blaues Licht . . . . .	49
4.5.2	Dimensionierung des Spektrometers für nahinfrarotes Licht . . . . .	52
4.5.3	Eintrittsspalte . . . . .	53
4.5.4	Astigmatismuskorrektur . . . . .	56
4.5.5	Ansteuerungssoftware . . . . .	61
4.5.6	Wellenlängenkalibrierung . . . . .	62
4.5.7	Spektrale Empfindlichkeit . . . . .	62
4.6	BBO- und BIBO-Kristalle . . . . .	65
4.6.1	Phasenanpassung . . . . .	65
4.6.2	Intensität des Summenfrequenzsignals . . . . .	66
4.6.3	Spannungsfreie Kristallhalterung . . . . .	68
4.6.4	Antireflex-Beschichtung der BIBO-Kristalle . . . . .	69
4.7	Messung an fs-Lasern . . . . .	72
4.7.1	Kameraeinstellungen . . . . .	73
4.7.2	Aufbereitung der Messwerte . . . . .	74
4.7.3	Intensitätsumskalierung und Zeitinkrement . . . . .	76
4.7.4	Messung an einem Ti:Sa-Oszillator . . . . .	77
4.7.5	Messung an einem verstärkten fs-Lasersystem . . . . .	83
<b>5</b>	<b>Ausblick</b>	<b>91</b>
5.1	Brechungsindexbestimmung . . . . .	91
5.2	Nichtlinearer Phasenkontrast . . . . .	93
5.3	Refraktive Hornhautchirurgie . . . . .	95
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>97</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>99</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>109</b>
A.1	Quanteneffizienzmessung an EMCCD-Kameras . . . . .	109
A.2	VIPA-Spektrometer . . . . .	112

<b>B</b>	<b>Liste der Veröffentlichungen</b>	<b>117</b>
B.1	Publikationen . . . . .	117
B.2	Patente . . . . .	118
B.3	Tagungsbeiträge . . . . .	118
<b>C</b>	<b>Danksagung</b>	<b>121</b>
<b>D</b>	<b>Eidesstattliche Erklärung</b>	<b>123</b>



# 1 | Einleitung

Der erste Laser war ein Rubinlaser, der aus einem 1 cm langen Rubinkristall mit an den Enden aufgedampften Silberspiegeln bestand und mit einer Blitzlampe gepumpt wurde [Mai60]. Somit war der erste Laser bereits ein gepulster Laser. Ende des gleichen Jahres gelang es mit dem Helium-Neon-Laser jedoch auch den ersten Dauerstrichlaser zu realisieren [Jav+61]. Seitdem wurden viele verschiedene Lasersysteme entwickelt. Besonders zu nennen ist dabei der Titan:Saphir-Laser (Ti:Sa-Laser) [Mou86]. Er ist durchstimmbar von ca. 650 nm bis ca. 1100 nm [Ste02], erzeugt Pulse mit einer Dauer hinunter bis zu knapp 5 fs [Ste02] und ermöglicht Spitzenleistungen im Petawatt-Bereich [Yam+00; Per+99]. Daher ist der Ti:Sa-Laser heutzutage nicht nur häufig im Labor vertreten, sondern ist auch kommerziell gut verfügbar. Für eine Vielzahl von Experimenten ist es wichtig, den Puls genau zu kennen. Das können z.B. Ionisierungsprozesse, Anregungsprozesse, Pump-Probe-Experimente oder systematische Untersuchungen in der Materialbearbeitung sein. Die systematische Optimierung von chirurgischen Schnitten mit ultrakurzen Laserpulsen in biologischem Gewebe, wie z.B. der Hornhaut des Auges, ist nur ein spezieller Fall der Materialbearbeitung. Die Pulscharakteristik, also Pulsdauer, Amplitude und Phase oder beispielsweise Mehrfachpulsstrukturen sind dabei wichtige Größen. Diese zu bestimmen wird zunehmend wichtiger und so gibt es inzwischen eine Vielzahl an Techniken für die Pulscharakterisierung [Won+13] mit z.T. wiederum vielen Varianten. Dabei handelt es sich um Verfahren, die sich die nichtlineare Wechselwirkung von Licht und Materie zu Nutze machen, um Pulse zu bestimmen, die mit konventioneller Technik wie Photodioden nicht mehr zeitaufgelöst gemessen werden können. Dabei wird der ursprüngliche Puls aus dem Wechselwirkungssignal oft algebraisch (z.B. [Iac+98]) oder rekursiv (z.B. [Tre00]) bestimmt. Bei den meisten Verfahren existiert jedoch kein mathematischer Beweis, dass der so bestimmte Puls auch tatsächlich dem zu vermessenden Puls entspricht. Besonders kritisch sind Pulse mit spektralen Lücken, wie sie unter anderem in Solitonenmolekülen in Glasfasern vorkommen [Hau+07; Roh+13]. Solitonenmoleküle sind ein möglicher Weg zur Steigerung der Datenübertragungsrate in Glasfasern. Neben dem VAMPIRE („very advanced method for phase and intensity retrieval of e-fields“) [Sei+09] gibt es kein weiteres sensitives ( $\chi^2$ ) Verfahren, dessen Eindeutigkeit mathematisch bewiesen ist [Sei+04] und solche Pulse zuverlässig bestimmen kann. Der in [Sei+09] vorgestellte Aufbau ist in Mehrschuss-Technik realisiert. Das bedeutet, dass eine Vielzahl an Pulsen erforderlich ist und somit keine Informationen über einzelne Pulse oder über Puls zu Puls Schwankungen zugänglich sind. Weiterhin müssen während der Messung Komponenten des Aufbaus bewegt werden, was

zu Problemen im Messprozess führt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein VAMPIRE in Einzelschusstechnik aufgebaut, der die genannten Nachteile prinzipbedingt nicht aufweist. Der aufgebaute VAMPIRE kann Pulse im Spektralbereich von etwa 700 nm bis 1000 nm mit Pulslängen ab ca. 50 fs bestimmen. Zusätzlich wurde großer Wert darauf gelegt, die Pulse nicht durch die Messung selbst zu verändern. Im folgenden Kapitel werden die wesentlichen Grundlagen für diese Arbeit dargelegt. Während Kapitel 3 einen groben Überblick über etablierte Techniken zur Pulscharakterisierung gibt, behandelt Kapitel 4 die gesamte Entwicklung des Einzelschuss-VAMPIREs und demonstriert die Rekonstruktion anhand von ausgewählten Messungen. Kapitel 5 liefert einen Ausblick auf ausgewählte mögliche Anwendungsfelder des VAMPIREs. Dabei geht es um orts aufgelöste Brechungsindexbestimmung, nichtlineare Mikroskopie und Verbesserungen im Bereich der refraktiven Chirurgie. Abschließend werden die wesentlichen Punkte dieser Arbeit im letzten Kapitel zusammengefasst. Zusätzlich findet sich im Anhang unter anderem ein Abschnitt über hochauflösende, lichtstarke VIPA-Spektrometer.

## 2 | Grundlagen

### 2.1 Beschreibung von Laserpulsen

Licht wird in der Optik als elektromagnetische Welle beschrieben. Die theoretische Beschreibung findet sich in zahlreichen Optiklehrbüchern in ähnlicher Form z.B. in [Sal+07; Wei09; Lip+97]. Ausgangspunkt sind dabei oft die Maxwellgleichungen. Daraus lässt sich die Wellengleichung herleiten und als Lösung ergibt sich das elektrische Feld als ebene Welle.

Das elektrische Feld ist reell

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}, t) \cos(\omega_0 t - \vec{k}\vec{r} + \phi(t)), \quad (2.1)$$

jedoch lässt es sich auch mit Hilfe der Eulerschen Formel als komplexes Feld einführen

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}, t) \exp^{i(\omega_0 t - \vec{k}\vec{r} + \phi(t))}. \quad (2.2)$$

Beide Darstellungen sind Lösungen der Wellengleichung. Dabei sind  $\vec{E}_0(\vec{r}, t)$  die zeitabhängige Amplitude,  $|\vec{k}| = |2\pi/\lambda|$  der Wellenvektor,  $\lambda$  die Wellenlänge,  $\vec{r}$  der Ort,  $\omega_0$  die Frequenz beziehungsweise die Trägerfrequenz und  $\phi(t)$  die Phase des elektrischen Feldes. Vielfach ist nur der zeitliche Verlauf des Feldes und nicht seine Ortsabhängigkeit von Interesse, weshalb die Terme mit  $\vec{r}$  dann weggelassen werden. Das Feld vereinfacht sich somit zu:

$$E(t) = E_0(t) \cos(\omega_0 t + \phi(t)) \quad (2.3)$$

beziehungsweise

$$E(t) = E_0(t) \exp^{i(\omega_0 t + \phi(t))}. \quad (2.4)$$

Im Falle von gepulsten Feldern ist  $E_0(t)$  die Einhüllende des Pulses. Das elektrische Feld oszilliert darin mit der Frequenz  $\omega_0$ . Die Phase  $\phi(t)$  verursacht dabei eine instantane Frequenzänderung wodurch sich die instantane Frequenz  $\omega(t)$  zu

$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{d}{dt}\phi(t) \quad (2.5)$$

ergibt. Ist

$$\frac{d^2}{dt^2}\phi(t) = 0, \quad (2.6)$$

bleibt die Frequenz über den gesamten Puls konstant. In allen anderen Fällen ändert sich die Frequenz und man spricht von einem gechirpten Puls (englisch „chirp“ für zwitschern / zirpen). Schreibt man die Phase als Potenzreihe der Form

$$\phi(t) = \phi_0 + \phi_1 t + \phi_2 t^2 + \dots, \quad (2.7)$$

so lässt sich der Chirp näher definieren. Genügt  $\phi_1$  zur Beschreibung, spricht man von einem linearen Chirp. Ist auch  $\phi_2$  zur Beschreibung erforderlich, handelt sich um einen quadratischen Chirp und so weiter. Ein positiver Chirp entspricht dabei einer Frequenzzunahme und dementsprechend ein negativer Chirp einer Frequenzabnahme mit der Zeit. Oftmals wird  $\phi_0$  ignoriert, da es nur ein konstanter Versatz ist und für die instantane Frequenz wegen der zeitlichen Ableitung irrelevant ist. Ist die Phasenlage des Feldes innerhalb der Einhüllenden von Puls zu Puls wichtig, darf dieser Term allerdings nicht ignoriert werden. Dieser Term entspricht dem „carrier envelope offset“ beziehungsweise der „carrier envelope phase“.

## 2.2 Lineare Effekte

### 2.2.1 Brechungsindex, Dispersion, Phasen- und Gruppengeschwindigkeit

#### Brechungsindex, Dispersion und Absorptionskoeffizient

Ganz allgemein gibt der Brechungsindex  $n$  das Verhältnis aus Lichtgeschwindigkeit im Vakuum  $c_0$  und der Ausbreitungsgeschwindigkeit im Medium  $c_M$  an. Für gewöhnlich gilt dies jedoch nur für monochromatische Wellen, da der Brechungsindex von der Wellenlänge des Lichtes abhängig ist - also  $n(\lambda)$ . Wegen  $c = \lambda f$  und  $\omega = 2\pi f$  lässt sich der Brechungsindex auch als  $n(\omega)$  beschreiben. Diese Darstellung ist hier hilfreich, da Licht beim Eintritt in ein optisches Medium die Wellenlänge, aber nicht die Frequenz ändert. Die Abhängigkeit zwischen Brechungsindex und Wellenlänge bzw. Frequenz wird Dispersionsrelation genannt.

Ein weiterer Effekt beim Durchlaufen von Licht durch ein optisches Medium ist die Absorption. Diese ergibt sich aus dem komplexen Brechungsindex. Für ein nichtmagnetisches Material gilt mit der Permittivität  $\epsilon$  für den Brechungsindex  $n(\omega) = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$  und mit  $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi)$  ergibt sich für  $n(\omega)$  eine Funktion von der komplexen elektrischen Suszeptibilität  $\chi$ :

$$n(\omega) = \sqrt{1 + \chi(\omega)} \quad \text{mit} \quad \chi = \chi_r + i\chi_i. \quad (2.8)$$

Das bedeutet, dass auch die Wellenzahl  $k$  komplex wird [Sal+07]:

$$k = \omega \sqrt{\epsilon \mu_0} = k_0 \sqrt{1 + \chi_r + i\chi_i}. \quad (2.9)$$

Dabei ist  $k_0 = \omega/c_0$  die Wellenzahl im Vakuum.

Unterteilt man  $k$  in Real- und Imaginärteil, lassen sich die Parameter  $\alpha$  und  $\beta$  einführen [Sal+07]:

$$\beta - i\frac{1}{2}\alpha = k_0 \sqrt{1 + \chi_r + i\chi_i}. \quad (2.10)$$

$\alpha$  ist als Absorptionskoeffizient bekannt und  $\beta$  als Propagationskonstante. Der Faktor  $1/2$  vor  $\alpha$  wurde dabei eingeführt, damit das Absorptionsgesetz in bekannter Form gilt:

$$|E(z, \omega)|^2 = I(z, \omega) = I_0(z, \omega) \exp^{-\alpha z}. \quad (2.11)$$

### Phasengeschwindigkeit

Die Phasengeschwindigkeit  $v_p$  gibt die Geschwindigkeit an, mit der sich ein Punkt gleicher Phase einer monochromatischen Welle der Frequenz  $\omega_0$  ausbreitet. In dispersiven Medien bedeutet dies, dass monochromatische Wellen mit unterschiedlicher Frequenz unterschiedliche Phasengeschwindigkeiten besitzen.

$$v_p = \frac{\omega_0}{\beta_0} = \frac{c}{n(\omega_0)} \quad (2.12)$$

### Gruppengeschwindigkeit

Betrachtet man dagegen ein Wellenpaket, also die Summe von Wellen mit unterschiedlichen Frequenzen, ist aus der Definition von  $v_p$  offensichtlich, dass die einzelnen Frequenzkomponenten unterschiedliche Laufzeiten haben. Dies wiederum führt zu einem „Zerfließen“ des Wellenpaketes. Die Gruppengeschwindigkeit  $v_{gr}$  ist nun die Geschwindigkeit, mit der sich die einhüllende Kurve des Wellenpakets bewegt und ist über folgende Relation mit dem Brechungsindex verknüpft [Sal+07]:

$$\frac{1}{v_{gr}} = \beta' = \left. \frac{d\beta}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0} \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{\omega n(\omega)}{c_0}. \quad (2.13)$$

Die Gruppengeschwindigkeit hängt dabei von der Zentralfrequenz  $\omega_0$  ab. Ohne Dispersion wären Gruppen- und Phasengeschwindigkeit identisch.

In Analogie zum Brechungsindex  $n = c_0/c_M$  lässt sich der Gruppenbrechungsindex  $N$  als  $N = c_0/v_{gr}$  definieren.

#### 2.2.2 Gruppengeschwindigkeitsdispersion

Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD aus dem Englischen group velocity dispersion) ist eine wichtige Größe bei der Arbeit mit fs-Laserpulsen. Diese Pulse besitzen ein breites Spektrum und wegen der Dispersion im Medium besitzt jede Wellenlänge eine andere Phasengeschwindigkeit. Da die Pulse so kurz sind, reicht oftmals schon eine Linse aus, um den Puls aufgrund der unterschiedlichen Laufzeit der einzelnen Frequenzkomponenten signifikant zu verändern. Ausgehend von einem Fourier-limitierten Puls bedeutet dies eine zeitliche Dehnung („zerfließen“ / „ausschmieren“) des Laserpulses verbunden mit einem Chirp. Je nachdem ob die Dispersion des Mediums positiv oder negativ ist, eilen die niedrigen Frequenzen den hohen Frequenzen voraus („up-chirp“) oder entsprechend anders herum („down-chirp“). Besitzt der Puls bereits einen Chirp, kann dieser gegebenenfalls durch ein optisches Medium kompensiert werden. Der frequenzabhängige Brechungsindex verändert also die spektrale Phase  $\phi(\omega)$  beim Durchlaufen eines optischen

Mediums der Dicke  $L$  [Tre00].

$$\phi_{\text{out}}(\omega) = \phi_{\text{in}}(\omega) + in(\omega)\omega Lc^{-1} = \phi(\omega)_{\text{in}} + i\beta(\omega)L \quad (2.14)$$

Soll ein ultrakurzer Laserpuls charakterisiert werden, muss das entsprechend berücksichtigt werden oder besser noch, der Puls durchläuft vor seiner Charakterisierung erst gar keine optischen Medien.

Die Propagationskonstante  $\beta(\omega)$  wird oft als Taylorreihe geschrieben.

$$\beta(\omega) = \beta(\omega_0) + \frac{\partial\beta}{\partial\omega}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\frac{\partial^2\beta}{\partial\omega^2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\frac{\partial^3\beta}{\partial\omega^3}(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.15)$$

$$= \beta_0 + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{\beta_2}{2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\beta_3}{6}(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.16)$$

Nach 2.13 ist die inverse Gruppengeschwindigkeit die erste Ableitung von  $\beta(\omega)$  nach  $\omega$ . Ist  $\beta(\omega)$  nur von  $\beta_0$  und  $\beta_1$  abhängig, ist die Gruppengeschwindigkeit daher eine Konstante. Ist  $\beta(\omega)$  eine nichtlineare Funktion, spricht man dagegen von einer Dispersion der Gruppengeschwindigkeit. Es ist dabei üblich,  $\beta_2$  als Gruppengeschwindigkeitsdispersion zu bezeichnen. Meistens wird die GVD in  $\text{fs}^2/\text{mm}$  angegeben. Dagegen wird  $\beta_3$  als Dispersion dritter Ordnung bzw. „third order dispersion“ (TOD) bezeichnet und besitzt die Einheit  $\text{fs}^3/\text{mm}$ .

Es bietet sich an, auch die Phase  $\phi(\omega)$  als Taylorreihe zu notieren.

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + \frac{\partial\phi}{\partial\omega}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\frac{\partial^2\phi}{\partial\omega^2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\frac{\partial^3\phi}{\partial\omega^3}(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.17)$$

$$= \phi_0 + \phi_1(\omega - \omega_0) + \frac{\phi_2}{2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\phi_3}{6}(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.18)$$

Das ist unter anderem praktisch, da  $\phi(\omega)_n = -\beta_n L$  ist und somit aus der Propagationskonstante bzw. aus  $\beta_2$  und  $\beta_3$  der Einfluss auf die spektrale Phase erkennbar ist. Höhere Ordnungen werden nur selten in Datenblättern angegeben, können aber bei optischen Materialien oft durch ableiten der Kurven für den Brechungsindex erhalten werden.

Wie in Abschnitt 2.2.1 bereits ersichtlich wurde, ist der Absorptionskoeffizient  $\alpha(\omega)$  eines optischen Mediums ebenfalls frequenzabhängig. Er verändert, dem Absorptionsgesetz folgend, das Spektrum  $I(\omega)$  des Laserpulses [Tre00]:

$$I(\omega)_{\text{out}} = I(\omega)_{\text{in}} \exp^{-\alpha(\omega)L}. \quad (2.19)$$

Betrachtet man das elektrische Feld, sind beide Effekte jedoch nicht voneinander losgelöst [Tre00]:

$$E(\omega)_{\text{out}} = E(\omega)_{\text{in}} \exp^{-\alpha(\omega)L/2} \exp^{in(\omega)\omega Lc^{-1}} = E(\omega)_{\text{in}} \exp^{-\alpha(\omega)L/2} \exp^{i\beta(\omega)L}. \quad (2.20)$$

### 2.2.3 Gruppenverzögerungsdispersion

Im vorangegangenen Abschnitt wurde gezeigt, wie die beschriebene Gruppengeschwindigkeitsdispersion zu unterschiedlichen Laufzeiten der einzelnen Frequenzkomponenten eines kurzen Laserpulses durch ein optisches Medium führt.

Die Gruppenverzögerung  $\tau_g$  ist daher analog dazu die Verzögerung, die die zentrale Frequenz  $\omega_0$  des Laserpulses beim Durchlaufen eines optischen Mediums der Dicke  $L$  erfährt:

$$\tau_g = \frac{L}{v_g} = \beta_1 L \quad (2.21)$$

Die Gruppenverzögerungsdispersion  $\Delta\tau(\omega)$  ist entsprechend die Gruppengeschwindigkeitsdispersion multipliziert mit der Dicke  $L$  des optischen Mediums.

$$\Delta\tau(\omega) = \beta_2(\omega - \omega_0)L \quad (2.22)$$

## 2.3 Nichtlineare Optik

Bislang wurden Suszeptibilität  $\chi$  und Permittivität  $\epsilon$  als lineare Größen betrachtet. Das ist für geringe Feldstärken bzw. geringe Intensitäten durchaus gültig. Bei hohen Feldstärken, wie sie bei fs-Laserpulsen üblich sind, verhalten sich diese Größen jedoch nicht mehr linear, sondern nichtlinear. Die Polarisierung des Mediums kann dem Feld nicht mehr direkt folgen und es sind höhere Terme erforderlich, um die tatsächliche Polarisierung zu beschreiben. Höhere Terme meint, dass die Suszeptibilität und Permittivität wieder als Taylorreihe ausgedrückt wird.

$$P = \epsilon_0 \chi E \text{ wird zu } P = \epsilon_0 (\chi^1 E + \chi^2 E^2 + \chi^3 E^3 + \dots) \quad (2.23)$$

Es zeigt sich, dass zur Beschreibung einer nichtlinearen Polarisierung höhere Frequenzen benötigt werden. Diese höheren Frequenzen werden z.B. zweite oder dritte Harmonische genannt. Darüber hinaus gibt es noch höhere Ordnungen, die entsprechend höhere Harmonische genannt werden. Im Folgenden wird die Erzeugung der zweiten Harmonischen und die Summenfrequenzerzeugung beschrieben. Anschließend wird auf nichtlineare Kristalle und die Phasenanpassung eingegangen.

### 2.3.1 Generation der zweiten Harmonischen und von Summenfrequenzen

In nichtlinearen Medien, wie nichtlinearen Kristallen aus BBO ( $\beta$ -Bariumborat), aber auch in vielen biologischen Geweben wie beispielsweise in strukturellen Proteinen, wie Collagenfasern [Pav+14], Nervenfasern [Pav+14], Muskeln [Pav+14] oder Zähnen [Che+07], kommen die höheren Terme der Polarisierung  $P$  (siehe Gleichung 2.23) zum Tragen. Wird das elektrische Feld quadriert und betrachtet man dabei den  $\chi^2$ -Term, ergeben sich Terme mit doppelter Frequenz [Tre00]. Dabei handelt es sich um die zweite Harmonische (SHG aus dem Englischen: „second harmonic generation“). Auf gleiche Weise lassen sich auch andere Harmonische erzeugen, allerdings ist es üblicherweise so, dass der nichtlineare Effekt stärker ausgeprägt ist, je geringer die Ordnung der Nichtlinearität ist. Ein  $\chi^2$ -Prozess ist also effizienter als ein  $\chi^3$ -Prozess.

Werden in einem nichtlinearen Kristall zwei ultrakurze Laserpulse in Raum und Zeit überlagert, addieren sich die Felder und es kommt u.a. zur Summenfrequenzerzeugung (SFG aus dem Englischen: „sum frequency generation“) und zur Differenzfrequenzerzeugung (DFG aus dem Englischen: „difference frequency generation“).

$$\mathcal{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} E_1(\vec{r}, t) \exp^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + \frac{1}{2} E_2(\vec{r}, t) \exp^{i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} + c.c. \quad (2.24)$$

Im linearen Fall bleibt das ohne Effekt und die Pulse laufen aus dem Medium aus, wie sie eingelaufen sind. Betrachtet man jedoch wieder den  $\chi^2$ -Term, so ergibt sich die auf den ersten Blick unübersichtliche, folgende Gleichung [Tre00] mit den neuen Frequenzen  $2\omega_1$  bzw.  $2\omega_2$  (SHG),  $\omega_1 + \omega_2$  (SFG) und  $\omega_1 - \omega_2$  (DFG).

$$\mathcal{E}^2(\vec{r}, t) = \frac{1}{4}E_1^2 \exp^{2i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + \frac{1}{4}E_1^{*2} \exp^{-2i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \quad \text{SHG von } E_1 \quad (2.25)$$

$$+ \frac{1}{4}E_2^2 \exp^{2i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} + \frac{1}{4}E_2^{*2} \exp^{-2i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \quad \text{SHG von } E_2 \quad (2.26)$$

$$+ \frac{1}{2}E_1 E_2 \exp^{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} + \frac{1}{2}E_1^* E_2^* \exp^{-i[(\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \quad \text{SFG} \quad (2.27)$$

$$+ \frac{1}{2}E_1 E_2^* \exp^{i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} + \frac{1}{2}E_1^* E_2 \exp^{-i[(\omega_1 - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}]} \quad \text{DFG} \quad (2.28)$$

$$+ \frac{1}{2}E_1 E_1^* + \frac{1}{2}E_2 E_2^* \quad \text{OR} \quad (2.29)$$

Die letzte Zeile ist mit OR gekennzeichnet. Diese Terme enthalten kein  $\omega_i$  mehr, sondern sind nur noch von der Einhüllenden abhängig. Sie variieren also nur sehr langsam gegenüber dem tatsächlichen Feld der Eingangspulse und werden als quasi-DC-Feld angesehen. Daher wird dieser Effekt optische Gleichrichtung (OR aus dem Englischen „optical rectification“) genannt.

Treffen zwei Eingangspulse mit  $\omega_1 \approx \omega_2$  im Winkel  $\theta$  aufeinander, so entsteht das Summenfrequenzsignal etwa mittig zwischen den Ausgangspulsen bzw. grob im Winkel  $\theta/2$ , da das SFG-Signal den neuen Wellenvektor  $\vec{k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$  hat. Insbesondere die Summenfrequenzerzeugung wird in Kapitel 4 in dieser Konfiguration verwendet.

### 2.3.2 Selbstphasenmodulation

Die Selbstphasenmodulation ist ein nichtlinearer Prozess dritter Ordnung ( $\chi^3$ ), bei der auch der Brechungsindex wegen seiner intensitätsabhängigen Nichtlinearität zeitabhängig wird und auf diese Weise einem Laserpuls einen Chirp beimischt [Sal+07]. Der Brechungsindex lässt sich dann als

$$n(I) = n + n_2 I(t) \quad (2.30)$$

schreiben und ist für die Selbstphasenmodulation verantwortlich, während das Strahlprofil dem Brechungsindex eine räumliche Komponente verleiht, welche die Ursache für die Selbstfokussierung ist [Sal+07]. Dieser Effekt wird auch als Kerr-Effekt bezeichnet. Die Änderung der Phase  $\Delta\phi$  ist dann

$$\Delta\phi = -2\pi n_2 \frac{L}{\lambda_0 A} P, \quad (2.31)$$

wobei  $L$  die durchlaufene Mediumsdicke,  $A$  das 2D-Strahlprofil und  $P$  die optische Leistung ist [Sal+07]. Besonders ausgeprägt ist dieser Effekt in Glasfasern, da die Intensität hier auf einer kleinen Fläche verteilt ist und weiterhin große Wechselwirkungslängen oft anzutreffen sind.

### 2.3.3 Phasenanpassung in Kristallen

In den vorigen Abschnitten wurde bereits dargestellt, dass bei sehr hohen Intensitäten nichtlineare Effekte auftreten. Allerdings ist für die Erzeugung von Summenfrequenzen oder beispielsweise

der zweiten Harmonischen die Phasenanpassung sehr wichtig. Damit ist gemeint, dass sowohl das einfallende Signal als auch das erzeugte Signal die gleiche Geschwindigkeit im Kristall besitzen müssen. Das ist für SHG gleichbedeutend mit  $n(\omega) = n(2\omega)$ . Ohne Phasenanpassung wäre die Intensität des nichtlinear erzeugten Lichtes extrem gering.

Oft wird zwischen Typ I und Typ II Phasenanpassung unterschieden. Sind die Eingangsfelder gleich polarisiert, handelt es sich um Typ I. Sind sie dagegen senkrecht zueinander polarisiert, handelt es sich um Typ II Phasenanpassung. Daneben gibt es bei anderen Prozessen, wie der optischen parametrischen Verstärkung, noch weitere Typen, auf die hier aber nicht näher eingegangen werden soll.

Zusätzlich ist die Geometrie von Bedeutung. So können die Strahlen den Kristall kollinear durchlaufen oder in einem Winkel  $\theta$  zueinander. In den nicht-kollinearen Anordnungen muss zusätzlich der Winkel  $\theta$  berücksichtigt werden und es ergibt sich  $n(\omega) \cos(\theta/2) = n(2\omega)$  [Tre00].

Diese Bedingung gilt scheinbar nur für exakt eine Wellenlänge. Das Problem löst sich quasi von selbst, da eine Fehlanpassung lediglich die Konversionseffizienz verringert. Die Bandbreite der Phasenanpassung ist die spektrale Breite bei halber Effizienz des Konversionsprozesses. Sie kann aus der resultierenden Brechungsindexkurve abgeschätzt werden [Tre00]:

$$\delta\lambda_{\text{FWHM}} \approx \frac{1}{L} \frac{0,44 \lambda_0}{|n'(\lambda_0) - n'(\lambda_0/2)/2|} \quad (2.32)$$

Die Phasenanpassungsbandbreite ist also invers proportional zur Kristalldicke  $L$ . Je dünner ein Kristall ist, desto größer ist die Bandbreite der Phasenanpassung. Allerdings verändert sich die Intensität des erzeugten Signals proportional mit  $L^2$  [Tre00].

## 2.4 Digitale Kameras

1970 wurde die CCD-Technologie (damals noch „Charge Coupled Semiconductor Device“ genannt - heute ohne „Semiconductor“ im Namen) als neues Konzept für ein Verschieberegister vorgestellt, in dem Ladungsträger in Potentialtöpfen gespeichert und durch angelegte Spannungen verschoben werden können [Boy+70]. Als weitere mögliche Anwendung wird in [Boy+70] bereits die Möglichkeit zur Nutzung als bildgebendes Gerät vorgeschlagen, wofür in 2009 der Nobelpreis für Physik zur Hälfte an die Autoren der o.g. Veröffentlichung ging [Nobb]. Heutige CCD-Sensoren sind also Halbleitergeräte, die Verschieberegister und Photodiode in einem Gerät vereinen.

CMOS-Sensoren sind ebenfalls Arrays aus Photodioden, jedoch gehört zu jeder Photodiode wenigstens ein Transistor, so dass jede Photodiode über eine Verkettung der Transistoren mittels horizontaler und vertikaler Adressierung einzeln ausgelesen werden kann. Die Vor- und Nachteile der beiden Technologien sollen hier nicht diskutiert werden. Sie können in der Literatur, z.B. [Str+14; The95], nachgelesen werden.

Allerdings soll im Folgenden auf die möglichen Arten der Ladungsverschiebung der CCD-Sensoren eingegangen werden, da sie für die Auswahl einer geeigneten Kamera bei sich schnell ändernden

Bildinformationen, wie beispielsweise in dem Aufbau zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse in Kapitel 4, entscheidend ist. In Kapitel 4.4.1 wird außerdem ein Aufbau zur hochauflösenden Bestimmung der Quanteneffizienz von Photodetektoren vorgestellt und anschließend werden in Kapitel 4.4.2 Messungen an verschiedenen Kameras dargestellt und diskutiert.

### 2.4.1 Möglichkeiten des Ladungstransfers

Ändert sich die Bildinformation schnell, so ist es wichtig, dass die Ladungen möglichst sofort ausgelesen oder gesichert werden, damit der Bildinhalt nicht verschmiert. Das ist zum Beispiel der Fall beim „Rolling shutter“ bzw. „Full-Frame-Sensor“ und dem sequentiellen Auslesen Zeile für Zeile und gleichzeitigen neu belichten der bereits ausgelesenen Zeilen.

Um bei CMOS-Kameras einen „Global Shutter“ (ein elektronischer Verschluss, der alle Pixel quasi zeitgleich belichtet) zu realisieren, sind zusätzlich zu den Transistoren jeder Photodiode noch eine Speicherzelle bereit zu stellen. Der Füllfaktor, die tatsächlich optisch aktive Fläche des Sensors zur Gesamtfläche, wird jedoch durch die Transistoren und noch weiter durch die Speicherzelle (Kondensator / Potentialtopf) neben jeder Photodiode reduziert, was die Quanteneffizienz mindert (von Arrays aus Mikrolinsen abgesehen, was aber andere Probleme mit sich ziehen kann). Oft wird durch Verstärker und Bildverarbeitung auf dem Sensor die Größe der Photodiode weiter verkleinert. Vorteil ist dagegen die Möglichkeit nur gewisse Bereiche des Sensors auslesen zu können und dabei die Bildwiederholrate zu steigern.

Im wissenschaftlichen Bereich mit der Anforderung von hoher Quanteneffizienz kommen daher oft CCD-Kameras mit größeren Pixeln zum Einsatz. Hier gibt es verschiedene Konzepte für einen „Global Shutter“.

„Frame Transfer“:

Frame Transfer-Sensoren bestehen aus zwei Bereichen, wobei die untere Hälfte abgedeckt ist. Zunächst wird der obere Teil belichtet und anschließend alle Ladungen in einen darunter liegenden abgedeckten Bereich verschoben. Die dazu benötigte Zeit hängt von der vertikalen Verschiebezeit (pro Zeile angegeben) und der Anzahl der Zeilen ab. Anschließend kann der Sensor ausgelesen werden. Dabei wird erst eine Zeile mit der spezifizierten Ausleserate ausgelesen und anschließend die nächste Zeile nach unten geschoben, bis der Sensor komplett ausgelesen wurde. Die Auslesezeit hängt also von der Ausleserate, der vertikalen Verschiebezeit und der Anzahl der Zeilen sowie Pixel pro Zeile ab. Offensichtlich ist dies kein „Global Shutter“. Insbesondere wenn das Produkt aus Zeilenanzahl und vertikaler Verschiebezeit in der Größenordnung der Belichtungszeit oder darunter liegt, drohen Verzerrungen bzw. Verschmierungen. Ein häufiges Beispiel ist der Einsatz einer solchen Kamera in einem Spektrometer. Wird eine Lichtquelle punktförmig auf den Eintrittsspalt abgebildet und ist die spektrale Achse parallel zu der vertikalen Verschieberichtung, dann ist bei kurzen Belichtungszeiten (Größenordnung: Verschiebezeit x Zeilenanzahl) oberhalb und bzw. oder unterhalb des Spektrums ebenfalls Intensität im Kamerabild. Dieses Licht ist ein Artefakt und verfälscht das Spektrum! Es werden spektrale Komponenten detektiert, die womöglich nicht im ursprünglichen Signal enthalten waren. Da in Spektrometern jedoch selten das

2D-Bild, sondern meistens nur das aufsummierte Spektrum betrachtet wird, kann dieser Fehler sehr leicht übersehen werden. Ist die vertikale Verschieberichtung senkrecht zur spektralen Achse ist der Effekt ebenfalls sichtbar. Wird das Spektrum aufsummiert, führt dies zu einer gleichmäßigen Verstärkung des aufsummierten Spektrums. Absolute Intensitätsmessungen können dadurch beeinflusst werden.

„Interline Transfer“:

Das Problem der Verschmierungen kann minimiert werden, wenn neben jeder aktiven Spalte des Sensors eine abgedeckte Spalte besteht. So kann am Ende der Belichtungszeit die angesammelte Ladung durch die Verschiebung um nur einen Pixel zur Seite in einen abgedeckten Bereich verschoben werden („Interline Transfer“) und stellt somit schon einen ziemlich guten „Global Shutter“ dar. Anschließend können die Ladungen sukzessive nach unten zum horizontalen Ausleseregister verschoben werden.

Problematisch ist dabei allerdings die deutlich geringe Quanteneffizienz durch den geringeren Füllfaktor. Auch hier versucht man die Verluste durch Mikrolinsenarrays zu relativieren. Außerdem müssen die Ladungen schnell ausgelesen werden, da andernfalls durch „Blooming“, das Überlaufen eines Potentialtopfes in den benachbarten Potentialtopf, das Bild auch nach der Belichtung noch beeinflusst werden kann.

„Frame Interline Transfer“:

Dieser Sensor vereint die Vorteile von „Frame Transfer“- und „Interline Transfer“-Sensoren. Dieser Sensor gliedert sich wieder in einen optisch empfindlichen Bereich, der durch abgedeckte Spalten unterteilt ist, und einen unteren Bereich, der komplett abgedeckt ist. So werden Verschmierungen vermieden und die Ladungen schnell in einen geschützten Bereich transportiert. Im Prinzip ist dies eine gute Lösung, die aber ebenso die Nachteile der „Interline Sensoren“ hat und dazu sehr aufwändig und somit auch teuer ist. „Frame Interline Transfer“-Kameras sind daher nicht stark verbreitet.

### 2.4.2 Beleuchtungsart

Klassisch werden CCD Sensoren hergestellt, indem auf einem Substrat, dem „Wafer“, die optisch sensitive Halbleiterschicht aufgewachsen wird und darauf die „Gate“-Elektroden aufgebracht werden, die zur Ladungsverschiebung notwendig sind. Das bedeutet aber gleichzeitig, dass alle Photonen zuerst durch das Elektrodenmaterial transmittieren müssen, bevor sie in der aktiven Schicht Elektronen-Loch-Paare erzeugen können. Diese Absorption macht sich insbesondere im UV-Bereich bemerkbar. Solche Sensoren werden als „front illuminated“ (vorderseitig belichtet) bezeichnet. Ohne Absorption in den „Gate“-Elektroden, wäre die Quanteneffizienz also höher.

Ein Lösungsansatz sind „Virtual Phase“-Sensoren [Hyn80; Jan01]. Dabei werden die aktiven Pixel durch unterschiedlich dotierte Bereiche weiter unterteilt, wodurch Potentialunterschiede entstehen, die dann eine virtuelle Elektrode (bzw. im Verschiebungsprozess eine virtuelle Phase) darstellen. Diese Technologie ermöglicht es, dass nur noch die Hälfte eines Pixels mit einer Elektrode bedeckt ist. Die Quanteneffizienz ist also deutlich gesteigert. Allerdings ist lediglich Texas

Instruments dafür bekannt, solche Sensoren zu fertigen.

Ein anderer Lösungsansatz, der eine noch höhere Quanteneffizienz erlaubt, besteht in der rückseitigen Belichtung („back illuminated“ oder „back thinned“). Dabei wird das Substrat weggeschliffen oder weggeätzt. Das Licht kann nun weitgehend ungehindert in die photosensitive Schicht eindringen. Die Quanteneffizienz ist maßgeblich durch die wellenlängenabhängige Absorption des Siliziums, der Dicke der aktiven Schicht sowie durch die Reflektivität der Oberfläche bestimmt. Ist die aktive Schicht dünn (wenige  $\mu\text{m}$ ), können langwellige Photonen die aktive Schicht passieren, ohne absorbiert zu werden und ein Elektron-Loch-Paar erzeugt zu haben. Um eine hohe Quanteneffizienz im nahinfraroten Bereich zu erhalten ist also eine dicke Schicht (z.B. 50  $\mu\text{m}$  und mehr) notwendig [Jan01].

Die Reflektivität der Oberfläche lässt sich durch Antireflexbeschichtungen für ausgewählte Wellenlängenbereiche deutlich reduzieren. Oft wird dies durch Siliziumoxidschichten realisiert.

Daneben sind auch Varianten verbreitet, bei denen eine Phosphorschicht auf dem Sensor die Quanteneffizienz im UV-Bereich erhöht (siehe z.B. Abbildung 4.10). Dabei wird die Phosphorschicht mit höherenergetischen Photonen im Absorptionsspektrum angeregt und emittiert anschließend im Emissionsspektrum bei ca. 530 nm.

### 2.4.3 Elektronenvervielfachung

Zahlreiche Methoden der Elektronenverstärkung wie z.B. Photoelektronenvervielfacher [Iam+35], Lawinphotodioden (englisch „Avalanche photodiode“) [Rue67] oder etwa Mikrokanalplatten (englisch „microchannel plates“) [Wiz79], wie sie in ICCD-Sensoren (englisch „Intensified CCD“) verwendet werden, haben sich etabliert. Ein anderes Konzept nutzen EM-CCD Kameras (EM englisch für „Electron Multiplying“). Sie zeichnen sich durch einen Elektronenvervielfacher im Sensor aus. Die Verstärkung wird innerhalb des Halbleiters durch ein sogenanntes „gain register“, eine Potentialtreppe, erzielt. Dabei kann ein einzelnes Elektron von einer Stufe zur nächsten mehrere Elektronen durch Stoßionisation anregen, welche dann in der nächsten Stufe weitere Elektronen ionisieren können. Durch die Vervielfachung vor den elektronischen Verstärkern und Analog-Digital-Wandlern der Kamera lässt sich das Signal quasi rauschfrei verstärken. Quasi, da beispielsweise das Dunkelrauschen (thermisch angeregte Elektronen) mit verstärkt wird. Darüber hinaus ist es möglich, dass von einer Stufe zur nächsten ein zusätzliches Elektron ionisiert wird [Ric07]. Und nicht zuletzt werden durch Ladungsträgerverschiebespannungen induzierte Elektronen („clock induced charges“) mit verstärkt. Die Dynamik nimmt daher mit steigender Elektronenverstärkung ab, da der Potentialtopf eines Pixels zunehmend mehr Rauschen enthält. Wegen des Dunkelrauschens ist es besonders wichtig, den Sensor so tief zu kühlen, dass das Dunkelrauschen eine untergeordnete Rolle spielt. Beispielsweise beträgt die Dynamik bei einer Elektronenvervielfachung von 1000 nur noch 400:1 [Ric07]. Generell ist es also ratsam, die Elektronenverstärkung möglichst klein zu halten.

## 2.5 Spektrometer

Spektrometer für den optischen Bereich zerlegen einfallendes Licht mit Hilfe dispersiver Komponenten in seine verschiedenen spektralen Anteile. Üblich sind Prismen- oder Gitterspektrometer. Es gibt aber auch interferometrische Spektrometer wie das FourierTransform-Infrarotspektrometer, bei dem das Spektrum mittels Fouriertransformation aus dem Interferogramm (Intensität aufgetragen über den Verschiebeweg eines Spiegels) berechnet wird. Zu den interferometrischen Spektrometern gehört auch das VIPA-Spektrometer (Virtually Imaged Phased Array). Die spektrale Zerlegung erfolgt hier durch Mehrfachinterferenz aus „virtuell“ versetzten Lichtquellen. VIPA-Spektrometer haben konstruktionsbedingt eine sehr hohe Effizienz, was sie für verschiedene Anwendungen mit geringer Intensität attraktiv macht. Daher wurde zunächst ein solches Spektrometer untersucht. Es hat sich aber gezeigt, dass VIPA-Spektrometer zwar eine hohe Effizienz und Auflösung haben, der freie spektrale Bereich (FSR) jedoch viel zu gering ist, um das Spektrum eines fs-Laserpulse aufzunehmen. Im Bereich der Brillouin-Spektroskopie hat sich dieses Spektrometer dagegen als sehr geeignet erwiesen [Rei+12]. Abschnitt A.2 liefert einen Überblick über die Arbeiten zum VIPA-Spektrometer. Darunter findet sich auch eine Gegenüberstellung von Theorie, Experiment und Simulation (Raytracing) sowie die Vorstellung eines in C++ und Qt geschriebenen Programms zur Berechnung von VIPA-Spektrometern.

An dieser Stelle soll ein bestimmter Typ von Gitterspektrometern, das Czerny-Turner-Spektrometer, kurz vorgestellt werden. Die genaue Dimensionierung und Optimierung für die Integration in den Aufbau zur Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen wird in Abschnitt 4.5 dargestellt.

### 2.5.1 Czerny-Turner-Spektrometer

Dieser Spektrometertyp besteht aus einem Eintrittsspalt, einem kollimierenden Spiegel, einem drehbar gelagerten, ebenen Gitter als dispersives Element und einem fokussierenden Spiegel. Als Detektor kommt heutzutage meistens eine digitale Kamera zum Einsatz. Der prinzipielle Aufbau ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Bei kleinen Spaltbreiten des Eintrittsspalt trifft das Licht aufgrund von Beugung divergent auf den kollimierenden Spiegel, durch den das Strahlenbündel parallelisiert wird. Das bedeutet, dass der erste Spiegel eine Brennweite besitzen muss, die dem Abstand zwischen Eintrittsspalt und Spiegel entspricht. Idealerweise erfolgt die Einkopplung in das Spektrometer mit der gleichen numerischen Apertur, die auch das Spektrometer besitzt. Außerdem sollte der Spiegel für ein sensitives Spektrometer möglichst viel Licht einfangen. Dazu sollte er wenigstens so groß gewählt werden, dass die nullte Beugungsordnung des auf den Eintrittsspalt treffenden Lichtes vollständig auf den Spiegel trifft. Dieser Strahldurchmesser soll anschließend nicht von dem schräg gestellten Gitter beschnitten werden, wodurch sich die Mindestgröße des Gitters für maximale Effizienz des Spektrometers ergibt. Anschließend reflektiert das Gitter je nach Strichzahl die spektralen Anteile in unterschiedliche Richtung. Jeder Wellenlänge entspricht dabei ein paralleles Strahlenbündel. Der Durchmesser und die Brennweite des

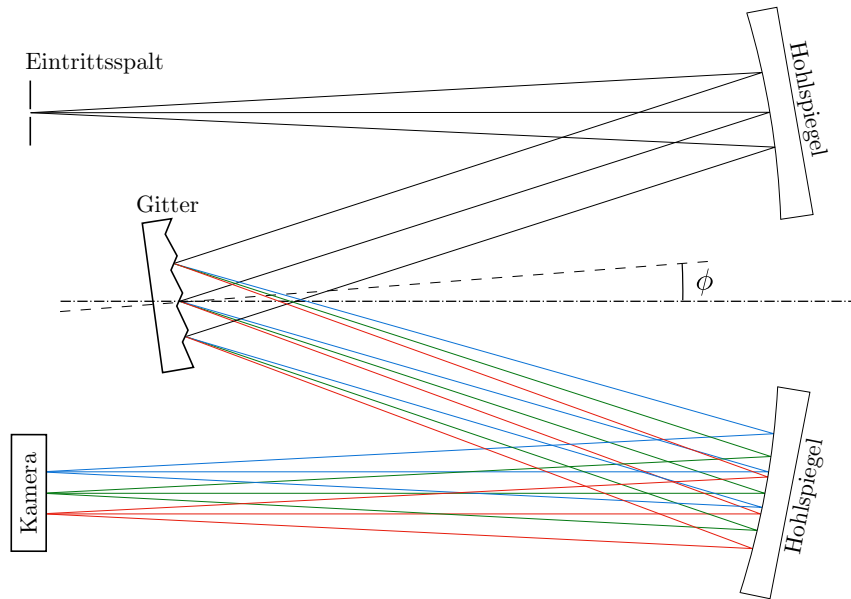


Abbildung 2.1: Funktionsprinzip eines Czerny-Turner-Spektrometers

zweiten Spiegels sind durch die gewünschte Auflösung, die spektrale Breite und die verwendete Kamera bestimmt.

Das Czerny-Turner-Spektrometer ist aufgrund seines gefalteten Aufbaus verhältnismäßig kompakt und das auftretende Koma ist wegen der entgegengesetzten Drehung der Spiegel reduziert [Cze+30]. Astigmatismus ist aber dennoch ein Problem, welches in Abschnitt 4.5.4 separat behandelt wird. Auf die ebenfalls auftretende sphärische Aberration sei an dieser Stelle hingewiesen. Da Astigmatismus aber die größten Probleme bereitet, beschränkt sich diese Arbeit auf diesen Abbildungsfehler.

# 3 | Verfahren zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse

Ultrakurze Laserpulse, also Pulse im fs-Bereich oder kürzer, sind schneller als elektrooptische Sensoren. Das bedeutet, dass selbst sehr schnelle Fotodioden Anstiegs- und Abfallzeiten haben, die länger sind, als der zu vermessende Laserpuls. Daher kann eine Fotodiode den zeitlichen Intensitätsverlauf  $I(t)$  eines ultrakurzen Laserpulses nicht auflösen. Auch wenn es auf den ersten Blick naheliegend scheint, das Spektrum  $I(\omega)$  des Laserpulses zu vermessen und die inverse Fouriertransformierte zu bilden, so entspricht dies nicht dem zeitlichen Intensitätsverlauf  $\mathcal{F}^{-1}\{I(\omega)\} \neq I(t)$ , da keine Information über den zeitlichen Verlauf des Spektrums vorliegt und somit nicht zwischen einem breitbandigen Puls oder einer kontinuierlichen Lichtquelle derselben Breite unterschieden werden kann. Ein Puls gilt daher erst als vollständig charakterisiert, wenn seine Amplitude und seine Phase als Funktion von Zeit oder Frequenz bekannt sind. Erst Verfahren, die sich optisch nichtlinearer Prozesse bedienen, liefern eben diese Informationen.

Dieses Kapitel gibt einen kurzen Überblick über Möglichkeiten zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse. Die ersten Verfahren zur Pulscharakterisierung nutzten Autokorrelation [Die+06]. Dabei wird der Puls mit sich selbst in einem nichtlinearen Medium überlagert und der eine Puls gegenüber dem anderen zeitlich verschoben. Die Intensität des Korrelationssignals wird dann in Abhängigkeit von der zeitlichen Verschiebung detektiert. Neben dieser zeitlichen Autokorrelation gibt es noch weitere Verfahren [Die+06], aber im Allgemeinen lässt sich durch Autokorrelation nur die Pulslänge bestimmen und nicht die Phase. Darüber hinaus kommt es zu Mehrdeutigkeiten. Eine vollständige Pulsbeschreibung wurde erst durch spätere Verfahren ermöglicht. Diese lassen sich hauptsächlich in interferometrische und spektrale Verfahren einteilen. Als bekannteste Vertreter der beiden Gruppen werden SPIDER („spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction“ [Iac+98]) und FROG („frequency resolved optical gating“ [Kan+93]) in den folgenden Abschnitten kurz erläutert. Zusätzlich können die Verfahren in Mehrschuss- und Einzelschusstechniken unterteilt werden. Darum geht es im letzten Abschnitt dieses Kapitels.

## 3.1 Interferometrische Verfahren

Interferometrische Methoden zur Rekonstruktion von Amplitude und Phase eines elektrischen Feldes, hier ein ultrakurzer Laserpuls, haben auf der einen Seite den Vorteil, dass sie zumeist

eine direkte, also nicht iterative, Rekonstruktion ermöglichen [Iac+98]. Das ist schnell und selbst auf leistungsschwachen Computern in Echtzeit möglich. Auf der anderen Seite wird oft ein wohl definierter Referenzpuls benötigt [Iac+98]. Das ist oft nicht nur unpraktikabel und umständlich, sondern birgt auch weitere Risiken, da sich der Fehler des Referenzpulses auf die Messung auswirkt. Darüber hinaus muss, wie der Name schon sagt, interferometrische Stabilität gewährleistet sein. Das wohl bekannteste interferometrische Verfahren ist SPIDER (spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction) [Iac+98]. Im Laufe der Zeit wurden weitere Varianten wie u.a. SEA-SPIDER [Kos+05] entwickelt. Dies soll aber nicht Gegenstand dieser Arbeit sein.

### 3.1.1 SPIDER

Bei SPIDER handelt es sich um eine selbst referenzierende, interferometrische Methode [Iac+98]. Selbst referenzierend bedeutet, dass auf den zuvor angesprochenen Referenzpuls verzichtet werden kann und somit eine Fehlerquelle eliminiert ist. Darüber hinaus ist SPIDER analytisch lösbar und somit schnell genug für Echtzeitanwendungen.

Beim SPIDER werden zwei Kopien des zu vermessenden Laserstrahls erzeugt. Die eine Kopie wird mit einer zeitlichen Verzögerung  $\tau$  versehen, was im Frequenzraum einer spektralen Verschiebung  $\Omega$  entspricht. Die andere Kopie wird z.B. mit einem Gitterkompressor oder einem dispersiven Glasblock sehr stark in der Zeitachse gestreckt. In der Konsequenz ist diese Kopie dann so aufgebaut, dass de facto eine Frequenzkomponente nach der anderen vorkommt. Alle drei Signale werden anschließend wieder in einem nichtlinearen Kristall vereinigt. Es sind kollineare und nicht-kollineare Varianten möglich. Das durch einen  $\chi^2$ -Prozess erzeugte Spektrum  $I(\omega_c)$  wird Interferogramm genannt und lässt sich wie folgt schreiben [Iac+98].

$$I(\omega_c) = |E(\omega_c)|^2 + |E(\omega_c + \Omega)|^2 + 2 |E(\omega_c)E(\omega_c + \Omega)| \cos [\phi(\omega_c + \Omega) - \phi(\omega_c) + \omega_c \tau] \quad (3.1)$$

Dabei ist  $\omega_c$  die zentrale Frequenz des Pulses. Die ersten beiden Terme in Gleichung 3.1 entsprechen dem Spektrum des zu charakterisierenden Pulses und seiner um  $\Omega$  spektral verschobenen Kopie. Der letzte Term enthält eine spektrale Phasendifferenz. Addieren der einzelnen Differenzen liefert letztlich die spektrale Phase. Die genauen Details des Algorithmus können in [Iac+98] nachgelesen werden. Die spektrale Amplitude wird aus der Messung des Pulsspektrums gewonnen, indem die Wurzel aus der Intensität des Spektrums berechnet wird.

Problematisch für SPIDER sind Pulse mit spektralen Lücken [Keu+03]. SPIDER stellt also ein einfaches und schnelles Verfahren zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse dar. Dabei kommt es während der Messung ohne bewegliche Elemente aus. Nachteilig ist hauptsächlich die erforderliche interferometrische Stabilität und die nicht eindeutige Rekonstruktion sehr komplexer Pulse, insbesondere solcher mit spektraler Lücke.

## 3.2 Spektrale Verfahren

Bei den spektralen Verfahren wird immer der zu vermessende Laserpuls mit einem oder mehreren weiteren Laserpulsen in einem nichtlinearen Kristall bzw. Medium überlagert. Das Grundprinzip ist das „optical gating“. Damit ist gemeint, dass im Fall von zwei Laserpulsen in dem Kristall der eine zeitlich gegenüber dem anderen Laserpuls verschoben wird und zu jedem Zeitpunkt das dabei erzeugte Signal analysiert wird. Im Gegensatz zum SPIDER wird dann kein 1D-Spektrum (Interferogramm) aufgenommen, sondern viele Spektren zu verschiedenen Zeiten, die aneinander gefügt ein Spektrogramm erzeugen (2D). Üblicherweise wird dies erreicht, indem auf dem Eintrittsspalt des Spektrometers an jedem Punkt das Spektrum eines anderen Zeitpunktes abgebildet wird. Verwendet man also ein astigmatismuskompensiertes Spektrometer in Kombination mit einem 2D-Array-Detektor (Kamera), entspricht das Kamerabild bereits dem Spektrogramm. Der bekannteste Vertreter der spektralen Verfahren ist FROG, um den es im folgenden Abschnitt geht. Als Grundlage dieses Abschnitts diente dabei das Buch [Tre00] von Rick Trebino. Es behandelt auch die Verfahren XFROG, Blind-FROG und Double-Blind-FROG. Diese Verfahren werden direkt nach dem FROG Verfahren kurz erläutert, da sie den Ausgangspunkt für den VAMPIRE darstellen. Die Funktionsweise und der Rekonstruktionsalgorithmus des VAMPIRE Verfahrens wird allerdings erst im folgenden Kapitel erläutert. Der vorletzte Abschnitt dieses Kapitels widmet sich der Gegenüberstellung von Einzelschuss- und Mehrschusstechniken. Eine kurze Zusammenfassung findet sich am Ende des Kapitels.

### 3.2.1 FROG

Man könnte FROG (frequency resolved optical gating) mit „Frequenz aufgelöstem optischen Abtasten“ übersetzen. Die Idee geht aus dem Namen schon fast hervor. Das zu untersuchende Signal wird in diesem Fall mit einem gate-Signal abgetastet. Abgetastet meint hier, dass der Laserpuls in einem nichtlinearen Kristall mit einem weiteren Signal (gate-Puls) überlagert wird. Die „Rückmeldung“ des Abtastens stellt das generierte nichtlineare Signal dar. Wie bei der Autokorrelation auch, dient eine Kopie des ursprünglichen Laserpulses als gate-Signal. Im Gegensatz zur Autokorrelation wird jedoch nicht der zeitliche Intensitätsverlauf des neu generierten Signals gemessen, sondern das zeitlich aufgelöste Spektrum (Spektrogramm).

Nun gibt es viele verschiedene Möglichkeiten, zwei ultrakurze Laserpulse in einem nichtlinearen Kristall zu überlagern und ein weiteres, nichtlineares Signal zu erhalten. Wie in Abschnitt 2.3 erwähnt, gibt es dabei kollineare Anordnungen und nicht-kollineare Anordnungen. Darüber hinaus gibt es Anordnungen, die eine  $\chi^2$ - oder  $\chi^3$ -Nichtlinearität ausnutzen und weitere. Im Hinblick auf die Beziehung zum VAMPIRE (siehe Kapitel 4) soll hier beispielhaft ein nicht-kollinearer SHG-FROG in Mehrschussgeometrie als Grundlage dienen.

Der SHG-FROG besitzt wegen seines  $\chi^2$ -Prozesses eine sehr hohe Effizienz im Vergleich zu anderen Verfahren, die oft auf  $\chi^3$ -Prozessen beruhen. Ein SHG-FROG im Mehrschussaufbau kann Pulse von gerade mal 1 pJ Energie charakterisieren und wird daher z.B. für unverstärkte Pulse

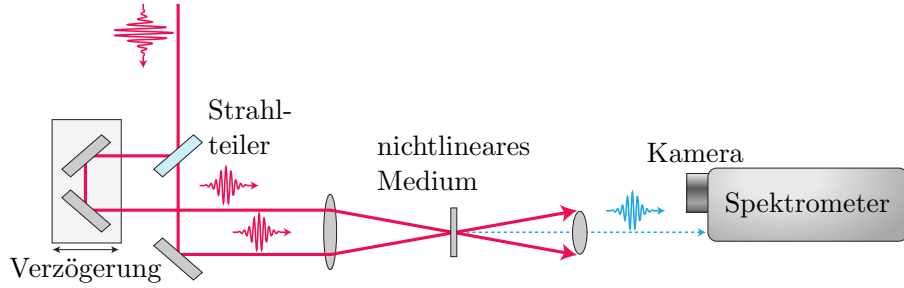


Abbildung 3.1: Prinzip eines SHG-FROG in Mehrschussgeometrie  
(Grafik abgeleitet von [Tre11])

von Ti:Sa-Oszillatoren verwendet [Tre00].

Ein schematischer Aufbau eines SHG-FROG ist in Abbildung 3.1 gezeigt. In dieser Anordnung trifft der zu vermessende Laserpuls  $E(t)$  zunächst auf einen Strahlteiler. Der eine Teil  $E(t - \tau)$  wird über eine variable Verzögerungsstrecke geführt und mittels einer Linse in einen nichtlinearen Kristall fokussiert. Damit der andere Teil  $E(t)$  zeitgleich an dem Kristall eintrifft, durchläuft er eine nicht gezeigte feste Verzögerungsstrecke und wird an die gleiche Stelle fokussiert. Dies kann über dieselbe Linse gelöst werden, wenn die Strahlen zuvor parallel geführt wurden. Das hat den großen Vorteil, dass die beiden Spots automatisch im Kristall räumlich überlagert sind. Die variable Verzögerungsstrecke dient dem Abtasten, also dem zeitlichen Verschieben eines Pulses gegenüber dem anderen Puls.

Das generierte Signal wird kollimiert und einem Spektrometer zugeführt. Um das Spektrogramm zu erhalten, können entweder die Spektren zu verschiedenen Verschiebezeiten  $\tau$  aufgenommen werden oder man synchronisiert eine Ablenkeinheit mit der variablen Verzögerungsstrecke in der Art, dass jedem Punkt des Spektrometereintrittsspalt eine andere Verschiebezeit  $\tau$  entspricht. Verbunden mit einer 2D-Kamera ist das Kamerabild dann genau das gesuchte Spektrogramm. Die beiden genannten Möglichkeiten zur Erzeugung des Spektrogramms erheben keinen Vollständigkeitsanspruch.

Mathematisch lässt sich das Spektrogramm  $I(\omega, \tau)$  wie folgt beschreiben [Tre00].

$$I(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_1(t) E_2(t - \tau) \exp^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (3.2)$$

Während bei anderen  $\chi^3$  FROG Varianten, wie „polarization gating“ FROG, das Spektrogramm dem Betrachter durch seine Intensitätsverteilung bereits verdeutlicht, ob der Puls z.B. einen up-chirp oder down-chirp besitzt, ist das SHG-FROG Spektrogramm symmetrisch bezüglich eines Zeitpunktes. Daher kann man nicht sofort erkennen, ob ein Puls einen up- oder down-chirp besitzt. Dies führt auch im Rekonstruktionsalgorithmus zu einer Doppeldeutigkeit („direction of time ambiguity“). Diese „Zeitrichtungs Doppeldeutigkeit“ lässt sich umgehen, indem z.B. eine weitere Messung mit einem verzerrten Puls aufgenommen wird [Tre00]. Dabei wird ein Stück Glas vor dem Strahlteiler platziert. Der so induzierte Chirp ist bekannt und liefert schließlich Klarheit, da nur eine Zeitrichtung in Frage kommt.

Bei komplexen Pulsen existieren weitere Mehrdeutigkeiten, beispielsweise falls der Puls mindestens eine spektrale Lücke aufweist und somit aus zwei oder mehr Einzelpulsen besteht. Denn zwei Pulse mit einer um  $\pi$  verschobenen spektralen Phase liefern das gleiche Spektrogramm [Tre00]. Betrachtet man einen Doppelpuls, so ist es sogar möglich, dass die Phase von nur einem der beiden Pulse in Zeitrichtung gespiegelt ist [Tre00].

### 3.2.2 Vom XFROG zum Double-Blind FROG

#### XFROG

XFROG ist ein Akronym für „Cross-correlation Frequency-resolved Optical Gating“ [Lin+98]. Im Gegensatz zu FROG, wo ein Laserpuls mit seiner Kopie abgetastet wird, verwendet XFROG einen bereits charakterisierten Referenzpuls  $E_{\text{Ref}}(t - \tau)$  zum Abtasten. Ist der charakterisierte Referenzpuls intensiv, kann der zu charakterisierende Laserpuls weniger intensiv sein, wodurch XFROG noch sensitiver als das ohnehin schon sensitive SHG-FROG Verfahren ist [Lin+99]. Betrachtet man das Spektrogramm, wird dieser Sachverhalt sofort deutlich.

$$I_{\text{SFG-XFROG}}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t) E_{\text{Ref}}(t - \tau) \exp^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (3.3)$$

Das Signalfeld ist das Produkt aus Referenzfeld und zu charakterisierendem Feld. Wenn das Referenzfeld nur intensiv genug ist, kann das zu charakterisierende Feld entsprechend schwächer sein und das Signalfeld ist immer noch intensiv genug, um detektiert zu werden. Möglich ist dies, da beim XFROG nicht SHG („second harmonic generation“), sondern SFG („sum frequency generation“) oder DFG („differenz frequency generation“) genutzt wird (SHG, SFG und DFG siehe Abschnitt 2.3.1). Darüber hinaus lassen sich mit XFROG auch UV-Laserpulse charakterisieren, die sonst problematisch sind, da nichtlineare Medien bei entsprechenden SHG-Wellenlängen oft nicht mehr transparent sind und Detektoren und Optiken für z.B. 200 nm nicht leicht verfügbar sind [Lin+99]. Verwendet man einen infraroten Referenzpuls um einen UV-Laserpuls zu charakterisieren, liegt das Signalfeld beim DFG-XFROG wieder etwa im infraroten Bereich, da  $\omega_{\text{Sig}} = \omega_{\text{Test}} - \omega_{\text{Ref}}$  ist [Lin+99]. Weiterhin ist vorteilhaft, dass sich die beiden Eingangsfelder nicht spektral überlappen müssen [Lin+99].

Sind die beiden Eingangsfelder unterschiedlich, tritt beim XFROG keine Zeitdoppeldeutigkeit auf [Lin+98]. Die Mehrdeutigkeit in der spektralen Phase bei Pulsen mit separierten Frequenzkomponenten ist aber dennoch auch beim XFROG gegeben [Tre00].

#### Blind FROG

In einigen Experimenten ist es zweckdienlich zwei Laserpulse gleichzeitig oder mit einem leichten Zeitversatz zu messen. Das können beispielsweise Pump-Probe Experimente sein. Blind FROG, ursprünglich als TREEFROG („Twin Recovery of E-field Envelopes FROG“) eingeführt [DeL+95], ist im Wesentlichen XFROG mit dem markanten Unterschied, dass anstelle des Referenzpulses ein unbekannter Puls verwendet wird. Insbesondere bei Pump-Probe Experimenten

könnte die Probe durch den nichtlinearen Kristall getauscht werden und falls ein Spektrometer im Aufbau steht, kann dieses womöglich gleich zur Aufnahme des Spektrogramms genutzt werden. Damit wären beide Pulse am Ort der Probe charakterisiert. Speziell bei sehr kurzen Pulsen bietet sich das an, da diese dazu tendieren selbst in Luft auseinander zu laufen.

Allerdings ist eine Rekonstruktion beider Pulse aufwändiger, da nun nur noch das Spektrogramm als Randbedingung vorhanden ist und keine Information über einen der beiden beteiligten Pulse. Betrachtet man das Spektrogramm des XFROG (Gleichung 3.3) und bildet die Wurzel davon, so entspricht die Form einer Faltung

$$h(t) = \int_{-\infty}^{\infty} f(t')g^*(t-t')dt'. \quad (3.4)$$

Sind die Funktionen  $f(t)$  und  $g(t)$  nicht bekannt und sollen bestimmt werden, spricht man von einer blinden Entfaltung. Allerdings besitzen eindimensionale Faltungen häufig Mehrdeutigkeiten. Ein Spektrogramm ist aber eine zweidimensionale Faltung ( $\omega$  und  $\tau$ ), deren blinde Entfaltung überraschenderweise unter bestimmten Bedingungen eindeutige Ergebnisse liefert [Tre00].

### Double-Blind FROG

Das eigentliche Problem des Blind FROGs ist, dass der Algorithmus langsam ist oder gar stagniert und ohne weitere Randbedingungen oft falsche Lösungen liefert [Tre00].

Double-Blind FROG (DB FROG) bzw. „Two-trace Blind FROG“ fügt Randbedingungen in Form eines zweiten Spektrogramms hinzu. Die konsequente Weiterführung des SFG oder DFG Blind FROG ist, beide Verfahren gleichzeitig anzuwenden. Möglich ist dies, wenn zwei nichtlineare Kristalle, einer für SFG und ein zweiter für DFG, zusammengefügt werden [Tre00]. Dann bleibt alles wie bei dem SFG Blind FROG mit dem Unterschied, dass das DFG-Spektrogramm ebenfalls auf das Spektrometer abgebildet werden muss. Die mathematische Beschreibung des SFG-Spektrogramms ist analog zu Gleichung 3.3, wobei  $E_{\text{Ref}}(t)$  wieder das zweite Feld  $E_2(t - \tau)$  darstellt. In dem DFG-Spektrogramm wird aus  $E_{\text{Ref}}(t)$  das komplex konjugierte Feld  $E_2^*(t - \tau)$ . Den Rekonstruktionsalgorithmus kann man sich dabei als zwei ineinander greifende XFROG-Algorithmen vorstellen, in dem ein Puls aus dem SFG-Teil des SFG-Spektrogrammbereiches den referenzierten Puls für den DFG-Teil des DFG-Spektrogrammbereiches darstellt und anders herum [Won+12].

Für Double-Blind FROG wurden bislang keine Mehrdeutigkeiten gefunden, außer trivialen Mehrdeutigkeiten wie die nullte und erste Ordnung der spektralen Phase [Won+12]. Dies wiederum bedeutet nur, dass die absolute Zeit nicht bekannt ist.

Allerdings gibt es auch keinen mathematischen Beweis, dass keine nicht-trivialen Mehrdeutigkeiten existieren.

### 3.2.3 Einzelschuss- und Mehrschusstechniken im Vergleich

Bislang wurde bei allen FROG-Varianten nur ein Zeitversatz von  $\tau$  erwähnt, der z.B. über eine Verzögerungsstrecke mit Spiegeln realisiert wird. Allerdings sind keine Verzögerungsstrecken

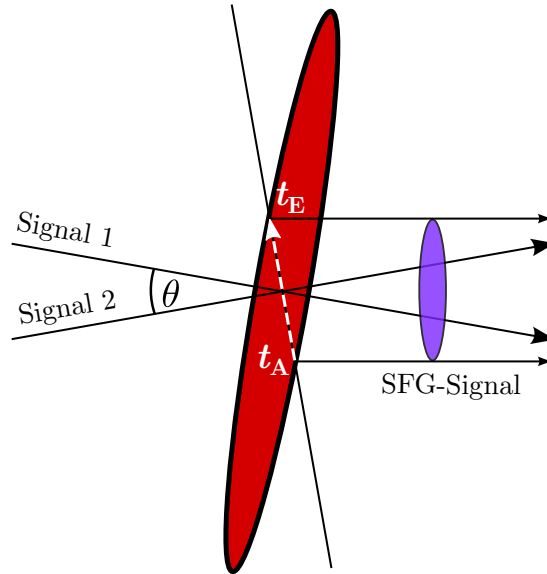


Abbildung 3.2: Prinzip der Zeitachsenerzeugung bei Einzelschusstechniken: Signal 1 und Signal 2 (nur als ein Deltapuls eingezeichnet) überlagern sich in einem nichtlinearen Kristall im Winkel von  $\theta$ . Die Zeitachse entsteht entlang der eingezeichneten gestrichelten weißen Linie.

bekannt, die schnell und präzise genug wären, innerhalb einer Pulsdauer im fs-Bereich einen einzelnen Puls entlang eines anderen Pulses zu verschieben. Daher ist es notwendig zum Abtasten viele Pulse zu verwenden. Jedes Pulspaar hat dann einen leicht unterschiedlichen zeitlichen Versatz zueinander, bis der ganze Puls abgetastet ist. Wobei der ganze Puls tatsächlich ja aus vielen Einzelpulsen besteht. Somit wird bei diesen Verfahren also nicht ein Puls sondern eine Art zeitlicher Verlauf des Mittelwertes vieler Pulse ermittelt. Diese Technik wird Mehrschusstechnik oder Mehrschussgeometrie genannt.

Der erforderliche zeitliche Versatz der Signale zueinander kann aber auch durch Wahl der Geometrie erzeugt werden. Dazu werden die Eingangsfelder nicht wie üblich mit sphärischen Optiken auf einen kleinen Spot im Kristall fokussiert, sondern mittels Zylinderoptiken auf eine Linie fokussiert. Der Begriff Linie ist hier idealisiert, da er die räumliche und zeitliche Ausdehnung eines Pulses ignoriert. Die beiden so fokussierten Linien überlagern sich räumlich und zeitlich unter einem Winkel  $\theta$  zueinander im nichtlinearen Kristall. Zum leichteren Verständnis kann der abtastende Puls als Summe von sehr vielen Pulsen, deren Pulsdauer gegen Null geht, angesehen werden. In Abbildung 3.2 ist nur ein einzelner dieser kurzen Abtastpulse zusammen mit dem zu bestimmenden Puls eingezeichnet. Man erkennt so deutlich, dass in dieser Anordnung von jedem Punkt der Überlappung ein Korrelationssignal zu einem anderen Zeitpunkt des zu bestimmenden Pulses generiert wird. Entlang der entstehenden Linie des Korrelationssignals bildet sich somit automatisch eine Zeitachse aus.

Die maximale Verzögerung  $\Delta\tau$  ergibt sich aus dem Winkel  $\theta$  der Signale zueinander im Kristall,

dem Strahldurchmesser der Eingangsstrahlen  $d$  und der Lichtgeschwindigkeit wie folgt [Tre00].

$$\Delta\tau = \frac{2d}{c} \tan\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (3.5)$$

Daher gibt es bei der Einzelschussgeometrie keine beweglichen Teile während der Messung und somit keine darauf beruhenden Verzerrungen eines Spektrogramms. Darüber hinaus können, hinreichende Intensität des Lasers vorausgesetzt, tatsächlich einzelne Laserpulse charakterisiert werden. So lassen sich beispielsweise Aussagen über die Puls zu Puls Schwankungen eines Lasers treffen. Besitzen die einzelnen Pulse nicht ausreichend Energie, kann über mehrere Pulse gemittelt werden. Da in der Einzelschussgeometrie der Laserstrahl mittels zylindrischer Optik als Linie in den nichtlinearen Kristall fokussiert wird, bekommt der räumliche Chirp, also die Veränderung des Spektrums entlang der fokussierten Linie, eine wichtige Bedeutung. Der räumliche Chirp wirkt sich dann direkt in der Zeitachse aus und kann ebenfalls zu Problemen in der Rekonstruktion führen. Weiterhin ist es wichtig ein homogenes Strahlprofil zu haben. Andernfalls können daraus ebenfalls Fehler in der Zeitachse entstehen. Gegebenenfalls muss das Strahlprofil mit einem Raumfilter bereinigt werden. Grundsätzlich lassen sich alle FROG Varianten als Mehrschuss- und Einzelschusstechnik realisieren.

Ein Aufbau in Mehrschussgeometrie hat den Nachteil, dass sich während der Messung Teile bewegen müssen, um den Abtastpuls zeitlich entlang des zu vermessenden Laserpulses zu verschieben. Dabei muss außerdem der Strahl des Korrelationssignals entlang des Eintrittsspalt des Spektrometers verfahren werden, um eine Zeitachse im Spektrogramm zu erzeugen. Beide Aktoren müssen sich möglichst linear oder wenigstens definiert und vor allem synchronisiert zueinander bewegen. Andernfalls ist das entstehende Spektrogramm verzerrt und führt zu Messfehlern oder verhindert gar eine Rekonstruktion. Vorteil ist, dass der Laserstrahl im Kristall auf einen kleinen Spot fokussiert wird. Ein räumlicher Chirp oder inhomogenes Strahlprofil des Pulses wirkt sich daher deutlich weniger auf das Messergebnis aus. Da die Eingangsfelder auf einen kleinen Bereich fokussiert werden, ist die Intensität deutlich höher als bei einem Einzelschussverfahren, bei dem die Eingangsfelder auf eine Linie fokussiert werden. Dies hat zur Folge, dass die Mehrschussgeometrie um mehrere Größenordnungen empfindlicher ist. Problematisch kann die Mehrschussgeometrie aber sein, wenn sich einzelne Laserpulse stark voneinander unterscheiden. Selbst wenn einzelne Pulse eines Oszillators oder Verstärkers ausgekoppelt werden können, ist eine gewisse Mindestanzahl an Pulsen notwendig, um den einen Puls gegenüber dem anderen Puls zu verschieben. Die Mindestanzahl hängt dabei von der gewünschten Zeitauflösung oder vielmehr von dem Zeitinkrement und der Pulslänge ab.

### 3.3 Zusammenfassung

Im Wesentlichen lässt sich Pulscharakterisierung in interferometrische Verfahren, wie SPIDER, und spektrale Verfahren, wie FROG, unterteilen. Daneben gibt es auch Mischformen (z.B. TAD-

POLE Akronym für „temporal analysis, by dispersing a pair of light e fields“ [Fit+96]) und tomographische Verfahren (z.B. TURTLE Akronym für „tomographic ultrafast retrieval of transverse light E-fields“ [Sch+08]), auf die hier nicht näher eingegangen wurde.

SPIDER kommt ohne iterativen Algorithmus aus und liefert direkt die Lösung. Jedoch besitzt SPIDER Doppeldeutigkeiten in der spektralen Phase bei Pulsen mit spektralen Lücken [Keu+03]. Alle spektralen Verfahren beruhen dagegen auf einem iterativen Rekonstruktionsalgorithmus zur Bestimmung des zeitlichen Amplituden- und Phasenverlaufes. Leider fehlt es an einem mathematischen Beweis, dass eine gefundene Lösung auch tatsächlich die richtige Lösung ist. Es ist von einigen Verfahren bekannt, dass sie Mehrdeutigkeiten besitzen, weshalb weitere Randbedingungen hinzugefügt (siehe DB FROG aus Abschnitt 3.2.2) oder neue Verfahren entwickelt wurden. Generell besteht der Wunsch lineare Verfahren zu finden oder wenigstens mit  $\chi^2$  Verfahren Pulse zu charakterisieren, um ein möglichst sensitives Verfahren zu besitzen. Idealerweise ist das Verfahren spektral (keine interferometrische Stabilität notwendig), in Einzelschussgeometrie (keine beweglichen Komponenten, keine zwingende Mittelung über viele Pulse) und ein mathematischer Beweis für Existenz und Eindeutigkeit einer Lösung liegt vor.



## 4 | Pulscharakterisierung mittels Einzelschuss - VAMPIRE

Im vorhergehenden Kapitel wurde das Problem der Eindeutigkeit einer Lösung parallel jeweils kurz angesprochen. 2004 wurden in [Sei+04] neben nichttrivialen Mehrdeutigkeiten auch die Bedingungen für die Eindeutigkeit einer Lösung aufgezeigt. Da auch der SHG-FROG formal dem Blind FROG für  $E_1(t) = E_2(t)$  entspricht und XFROG genau genommen ebenso ein Blind FROG ist (Referenzpuls als Randbedingung hinzugefügt), treffen die Aussagen gleichermaßen auf diese Verfahren zu.

Aus dem Blind FROG wurde mit dem Wissen aus [Keu+03] und [Sei+04] ein neues Pulscharakterisierungsverfahren entwickelt. Es ist mit dem Namen VAMPIRE („very advanced method for phase and intensity retrieval of e-fields“) in 2009 veröffentlicht worden [Sei+09]. Zwei Jahre später wurde ein softwarebasiertes Verfahren zur automatischen Erkennung von Gefäßen in der Netzhaut auf denselben Namen getauft („Vessel Assessment and Measurement Platform for Images of the REtina“ [PR+11]). Dieses Verfahren hat nichts mit dem hier beschriebenen VAMPIRE zu tun und wird daher nicht weiter beschrieben. Bei der hier beschriebenen Technik wird der Blind FROG um Filterelemente erweitert, die die Eindeutigkeitsbedingungen aus [Sei+04] sicherstellen. Zusätzlich werden Randbedingungen in Form der ursprünglichen Pulsspektren in den Rekonstruktionsalgorithmus eingebracht, der so schneller konvergiert.

In diesem Kapitel wird zunächst das VAMPIRE Verfahren erklärt und anschließend der Rekonstruktionsalgorithmus schematisch erläutert.

Während in [Sei+09] eine Mehrschussversion des Verfahrens realisiert wurde, wird im Folgenden eine Einzelschussversion vorgestellt. Dabei wurde besonderes Augenmerk darauf gelegt, dass einer der beiden Pulse kein dispersives Medium durchläuft und somit möglichst unverändert bleibt. In den Unterabschnitten finden sich außerdem detaillierte Ausführungen über die Bestimmung einer geeigneten Spektrometerkamera für das SFG-Signal sowie die Dimensionierung und Optimierung der gebauten Spektrometer. Zusätzlich wird auf die Kristalle BBO und BIBO sowie erste Testmessungen mit diesen eingegangen. Abschließend wird an ausgewählten Messungen die vollständige Rekonstruktion demonstriert sowie potentielle Fehlerquellen aufgezeigt.

## 4.1 VAMPIRE

Während bei einigen FROG Varianten Mehrdeutigkeiten bekannt sind, wurden beispielsweise beim XFROG noch keine gefunden. Das bedeutet aber nicht, dass diese Verfahren immer eindeutige Lösungen liefern. Kommt man zu Pulsen mit spektralen Lücken, wie z.B. Soliton-Molekülen [Hau+07], versagt auch das SPIDER Verfahren, da die spektrale Phase an dieser Stelle nicht wohl definiert ist und es zu Phasensprüngen um  $\pi$  kommen kann [Sei+09].

In [Sei+04] wird gezeigt, dass es nicht ausreicht, zusätzlich zum Spektrogramm die Spektren der Eingangsfelder als Randbedingung für die Rekonstruktion zu nutzen. Aber es ist hilfreich, da die übrigen Mehrdeutigkeiten durch ein nicht-zentralsymmetrisches Spektrogramm und Bedingungen an einen der beiden Laserpulse umgangen werden können. Konkretisiert können die Anforderungen an die Eindeutigkeit der Lösung aus [Sei+04; Sei+09] wie folgt zusammengefasst werden:

1. Das Spektrogramm darf nicht zentralsymmetrisch bezüglich einer Zeitachse sein.
2. Die Spektren der Eingangspulse müssen bekannt sein.
3. Das Abtastsignal muss das zu bestimmende Signal spektral lückenlos überlappen.

Da, wie auch bei dem Blind FROG Verfahren, beide Laserpulse charakterisiert werden, kann der Abtastpuls so modifiziert werden, dass beide Pulse zusammen ein nicht-zentralsymmetrisches Spektrogramm erzeugen.

In diesem Kapitel wird für die mathematische Beschreibung die Notation aus [Sei+09] übernommen. Die Frequenz des SFG-Spektrometers ist  $\Omega$ , die Verzögerung ist  $\tau$ . Die Frequenz des Eingangsfeldes ist  $\omega$ . Das Spektrogramm lässt sich nun mittels einer Amplitudenfunktion

$$G(\omega, \Omega) = |E_1(\omega)| |E_2(\Omega - \omega)| \quad (4.1)$$

und einer Phasenfunktion

$$P(\omega, \Omega) = \phi_1(\omega) + \phi_2(\Omega - \omega) \quad (4.2)$$

wie folgt schreiben [Sei+09]:

$$I(\Omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega, \Omega) \exp^{iP(\omega, \Omega)} \exp^{i\omega\tau} d\omega \right|^2. \quad (4.3)$$

Bei dem VAMPIRE Verfahren werden die Spektren der Eingangspulse ebenfalls gemessen, weshalb die Funktion  $G(\omega, \Omega)$  sofort für die Rekonstruktion zu Verfügung steht. Darüber hinaus verfügt der Strahlengang des zweiten Eingangsfeldes (Signal 2) über einen Aufbereitungsfilter („conditioning filter“), der in der Lage ist, die spektrale Phase  $\phi_2(\Omega - \omega)$  und die temporale Phase  $\phi_2(t - \tau)$  so zu ändern, dass die Bedingungen an das Spektrogramm erfüllt sind [Sei+09]. In Abbildung 4.1 ist eine vereinfachte, mögliche Realisierung eines Einzelschuss-VAMPIREs skizziert. Der Filter für die spektrale Phase kann aus einem Mach-Zehnder-Interferometer bestehen, in dessen einem Arm ein dispersives Medium steht - beispielsweise ein SF10-Glas von ein paar cm Dicke. Die Änderung der spektralen Phase sorgt, wie in Abschnitt 2.2 beschrieben, für eine zeitliche Dehnung des Pulses zusammen mit einem Chirp. Das Spektrogramm besteht nun

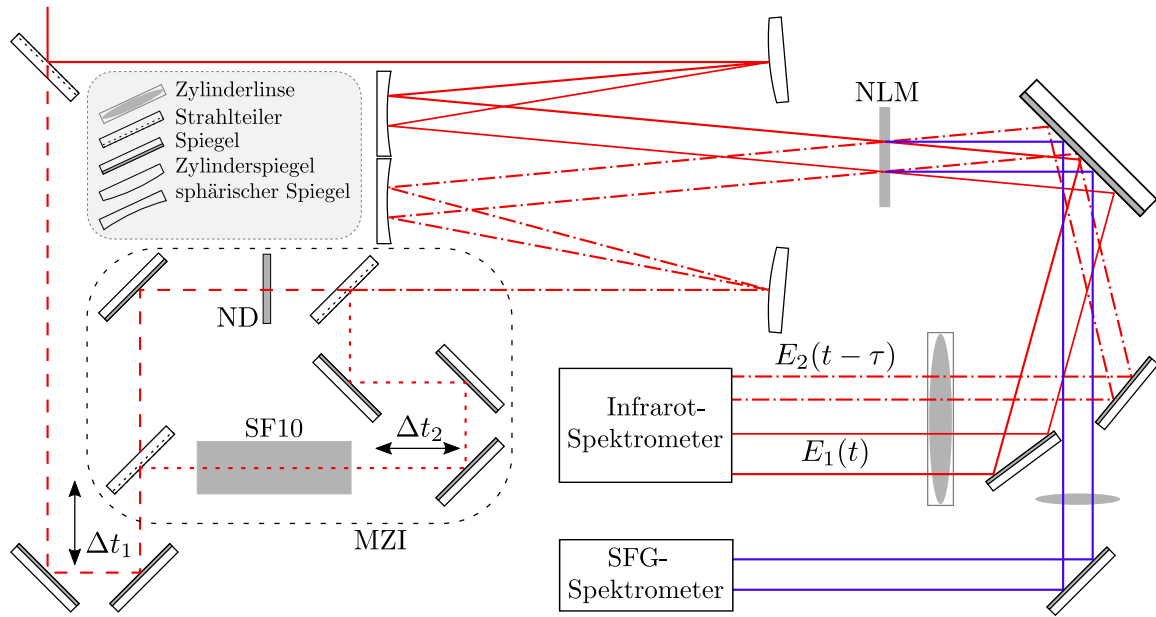


Abbildung 4.1: Prinzipskizze eines Einzelschuss-VAMPIREs

Die Verzögerungen  $\Delta t_1$  und  $\Delta t_2$  sind unabhängig von der zeitlichen Verschiebung  $\tau$ . Diese entsteht direkt in dem nichtlinearen Medium (NLM).  $\Delta t_1$  und  $\Delta t_2$  dienen der zeitlichen Verschiebung der Teilpulse von  $E_2(t - \tau)$  gegenüber  $E_1(t)$ .

(MZI - Mach-Zehnder-Interferometer als Aufbereitungsfilter, ND - Neutraldichtefilter, SF10 - Glasblock z.B. aus SF10)

nicht mehr nur aus einem SFG-Signal, sondern vielmehr aus zwei SFG-Signalen, wobei das eine die Kreuzkorrelation von Signal 1 und dem gechirpten Teil von Signal 2 darstellt und das andere SFG-Signal aus der Kreuzkorrelation von Signal 1 und dem anderen Teil von Signal 2 besteht. Aufgrund des eingefügten Chirps kann sichergestellt werden, dass das Spektrogramm nicht zentralsymmetrisch ist. Der Filter für die temporale Phase sorgt dafür, dass auch die letzte Anforderung erfüllt ist. Dabei ist sicherzustellen, dass Signal 2 das zu charakterisierende Signal 1 spektral vollständig und lückenlos überdeckt. Diese Bedingung lässt sich leicht prüfen, da die Spektren der beiden Pulse aufgenommen werden. Als Filter wird in [Sei+09] vorgeschlagen, eine eventuelle spektrale Lücke in Signal 2 durch Selbstphasenmodulation, z.B. in einer Glasfaser, zu schließen. Es kann natürlich auch ein externer fs-Laser verwendet werden. Es ist allerdings darauf zu achten, dass dieser breitbandig genug ist und keine spektralen Lücken aufweist. Die Zentralwellenlängen können voneinander abweichen [Sei+09].

## 4.2 Rekonstruktionsalgorithmus des VAMPIREs

Das VAMPIRE Verfahren basiert auf dem Blind FROG. Dennoch kommt hier ein neuer Algorithmus zum Tragen. Dieser soll im Folgenden kurz erläutert werden. Es sei an dieser Stelle auf die

Quellen [Sei+09; Sei+14] verwiesen. Insbesondere [Sei+14] erläutert den Algorithmus genauer, als es an dieser Stelle möglich ist, weshalb dieser Abschnitt nur [Sei+14] zusammenfasst.

Wie zuvor beschrieben, ergibt sich das Spektrogramm nach Gleichung 4.3. Die Integrationsgrenzen sind dort mit  $-\infty$  bis  $\infty$  angegeben. Für eine erfolgreiche Rekonstruktion müssen die Informationen natürlich im Spektrogramm enthalten sein, weshalb am Rand des Spektrogramms möglichst keine Intensität mehr vorhanden ist. Tatsächlich sind die Integrationsgrenzen also endlich. Die Funktionen  $G(\omega, \Omega)$  und  $P(\omega, \Omega)$  sind in den Gleichungen 4.1 und 4.2 definiert, wobei  $|E_1(\omega)|$  und  $|E_2(\omega)|$  durch separate Messung bereits bekannt sind. Die einzig unbekannte Funktion ist also  $P(\omega, \Omega)$  mit den darin enthaltenen Phasen  $\phi_1(\omega)$  und  $\phi_2(\omega)$ . Jeder Frequenz  $\Omega$  des Spektrogramms kann nun ein eindimensionales Phasenproblem zugeordnet werden.

$$|E_\Omega(\tau)| \propto \left| \int G_\Omega(\omega) \exp^{iP_\Omega(\omega)} \exp^{i\omega\tau} d\omega \right| \quad (4.4)$$

Die Lösung jedes Phasenproblems ist wegen des nicht zentralsymmetrischen Spektrogramms eindeutig [Sei+04]. Zur Lösung kann der Gerchberg-Saxton Algorithmus [Ger+72] verwendet werden. Es ist zwar bekannt, dass der Algorithmus schnell stagniert, aber mit günstigen Startwerten kann dies umgangen werden [Sei+14]. Da  $|E_\Omega(\omega)|$  und  $G_\Omega(\omega)$  sich nur langsam entlang  $\Omega$  ändern, ist eine Lösung des Phasenproblems für  $\Omega$  ein guter Startwert für das Phasenproblem an den Stellen  $\Omega + \Delta\Omega$  und  $\Omega - \Delta\Omega$ . Es ist zwar trotzdem möglich, dass der Gerchberg-Saxton Algorithmus stagniert, aber in diesem Fall kann er mit veränderten Startbedingungen neu gestartet werden.

Da die absolute Phase unbestimmt ist, bestimmt der Lösungsalgorithmus nur eine Phase, die sich aus der relativen Phase  $P(\omega, \Omega)$  und einer beliebigen Funktion  $F(\omega, \Omega)$  zusammensetzt [Sei+14]

$$\exp^{ih(\omega, \Omega)} = \exp^{iP(\omega, \Omega)} \exp^{iF(\Omega)}. \quad (4.5)$$

Mit der normierten, komplexen Funktion  $X(\Omega) = \exp^{iF(\Omega)}$  lässt sich die Matrix

$$M(\omega, \Omega) = G(\omega, \Omega) \exp^{iP(\omega, \Omega)} X(\Omega) \quad (4.6)$$

$$= E_1(\omega) E_2(\Omega - \omega) X(\Omega) \quad (4.7)$$

bilden. Da  $X(\Omega)$  nicht von  $\omega$  abhängt, lässt sich  $X(\Omega)$  durch Mittelung über  $\omega$  aus der Gleichung 4.7 ableiten und es ergibt sich somit

$$X(\Omega) \propto \sum_{\omega} \frac{M(\omega, \Omega)}{E_1(\omega) E_2(\Omega - \omega)}. \quad (4.8)$$

Wird die Matrix  $M(\omega, \Omega)$  durch  $X(\Omega)$  geteilt, verbleibt die Matrix  $M_1(\omega, \Omega)$  mit den ursprünglichen Feldern

$$M_1(\omega, \Omega) = M(\omega, \Omega) / X(\Omega) = M(\omega, \Omega) X^*(\Omega) \quad (4.9)$$

$$= E_1(\omega) E_2(\Omega - \omega). \quad (4.10)$$

Durch Substitution von  $\Omega' = \Omega - \omega$  ergibt sich

$$M_2(\omega, \Omega') = M_1(\omega, \Omega' + \omega) = E_1(\omega)E_2(\Omega'). \quad (4.11)$$

Da die elektrischen Felder eindimensionale Vektoren sind, wird die Matrix  $M_2(\omega, \Omega')$  wie folgt gebildet

$$M_2(\omega, \Omega') = E_1^T(\omega)E_2(\Omega'). \quad (4.12)$$

Bilden der Pseudoinversen

$$E_1(\omega) \propto E_2^*(\Omega')M_2^T(\omega, \Omega') \quad (4.13)$$

und

$$E_2(\Omega') \propto E_1^*(\omega)M_2(\omega, \Omega') \quad (4.14)$$

liefert die elektrischen Eingangsfelder, die dann zur nächsten Iteration beginnend mit Gleichung 4.8 genutzt werden [Sei+14]. Der Ablauf des Algorithmus ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Im ersten Schritt werden mit dem Gerchberg-Saxton Algorithmus und mit Hilfe der Spektren  $I_1(\omega)$ ,  $I_2(\omega)$  und den Zeilen  $I_\Omega(\tau)$  des Spektrogramms die eindimensionalen Phasenprobleme gelöst. Dabei wird die Lösung  $\exp^{ih_\Omega(\omega)}$  für das Phasenproblem bei der nächsten Frequenz  $\Omega = \Omega + \Delta\Omega$  verwendet. Als Ergebnis dieser Schleife werden die einzelnen  $G_\Omega(\omega)$  und  $\exp^{ih_\Omega(\omega)}$  als Vektoren  $G(\omega, \Omega)$  und  $\exp^{ih(\omega, \Omega)}$  zusammengefasst und an die zweite Stufe übergeben. Dort findet die Singulärwertzerlegung statt und liefert nach wenigen Iterationen die komplexen Felder  $E_1(\omega)$  und  $E_2(\omega)$ .

Der Algorithmus ist vergleichsweise schnell und robust, eignet sich aber nicht generell für ein Blind FROG Schema, da die Eindeutigkeit aufgrund des fehlenden Aufbereitungsfilters nicht gegeben ist [Sei+09].

### 4.3 Aufbau eines Einzelschuss-VAMPIREs

Die in [Sei+09] realisierte Mehrschussversion des VAMPIREs hat den Nachteil, wie jedes andere Mehrschussverfahren auch, dass während der Messung optische Komponenten bewegt werden müssen, um den Abtastpuls entlang des zu vermessenden Pulses zu verschieben. Besonders kritisch ist dabei, dass der Abtastweg möglichst linear sein muss und eine zweite Bewegung dazu synchronisiert den Strahl in einem Winkelbereich ablenkt. So wird jedem Zeitpunkt  $\tau$  ein Punkt entlang des Spektrometerspaltes zugeordnet. Geschieht dies nicht auf definierte Weise, ist das Spektrogramm verzerrt und ein Entzerren ist dann nur mit Zusatzinformationen möglich. Eine Rekonstruktion der Pulse würde folglich falsche Ergebnisse liefern oder fehlschlagen.

Bei Einzelschussverfahren, beispielsweise auch beim Einzelschuss-FROG oder andere Verfahren, werden der zu vermessende Puls und der Abtastpuls in einem spitzen Winkel zueinander mit einer Zylinderlinse auf einen nichtlinearen Kristall fokussiert. Es bilden sich dabei zwei Linien fokussierten Lichtes. Wie in Abschnitt 3.2.3 erläutert, rastern diese sich aufgrund der geometrischen Anordnung gegenseitig ab. Es gibt nun keine beweglichen Komponenten mehr und die

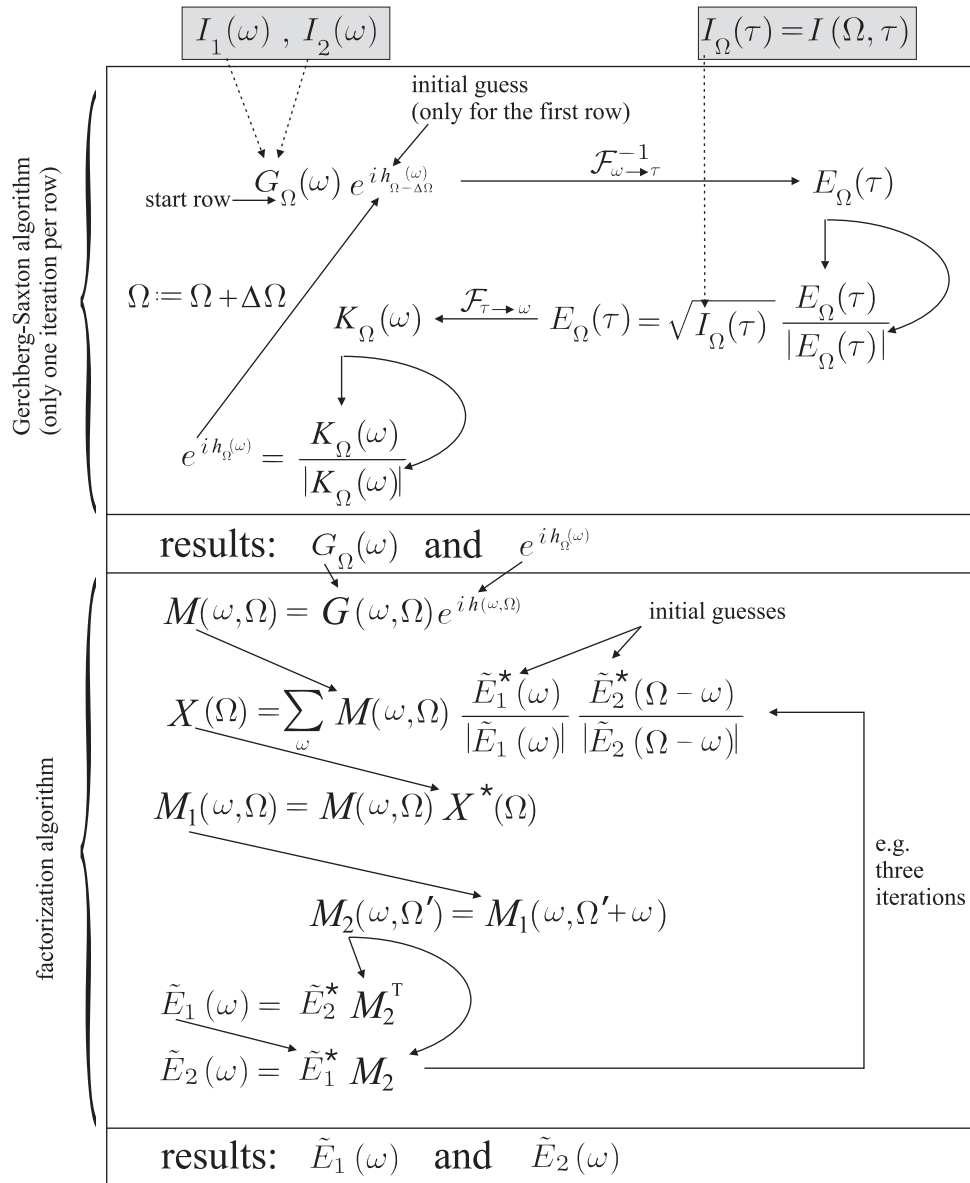


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des VAMPIRE-Algorithmus aus [Sei+14]

Zeitachse bildet sich entlang der Linie der Überlappungsvolumina. Die Zeitachse ist automatisch linear und kann direkt auf das Spektrometer abgebildet werden, um das Spektrogramm zu erzeugen. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass zwingend ein abbildendes Spektrometer verwendet werden muss. Damit ist vor allem gemeint, dass es astigmatismuskorrigiert sein muss. Andernfalls wäre entweder die spektrale oder die zeitliche Auflösung des Spektrogramms schlecht oder gar beide.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Einzelschussversion des VAMPIREs in SFG-Anordnung entwickelt. Dabei wurde besonderes Augenmerk darauf gelegt, dass der zu vermessende Laserpuls (Signal 1) keine unnötige Veränderung durch dispersive Medien erfährt. Der Strahlengang wurde deshalb so entworfen, dass das erste dispersive Medium, welches der Laserpuls erfährt, der nichtlineare Kristall ist. Sämtliche Strahlteiler sind von der Firma Newport und besitzen spezielle Antireflex-Beschichtungen mit einer geringen Gruppengeschwindigkeitsdispersion auf Vorder- und Rückseite, um eine Pulsdispersion zu verhindern. Sie sind optimiert für Wellenlängen von 700 nm bis 950 nm und damit ideal für Ti:Sa-Laser. Analog zum ZAP-SPIDER („zero-additional-phase“ SPIDER) [Bau+04] handelt es sich hier um einen ZAP-VAMPIRE.

Dieser VAMPIRE wurde auf einer 120 cm x 60 cm großen und 25 mm dicken Lochraster-Grundplatte aus Aluminium mit Wabenstruktur im Innern (Thorlabs PBG51507) aufgebaut. Sie ist sehr leicht, bietet aber genug Stabilität. Der gesamte Aufbau ist daher transportabel. Auf der Grundplatte finden alle Komponenten bequem Platz und Umrüstungen sind flexibel möglich. Ebenfalls auf dieser Grundplatte finden sich die beiden in Abschnitt 4.5.1 und in Abschnitt 4.5.2 vorgestellten Spektrometer. Sie wurden auf massiven Aluminiumgrundplatten mit Lochraster aufgebaut und senkrecht auf der großen Grundplatte montiert. Die Eintrittsspalte der beiden Spektrometer sind daher parallel zum optischen Tisch.

Abbildung 4.3 zeigt ein Foto des Aufbaus, jedoch ohne die Spektrometer. Zum besseren Verständnis wurde der Strahlenverlauf eingezeichnet.

Die ersten beiden Spiegel dienen der flexiblen Einkopplung in den VAMPIRE, welche durch die beiden Blenden, im Bild mit einem B gekennzeichnet, überprüft werden kann. So muss nach einem Standortwechsel nicht der gesamte Aufbau neu justiert werden. Der Strahlteiler ST1 reflektiert den zu vermessenden Puls  $E_1(t)$  und separiert einen Anteil, der den Aufbereitungsfiler durchläuft. Der Filter ist hier durch ein Mach-Zehnder-Interferometer realisiert. Strahlteiler ST2 trennt den Strahl auf, während Strahlteiler ST3 die beiden resultierenden Strahlen wieder in einem vereinigt. In dem linken Arm des Interferometers befindet sich ein Filterrad mit verschiedenen dicken Gläsern der Sorte SF10 und ZF4. Da die Gläser gehaltert sind, können auch leicht mehrere Gläser hintereinander angeordnet werden. Im oberen Arm ist ein weiteres Filterrad mit metallischen Graugläsern mit optischen Dichten von 0.04 bis 2.5 (Newport 5249NF) eingefügt. So kann schnell und flexibel dafür gesorgt werden, dass beide Anteile des Interferometers ein ähnlich intensives SFG-Signal erzeugen. Das ist hilfreich, damit nicht einer der beiden SFG-Anteile ein schlechteres Signal-zu-Rausch-Verhältnis bekommt. Im Aufbau sind drei Verzögerungsstrecken mit delay gekennzeichnet. Diese Verzögerungen haben nichts mit dem  $\tau$  zu tun, welches den zeit-

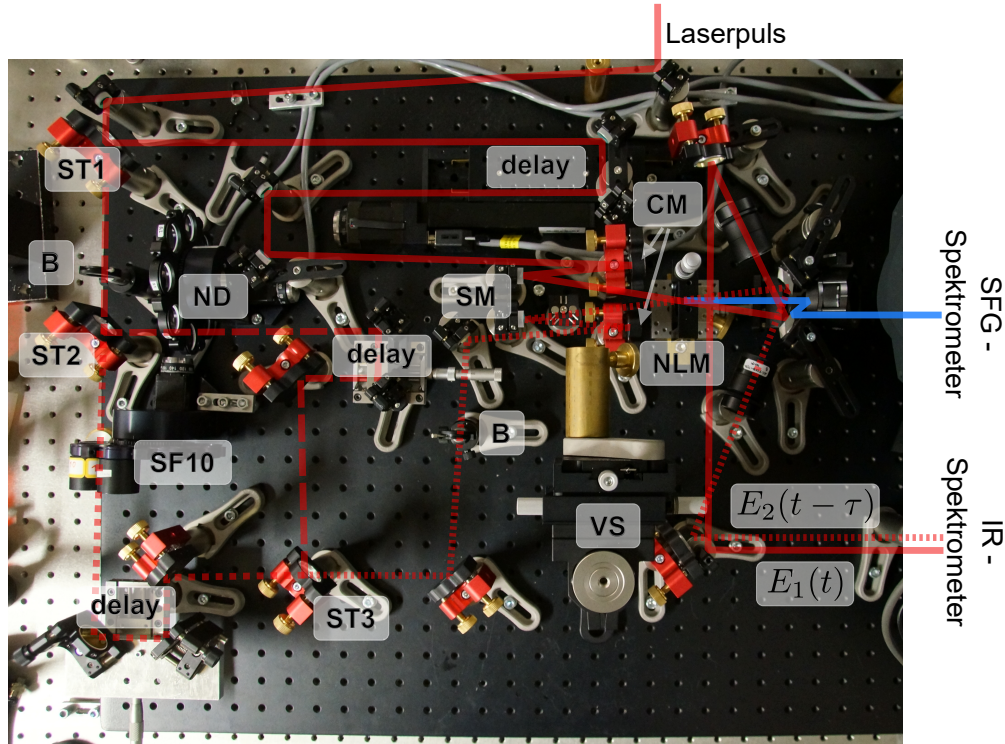


Abbildung 4.3: Foto des Einzelgeschoss-VAMPIRE Aufbaus mit eingezeichnetem Strahlengang (Draufsicht).

Der Laserpuls wird mittels Strahlteiler 1 (ST1) in zwei Signale zerlegt. Beide Signale werden durch spiegelnde Zylinderoptiken zu Linien fokussiert, die sich im Kristall überlagern und das nichtlineare Korrelationssignal erzeugen. Der Bereich zwischen ST2 und ST3 macht den Aufbereitungsfilter aus.

(B - Blende, ND - Grauglas, SM- sphärischer Spiegel, CM - zylindrischer Spiegel, VS-vertikale Stange, NLM - nichtlineares Medium)

Weitere Erläuterungen siehe Text.

lichen Versatz der beiden Signale zueinander bezeichnet. Sie dienen vielmehr dem Abgleich der unterschiedlichen Wegstrecken, damit alle drei Laserpulse quasi zeitgleich im Kristall ankommen. Die oberste Verzögerungsstrecke hat einen sehr weiten Verfahrensweg und dient hauptsächlich dem Abgleich der Wegunterschiede, falls der Strahlteiler ST1 nicht genutzt wird und  $E_2(t - \tau)$  separat eingekoppelt werden soll.

Die Fokussierung der Laserpulse zu Linien ist hier nicht wie üblich mit einer Zylinderlinse gelöst, sondern mit vier Spiegeln. Die beiden mit CM gekennzeichneten Spiegel sind konvexe Zylinderlinsen mit einem Krümmungsradius von 51,5 mm, die mit einer dielektrischen HR800-Beschichtung von Laser Components GmbH verspiegelt wurden. HR steht dabei für „high reflectivity“ und 800 für die Zentralwellenlänge der für fs-Pulse optimierten Spiegelbeschichtung. Die Bandbreite beträgt ca. 200 nm. Die zylindrischen Spiegel wurden so angeordnet, dass sie die Laserstrahlen in der Ebene parallel zum optischen Tisch aufweiten. Die aufgeweiteten Laserstrahlen

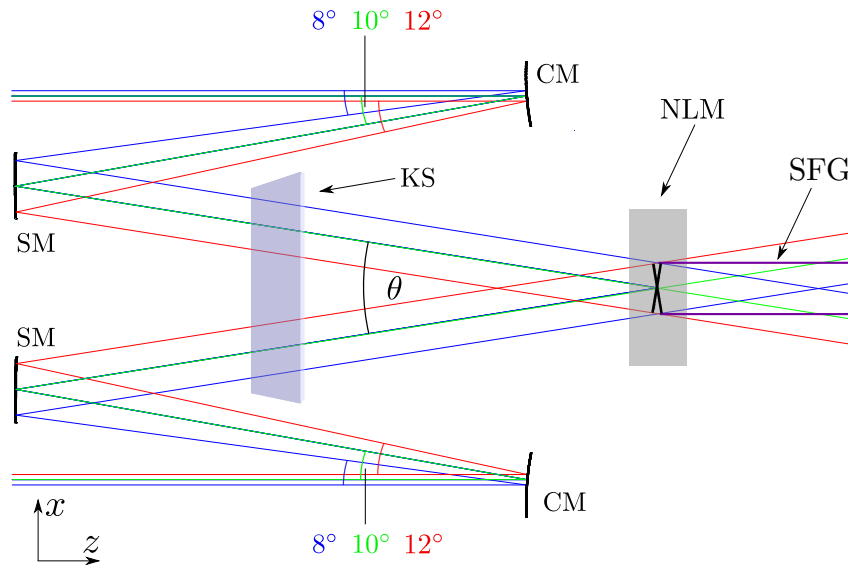


Abbildung 4.4: Strahlaufweitung und Fokussierung zu Linien (Draufsicht). Der gezeichnete Bereich entspricht in Abbildung 4.3 etwa dem Bereich zwischen den Bezeichnungen SM und NLM.

(CM - Zylinderspiegel, SM - sphärischer Spiegel, KS - 45° Umlenkspiegel nach oben (über Magnethalterung variabel einzusetzen), NLM - nichtlineares Medium,  $\theta$  - Winkel zwischen den beiden Eingangspulsen) Weitere Erläuterungen im Text.

werden dann in dieser Ebene mit den beiden sphärischen Spiegeln SM wieder parallelisiert. Die sphärischen Spiegel haben eine Brennweite von 125 mm und sind mit einer für leicht schrägen Lichteinfall angepassten HR800 Beschichtung versehen. In der Ebene senkrecht zum optischen Tisch werden die Laserstrahlen durch die sphärischen Spiegel fokussiert. So ergibt sich für jeden der drei Laserstrahlen eine fokussierte Linie in dem nichtlinearen Kristall. Zuvor wurde diese Anordnung in einem Raytracing-Programm (Zemax) simuliert und dabei günstige Kombinationen aus Brennweiten und Abständen getestet. Abbildung 4.4 zeigt die Draufsicht dieser eindimensionalen Strahlaufweitung.

Um ein Summenfrequenzsignal zu erhalten, müssen sich die Pulse in Raum und Zeit überlagern und zusätzlich muss der Kristall in zwei Achsen richtig gedreht sein und möglichst im Brennpunkt stehen. Es ergeben sich daraus eine Vielzahl an Freiheitsgraden. Stimmt auch nur ein Freiheitsgrad nicht, ist die Summenfrequenzgenerierung sehr ineffizient bis unmöglich. Daher ist es wichtig, strukturiert nach dem Signal zu suchen. Für die Justage hat es sich als äußerst hilfreich erwiesen, zwischen den sphärischen und den zylindrischen Spiegeln eine magnetische Basisplatte zu montieren. Darauf kann ein Spiegel (in Abbildung 4.4 mit KS bezeichnet) auf einem 45° Adapter mit einem magnetischen Gegenstück befestigt werden. Auf diese Art und Weise ist es möglich, die Strahlen senkrecht nach oben abzulenken. Zusätzlich wurde eine massive vertikale Stange (in Abbildung 4.4 mit VS bezeichnet) auf der großen Grundplatte befestigt, an der über

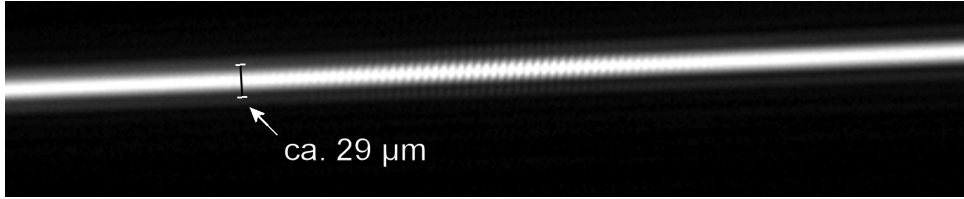


Abbildung 4.5: Interferenz zweier zu Linien fokussierter Laser (aufgenommen mit einer Edmund Optics EO-5012M Kamera). Die Interferenz ist nur in der Mitte sichtbar, da der Laser während der Messung im pulsierenden Betrieb lief. Andernfalls wäre die Interferenz über die gesamte Breite sichtbar. Da die Kamera lediglich der Justierung dient, wurde kein Wert darauf gelegt, dass der Laser parallel zu einer Chipkante ausgerichtet ist.

zwei Verschiebetische eine Aufnahme für weitere Detektoren befestigt ist. Wird nun eine sehr schnelle Photodiode an die Stelle des neuen Brennpunktes platziert und diese an ein schnelles Oszilloskop angeschlossen, ist ein grober Weglängenabgleich möglich ( $10 \text{ ps} \approx 3 \text{ mm}$ ). Dazu werden durch Verändern der Weglängen die Pulse auf dem Oszilloskop zum Überlapp gebracht. Die Genauigkeit liegt dabei allerdings nur im mm-Bereich. Ist der grobe Abgleich erfolgt, kann anstelle der Photodiode eine Kamera mit möglichst kleinen Pixeln in dem gemeinsamen Brennpunkt platziert werden. Damit ist ein sehr genauer Weglängenabgleich möglich. Die Interferenzlänge von fs-Laserpulsen liegt in der Größenordnung der Pulsdauer und somit kann die Interferenz zweier Pulse nur dann direkt im Kamerabild beobachtet werden, wenn die Wege gleichlang sind. Bei einem Puls von  $100 \text{ fs}$  liegt die Genauigkeit im unteren  $\mu\text{m}$ -Bereich. Eine Aufnahme mit einer Edmund Optics Kamera vom Typ EO-5012M mit  $2,2 \mu\text{m}$  großen Pixeln ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Der Bereich der Interferenz ist auf dem Sensor knapp  $300 \mu\text{m}$  lang.

Die Breite der Linie kann wie folgt berechnet werden. Der Fleckdurchmesser eines fokussierten Gauß-Strahls ergibt sich zu [Eic+10]

$$2\omega_0 \geq \frac{4\lambda}{\pi} \frac{f}{D}. \quad (4.15)$$

Dabei ist  $\omega_0$  der kleinste Radius des fokussierten Strahls,  $\lambda$  die Wellenlänge des Lichtes,  $f$  die Brennweite der Linse und  $D$  der Durchmesser der Linse oder der Durchmesser des Strahls an der Linse - je nachdem was kleiner ist. Die Höhe des aufgeweiteten Laserstrahls betrug auf dem sphärischen Spiegel etwa die Hälfte seines Durchmessers also  $D = 0,5''/2 = 6,35 \text{ mm}$ . Wird die Wellenlänge von etwa  $\lambda = 800 \text{ nm}$  und die Brennweite des Spiegels von  $f = 125 \text{ mm}$  berücksichtigt, liegt der erwartete Wert für die Fokusbreite der Linie am Ort des Kristalls bei  $\geq 20 \mu\text{m}$ . Anhand des Kamerabildes lässt sich die Fokusbreite grob bestimmen. Dazu wurde die Intensität senkrecht zu der Linie in einem Diagramm eingetragen (blaue durchgezogene Linie in Abbildung 4.6) und daran eine Gauß-Kurve angelegt (grün gestrichelt). Zusätzlich wurde die Intensität  $1/e^2$  eingezeichnet (orange gepunktet-gestrichelt). An der Intensität der Aufnahme ist erkennbar, dass die Kamera leicht überbelichtet ist, daher ist die maximale Intensität der Gauß-Kurve gleich 1

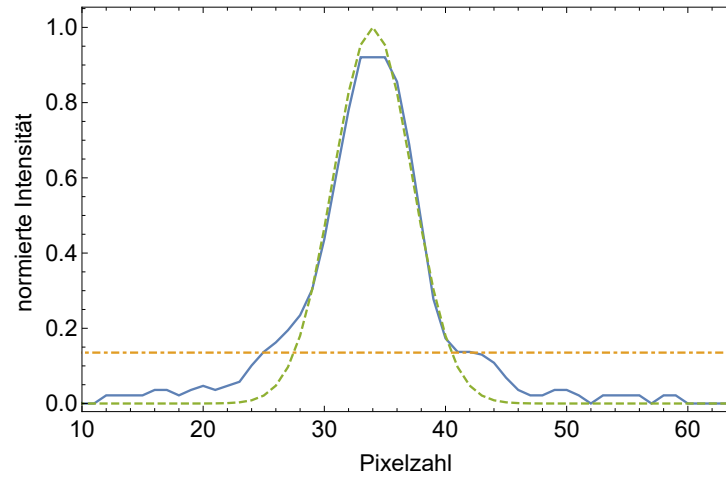


Abbildung 4.6: Auswertung der Linienbreite im Fokus:

Normierte Intensität entlang der schwarzen Linie in Abbildung 4.5 (blaudurchgezogen), Gauß-Kurve (grün gestrichelt),  $1/e^2$ -Linie (orange gepunktet-gestrichelt). Die Messung ist leicht überbelichtet, weshalb die blaue Kurve am oberen Ende horizontal verläuft.

und die der Kamera etwas niedriger. Die Flanken sind auch nicht ganz deckungsgleich, da bei der Auswertung keine Interpolation zwischen den Pixeln vorgenommen wurde. Die Schnittpunkte der  $1/e^2$ -Linie mit der Gauß-Kurve wurden bestimmt und die Differenz mit der Pixelgröße multipliziert. Es ergibt sich so eine Liniendicke von ca.  $29\text{ }\mu\text{m}$ . Das scheint deutlich mehr als der erwartete Wert zu sein, allerdings ist der verwendete Laser leicht divergent und die beiden Linien waren eventuell nicht perfekt überlagert. Als obere Abschätzung der Liniendicke kann die Messung dennoch gut verwendet werden. Die Schärfentiefe  $T = 2z_r$  ist das Zweifache der Rayleighlänge  $z_R$  und kann mit der Relation  $\omega_0 = \sqrt{z_R \lambda \pi}$  [Eic+10] berechnet werden. Sie ergibt sich mit Gleichung 4.15 zu  $T \geq 80\text{ }\mu\text{m}$ . Bei sehr dünnen nichtlinearen Kristallen ( $\approx 30\text{ }\mu\text{m}$ ) muss die Position im Fokus daher nicht exakt stimmen, um ein SFG Signal zu erhalten. Dicke Kristalle (z.B.  $L = 1\text{ mm}$ ) können verwendet werden, aber die Konversionseffizienz steigt vermutlich nicht mehr mit  $L^2$ . Das liegt daran, dass die anregende Intensität außerhalb der Schärfentiefe deutlich abnimmt.

Ein weiterer Vorteil, die Strahlen auf einen Kamerasensor umzulenken, besteht darin, dass die Parallelität der einzelnen Linien zueinander justiert werden kann. Dazu wurden die Halter der Zylinderlinsen so konstruiert, dass sie um die optische Achse rotiert werden können. Da hierfür keine Mikrometerschrauben oder getriebeähnliche Mechanik vorgesehen wurden, sondern die Halter direkt mit der Hand verdreht wurden, war dies eine zeit- und nervenraubende Tätigkeit und sollte in einem neuen Aufbau besser gelöst werden.

Auch nach erfolgter Justage hat sich der Spiegel mit der magnetischen Halterung in Kombination mit der Kamera für die Überprüfung der Justage und anderer Diagnostik als sehr hilfreich erwiesen.

Ohne diesen Spiegel werden die Laserstrahlen im nichtlinearen Kristall fokussiert, der auf einem Verschiebetisch in einer Drehhalterung fixiert ist. So kann der Kristall in den Brennpunkt geschoben und über die Neigung die Phasenanpassung erfüllt werden. Nach dem Kristall ergeben sich drei divergente Laserstrahlen. Für die Signale  $E_1(t)$  und  $E_2(t - \tau)$  ist es selbstverständlich, dass sie in der vertikalen Richtung divergent auseinander laufen, da sie auch nur in dieser Richtung fokussiert wurden. Daher ist eine räumliche Trennung der drei Signale problemlos möglich. Mittels seitlich angeschrägter Spiegel konnten die Eingangspulse relativ dicht nach dem Kristall seitlich abgelenkt werden. Sie wurden dann mit je einer achromatischen Zylinderlinse (Thorlabs ACY254150B) kollimiert. Umlenkspiegel sorgen dann dafür, dass beide Signale parallel laufen und anschließend über eine gemeinsame Linse auf den Eingangsspalt des Spektrometers für nah-infrarotes Licht fokussiert werden können.

Für das Summenfrequenzsignal ist die Frage der Divergenz nicht ganz so einfach. In Abschnitt 2.3.1 wurde bereits beschrieben, dass sich im Fall der Summenfrequenzgenerierung die Wellenvektoren beider Felder vektoriell addieren. Der resultierende Wellenvektor  $\vec{k}$  ist also

$$\vec{k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2. \quad (4.16)$$

In der Seitenansicht sind die eingehenden Laserstrahlen fokussiert. Stellt man sich einen fokussierten Laserstrahl als Summe vieler einzelner Strahlen vor, so gibt es eine Vielzahl Strahlen mit leicht unterschiedlichem Wellenvektor. Sämtliche Strahlen sind an der Generierung des Summenfrequenzsignals beteiligt, weshalb auch die Menge der aus dem Kristall austretenden erzeugten Strahlen den gleichen Divergenzwinkel aufweist. In der vertikalen Richtung läuft es also mit demselben Winkel wieder auseinander. In der horizontalen Richtung ist der Divergenzwinkel dagegen nicht sofort offensichtlich.

Betrachtet man einen gaußförmigen Laserpuls, so ist die Linienbreite  $\Delta f$  über Puls-Bandbreitenprodukt mit der Pulsdauer  $\Delta t$  verknüpft (jeweils FWHM). Es gilt

$$\Delta t \cdot \Delta f \geq K \quad (4.17)$$

mit  $K = 0,44$  für einen gaußförmigen Puls [Eic+10]. Mit

$$\Delta f = \frac{c}{\lambda_c - \Delta\lambda/2} - \frac{c}{\lambda_c + \Delta\lambda/2} \quad (4.18)$$

$$= \frac{c \cdot \Delta\lambda}{\lambda_c^2 - \Delta\lambda^2/4} \quad (4.19)$$

und der Näherung  $\Delta\lambda^2 \ll \lambda_c^2$  ergibt sich die Linienbreite als Ausdruck der Wellenlänge  $\Delta\lambda$  zu

$$\Delta\lambda \geq \frac{\lambda_c^2 \cdot K}{c \cdot \Delta t}. \quad (4.20)$$

Ein Laserpuls mit  $\Delta t = 50$  fs und einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_c = 800$  nm hat also bei konstanter Phase eine spektrale Breite von  $\Delta\lambda \approx 19$  nm. Das bedeutet, dass die Richtung des Wellenvektors für den gesamten Puls die gleiche ist, sich aber der Betrag je nach Wellenlänge unterscheidet. Für das SFG-Signal aus dem oben genannten Puls und seiner Kopie ergibt sich

daraus, dass es nicht nur aufgrund der Fokussierung in vertikaler Richtung divergent auseinander läuft, sondern auch minimal in horizontaler Richtung aufgrund der Bandbreite des Pulses. Aus dem Winkel  $\theta$ , hier ist  $\theta \approx 14^\circ$ , der Zentralwellenlänge und der spektralen Breite lässt sich die Divergenz in horizontaler Richtung berechnen. Dazu werden die größte und die kleinste Wellenlänge gemischt. Mit dem Betrag eines Wellenvektors  $|\vec{k}_i| = \frac{2\pi}{\lambda_i}$  ergeben sich die Beträge der Vektoren zu

$$|k_1| = \frac{2\pi}{\lambda_c + \Delta\lambda/2} \quad \text{und analog} \quad (4.21)$$

$$|k_2| = \frac{2\pi}{\lambda_c - \Delta\lambda/2}. \quad (4.22)$$

Die Vektoren ergeben sich dann aus den Gleichungen 4.21 und 4.22 mit dem Winkel  $\theta$  (siehe Abbildung 4.4) zu

$$\vec{k}_1 = |k_1| (\sin(-\theta/2) \cdot \vec{e}_x, 0 \cdot \vec{e}_y, \cos(-\theta/2) \cdot \vec{e}_z) \quad (4.23)$$

$$\vec{k}_2 = |k_2| (\sin(\theta/2) \cdot \vec{e}_x, 0 \cdot \vec{e}_y, \cos(\theta/2) \cdot \vec{e}_z). \quad (4.24)$$

Damit lässt sich sofort der daraus resultierende Vektor  $\vec{k}$  und sein Schnittwinkel mit der z-Achse berechnen. Der Vektor  $\vec{k}$  schneidet die z-Achse für den oben beschriebenen Fall im Winkel von rund 1,5 mrad. Da das Problem symmetrisch ist, also auch die kleinste mit der größten Wellenlänge gemischt wird, ist die tatsächliche Divergenz des SFG-Signals in x-Richtung doppelt so groß und beträgt 2,9 mrad.

Die Frage stellt sich also, mit welcher Linse sollte das SFG-Signal kollimiert und auf den Eintrittsspalt des Spektrometers für blaues und UV-Licht fokussiert werden. Ausgehend von der Tatsache, dass jeder Punkt entlang der Entstehung des SFG-Signals einer anderen Verschiebung  $\tau$  entspricht und eben diese Verschiebung auf dem Eintrittsspalt abgebildet werden soll, legt die Verwendung einer sphärische Linse nahe, um eine Abbildung zu realisieren. Problematisch ist dabei allerdings, dass der Einzelschuss-VAMPIRE für einen großen Wellenbereich konzipiert werden sollte und es keine Achromaten für die SFG-Wellenlängen gibt. Thorlabs bietet Achromate für 400 nm bis 700 nm an. Leider beträgt der Brennweitenunterschied zwischen 350 nm und 500 nm rund 0,65 mm. Mit einer solchen Linse kann also nicht ohne erneutes Justieren das SFG-Signal eines Lasers bei knapp über 700 nm und anschließend bei knapp unter 1000 nm kollimiert werden. Eine anschließende Abbildung auf den Eintrittsspalt mit einer solchen Linse verstärkt die Probleme. Ist der Eintrittsspalt, wie in diesem Experiment, sehr klein (Größenordnung 10  $\mu\text{m}$ ) folgt, dass je nach Wellenlänge nur ein Teil des Lichtes den Eintrittsspalt passieren kann. Das Spektrum des SFG-Signals würde somit moduliert werden und eine Rekonstruktion erschweren oder gar unmöglich machen. Betrachtet man plano-konvexe oder bi-konvexe Linsen wird dies nochmals schlechter.

Ausgehend von der Brechkraft einer dünnen Linse [Lip+97]

$$\frac{1}{f(\lambda)} = (n(\lambda) - 1) \left( \frac{1}{R_1} - \frac{1}{R_2} \right) \quad (4.25)$$

mit der wellenlängenabhängigen Brennweite  $f(\lambda)$ , dem wellenlängenabhängigen Brechungsindex  $n(\lambda)$  und den Krümmungsradien  $R_1$  und  $R_2$ , wobei  $R_2 = \infty$  für plano-konvex Linsen ist, kann der Brennweitenunterschied  $\Delta f(\lambda_1, \lambda_2)$  für  $\lambda_1 = 350 \text{ nm}$  und  $\lambda_2 = 500 \text{ nm}$  leicht berechnet werden. Für 150 mm Linsen aus BK7 wie die plano-konvex Linse Thorlabs LA1433 ergibt sich so ein Brennweitenunterschied von  $\Delta f = -4,89 \text{ mm}$  und für die bi-konvexe Variante Thorlabs LB1437 ein  $\Delta f = -4,88 \text{ mm}$ . Andere Glassorten liefern ähnliche Ergebnisse, da der Brechungsindex der üblichen Glassorten wie BK7, SF5, SF10 oder Quarzglas von 350 nm zu 500 nm stark abnimmt [Sch15; Mal65]. Die Schärfentiefe einer solchen Linse ist für das SFG-Signal aufgrund der unterschiedlichen Divergenzwinkel nicht gleich verteilt. Die Schärfentiefe beträgt in der senkrechten Ebene mit  $\lambda = 400 \text{ nm}$  und  $D = 7,2 \text{ mm}$  knapp  $50 \mu\text{m}$ . In der horizontalen Ebene ist die Schärfentiefe größer und hängt von der spektralen Pulsbreite ab.

Die Wahl fiel daher auf ein Paar Zylinderspiegel, um das SFG-Signal zu kollimieren und danach auf den Eingangsspalt wieder abzubilden. Dabei wurde in Kauf genommen, dass es aufgrund der Divergenz in horizontaler Richtung zu einer leichten Verschmierung der Zeitachse im Spektrogramm kommt. Diese könnte im Ernstfall mittels Entfaltung heraus gerechnet werden. Dennoch wurde versucht, den Weg zwischen Kristall und Spektrometer kurz zu halten, um die Auswirkung der unbeachteten Divergenz klein zu halten. Tatsächlich ist der Effekt kleiner als erwartet, da die Intensität des SFG-Signals proportional zum Betragsquadrat des Produktes der beiden Eingangsfelder ist und die Intensität am spektralen Rand des Pulses niedriger ist als an der Zentralwellenlänge. Im Experiment konnte die Divergenz in horizontaler Richtung mit bloßem Auge nicht beobachtet werden. Die chromatische Aberration einer gewöhnlichen Linse hätte schlimmere Folgen - insbesondere aufgrund des kleinen Eintrittsspalt. Abbildungsfehler wie Koma treten in dieser Konfiguration ebenfalls nicht auf.

#### 4.4 Auswahl der CCD-Kameras

Ausgehend von den Gleichungen 4.1 und 4.3 gehen die Beträge der elektrischen Felder der  $E_1(t)$  und  $E_2(t - \tau)$  sowie die Wurzel des Spektrogramms  $I(\Omega, \tau)$  als Startwert und Randbedingung in die Rekonstruktion der Pulse ein. Der Betrag des elektrischen Feldes entspricht dabei der Wurzel der Intensitätswerte des Kamerabildes. Um ein hohes Signal-Rausch-Verhältnis (SNR) des elektrischen Feldes aus dem Kamerabild zu erzielen, ist daher ein sehr viel größeres SNR im eigentlichen Kamerabild, also der Intensität, erforderlich. Darüber hinaus wurde die Anforderung gestellt, dass der Aufbau transportabel ist. Dazu sind kompakte Spektrometer für die Bestimmung der Spektren der Laserpulse und des Spektrogramms erforderlich. Um dennoch hohe Auflösungen zu erzielen, geht dies nur mit kleinen Eintrittspalten (Größenordnung  $10 \mu\text{m}$ ) und dadurch bedingtem hohen Intensitätsverlust einher. Aufgrund der Konversionseffizienz des nicht-linearen Kristalls ist das Korrelationssignal oftmals sehr schwach im Vergleich zu den Signalen der ursprünglichen Laserpulse. Die Kamera, die zur Bestimmung der Spektren der eingehenden Laserpulse verwendet wird, ist daher hinsichtlich ihrer Quanteneffizienz unkritisch. Die Kamera,

die zur Bestimmung des Korrelationssignals verwendet wird, sollte dagegen eine möglichst hohe Quanteneffizienz besitzen, um ein insgesamt sensitives Messgerät zu erhalten. Insbesondere sind Kameras mit einer integrierten Elektronenvervielfachung interessant (EM-CCD Kameras wie in Abschnitt 2.4.3 beschrieben).

Um eine möglichst sensitive Kamera im Bereich von 350 nm bis 500 nm für das Summenfrequenzspektrometer zu erhalten, wurde ein separater Aufbau für die Bestimmung der spektral aufgelösten Quanteneffizienz von Photodetektoren entwickelt und aufgebaut. Damit wurde die Quanteneffizienz einer scheinbar geeigneten Kamera (Andor iXon<sup>3</sup> DU-885K-CS0-#VP) bestimmt. Die Diskrepanz zwischen den Herstellerangaben und den ermittelten Werten für die Quanteneffizienz war relativ groß. Daher wurden weitere Messungen an anderen Modellen durchgeführt, die letztlich die ermittelten Werte bestätigt haben und die Wahl der Kamera maßgeblich beeinflusst haben. In den folgenden Abschnitten werden der Quanteneffizienzmessplatz sowie ausgewählte Messungen vorgestellt. Da alle getesteten Kameras durch Peltier-Elemente gekühlt werden können, lag es nahe auch temperaturabhängig die spektrale Quanteneffizienz zu detektieren. Die gesammelten Messwerte wurden grafisch aufbereitet und in [Spe+14b] veröffentlicht.

#### 4.4.1 Messplatz für die Bestimmung der Quanteneffizienz

Häufig ist bei Experimenten die Quanteneffizienz eines Detektors von Interesse. Zum Beispiel in Spektrometern und bei der Verwendung einer Kamera als Detektor ist das Messergebnis durch die Quanteneffizienz der Kamera und durch die Reflektivitäten der optischen Elemente beeinflusst. Dieser Einfluss nimmt mit zunehmender Breite des Spektrums zu, da die Änderung der Quanteneffizienz üblicherweise über sehr kleine Spektren annähernd konstant ist.

Ziel war es einen kompakten und einfachen Aufbau zur Bestimmung der Quanteneffizienz von Photodetektoren zu realisieren und die Funktion des Messplatzes durch Überprüfung der Herstellerangaben einer Kamera zu testen.

Quanteneffizienz bezeichnet das Verhältnis aus der Anzahl der erzeugten Elektron-Loch-Paare und der Anzahl der dafür benötigten Photonen. Die wellenlängenabhängige Quanteneffizienz  $QE(\lambda)$  lautet daher

$$QE(\lambda) = \frac{N_e}{N_{ph}(\lambda)} = \frac{I_e}{q \Phi_{ph}(\lambda)} \quad (4.26)$$

mit  $N_e$  der Anzahl der detektierten Elektronen,  $N_{ph}(\lambda)$  der Anzahl der Photonen, die auf den Sensor treffen,  $I_e$  dem Fotostrom im CCD-Chip,  $\Phi_{ph}(\lambda)$  dem Photonenfluss und  $q$  der Elementarladung. Der Fotostrom entspricht der gesammelten Ladung dividiert durch die Belichtungszeit

$$I_e = \frac{counts \cdot cf \cdot q}{t}. \quad (4.27)$$

Dabei ist *counts* das detektierte Signal der Kamera, *cf* der Konversionsfaktor, der angibt, wie viel detektierte Elektronen einem „count“ entsprechen und *t* die Belichtungszeit.

Der Photonenfluss auf der Kamera kann durch Vergleich mit dem Kurzschlussstrom einer geeichten Photodiode  $I_{pd}$  mit Hilfe ihrer spektralen Empfindlichkeit  $SR(\lambda)$ , welche bei der NIST

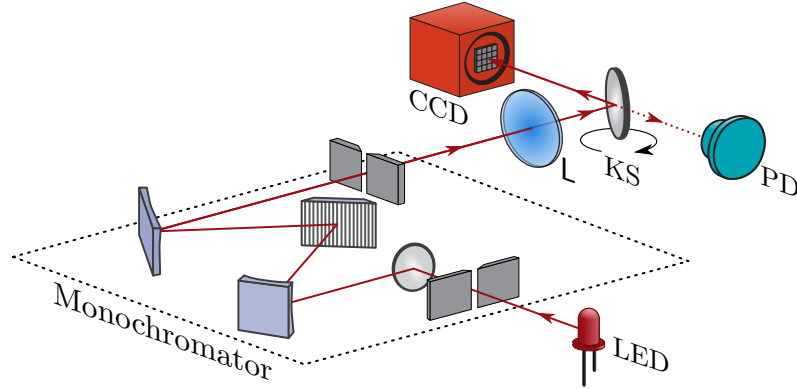


Abbildung 4.7: Prinzipskizze des Quanteneffizienzmessplatzes:

Der Monochromator schneidet aus dem Spektrum verschiedener LEDs einen sehr schmales Spektrum heraus, das dann mit dem Klappspiegel abwechselnd auf dem zu prüfenden Detektor oder auf der geeichten Photodiode abgebildet wird. (L - Linse, KS - Klappspiegel, PD - geeichte Photodiode)

(National Institute of Standards and Technology) nachverfolgbar ist (Messunsicherheit 5 %), bestimmt werden. Die spektrale Empfindlichkeit wird als

$$SR(\lambda) = \frac{I_{pd}}{\Phi_{ph} \cdot h\nu} \quad (4.28)$$

ausgedrückt. Daraus erhält man anschließend den folgenden Ausdruck für die wellenlängenabhängige Quanteneffizienz:

$$QE(\lambda) = \frac{counts \cdot cf \cdot SR(\lambda) \cdot h c}{I_{pd} \cdot t \cdot \lambda}. \quad (4.29)$$

Die verbleibenden Messgrößen sind somit  $I_{pd}$ ,  $t$ ,  $\lambda$  und das Kamerabild selbst, wobei der Konversionsfaktor  $cf$  dem Leistungsdatenblatt der individuellen Kamera entnommen wurde. Der Konversionsfaktor ist eine den Analog-Digital-Wandler der Kamera betreffende Größe und spektral unabhängig. Der Fehler des Konversionsfaktors ist systematischer Natur und kann lediglich die Quanteneffizienzkurve leicht skalieren, sie aber nicht in ihrer eigentlichen Form verändern.

Die Idee des Messprinzips besteht darin, monochromatisches Licht einer definierten Wellenlänge abwechselnd auf die Kamera und auf eine geeichte Photodiode abzubilden. Die spektrale Breite des Lichtes definiert damit die spektrale Auflösung der Messung. Durch geschickte Anordnung lässt es sich realisieren, dass das Licht auf dem Weg zu den beiden Detektoren dieselben optischen Elemente durchläuft. Nur so kann sichergestellt werden, dass nicht abbildende Elemente das Ergebnis beeinflussen. In Abbildung 4.7 ist so ein Messaufbau dargestellt. Als Lichtquelle dienen hier verschiedene LEDs (siehe Abbildung A.3 im Anhang), die in diesem Fall den Wellenlängenbereich von 380 nm bis 1100 nm vollständig abdecken. Als Monochromator dient ein Gittermonochromator. Die spektrale Breite des Lichtes lässt sich so einfach durch die verwendete Spaltbreite anpassen. Anschließend wird der Austrittsspalt des Monochromators auf

den Detektor abgebildet. Auf der abbildenden Seite wird zusätzlich ein Klappspiegel mit festen Anschlägen eingesetzt. So kann der Spalt wahlweise auf die geeichte Photodiode oder auf die zu prüfende Kamera abgebildet werden. Eine Trennwand in der Linsenebene verhindert, dass undefiniertes Streulicht einen Detektor trifft. Es ist wichtig, die Spaltdimensionen und den Abbildungsmaßstab so zu wählen, dass sichergestellt ist, dass das Spaltbild vollständig auf den Detektor abgebildet wird. Andernfalls hätte man einen systematischen Fehler in der Messung. Erste Testmessungen mit einem schwarzen Kunststoffgehäuse haben gezeigt, dass es insbesondere aufgrund von Transmissionen im UV- und nahinfraroten Bereich hier zu Fehlern kommt. Der gesamte Messaufbau muss daher in einem lichtdichten Metallgehäuse untergebracht werden. Eine weitere Fehlerquelle kann bei kurzen Belichtungszeiten die Lage der Abbildung des Austrittspaltes auf dem CCD-Sensor sein, da alle vermessenen Kameras einen „Frame Transfer“-Sensoren besitzen (vergleiche Abschnitt 2.4.1). Wird der Spalt parallel zur Verschieberichtung abgebildet, so werden einige der Pixel während des gesamten Verschiebeprozesses weiterhin belichtet. Zum Beispiel beträgt die gesamte Verschiebezeit bei den Andor DU888-Modellen und den gewählten Einstellungen  $1024 \text{ Zeilen} \cdot 3,3 \mu\text{s}/\text{Zeile} \approx 3,4 \text{ ms}$ . Daher ist es sinnvoll, den Spalt senkrecht zur Verschieberichtung abzubilden und mit hinreichend großen Belichtungszeiten zu arbeiten.

#### 4.4.2 Ergebnisse der spektralen Quanteneffizienzmessung

Bei den untersuchten Kameras handelt es sich um sechs verschiedene EM-CCD-Kameras (electron multiplication) vom Hersteller Andor sowie ein Modell vom Hersteller pco AG. Da diese Sensoren über Peltier-Elemente in der Temperatur geregelt werden können, ist ein zusätzliches Fenster notwendig, um ein Kondensieren der Luftfeuchtigkeit auf dem Sensor zu verhindern. Für eine möglichst hohe Quanteneffizienz besitzen die Sensoren und die Fenster je nach Modell unterschiedliche Antireflex-Beschichtungen. Die einfache Möglichkeit der Temperaturregelung legt es nahe auch die Temperaturabhängigkeit der Quanteneffizienz zu betrachten (siehe Abschnitt 4.4.3). Eine detaillierte Übersicht über die im Folgenden verwendeten Kurzbezeichnungen der Kameramodelle und ihrer zugehörigen Modellbezeichnungen finden sich im Anhang in Abschnitt A.1. Die verwendeten Kameraeinstellungen finden sich darin ebenfalls.

Die erste Messung erfolgte an der Kamera sensicam UV vom Hersteller pco AG. Aufgrund einer defekten Photodiode (Deckglas gebrochen) ist diese Messung in Abbildung 4.8 auf der rechten Seite in willkürlichen Einheiten angegeben. Die Daten werden lediglich gezeigt, da sie das selbe Verhalten aufweisen, wie die DU885 von Andor (linke Ordinate), die den gleichen „Virtual-Phase“-Sensor (siehe Abschnitt 2.4.2) von Texas Instruments verwendet (TC285). Zum einen ist eine erhöhte Quanteneffizienz im kurzwelligen Bereich festzustellen, die auf den „Virtual Phase“-Sensor zurückzuführen ist. Zum anderen ist erkennbar, dass die Quanteneffizienz für große Wellenlängen gegen Null geht. Die Ursache liegt in der indirekten Bandlücke von Silizium. Ist die Photonenenergie kleiner als die Bandlückenenergie, so kann das Elektron nicht in das Leitungsband angeregt werden. Die Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares wird unmöglich. Die Bandlücke von Silizium

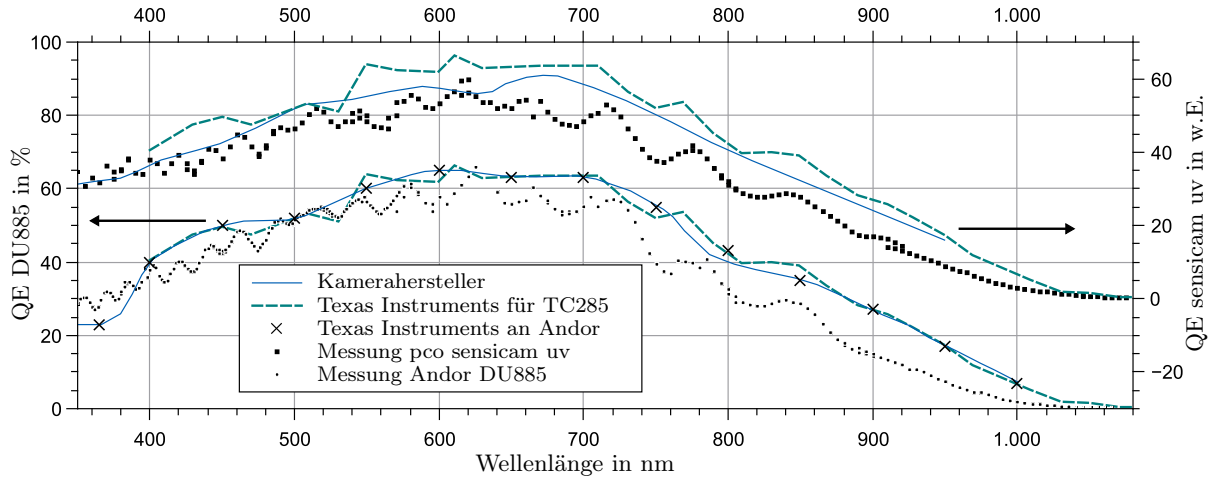


Abbildung 4.8: Linke Achse: absolute Quanteneffizienz der Andor DU885 (Kameraherstellerangabe [Andg], Messung bei  $T = -80^\circ\text{C}$ )

Rechte Achse: relative Quanteneffizienz in w.E. der pco sensicam uv (Kameraherstellerangabe [Pco], Messung bei  $T = -40^\circ\text{C}$ )

Beide Achsen: Quanteneffizienzangabe des CCD-Chip TC285 (Texas Instruments) [Tc2; Kos10] - Hinweis: Den Oszillationen in der Quanteneffizienz liegt nicht Etaloning zugrunde! Transmission des Kameraeintrittsfensters wurde in den Herstellerangaben nicht berücksichtigt.

lässt sich nach [Blu+74] im Temperaturbereich von 150 K bis 300 K wie folgt berechnen.

$$E_g(T) = 1,1785 - 9,025 \cdot 10^{-5} \cdot T - 3,05 \cdot 10^{-7} \cdot T^2 \quad (4.30)$$

Bei einer Sensortemperatur von  $-80^\circ\text{C}$  beträgt die Bandlückenenergie der indirekten Bandlücke von Silizium somit  $E_g = 1,1497\text{ eV}$  (nach [Blu+74] berechnet). Das entspricht einer Wellenlänge von rund 1078 nm. Für grob 1080 nm muss die Quanteneffizienz gegen Null gehen, was mit der Messung gut übereinstimmt.

Darüber hinaus zeigt Abbildung 4.8 aber auch eine Oszillation in der Messung der Quanteneffizienz, wie man sie aus den Daten des Kameraherstellers (durchgezogene Linie) nicht vermuten würde. Dass die beiden Kameraherstellerkurven für denselben Sensor voneinander abweichen, ist nicht verwunderlich, da die Fenstermaterialien und Antireflex-Beschichtungen unterschiedlich sind.

Ausgehend von den Daten des Sensorherstellers (gestrichelte Linie) ist ebenfalls nicht mit solchen Oszillationen zu rechnen. Auch unsere Messungen an der pco sensicam UV sind noch zu gering aufgelöst, um die Oszillationen bis in den kurzwelligen Bereich erkennen zu können. Erst mit Messintervallen von weniger als 2 nm sind diese Oszillationen auch bei den kleinsten gemessenen Wellenlängen noch erkennbar. Das ist nur möglich, da das Licht nach dem Monochromator eine spektrale Breite von weniger als 1 nm besitzt. Das wellenlängenabhängige Verhalten lässt Fabry-Pérot-Oszillationen innerhalb des Fensters vermuten. Da aber beide Kameras unterschiedliche Materialien und Beschichtungen verwenden, ist das sehr unwahrscheinlich. Wahrscheinlicher

sind Fabry-Pérot-Oszillationen innerhalb der Gate-Elektroden, einer Schutzschicht oder einer Antireflex-Beschichtung.

Mit Hilfe eines Dünnschicht-Transmissionsmodells [Mac10] wurde diese Annahme näher untersucht. Dabei wurde davon ausgegangen, dass das Licht aus einer Luftschicht ( $n_0 = 1$ ) senkrecht in eine dünne Schicht Quarzglas ( $n_1(\lambda)$ ) der Dicke  $d_1$  eintritt, um dann in die Siliziumschicht ( $n_2(\lambda)$ ) einzudringen. Für reelle Brechungsindizes erhält man dann einen Phasenversatz der dünnen Schicht von

$$\delta(\lambda) = \frac{2\pi n_1(\lambda) d_1}{\lambda}. \quad (4.31)$$

Mit den Indizes  $a$  für die Grenzfläche Luft - Quarzglas und  $b$  für die Grenzfläche Quarzglas - Silizium lassen sich Transmissions- und Reflexionskoeffizienten ( $\tau(\lambda)$  und  $\rho(\lambda)$ ) für die Grenzflächen folgendermaßen beschreiben.

$$\tau_a(\lambda) = \frac{2n_0}{n_0 + n_1(\lambda)} \quad \rho_a(\lambda) = \frac{n_0 - n_1(\lambda)}{n_0 + n_1(\lambda)} \quad (4.32)$$

$$\tau_b(\lambda) = \frac{2n_1(\lambda)}{n_1(\lambda) + n_2(\lambda)} \quad \rho_b(\lambda) = \frac{n_1(\lambda) - n_2(\lambda)}{n_1(\lambda) + n_2(\lambda)} \quad (4.33)$$

Die Transmission  $T(\lambda)$  in die Siliziumschicht lautet dann

$$T(\lambda) = \frac{n_2(\lambda)}{n_0} \tau(\lambda) \cdot \tau^*(\lambda) \quad (4.34)$$

mit

$$\tau(\lambda) = \frac{\tau_a(\lambda) \tau_b(\lambda) e^{-i\delta(\lambda)}}{1 + \rho_a(\lambda) \rho_b(\lambda) e^{-2i\delta(\lambda)}}. \quad (4.35)$$

Um den Einfluss der dünnen Schicht zu simulieren, wurde ein  $\lambda^5$ -Polynom  $P(\lambda)$ , welches die Quanteneffizienz ohne Dünnschichteffekte darstellen soll, mit der Transmission  $T(\lambda)$  multipliziert. Für die wellenlängenabhängigen Brechungsindizes wurde die Sellmeiergleichung verwendet. Die Lage der Oszillationen ließ sich so mit einer  $3,07 \mu\text{m}$  dicken Quarzglasschicht sehr gut anpassen. Allerdings war die Amplitude zu groß. Angenommen, es befindet sich eine Antireflexschicht auf dem Quarzglas, reduziert sich die Reflexion auf z.B. 1 % und die Transmission erhöht sich in gleichem Maße. Mit diesen Werten ergibt sich die in Abbildung 4.9 dargestellte durchgezogene Kurve. Im kurzwelligen Bereich stimmt das simple Modell sehr gut mit den Messwerten überein. Wird die Dicke der Quarzglasschicht um nur 20 nm erhöht und die Reflektivität nur minimal angepasst, stimmt das Modell auf der langwelligen Seite gut überein. Die Wahrscheinlichkeit, dass diese Oszillationen temperaturabhängig sind, ist sehr gering, da eine Temperaturänderung von ca. 100 K lediglich eine Dickenänderung von knapp 0,2 nm verursacht, was in unserem Modell keinen merklichen Effekt hat. Allerdings konnte diese These nicht geprüft werden, da das Leihgerät nicht ausreichend lange zur Verfügung stand.

Gleiche Berechnungen für „Gate“-Elektroden aus Polysilizium zeigen deutlich andere, kompliziertere Oszillationen aufgrund der ähnlichen Brechungsindizes. Fabry-Pérot-Oszillationen in den Elektroden können daher ausgeschlossen werden.

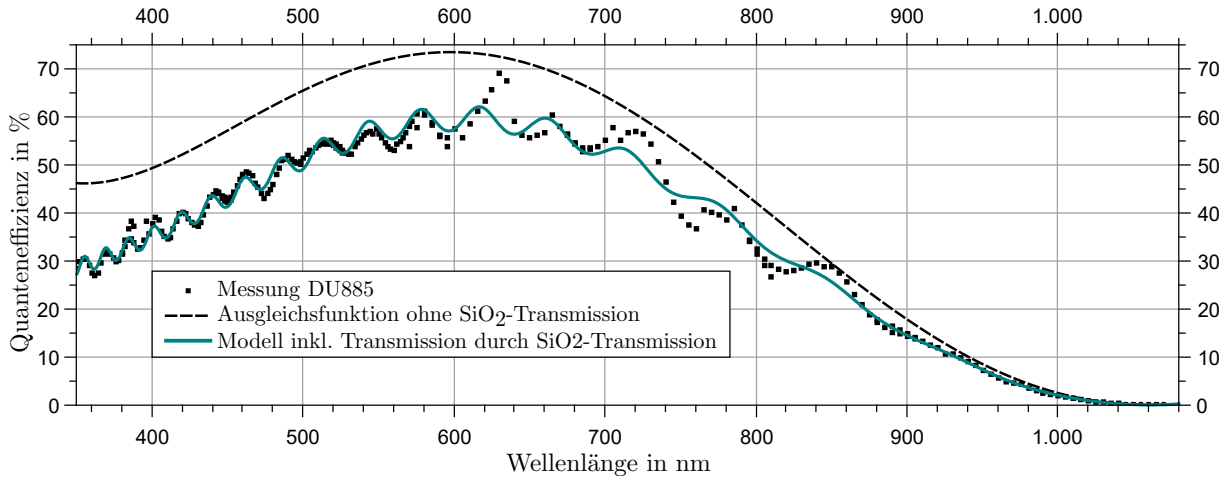


Abbildung 4.9: Gemessene Quanteneffizienz der Andor DU885 (Quadrate), polynomierte Ausgleichsfunktion  $P(\lambda)$  ohne Berücksichtigung der Transmission der SiO<sub>2</sub>-Schicht (gestrichelt), simulierte Quanteneffizienz  $P(\lambda) \cdot T(\lambda)$  unter Berücksichtigung der Transmission durch eine 3,07 µm dünne Schicht SiO<sub>2</sub> mit einer vereinfachten Antireflexbeschichtung (Details siehe Text und ausführlich in [Spe+14b])

In zwei weiteren Messungen wurden zwei verschiedene Kameras des besonders geeignet erscheinenden Typs DU897UVB untersucht. Diese Kameras besitzen rückseitig belichtete Sensoren und haben zusätzlich eine rund 300 nm dicke Phosphorschicht (Lumogen<sup>®</sup>) auf der Sensoroberfläche aufgebracht [E2v], die 90% des auftreffenden Lichtes im Wellenlängenbereich von 200 nm bis 460 nm absorbiert. Für den Anwender ist es sehr unpraktisch, dass im Kameradatenblatt [Andi] nur die Quanteneffizienz des Sensors angegeben wird und nicht die der Kamera. Aus der spezifizierten Quanteneffizienz des Sensors lässt sich zusammen mit der Transmission durch die Lumogen<sup>®</sup>-Schicht und ein unbeschichtetes MgF<sub>2</sub>-Fenster die Quanteneffizienz der Kamera berechnen. Dabei weicht die Quanteneffizienz des Sensors deutlich von der Quanteneffizienz der Kamera ab. Darüber hinaus ist auffällig, dass entgegen der Spezifikation die Quanteneffizienz vom UV-Bereich bis ca. 470 nm annähernd konstant bei rund 35% liegt. Das entspricht der Absorptionskante von Lumogen<sup>®</sup> S0790 (später Lumogen<sup>®</sup> S0795) [Zha+10; Zhe+09]. BASF, der Hersteller von Lumogen<sup>®</sup>, hat für Lumogen<sup>®</sup> S0790 zwei Datenblattversionen [Luma; Lumb] mit stark unterschiedlichen Absorptions- und Emissionskurven herausgegeben. Die genannten Veröffentlichungen und diese Messungen legen den Schluss nahe, dass bei den Kameras Lumogen<sup>®</sup> S0790 verwendet wurde und die Kurven im älteren Datenblatt richtig sind. Die große Abweichung der Messung vom Datenblatt im Bereich von 390 nm bis etwa 470 nm liegt in dem „Industrie Standard“ begründet. Messungen an vorderseitig belichteten Sensoren mit und ohne Lumogen<sup>®</sup> haben ergeben, dass es mit der Phosphorschicht zu einer Erhöhung der UV-Empfindlichkeit kommt, die restliche Quanteneffizienzkurve aber nicht nennenswert beeinflusst wird [E2v]. Fälschlicherweise wurde diese Schlussfolgerung auf rückseitig belichtete Sensoren übertragen. So wurde eine

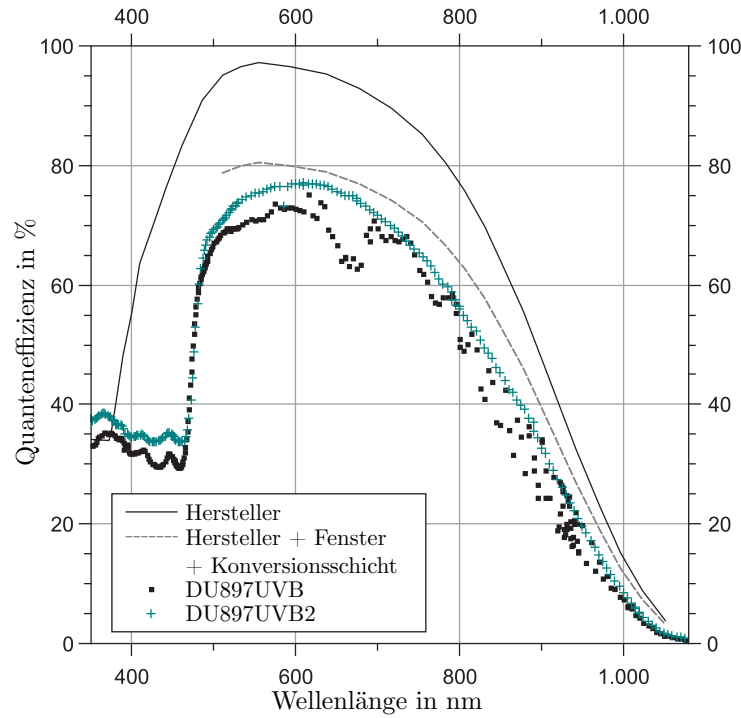


Abbildung 4.10: Quanteneffizienz von zwei verschiedenen Kameras des Modells Andor DU897UVB bei  $T_{\text{mess}} = -60^\circ\text{C}$  (Kameraherstellerangabe für  $T_{\text{mess}} = -20^\circ\text{C}$  [Andi]). In der zweiten Messung (DU897UVB2) betrug die spektrale Breite nach dem Monochromator 5 nm. Daher kann kein Etaloning beobachtet werden. Die gestrichelte Linie repräsentiert die zu erwartende Quanteneffizienz der Kamera. Hier wurde die Transmission durch ein unbeschichtetes Fenster ( $T = 0,92$ ) und die Transmission durch die Konversionsschicht ( $T = 0,9$  für  $\lambda > 510\text{ nm}$ ) berücksichtigt. Weitere Details siehe Text und [Spe+14b].

konstante Linie für die Quanteneffizienz im UV-Bereich eingezeichnet, welche die ursprüngliche Kurve ohne Lumogen<sup>®</sup> schneidet. Der jeweils höhere Wert der Quanteneffizienz wird für die resultierende Quanteneffizienzkurve verwendet. Allerdings sind rückseitig belichtete Sensoren deutlich empfindlicher, weshalb die Absorption der Phosphorschicht die Quanteneffizienz in diesem Fall auf grob 35% reduziert. Darin sind diese starken Abweichungen begründet. Der Kamerahersteller Andor hat als Folge seine Datenblätter überarbeitet und zeichnet für Modelle mit Phosphorschicht nur eine horizontale Linie bei knapp unter 35% Quanteneffizienz für den Wellenlängenbereich von 200 nm bis 470 nm ein. Oberhalb von 470 nm liefert der Hersteller keine Angaben mehr zur Quanteneffizienz.

Ein weiterer Effekt, der erst bei rückseitig belichteten Sensoren auftritt, ist das sogenannte „etaloning“. Dabei handelt es sich um Fabry-Pérot-Oszillationen innerhalb der dünnen aktiven Schicht, die bei Verwendung von monochromatischem Licht ab ca. 700 nm zu beobachten sind [Rop]. Auf die Unterschiede zwischen „spatial“- und „spectral etaloning“ soll hier nicht eingegangen werden,

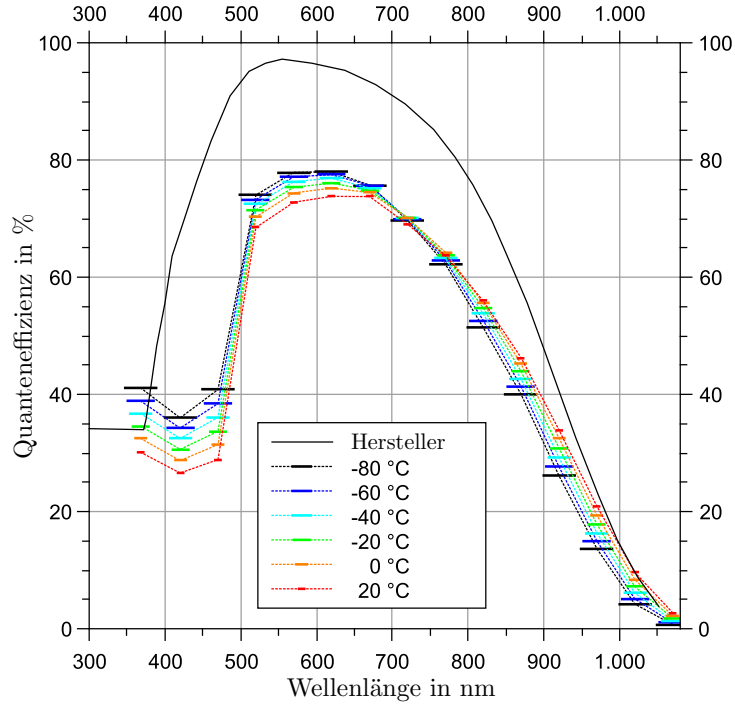


Abbildung 4.11: Temperaturabhängige Quanteneffizienz der Andor DU897UVB2 (mit Lumogen<sup>®</sup> Konversionsschicht - Kameraherstellerangabe für  $T_{\text{mess}} = -20^\circ\text{C}$  [Andi])

können aber z.B. in [Rop; Spe+14b] nachgelesen werden. Das Etaloning ist in Abbildung 4.10 (Datenpunkte mit Quadraten) anhand der stark schwankenden Werte ab ca. 750 nm erkennbar. In der anderen Messung (Kreuze) wurde der Austrittsspalt des Monochromators vergrößert. Das austretende Licht wies nun eine spektrale Breite von etwa 5 nm auf, weshalb das Etaloning ausgeschmiert ist.

Weitere Messungen finden sich im Anhang A.1 und sind zusammen mit einer ausführlichen Diskussion in [Spe+14b] veröffentlicht.

#### 4.4.3 Ergebnisse der temperaturabhängigen Quanteneffizienz

Die in dieser Arbeit vermessenen Kameras besitzen alle eine mehrstufigen Peltier-Kühlung. Der eigentliche Sensor befindet sich in einem kleinen Gehäuse mit einem Eintrittsfenster. Schutzgas im Gehäuse verhindert Kondensation am Sensor. Die Temperatur des Sensors kann so auf einfache Weise via Software verändert werden. Daher lag es nahe, auch die temperaturabhängige Quanteneffizienz zu bestimmen. Abbildung 4.11 zeigt die Quanteneffizienz der Andor DU897UVB für 6 Temperaturen von  $-80^\circ\text{C}$  bis  $+20^\circ\text{C}$ . Dabei sind zwei Effekte erkennbar. Zum einen äußert sich auf der langwelligen Seite die Verschiebung der indirekten Bandlücke (siehe Gleichung 4.30) des Sensormaterials Silizium durch eine Abnahme der Quanteneffizienz bei sinkenden Temperaturen. Zum anderen zeigt sich aber auch ein gegenläufiger Effekt auf der kurzwelligen Seite. Hier nimmt die Quanteneffizienz mit sinkender Temperatur zu. Dies liegt in der temperaturabhängigen Kon-

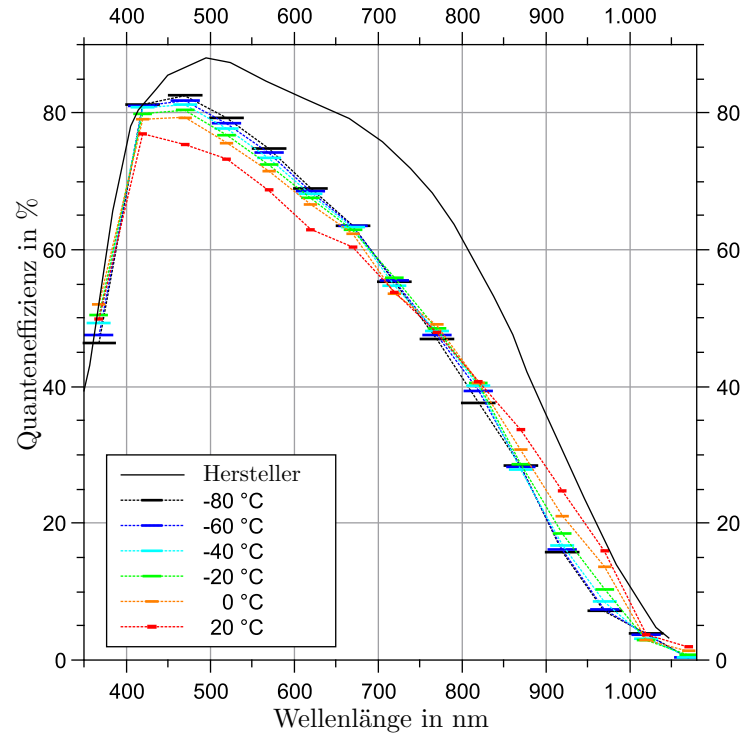


Abbildung 4.12: Temperaturabhängige Quanteneffizienz der Andor DU888BB (Kamerahersteller für  $T_{\text{mess}} = -20^\circ\text{C}$  [Andh] - Fenstertransmission nicht berücksichtigt)

versionseffizienz der Lumogen<sup>®</sup> Beschichtung begründet [E2v]. So gibt es bei etwa 710 nm einen Punkt, an dem die Quanteneffizienz nicht mehr temperaturabhängig ist. Abbildung 4.12 zeigt die temperaturabhängige Quanteneffizienz einer rückseitig belichteten EM-CCD-Kamera vom Typ Andor DU888BB ohne eine UV-Konversionsbeschichtung. Das Verhalten auf der langwelligen Seite ist ähnlich, jedoch liegt der Punkt konstanter Quanteneffizienz nun bei ca. 740 nm. Überraschend ist, dass laut [Gol+99] die Quanteneffizienz von Siliziumphotodioden unterhalb von 885 nm nicht mehr temperaturabhängig sein soll, hier aber eine deutliche Abhängigkeit erkennbar ist. Oberhalb von 740 nm nimmt die Quanteneffizienz mit steigender Temperatur zu, während sie unterhalb von 740 nm mit zunehmender Temperatur sinkt. Da die Werte unterhalb von 400 nm nicht konsistent aussahen, wurde eine detaillierte Messung von 350 nm bis 420 nm an der selben Kamera durchgeführt (siehe Abbildung 4.13). Hier offenbart sich ein weiterer Punkt konstanter Quanteneffizienz bei rund 380 nm und die Temperaturabhängigkeit dreht sich erneut. Dieser Effekt wurde bislang nicht beobachtet und muss vorsichtig interpretiert werden. Es könnte die Temperaturabhängigkeit der direkten Bandlücke  $E'_0$  von Silizium [Gol+99] dafür verantwortlich sein oder aber ein Artefakt der Kamera sein. Alle temperaturabhängigen Messungen sind ebenfalls in [Spe+14b] veröffentlicht und ausführlicher als hier diskutiert.

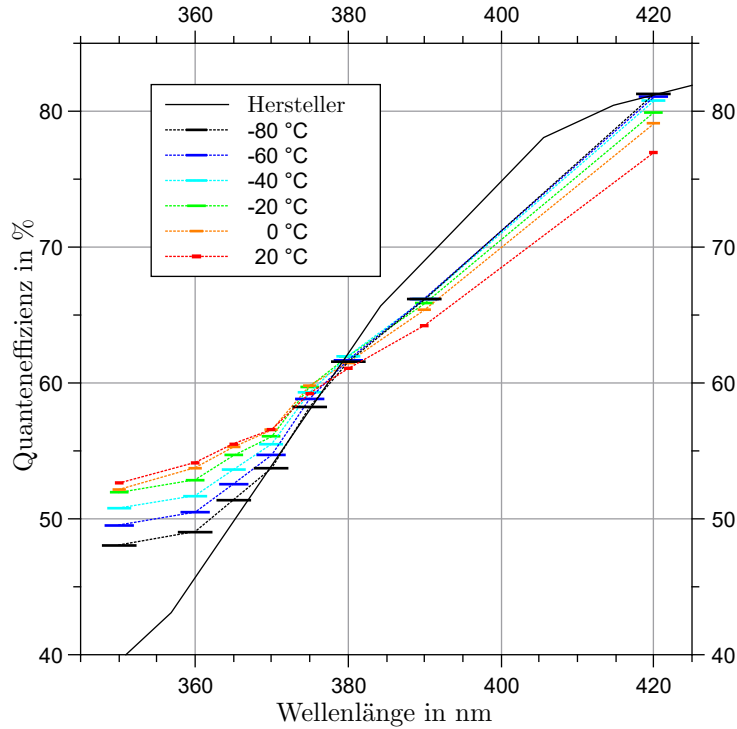


Abbildung 4.13: Detaillierte temperaturabhängige Quanteneffizienz der Andor DU888BB von 345 nm bis 425 nm (Kamerahersteller für  $T_{\text{mess}} = -20\text{ °C}$  [Andh] - Fenstertransmission nicht berücksichtigt)

#### 4.4.4 Zusammenfassung und Auswahl der Kamera

Basierend auf diesen Daten fiel die Entscheidung für die Andor iXon DU-888-BB (siehe Abbildung A.1 im Anhang A.1). Diese Kamera hat keine besonderen Auffälligkeiten der Quanteneffizienz im erforderlichen Spektralbereich von 350 nm bis 550 nm (wie z.B. die Welligkeit in der spektralen Quanteneffizienz der DU885) und darüber hinaus auch die höchste Quanteneffizienz im genannten Spektralbereich. Mit ihren 1024x1024 Pixeln bietet sie genug Datenpunkte für das zu messende Spektrogramm.

Da für jede Messung das Bild der CCD-Kamera ausgelesen werden muss, ist für die Charakterisierung eines einzelnen Laserpulses eine entsprechend niedrige Pulswiederholrate des Lasers notwendig. Die Pulswiederholrate wird maßgeblich durch die Bildwiederholrate der Kamera bestimmt. Im Falle der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Kamera beträgt die Bildwiederholrate bei voller Auflösung 9 Hz [Andh]. Generell setzt sich die Bildwiederholrate aus Belichtungszeit, horizontaler Ausleserate und vertikaler Verschiebezeit der Ladungsträger auf dem Sensor zusammen, wodurch sich durch die Wahl einer anderen Kamera problemlos Bildwiederholraten von 50 Hz und mehr realisieren ließen. Zu Gunsten der Empfindlichkeit der Kamera wurde auf die Bildwiederholrate kein besonderer Wert gelegt. Insbesondere, da die Pulswiederholraten der uns zur Verfügung stehenden Laser meistens im Bereich einiger MHz liegen und derart hohe Bildwiederholraten nicht realistisch sind.

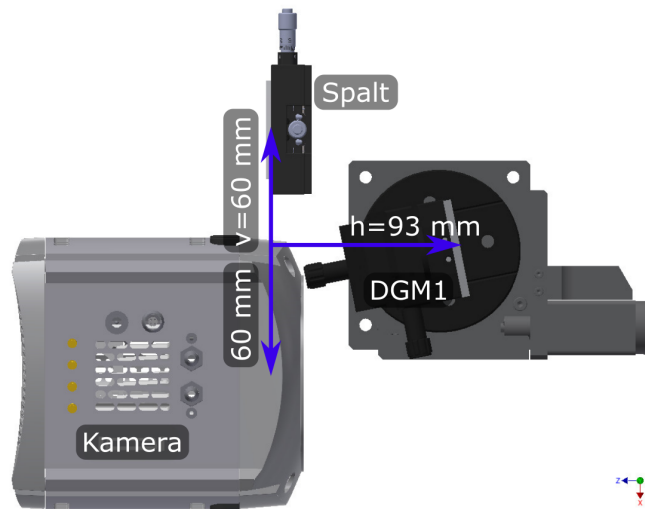


Abbildung 4.14: Eintrittsspalt, Kamera und Gitterhalter Newport DGM1 in der Draufsicht zur Verdeutlichung der Mindestabstände zwischen diesen Komponenten

Einzelschussmessungen sind insbesondere über neuere Lasersysteme mit integriertem „pulse picker“ (z.B. elektro-optische Modulatoren, akusto-optische Modulatoren oder Pockelszellen) möglich, da diese in der Lage sind eine vorher fest definierte Anzahl von Pulsen auszugeben.

## 4.5 Aufbau der Spektrometer

### 4.5.1 Dimensionierung des Spektrometers für UV- / blaues Licht

Nachdem im vorherigen Abschnitt die Kamera ausgewählt wurde, ist als nächstes der Gitterhalter festzulegen. In diesem Fall ein DGM1 von Newport. Für die Dimensionierung des Spektrometers ist dies wichtig, da die Abmessungen des Gitterhalters, der Kamera und des Spaltes die Mindestabstände zueinander definieren. Als Eintrittsspalt kommt der in Abschnitt 4.5.3 vorgestellte variable Festspalt zum Einsatz. Abbildung 4.14 verdeutlicht die Mindestabstände zwischen Kamera, Spalt und Gitter.

Im nächsten Schritt werden Spiegelbrennweite und Gitter gewählt. Diese sind so abzustimmen, dass die vorbestimmte Breite des Spektrums  $\Delta\lambda$  der Breite des Sensors möglichst gut entspricht. Die tatsächliche Breite des Spektrums auf dem Detektor  $B_D$  kann mit Hilfe der Winkeldispersion  $D$  [Pal+14]

$$D = \frac{d\beta}{d\lambda} = \frac{\sin \alpha + \sin \beta}{\lambda \cos \beta} \quad (4.36)$$

zusammen mit der Brennweite der Spiegel  $f$  und spektralen Breite  $\Delta\lambda$  bestimmt werden. Dabei ist  $\alpha$  der Einfallswinkel und  $\beta$  der und Austrittswinkel der Strahlenbündel (siehe Abbildung 4.15).

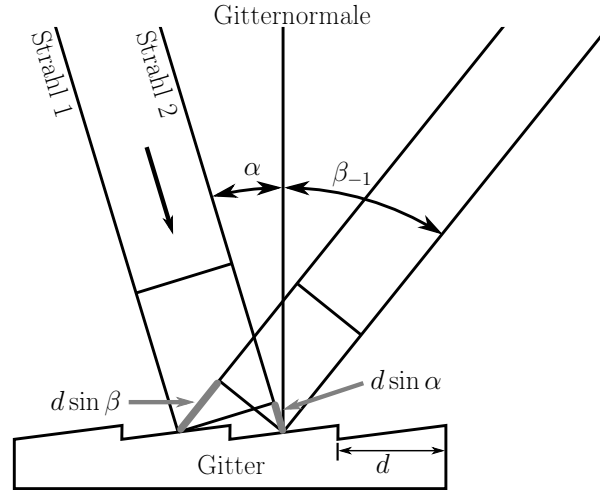


Abbildung 4.15: Darstellung von Einfallswinkel und einem Ausfallswinkel am planen Beugungsgitter. Der Index von  $\beta$  gibt die Beugungsordnung  $m$  an. (Grafik nach [Pal+14])

Die beiden Winkel  $\alpha$  und  $\beta$  sind über die Gittergleichung [Pal+14]

$$m\lambda = d(\sin \alpha + \sin \beta) \quad (4.37)$$

miteinander verbunden. Die Beugungsordnung  $m$  ist Element der ganzen Zahlen. Ist  $m = 0$ , ist die einfache Reflexion, die sogenannte Nullte Ordnung, gemeint. Für negative  $m$  liegt die Beugungsordnung rechts von der nullten Ordnung. Ist  $m$  dagegen positiv, liegt die Beugungsordnung links von der Nullten Ordnung. Üblich ist das Gitter in Richtung Eintrittsspalt zu drehen. So trifft möglichst wenig Licht der Nullten Ordnung den Ausgangsspalt bzw. den Detektor und trägt so dazu bei, das Streulicht zu minimieren. Die Größe  $d$  gibt den Abstand der Gitterlinien an. Oftmals wird  $d$  auch durch die Gitterfrequenz  $G = 1/d$  angegeben. Die Herleitung der Gittergleichung ist in der Literatur, wie beispielsweise [Hec98; Pal+14], zu finden.

Bei den meisten Spektrometern bleiben die Positionen der Komponenten konstant, weshalb auch der Gesamtablenkungswinkel  $2dv$ , also der Winkel zwischen erstem Spiegel, Gitter und zweitem Spiegel konstant bleibt. Das Czerny-Turner-Spektrometer zählt dazu. Zum Ändern der Zentralwellenlänge wird lediglich der Gitterdrehwinkel  $\phi$  gedreht. Dieser ist ebenfalls mit den Winkeln  $\alpha$  und  $\beta$  über die Relation  $2\phi = \alpha + \beta$  verknüpft. Aus diesen Zusammenhängen können die Gleichungen

$$\alpha(\lambda) = \phi(\lambda, dv) + dv \quad (4.38)$$

$$\beta(\lambda) = \phi(\lambda, dv) - dv \quad (4.39)$$

$$\phi(\lambda) = \arcsin \left( \frac{m\lambda}{2d \cos(dv)} \right) \quad (4.40)$$

abgeleitet werden. Nun kann die Breite des Spektrums auf dem Detektor  $B_D$  leicht berechnet werden:

$$B_D = D(\lambda_c) \Delta\lambda f. \quad (4.41)$$

Um auf preiswerte Standardkomponenten mit kurzen Lieferzeiten zurückgreifen zu können, wurden verschiedene Kombinationen aus Gittern und Spiegeln durchgerechnet. Als günstig erwies sich dabei ein Gitter mit 300 Linien/mm in Kombination mit zwei sphärischen Silberspiegeln von 12“ Brennweite (entspricht 304,8 mm). Das gewünschte 150 nm breite Spektrum wird dann auf dem Detektor mit einer Breite von 14 mm abgebildet. Der Sensor der verwendeten Kamera (Andor iXon<sup>3</sup> DU-888D-C0B-#BB) hat 1024 Pixel mit einer Pixelgröße von 13 µm x 13 µm. Die Breite des Detektors ist mit 13,3 mm also etwas kleiner als gewünscht, wodurch nur eine spektrale Breite von  $\Delta\lambda = 142,4$  nm mit einer einzelnen Aufnahme gemessen werden kann. Das ist vollkommen ausreichend.

Stellt man Gleichung 4.41 nach  $\Delta\lambda/B_D$  um, erhält man sofort das Verhältnis  $P$  aus spektraler Breite zu Pixelbreite. Es entspricht der reziproken linearen Dispersion und gibt die spektrale Änderung pro Weglängeneinheit auf dem Detektor an. Für  $m = -1$  ergibt sich  $P = 0,13392$  nm/pixel oder  $P = 0,010301$  nm/µm. Es ist zu beachten, dass die Winkeldispersion von  $\beta$  abhängt und somit für eine andere Geometrie oder auch für andere Zentralwellenlänge einen anderen Wert annimmt. Weiterhin ist für größere Detektoren die Annahme einer linearen Dispersion nicht mehr hinreichend genau, da es wegen des schrägen Lichteinfalls zu einer Projektion auf die Bildebene kommt. Diese Änderung kann durch einen Korrekturterm  $\cos\varphi$  berücksichtigt werden.  $\varphi$  ist dabei der Winkel, der von der Senkrechten des eintreffenden Lichtstrahls und der Bildebene aufgespannt wird.

Darüber hinaus gilt es eine möglichst hohe Auflösung zu erzielen. Um dies zu gewährleisten, wurde die minimale erforderliche numerische Apertur der den Detektor treffenden Lichtbündel mit Hilfe des Rayleigh-Auflösungskriteriums aus der Breite der einzelnen Pixel  $B_P$  bestimmt.

$$NA = 0,61 \lambda_c / B_P = 0,61 \cdot 0,425 \mu\text{m} / 13 \mu\text{m} \approx 0,02 \quad (4.42)$$

Daraus kann nun mithilfe der zuvor gewählten Brennweite und trigonometrischen Überlegungen der minimal erforderliche Strahldurchmesser  $SDf_{min}$  berechnet werden.

$$SDf_{min} = 2f \tan\{\arcsin(NA)\} = 2 \cdot 304,8 \text{ mm} \tan\{\arcsin(0,02)\} \approx 12,2 \text{ mm} \quad (4.43)$$

Ferner muss geprüft werden, ob dieser minimale Strahldurchmesser ausreichend groß ist, um das gewünschte Auflösungsvermögen  $R$  des Gitters zu erreichen. Dieses bestimmt sich aus dem Verhältnis der Zentralwellenlänge  $\lambda_c = 425$  nm und dem kleinsten spektralen Auflösungsintervall [Pal+14] - also der spektralen Breite  $\Delta\lambda_P$ , die auf einen Pixel der Kamera fällt.

$$R = \frac{\lambda_c}{\Delta\lambda_P} = |m| N \approx 3055 \quad (4.44)$$

Das  $m$  in Gleichung 4.44 gibt wieder die Beugungsordnung an und lässt sich durch die Gittergleichung (Gleichung 4.37) ersetzen.  $N$  gibt dabei die Anzahl der beleuchteten Linien des Gitters an und liefert zusammen mit dem Gitterlinienabstand  $d$  direkt den Strahldurchmesser auf dem Gitter  $SDG = Nd$ . Für  $m = 1$  ist  $R = N$  und somit ergibt sich für den erforderlichen Strahldurchmesser:

$$SDG_{min} = Rd = \frac{R}{G} = \frac{3055}{300 \text{ mm}^{-1}} \approx 10,2 \text{ mm}. \quad (4.45)$$

Um die gewünschte Auflösung zu erzielen, muss das Strahlenbündel am ersten Spiegel beziehungsweise am Gitter den Durchmesser  $SDf$  aufweisen (wahlweise auch  $SDG$ , je nachdem, welcher Wert größer ist). Das Strahlenbündel wird durch Beugung am Spalt ausgedehnt. Sie lässt sich mit

$$I(\phi, \lambda, b) = I_0 \operatorname{sinc} \left( \frac{b\pi \sin \phi}{\lambda} \right)^2 \quad (4.46)$$

beschreiben [Tip+07]. Dabei ist  $\phi$  der Austrittswinkel des Lichtes nach dem Spalt,  $\lambda$  die verwendete Wellenlänge und  $b$  die Breite des Eintrittsspalt. Der Winkel lässt sich durch Brennweite und Ort auf dem ersten Spiegel ausdrücken:

$$I(h, \lambda, b) = I_0 \operatorname{sinc} \left( \frac{b\pi \sin(\tan(h/f))}{\lambda} \right)^2, \quad (4.47)$$

was es ermöglicht, den Strahldurchmesser auf dem Gitter bei z.B.  $I = I_0/2$  zu berechnen. Der Strahldurchmesser hängt also maßgeblich von der Spaltbreite und von der Wellenlänge ab. Für einen 13  $\mu\text{m}$  breiten Eintrittsspalt (entspricht der Größe eines Pixels) variiert der Strahldurchmesser bei halber Intensität im Bereich von 350 nm bis 500 nm grob zwischen 7,3 mm und 10,4 mm. Beugung am Spalt weitet das Strahlenbündel nicht genügend weit auf, um die volle Auflösung zu erreichen. Es ist daher darauf zu achten, dass das zu messende Licht fokussiert auf den Eintrittsspalt trifft und dabei die Brennweite und der Strahldurchmesser so aufeinander abgestimmt werden, dass das Strahlenbündel am ersten Spiegel den erforderlichen Durchmesser erhält. Üblich ist es, auf beiden Seiten des Eintrittsspalt die gleiche numerische Apertur zu wählen.

Eigentlich müsste die Projektion der Lichtbündel auf die optischen Flächen und die damit verbundene Vergrößerung berücksichtigt werden, da aber alle Optiken lediglich um wenige Grad aus der optischen Achse ausgelenkt sind, wurde darauf verzichtet.

An dieser Stelle sei außerdem darauf hingewiesen, dass eine Spaltbreite kleiner als die Breite eines Pixels der Kamera nicht sinnvoll ist. Zum einen ist die Effizienz des Spektrometers dadurch unnötig gering, da ein Teil des Lichtes den Spalt womöglich nicht passiert und zum anderen würde die erste Beugungsordnung so groß werden, dass sie durch Spiegel oder Gitter beschnitten wird. Eine qualitative Abbildung des Eintrittsspalt auf den Detektor wird damit unmöglich und die spektrale Auflösung sinkt. Zusätzlich sinkt die Effizienz des Spektrometers weiter, da ein Teil des Lichtes so nicht mehr den Austrittsspalt trifft.

Die zuvor angesprochene Vergrößerung außer Acht gelassen, ist die Auflösung in den meisten Fällen optimal, wenn Eintrittsspalt und Austrittsspalt (Breite eines Pixels) die gleiche Breite besitzen [Pal+14]. So ist ein gutes Verhältnis aus Auflösung und Lichtausbeute gewährleistet.

#### 4.5.2 Dimensionierung des Spektrometers für nahinfrarotes Licht

Bei dem VAMPIRE-Verfahren müssen zusätzlich zu dem Spektrogramm auch die Spektren der daran beteiligten Laserpulse gemessen werden. Sie dienen als Nebenbedingung für den Rekonstruktionsalgorithmus. Dazu sollte ein weiteres Spektrometer aufgebaut werden, welches den Wellenlängenbereich von etwa 700 nm bis 1000 nm abdeckt.

Da der Designprozess identisch zu dem in Abschnitt 4.5.1 beschriebenen Vorgehen ist, sollen hier nur die wesentlichen Eckdaten genannt werden.

Als Detektor kam eine speziell für nahinfrarotes Licht optimierte Kamera MV1-D1312(I) der Firma photonfocus zum Einsatz. Sie hat eine Pixelgröße von  $8\mu\text{m} \times 8\mu\text{m}$  und eine Auflösung von  $1312 \times 1082$  Pixeln.

Für den Eintrittsspalt wurde ebenfalls eine Eigenkonstruktion, wie sie in Abschnitt 4.5.3 beschrieben wird, verwendet. Der eine Puls kann so im oberen Bereich und der andere Puls im unteren Bereich des Eintrittsspalt abgeleitet werden.

Als Gitter hat sich eines mit 100 Linien/mm in Kombination mit 12" (entsprechend 304,8 mm) Goldspiegeln als günstig erwiesen. So kann ein Spektrum von 683 nm bis 1017 nm gemessen werden. Das Verhältnis  $P$  beträgt dann  $P = 0,2554\text{ nm/pixel}$  beziehungsweise  $P = 0,03193\text{ nm}/\mu\text{m}$ . Die numerische Apertur aus dem Rayleigh-Auflösungskriterium beträgt  $NA \approx 0,065$  wodurch sich der minimal erforderliche Strahldurchmesser am zweiten Spiegel zu  $SDf_{min} \approx 39,6\text{ mm}$  ergibt. Aus dem Auflösungsvermögen des Gitters ergibt sich ein Strahldurchmesser von  $SDG_{min} \approx 33,3\text{ mm}$ . Der Eintrittsspalt darf bei diesem Spektrometer aber nicht so klein sein, wie ein Pixel auf der Kamera groß ist, da in diesem Fall der erste Spiegel zu viel aus dem Beugungsbild des Spaltes schneiden würde. Der Spalt muss wenigstens  $12\mu\text{m}$  breit sein, um die Nullte Ordnung der Fraunhoferschen Beugung am Spalt auch bei einer Wellenlänge von 1017 nm noch vollständig am ersten Spiegel reflektieren zu können. Erst mit  $25\mu\text{m}$  Spaltbreite kann auch die erste Ordnung vollständig reflektiert werden. Als Kompromiss wurde daher  $20\mu\text{m}$  als kleinste Spaltbreite gewählt. Um die hohe Gitterauflösung zu erhalten, ist bei diesem Spektrometer also umso mehr darauf zu achten, dass die numerische Apertur der Fokussierung möglichst gleich oder nicht viel kleiner ist als die des Spektrometers. Nur so kann ein ausreichend großes Strahlenbündel gewährleistet werden.

### 4.5.3 Eintrittsspalte

Da die Spektrometer kompakt sein und dennoch eine hohe Auflösung erzielen sollen, sind sehr schmale Eintrittsspalte in der Größenordnung von wenigen  $10\mu\text{m}$  Breite erforderlich. Die Spalthöhe muss einige mm aufweisen. Insbesondere bei bildgebender Spektroskopie tritt dabei ein Problem auf. Sind Spaltkanten nicht exakt parallel, besitzen die Spektren von unterschiedlichen Spaltpunkten unterschiedliche Intensität. Sollen alle Zeilen aufaddiert werden, beeinflusst dies lediglich die Auflösung. Da insbesondere das eine Spektrometer für die Aufnahme von Spektrogrammen gedacht ist, wobei jedes Spektrum an einem Punkt des Eintrittsspalt dem Spektrum eines anderen Zeitpunktes entspricht, darf die Intensität nicht entlang des Spaltes moduliert werden, da dies in der Rekonstruktion eine zeitlich veränderte Intensität bedeuten würde. Oft spezifizieren die Hersteller die Parallelität nicht und können selbst auf Nachfrage keine Aussage dazu treffen. Von den variablen Spalten bis zu einer Preisgrenze von 1000 Euro besaß ein Spalt von Newport (74001 Micrometer Adjustable Slit, 77250 Monochromator) die beste spezifizierte Parallelität. Dieser soll auf 12 mm Höhe nicht mehr als  $\pm 7,62\mu\text{m}$  abweichen [Knu12]. Der Spalt

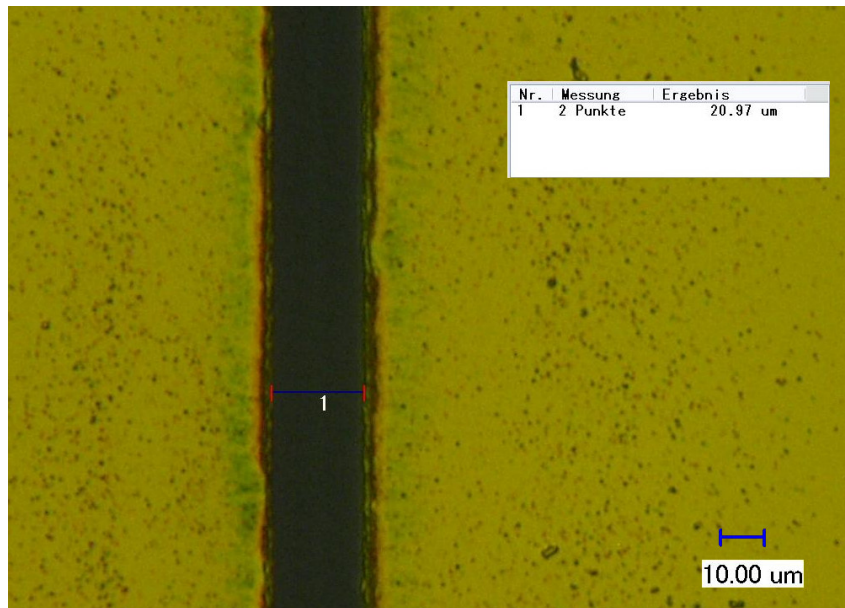


Abbildung 4.16: 21 µm breiter Spalt in einem Silberspiegel - hergestellt in Zusammenarbeit mit der Schweißtechnischen Lehr- und Versuchsanstalt Mecklenburg-Vorpommern GmbH.

soll aufgrund der Sensorgröße der verwendeten Kamera eine Höhe von knapp 15 mm besitzen und im besten Fall eine Breite von 13 µm vorweisen, die aber je nach Intensität gegebenenfalls breiter sein muss. Bei 13 µm Spaltbreite und homogener Ausleuchtung ist es möglich, dass dieser Spalt die Intensität um das rund Vierfache moduliert, vergleicht man die Intensität an den Spaltenden miteinander. Festspalte sind mit kleinen Spaltbreiten und deutlich besserer Parallelität verfügbar bzw. es wird davon ausgegangen, dass sie aufgrund der Fertigungstechnik perfekt parallel sind. Oft sind es Metallfolien, die in einem separaten Halter gefasst sind. Mit zunehmender Spalthöhe steigt die minimal erhältliche Spaltbreite. In der gewünschten Höhe sind keine kommerziellen Produkte mit einer Spaltbreite kleiner 100 µm verfügbar. Hinzu kommt, dass in diesem Fall für einen Breitenwechsel der gesamte Spalt gewechselt werden muss. Das ist wegen der übrigen optischen Elemente des Gesamtaufbaus im Nachhinein nur mit großem Aufwand möglich.

In Kooperation mit der Schweißtechnischen Lehr- und Versuchsanstalt Mecklenburg-Vorpommern GmbH (SLV) konnten in einem ersten Test erfolgreich die Spiegelbeschichtung von Gold- und Silberspiegeln mikrometergenau durch kurze Laserpulse entfernt werden. Die Substrate von der Firma Layertec sind auf der Rückseite standardmäßig ebenfalls poliert. Auf diese Weise lassen sich leicht hochparallele Spalte ab ca. 8 µm Breite und einer Höhe im cm-Bereich herstellen. Anschließend wurden mehr als 10 verschiedene Spaltbreiten mit gewissem Abstand pro Spiegel realisiert. Eine mikroskopische Aufnahme eines beispielhaften Spaltes ist in Abbildung 4.16 gezeigt. Auf 15 mm Spalthöhe waren die Spalte parallel. Die Rauigkeit der Spaltkante liegt im Bereich von etwa 2 µm. Da der Spalt auf die Kamera abgebildet wird und die Pixel in unserem Fall 8 µm und 13 µm betragen, fällt die Rauigkeit nicht ins Gewicht.

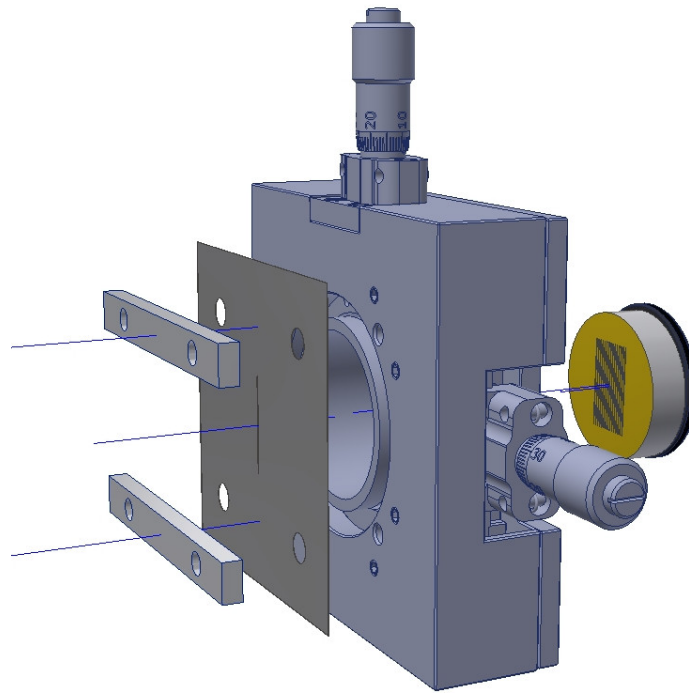


Abbildung 4.17: Skizze des variablen Spalthalters bestehend aus (von links nach rechts) zwei Folienhaltern, Edelstahlfolie mit Auswahlblende, Verschiebeeinheit (Thorlabs ST1XY-S), modifiziertem Goldspiegel mit verschiedenen Spalten (siehe Text) und festgeklebtem Haltering (Thorlabs SM1RR). Der Goldspiegel wird so weit in die Halterung geschraubt, dass die Goldschicht die Edelstahlfolie gerade nicht berührt und die Spalte parallel zu der Auswahlblende sind.

Nach dem erfolgreichen Test wurde zwei verschiedenen Schnittmuster erstellt. Dabei werden durch den Laser mehrere parallel angeordnete Rechtecke definierter Breite, die später die verfügbaren Spaltbreiten darstellen, in gewissem Abstand in die spiegelnde Oberfläche geschnitten. Die so modifizierten Spiegel wurden auf einen Feststellring (Thorlabs SM1RR) geklebt und in einen x-y-Versteller von Thorlabs (ST1XY-S) geschraubt. Die spiegelnde Seite schließt dabei nahezu bündig mit der äußeren Fläche des Verstellers ab. Davor wurde eine Edelstahlfolie montiert, in die zuvor am SLV eine rechteckige Auswahlblende geschnitten wurde. Abbildung 4.17 zeigt die Konstruktion als Explosionszeichnung. An die Mikrometerschraube des Verstellers wurde eine biegsame Welle befestigt, wodurch ein entferntes Verschieben des Spiegels gegenüber der Auswahlblende möglich wird. Die gewünschte Spaltbreite kann auf diese Weise flexibel aus der Liste der verfügbaren Spaltbreiten ausgewählt werden. Diese sind für die beiden gebauten Spektrometer in Tabelle 4.1 aufgelistet. Der Abstand der Mittelpunkte der Einzelspalte auf dem Spiegelsubstrat beträgt  $350\text{ }\mu\text{m}$  für Spalt 1 bzw.  $400\text{ }\mu\text{m}$  für Spalt 2. Spalt 1 wird in dem in Abschnitt 4.5.1 vorgestellten Spektrometer eingesetzt, während Spalt 2 für das in Abschnitt 4.5.2 vorgestellte Spektrometer verwendet wird. Durch den begrenzten Verstellbereich des x-y-Verstellers

Spaltbreiten von Spalt 1 in $\mu\text{m}$													
geplant	100	<b>70</b>	<b>60</b>	<b>50</b>	<b>10</b>	<b>13</b>	<b>15</b>	<b>20</b>	<b>30</b>	<b>40</b>			
gemessen	100,9	<b>70,5</b>	<b>62,0</b>	<b>50,0</b>	<b>9,0</b>	<b>13,2</b>	<b>14,8</b>	<b>20,3</b>	<b>29,7</b>	<b>40,6</b>			
Spaltbreiten von Spalt 2 in $\mu\text{m}$													
geplant	150	100	90	<b>80</b>	<b>70</b>	<b>60</b>	<b>20</b>	<b>25</b>	<b>30</b>	<b>35</b>	<b>40</b>	<b>45</b>	<b>50</b>
gemessen	154,2	103,0	92,7	<b>83,3</b>	<b>71,9</b>	<b>61,8</b>	<b>21,0</b>	<b>26,3</b>	<b>30,1</b>	<b>37,8</b>	<b>41,6</b>	<b>48,4</b>	<b>52,1</b>

Tabelle 4.1: Übersicht der gefertigten und der genutzten Spaltbreiten (fett gedruckt) der in Abschnitt 4.5.1 und 4.5.2 vorgestellten Spektrometer. (Details im Text)

kann jeweils nur eine Auswahl der Spaltbreiten genutzt werden, ohne den Versteller selbst zu verschieben. Die tatsächlich genutzten Breiten sind in Tabelle 4.1 fett gedruckt.

#### 4.5.4 Astigmatismuskorrektur

In Gitterspektrometern mit planen Reflexionsgittern muss prinzipbedingt wenigstens ein gekrümmter Spiegel Licht aus der optischen Achse heraus reflektieren. Aus Kostengründen kommen hierfür zumeist sphärische Spiegel zum Einsatz. Dabei tritt Koma auf, also das schräge Auftreffen von einem Strahlenbündel auf eine Linse oder hier sphärischen Spiegel, wodurch es zu schweifartigen Verzerrungen in der Abbildung kommt. Im Czerny-Turner-Spektrometer wird Koma aufgrund der gegensätzlichen Drehrichtung der beiden vorhandenen Spiegel kompensiert. Darüber hinaus tritt bei schrägem Lichteinfall Astigmatismus auf. Wird ein sphärischer Spiegel aus der optischen Achse gedreht, so stimmt die Brennweite in der Ebene parallel zur Drehachse, der Saggitalebene, nach wie vor. In der dazu senkrechten Meridionalebene wirkt der Spiegel gestaucht (Projektion) und resultiert sich in einer anderen Brennweite. Soll das Spektrum auf dem Detektor aufsummiert werden oder kommt gar eine Zeilenkamera zum Einsatz, ist der Astigmatismus unproblematisch. Der Detektor kann einfach in den Fokus gestellt werden, in dem die Spektrallinien möglichst schmal sind. Soll dagegen für jeden Punkt des Eintrittsspalt es ein separates Spektrum aufgenommen werden, reduziert der Astigmatismus die räumliche Auflösung entlang des Eintrittsspalt es erheblich, da sich in der Fokusebene die Lichtbündel (Spektren) der unterschiedlichen Punkte des Eintrittsspalt es überlagern. Um den auftretenden Astigmatismus zu reduzieren, gibt es verschiedene Ansätze. Beispielsweise kann durch Verwendung von toroidalen statt sphärischen Spiegeln der Astigmatismus ausglich en werden. Jedoch sind diese Spiegel für gewöhnlich Sonderanfertigungen und daher mit hohen Kosten und langen Lieferzeiten verbunden. Oft, insbesondere im Laboralltag, wird eine langbrennweitige Zylinderlinse vor dem Eintrittsspalt so angeordnet, dass der Astigmatismus minimiert oder gar kompensiert wird. Allerdings ist der Astigmatismus wellenlängenabhängig und die Korrektur ist nur für schmale Spektren möglich. Dabei fallen die von der Linse verursachten chromatischen Fehler meistens nicht ins Gewicht. Daneben gibt es eine Vielzahl weiterer Ansätze wie die divergente Beleuchtung des Git-

ters [Bat+70; Aus+09], eine keilförmige Zylinderlinse vor dem ausgedehnten Detektor [Del+10; Xue11], gekrümmte Gitter und weitere. Meistens funktionieren diese Korrekturen jedoch nur für eine Wellenlänge zufriedenstellend und / oder werden dafür spezielle Komponenten benötigt, die ebenfalls lange Lieferzeiten und hohe Kosten mit sich bringen.

In [Lee+10] wird vorgeschlagen, eine Zylinderlinse in das Spektrometer vor den Detektor zu stellen. Allerdings wird in diesem Ansatz keine keilförmige Linse gewählt, sondern eine Standardzylinderlinse. Linse und Kamera werden in geschickt gewählten Winkeln aus der optischen Achse gedreht. Auf diese Art und Weise wird in [Lee+10] ein astigmatismuskorrigiertes Spektrometer mit 400 nm Bandbreite bei ausschließlicher Verwendung von Standardkomponenten realisiert. In [Lee+10] wird zunächst der Astigmatismus  $\Delta z$ , also die Differenz der Brennweiten der sagittalen und meridionalen Ebene berechnet. Anschließend wird gezeigt, wie sich eine zylindrische Linse, abhängig von Brennweite, Brechungsindex und zentraler Dicke, auf die Verschiebung der Brennpunkte der beiden Ebenen auswirkt. Daraus leitet sich die Bedingung für die Kompensation des Astigmatismus ab. Ebenso die Position der Zylinderlinse, relativ zum zweiten Spiegel, ist angegeben. Bis dahin ist alles nur für eine Wellenlänge gültig. Im weiteren Verlauf wird die Winkeldispersion des Gitters berücksichtigt und ein Drehwinkel zwischen Fokusebene des Spektrometers und Zylinderlinse eingeführt, woraus schlussendlich die Drehwinkel der Zylinderlinse und der Kamera abgeleitet werden können. Diese Rechnung ist aufwändig und von Fitroutinen abhängig. Nachdem alle Parameter bestimmt sind, wird in [Lee+10] eine Optimierung der Parameter mittels Code V durchgeführt was keine groben Abweichungen aufzeigt. Da das Prinzip in [Lee+10] bewiesen wurde und der Winkel von optischen Elementen auf dem optischen Tisch ohnehin schwierig auf einen exakten Wert einzustellen ist, wurde die Rechnung stark vereinfacht und auf eine optische Simulation verzichtet. Am Beispiel des in Abschnitt 4.5.1 vorgestellten Spektrometers soll die Astigmatismuskorrektur kurz vorgestellt werden. Die verwendeten Variablen sind in Abbildung 4.18 ersichtlich.

Der Abstand zwischen sagittalem und meridionalem Fokus lässt sich wie folgt berechnen [Lee+10; Dal66]:

$$\Delta z(\xi) = f_1 \sin \theta \tan \theta + f_2 \sin \xi \tan \xi. \quad (4.48)$$

Dabei sind  $f_1$  und  $f_2$  die Brennweiten des ersten und zweiten Spiegels im Spektrometer und  $\theta$  und  $\xi$  die Winkel, unter denen das Licht auf die jeweiligen Spiegel trifft.

Die Schreibweise  $\Delta z(\xi)$  suggeriert bewusst eine alleinige Abhängigkeit von  $\xi$ , da alle Parameter fest sind, abgesehen von  $\xi$ . Dieser Winkel ist wegen der Winkeldispersion aber wiederum von der Wellenlänge des Lichtes abhängig. Genau dieser Fakt soll für eine vereinfachte Rechnung dienen.

Wird zwischen dem zweiten Spiegel und dem Detektor eine Zylinderlinse eingefügt, gilt es den Fokusunterschied zwischen beiden Ebenen zu minimieren. Dazu muss die Fokusänderung in der sagittalen Ebene  $s_s - s'_s$  der entgegengesetzten Fokusänderung in der meridionalen Ebene  $s_t - s'_t$  entsprechen. Sie können in der sagittalen Ebene aus der Linsengleichung bzw. in der meridionalen Ebene aus der Fokusverschiebung einer planen Glasplatte berechnet werden. Anschließend wird

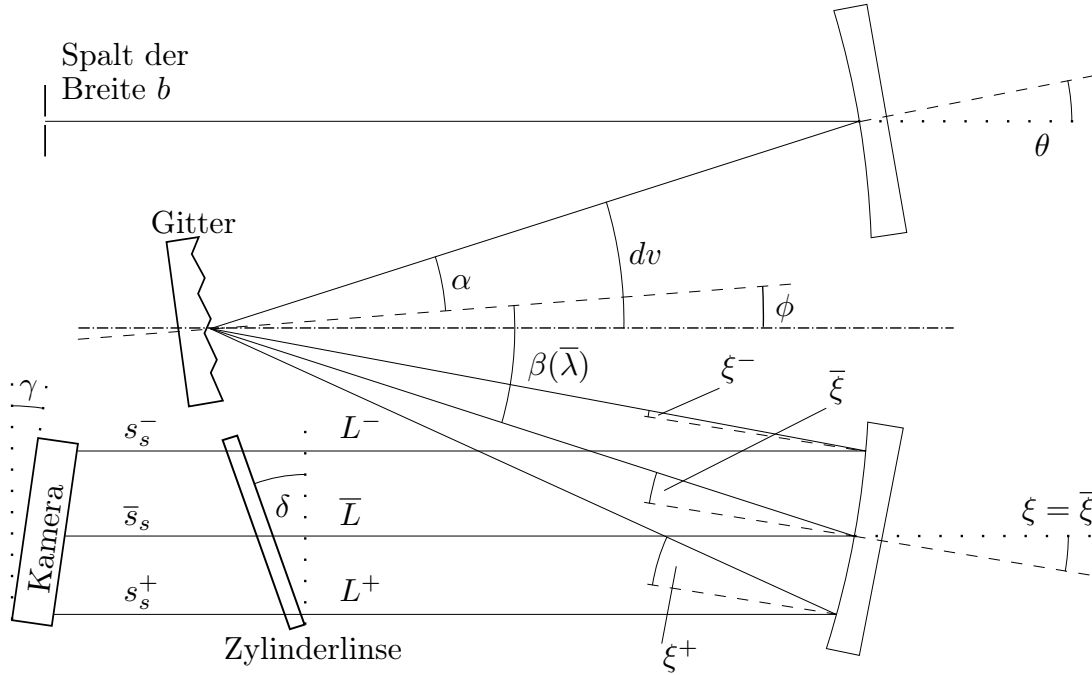


Abbildung 4.18: Breitbandig astigmatismuskorrigiertes Spektrometer  
(Grafik abgeleitet von [Lee+10])

in [Lee+10] nach  $s_s$ , also dem Abstand des ursprünglichen Fokus in der sagittalen Ebene und der Position der Zylinderlinse aufgelöst. Diese Entfernung wird genutzt, um die Position  $L$  der Zylinderlinse relativ zur Position des zweiten Spiegels zu berechnen [Lee+10]:

$$L = f_s - s_s - t_0, \quad (4.49)$$

wobei  $f_s = f_2 \cos \theta$  ist und  $t_0$  die zentrale Dicke der Zylinderlinse meint.  $s_s$  ergibt sich nach [Lee+10] zu

$$s_s = \frac{P + \sqrt{P^2 + 4Pf_s}}{2}. \quad (4.50)$$

Dabei ist  $P = \Delta z - t_0(n-1)/n$ .  $n$  und  $f_s$  sind Brechungsindex und Brennweite der Zylinderlinse. Tatsächlich ist aber, wie schon geschrieben, der Astigmatismus  $\Delta z$  aufgrund der Winkeldispersion indirekt von der Wellenlänge abhängig und folglich auch die Größen  $P$ ,  $s_s$ ,  $\xi$  und  $L$ .

Für die vereinfachte Rechnung wurde daher die Position der Zylinderlinse für drei Wellenlängen, der zentralen  $\bar{\lambda}$ , der minimalen  $\lambda^-$  und der maximalen Wellenlänge  $\lambda^+$  mit den dazugehörigen Winkeln  $\bar{\xi}$ ,  $\xi^-$  und  $\xi^+$  berechnet. Der Drehwinkel der Zylinderlinse  $\delta$  ergibt sich aus dem Tangens aus der Differenz der Positionen  $\Delta L(\xi)$  und der dazu gehörigen spektralen Breite auf dem Detektor  $b_{\Delta\lambda}$ :

$$\delta = \tan \left( \frac{\Delta L}{b_{\Delta\lambda}} \right). \quad (4.51)$$

Der Drehwinkel der Kamera ergibt sich in analoger Weise

$$\gamma = \tan \left( \frac{\Delta L + \Delta s_s}{b_{\Delta\lambda}} \right). \quad (4.52)$$

Als Zylinderlinse wurde eine LJ1653L1-A von Thorlabs ausgewählt. Sie besitzt eine Brennweite von 200 mm, eine zentrale Dicke von  $t_0=4,1$  mm und darüber hinaus eine Antireflexbeschichtung im verwendeten Spektralbereich. Der Brechungsindex der N-BK7-Linse beträgt bei der Zentralwellenlänge  $n = 1,5278$ . Die Ergebnisse der Winkelberechnungen sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Auffällig ist, dass der Mittelwert der drei derart berechenbaren Winkel jeweils dem Wert entspricht, der sich aus den Werten mit der minimalen und der maximalen Wellenlänge ergibt. Da die Winkel nicht stark streuen, scheint es ausreichend die Drehwinkel von Zylinderlinse und Kamera lediglich aus diesen beiden Wellenlängen zu berechnen. Für das in Abschnitt 4.5.2 vorge-

$\xi$ in $^\circ$	$\lambda$ in nm	$\Delta L$ in mm	$\Delta s_s$ in mm	$b_{\Delta\lambda}$ in mm	$\delta$ in $^\circ$	$\gamma$ in $^\circ$
$\xi^+$	496					
		-2,12	2,60	6,6	-18,84	4,19
$\bar{\xi}$	425					
		-2,04	2,49	6,66	-18,12	3,86
$\xi^-$	354					
		-4,15	5,09	13,3	-18,48	4,03
$\xi^+$	496					
Mittelwert:					-18,48	4,03

Tabelle 4.2: Übersicht über die Ergebnisse der vereinfachten Berechnung der Drehwinkel von Zylinderlinse ( $\delta$ ) und Kamera ( $\gamma$ ) für eine 200 mm Zylinderlinse für das in Abschnitt 4.5.1 vorgestellte Spektrometer  
 $\delta$  und  $\gamma$  ergeben sich jeweils aus der Zeile davor und danach zusammen mit Gleichungen 4.51 und 4.52

stellte Spektrometer ist eine Astigmatismuskorrektur nicht zwingend notwendig. Sie ist aber auch nicht nachteilig, sondern macht das Spektrometer universeller nutzbar. Daher wurde auch dieses Spektrometer entsprechend korrigiert. Dazu fand die gleiche Zylinderlinse wie zuvor (Thorlabs LJ1653L1-B) jedoch mit der Beschichtung B Verwendung, so dass die Linse ebenfalls im verwendeten Spektralbereich eine Antireflexbeschichtung aufweist. Auf die Darstellung der Berechnung wird hier allerdings aus Platzgründen verzichtet.

Die sich anschließende Justage war nicht ganz einfach, da allein die Position und der Drehwinkel von Kamera und Zylinderlinse schon vier Freiheitsgrade darstellen, die sich stark gegenseitig beeinflussen. Hinzu kommt, dass keine Laserquelle mit den drei genannten Wellenlängen (jeweils minimale, zentrale und maximale Wellenlänge) zur Verfügung stand. Daher erfolgte die Justage in der Nullten Ordnung des Spektrometers. Dazu wurde ein Laser mit der ungefähren Zentralwellenlänge auf den möglichst breiten Eintrittsspalt abgebildet. Zusätzlich wurde der Spalt in der Senkrechten verschoben. Im besten Fall ist ein scharfes Rechteck auf der Kamera zu sehen. Das Gitter wird dann so verfahren, dass der Eingangsspalt wahlweise links, mittig oder rechts auf dem Detektor abgebildet wird. Von chromatischen Fehlern abgesehen, verursacht durch die

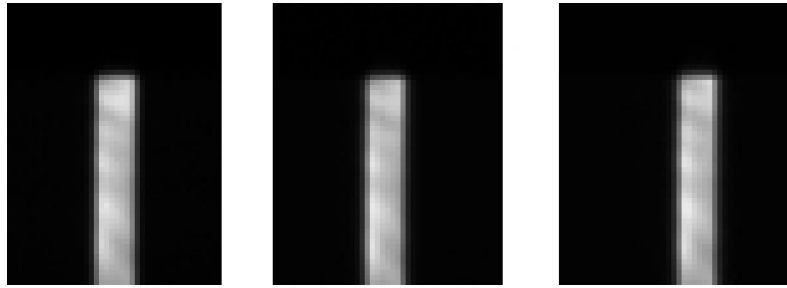


Abbildung 4.19: Astigmatismuskorrektur des in Abschnitt 4.5.1 vorgestellten UV-Spektrometers: Abbildung der Ecke eines 70,5 µm breiten Eintrittspaltes auf der Kamera jeweils ganz links, mittig und rechts auf dem Detektor. Trotz der unterschiedlichen Weglängen sind dank der Astigmatismuskorrektur alle Kanten der Spalte scharf abgebildet.

Zylinderlinse, kommt dies der Situation in erster Ordnung mit den drei Wellenlängen gleich. Der Justageprozess sieht daher so aus, dass gezielt die verschiedenen Positionen des Gitters angefahren werden und jeweils die Zylinderlinse und die Kamera nachgeführt werden, bis das Spaltabbild an jeder Stelle des Detektors scharf abgebildet ist. Abbildung 4.19 zeigt die Abbildung eines 70,5 µm breiten Eintrittspaltes auf die Kamera des in Abschnitt 4.5.1 vorgestellten Spektrometers für das Summenfrequenzsignal. Beleuchtet wurde der Spalt mit einer 405 nm Laserdioden. Die Breite des Spaltabbildes beträgt ca. 6 Pixel, woraus sich mit der Pixelbreite von 13 µm eine Spaltbreite von etwa 78 µm ergibt. Aufgrund der Pixelgröße ist der damit verbundene Fehler relativ groß. Dennoch zeugt die Übersicht von einer guten Abbildung über die gesamte Sensorbreite. Die gleiche Darstellung findet sich in Abbildung 4.20 für einen 83,3 µm Spalt, der

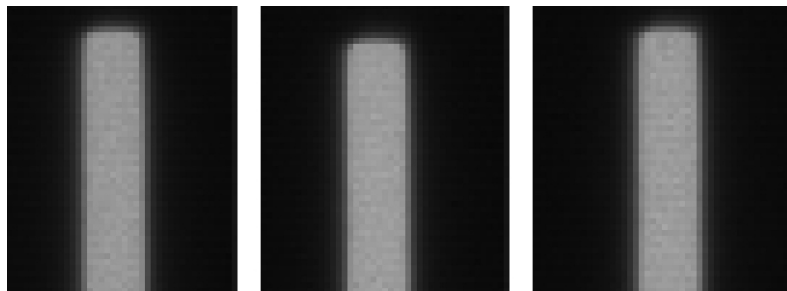


Abbildung 4.20: Astigmatismuskorrektur des in Abschnitt 4.5.2 vorgestellten Nahinfrarotspektrometers: Abbildung der Ecke eines 83,3 µm breiten Eintrittspaltes auf der Kamera jeweils ganz links, mittig und rechts auf dem Detektor

im Infrarotspektrometer aus Abschnitt 4.5.2 eingebaut wurde. Der Spalt wurde dabei mit einem 780 nm Laser beleuchtet. Die Breite in der Abbildung beträgt ca. 10 Pixel, woraus sich mit der Pixelbreite von 8 µm eine Spaltbreite von etwa 80 µm ergibt. Auch hier ist eine gute Abbildung über die gesamte Sensorbreite erkennbar.

### 4.5.5 Ansteuerungssoftware

Die Gitter der beiden Spektrometer werden jeweils von einem Newport DGM1 Gitterhalter auf einem elektronisch gesteuerten Rotationstisch der Firma Standa vom Typ 8MR191-28 (mit Schrittmotor) gehalten. Die Ansteuerung erfolgt über einen 8SMC1-USBhF-B2-4-Controller. Trotz der guten technischen Daten, wie z. B. der Winkelauflösung von 4,5 arcsec, ist bei der Programmierung der Ansteuerungssoftware unbedingt darauf zu achten, jede Position immer aus der gleichen Drehrichtung kommend anzufahren. Andernfalls ist das mechanische Spiel der Winkelumsetzung zu groß und Wellenlängen können nicht reproduzierbar angefahren werden. Daher wird in der Software die neue Schrittposition mit der alten Position verglichen. Ist die neue Position größer als die vorherige, wird die Position direkt angefahren. Ist sie jedoch kleiner wird 1000 Schritte über die Zielposition hinaus gefahren und erst danach zu der gewünschten neuen Position gefahren. Darüber hinaus wurde in der Software die Wellenlängenkalibrierung integriert (siehe Abschnitt 4.5.6), so dass die gewünschte Wellenlänge direkt angefahren werden kann. Weiterhin gibt es die Möglichkeit in den Anschlagschalter zu fahren, um die absolute Position neu festzulegen und eine weitere Funktion, um die 0 nm-Position, die Position der Nullten Ordnung, festzulegen. Letzteres ist hilfreich, wenn die Position des Spaltes geändert werden soll oder auf dem Sensor ein anderer Pixel der 0 nm-Position zugeordnet werden soll.

Die Programmierung erfolgte in C++. Für die grafische Oberfläche kam Qt zum Einsatz. Sämtliche Parameter für die Ansteuerung der Rotationstische, wie z.B. Rotationsgeschwindigkeit oder die aktuelle Position, werden in einer externen INI-Datei gespeichert und beim Programmstart ausgelesen. Beim Beenden des Programms fährt der Schrittmotor in den nächsten Vollschriff und die neue Position wird in der INI-Datei gespeichert, so dass auch nach einem Neustart die richtige Wellenlänge in der Software angezeigt wird.

Dazu muss bestimmt werden, welche Position des Schrittmotors welcher Wellenlänge entspricht. Um das zu ermitteln, wurde eine kleine Spaltbreite gewählt und mit einer Quecksilberdampfampe beleuchtet. Anschließend wurde das Gitter immer so verfahren, dass eine weitere Spektrallinie in der Mitte des Detektors abgebildet wird. Die entsprechenden Schrittpositionen wurden notiert. Wird Gleichung 4.40 nach  $\lambda$  aufgelöst, erhält man die Wellenlänge abhängig vom Gitterdrehwinkel.

$$\lambda(\phi) = 2d \sin(\phi) \cos(dv)/m \quad (4.53)$$

Der Drehwinkel lässt sich durch die technischen Angaben des Drehtisches bezüglich der Schrittgrößen durch die Schrittzahl ersetzen. Ein 1/8 Schritt beträgt 0,00125°. Mit  $\phi = x/k$ , wobei  $x$  die Schrittzahl und  $k = 180^\circ/0,00125^\circ/\pi$  die Schrittgröße zusammen mit dem Umrechnungsfaktor für Bogenmaß darstellt. Es gilt also

$$\lambda(x) = 2d \sin(x/k) \cos(dv \pi/360^\circ)/m. \quad (4.54)$$

Das ermöglicht nun eine Regressionsrechnung zur genauen Bestimmung der Größe  $dv$ . Im Fall des in Abschnitt 4.5.1 gezeigten Spektrometers für blaues Licht, liefert die Regression  $dv = 31,344^\circ$

mit einem Fehler von  $0,17^\circ$  bei 95% Vertrauensniveau. Für den Fehler wurden lediglich die Standardabweichung von  $0,0765$  und der  $\tau$ -Faktor mit  $2,201$  berücksichtigt. Der rechnerische Wert nach Abschnitt 4.5.1 ergibt  $dv = 31,63^\circ$  und liegt nur knapp nicht im Messunsicherheitsintervall. In Anbetracht der möglichen geometrischen Abweichung bei der Platzierung der Bauteile, stimmen die Werte gut überein.

Dennoch hat sich im Betrieb gezeigt, dass entfernte Wellenlängen nicht ganz genau angefahren werden. Die einzige Erklärung dafür liegt darin, dass das Gitter nicht ganz exakt  $300$  Linien/mm hat. Durch variieren des berechneten Wertes wurde ein neuer Wert für  $dv$  bestimmt, der somit eine abweichende Gitterfrequenz ermöglicht. Der so bestimmte Wert beträgt  $dv = 31,15^\circ$ .

Für das Infrarotspektrometer aus Abschnitt 4.5.2 wurde ein  $dv$  von  $32,10^\circ$  verwendet.

#### 4.5.6 Wellenlängenkalibrierung

Für die Zuordnung zwischen Pixeln der Kamera und der Wellenlänge wurden Krypton- und Quecksilberspektrallampen (Typ 6031 und Typ 6035) von Newport verwendet.

Newport stellt ein Tabellenwerk mit Spektrallinien für diese Lampen zur Verfügung [Ori]. Leider sind dabei keine Intensitäten angegeben, was die Zuordnung erschwert. Hilfreicher und präziser war das Tabellenwerk [Sai+61]. Dort ist neben der Wellenlänge auch die Intensität der einzelnen Spektrallinien angegeben. Wie in Abschnitt 4.5.1 gezeigt, ist die lineare Dispersion nur für einen kleinen Winkelbereich von  $\beta$  wirklich linear. Deshalb wurde durch die Messwerte in Tabelle 4.3 jeweils eine quadratische Ausgleichsfunktion gelegt (siehe Ende Tabelle 4.3). Das Verhältnis  $P$  ist abhängig von der Winkeldispersion, also dem Ausfallswinkel und somit auch von dem Gitterdrehwinkel. Für  $\lambda_c = 390,16$  nm verändert er sich bei Summenfrequenzspektrometer von  $P(N = 1) = 0,134854$  nm/pixel bis  $P(N = 1024) = 0,136844$  nm/pixel. Die Zentralwellenlänge während der Kalibrierung des Infrarotspektrometers betrug  $\lambda_c = 786,01$  nm. Für diesen Gitterwinkel variiert  $P$  von  $P(N = 1) = 0,25103$  nm/pixel bis  $P(N = 1382) = 0,25383$  nm/pixel. Die mathematische Beziehung zwischen dem Verhältnis  $P$  und Gitterdrehwinkel respektive der Zentralwellenlänge wurde in [Sch04] hergeleitet. Wegen der durchgeführten Wellenlängenkalibrierung wird sie hier jedoch nicht benötigt.

#### 4.5.7 Spektrale Empfindlichkeit

Die spektrale Reflexionseffizienz eines Gitters hängt unter anderem von dem verwendeten Material ab. Bei Gittern wird zwischen relativer Effizienz, welche die Reflektivität in die gewählte Ordnung mit der eines Spiegels vergleicht, und der absoluten Effizienz unterschieden. Letztere beschreibt den tatsächlich in eine gewählte Ordnung gebeugten Anteil im Vergleich zum Gesamtanteil des Lichtes. Generell hängt die Gittereffizienz maßgeblich von der Beugungsordnung ab, aber auch von dem „Blazewinkel“. Dabei wird der Winkel der Gitterfurchen so angepasst, dass die Richtung der Reflexion an der einen Fläche der Furchen mit der Richtung des gebeugten Lichtes der gewünschten Wellenlänge übereinstimmt. So ergibt sich für diese Wellenlänge ein

Spektrometer 1 (siehe Abschnitt 4.5.1)				Spektrometer 2 (siehe Abschnitt 4.5.2)			
Pixel	Wellenlänge in nm		Lampentyp	Pixel	Wellenlänge in nm		Lampentyp
175	435,835	[Sai+61]	Hg	267,0	892,86934	[Sai+61]	Kr
405	404,656	[Sai+61]	Hg	327,2	877,67498	[Sai+61]	Kr
697	365,0146	[Trä12]	Hg	433,8	850,88736	[Sai+61]	Kr
923	334,148	[Sai+61]	Hg	517,5	829,81091	[Sai+61]	Kr
				531,0	826,32412	[Sai+61]	Kr
				560,5	819,00570	[Sai+61]	Kr
				590,8	811,29023	[Sai+61]	Kr
				611,8	805,95053	[Sai+61]	Kr
				693,0	785,4823	[Sai+61]	Kr
				756,5	769,45401	[Sai+61]	Kr
				793,5	760,15465	[Sai+61]	Kr

---

Ausgleichsfunktion Spektrometer 1:  
 $\lambda(N) = -0,134851 \text{ nm/pixel } N - 9,73394 \cdot 10^{-7} \text{ nm/pixel } N^2 + 459,454 \text{ nm/pixel}$   
 $\lambda_c = \lambda(N = 512) = 390,16 \text{ nm}$

---

Ausgleichsfunktion Spektrometer 2:  
 $\lambda(N) = -0,251026 \text{ nm/pixel } N - 1,01535 \cdot 10^{-6} \text{ nm/pixel } N^2 + 959,954 \text{ nm/pixel}$   
 $\lambda_c = \lambda(N = 691) = 786,01 \text{ nm}$

---

Tabelle 4.3: Zuordnung der Pixel des Kamerasensors zu den Wellenlängen von Quecksilber- und Kryptonspektrallampen

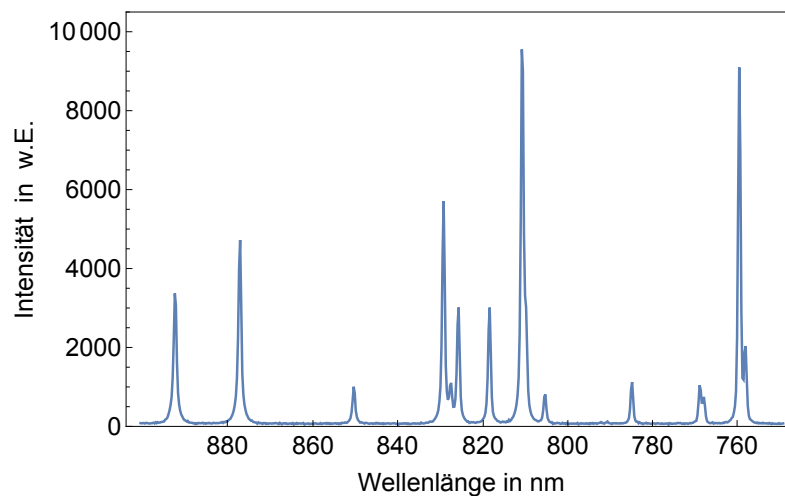


Abbildung 4.21: Spektrum der Kryptonlampe (Newport Model 6031) - gemessen mit dem in Abschnitt 4.5.2 entwickelten Infrarotspektrometer

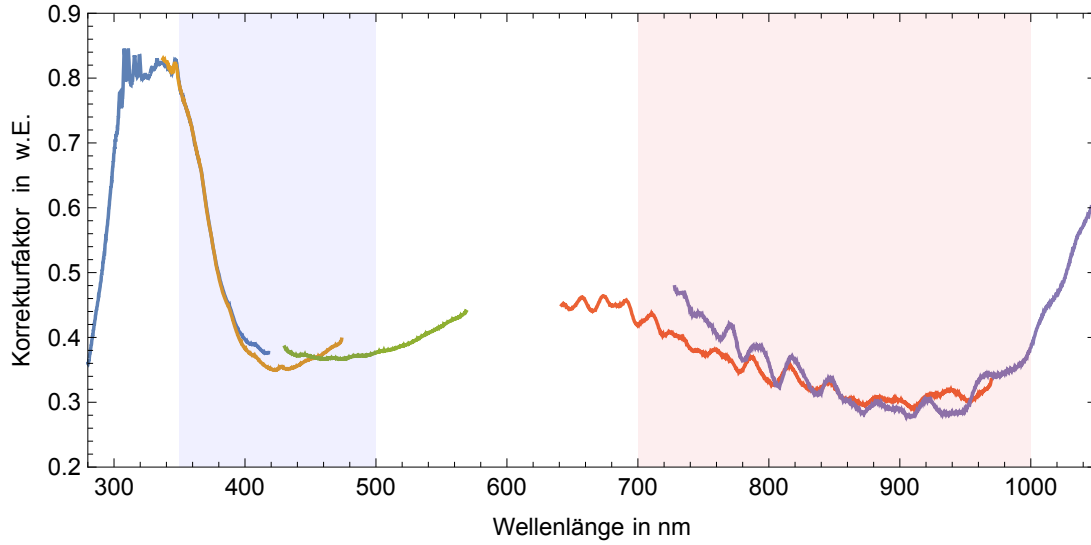


Abbildung 4.22: Spektrale Korrekturkurven des Summenfrequenzspektrometers (links) und des Infrarotspektrometers (rechts) für verschiedene Gitterstellungen bei horizontal polarisiertem Licht. Der geplante jeweilige spektrale Einsatzbereich der Spektrometer ist in blau und rot hinterlegt. Der Einfallswinkel des Lichtes auf das Gitter beeinflusst die Effizienz des Gitters [Pal+14]. Deshalb überlagern sich die Kurven nicht vollständig. Vor der weiteren Auswertung müssen die gemessenen Spektren mit der jeweiligen spektralen Korrekturkurve multipliziert werden.

Maximum der Gittereffizienz. Darüber hinaus beeinflussen aber auch der Einfallswinkel und die Polarisation des Lichtes die Gittereffizienz.

Bei hochauflösenden Spektren kann oft die Effizienz des Gitters bzw. des gesamten Spektrometers vernachlässigt werden, da sie über einen sehr kleinen Spektralbereich quasi konstant ist. In der fs-Puls Charakterisierung werden aber mit zunehmend kürzeren Pulsen die zu messenden Spektren breiter. Hier ist die spektrale Empfindlichkeit des Messgerätes, also der Einheit aus optischen Elementen vor und in dem Spektrometer zusammen mit der verwendeten Kamera in Form einer Korrekturkurve zu berücksichtigen.

Zu diesem Zweck wurde zunächst der gesamte VAMPIRE-Aufbau grob positioniert und insbesondere die Einkoppeloptik in die Spektrometer überprüft. Anschließend wurde der nichtlineare Kristall entfernt und durch eine kalibrierte 1 kW Wolframglühlampe ersetzt. Dank der Kalibrierung ist die Temperatur des Wolframdrahtes bekannt. Um umliegende Optiken und andere Komponenten nicht zu zerstören, musste ein Strahlungsschild angefertigt werden.

Das Plancksche Strahlungsgesetz [Bae+08]

$$M(\lambda, T) = \frac{c_1}{\lambda^5 (\exp^{c_2/\lambda T} - 1)} \quad (4.55)$$

mit  $c_1 = 2\pi\hbar c^2$  und  $c_2 = \hbar c/k$  liefert das Emissionsspektrum eines schwarzen Strahlers. Wird dieses mit dem spektralen Emissionsgrad  $\epsilon_\lambda$  von Wolfram [Vos54] multipliziert, erhält man das Emissionsspektrum der Wolframlampe  $I_W(\lambda, T)$ . Die gesuchte spektrale Korrekturkurve  $K(\lambda)$  ergibt sich dann mit der gemessenen Intensität  $I_{\text{mess}}(\lambda, T)$  wie folgt:

$$K(\lambda) = I_W(\lambda, T)/I_{\text{mess}}(\lambda, T). \quad (4.56)$$

Einige der Korrekturkurven sind in Abbildung 4.22 dargestellt.

## 4.6 BBO- und BIBO-Kristalle

BBO ( $\beta$ -Bariumborat bzw.  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) ist einer der am meisten verbreiteten nichtlinearen Kristalle um SHG von Ti:Sa-Lasern zu erzeugen. Das liegt nicht nur in seiner hohen, breitbandigen Transparenz und seiner hohen Zerstörschwelle begründet [Che+12], sondern auch in seiner vergleichsweise hohen Nichtlinearität.

BIBO (Wismuttriborat - BiB<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) wurde erstmals 1982 hergestellt [Lie82], jedoch war es lange schwierig große Kristalle herzustellen, was erst 1999 gelang [Bec+99]. BIBO hat noch größere Nichtlinearitätskonstanten als BBO und ist daher von großem Interesse. Zunächst soll die Phasenanpassungsbandbreite von BIBO berechnet und mit der von BBO verglichen werden. Ein Vergleich der zu erwartenden Intensitäten des SFG-Signals folgt im späteren Verlauf.

### 4.6.1 Phasenanpassung

Wegen der hohen Konversionseffizienz von BIBO [Che+12] und der deshalb erwarteten höheren Intensität des Korrelationssignals wurden drei BIBO-Kristalle in unterschiedlicher Dicke bestellt. Die gefertigten Dicken sind 28  $\mu\text{m}$ , 118  $\mu\text{m}$  und 1190  $\mu\text{m}$ . BIBO ist ein biaxialer Kristall mit drei verschiedenen Brechungsindizes  $n_x(\lambda)$ ,  $n_y(\lambda)$  und  $n_z(\lambda)$  [Miy+09]. Für eine Phasenanpassung bei 800 nm wurden die Kristalle vom Hersteller so geschnitten, dass die x-Achse die Rotationsachse ist und um 29° von der z-Achse rotiert wurde. Relevant sind also in erster Linie die Brechungsindizes  $n_y(\lambda)$  und  $n_z(\lambda)$ . Da der Aufbau in nicht-kollinearer Anordnung ist, müsste eigentlich  $n_x(\lambda)$  berücksichtigt werden. Der Winkel  $\theta$  zwischen den Eingangstrahlen ist aber sehr klein, weshalb der in Abschnitt 2.3.3 erwähnte Korrekturterm  $\cos(\theta/2) = 0,993$  vernachlässigt werden kann. Um die Bandbreite der Phasenanpassung zu berechnen, wird zunächst die Differenz der Wellenvektoren  $\Delta k$  nach [Hob67] für Typ I (z) Phasenanpassung berechnet

$$\Delta k = \frac{\omega}{c} \left\{ (n_2^x)^3 [(n_2^x)^{-2} - (n_2^z)^{-2}] \cos^2 \Phi - (n_1^y)^3 [(n_1^y)^{-2} - (n_1^z)^{-2}] \sin^2 \Phi \right\} (\Delta\Theta)^2. \quad (4.57)$$

Dabei ist  $n$  der Brechungsindex, der untere Index 1 bezieht sich auf die fundamentale Wellenlänge und der Index 2 auf die harmonische Wellenlänge. Der obere Index gibt die Richtung des Brechungsindex an. Die Winkel  $\Phi = 90^\circ$  und  $\Delta\Theta = 90^\circ - 29^\circ = 61^\circ$  entsprechen der Drehung des Kristalls. Wegen unterschiedlicher Definition der Winkel ist  $\Delta\Theta \neq 29^\circ$ .  $\Delta k$  wird nun als

Funktion der fundamentalen Wellenlänge  $\lambda$  geschrieben

$$\Delta k(\lambda) = \frac{2\pi(\Delta\Theta)^2}{\lambda \cdot 10^{-6}} \cdot \{ n_x(\lambda/2)^3 \cdot [n_x(\lambda/2)^{-2} - n_z(\lambda/2)^{-2}] \cdot \cos^2(\Phi) - n_y(\lambda)^3 \cdot [n_y(\lambda)^{-2} - n_z(\lambda)^{-2}] \cdot \sin^2(\Phi) \}, \quad (4.58)$$

wodurch der Index für die Richtung nun in Analogie zu [Miy+09] unten Platz findet. Die Sellmeier-Gleichungen aus [Miy+09] erfordern die Eingabe der Wellenlängen in  $\mu\text{m}$ , weshalb in Gleichung 4.58 die  $10^{-6}$  im Nenner eingefügt wurde. Wie schon in Gleichung 4.57 erkennbar, ist  $\Delta k$  für  $\Phi = 90^\circ$  nicht mehr von  $n_x$  abhängig. Wird  $\Delta k(\lambda)$  in einer Taylorreihe entwickelt, ist der erste Term bei Phasenanpassung gleich Null, der zweite Term entspricht der kritischen Phasenanpassung und der dritte Term der nichtkritischen Phasenanpassung [Pel04]. Da hier die Phasenanpassung nicht über die Temperatur, sondern den Drehwinkel erfolgt, ist der zweite Term für diese Rechnung relevant. Die nichtlineare Verstärkung eines Kristalls der Dicke  $L$  hat bei

$$\Delta k = \pm 0,886 \frac{\pi}{L} \quad (4.59)$$

die Hälfte des Wertes von  $\Delta k = 0$  angenommen [Pel04]. Die Phasenanpassungsbandbreite ergibt sich nach [Pel04] aus dem Gleichsetzen der Taylorentwicklung von  $\Delta k(\lambda)$  mit Gleichung 4.59 zu

$$\delta\lambda_{\text{FWHM}}(\lambda_c) = 0,886 \frac{2\pi}{L} \left[ \frac{\partial \Delta k(\lambda)}{\partial \lambda} \right]_{\lambda_c}^{-1} \quad (4.60)$$

Für die vorhandenen BIBO-Kristalle der Dicken  $28\mu\text{m}$ ,  $118\mu\text{m}$  und  $1190\mu\text{m}$  und einer Zentralwellenlänge des Pulses von  $\lambda_c = 800\text{nm}$  betragen die Phasenanpassungsbandbreiten etwa  $67,8\text{nm}$ ,  $16,1\text{nm}$  und  $1,6\text{nm}$ . Die wellenlängenabhängige Phasenanpassungsbandbreite von BIBO ist in Abbildung 4.23 dargestellt. Zum Vergleich dazu beträgt die nach Gleichung 2.32 berechnete Phasenanpassungsbandbreite für BBO mit den gleichen Kristalldicken ( $28\mu\text{m}$ ,  $118\mu\text{m}$  und  $1190\mu\text{m}$ ) nun etwa  $170,6\text{nm}$ ,  $40,5\text{nm}$  und  $4,0\text{nm}$ . Die Phasenanpassungsbandbreite von BBO ist bei  $800\text{nm}$  und gleicher Kristalldicke also etwa 2,5 mal so groß, wie die von BIBO. Für die Rechnung wurde wieder eine Zentralwellenlänge von  $800\text{nm}$  angenommen und der Drehwinkel des BBO-Kristalls beträgt  $29,2^\circ$ . Analog zu Abbildung 4.23 ist in Abbildung 4.24 die wellenlängenabhängige Phasenanpassungsbandbreite der genannten BBO-Kristalle gezeigt. Man beachte die unterschiedliche Achsenskalierung.

#### 4.6.2 Intensität des Summenfrequenzsignals

Die Intensität des erzeugten Lichtes bei nichtlinearen optischen Prozessen wie SHG oder SFG ist abhängig von der erzeugten nichtlinearen Polarisierung in dem nichtlinearen Medium. Dabei wird die Suszeptibilität als Tensor eingeführt. Zusätzlich wird der Tensor  $d_{i,j,k} = \frac{1}{2}\chi^2$  eingeführt. Dieser Tensor besitzt 27 Elemente, wobei die Anzahl oft aus Symmetriegründen reduziert werden kann. Die Polarisierung kann nun in Termen der Eingangsfelder  $E_j(\omega_n)$  und  $E_k(\omega_m)$  zusammen mit dem nichtlinearen Koeffizienten  $d_{ijk}$  wie folgt geschrieben werden [Boy08]:

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(nm)} 2d_{ijk} E_j(\omega_n) E_k(\omega_m). \quad (4.61)$$

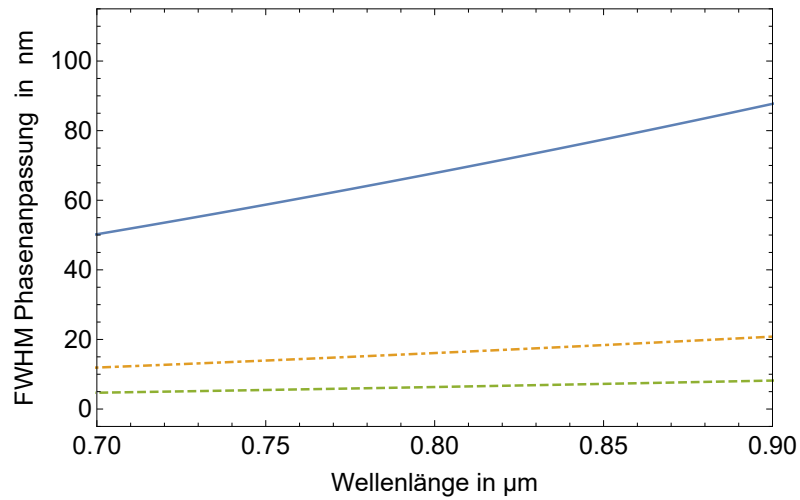


Abbildung 4.23: Bandbreite der Phasenanpassung in BIBO für eine Kristalldicke von 28 µm (blaue Kurve), 118 µm (orange, gepunktet-gestrichelt) und 300 µm (grün, gestrichelt). Wegen der indirekten Proportionalität der Bandbreite zu der Kristalldicke entspricht die orange-gestrichelte Kurve fast der 10fach vergrößerten Darstellung der Bandbreite des 1,19 mm dicken Kristalls.

Orientierung des BIBO-Kristalls: 29° von z in yz-Ebene

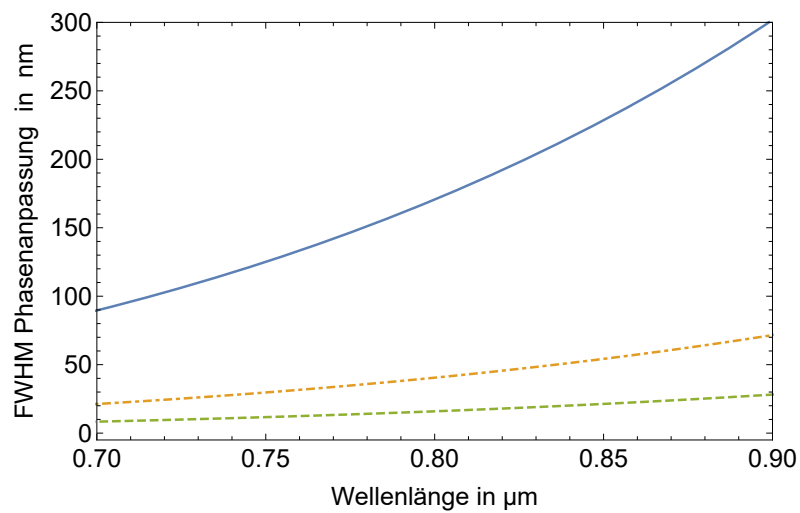


Abbildung 4.24: Bandbreite der Phasenanpassung in BBO für eine Kristalldicke von 28 µm (blaue Kurve), 118 µm (orange, gepunktet-gestrichelt) und 300 µm (grün, gestrichelt)

Schnittwinkel  $\theta = 29,2^\circ$

Dabei stehen der Index  $i$  für das erzeugte Signal und die Indizes  $j$  und  $k$  für die beiden Eingangssignale. Bei gegebener Geometrie, also fester Strahlgeometrie und Polarisierung, kann  $d_{ijk}$  weiter zu einem effektiven nichtlinearen Koeffizienten  $d_{\text{eff}}$  vereinfacht werden. Die Polarisierung ergibt sich dann für SFG-Prozesse zu [Boy08]

$$|P(\omega_3)| = 4\epsilon_0 d_{\text{eff}} |E(\omega_1)| |E(\omega_2)|. \quad (4.62)$$

Wird die Polarisierung in die Wellengleichung eingesetzt und dabei davon ausgegangen, dass die Einhüllende der Felder nur langsam variiert, ergibt sich mit der Einführung von  $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$  und anschließender Integration über  $z$  in den Grenzen 0 bis  $L$  die Amplitude  $A_3$  des erzeugten Feldes [Boy08]. Die gesuchte Intensität  $I_3$  ergibt sich durch quadrieren zu [Boy08]

$$I_3 = \frac{8n_3\epsilon_0\omega_3^4 |A_1|^2 |A_2|^2}{k_3^2 c^3} L^2 d_{\text{eff}}^2 \text{sinc}^2(\Delta k/2). \quad (4.63)$$

Die Intensität ist also proportional zu  $d_{\text{eff}}^2$ . Für einen SHG-Prozess mit BBO von 800 nm auf 400 nm ist  $d_{\text{eff}} = 2 \text{ pm/V}$  [Che+12]. Dagegen ist für den gleichen Prozess mit BIBO  $d_{\text{eff}} = 3,72 \text{ pm/V}$  [Che+12]. Betrachtet man nur  $d_{\text{eff}}$ , liegt die Vermutung nahe, dass ein SFG-Signal bei Verwendung von BIBO etwa 3,5 mal so intensiv ist. Allerdings ist die Intensität auch proportional zum Quadrat der Kristalldicke ( $I_{\text{SFG}} \propto L^2$ ). Für einen direkten Vergleich ist es daher sinnvoll, von einer vordefinierten Phasenanpassungsbandbreite auszugehen. Daraus leitet sich dann die erforderliche Kristalldicke  $L$  ab. Mit dieser Dicke kann nun ein Proportionalitätsfaktor  $a = L^2 d_{\text{eff}}^2$  eingeführt werden. Das Verhältnis  $a_{\text{BIBO}}/a_{\text{BBO}}$  ermöglicht den direkten Vergleich der beiden Kristalle. Es ist zu beachten, dass die Größe  $a$  wellenlängenabhängig ist, da der Brechungsindex in die Berechnung der Phasenanpassungsbandbreite eingeht. Für 800 nm wurde im vorhergehenden Abschnitt herausgefunden, dass bei gleicher Phasenanpassungsbandbreite die Kristalldicke von BBO 2,5 mal so groß ist, wie die von BIBO. Es gilt also  $L_{\text{BBO}} = 2,5 \cdot L_{\text{BIBO}}$ . Damit folgt

$$\frac{a_{\text{BIBO}}}{a_{\text{BBO}}} = \frac{L_{\text{BIBO}}^2 d_{\text{eff,BIBO}}^2}{L_{\text{BBO}}^2 d_{\text{eff,BBO}}^2} = \frac{L_{\text{BIBO}}^2 d_{\text{eff,BIBO}}^2}{(2,5 \cdot L_{\text{BIBO}})^2 d_{\text{eff,BBO}}^2} \approx 0,55. \quad (4.64)$$

Trotz der hohen nichtlinearen Koeffizienten ist wegen der deutlich geringeren Kristalldicke bei gleicher Phasenanpassungsbandbreite die SFG-Intensität des BIBO-Kristalls kaum mehr als halb so groß im Vergleich zu der des BBO-Kristalls.

### 4.6.3 Spannungsfreie Kristallhalterung

Üblich sind zwei Methoden für die Einstellung der Phasenanpassung. Zum einen, wie in dieser Arbeit erfolgt, über den Drehwinkel des Kristalls und zum anderen über die Kristalltemperatur. Um auszuschließen, dass mechanische Spannung im Kristall die Phasenanpassung negativ beeinflusst, wurde Wert auf eine spannungsfreie Kristallhalterung gelegt. Im Fall von dicken Kristallen ( $> 100 \mu\text{m}$ ) war das leicht möglich, indem zwei Aluminiumscheiben mit einer entsprechenden Apertur und einer Aussparung für den Kristall gefertigt wurden. Die Aluminiumscheiben wurden dann miteinander verschraubt. Ein Kristall war jedoch nur  $28 \mu\text{m}$  dünn und da der Kristall

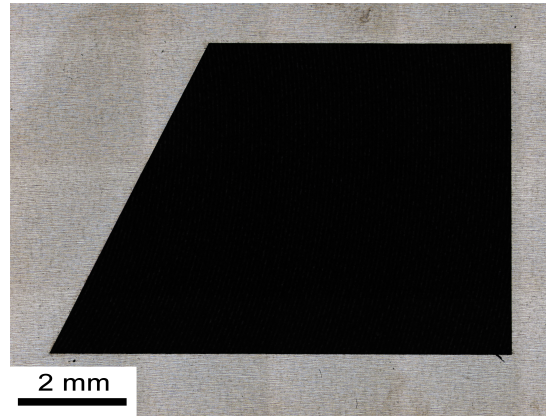


Abbildung 4.25: Edelstahlfolie als Abstandshalter (50 µm dick) mit Aussparung für das 28 µm dicke BIBO-Kristallbruchstück

dem Hersteller bereits beim Schleifen gebrochen ist, konnte befürchtet werden, dass er bei einer ungünstigen Halterung womöglich weiter bricht. Daher wurde die Ansteuerung von vorhandenen Piezo-Verschiebetischen überarbeitet. In Zusammenarbeit mit Dr. Steffen Fiedler konnte so eine 50 µm dünne Edelstahlfolie mit vorher definierten Geschwindigkeiten und vorgegebenen Richtungen durch den Brennpunkt eines verstärkten fs-Lasersystems gefahren werden. Auf diese Weise konnte eine Apertur in die Folie geschnitten werden, die dem Kristallbruchstück entspricht. Eine zusammengesetzte Aufnahme der Edelstahlfolie mit einem konfokalen Laser-Scanning-Mikroskop von Olympus findet sich in Abbildung 4.25. Für die Halterung wurden wieder zwei Aluminiumscheiben mit einer Apertur verwendet, um darin die Edelstahlfolie einzuklemmen. In der Öffnung der Folie ist der Kristall nun völlig spannungsfrei gelagert.

#### 4.6.4 Antireflex-Beschichtung der BIBO-Kristalle

Erste Messungen mit dem 28 µm dünnen BIBO-Kristall zeigten spektrale Oszillationen im SFG-Signal. Abbildung 4.26 zeigt die Rohdaten aus der Kamerasoftware (Wurzel angewendet, um den Betrag des Feldes und nicht die Intensität darzustellen). Die Oszillationen sind klar erkennbar. Dabei handelt es sich um Fabry-Pérot-Oszillationen. Es kommt immer dann zu konstruktiver Interferenz, wenn der Phasenversatz zwischen dem Signal und seinem an den beiden Grenzflächen zurückgestreuten Reflex genau  $2\pi$  beziehungsweise ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge beträgt. Da die Schichtdicke einmal hin und wieder zurück durchlaufen wird, ist die Bedingung für konstruktive Interferenz  $L = N(\lambda/2)$ . Dabei ist  $N$  eine ganze Zahl. Da sowohl der Winkel für die Phasenanpassung als auch der Winkel durch die nicht kollineare Geometrie ( $\cos 7^\circ = 0,9925$ ) klein sind, wurden sie hier vernachlässigt. Die Resonanzfrequenzen ergeben sich mit  $c = \lambda f$  zu

$$f(N) = N \frac{c}{2L}. \quad (4.65)$$

Für zwei aufeinander folgende  $N$  folgt daraus direkt

$$\Delta f = \frac{c}{2L}. \quad (4.66)$$

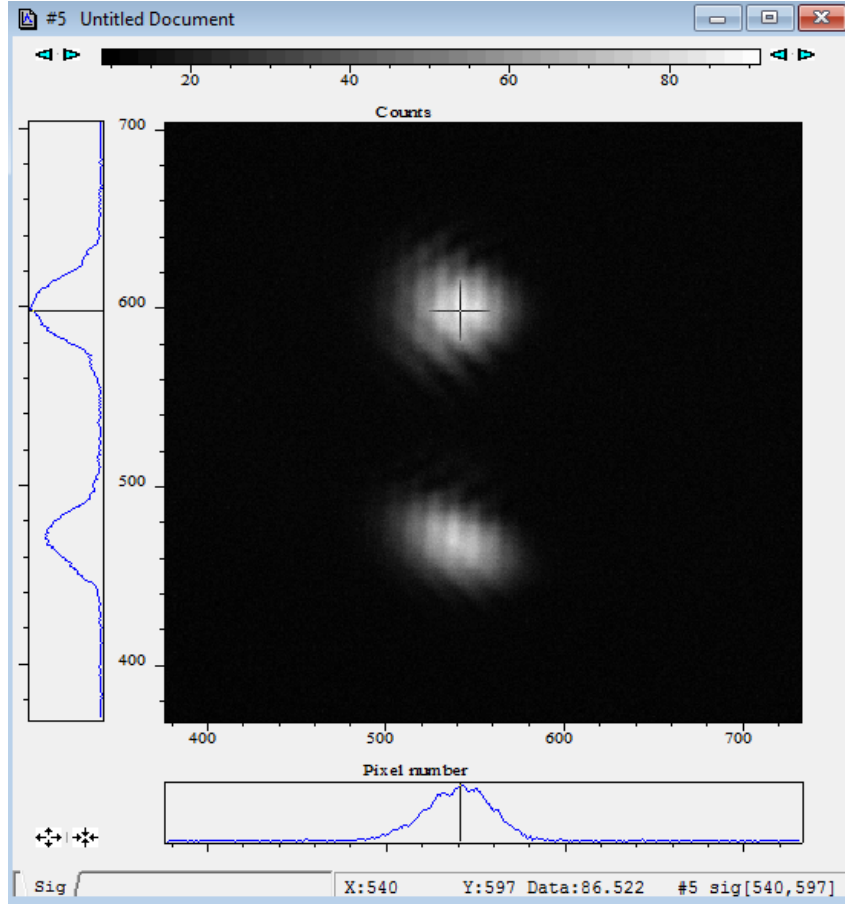


Abbildung 4.26: VAMPIRE-Spektrogramm: aufgenommen mit einem 28  $\mu\text{m}$  BIBO Kristall  
 Belichtungszeit 1 s, Elektronenverstärkung 30fach  
 Vergleiche dazu Abbildung 4.27 und siehe Text

Wird in Gleichung 4.66 die Relation

$$\Delta f = \frac{c}{\lambda} - \frac{c}{\lambda + \Delta\lambda} \quad (4.67)$$

eingesetzt, folgt durch Auflösen nach  $\Delta\lambda$

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2 + \lambda\Delta\lambda}{2nL} = \frac{\lambda^2}{2nL - \lambda} \approx \frac{\lambda^2}{2nL}. \quad (4.68)$$

Für  $\lambda = 390 \text{ nm}$  ergibt sich mit dem dazugehörigen Brechungsindex bei erfüllter Phasenanpassung  $n = 1,828$  (bestimmt durch SNLO) bei einer Schichtdicke von  $L = 28 \mu\text{m}$  ein spektraler Abstand der Intensitätsmaxima von  $\Delta\lambda = 1,49 \text{ nm}$ . In der Messung beträgt  $\Delta\lambda = (1,47 \pm 0,14) \text{ nm}$ . Der angegebene Fehler entspricht der Wellenlänge eines Pixels. Da die Diskrepanz zwischen theoretischem und experimentell ermitteltem Wert insignifikant ist, können Fabry-Pérot-Oszillationen für den beobachteten Effekt verantwortlich gemacht werden. Bei dem 118  $\mu\text{m}$  dicken Kristall (vergleiche Abbildung 4.27) fallen auf den ersten Blick keine Fabry-Pérot-Oszillationen auf. Die analoge Rechnung liefert ein  $\Delta\lambda = 0,35 \text{ nm}$ , was grob drei Pixeln entspricht. Tatsächlich kann

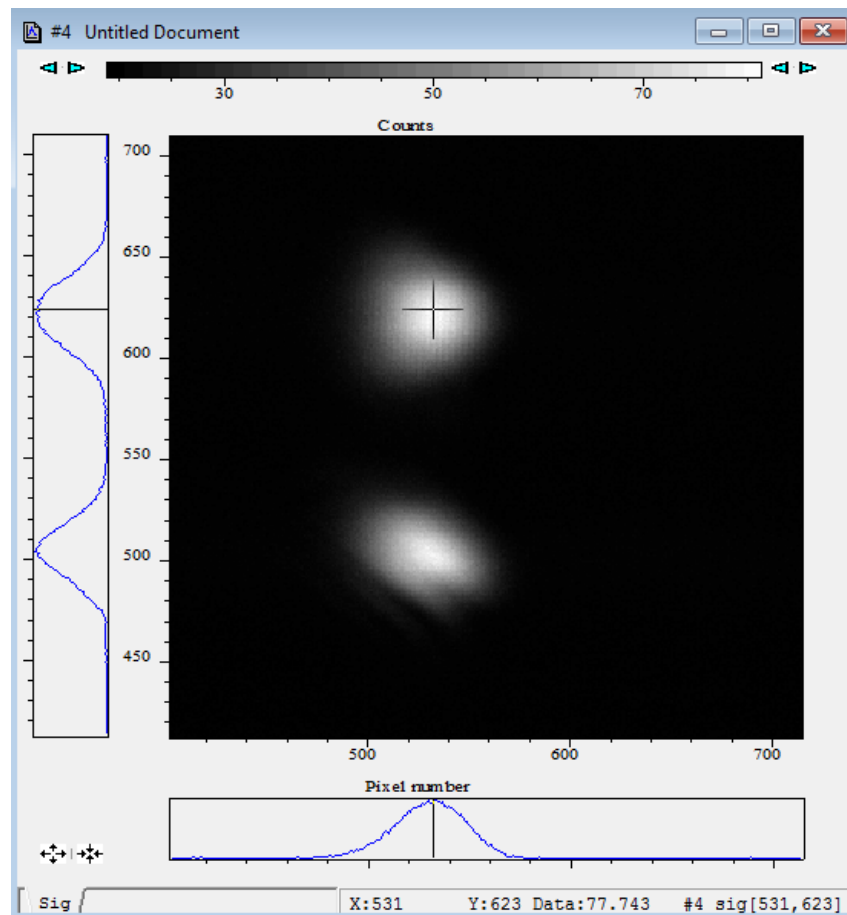


Abbildung 4.27: VAMPIRE-Spektrogramm: aufgenommen mit einem 118  $\mu\text{m}$  BIBO Kristall  
Belichtungszeit 0,1 s, Elektronenverstärkung 17-fach  
Vergleiche dazu Abbildung 4.26 und siehe Text

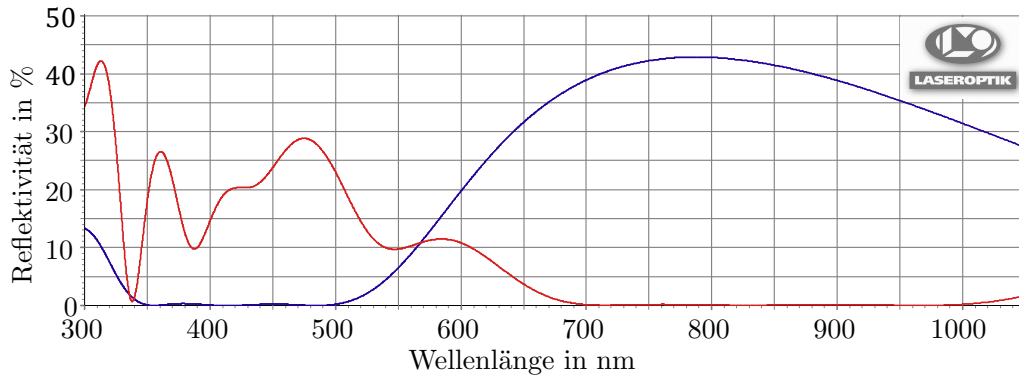


Abbildung 4.28: Reflektivität der Anti-Reflex Beschichtungen auf BIBO bei 10° schrägem Einfall und breitbandiger Optimierung für 350 nm bis 500 nm (blau) und für 700 nm bis 1000 nm (rot)

man bei starker Vergrößerung diese Oszillationen noch entdecken (nicht extra gezeigt). Erst bei dem 1,19 mm dicken Kristall können diese Oszillationen nicht mehr aufgelöst werden, da  $\Delta\lambda = 0,035$  nm kleiner als die spektrale Auflösung des verwendeten Spektrometers ist.

Um dünne BIBO-Kristalle für die Pulscharakterisierung verwenden zu können, ist es folglich zwingend erforderlich, sie mit einer Anti-Reflex-Beschichtung zu versehen. Dazu wurde überlegt, die Eintrittsseite breitbandig für 800 nm und die Austrittsseite breitbandig für 400 nm zu entspiegeln. So kann das Eingangsfeld effizient in den Kristall einkoppeln, während das SFG-Signal weitestgehend ohne Rückreflex aus dem Kristall austreten kann. Alternativ dazu wurde überlegt, zwei verschiedene Dual-Anti-Reflex-Schichten zu verwenden. Die eine auf der Eintrittsseite sollte eine stärkere Wichtung für 800 nm bekommen, um effizient einzukoppeln und die andere auf der Austrittsseite eine stärkere Wichtung für 400 nm, für einen möglichst geringen Rückreflex des SFG-Signals. Die Firma Laser Optik GmbH aus Garbsen hat für beide Varianten die Reflektivität der Beschichtungen simuliert (siehe Abbildung 4.28 und 4.29). Ist die Reflektivität an der Eintrittsseite des Kristalls  $R_1$  und die an der Austrittsseite  $R_2$ , so ist die Intensität des an der Austrittsseite zurück reflektierten Anteils nach einem Umlauf in dem Kristall und anschließendem Austritt proportional zu  $R_1 R_2 (1 - R_2)$ . Weitere Umläufe können wegen der geringen Reflektivität vernachlässigt werden. Für 400 nm beträgt diese Intensität bei der Dual-Anti-Reflex Beschichtung weniger als die Hälfte im Vergleich zu der einfachen Anti-Reflex Beschichtung. Bei 350 nm und bei 500 nm, also an den Rändern des relevanten Bereichs, liefern beide Beschichtungsvarianten ähnliche Ergebnisse. Wegen der besseren Unterdrückung bei 400 nm wurden die Kristalle mit der Dual-Anti-Reflex Beschichtung aus Abbildung 4.29 beschichtet.

## 4.7 Messung an fs-Lasern

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Ti:Sa-Oszillator vermessen, der zuvor innerhalb der Arbeitsgruppe gebaut wurde. Er wird von einem Coherent Verdi V18 gepumpt. Die mittlere Gesamtaus-

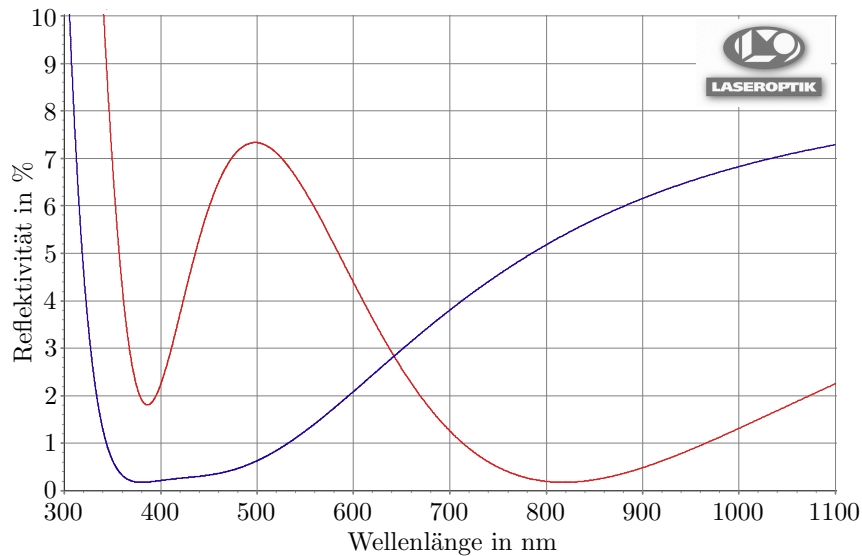


Abbildung 4.29: Reflektivität der Dual-Anti-Reflex Beschichtungen auf BIBO für  $10^\circ$  schrägen Einfall mit Wichtung auf 400 nm (blaue Kurve, Austrittsseite) und auf 800 nm (rote Kurve, Eintrittsseite)

gangsleitung schwankte stark zwischen knapp ca. 200 mW und im besten Fall ca. 500 mW. Der Oszillator besteht eigentlich aus zwei Oszillatoren, die sich einen Ti:Sa-Kristall teilen und über einen Differenzfrequenzprozess THz-Strahlung generieren sollen. Diese Geometrie ist für einen reinen Ti:Sa-Laser suboptimal und schwer zu justieren. Die Instabilität des Lasers liegt wohl darin begründet. Die Repetitionsrate beträgt rund 76 MHz.

Im Folgenden wird die Messung und Rekonstruktion der Felder an diesem Oszillator demonstriert.

#### 4.7.1 Kameraeinstellungen

Insbesondere bei instabilen Lasern ist es wichtig, dass die Aufnahmen der beiden Spektrometer exakt zeitgleich beginnen und enden. Das wurde hier sichergestellt, indem ein Auslösersignal der Andor Kamera (SFG-Spektrometer) elektronisch mit dem Auslösereingang der photonfocus Kamera (IR-Spektrometer) verbunden wurde. Die Belichtungszeit muss entsprechend in beiden Kameraeinstellungen identisch sein. Bei der photonfocus Kamera ist zudem darauf zu achten, dass sie nicht im LinLog-Modus ist. In dieser Einstellung wird die Intensität nicht linear, sondern in einer logarithmischen Weise skaliert. Der LinLog-Modus ist die Standardeinstellung, weshalb dieser Punkt leicht übersehen werden kann. Eine Rekonstruktion der Felder ist dann unmöglich. Die Andor Kamera besitzt eine rauschfreie, elektronische Verstärkung (EM-Gain). Diese lässt sich zwischen 1 und 1000 einstellen. Wenn noch kein SFG-Signal gefunden wurde, jedoch die Weglängen gleich sind (mit Photodiode und über Interferenz überprüft), ist es sehr hilfreich eine hohe Verstärkung zu wählen. So kann das SFG-Signal auch bei stark dejustiertem Winkel oder schwachen Eingangspulsen noch gefunden werden und leicht optimiert werden. Der wesentliche

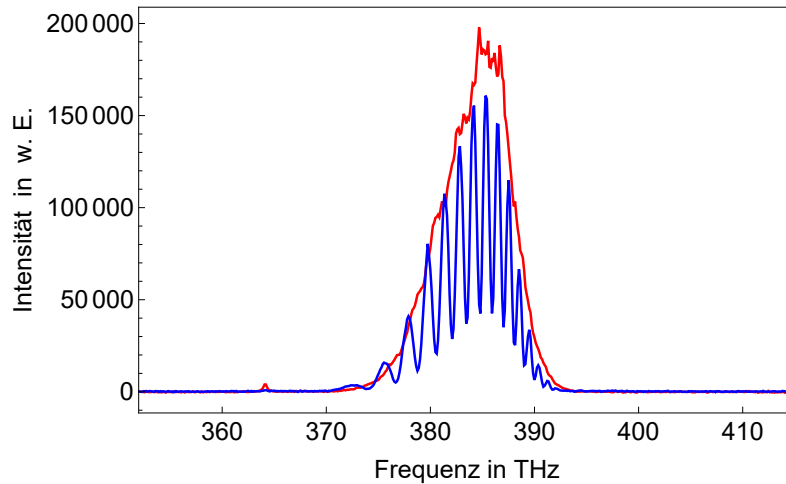


Abbildung 4.30: Gemessene Intensität von Signal 1 (rot) und Signal 2 (blau).

Vorteil ist, dass man ein Signal bei sehr kurzen Belichtungszeiten erhält und Änderungen sofort sichtbar sind. Ohne Verstärkung wären zum Teil Belichtungen von einer halben Sekunde und mehr notwendig und eine Optimierung der Wege und Winkel wäre sehr mühsam.

Für Messung zur Pulscharakterisierung muss allerdings ein deutlich geringerer Wert gewählt. Zum einen, damit die Belichtungszeiten beider Spektrometerkameras identisch sind, ohne dass eines der Signale über- oder unterbelichtet wird und zum anderen, um eine hohe Dynamik zu behalten und Effekte von einer nichtlinearen Verstärkungskurve zu vermeiden (siehe Abschnitt 2.4.3). Üblicherweise lag die Elektronenverstärkung daher zwischen 1 und 30.

Zum weiteren Ausgleich der unterschiedlichen Intensitäten wurden in einigen Messungen metallische Graugläser in den jeweiligen Strahlengang nach dem Kristall gestellt.

#### 4.7.2 Aufbereitung der Messwerte

Grundsätzlich besteht eine Messung immer aus zwei Messungen. Die eine Messung enthält das eigentliche Signal. Da darin aber ein gewisser Untergrund enthalten ist (Restlicht, Ausleserauschen etc.) wird eine zweite Messung mit gleichen Parametern aufgenommen, wobei der Eingangslaser geblockt wird. Diese zweite Messung wird als Untergrundkorrektur von der eigentlichen Messung abgezogen, wobei negative Werte auf 0 gesetzt werden. Abbildung 4.30 zeigt die Messung der Intensitätsspektren  $I_1$  (rot) und  $I_2$  (blau). Dabei wurde lediglich die Untergrundkorrektur vorgenommen. Der Anteil des Rauschens scheint vernachlässigbar gering zu sein und ein leichter Dauerstrichanteil bei ca. 364 THz fällt auf.

In der Rekonstruktion der Pulse werden jedoch die Beträge der Eingangsfelder und des Spektrogramms als Randbedingung verwendet. Da aber nur Intensitäten gemessen werden können, ist die Wurzel aus den Intensitätsspektren zu bilden  $|E| = \sqrt{I}$ . Weiterhin werden dabei die Fouriertransformierten der Felder gebildet. Es ist deshalb gut, wenn im Randbereich der Spektren und des Spektrogramms kein Signal mehr vorhanden ist. Unglücklicherweise relativiert sich das Signal-zu-Rausch-Verhältnis einer Messung durch das Bilden der Wurzel deutlich. In den

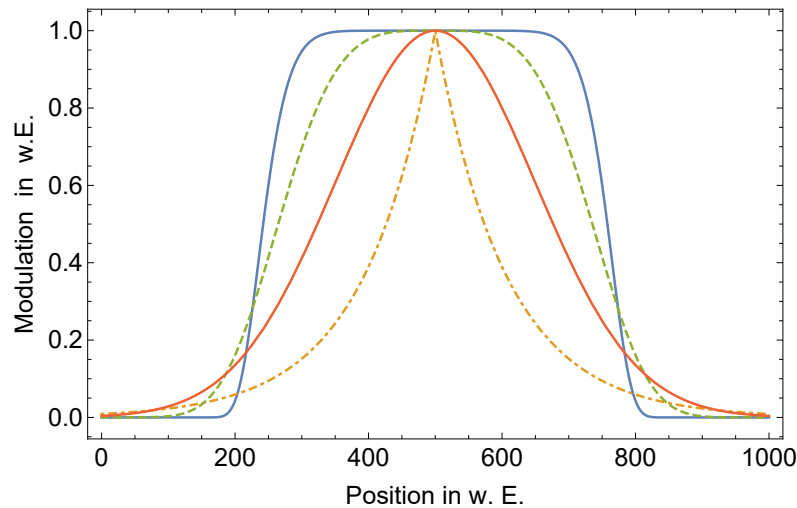


Abbildung 4.31: Generalisierte Gauß-Verteilung mit den Parametern  $\mu = 500$ ,  $\sigma = 150$  und  $k = 10$ ,  $k = 4$ ,  $k = 2$  und  $k = 1$  (blaue Linie, grün gestrichelt, orange Linie und orange gepunktet-gestrichelt)

Randbereichen ist daher oftmals Rauschen vorhanden. Die ungefilterten Kurven  $|E_1| = \sqrt{I_1}$  und  $|E_2| = \sqrt{I_2}$  sind zum Vergleich in Abbildung 4.32 (orange und hellblaue Kurve) dargestellt. Es bietet sich an, den Mittelwert des Rauschens abzuziehen, die dabei entstehenden negativen Werte auf 0 zu setzen und abschließend wieder auf die vorherige Intensität zu skalieren. Gemittelt wurde hier über die ersten 50 und letzten 50 Pixel in der Frequenzachse. Bei starkem Rauschen kann dies jedoch zu Kanten am Übergang zwischen Signal und Rauschen führen, welche dann zu Artefakten in der Fouriertransformation führen. Um dies zu vermeiden, wurden die Spektren mit einer generalisierten Gauß-Verteilungsfunktion  $f_{\text{GG}}(x)$  [Son+02] multipliziert. In [Son+02] ist noch ein Fehler enthalten und eine Verschiebung in  $x$ -Richtung fehlt. Beides wurde hier geändert. Die generalisierte Gauß-Verteilung ist dann durch

$$f_{\text{GG}}(x) = \frac{k}{2A_{\text{G}}(k)\Gamma(1/k)} e^{-\left(\frac{|x-\mu|}{A_{\text{G}}(k)}\right)^k} \quad (4.69)$$

gegeben, wobei

$$A_{\text{G}}(k) = \sqrt{\frac{\sigma^2 \Gamma(1/k)}{\Gamma(3/k)}} \quad (4.70)$$

eine Skalierungsfunktion ist und

$$\Gamma(x) = \int_0^\infty y^{x-1} e^{-y} dy \quad (4.71)$$

die Eulersche Gammafunktion meint.  $\sigma$  beeinflusst wie üblich die Breite der Kurve, während  $\mu$  die Verschiebung gegenüber  $x$  darstellt. Die Variable  $k$  bestimmt den Anstieg in der Flanke. Für  $k = 1$  ergibt sich die Laplace Verteilung und für  $k = 2$  ergibt sich die Gauß-Verteilung. Der Vorteil dieser Filterfunktion für  $k > 2$  ist, dass die Übergänge zwischen Signal und Rauschen stetig sind, ohne das eigentliche Signal zu beeinflussen, da die Breite der Funktion entsprechend groß gewählt werden kann (vergleiche Abbildung 4.31). Es kommt somit nicht zu Artefakten in

der Fouriertransformation. Die verwendete Filterfunktion ist außerdem in Abbildung 4.33 zusammen mit den ungefilterten und den gefilterten Messwerten eingezeichnet und verdeutlicht diesen Effekt.

Problematisch kann es allerdings bei spektralen Lücken sein, da dort das Rauschen auf diese Weise nicht abgezogen werden kann. Das gleiche Problem ergibt sich im Spektrogramm aufgrund der zeitlichen Separation. Die entstehende Lücke ist zu klein und so passen nicht ab- und aufsteigende Flanke hinein, ohne vom eigentlichen Signal etwas abzuschneiden. Günstig ist also eine Kombination von beiden Methoden.

### 4.7.3 Intensitätsumskalierung und Zeitinkrement

Die Zuordnung der Wellenlängen zu den Pixeln auf dem Kamerasensor des jeweiligen Spektrometers wurde bereits in Abschnitt 4.5 ausgeführt. Allerdings basieren Theorie und Rekonstruktionsalgorithmen generell auf dem elektrischen Feld in Abhängigkeit von der Frequenz  $\omega$ . Daher muss die gemessene Intensität der Spektren von den Eingangspulsen und dem Spektrogramm umskaliert werden, damit sie eine lineare Frequenzachse bekommen. Ausgangspunkt ist dazu das Parseval Theorem [Par99], welches physikalisch vereinfacht aussagt, dass das Integral über die wellenlängenabhängige Intensität gleich dem Integral der frequenzabhängigen Intensität ist, wenn die Integrationsgrenzen von minus unendlich bis plus unendlich gehen. Dabei wird angenommen, dass die Intensität dort auf Null abgefallen ist. Es gilt also:

$$\int_{-\infty}^{\infty} I_{\lambda}(\lambda) d\lambda = \int_{-\infty}^{\infty} I_{\omega}(\omega) d\omega \quad (4.72)$$

mit  $\lambda = 2\pi c/\omega$ , woraus sich  $d\lambda = -2\pi c/\omega^2 d\omega$  ergibt. Daraus folgt

$$\int_{-\infty}^{\infty} I_{\omega} d\omega = \int_{\infty}^{-\infty} I_{\lambda} \frac{2\pi c}{\omega^2} d\omega \quad \text{und somit} \quad I_{\omega} = I_{\lambda} \frac{2\pi c}{\omega^2}. \quad (4.73)$$

Die gemessenen Spektren müssen daher mit dem frequenzabhängigen Vorfaktor  $2\pi c/\omega^2$  multipliziert werden, um linear in der Frequenz skaliert zu sein. Die Korrektur hat bei schmalen Spektren ( $\approx 20$  nm) einen geringen Effekt. Bei Spektren mit einer Breite von  $\approx 100$  nm oder mehr sollte die Korrektur aber zwingend berücksichtigt werden.

Weiterhin ist es wichtig die Verzögerung  $\Delta\tau$  zu kennen, der ein Pixel entspricht. Diese lässt sich leicht bestimmen, indem zwei Spektrogramme aufgenommen werden. In der einen Aufnahme wird der eine Arm des Mach-Zehnder-Interferometers mit der Verzögerungsstrecke so weit verlängert, dass sich der eine Teil des SFG-Signals möglichst weit in eine Richtung bewegt. In der anderen Aufnahme wird der Spiegel nun um einen möglichst großen Weg  $\Delta s$  verschoben und der Arm wieder verkürzt. Anschließend werden beide Aufnahmen in spektraler Richtung aufsummiert und jeweils die Position des Maximums des verschobenen Teils bestimmt ( $P_1$  und  $P_2$ ). Die Verzögerung pro Pixel entspricht dann

$$\Delta\tau = \frac{2\Delta s}{c|P_1 - P_2|}. \quad (4.74)$$

Da der optische Weg doppelt so lang ist wie der Weg des Spiegels  $\Delta s$ , wird dies durch den Faktor 2 in Gleichung 4.74 berücksichtigt.

In dieser Arbeit beträgt die Verzögerung pro Pixel  $\Delta\tau = (10,108 \pm 0,026)$  fs. Der angegebene Fehler entspricht dabei einer Abweichung in der Bestimmung der Maxima von einem Pixel.

#### 4.7.4 Messung an einem Ti:Sa-Oszillator

Bei dieser Messung wurde ein BBO-Kristall mit 100  $\mu\text{m}$  Dicke verwendet. In einem Arm des Mach-Zehnder-Interferometers befanden sich 15 mm SF10 Glas (Hersteller: SCHOTT) und weitere 30 mm ZF4 Glas (Hersteller: CDGM). Die beiden Gläser bezeichnen das gleiche Material, sind aber von unterschiedlichen Herstellern und tragen daher unterschiedliche Bezeichnungen. In Literaturdaten [Sch15; CDG06] sind kleine Abweichungen erkennbar (z.B. unterscheidet sich der Brechungsindex erst in der fünften signifikanten Stelle). Diese Abweichungen sind aber für diesen Zweck unbedeutend. Hier wurden die Gläser verwendet, um einem der beiden Signale im Mach-Zehnder-Interferometer einen deutlichen Chirp zu geben und so die Bedingung für eine eindeutige Rekonstruktion zu gewährleisten.

Der zu vermessende Ti:Sa Oszillator ist leicht divergent und besitzt am VAMPIRE bereits einen relativ großen Strahldurchmesser, weshalb der horizontal aufgeweitete Strahl in einer Richtung etwa doppelt so groß ist, wie die in den Kristall fokussierenden Spiegel. Dadurch geht ein großer Teil der Leistung bereits hier verloren. Hinzu kommt, dass die fokussierte Linie nun rund 12 mm breit ist. Aufgrund der Pulslänge kann in dieser Geometrie davon leider nur ein Teil von rund 2,5 mm genutzt werden. Das ist einer der Nachteile von Einzelschussverfahren und ein Grund, weshalb sie deutlich weniger sensitiv sind als ihre entsprechenden Mehrschussvarianten. Von einem Eingangssignal mit insgesamt 300 mW Dauerstrich-Gesamtleistung können daher in dieser Konfiguration bestenfalls 15 mW in Signal 1 (ungefiltertes Signal) für den SFG-Prozess genutzt werden. Weitere Leistung geht an dem Strahlteiler am Ausgang des Mach-Zehnder-Interferometers verloren. Die effektiv nutzbare Dauerstrichleistung der beiden Pulse in Signal 2 (durchläuft den Aufbereitungsfilter) beträgt daher zusammen maximal 8 mW. Aufgrund der Breite des Eintrittspaltes des SFG-Spektrometers (in dieser Messung 13,2  $\mu\text{m}$ ) und der des Infrarotspektrometers (21,0  $\mu\text{m}$ ) unter Berücksichtigung der Breite der fokussierten Linie wird wiederum nur ein Bruchteil des entstandenen SFG-Signals detektiert. Letztlich trägt auch die Anzahl an Spiegeln und Linsen dazu bei, dass die an der Kamera auftreffende Intensität verringert wird.

Die Pulsenergie des Signal 1 beträgt somit weniger als 200 pJ und die von Signal 2 jeweils weniger als 50 pJ. Diese geringen Pulsenergien sind im nichtlinearen Kristall auf Linien von ca. 2,5 mm verteilt. Verglichen mit einem Mehrschussverfahren, in dem die Pulsenergie auf eine kleine Kreisfläche von ca. 20  $\mu\text{m}$  fokussiert wird, ist die Intensität hier erheblich geringer. Dazwischen liegt ein Faktor von weit über 100. Das ist der eigentliche Grund, weshalb Mehrschussverfahren um Größenordnungen sensitiver sind. Daraus ergibt sich eine vergleichsweise lange Belichtungszeit. In dieser Messung betrug sie 1,67 s und in der SFG-Kamera wurde weiterhin eine Elektronenverstärkung von 30 ausgewählt. Andere Messungen z.B. mit einem 300  $\mu\text{m}$  BBO-Kristall konnten in

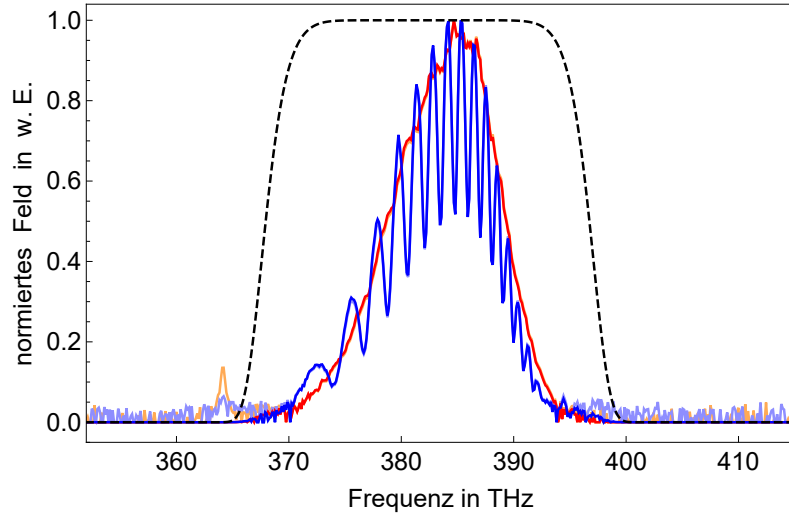
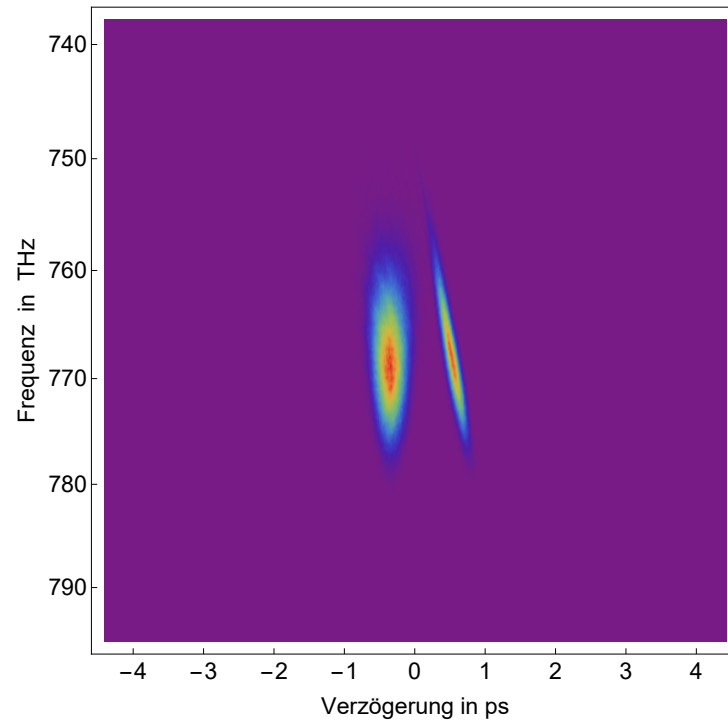


Abbildung 4.32: Beträge der gefilterten elektrischen Felder von Signal 1 (rot) und Signal 2 (blau) sowie der ungefilterten Felder (orange und hellblau). Die Filterfunktion mit  $k = 11$  ist schwarz gestrichelt eingezeichnet.

350 ms bei einer Elektronenverstärkung von 10 aufgenommen werden [Spe+14a]. Im Übrigen wird in der Literatur die erforderliche Pulsenergie für SHG/SFG-Messungen in Einzelschussgeometrie mit 10 nJ als untere Grenze angegeben [Tre00]. Diese Grenze konnte hier um 2 Größenordnungen unterschritten werden. Die gemessenen Intensitäten wurden bereits in Abbildung 4.30 vorgestellt. In Abbildung 4.32 werden nun die Beträge der elektrischen Felder dargestellt ( $|E_1|$  in orange und  $|E_2|$  in hellblau). Offensichtlich ist mehr Rauschen vorhanden, als es die Intensitäten aus Abbildung 4.30 vermuten lassen. Die zuvor beschriebene Filterfunktion (generalisierte Gauß-Verteilung aus Abschnitt 4.7.2) wurde schwarz gestrichelt eingezeichnet. Die Beträge der gefilterten Signale  $|E_1|$  und  $|E_2|$  sind in rot und blau eingezeichnet. Es ist gut zu erkennen, wie das verbleibende Rauschen aus den Rändern unterdrückt wird, ohne den eigentlichen Puls zu beeinflussen. Darüber hinaus ist der Dauerstrichanteil mit 15 % in Signal 1 zu sehen. In Signal 2 fällt dieser nicht sofort auf, ist aber immer noch wahrnehmbar. Signal 2 zeigt außerdem die zu erwartenden Oszillationen in der Frequenz, die der zeitlichen Verschiebung der beiden Teilpulse entspricht.

Das dazugehörige gemessene Spektrogramm ist in Abbildung 4.33 dargestellt. Hier wurde bereits der Mittelwert des Rauschens abgezogen und mit einer Filterfunktion für das Spektrum und einer weiteren Filterfunktion für die Verzögerung multipliziert. Das linke SFG-Signal entspricht dabei dem Summenfrequenzsignal von  $E_1$  und dem Teil von  $E_2$ , der das Mach-Zehnder-Interferometer ohne Modifikation durchlaufen hat. Das rechte SFG-Signal setzt sich aus  $E_1$  und dem anderen Teil von  $E_2$ , der im Mach-Zehnder-Interferometer modifiziert wurde, zusammen. Dazu durchlief dieser Anteil die eingangs beschriebenen 15 mm SF10 und weitere 30 mm ZF4 Glas und erfährt somit einen deutlichen Chirp. Bei dem VAMPIRE-Verfahren ergibt sich die praktische Möglichkeit vor einer Rekonstruktion die Messwerte zu überprüfen. Die Faltung der Eingangsspektren



Abbildungung 4.33: Gemessenes VAMPIRE-Spektrogramm. Die Intensität ist in Falschfarben dargestellt. Lila bedeutet keine Intensität und rot bedeutet hohe Intensität. Belichtungszeit 1,67 s; Elektronenverstärkung 30

entspricht der Summe des Spektrogramms über die Zeitachse. Unterscheiden sich beide Kurven deutlich, liegt in der Messung ein Problem vor. Für diese Messung ist die Faltung in Abbildung 4.34 rot eingezeichnet und das zeitlich aufsummierte Spektrogramm in lila. Beide Kurven sind annähernd gleich. Die Abweichung bei geringen Werten resultiert aus dem unterschiedlichen Abzug des Rauschens der beiden Einzelmessungen. Worin die leichten Oszillationen in der lilafarbenen Kurve begründet sind, ist nicht geklärt. Dennoch kann die Rekonstruktion bedenkenlos gestartet werden. Der Rekonstruktionsalgorithmus liefert letztlich aus dem Spektrogramm und den Spektren der Eingangspulse die komplexen Felder  $E_1(\omega)$  und  $E_2(\omega)$ . Die spektralen Phasen sind das Argument, also der Winkel zwischen Real- und Imaginärteil der rekonstruierten Felder. Die zeitlichen Phasen sind das Argument der inversen Fouriertransformation der spektralen Felder. Abbildung 4.35 zeigt die Phase in der Zeitdomäne, wie sie der Rekonstruktionsalgorithmus ausgibt. Sie schwankt zwischen  $-\pi$  und  $\pi$  und die Teilstücke müssen erst stetig aneinander gesetzt werden (englisch „unwrap“). Dazu werden immer zwei benachbarte Werte betrachtet. Ist die Differenz zwischen beiden größer als  $\pi$ , so kann wegen der Periodizität ein Vielfaches von  $\pm 2\pi$  addiert werden, so dass die anschließende Differenz kleiner als  $\pi$  ist. Zu diesem Zweck gibt es in einigen Programmen, wie z.B. Matlab (`unwrap(P)`), bereits fertige Funktionen. Ist diese Funktion nicht vorhanden, wie beispielsweise in Mathematica, ist sie nicht schwer zu implementieren. An Stellen sehr geringer Intensität ist die Phase aufgrund von Rauschen nicht mehr wohl definiert. Deshalb muss die Phase an diesen Stellen entfernt werden (englisch „blanked phase“).

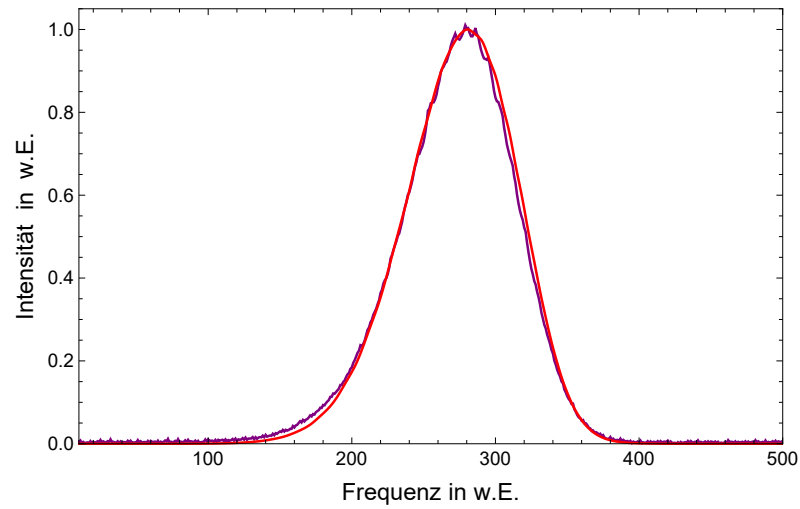


Abbildung 4.34: Überprüfung der Spektren: Die Faltung der Eingangsspektren (rot) entspricht dem zeitlich aufsummierten Spektrogramm (lila) - der Rekonstruktionsalgorithmus kann gestartet werden.

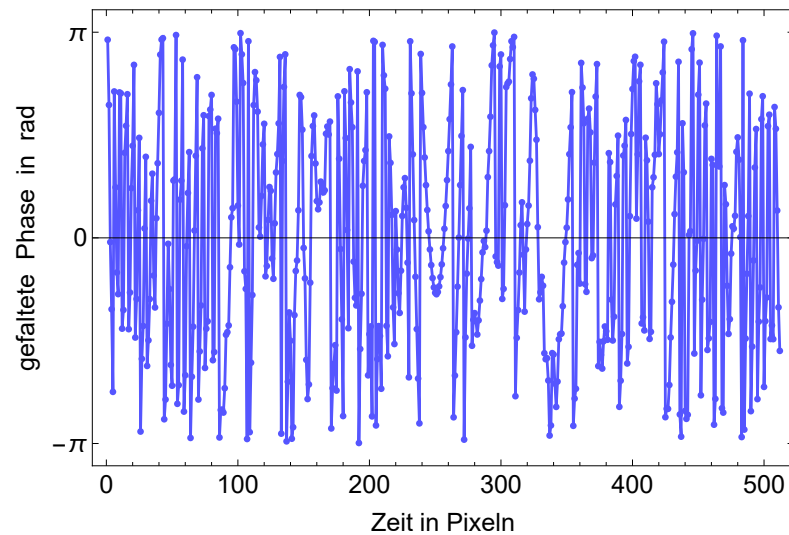


Abbildung 4.35: Phase von Signal 1, wie sie aus dem Rekonstruktionsalgorithmus gewonnen wird. Im nächsten Schritt wird die Phase stetig zusammengesetzt und Bereiche entfernt, in denen die Phase wegen der geringen Feldstärke nicht definiert ist.

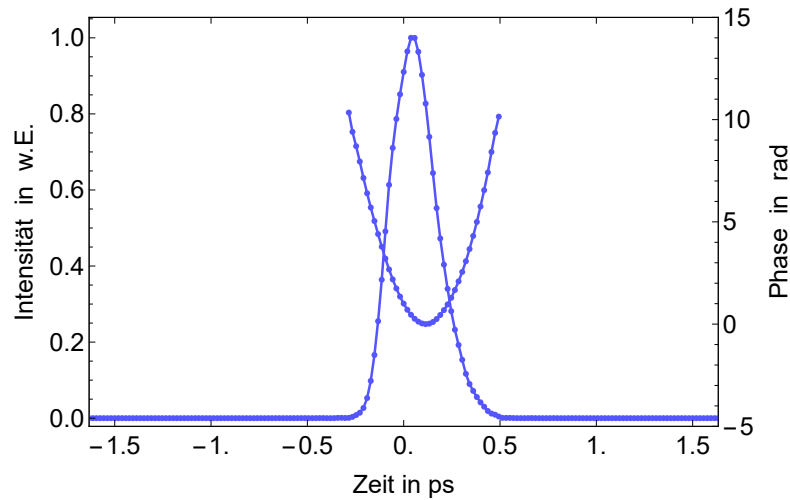


Abbildung 4.36: Rekonstruierte Intensität und bereinigte, zusammengesetzte Phase von Signal 1 in der Zeitdomäne.

FWHM der Pulsdauer: 207 fs

Die zusammengesetzte und bereinigte Phase als auch die Intensität von Signal 1 ist in Abbildung 4.36 über der Zeit aufgetragen. Signal 1 zeigt einen leicht asymmetrischen zeitlichen Verlauf der Intensität und entspricht nicht ganz einer Gauß-Verteilung. Die Phase ist in erster Näherung quadratisch. Man spricht von einem quadratischen Chirp. Der Puls ist also nicht fourierlimitiert und durch Optimierung des TiSa:Oszillators wären kürzere Pulse möglich. An die Intensitätskurve wurde manuell eine Gauß-Verteilung angelegt, um die volle Breite bei dem halben Maximum (FWHM) zu bestimmen. Damit wurde die Pulsdauer zu  $\approx 207$  fs ermittelt. Analog dazu wurde die Phase von Signal 2 zusammengesetzt und mit dem zeitlichen Intensitätsverlauf in Abbildung 4.37 dargestellt. Auch hier wurde manuell je eine Gauß-Verteilung an die beiden Pulse angelegt. Dabei ergibt sich für den linken Puls mit der größeren Intensität eine Pulsdauer von  $\approx 200$  fs. Dieser Puls entspricht der unmodifizierten Kopie des Signal 1, wobei der Chirp durch das Durchlaufen von drei Strahlteilern leicht kompensiert wurde. Das ist im Direktvergleich der Phasen der beiden Signale an dem etwas größeren Scheitelkrümmungskreis erkennbar (nicht separat dargestellt). Dagegen wurde für den Puls mit der geringeren Intensität eine Pulsdauer von  $\approx 221$  fs bestimmt. Durch die insgesamt 45 mm Glas wurde die Eingangsphase nicht nur kompensiert, sondern stark überkompensiert. Die Phase klappt förmlich um. Insgesamt führt dies nicht zu einer weiteren Verkürzung der Pulsdauer, sogar zu einer Pulsdauer, die noch größer ist als zuvor. Aus den rekonstruierten Feldern lässt sich ein theoretisches Spektrogramm generieren, dargestellt in Abbildung 4.38. Es hat sich etabliert, dieses mit anzugeben, da es generell schwierig ist, einen Fehler bei einer solchen Rekonstruktion anzugeben. Je weniger das gemessene Spektrogramm von dem generierten Spektrogramm abweicht, desto genauer ist die Rekonstruktion. Auf die Berechnung des vielfach angegebenen FROG-Fehlers [Tre00] wurde bewusst verzichtet,

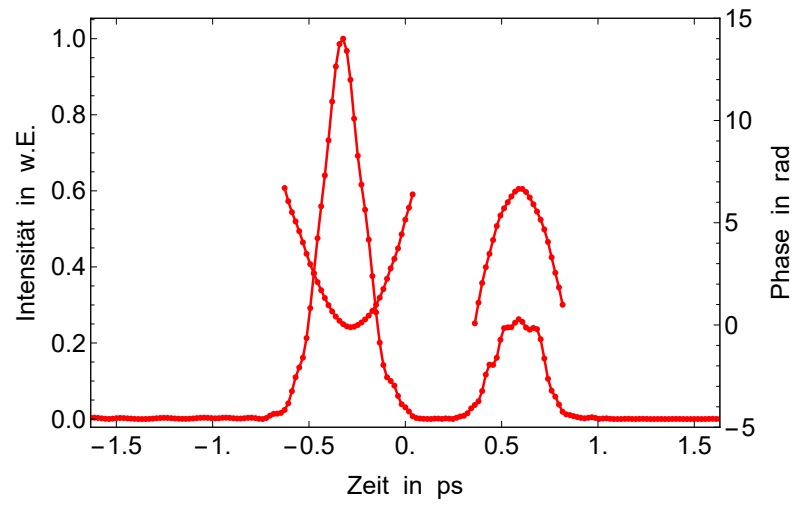


Abbildung 4.37: Rekonstruierte Intensität und bereinigte, zusammengesetzte Phase von Signal 2 in der Zeitdomäne.

FWHM der Pulsdauern: 200 fs und 221 fs (links und rechts)

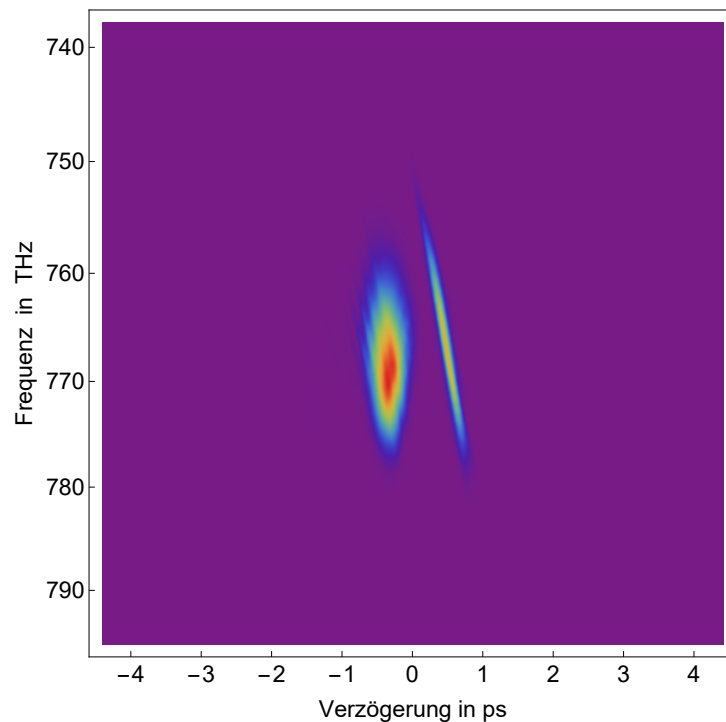


Abbildung 4.38: Aus den rekonstruierten Feldern generiertes VAMPIRE-Spektrogramm. Vergleich mit dem gemessenen Spektrogramm (siehe Abbildung 4.33) gibt Aufschluss über die Qualität der Rekonstruktion.

da er erstens keine Fehlerangabe im eigentlichen Sinne darstellt und er zweitens nicht vergleichbar ist und somit keine Aussagefähigkeit besitzt. So skaliert der Fehler beispielsweise mit  $1/N$ , der Anzahl der Pixel des Spektrogramms. Der Fehler hängt also davon ab, wie groß oder klein der Ausschnitt um die Spur gewählt wird.

#### 4.7.5 Messung an einem verstärkten fs-Lasersystem

Zusätzlich zu den oben beschriebenen Messungen am Ti:Sa-Oszillator wurden auch Messungen an einem verstärkten Lasersystem vorgenommen. Es handelt sich dabei um einen Spectra-Physics Tsunami Ti:Sa-Oszillator, der von einem Spectra-Physics Millennia Laser gepumpt wird. Als Verstärker kam ein Spectra-Physics Spitfire zum Einsatz. Der Verstärker arbeitet mit 1 kHz Repetitionsrate und liefert Pulse von grob 50 fs bis 80 fs mit Pulsenergien im mJ-Bereich. Darüber hinaus können auch einzelne Pulse ausgegeben werden. Diese besitzen dabei eine so hohe Intensität, dass der SFG-Prozess effizient genug ist, um tatsächlich mit einem einzigen Puls ein gesamtes Spektrogramm aufzunehmen. Über verschiedene Strahlteiler wurden jedoch andere Experimente versorgt und nur der verbleibende Teil für den VAMPIRE verwendet. In der nachfolgend gezeigten Messung wurde das verbleibende Signal noch mal geteilt, um Signal 1 und Signal 2 separat bereitzustellen. Signal 1 wurde nun durch einen 4f-Pulsformer [Wei11] geführt, während Signal 2 separat zum VAMPIRE geleitet wurde. Der Strahlteiler ST1 aus Abbildung 4.3 diente nur noch als Einkoppelspiegel für Signal 1, wodurch die Hälfte des Signals verworfen wurde. Direkt unter dem Strahlteiler ST1 wurde Signal 2 mittels eines Spiegels so in den VAMPIRE eingekoppelt, dass dieses Signal auf den Strahlteiler ST2 trifft. Die optischen Weglängen wurden durch separate Verzögerungsstrecken abgeglichen. Signal 1 sollte nun so geformt werden, dass es eine spektrale Lücke aufweist. Dazu wurde in der Fourierebene des 4f-Gitterpulsformers ein metallener Stift platziert, da der ursprünglich verwendete LCD-Modulator keinen hinreichenden Kontrast liefert. Die gemessenen Spektren ( $|\sqrt{I_i(\omega)}|$ ) der Signale 1 und 2 sind in Abbildung 4.39 dargestellt. Es fällt auf, dass die Lücke im Feld gar keine ist, sondern immer noch knapp mehr als 30% der maximalen Feldstärke aufweist. Im Kamerabild war das nicht sofort ersichtlich. Die verbleibende Intensität in der spektralen Lücke deutet darauf hin, dass der Pulsformer dejustiert war. Das ist gut möglich, da es sich dabei nicht um ein kommerzielles, geschlossenes Gerät, sondern ein leihweise zu Verfügung gestellter Eigenbau einer benachbarten Arbeitsgruppe handelt. Weiterhin ist das Signal-Rausch-Verhältnis im Vergleich zur vorhergehenden Messung schlechter, was zum einen daran liegt, dass ein Großteil der Pulsenergie im Pulsformer heraus gefiltert wurde. Zum anderen ist der nichtlineare Prozess wegen der höheren Pulsenergie und der obendrein kürzeren Pulse effizienter. Daraus resultieren die kurzen Belichtungszeiten. Das bedeutet aber auch, dass infolge Synchronisierung der Kameras die detektierten Eingangsspektren schwächer sind. Das von den Eingangsfeldern erzeugte Spektrogramm konnte nun ohne Elektronenverstärkung in nur 8 ms (siehe Abbildung 4.40) aufgenommen werden. Daraus lässt sich sofort schlussfolgern, dass in diesem Fall eine Messung von einem einzelnen Puls problemlos möglich ist, wenn für die Elektronenverstärkung ein Wert von ca. 10 gewählt wird. Um dabei die Eingangsspektren mit

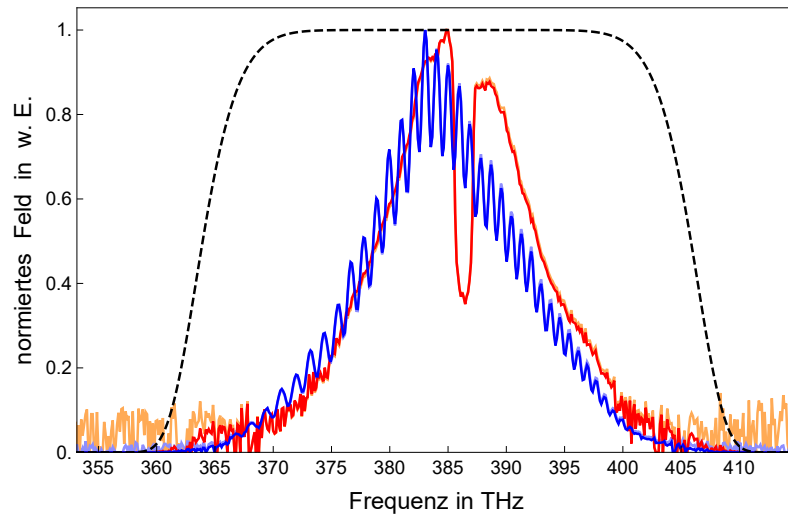


Abbildung 4.39: Beträge der gefilterten elektrischen Felder von Signal 1 (rot) und Signal 2 (blau) sowie der ungefilterten Felder (orange und hellblau). Die Filterfunktion mit  $k = 10$  ist schwarz gestrichelt eingezeichnet.

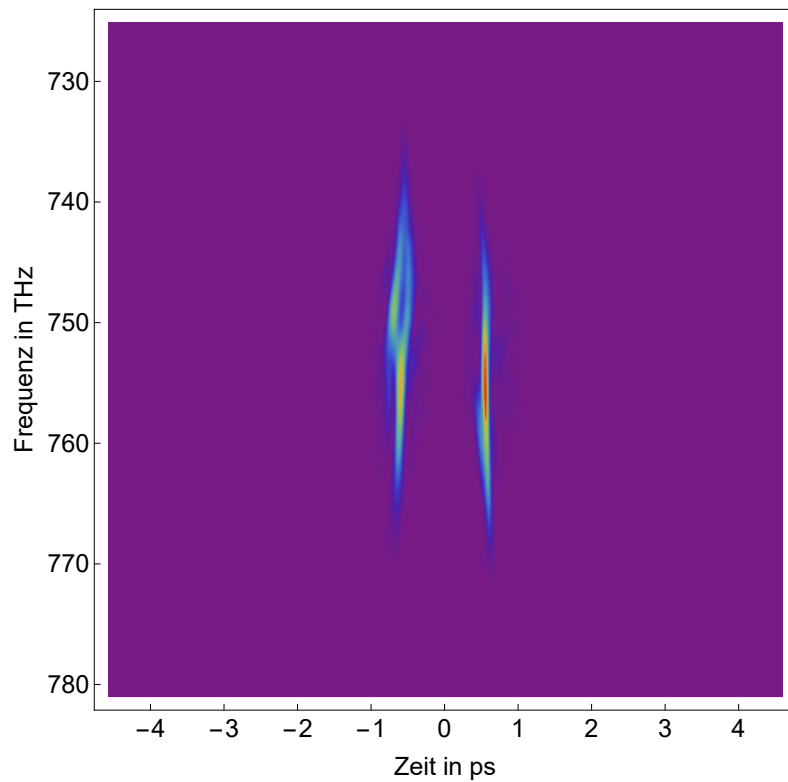
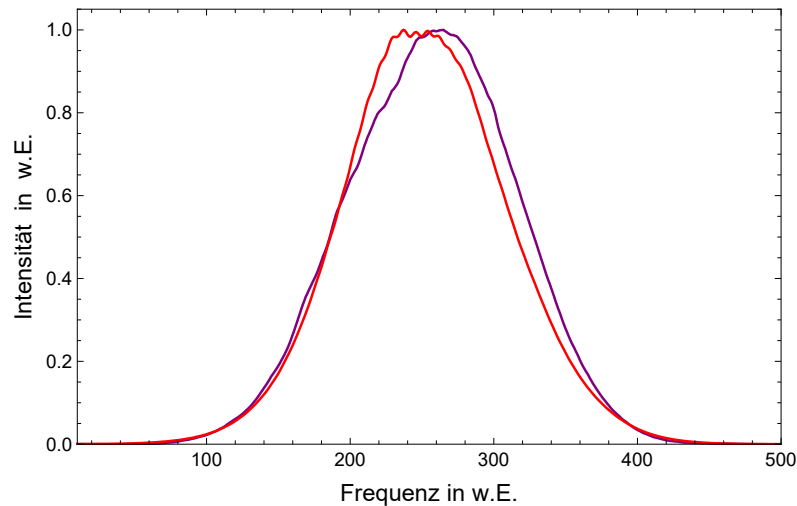


Abbildung 4.40: Gemessenes VAMPIRE-Spektrogramm. Die Intensität ist in Falschfarben dargestellt. Lila bedeutet keine Intensität und rot bedeutet hohe Intensität. Belichtungszeit 8 ms; Elektronenverstärkung 0



Abbildungung 4.41: Überprüfung der Eingangsspektren: Die Faltung der Eingangsspektren (rot) entspricht nicht dem zeitlich aufsummierten Spektrogramm (lila). Offenbar gibt es schwerwiegende Probleme in der Erfassung der Spektren.

hinreichender Intensität detektieren zu können, müsste dafür aber der Spektrometerspalt des Infrarotspektrometers auf Kosten der spektralen Auflösung vergrößert werden oder eine empfindlichere Kamera als Detektor zum Einsatz kommen.

Der Vergleich der Faltung der Eingangsspektren mit dem Spektrogramm offenbart jedoch deutliche Probleme. Die Faltung, in Abbildung 4.41 rot eingezeichnet, entspricht nicht dem zeitlich aufsummierten Spektrogramm. Mögliche Gründe werden in den kommenden Abschnitten diskutiert. Obwohl Abbildung 4.41 nicht vielversprechend aussieht, wurde der Rekonstruktionsalgorithmus gestartet. Erwartungsgemäß ist das Ergebnis nicht zufriedenstellend. Vergleicht man das gemessene Spektrogramm (Abbildung 4.40) mit dem aus den rekonstruierten Feldern generierten Spektrogramm (Abbildung 4.42), ist offensichtlich, dass diese ebenfalls nicht übereinstimmen. Umso erstaunlicher ist es, dass die Pulse dennoch grob etwa den Erwartungen entsprechen. Signal 1 wies einen spektralen Bereich mit deutlich verminderter Intensität auf, was sich in der Zeitdomäne anhand von Oszillationen zeigt (vergleiche Abbildung 4.43). Die Pulsdauer von Signal 1 wurde mit einer Gaußkurve als Ausgleichsfunktion zu ca. 55 fs bestimmt. Für Signal 2 (siehe Abbildung 4.44) wurden Pulsdauern von 59 fs für den intensiven und 153 fs für den schwachen Puls bestimmt. Die Phase von Signal 1 ist stark moduliert, was ebenfalls für einen dejustierten Pulsformer spricht. Wobei auch die Phase von Signal 2 nicht flach ist. Das kann daran liegen, dass der Laser selbst nicht fourierlimitiert arbeitet. Zusätzlich wird die Phase natürlich durch die Strahlteiler und Filter beeinflusst.

Abschließend muss unbedingt festgehalten werden, dass diese Werte nur grobe Indizien für die tatsächlichen Pulse darstellen können. Bereits vor der Rekonstruktion waren grundlegende Probleme bei der Erfassung der Messwerte deutlich erkennbar. Ein Vorteil, der sich erst durch die zusätzliche Erfassung der Eingangsspektren ergibt. Mögliche Ursachen dieser Probleme werden

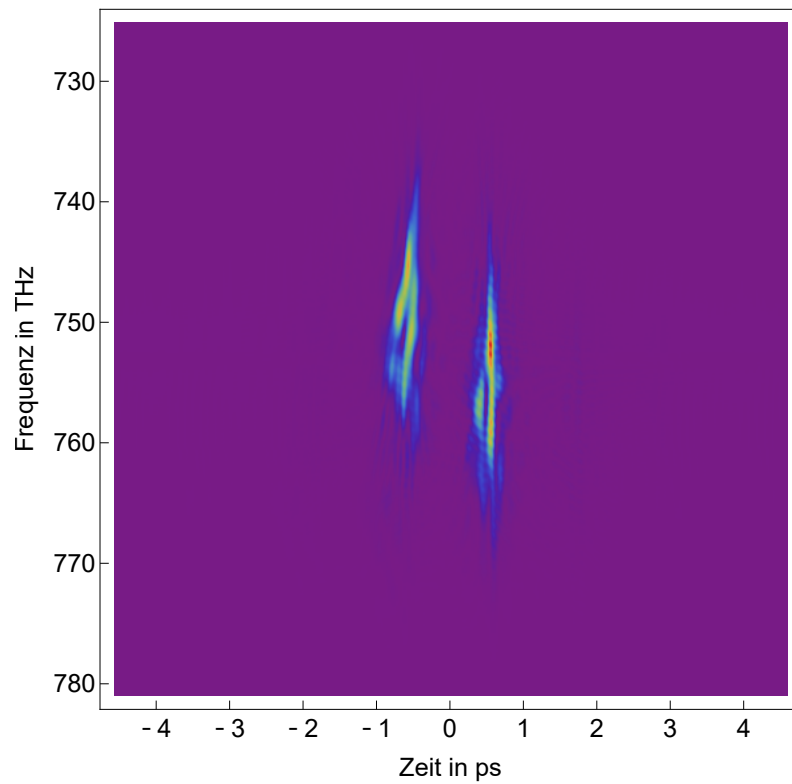


Abbildung 4.42: Das aus den rekonstruierten Feldern generierte VAMPIRE-Spektrogramm entspricht nicht dem gemessenen Spektrogramm (vergleiche Abbildung 4.40).

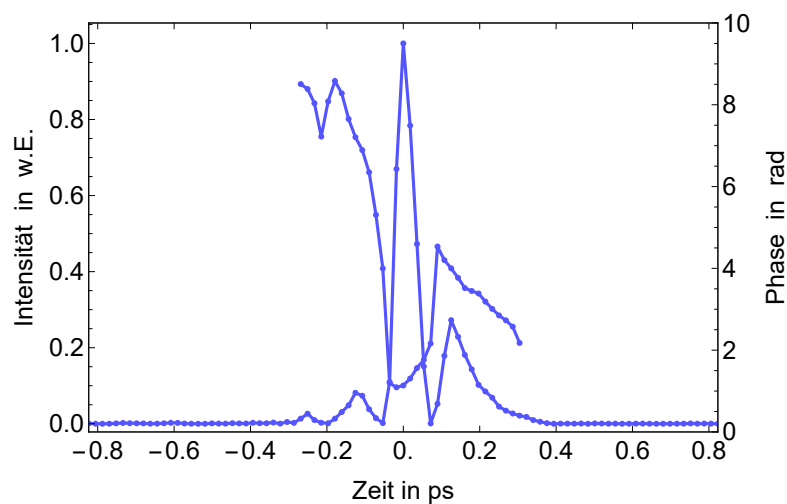


Abbildung 4.43: Rekonstruierte Intensität und bereinigte, zusammengesetzte Phase von Signal 1 in der Zeitdomäne.

FWHM der Pulsdauer: 55 fs

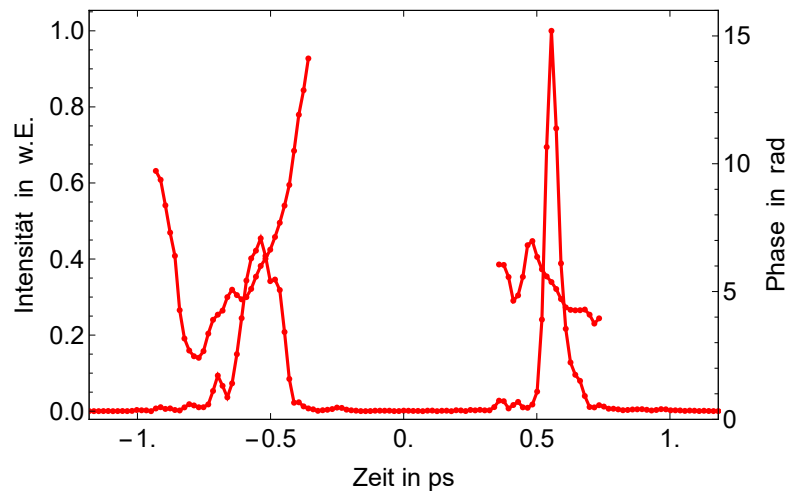


Abbildung 4.44: Rekonstruierte Intensität und bereinigte, zusammengesetzte Phase von Signal 2 in der Zeitdomäne.

FWHM der Pulsdauern: 153 fs und 59 fs (links und rechts)

im folgenden diskutiert.

### Räumlicher Chirp

Bislang wurde davon ausgegangen, dass die Phase eines Pulses an jedem Punkt seines Strahlprofils identisch ist. Besitzt ein Puls zu Beginn ein anderes Spektrum als zum Ende, spricht man allgemein von einem Chirp. Analog dazu meint ein räumlicher Chirp, dass ein Laserpuls z.B. auf der linken Seite seines Strahlprofils ein anderes Spektrum als auf der rechten Seite besitzt. Das Spektrum verändert sich entgegen dem gewöhnlichen Chirp nicht mit der Zeit, sondern mit dem Ort innerhalb des Strahlprofils. In Mehrschussverfahren fällt dies nicht auf, da der Laser auf einen sehr kleinen Spot fokussiert wird und über viele Pulse gemittelt wird. In Einzelschussverfahren wechselwirken zu jedem Zeitpunkt die Felder von unterschiedlichen Orten des Strahlprofils. Besitzt der Laser einen räumlichen Chirp, wirkt sich dies in der Zeitachse aus. Ein Verfahren wie FROG würde gegebenenfalls Pulse rekonstruieren, deren Spektrogramm womöglich sogar dem gemessenen Spektrogramm entspricht. Jedoch wären die rekonstruierten Felder nicht zwingend die richtige Lösung. VAMPIRE benutzt die Spektren der Eingangsfelder als Nebenbedingung, weshalb in diesem Fall die Rekonstruktion nicht zufriedenstellend ist. Im Wesentlichen hängt es davon ab, wie stark der räumliche Chirp ausgeprägt ist und welche Bereiche des zur Linie geformten Strahlprofils für die Erzeugung des SFG-Signals genutzt werden und welche Bereiche des Strahlprofils in die Spektrometer eingekoppelt werden.

Um einen Anhaltspunkt für den räumlichen Chirp in dieser Messung zu bekommen, wurde das Spektrum am Ort des Kristalls untersucht. Dazu wurde der Auskoppelspiegel (in Abbildung 4.4 mit KS bezeichnet) vor dem Kristall platziert, so dass der Strahl senkrecht nach oben umgelenkt

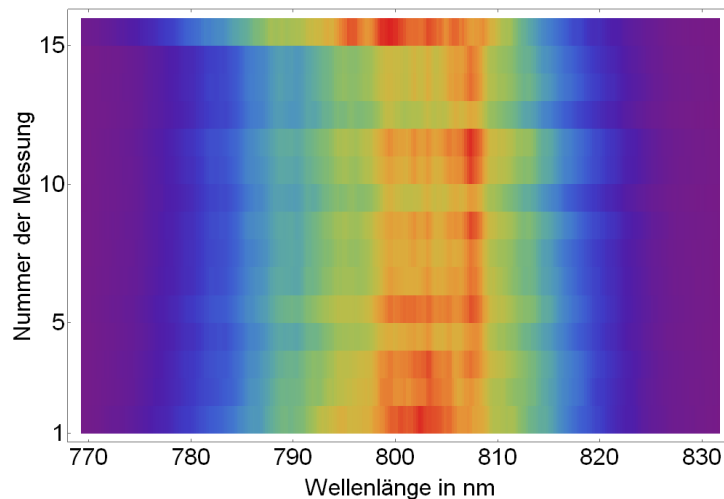


Abbildung 4.45: Farbcodierte Darstellung der spektralen Intensitäten an 15 verschiedenen Punkten der fokussierten Linie des Eingangslasers, gemessen am Ort des Kristalls (lila entspricht geringer und rot entspricht hoher Intensität)

wird. Im Ort des Brennpunktes wurde dann mit einem Verschiebetisch eine Glasfaser (Thorlabs M15L05 mit  $105\,\mu\text{m}$  Kerndurchmesser) entlang der entstandenen Linie verfahren und an verschiedenen Orten das Spektrum gemessen. Signal 1 durchlief zuvor einen auf Gittern basierenden 4f-Pulsformer [Wei11] und wurde geblockt, um zunächst nur den unveränderten Laser zu betrachten. Um keine Interferenzeffekte zu beobachten wurde auch der Teil von Signal 2 geblockt, der den Glasblock durchläuft. Als Spektrometer kam ein Ocean Optics HR4000 mit einer Auflösung von  $0,5\,\text{nm}$  zum Einsatz. Zwischen zwei Messungen liegen jeweils grob  $0,5\,\text{mm}$ . Für eine einfache Vergleichbarkeit der Spektren, wurden die Intensitäten farbcodiert in einer 2D-Grafik aufbereitet, wobei lila einer geringen und rot einer hohen Intensität entspricht (siehe Abbildung 4.45). Es ist nicht sofort ersichtlich, ob die Abweichungen von einer Zeile zur anderen tatsächlich einen Chirp darstellen oder nur die Intensität des Lasers geschwankt hat. Daher wurde jede Zeile normiert und in Abbildung 4.46 dargestellt. Zunächst fällt der Sprung in der letzten Messung auf. Dies weist auf einen starken räumlichen Chirp hin oder der Laser ist in seiner Zentralwellenlänge gesprungen („mode hopping“). Dennoch fällt auf, dass sich die Form des Spektrums von Messung 5 zu Messung 13 deutlich geändert hat. Der räumliche Chirp des Lasers scheint hier eine zufriedenstellende Rekonstruktion der Eingangsfelder zu verhindern.

Darüber hinaus ist es bei Einzelschussverfahren problematisch, wenn das Strahlprofil des Lasers sehr inhomogen ist. Um die Mode des Lasers zu bereinigen, kann in solchen Fällen der Laser auf eine Lochblende fokussiert und anschließend wieder parallelisiert werden.

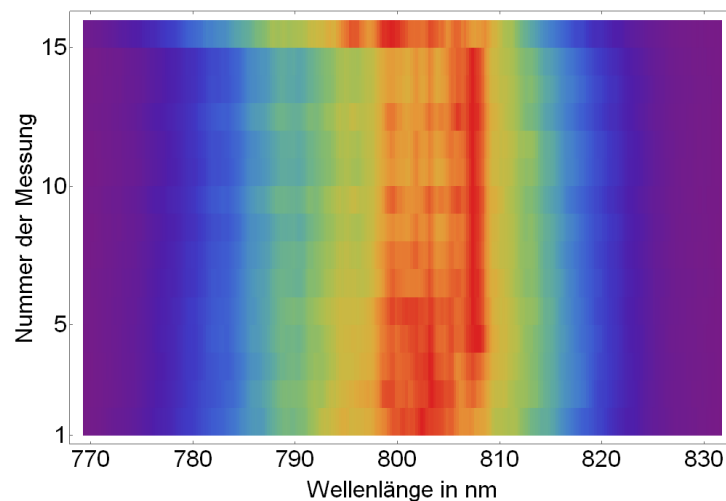


Abbildung 4.46: Farbcodierte Darstellung der normierten spektralen Intensitäten an 15 verschiedenen Punkten der fokussierten Linie des Eingangslasers, gemessen am Ort des Kristalls

### Pulswiederholrate und Vor- und Nachpulse

Die Repetitionsraten von Ti:Sa-Oszillatoren liegen üblicherweise um 80 MHz. Einzelne Laserpulse zu extrahieren ist, wenn überhaupt, nur sehr schwer möglich. Der Pulsabstand beträgt etwa 12 ns. Wäre es möglich, einen 2D-Sensor so schnell zu verschieben oder im Fall von Interline-CCD-Sensoren wenigstens eine Zeile zu verschieben, dann könnte man damit einen einzelnen Puls in der Messung sicherstellen. Bislang ist dies aber nicht möglich und somit bleibt es bei Mehrschussmessungen mit einhunderttausend Pulsen und mehr trotz Einzelschussgeometrie im Fall von Ti:Sa-Oszillatoren. Daher ist kein besonderes Augenmerk darauf zu richten, ob ein Puls beim Belichtungsstart oder Belichtungsende noch zur Hälfte detektiert. Im Mittelwert ist ein Puls nicht auszumachen.

Anders ist es im Fall von verstärkten Lasersystemen. Aufgrund von Repetitionsraten in der Größenordnung von 1 kHz, was einem Pulsabstand von 1 ms entspricht, liegen die Verschiebezeiten der Sensoren (bezogen auf den Frame Transfer Chip der hier verwendeten Kamera) in der gleichen Größenordnung. Nun ist bei kurzen Belichtungszeiten von 10 ms oder weniger besonders darauf zu achten, dass nur vollständige Pulse im Zeitraum von Belichtung und Verschiebungszeit sind. Je nach Kombination aus Kamera und Laser kann dies gegebenenfalls durch mehrfaches Probieren erfolgen, bis diese Bedingung erfüllt ist. Ist die Kamera jedoch zu langsam bzw. der Laser zu schnell, ist dies nicht möglich. Dann kann mit sogenannten Pulswählern („pulse picker“) ein, zwei oder mehr Pulse ausgewählt werden. Allerdings haben diese Pulswähler einen oder mehrere Vor- und auch Nachpulse mit Kontrastverhältnissen zwischen 100:1 und 1000:1. Sinnvollerweise werden die Kameras mit dem Laser so synchronisiert, dass Vor- und Nachpulse ebenfalls in der Belichtungszeit liegen. Andernfalls sind sie als Artefakte im Kamerabild und können die Rekonstruktion unmöglich machen. In den zuvor gezeigten Messungen waren Kamera und Laser nicht

synchronisiert und ein „pulse picker“ wurde auch nicht verwendet. Es waren zahlreiche Aufnahmen notwendig, um eine zu erhalten, in der nicht ein Puls entlang der Verschieberichtung des Sensors die eigentliche Messung überlagert hat. Selbst in den günstigsten Fällen sind die Pulse vor und nach der Belichtungszeit so dicht an dem zu messenden Spektrogramm, dass diese nur über die generalisierte Gauss-Funktion heraus gefiltert werden konnten.

## 5 | Ausblick

Im letzten Kapitel wurde dargestellt, was mit dem VAMPIRE möglich ist, aber auch, was für eine erfolgreiche Umsetzung erforderlich ist. Steht ein zuverlässiger fs-Laser sowie VAMPIRE zur Verfügung, ergeben sich eine Reihe von interessanten Forschungsansätzen. In der Augenheilkunde sind fs-Laser inzwischen im Bereich der refraktiven Chirurgie weit verbreitet, haben aber auch Potential in der Katarakt-, Glaukom- und Netzhautchirurgie [Dic+10]. Dennoch scheint es, als sei gerade die Augenheilkunde ein Fach, in der die Möglichkeiten der Pulsformung und Pulscharakterisierung noch nicht genutzt werden. Daher sollen in diesem kurzen Kapitel drei interessante Ansätze, die nicht nur auf den Bereich der Augenheilkunde limitiert sind, angesprochen werden. Der erste Schwerpunkt stellt eine mögliche Methode zur orts aufgelösten Bestimmung des Brechungsindex vor. Das kann beispielsweise die Schichtstruktur der Hornhaut oder der Linse des Auges sein. Ein zweites Konzept behandelt den nichtlinearen Phasenkontrast und stellt einen möglichen Ansatz zu Mikroskopie in trüben Medien dar, wie sie am Auge besonders unter pathophysiologischen Bedingungen vorkommen. Der letzte Schwerpunkt geht der Frage nach, wie eine Laserleistungsreduzierung im Bereich der refraktiven Chirurgie durch Pulsformung erreicht werden kann. Eine geringere optische Leistung verbessert die Grenzfläche und liefert so weniger Beeinträchtigungen nach einer kornealen oder retinalen Laserbehandlung.

### 5.1 Brechungsindexbestimmung

Mit Hilfe der Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse durch VAMPIRE bietet sich eine neue Methode zur orts aufgelösten Bestimmung des wellenlängenabhängigen Brechungsindex an. Die Analyse von Laserpulsen mit VAMPIRE liefert z.B. die elektrischen Felder  $E_1(\omega, t)$  und  $E_2(\omega, t)$  der Laserpulse, also die spektralen Felder zu jedem Zeitpunkt. Diese Kombination von zeit- und frequenz aufgelösten Feldern ermöglicht eine Laufzeitmessung für jede im Puls enthaltene Frequenz.

Teilt man einen Laserpuls, wovon ein Teil direkt in den VAMPIRE eingekoppelt wird und der andere Teil in eine transparente Probe mit inhomogenem Brechungsindex einstrahlt, so kommt von der Probe an jeder Brechungsindexänderung ein reflektierter Anteil zurück, der ebenfalls in den VAMPIRE als zweites Signal eingekoppelt wird. Die Reflektivität kann mit

$$R = \frac{n - (n + \Delta n)}{n + (n + \Delta n)} \approx \frac{\Delta n}{2n} \quad (5.1)$$

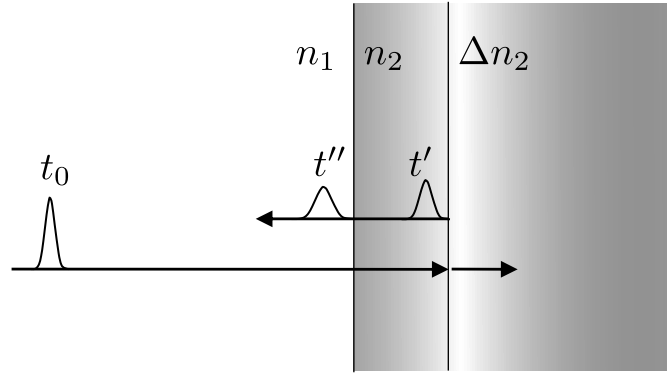


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der Signale an einer Brechungsindexänderung  
Der Hauptreflex am Übergang zwischen  $n_1$  und  $n_2$  wurde der Übersichtlichkeit halber nicht dargestellt.

genähert werden. In Abbildung 5.1 ist ein einfallender Laserpuls und eine Brechungsindexänderung in einem Medium dargestellt. Zu der Zeit  $t'$  wird ein kleiner Teil an der Brechungsindexänderung reflektiert. In diesem Moment hat der Puls bereits eine Veränderung erfahren. Zu der Zeit  $t''$  tritt der Puls wieder aus dem Medium aus und erfährt erneut eine mediumsbedingte Änderung. Der VAMPIRE rekonstruiert die beiden elektrischen Felder  $E(t)$  und  $E(t_0)$  der beiden eingekoppelten Lasersignale und lässt so Rückschlüsse auf die Probe zu. Vereinfacht (unter Vernachlässigung multipler Reflexionen) ist dabei

$$E_R = \frac{\Delta n}{2n} E_0 \quad (5.2)$$

mit dem ursprünglichen Feld  $E_0$  und dem reflektierten Feld  $E_R$  zum Zeitpunkt  $t''$ . Die Zeit  $t''$  ist dabei

$$t'' = \frac{2}{c} \int_0^z n(z') z' dz. \quad (5.3)$$

Da die elektrischen Felder durch den VAMPIRE rekonstruiert werden, kann aus folgender Relation mittels Entfaltung der ortsauflöste Brechungsindex bestimmt werden:

$$E_R(z, \omega, t'') = \int \frac{dn(z)}{2n(z)} E_0(z, \omega, t_0). \quad (5.4)$$

Bei transparenten Medien wird entsprechend nur ein sehr kleiner Anteil aufgrund der Brechungsindexänderung reflektiert. Daher ist es für transparente Medien zwingend notwendig mit einem Mehrschussverfahren zu arbeiten. Im Bereich des Auges wäre dieses Vorgehen aufschlussreich, da die Hornhaut des Auges aus mehreren Schichten aufgebaut ist und somit der Brechungsindex inhomogen ist [Pat+95]. Auch die Augenlinse hat einen nicht konstanten Brechungsindex [Jon+05]. Er variiert Aufgrund der Struktur der Augenlinse (siehe Abbildung 5.2) nicht nur vom Kern zum äquatorialen Rand, sondern auch vom Kern zum anterioren und posterioren Pol. Da insbesondere die OCT-basierte Biometrie von einem mittleren Brechungsindex ausgeht, könnten die Ergebnisse zu einer höheren Genauigkeit von axialen Längenmessungen beitragen. Darüber hinaus ist bekannt, dass sich nach einem LASIK-Eingriff (Laser-in-situ-Keratomileusis)

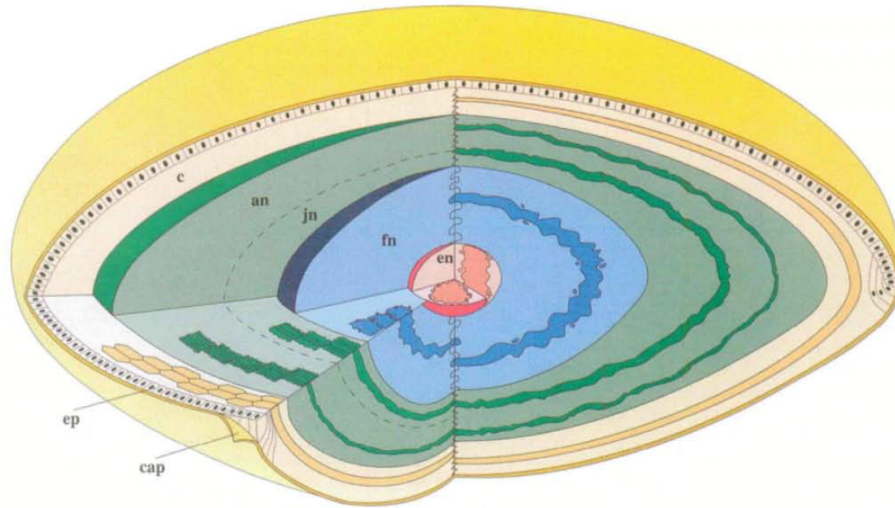


Abbildung 5.2: Schematische Struktur einer gealterten menschlichen Augenlinse aus [Tay+96]. Einige Strukturen sind zur besseren Darstellung nicht maßstabsgetreu gezeichnet. (cap - Kapsel, ep - Epithel, c- Rinde (Kortex), an - adulter Kern, jn - juveniler Kern, fn - fetaler Kern, en - embryonaler Kern )

der Brechungsindex ändert [Pat+04]. Eine orts aufgelöste Brechungsindexbestimmung kann hier Erkenntnisse über diese Prozesse und eine bessere Vorhersage der anschließenden optischen Abbildungseigenschaften nach refraktiven Eingriffen, besonders im Hinblick auf die Korrektur von Brechungsfehlern höherer Ordnung, ermöglichen.

## 5.2 Nichtlinearer Phasenkontrast

Verschiedene Methoden zur Bildgebung sind in der Lichtmikroskopie etabliert. Die Hellfeldmikroskopie ist dabei das Standardverfahren. Daneben existieren zahlreiche andere Funktionsprinzipien, wie z.B. Dunkelfeldmikroskopie, Polarisationsmikroskopie, Phasenkontrastmikroskopie oder die konfokale Laserscanningmikroskopie. Wiederum in der Augenheilkunde liefert das letztere Verfahren sehr gute Aufnahmen der Hornhaut des Auges auf zellulärer Ebene [Gut+09].

Für die Phasenkontrastmikroskopie bekam Frits Zernike 1953 den Nobelpreis in Physik [Nobc]. Dabei nutzte er die Tatsache aus, dass Licht je nach Brechungsindex eine unterschiedliche Laufzeit durch ein Medium besitzt und so nicht nur die Amplitude des Lichtes, sondern auch die Phase des Lichtes verändert. Bei dem Phasenkontrastverfahren wird eine ringförmige Blende hinter der Lichtquelle platziert und eine ringförmige Phasenplatte in den Strahlengang vor der Bildebene eingesetzt, die direktes Licht um  $\pi/2$  in der Phase verschiebt. Direktes Licht geht daher nur durch die Phasenplatte. Wird eine Probe eingesetzt, so wird ein Teil des Lichtes daran gebeugt und durchläuft nicht mehr die Phasenplatte, sondern kann mit dem restlichen Licht interferieren [Hec98].

Die nichtlineare Bildgebung besitzt wegen des geringen Brennpunktvolumens, in dem die Intensität ausreichend groß für nichtlineare Effekte ist, naturgemäß eine relativ hohe räumliche Auflösung. Blenden, wie sie die konventionelle konfokale Mikroskopie benötigt, entfallen. Zu den nichtlinearen Wechselwirkungen zählt unter anderem die Erzeugung der zweiten oder dritten Harmonischen. Diese Signale lassen sich wegen der unterschiedlichen Wellenlängen gut filtern, können aber nicht immer gefunden werden. Gerade in trüben Medien wird das gegebenenfalls erzeugte Licht wiederum gestreut und lässt sich daher nur schwer detektieren. Den nichtlinearen Phasenkontrast, der auf dem nichtlinearen Brechungsindex beruht, zu messen ist schwierig. Insbesondere in trüben Medien, die einen hohen Anteil an Streulicht aufweisen, ist die Messung unmöglich [Fis+11].

In der Augenheilkunde sind solche Aufnahmen von Interesse. Beispielsweise könnten mikroskopische Bilder in Regionen mit hoher Streuung, wie dem Limbus-Bereich, also dem Übergang von Hornhaut (Cornea) zu Lederhaut (Sklera), verborgene Strukturen wie den Schlemm'schen-Kanal abbilden. Diese Information könnte die Planung minimalinvasiver glaukomchirurgischer Eingriffe erleichtern. In diesem Bereich sind auch die Stammzellen lokalisiert, die für die Regeneration von Epithelgewebe der Hornhaut verantwortlich sind. Aufnahmen aus diesem Bereich würden das Verständnis und die Diagnostik der Zellen im Limbus verbessern. Korneale Ulcera, schleichende Geschwüre infolge von Bakterien, Pilzen oder Amöben, können zu sehr schmerzhaften Trübungen der Hornhaut führen. Wegen der Perforationsgefahr der Hornhaut ist ein bakterielles Hornhautulkus immer ein Notfall [Gre12]. Standard in der Diagnostik ist dann ein Abstrich mit anschließendem Anlegen einer Bakterienkultur, um darauf aufbauend die Wahl des wahrscheinlich wirksamsten Antibiotikums festzulegen [Gre12]. Hochauflösende Bilder des Hornhautulkus könnten helfen, es deutlich schneller zu therapieren. Ein durch Amöben verursachtes Hornhautulkus wiederum kann durch einen Abstrich nicht identifiziert werden, da die Amöben im Innern der Hornhaut (Stroma) lokalisiert sind. An verbleibenden transparenten Stellen der Hornhaut können diese Amöben in einigen Fällen mit konfokaler in vivo Mikroskopie diagnostiziert werden [Gre12]. Auch hier liegt ein großes Potential für nichtlineare Phasenkontrastmikroskopie.

In [Fis+11] wird der Zugang zum nichtlinearen Phasenkontrast beschrieben. Im Folgenden wird eine Möglichkeit kurz skizziert. Grundsätzlich wird ein fs-Laserpuls mit einer spektralen Lücke vorausgesetzt. Hier bietet sich bereits der VAMPIRE an, um die Ausgangsspulse zu charakterisieren. Dabei kann sicher gestellt werden, dass kein Phasensprung von einer Frequenzkomponente zur anderen erfolgt ist. Durchläuft ein fs-Laserpuls mit spektraler Lücke eine Probe, so beginnt sich diese Lücke durch nichtlineare Effekte wie Zweiphotonenabsorption oder Selbstphasenmodulation zu füllen. Schematisch sind die Pulse vor und nach Durchlaufen der Probe in Abbildung 5.3 dargestellt. Die Phase des Feldes innerhalb der ursprünglichen Lücke gibt Auskunft über die Art des Effektes. Im Falle der Selbstphasenmodulation hat das erzeugte Feld einen Phasenversatz von  $90^\circ$ . Um diese Phase innerhalb der Lücke detektieren zu können, wird in [Fis+11] ein Lokaloszillator in der Lücke eingebunden und die Veränderung durch eine Homodyne-Messung gewonnen. Die Messungen müssen nicht zwingend in Transmission erfolgen. Es genügt, wenn das

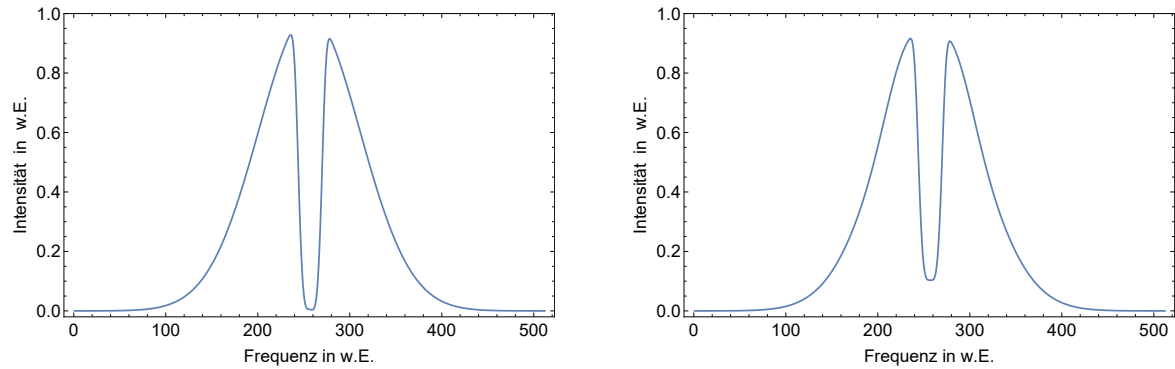


Abbildung 5.3: Schematische Darstellung des Pulses vor (links) und nach (rechts) dem Durchlaufen einer Probe. Der Bereich der spektralen Lücke weist nun Intensität auf. Die Phase dieses Lichtes erlaubt Rückschlüsse auf den zugrunde liegenden nichtlinearen Prozess.

Licht in das Medium eindringt und der rückgestreute Anteil untersucht wird. Letzteres ist gerade für den in vivo Einsatz an lebendem Gewebe, bei dem nur in rückgestreuter Richtung gemessen werden kann, essentiell. Dieser rückgestreute Anteil kann dann mit dem VAMPIRE detektiert werden und so die Phase im Bereich der spektralen Lücke gewonnen werden. Da der Anteil rückgestreuten Lichtes gering ist, sollte hierbei die deutlich empfindlichere Mehrschussvariante des VAMPIREs Verwendung finden.

### 5.3 Refraktive Hornhautchirurgie

Die refraktive Hornhautchirurgie ist ein Überbegriff für eine Anzahl verschiedener Verfahren, mit denen Fehlsichtigkeiten durch chirurgische Verfahren korrigiert werden. Der Beginn liegt im 19. Jahrhundert, wobei durch spezielle korneale Schnitte die Form der Hornhaut verändert wurde [Far+11]. Die Entdeckung des Lasers hatte großen Einfluss auf die Entwicklung der refraktiven Chirurgie und so ist z.B. LASIK als Nachfolger der PRK (photorefraktive Keratektomie) heute allgemein bekannt. Dabei wird der oberste Teil der Hornhaut seitlich eingeschnitten und umgeklappt. Mit einem Excimerlaser (ns-Pulse im UV-Bereich) wird dann ein Teil des stromalen Gewebes durch Photoablation entfernt [Far+11]. Anschließend wird die Hornhaut zurückgeklappt und wächst innerhalb von Monaten wieder an. Beugung und Vorwärtsstreuung an der laserbehandelten Grenzfläche können postoperativ, insbesondere im ersten Jahr [Pop+04], zu Blendlichteffekten, wie z.B. Halo führen. Inzwischen gibt es auch refraktive Varianten, die fs-Laser verwenden. Neueste Verfahren wie SMILE (Small incision lenticule extraction) [Iva+14] basieren sogar komplett auf fs-Lasern. Dabei wird ein Teil im Innern der Hornhaut vorgeschritten, der dann über einen kleinen Einschnitt der Hornhaut entnommen wird. Überraschenderweise sind jedoch keine Studien bekannt, die den Einfluss des Laserpulses bezüglich Amplitude und Phase untersuchen. Selbst einfache Doppelpulse wurden nicht systematisch studiert.

Ein mögliches Ziel solcher Studien könnte in diesem Fall sein, die benötigte Pulsenergie für das

Trennen von biologischem Gewebe wie der Hornhaut des Auges zu minimieren. Eine Minimierung der eingebrachten Energie ist am Auge von generellem Interesse, aber auch die Größe der entstehenden Kavitationsbläschen hängt von der Pulsenergie ab. Daraus können präzisere Schnitte mit geringeren optischen Beeinträchtigungen resultieren. In der Femtochemie und der Femtobiologie, also dem Analysieren und Steuern von Reaktionen mit fs-Laserpulsen, sind derartige systematische Untersuchungen etabliert. 1999 bekam Ahmed Zewail den Nobelpreis in Chemie für seine Pionierarbeit auf dem Gebiet der Femtochemie [Noba; Zew00]. Aber auch im Bereich der Clusterionisation sind solche Arbeiten bekannt [Tru+10]. Erst kürzlich konnte gezeigt werden, dass durch sogenannte zeitliche Airypulse (englisch „temporal Airy pulses“) besonders tiefe Löcher bei kleinem Durchmesser in Festkörpern erzeugt werden können [Göt+16]. So gelang es einen bandbreitenlimitierten 30 fs Laserpuls durch einen Pulsformer in einen abklingenden zeitlichen Pulszug („temporal Airy pulses“) zu verwandeln und so mehrere Mikrometer tiefe Löcher bei einem Durchmesser von  $\approx 250$  nm mit einem einzelnen Laserpuls in Quarzglas zu erzeugen [Göt+16]. Insbesondere das Verhältnis aus Schnitttiefe und Durchmesser macht solche Laserpulse sehr interessant für präzise aber tiefe Schnitte, wie sie bei einer Keratoplastik hilfreich sind. Im Bereich der perforierenden Keratoplastik (vollständige Hornhauttransplantation) werden kreisrunden Schnitte mit einem Trepan oder Excimerlaser erzeugt [Gre12]. Noch sauberere Schnitttränder sind durch zeitliche Airypulse zu erwarten. Auch hier liegt eine mögliche Anwendung des VAMPIREs hinsichtlich der systematischen Analyse von Pulsenergie, Spektrum und Phase zur Optimierung der Schnittparameter an biologischem Gewebe.

## 6 | Zusammenfassung

Photoelektrische Detektoren sind für die direkte Charakterisierung von Femtosekunden-Laserpulsen zu träge sind. Prozesse der nichtlinearen Optik müssen für indirekte Messverfahren verwendet werden. Obwohl zahlreiche Methoden eingeführt wurden und Verfahren wie FROG oder SPIDER etabliert sind, ist die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse ein vielschichtiges Thema. In dieser Arbeit wurde zunächst die mathematische Beschreibung von Laserpulsen und ihren linearen und nichtlinearen Effekten (siehe Abschnitt 2.1 bis 2.3) erläutert. In Kapitel 3 wurde ein Überblick über die bekanntesten Methoden der interferometrischen und spektralen Pulscharakterisierung gegeben. Es zeigte sich, dass nicht jedes Verfahren für jeden Puls geeignet ist und kaum ein Verfahren mathematisch eindeutige Ergebnisse liefert. Insbesondere bei komplexen Pulsformen mit spektralen Lücken liefern bisherige Verfahren mehrdeutige Ergebnisse.

Das verhältnismäßig neue Verfahren VAMPIRE wurde 2009 erstmals in einer Mehrschusstechnik realisiert [Sei+09]. Die Eindeutigkeit der Rekonstruktion wurde mathematisch bewiesen [Sei+04]. Darüber hinaus ist dieses Verfahren wegen der  $\chi^2$ -Abhängigkeit sehr sensitiv. Die gleichzeitige Messung der Eingangsspektren liefert eine einfache Methode der Messwertkontrolle, wie sie in anderen Verfahren nicht vorgesehen ist. Aufgrund dieser Eigenschaften ist VAMPIRE den anderen Verfahren überlegen. Der technische Aufwand ist allerdings auch etwas höher.

Durch die inzwischen kommerziell gut verfügbaren verstärkten fs-Laser mit „pulse picker“ wächst der Wunsch nach einem Verfahren, welches in der Lage ist, einzelne Laserpulse zu vermessen. So lassen sich daraus nicht nur Informationen über die Puls-zu-Puls Schwankungen eines Systems gewinnen, sondern auch Experimente durchführen, die auf Einzelpulsen basieren.

In dieser Arbeit wurde deshalb der erste VAMPIRE in Einzelschussgeometrie umgesetzt. Er wurde so konzipiert, dass der zu vermessende Puls vorab keine Phasenänderung erfährt („zero additional phase design“). Da Einzelschussverfahren prinzipbedingt um mehrere Größenordnungen weniger sensitiv sind als vergleichbare Verfahren in Mehrschussanordnung und das gemessene Spektrogramm in die Rekonstruktion eingeht, ist die Auswahl eines empfindlichen Detektors mit geringem Rauschen und hoher Dynamik von grundlegender Bedeutung. Um erhältliche Detektoren zu vergleichen, wurde ein universeller Quanteneffizienzmessplatz entwickelt. Die Ergebnisse zeigten für eine Kamera Oszillationen in der Quanteneffizienz, die mit Hilfe eines Dünnschichtmodells auf Fabry-Pérot-Oszillationen in einer Antireflexschicht zurückgeführt werden konnten. Bei einer weiteren Kamera konnte gezeigt werden, dass die dort verwendete UV-Konversionsschicht bei rückseitig belichteten Sensoren einen großen Einfluss auf die spektrale Quanteneffizienz hat.

Diese Tatsache war bislang unbekannt. Letztlich haben diese Messungen die Auswahl des Detektors maßgeblich bestimmt. Die Untersuchung der temperaturabhängigen Quanteneffizienz bestätigte den Zusammenhang zwischen Effizienz der UV-Konversionsschicht (Lumogen<sup>®</sup>) und ihrer Temperatur. Eine bis dahin nicht veröffentlichte Temperaturabhängigkeit unterhalb von 380 nm konnte für eine unbeschichtete Kamera gezeigt werden. Die Ursache kann in der direkten Bandlücke von Silizium begründet liegen (siehe [Spe+14b]).

Der Einzelschuss-VAMPIRE wurde zusammen mit den entworfenen, breitbandig astigmatismuskorrigierten Spektrometern auf einer leichten Aluminium-Lochraster-Grundplatte aufgebaut, um transportabel zu sein. In dieser Form kann er Pulse ab 50 fs in einem Spektralbereich von 700 nm bis 1000 nm charakterisieren. Als nichtlineare Kristalle wurden BBO und BIBO verwendet. Die berechneten Phasenanpassungsbandbreiten wurden in Bezug zur Kristalldicke gesetzt und es zeigte sich, dass BIBO bei 800 nm und gleicher Phasenanpassungsbandbreite nur halb so effizient ist, wie BBO. Der 28  $\mu\text{m}$  dünne BIBO-Kristall erzeugte deutliche Fabry-Pérot-Oszillationen, die eine anschließende Antireflexbeschichtung erforderlich machten. Schließlich konnte anhand von Messungen an einem Ti:Sa-Oszillator die Rekonstruktion der elektrischen Felder demonstriert werden. Dabei wurden sehr schwache Pulse (200 pJ und 50 pJ) zuverlässig rekonstruiert. Die in der Literatur angegebene Mindestpulsenergie für ein SHG-Verfahren in Einzelschussgeometrie [Tre00] konnte um zwei Größenordnungen unterschritten werden und belegt die Sensitivität des hier vorgestellten VAMPIREs.

Für kurze Zeit stand ein verstärktes Ti:Sa-Lasersystem zur Verfügung. Messungen daran bereiteten Schwierigkeiten in der Rekonstruktion, die mit dem räumlichen Chirp des Lasersystems in Verbindung gebracht wurden. Bei der Charakterisierung ultrakurzer Pulse sind einige Faktoren zu beachten. Das *eine* Verfahren, welches ohne Veränderungen alle Pulse ad hoc zuverlässig bestimmen kann, existiert noch nicht. Es ist daher immer ein gewisses Maß an Informationen über die Pulse im Vorfeld notwendig, um das am besten geeignete Verfahren auszuwählen oder einen bestehenden Aufbau an den Puls anzupassen. Dabei sind insbesondere Kenntnisse über Bandbreite und Wellenlänge des Pulses notwendig, um einen geeigneten nichtlinearen Kristall auszuwählen. Die Frage nach Einzelschuss- oder Mehrschussgeometrie ist oft eine Frage der Intensität der Pulse. Trotz seiner Vorzüge ist der VAMPIRE komplexer als ein einfaches FROG-Schema oder ein SPIDER. Daher haben solche Verfahren je nach Puls weiterhin ihre Berechtigung. Eine Fehlerangabe der rekonstruierten Pulse ist schwierig und beschränkt sich oft auf einen nicht repräsentativen „FROG-Fehler“, der keine Fehlerangabe im eigentlichen Sinn darstellt. Eine systematische Fehleranalyse, die beispielsweise auch die frequenzabhängige Konversionseffizienz der nichtlinearen Kristalle berücksichtigt, existiert nicht.

Die Weiterentwicklung der Pulscharakterisierungsverfahren bleibt somit Gegenstand aktueller Forschung. Dennoch ergeben sich mit den bestehenden Methoden bereits viele Anwendungsfelder. Der Ausblick liefert drei angewandte Themen, die insbesondere im Bereich der Augenheilkunde von Interesse sind. Dabei geht es speziell um die orts aufgelöste Brechungsindexbestimmung, die Erweiterung der nichtlinearen Mikroskopie sowie Optimierungen in der refraktiven Chirurgie.

# Literaturverzeichnis

- [Anda] *X-4285-DU885-KCS-VP performance sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2009.
- [Andb] *X-4793-DU897D-CS0-UVB performance sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2011.
- [Andc] *X-5046-DU897D-CS0-UVB performance sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2010.
- [Andd] *X-5051-DU888E-C00-BV performance sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2010.
- [Ande] *X-5528-DU897D-CSB-BB performance sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2010.
- [Andf] *X-6014-DU888D-C0B-BB performance sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2011.
- [Andg] *iXonEM+ 885 spec sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2008.
- [Andh] *iXonEM+ 888 (back-illuminated) spec sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2008.
- [Andi] *iXonEM+ 897 (back-illuminated) spec sheet*. Techn. Ber. Belfast, UK: Andor Technology, 2009.
- [Aus+09] Austin, D. R., Witting, T. und Walmsley, I. a. „Broadband astigmatism-free Czerny-Turner imaging spectrometer using spherical mirrors.“ In: *Applied optics* 48.19 (2009), S. 3846–53. DOI: 10.1364/AO.48.003846.
- [Bae+08] Baehr, H. und Stephan, K. *Wärme- und Stoffübertragung*. 6. Springer, 2008. ISBN: 9783540876885.
- [Bat+70] Bates, B, McDowell, M und Newton, A. C. „Correction of astigmatism in a Czerny-Turner spectrograph using a plane grating in divergent illumination“. In: *J. Phys. E: Sci. Instrum.* 3.3 (1970), S. 206–210. DOI: 10.1088/0022-3735/3/3/310.
- [Bau+04] Baum, P., Lochbrunner, S. und Riedle, E. „Zero-additional-phase SPIDER: full characterization of visible and sub-20-fs ultraviolet pulses.“ In: *Optics letters* 29.2 (2004), S. 210–212. DOI: 10.1364/OL.29.000210.

- [Bec+99] Becker, P., Liebertz, J. und Bohatý, L. „Top-seeded growth of bismuth triborate,  $\text{BiB}_3\text{O}_6$ “. In: *Journal of Crystal Growth* 203.1 (1999), S. 149–155. DOI: 10.1016/S0022-0248(99)00078-0.
- [Blu+74] Bludau, W., Onton, A. und Heinke, W. „Temperature dependence of the band gap of silicon“. In: *Journal of Applied Physics* 45.4 (1974), S. 1846–1848. DOI: 10.1063/1.1663501.
- [Boy+70] Boyle, W. S. und Smith, G. E. „Charge Coupled Semiconductor Devices“. In: *The Bell system technical journal* 49.4 (1970), S. 587–593. DOI: 10.1002/j.1538-7305.1970.tb01790.x.
- [Boy08] Boyd, R. W. *Nonlinear Optics*. 3rd. Burlington: Academic Press, 2008. ISBN: 9780123694706.
- [CDG06] CDGM. *Optical Glass Products Database*. Chengdu, China, 2006.
- [Che+07] Chen, M.-H. u. a. „Multiphoton autofluorescence and second-harmonic generation imaging of the tooth.“ In: *Journal of Biomedical Optics* 12.6 (2007), S. 064018. DOI: 10.1117/1.2812710.
- [Che+12] Chen, C u. a. *Nonlinear Optical Borate Crystals*. Weinheim, Deutschland: WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2012. ISBN: 978-3-527-41009-5.
- [Cze+30] Czerny, M und Turner, A. „Über den Astigmatismus bei Spiegelspektrometern“. In: *Zeitschrift für Physik* 61.11 (1930), S. 792–797. DOI: 10.1007/BF01340206.
- [Dal66] Dalton, M. L. „Astigmatism compensation in the Czerny-turner spectrometer.“ In: *Applied Optics* 5.7 (1966), S. 1121–1123. DOI: 10.1364/AO.5.001121.
- [DeL+95] DeLong, K. W., Trebino, R. und White, W. E. „Simultaneous recovery of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 12.12 (1995), S. 2463. DOI: 10.1364/JOSAB.12.002463.
- [Del+10] Delmas, R. und Baratange, E. *Spectrometer with cylindrical lens for astigmatism correction and demagnification*. 2010. URL: <https://www.google.de/patents/US7812949>.
- [Dic+10] Dick, H. B., Elling, M. und Willert, A. „Femtosecond laser in ophthalmology - A short overview of current applications“. In: *Medical Laser Application* 25 (2010), S. 258–261. DOI: 10.1016/j.mla.2010.07.005.
- [Die+06] Diehls, J.-C. und Rudolph, W. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. 2nd. Burlington: Elsevier, 2006. ISBN: 9780122154935.

- [E2v] *Technical Note on UV Conversion Coatings : LUMOGEN ( also known as LUMILUX , LIUMOGEN AND LUMIGEN ) PHOSPHOR : LUMOGEN*. Techn. Ber. 5. Essex, UK: e2v technologies, 2003, S. 1–2. URL: <http://www.e2v.com/e2v/assets/File/documents/imaging-space-and-scientific-sensors/Papers/ccdtn103.pdf>.
- [Eic+10] Eichler, J. und Eichler, H. J. *Laser*. 7. Heidelberg: Springer, 2010. ISBN: 9783642104619. DOI: 10.1007/978-3-642-10462-6.
- [Far+11] Fares, U. u. a. „Anterior Segment Refractive A Review of Refractive Surgery“. In: *European Ophthalmic Review* 5.1 (2011), S. 50–55. DOI: 10.17925/EOR.2011.05.01.50.
- [Fis+11] Fischer, M. C. u. a. „Accessing nonlinear phase contrast in biological tissue using femtosecond laser pulse shaping“. In: *Biomedical Optics* 8086.919 (2011), 808600–808600–9. DOI: 10.1117/12.889668.
- [Fit+96] Fittinghoff, D. N. u. a. „Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses.“ In: *Optics letters* 21.12 (1996), S. 884–886. DOI: 10.1364/OL.21.001313.
- [Ger+72] Gerchberg, R. W. und Saxton, W. O. „A Practical Algorithm for the Determination of Phase from Image and Diffraction Plane Pictures“. In: *Optik* 35.2 (1972), S. 237–246. URL: <http://ci.nii.ac.jp/naid/10010556614/>.
- [Gol+99] Goldberg, Y. A. u. a. „Temperature dependence of the quantum efficiency of silicon p-n photodiodes“. In: *SEMICONDUCTORS* 33.3 (1999), S. 343–344. DOI: 10.1134/1.1187691.
- [Gre12] Grehn, F. *Augenheilkunde*. Springer-Verlag, 2012. ISBN: 9783642113321.
- [Gut+09] Guthoff, R. F., Zhivov, A. und Stachs, O. „In vivo confocal microscopy, an inner vision of the cornea - A major review“. In: *Clinical and Experimental Ophthalmology* 37.1 (2009), S. 100–117. DOI: 10.1111/j.1442-9071.2009.02016.x.
- [Göt+16] Götte, N. u. a. „Temporal Airy pulses for controlled high aspect ratio nanomachining of dielectrics“. In: *Optica* 3.4 (2016), S. 389–395. DOI: 10.1364/OPTICA.3.000389.
- [Hau+07] Hause, A. u. a. „Phase structure of soliton molecules“. In: *Physical Review A* 75.6 (2007), S. 1–7. DOI: 10.1103/PhysRevA.75.063836.
- [Hec98] Hecht, E. *Optics*. 4th. San Francisco, CA, 1998. ISBN: 0-321-18878-0.
- [Hob67] Hobden, M. V. „Phase-matched second-harmonic generation in biaxial crystals“. In: *Journal of Applied Physics* 38.11 (1967), S. 4365–4372. DOI: 10.1063/1.1709130.
- [Hyn80] Hyneczek, J. *Virtual phase charge transfer device*. 1980. URL: <http://www.google.com/patents/US4229752>.

- [Iac+98] Iaconis, C und Walmsley, I. a. „Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses.“ In: *Optics letters* 23.10 (1998), S. 792–4. DOI: 10.1364/OL.23.000792.
- [Iam+35] Iams, H. und Salzberg, B. „The Secondary Emission Phototube“. In: *Proceedings of the Institute of Radio Engineers* 23.1 (1935), S. 55–64. DOI: 10.1109/JRPROC.1935.227243.
- [Iva+14] Ivarsen, A. und Hjortdal, J. „All-Femtosecond Laser Keratorefractive Surgery“. In: *Current Ophthalmology Reports* 2 (2014), S. 26–33. DOI: 10.1007/s40135-013-0032-2.
- [Jan01] Janesick, J. R. *Scientific Charge-Coupled Devices*. Bellingham: SPIE PRESS, 2001. ISBN: 0819436984.
- [Jav+61] Javan, A., Bennett, W. R. und Herriott, D. R. „Population inversion and continuous optical maser oscillation in a gas discharge containing a He-Ne mixture“. In: *Physical Review Letters* 6.3 (1961), S. 106–110. DOI: 10.1103/PhysRevLett.6.106.
- [Jon+05] Jones, C. E. u. a. „Refractive index distribution and optical properties of the isolated human lens measured using magnetic resonance imaging (MRI)“. In: *Vision Research* 45.18 (2005), S. 2352–2366. DOI: 10.1016/j.visres.2005.03.008.
- [Kan+93] Kane, D. J. und Trebino, R. „Characterization of Arbitrary Femtosecond Pulses Using Frequency-Resolved Optical Gating“. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 29.2 (1993), S. 571–579. DOI: 10.1109/3.199311.
- [Keu+03] Keusters, D. u. a. „Relative-phase ambiguities in measurements of ultrashort pulses with well-separated multiple frequency components“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 20.10 (2003), S. 2226–2237. DOI: 10.1364/JOSAB.20.002226.
- [Knu12] Knut, H. *Angaben zur Parallelität des Variablen Newport Spaltes 74001*. Darmstadt, Germany: Private Mitteilung, 2012.
- [Kos+05] Kosik, E. M. u. a. „Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit“. In: *Optics letters* 30.3 (2005), S. 326–328. DOI: 10.1364/OL.30.000326.
- [Kos10] Koschützke, O. *Quantum efficiency for TI-TC285 provided to Andor*. Darmstadt, Germany: Private Mitteilung, 2010.
- [Lee+10] Lee, K.-S., Thompson, K. P. und Rolland, J. P. „Broadband astigmatism-corrected Czerny-Turner spectrometer.“ In: *Optics express* 18.22 (2010), S. 23378–84. DOI: 10.1364/OE.18.023378.
- [Lie82] Liebertz, J. „Metrik und Raumgruppe von  $\text{BiB}_3\text{O}_6$ “. In: *Zeitschrift für Kristallographie* 158.1-2 (1982), S. 319. DOI: 10.1524/zkri.1982.158.12.319.

- [Lin+98] Linden, S., Giessen, H. und Kuhl, J. „XFROG - A New Method for Amplitude and Phase Characterization of Weak Ultrashort Pulses“. In: *Physica Status Solidi (b)* 206.1 (1998), S. 119–124. DOI: 10.1002/(SICI)1521-3951(199803)206:1<119::AID-PSSB119>3.0.CO;2-X.
- [Lin+99] Linden, S., Kuhl, J. und Giessen, H. „Amplitude and phase characterization of weak blue ultrashort pulses by downconversion“. In: *Optics Letters* 24.8 (1999), S. 569–571. DOI: 10.1364/OL.24.000569.
- [Lip+97] Lipson, S. G., Lipson, H. S. und Tannhauser, D. S. *Optik*. Berlin: Springer, 1997. ISBN: 3540619127.
- [Luma] *Lumogen Yellow S 0790 - Technical Information*. Techn. Ber. Ludwigshafen, Germany: BASF Aktiengesellschaft, 1998.
- [Lumb] *Lumogen Yellow S 0790 - Technical Information*. Techn. Ber. Ludwigshafen, Germany: BASF Aktiengesellschaft, 2005.
- [Mac10] Macleod, H. A. *Thin-Film Optical Filters*. 4th ed. CRC Press, 2010, S. 90–91. ISBN: 9781420073027.
- [Mai60] Maiman, T. H. „Stimulated Optical Radiation in Ruby“. In: *Nature* 187.4736 (1960), S. 493–494. DOI: 10.1038/187493a0.
- [Mal65] Malitson, I. H. „Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica“. In: *Journal of the Optical Society of America* 55.10 (1965), S. 1205. DOI: 10.1364/JOSA.55.001205.
- [Miy+09] Miyata, K., Umemura, N. und Kato, K. „Phase-matched pure  $\chi^3$  third-harmonic generation in noncentrosymmetric  $\text{BiB}_3\text{O}_6$ “. In: *Optics letters* 34.4 (2009), S. 500–2. DOI: 10.1364/OL.34.000500.
- [Mou86] Moulton, P. „Spectroscopic and laser characteristics of  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ “. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 3.1 (1986), S. 125–133. DOI: 10.1364/JOSAB.3.000125.
- [Noba] Nobel Media AB. *The 1999 Nobel Prize in Chemistry - Press Release*. URL: [http://www.nobelprize.org/nobel\\_prizes/chemistry/laureates/1999/press.html](http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/chemistry/laureates/1999/press.html) (besucht am 21.10.2016).
- [Nobb] Nobel Media AB. *The 2009 Nobel Prize in Physics - Press Release*. URL: [http://www.nobelprize.org/nobel\\_prizes/physics/laureates/2009/press.html](http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2009/press.html) (besucht am 16.03.2016).
- [Nobc] Nobel Media AB. *The Nobel Prize in Physics 1953*. URL: [http://www.nobelprize.org/nobel\\_prizes/physics/laureates/1953/](http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/1953/) (besucht am 13.10.2016).

- [Ori] Oriol. *Typical Spectra of Spectral Calibration Lamps*. Stratford, CT. URL: [https://www.newport.com/medias/sys\\_master/images/h55/hfd/8797293281310/Typical-Spectra-of-Spectral-Calib-Lamps.pdf](https://www.newport.com/medias/sys_master/images/h55/hfd/8797293281310/Typical-Spectra-of-Spectral-Calib-Lamps.pdf) (besucht am 05.07.2016).
- [PR+11] Perez-Rovira, a. u. a. „VAMPIRE: Vessel assessment and measurement platform for images of the RETina“. In: *Proceedings of the Annual International Conference of the IEEE Engineering in Medicine and Biology Society, EMBS* (2011), S. 3391–3394. DOI: 10.1109/IEMBS.2011.6090918.
- [Pal+14] Palmer, C. und Loewen, E. *DIFFRACTION GRATING HANDBOOK*. 7th. Rochester: Newport Corporation, 2014.
- [Par99] Parseval, M.-A. *Mémoire sur les séries et sur l'intégration complète d'une équation aux différences partielles linéaires du second ordre, à coefficients constants*. 1799.
- [Pat+04] Patel, S., Alió, J. L. und Pérez-Santonja, J. J. „Refractive index change in bovine and human corneal stroma before and after LASIK: A study of untreated and re-treated corneas implicating stromal hydration“. In: *Investigative Ophthalmology and Visual Science* 45.10 (2004), S. 3523–3530. DOI: 10.1167/iovs.04-0179.
- [Pat+95] Patel, S., Marshall, J. und Fitzke, F. W. „Refractive index of the human corneal epithelium and stroma“. In: *Journal of refractive surgery* 11 (1995), S. 100–105. DOI: 10.3928/1081-597X-19950301-09.
- [Pav+14] Pavone, F. S. und Campagnola, P. J. *Second Harmonic Generation Imaging*. Boca Raton: CRC Press, 2014. ISBN: 9781439849156.
- [Pco] *sensicam uv spec sheet*. Techn. Ber. Kehlheim, Germany: pco AG, 2006, S. 1–4.
- [Pel04] Peltz, M. *Charakterisierung von neuen nichtlinearen Kristallen zur Frequenzkonversion von Lichtimpulsen gütegeschalteter Festkörperlaser*. Tenea Wissenschaft. Tenea, 2004. ISBN: 9783865040626.
- [Per+99] Perry, M. D. u. a. „Petawatt laser pulses.“ In: *Optics letters* 24.3 (1999), S. 160–162. DOI: 10.1364/OL.24.000160.
- [Pop+04] Pop, M. und Payette, Y. „Risk Factors for Night Vision Complaints after LASIK for Myopia“. In: *Ophthalmology* 111.1 (2004), S. 3–10. DOI: 10.1016/j.optha.2003.09.022.
- [Rei+12] Reiß, S. u. a. „Ex Vivo Measurement of Postmortem Tissue Changes in the Crystalline Lens by Brillouin Spectroscopy and Confocal Reflectance Microscopy“. In: *IEEE Transactions on Biomedical Engineering* 59.8 (2012), S. 2348–2354. DOI: 10.1109/TBME.2012.2204054.
- [Rei+13] Reiß, S. u. a. *Verfahren und Vorrichtung zur Bestimmung einer spektralen Änderung von gestreutem Licht*. 2013. URL: <http://www.google.de/patents/DE102013211854B4>.

- [Ric07] Richmond, M. *Unravelling Sensitivity , Signal to Noise and Dynamic Range - EM-CCD vs CCD*. 2007. URL: [http://www.emccd.com/what\\_is\\_emccd/unraveling\\_sensitivity/](http://www.emccd.com/what_is_emccd/unraveling_sensitivity/).
- [Roh+13] Rohrmann, P., Hause, A. und Mitschke, F. „Two-soliton and three-soliton molecules in optical fibers“. In: *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 87.4 (2013), S. 1–10. DOI: 10.1103/PhysRevA.87.043834.
- [Rop] *Technical Note - Etaloning in Back-Illuminated CCDs*. Techn. Ber. Trenton, NJ: Roper Scientific, 2000.
- [Rue67] Ruegg, H. „An optimized avalanche photodiode“. In: *IEEE Transactions on Electron Devices* 14.5 (1967), S. 239–251. DOI: 10.1109/T-ED.1967.15937.
- [Sai+61] Saidel, A. N., Prokofjew, V. K. und Raiski, S. M. *Spektraltabellen*. Berlin: VEB Verlag Technik, 1961.
- [Sal+07] Saleh, B. E. A. und Teich, M. C. *Fundamentals of Photonics*. 2nd. New Jersey: Wiley, 2007. ISBN: 9780471358329.
- [Sca+07] Scarcelli, G. und Yun, S. H. „Confocal Brillouin microscopy for three-dimensional mechanical imaging“. In: *Nature photonics* 2 (2007), S. 39–43. DOI: 10.1038/nphoton.2007.250.
- [Sch+08] Schlup, P. u. a. „Tomographic retrieval of the polarization state of an ultrafast laser pulse“. In: *Optics letters* 33.3 (2008), S. 267–269. DOI: 10.1364/OL.33.000267.
- [Sch04] Schwartz, R. „Mikrophotolumineszenzspektroskopie an Halbleiterquantenpunkten“. Diplomarbeit. Universität Rostock, 2004.
- [Sch15] Schott. *Schott Optical Glass Data Sheets*. Mainz, 2015. URL: [http://www.schott.com/advanced\\_optics/english/download/schott-optical-glass-collection-datasheets-july-2015-eng.pdf](http://www.schott.com/advanced_optics/english/download/schott-optical-glass-collection-datasheets-july-2015-eng.pdf).
- [Sei+04] Seifert, B., Stolz, H. und Tasche, M. „Nontrivial ambiguities for blind frequency-resolved optical gating and the problem of uniqueness“. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 21.5 (2004), S. 1089–1097. DOI: 10.1364/JOSAB.21.001089.
- [Sei+09] Seifert, B. und Stolz, H. „A method for unique phase retrieval of ultrafast optical fields“. In: *Measurement Science and Technology* 20.1 (2009), S. 015303. DOI: 10.1088/0957-0233/20/1/015303.
- [Sei+14] Seifert, B. u. a. „Spectrographic phase-retrieval algorithm for femtosecond and attosecond pulses with frequency gaps“. In: *Optics Communications* 329 (2014), S. 69–75. DOI: 10.1016/j.optcom.2014.05.001.
- [Son+02] Song, I., Bae, J. und Yong, S. *Advanced Theory of Signal Detection*. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH, 2002. ISBN: 9783642077081.

- [Spe+14a] Sperlich, K., Seifert, B. und Stolz, H. „Ultrashort laser pulse retrieval using single-shot VAMPIRE“. In: *2014 IEEE Photonics Conference, IPC 2014*. San Diego, CA, 2014, S. 400–401. ISBN: 9781457715044. DOI: 10.1109/IPCon.2014.6995417.
- [Spe+14b] Sperlich, K. und Stolz, H. „Quantum efficiency measurements of (EM)CCD cameras: high spectral resolution and temperature dependence“. In: *Measurement Science and Technology* 25.1 (2014), S. 015502. DOI: 10.1088/0957-0233/25/1/015502.
- [Ste02] Steinmeyer, G. „A review of ultrafast optics and optoelectronics“. In: *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* 5 (2002), R1–R15. DOI: 10.1088/1464-4258/5/1/201.
- [Str+14] Strum, A. und Fenigstein, A. *High Performance Silicon Imaging*. Hrsg. von Daniel Durini. Woodhead Publishing, 2014. ISBN: 9780857095985. DOI: 10.1533/9780857097521.2.348.
- [Tay+96] Taylor, V. L. u. a. „Morphology of the normal human lens.“ In: *Investigative ophthalmology and visual science* 37.7 (1996), S. 1396–410.
- [Tc2] *1004 x 1002 PIXEL IMPACTRON CCD IMAGE SENSOR data sheet*. Techn. Ber. Dallas, TX: Texas Instruments.
- [The95] Theuwissen, A. J. P. *Solid State Imaging with Charge Coupled Devices*. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 1995. ISBN: 0306471191.
- [Tip+07] Tipler, P. A. und Mosca, G. *Physik - Für Wissenschaftler und Ingenieure*. 2. Auflage. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007. ISBN: 978-3-8274-1164-8.
- [Tre00] Trebino, R. *Frequency Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. Kluwer Academic Publishers, 2000. ISBN: 9781402070662.
- [Tre11] Trebino, R. „Measuring the seemingly immeasurable“. In: *Nature Photonics* 5.April (2011), S. 189–192. DOI: 10.1038/nphoton.2011.41.
- [Tru+10] Truong, N. X. u. a. „Optimal control of the strong-field ionization of silver clusters in helium droplets“. In: *Physical Review A* 81.1 (2010), S. 1–7. DOI: 10.1103/PhysRevA.81.013201.
- [Trä12] Träger, F. *Springer Handbook of Lasers and Optics*. Hrsg. von Frank Träger. 2nd. Bd. 72. Berlin: Springer-Verlag, 2012, S. 1332. ISBN: 9783642194085. DOI: 10.1007/978-3-642-19409-2.
- [Vos54] Vos, J. C. d. „A NEW DETERMINATION OF THE EMISSIVITY OF TUNGSTEN RIBBON“. In: *Physica* 20.7-12 (1954), S. 690–714. DOI: 10.1016/S0031-8914(54)80182-0.
- [Wei09] Weiner, A. M. *Ultrafast Optics*. New Jersey: Wiley, 2009. ISBN: 9780471415398.
- [Wei11] Weiner, A. M. „Ultrafast optical pulse shaping: A tutorial review“. In: *Optics Communications* 284.15 (2011), S. 3669–3692. DOI: 10.1016/j.optcom.2011.03.084.

- [Wiz79] Wiza, J. L. „Microchannel plate detectors“. In: *Nuclear Instruments and Methods* 162.1 (1979), S. 587–601. DOI: 10.1016/0029-554X(79)90734-1.
- [Won+12] Wong, T. C. u. a. „Simultaneously measuring two ultrashort laser pulses on a single-shot using double-blind frequency-resolved optical gating“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 29.6 (2012), S. 1237. DOI: 10.1364/JOSAB.29.001237.
- [Won+13] Wong, T. und Trebino, R. „Recent Developments in Experimental Techniques for Measuring Two Pulses Simultaneously“. In: *Applied Sciences* 3.1 (2013), S. 299–313. DOI: 10.3390/app3010299.
- [Xia+04] Xiao, S., Weiner, A. M. und Lin, C. „A dispersion law for virtually imaged phased-array spectral dispersers based on paraxial wave theory“. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 40.4 (2004), S. 420–426. DOI: 10.1109/JQE.2004.825210.
- [Xue11] Xue, Q. „Astigmatism-corrected Czerny-Turner imaging spectrometer for broadband spectral simultaneity“. In: *Applied optics* 50.10 (2011), S. 1338–44. DOI: 10.1364/AO.50.001338.
- [Yam+00] Yamakawa, K. und Barty, C. P. J. „Ultrafast, Ultrahigh-Peak, and High-Average Power Ti : Sapphire Laser System and Its Applications“. In: *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics* 6.4 (2000), S. 658–675. DOI: 10.1109/2944.883381.
- [Zew00] Zewail, A. H. „Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond“. In: *The Journal of Physical Chemistry A* 104.24 (2000), S. 5660–5694. DOI: 10.1021/jp001460h.
- [Zha+10] Zhang, D.-w. u. a. „Preparation and Spectral Characterization of Lumogen Coatings for UV-Responsive CCD Image Sensors“. In: *SPECTROSCOPY AND SPECTRAL ANALYSIS* 30.5 (2010), S. 1171–1174. DOI: 10.3964/j.issn.1000-0593(2010)05-1171-04.
- [Zhe+09] Zheng, Y.-f. u. a. „The Research of Ultraviolet Detection by using CCD“. In: *Proceedings of SPIE Vol. 7384*. Bd. 7384. 60878025. 2009, S. 738426 1–7. DOI: 10.1117/12.835900.



# A | Anhang

## A.1 Quanteneffizienzmessung an EMCCD-Kameras

In Abschnitt 4.4 wurde bereits ein universeller Messplatz zur Bestimmung der Quanteneffizienz sowie ausgewählte Messungen vorgestellt. Der Vollständigkeit halber soll hier noch die Messung der Andor DU888BB gezeigt werden (siehe Abbildung A.1). Dabei handelt es sich um zwei verschiedene Messungen an derselben Kamera, jedoch mit unterschiedlichen spektralen Breiten nach dem Monochromator, wodurch eine Messung Etaloning zeigt (Kreuze) und die andere nicht (Quadrate). Die Messung, die Etaloning zeigt, wurde an einem neueren verbesserten Messplatz durchgeführt. Die Andor DU888BB hat die höchste Quanteneffizienz im gewünschten Spektralbereich (350 nm bis 500 nm) der getesteten Kameras und zeigt dabei keine Oszillationen in der Quanteneffizienz im unteren Wellenlängenbereich. Sie wurde in dem in dieser Arbeit vorgestellten VAMPIRE als Detektor für das Summenfrequenzsignal verwendet.

Zusätzlich ist die Quanteneffizienzmessung der Andor DU888BV in Abbildung A.2 vorgestellt. Es handelt sich dabei um den gleichen Sensor wie bei der DU888BB. Aber dieser wurde nicht für blaues Licht, sondern für nahinfrarotes Licht entspiegelt. Bei 350 nm resultiert dies in einer Änderung der Quanteneffizienz um etwa 25 Prozentpunkte. Die Entspiegelung des Sensors hat demnach großen Einfluss auf den Verlauf der spektralen Quanteneffizienz. Des weiteren werden hier die normierten Spektren der verwendeten Lichtquellen dargestellt (siehe Abbildung A.3). Der gesamte Spektralbereich von 350 nm bis 1080 nm wird lückenlos abgedeckt. Bei jedem Messpunkt wird nur eine LED betrieben und mit dem Monochromator ein kleiner Bereich von weniger als 1 nm aus ihrem Spektrum herausgeschnitten. So kann die hohe spektrale Auflösung erzielt werden. Nebeneffekte durch höhere Beugungsordnungen des Monochromators bei breitbandigen Lichtquellen, wie beispielsweise Glühlampen, werden vermieden.

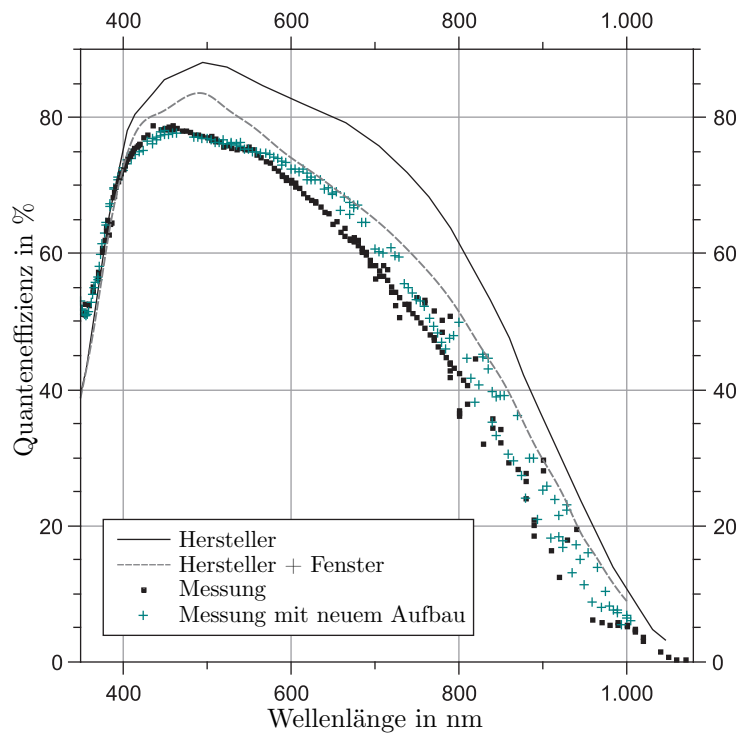


Abbildung A.1: Quanteneffizienz der Andor DU888BB:

Verschiedene Spaltbreiten des Monochromators sind für die unterschiedliche Ausprägung des Etalonings verantwortlich.  
(Herstellerangabe bei  $T = -20^\circ\text{C}$  aus [Andh])

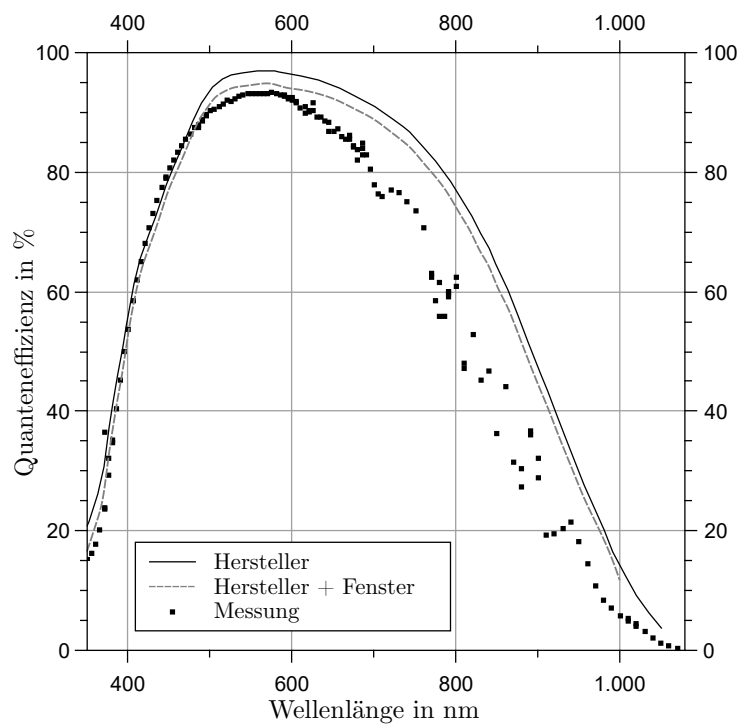


Abbildung A.2: Quanteneffizienz der Andor DU888BV

(Herstellerangabe bei  $T = -20^\circ\text{C}$  aus [Andh])

Kamera Kurzbezeichnung	DU885	DU897UVB	DU897UVB2	DU897BB	DU888BV	DU888BB
Sensortyp	FI	back-illuminated				
CCD-Sensor	TI TC285	e2v CCD97-00			e2v CCD201-20	
Auflösung	1004 x 1002	512 x 512			1024 x 1024	
Pixelgröße in $\mu\text{m}^2$	8 x 8	16 x 16			13 x 13	
AR-Beschichtung		Lumogen <sup>®</sup> UV conversion		AR blue	AR red	AR blue
Modellbezeichnung	DU-885K- CS0-#VP	DU-897D-CS0-UVB		DU-897D- CSB-#BB	DU-888E- C00-BV	DU-888D- C0B-#BB
Seriennummer	X-4285	X-5046	X-4793	X-5528	X-5051	X-6014
Controller	CCI-23					CCI-24
Controller Seriennummer	C-4169	C-4920	C-4663	C-5419	C-4923	C-5932
Messtemperatur	−80 °C	−60 °C				
Konversionsfaktor in e/counts	5,5 [Anda]	9,6 [Andc]	9,61 [Andb]	9,72 [Ande]	3,7 [Andd]	9,83 [Andf]
vertikale Verschiebezeit in $\mu\text{s}$	1,92005	1,7			3,3	
horizontale Ausleserate	35 MHz	1 MHz				
A/D Auflösung	14 bit					
EM Verstärkung	off					
Verstärkertyp	EM	conventional				
Vorverstärkung	1x					

EM = electron multiplication

FI = front-illuminated

Tabelle A.1: Übersicht über die verwendeten Kurzbezeichnungen der Andor Kameras, die tatsächlichen Modellbezeichnungen, wesentlichen technischen Daten und die Kameraeinstellungen, soweit sie für die Quanteneffizienzmessung relevant sind.

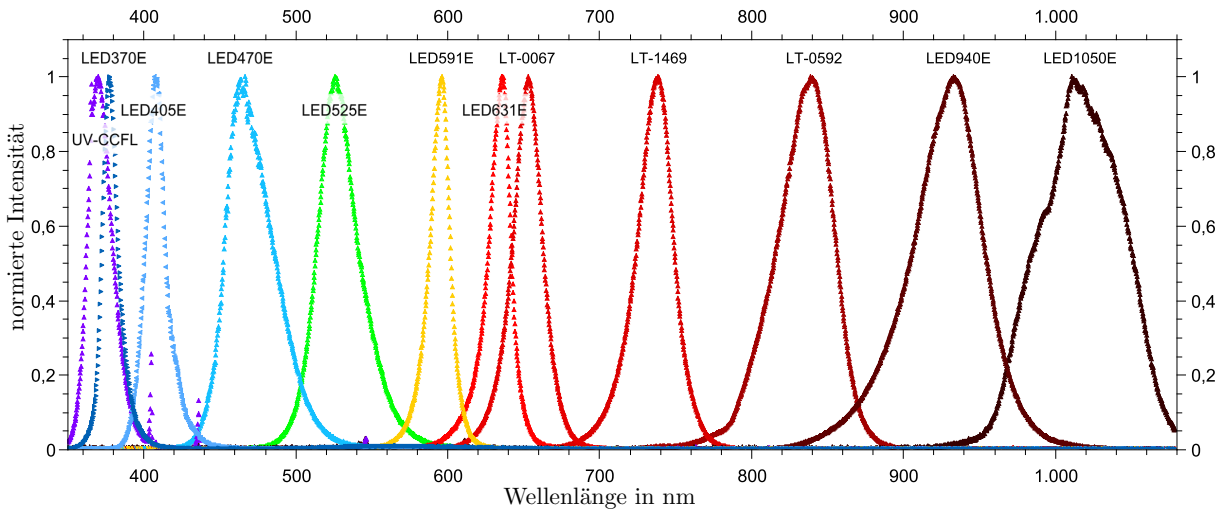


Abbildung A.3: Normierte Spektren der in Kapitel 4.4 verwendeten Lichtquellen

## A.2 VIPA-Spektrometer

VIPAs (Virtually Imaged Phased Array) sind interferometrische, hochdispersive, optische Elemente. Dabei handelt es sich meistens um planparallele Glasplatten, deren eine Seite verspiegelt ist und ein entspiegeltes Eintrittsfenster aufweist und deren andere Seite teilverspiegelt ist ( $R < 100\%$ ). Sogenannte „air spaced“ VIPAs sind ebenfalls gebräuchlich. Sie bestehen aus einem Paar Spiegeln, wovon einer optisch leicht durchlässig ist. Das Funktionsprinzip ist in Abbildung A.4 gezeigt. Einfallendes Licht wird mittels einer Zylinderlinse zu einer linienförmigen Intensitäts-

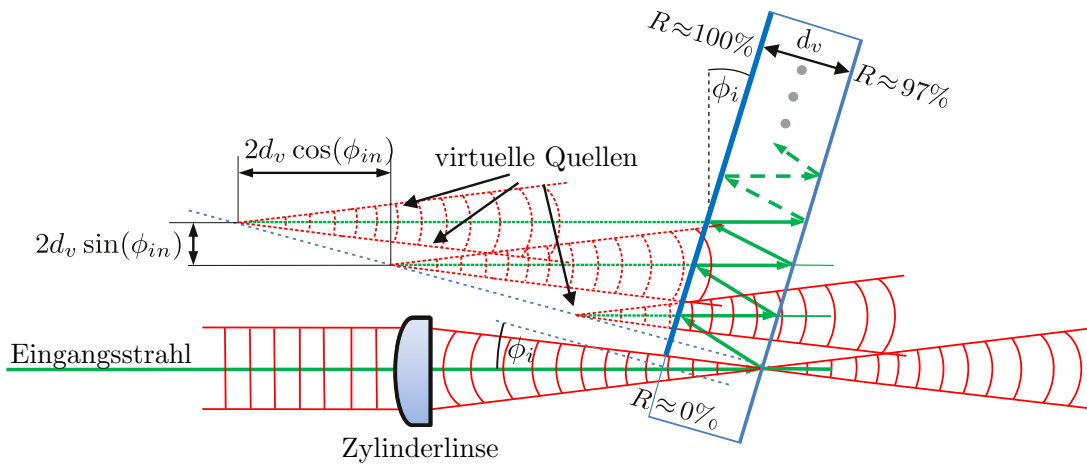


Abbildung A.4: Funktionsprinzip eines VIPAs. Einfallendes Licht wird mittels Zylinderlinse auf die teildurchlässige Seite des VIPAs fokussiert. Infolge der Rückreflexe entstehen immer schwächere virtuelle Quellen in immer gleichen Abständen.

(Grafik mit freundlicher Genehmigung von Dr. Stephan Reiß)

verteilung in das schräg gestellte VIPA fokussiert. Der Fokus liegt dabei auf der teildurchlässigen

Oberfläche. Ein kleiner Anteil des Lichtes wird transmittiert, der Großteil jedoch zurück reflektiert. Dieser Anteil wird von der Spiegelbeschichtung wieder reflektiert, so dass dieser mit einem gewissen Versatz wieder Licht aus dem VIPA austritt. Es scheint, als käme dieser Anteil von einem entfernteren Punkt. Mit jedem Umlauf wird ein weiterer Teil aus dem VIPA ausgekoppelt, der wieder von einem anderen Punkt zu kommen scheint.

Ausreichende Kohärenz vorausgesetzt, können diese Wellen interferieren. Beispielhaft ist dies für 6 virtuelle Quellen mit  $\lambda_1$  und 3 weitere virtuelle Quellen mit  $\lambda_2$  und einem Gesamtabstand von 20 virtuellen Quellen in Abbildung A.5 dargestellt. Aus der Grafik wird ersichtlich, dass Wellen gleicher Wellenlänge in verschiedenen, diskreten Winkeln konstruktiv oder destruktiv interferieren. Aufgrund der Vielzahl der virtuellen Quellen handelt es sich jeweils um parallele Strahlenbündel. Das rot eingezeichnete Licht mit  $\lambda_2$  interferiert unter anderen Winkeln konstruktiv. Diese parallelen Strahlenbündel können mit einer sphärischen Linse zu Punkten auf einem Detektor fokussiert werden. Licht unterschiedlicher Wellenlänge wird so an unterschiedlichen Punkten auf dem Detektor abgebildet. Ein solches Spektrometer ist sehr effizient und hochauflösend, jedoch kann man aus Abbildung A.5 bereits erahnen, dass der freie spektrale Bereich klein ist. Für die Messung breiter Spektren, wie beispielsweise denen von ultrakurzen Laserpulsen, sind diese Spektrometer nicht geeignet. Für die kleinen Frequenzversätze bei der Brillouinspektroskopie eignen sie sich dagegen sehr gut. Allerdings bereitet dabei dort das im zurückgestreuten Anteil enthaltene Rayleigh-Signal Probleme. Ist es zu breit, können die Brillouin-Signale nicht mehr aufgelöst werden. Darüber hinaus kommt es vor, dass der Sensor übersteuert und die Brillouin-Signale darin unter gehen. Ein Lösungsansatz ist es, anstelle des Detektors ein weiteres, um  $90^\circ$  gedrehtes, VIPA-Spektrometer anzuordnen [Sca+07]. Auf diese Weise werden die Signale nicht mehr nur nebeneinander auf dem sich anschließenden Detektor abgebildet. Vielmehr bekommt jede Wellenlänge zusätzlich eine weitere Ortskomponente. Die Signale lassen sich somit besser voneinander trennen. Die Berechnung der Intensitätsverteilung auf dem Detektor eines auf nur einem VIPA basierenden Spektrometer in Abhängigkeit von den Parametern wie Brennweite der Zylinderlinse, Dicke oder Winkel des VIPAs etc. wird in [Xia+04] behandelt. Eine Theorie zu einem auf zwei VIPAs basierenden Spektrometer ist bislang nicht bekannt und so ist es nicht möglich, die spektrale Auflösung oder den freien spektralen Bereich eines beliebigen Tandem-VIPA-Spektrometers im Vorfeld zu berechnen. Ebenso war nicht bekannt, ob und wie ein VIPA-Spektrometer simuliert werden kann. Daher wurde in einem ersten Schritt versucht, ein Einzel-VIPA-Spektrometer zu simulieren. Dazu wurde die Software FRED der Firma Photon Engineering verwendet. Hier sei darauf hingewiesen, dass ein reines Raytracing nicht zielführend ist, da erst durch die Phase des Signals Interferenz ermöglicht wird. Es ist also erforderlich, ein elektrisches Feld propagieren zu lassen. Jedoch wäre FRED kein Simulationsprogramm mehr, wenn es analytisch das elektrische Feld berechnen könnte. Allerdings lässt sich eine kohärente Lichtquelle definieren. Damit ist es möglich eine kohärente Feld Synthese („Coherent Field Synthesis“) durchzuführen. Ein reines Raytracing ist in Abbildung A.6 (links) gezeigt. Es eignet sich lediglich, um den Strahlenverlauf zu visualisieren. Insbesondere am Eintrittsfenster ist dies interessant, da man schnell mit ver-

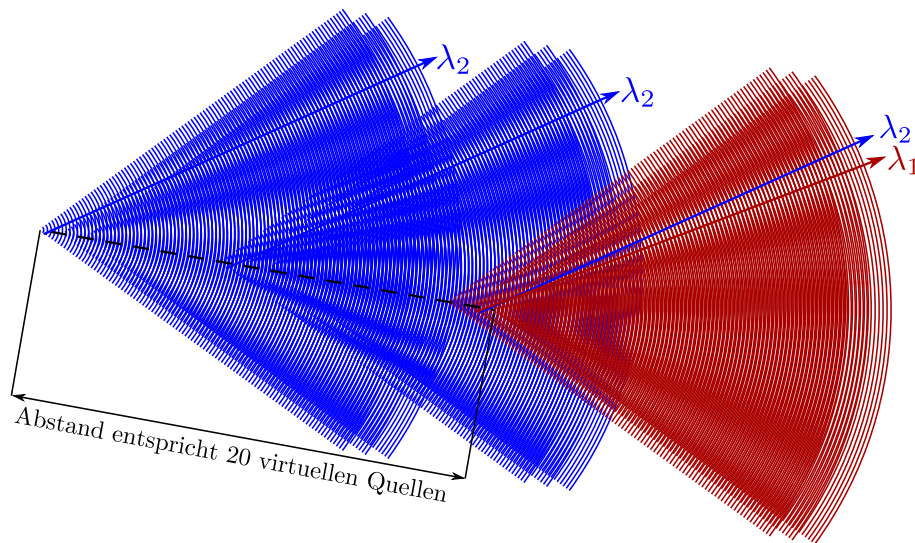


Abbildung A.5: Abbildung von 9 virtuellen Quellen zur Verdeutlichung der Interferenzen und Entstehung der parallelen Strahlenbündel für verschiedene Wellenlängen.

schiedenen Winkeln und Höhen probieren kann. Dabei zeigt sich, wie leicht es passiert, dass ein Teil des eintreffenden Lichtes nicht das Fenster trifft oder aus dem Fenster wieder heraus reflektiert wird. Darüber hinaus liefert das Raytracing keinen nennenswerten Nutzen. Das Ergebnis einer kohärenten Feld Synthese ist in Abbildung A.6 (rechts) dargestellt. Es zeigt die Falschfarbendarstellung der Intensitätsverteilung auf dem Detektor. Achtung, die Achsen sind sehr unterschiedlich skaliert (siehe Bildunterschrift). Um die Simulation zu verifizieren hat Dr. Stephan Reiß ein VIPA-Spektrometer aufgebaut. Die Messergebnisse wurden mit der entsprechenden Simulation und der Theorie aus [Xia+04] verglichen. Abbildung A.7 stellt Theorie, Simulation und Experiment in einem Diagramm gegenüber. Die Designparameter können dieser Abbildung entnommen werden. Offenbar stimmen die Positionen der Intensitätsspitzen auf dem Sensor sehr gut überein. Die Einhüllenden weichen leicht voneinander ab. Wegen der guten Übereinstimmung ist anzunehmen, dass sich auch ein Tandem-VIPA-Spektrometer zuverlässig simulieren lässt. Allerdings ist der Rechenaufwand um mehrere Größenordnungen höher. Erfreulicherweise war das nicht notwendig, da wir innerhalb der Arbeitsgruppe einen sehr schmalbandigen Absorptionsfilter entwickeln und patentieren konnten [Rei+13]. Dieser Filter ermöglicht es den Rayleighanteil aus dem zurückgestreuten Licht auszublenden, was das Tandem-VIPA-Spektrometer überflüssig gemacht hat.

Die Berechnung der Intensitätsverteilung eines Einzel-VIPAs lief in Mathematica nicht mit zufriedenstellender Geschwindigkeit, weshalb das in Abbildung A.7 gezeigte Programm nur schwerfällig bedienbar war. Deshalb und aus Gründen der Portabilität wurde ein separates Programm in C++ mit Qt als grafischer Oberfläche geschrieben. Dieses reagiert auch auf älteren Rechner noch sehr zügig und hat sich in den letzten Jahren als hilfreich erwiesen. Es wurde unter <http://tinyurl.com/VIPA-Calculator> zur freien Nutzung bereit gestellt.

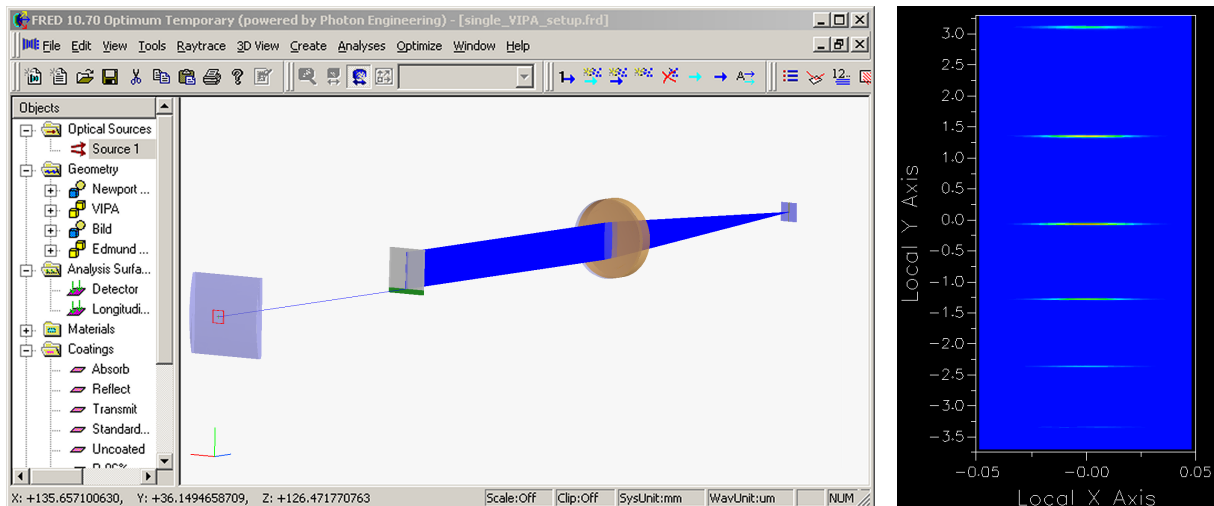


Abbildung A.6: Bildschirmfoto des Programms FRED von Photon Engineering bei der Simulation des VIPA-Spektrometers. Reines Raytracing (links) ist lediglich für die Einkopplung in das VIPA hilfreich. Die Intensität am Detektor kann erst aus der kohärenten Feld Synthese gewonnen werden (rechts). Achtung: Die x-Achse geht von -0,05 mm bis 0,05 mm während die y-Achse von -3,75 mm bis 3,25 mm geht.

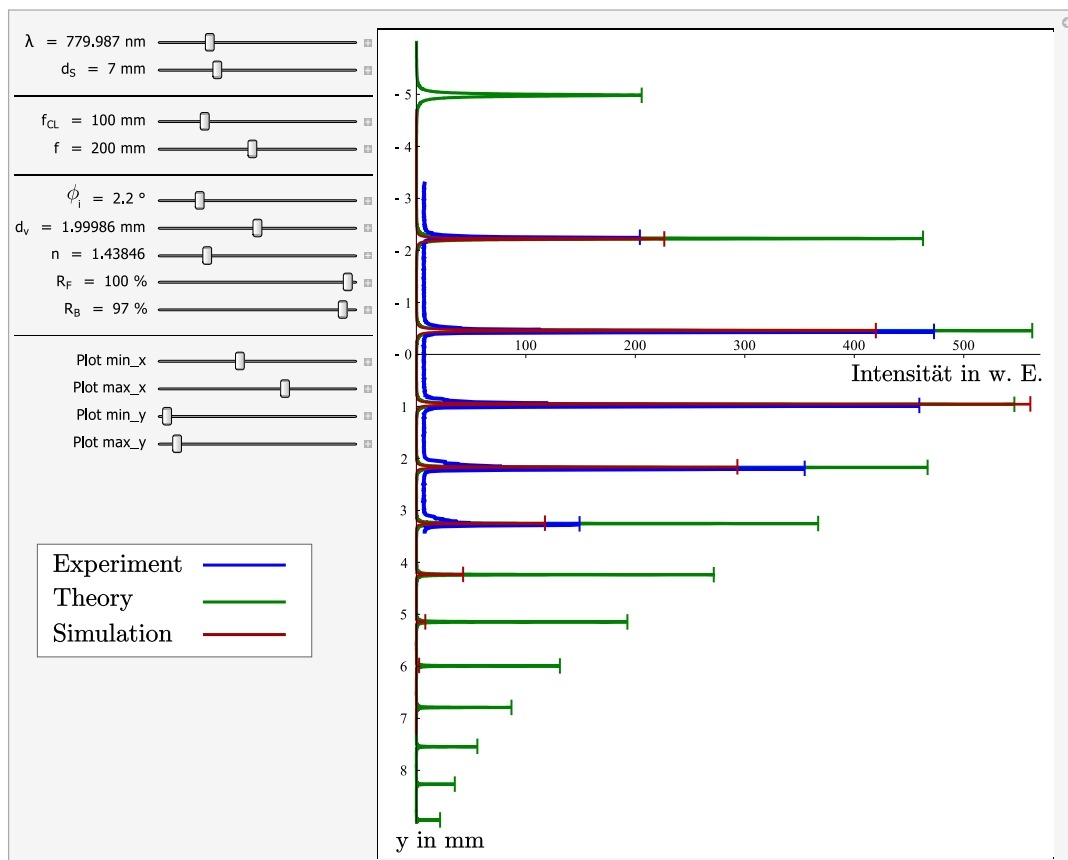


Abbildung A.7: Theorie [Xia+04], Experiment und Simulation im direkten Vergleich. Die Parameter können der Grafik entnommen werden.

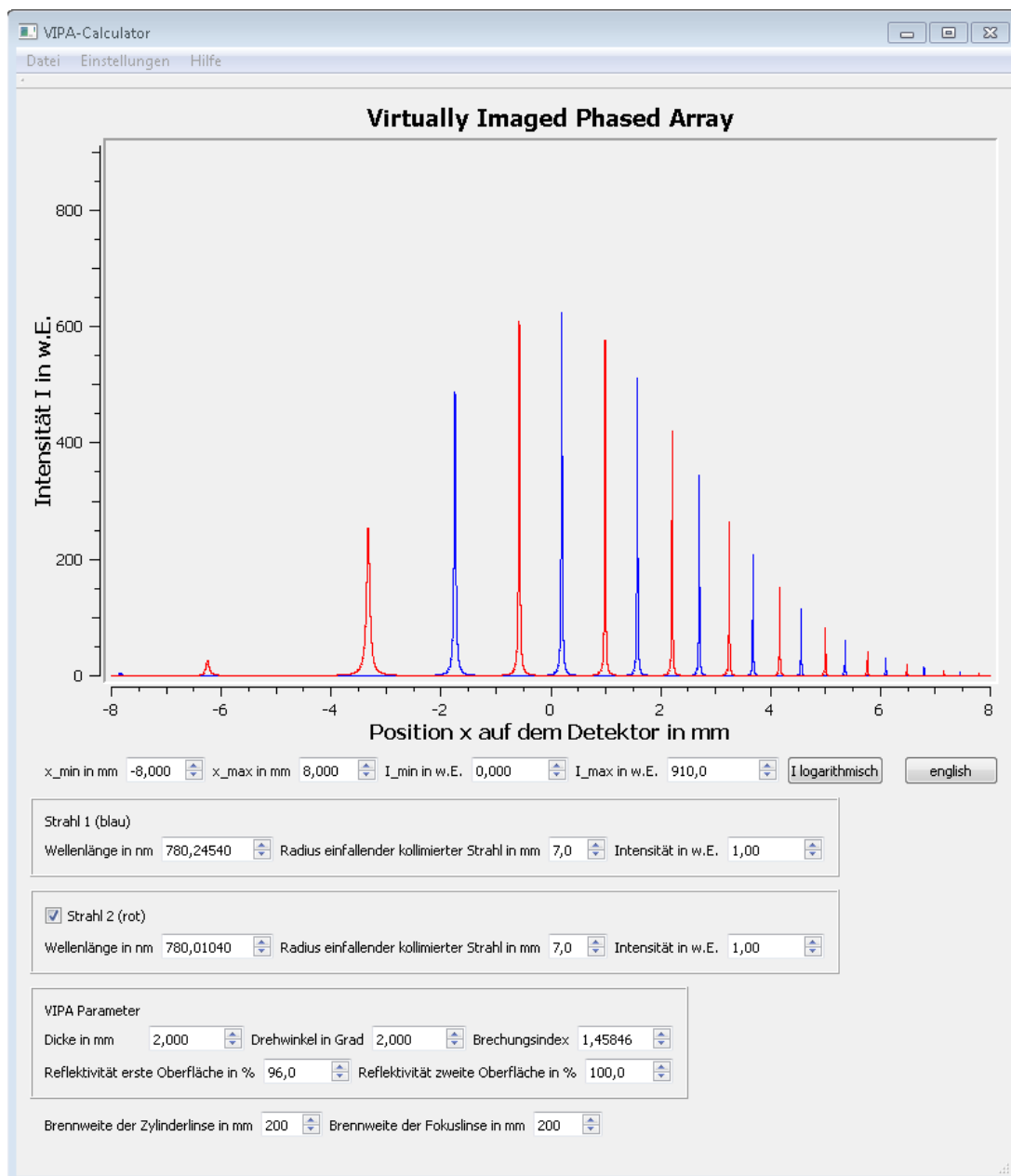


Abbildung A.8: VIPA-Calculator bei der Benutzung mit zwei verschiedenen Wellenlängen

Ein in C++ geschriebenes Programm zur Berechnung der Intensität auf dem Detektor eines VIPA-Spektrometers in Abhängigkeit der Design- und Strahlparameter. Die Theorie ist [Xia+04] zu finden.

Download unter: <http://tinyurl.com/VIPA-Calculator>

# B | Liste der Veröffentlichungen

## B.1 Publikationen

- [P1] K. Sperlich, P. Ludwig, A. Filinov, M. Bonitz, H. Stolz, D. Hommel und A. Gust, „Electric Field-Induced Exciton Localization in Quantum Wells“, *phys. stat. sol. (c)* **6**, No. 2, 551-555 (2009)  
<http://dx.doi.org/10.1002/pssc.200880364>
- [P2] S. Reiß, K. Sperlich, M. Hovakimyan, O. Stachs, R. Guthoff und H. Stolz, „Ex vivo measurement of postmortem tissue changes in the crystalline lens by Brillouin spectroscopy and confocal reflection microscopy“, *IEEE Transactions on Biomedical Engineering* **59**, No. 8, 2348-2354 (2012)  
<http://dx.doi.org/10.1109/TBME.2012.2204054>
- [P3] K. Sperlich und H. Stolz, „Quantum efficiency measurements of (EM)CCD cameras: high spectral resolution and temperature dependence“, *IEEE Measurement Science & Technology* **25**, No. 1, 015502 (10pp) (2014)  
<http://dx.doi.org/10.1088/0957-0233/25/1/015502>
- [P4] B. Seifert, S. Wallentowitz, U. Volkmann, A. Hause, K. Sperlich und H. Stolz, „Spectrographic phase-retrieval algorithm for femtosecond and attosecond pulses with frequency gaps“, *Optics Communications* **329**, 69-75 (2014)  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.optcom.2014.05.001>
- [P5] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Phase and intensity retrieval of ultrashort laser pulses with single-shot VAMPIRE“, *Nonlinear Photonics Proceedings* (2014), ISBN: 978-155752820-9  
<http://dx.doi.org/10.1364/BGPP.2014.JM5A.37>
- [P6] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Ultrashort laser pulse retrieval using single-shot VAMPIRE“, *IEEE Photonics Proceedings* (2014), ISBN: 978-145771504-4  
<http://dx.doi.org/10.1109/IPCon.2014.6995417>

- [P7] S. Reiß, K. Sperlich, M. Kunert, R.F. Guthoff, H. Stolz, A. Jünemann, O. Stachs, „Visualisierung der spektralen Transmissionseigenschaft von IOL“, *Der Augenspiegel* **62**; No. 2 (2016)
- [P8] S. Reiß, K. Sperlich, M. Kunert, R. Guthoff, H. Stolz, A. Jünemann und O. Stachs, „Visualization of IOL Material-Induced Changes in Retinal Color Stimulus“, *Journal of Ophthalmology* **2016**, 4680621 (8pp) (2016)  
<http://dx.doi.org/10.1155/2016/4680621>
- [P9] B. Seifert, R. Wheatley, R. Rojas-Aedo, S. Wallentowitz, U. Volkmann, K. Sperlich, H. Stolz, „Unambiguous ultrashort pulse reconstruction from double spectrograms alone“, *Journal of Optics*, **18**, 105502 (11pp) (2016)  
<http://dx.doi.org/10.1088/2040-8978/18/10/105502>

## B.2 Patente

- [Pat1] S. Reiß, H. Stolz, K. Sperlich, O. Stachs, R. F. Guthoff, Patent DE102013211854, „Verfahren und Vorrichtung zur Bestimmung einer spektralen Änderung von gestreutem Licht“, Einreichung 2013, Offenlegung 2014, Erteilung 2016
- [Pat2] H. Stolz, S. Reiß, K. Sperlich, O. Stachs, R. F. Guthoff, Patent DE102015202772, „Vorrichtung und Verfahren zur Bestimmung mindestens einer mechanischen Eigenschaft eines Untersuchungsobjekts“, Einreichung 2015, Offenlegung 2016
- [Pat3] H. Stolz, S. Bohn, S. Reiß, K. Sperlich, O. Stachs, R. F. Guthoff, Patenteinreichung, „Vorrichtung und Verfahren zur hochaufgelösten Gewebeuntersuchung auf subzellulärer Ebene - insbesondere der Kornea“, im Einreichungsprozess

## B.3 Tagungsbeiträge

- [T1] P. Ludwig, A. V. Filinov, K. Balzer, M. Bonitz, K. Sperlich und H. Stolz, „Strongly correlated spatially indirect electron-hole states in quantum wells“, NOEKS 9, Klink, Mai 2008
- [T2] K. Sperlich, P. Ludwig, A. V. Filinov, M. Bonitz, H. Stolz, D. Hommel und A. Gust, „Electric field-induced exciton localization in quantum wells“, DPG Frühjahrstagung, Dresden, März 2009
- [T3] B. Seifert, K. Sperlich und H. Stolz, „Unique phase retrieval of ultrafast optical fields by double-blind correlation techniques“, CLEO Europe-EQEC, München, Juni 2009

- [T4] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Unique phase retrieval of ultrafast optical fields“, DPG Frühjahrstagung, Hannover, März 2010
- [T5] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Unique single shot phase retrieval of ultrafast optical fields“, CERF, Rostock, September 2011
- [T6] K. Sperlich, S. Reiß und H. Stolz, „Comprehensive study on Virtually Imaged Phased Arrays - experiment, theory and optical simulation“, DPG Frühjahrstagung, Stuttgart, März 2012
- [T7] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Unique single shot pulse retrieval“, F<sup>2</sup> - Forschung trifft Forschung, Rostock, November 2013
- [T8] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Phase and intensity retrieval of ultrashort laser pulses with single-shot VAMPIRE“, Nonlinear Photonics (NLP), Barcelona, Juli 2014
- [T9] K. Sperlich, B. Seifert und H. Stolz, „Ultrashort laser pulse retrieval using single-shot VAMPIRE“, IEEE Photonics Conference (IPC), San Diego, Oktober 2014
- [T10] S. Reiß, K. Sperlich, M. Kunert, H. Stolz, R. F. Guthoff, A. Jünemann und O. Stachs, „Transmittance influence of vision aids and intraocular implants on the retinal color stimulus“, ARVO, Seattle, Mai 2016
- [T11] K. Sperlich, S. Reiß, H. Stolz, R. F. Guthoff, A. Jünemann und O. Stachs, „Influence of age depending elastic properties of the cornea on applanation tonometry“, ARVO, Seattle, Mai 2016
- [T12] O. Stachs, K. Sperlich, S. Reiß, H. Stolz, R. F. Guthoff und A. Jünemann, „Der Einfluss des cornealen Elastizitätsmoduls auf die Ergebnisse der Applanationstonometrie“, 66. Tagung der Vereinigung Norddeutscher Augenärzte, Bad Segeberg, Mai 2016
- [T13] K. Sperlich, S. Reiß, H. Stolz, R. F. Guthoff, A. Jünemann und O. Stachs, „Der Einfluss des altersabhängigen Elastizitätsmoduls der Cornea auf die Ergebnisse in der Applanationstonometrie“, DOG, Berlin, September 2016



# C | Danksagung

Zum Gelingen dieser Arbeit haben viele Leute beigetragen - direkt oder indirekt. Dafür möchte ich mich an dieser Stelle herzlich bedanken.

Prof. Stolz möchte ich nicht nur für die Vergabe des Promotionsthemas und die Betreuung der letzten Jahre bedanken, sondern auch besonders für die Möglichkeit meinen Weg nicht immer geradlinig gehen zu müssen. Nur so konnte ich mit Kollegen und Freunden gemeinsam auch an anderen Projekten arbeiten. Dies war mir stets eine inspirierende Abwechslung.

Aus anfänglichen Diskussionen mit Dr. Stephan Reiß über die Simulation eines VIPA-Spektrometers kam ich so in eine bestehende Kooperation zwischen Prof. Guthoff und Prof. Stachs aus der Universitätsaugenklinik Rostock und Prof. Stolz und Dr. Reiß aus „unserem“ Physikinstitut. Für die gute Zusammenarbeit bedanke ich mich und freue mich auf die vor uns liegenden Jahre. Prof. Seifert von der Fakultät für Physik der Pontificia Universidad Católica de Chile danke ich für die lehrreichen Abende, aber auch für seine Unterstützung in Bezug auf den VAMPIRE-Quellcode.

Ich möchte mich auch bei Prof. Lochbrunner bedanken. Er hat mich zusammen mit dem VAMPIRE für einige Wochen in seinem Labor aufgenommen und mir so die Möglichkeit gegeben an einem verstärkten fs-Lasersystem zu messen.

Dr. Steffen Fiedler danke ich für die tatkräftige Unterstützung beim Schneiden der Edelstahlfolie für den spannungsfreien Kristallhalter des 28  $\mu\text{m}$  dünnen BIBO-Kristalls.

Die SLV Mecklenburg-Vorpommern GmbH hat die Spiegel für den variablen Festspalt bearbeitet. Danke Rigo und Paul!

An dieser Stelle dürfen natürlich die Mitarbeiter der feinmechanischen Werkstatt des Instituts nicht unerwähnt bleiben! Vielen Dank für die Umsetzung unserer Wünsche.

Bei meiner Arbeitsgruppe kann ich mich ebenfalls nur bedanken. Es hat mir immer Spaß mit euch gemacht. Rico, danke, dass du dich um „alles“ kümmerst. Ohne dich würde einiges wohl einfach nicht laufen. Didi und Kasi - das war eine schöne Zeit mit euch! Stephan, mehr Spaß kann eine Zusammenarbeit nicht machen! Danke.

Der DFG bin ich für die Unterstützung im Rahmen eines Forschungsprojektes dankbar.

Besonders danken möchte ich meiner gesamten Familie für den Rückhalt, die Unterstützung und das Vertrauen in mich. Aber vor allem danke ich meiner lieben Frau Elisa und meinen großartigen Kindern Enna und Ole. Vielen Dank für eure Geduld und euer Verständnis.



# D | Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Promotionsarbeit selbständig angefertigt und ohne fremde Hilfe verfasst habe sowie keine außer den angegebenen Hilfsmitteln und Quellen dazu verwendet und die den benutzten Werken inhaltlich und wörtlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Rostock im Dezember 2016

Karsten Sperlich