

## F 72

# Charakterisierung von Femtosekunden-Laserpulsen mittels Korrelationstechniken

Letzte Änderung: Priv.-Doz. Dr. Andreas-Neil Unterreiner, 26.10.2017

Durch Messung einer Intensitätsautokorrelation 2. Ordnung soll die Pulsdauer von Femtosekunden-Laserpulsen bestimmt werden. Zusätzlich soll ein Emissionsspektrum aufgenommen werden, mit dessen Hilfe die spektrale Bandbreite zu berechnen ist. Zur Charakterisierung der Femtosekunden-Laserpulse ist anschließend mithilfe der ermittelten Werte zu prüfen, wie nahe sich die Laserpulse am so genannten ‚Fourier-Limit‘ (Zeit-Bandbreitenlimitierung) befinden.



**Das Labor darf nicht ohne Sicherheitsbelehrung betreten werden!**

## 1. Theoretische Grundlagen

### Wichtige Stichworte:

Autokorrelation, Fourier-Limit (Zeit-Bandbreiten- bzw. Transformlimitierung), Heisenberg'sche Unschärferelation, Fourier-Transformation (Faltung, Wiener-Chintschin(Khinchin)-Theorem), Laser und Lasermoden, nichtlineare Optik (Frequenzverdopplung, Selbstphasenmodulation, Dispersion, „Chirp“), Femtochemie, Eyring-Gleichung.

### 1.1 Vorübungen

Bitte zum Platzkolloquium beantworten und später im Protokoll darstellen.

1. Berechnen Sie den Weg, den das Licht im Vakuum innerhalb von 30 Femtosekunden ( $1 \text{ fs} \hat{=} 10^{-15} \text{ s}$ ) zurücklegt.
2. Berechnen Sie die Lichtintensität in  $\text{W}/\text{cm}^2$ , die in das Auge eines Betrachters eintritt, für a) eine Glühbirne mit 60 W Lichtleistung, welche im Abstand von 1 m gleichmäßig in alle Raumrichtungen strahle sowie b) für einen mit einer Leistung von 1 W kontinuierlich arbeitenden Laser, der mit voller Leistung auf das Auge trifft. Der Radius des Laserstrahls betrage 1 mm, die Öffnung der Pupille des Auges sei 2 mm.

- Nehmen Sie an, ein ultrakurzer Laserpuls habe eine Dauer von 10 fs. Berechnen Sie unter Annahme eines transformlimitierten Laserpulses dessen spektrale Bandbreite  $\Delta\nu$  (Pulsform: Gauß,  $\text{sech}^2(x)$ ).

## 1.2 Einleitung

Mit modernen modengekoppelten Lasersystemen lassen sich Pulsdauern von wenigen Femtosekunden ( $1 \text{ fs} \hat{=} 10^{-15} \text{ s}$ ) erzielen.[1] Sie werden zum Beispiel in der hochpräzisen Zeitmessung (Metrologie), zur Materialverarbeitung sowie in vielen Bereichen der Medizin (Augenheilkunde, Krebstherapie, Zahnmedizin) eingesetzt. Der Hauptgrund hierfür liegt darin, dass sie sehr hohe Intensitäten erreichen und gleichzeitig nur geringfügig Wärme übertragen.[2]

In der Grundlagenforschung im naturwissenschaftlichen Bereich werden sie als Hilfsmittel verwendet, um ultraschnelle (elektronische) Veränderungen angeregter Atome und Moleküle zu beobachten, aber auch um ultrakurze Prozesse zu initiieren. Da sich typische Zeitskalen von Schwingungsbewegungen im fs-Bereich befinden, lassen sich unter anderem Bindungsbrüche in Echtzeit untersuchen. Hierzu zwei Beispiele:

- Abschätzen von Molekülbewegungen:

Typische Schwingungswellenzahlen liegen im Bereich von  $500 - 3500 \text{ cm}^{-1}$ . Für  $1000 \text{ cm}^{-1}$  ergibt sich eine Periodendauer von:

$$\nu = \tilde{\nu} \cdot c = 1000 \text{ cm}^{-1} \cdot 3 \cdot \frac{10^{10} \text{ cm}}{\text{s}} = 3 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1} \hat{=} t = 33 \text{ fs}$$

Rotationskonstanten bewegen sich in der Größenordnung von  $0,1 - 10 \text{ cm}^{-1}$  und damit im Pikosekundenbereich ( $1 \text{ ps} \hat{=} 10^{-12} \text{ s}$ ).

- Reaktionskinetik/-dynamik:

Nach der Eyring-Gleichung [3] berechnet sich die Geschwindigkeitskonstante  $k$  gemäß

$$k = \frac{k_B T}{h} \frac{Q^\ddagger}{Q_A Q_B} e^{-\frac{E_0^\ddagger}{k_B T}} \quad (1)$$

für eine Reaktion  $A + B \rightarrow X^\ddagger \rightarrow C$ .

$X^\ddagger$ : Übergangszustand,  $k_B$ : Boltzmann-Konstante,  $T$ : Temperatur,  $h$ : Planck-Konstante,  $Q$ : Zustandssumme,  $E_0^\ddagger$ : Aktivierungsbarriere.

In dieser Gleichung besitzt das Verhältnis  $\frac{k_B T}{h}$  die Einheit einer Frequenz in der Größenordnung  $10^{13} \text{ s}^{-1}$  bei Zimmertemperatur.

Diese beiden Beispiele zeigen: Will man chemische Reaktionen zeitaufgelöst verfolgen, benötigt man eine sehr hohe Zeitauflösung. Dieser Forschungsbereich hat in den letzten 30 Jahren viele Impulse erhalten und kann mit dem Schlagwort „Femtochemie“ gut beschrieben werden. Für wichtige Pionierarbeiten auf diesem Gebiet wurden dabei die Arbeiten von A. Zewail von der Pasadena-Universität 1999 mit dem Nobelpreis ausgezeichnet.[4]

Die derzeit verfügbaren, schnellsten elektronischen Messmethoden zur Charakterisierung solcher ultrakurzer Pulse verfügen über eine zeitliche Auflösung im ps-Bereich. Deshalb muss man sich indirekter Methoden bedienen, um fs-Pulse zu charakterisieren. Eine solche Methode ist die Bestimmung des Zeit-Bandbreitenprodukts, bei dem die Pulsdauer über eine Intensitäts-Autokorrelation 2. Ordnung in einem nichtlinearen Kristall ( $\beta$ -Bariumborat) bestimmt wird und die spektrale Bandbreite über die Aufnahme eines Emissionsspektrums mit einem geeigneten Spektrometers.

### 1.3 Eigenschaften ultrakurzer Pulse

Auf Grund der Heisenberg'schen Unschärferelation müssen Pulse, die in der Zeitdomäne „scharf“ (d.h. kurz) sind, in der Frequenzdomäne „unscharf“ sein:

$$\Delta\nu\Delta\tau \geq K \quad (2)$$

$\Delta\nu$  - spektrale Bandbreite

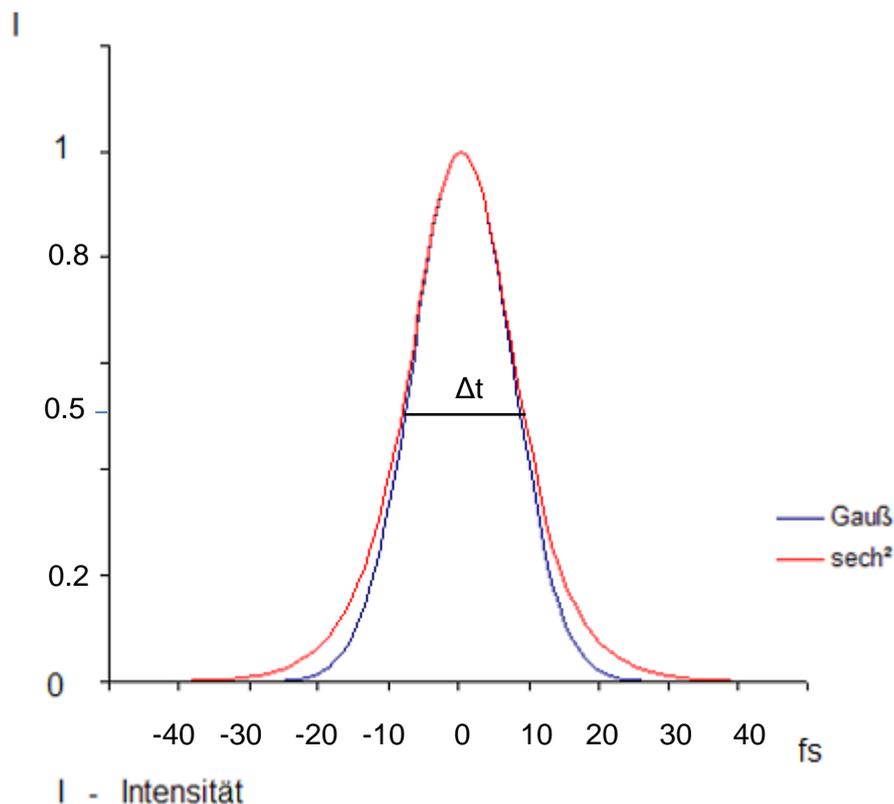
$\Delta\tau$  - Pulsdauer

K ist eine von der Pulsform abhängige Konstante und wird als Zeit-Bandbreiten-Produkt bezeichnet. Falls in Gleichung 2 ein Gleichheitszeichen steht, spricht man davon, dass der Puls bandbreitenlimitiert (transformlimitiert) ist bzw. sich in seinem Fourier-Limit befindet. In diesem Fall werden die Pulse in Abhängigkeit der Pulsform (als Beispiele für Pulsformen s. Abbildung 1) durch bestimmte Werte für das Zeit-Bandbreitenprodukt charakterisiert. Das bedeutet, dass durch einfache Messung eines Emissionsspektrums zwar auf die Pulsdauer geschlossen werden kann, dieser Wert jedoch nicht der tatsächlichen Pulsdauer entsprechen muss. Einer der Hauptgründe ist, dass fs-Laserpulse in der Regel Dispersion (durch z. B. Laserspiegel, Luft, allgemein durch dispersive Medien) erfahren, wodurch sich die tatsächliche Pulsdauer vom Fourier-Limit unterscheidet, das Emissionsspektrum aber nahezu unverändert bleiben würde. Ein Problem bei der Bestimmung der Pulsdauer ist, dass die Pulsformen normalerweise nicht bekannt sind und eine entsprechende Annahme getroffen werden muss. Dafür werden häufig Gauß-Funktionen bzw. die quadrierte Sekans Hyperbolicus-Funktion ( $\text{sech}^2(x)$ ) verwendet. Charakteristische Werte für K sind in Tabelle 1 aufgeführt.[2]

Pulsform	K
Gauß	0,441
$\text{sech}^2(x)$	0,315

Tabelle 1

Hierbei gilt: 
$$\text{sech}(x) = \frac{2}{e^x + e^{-x}} = \frac{1}{\cosh(x)}$$



**Abbildung 1: Vergleich normierter Gauß- und  $\text{sech}^2$ -Funktionen.**

### 1.3.1 Bestimmung der Pulsdauer $\Delta\tau$

Mittels einer Autokorrelationsmessung höherer Ordnung (in der Regel 2. Ordnung) lässt sich die Pulsdauer bestimmen. Nachdem man die Messwerte mit Gauß- bzw.  $\text{sech}^2$ -Profilen genähert hat, bestimmt man daraus zunächst die sogenannte volle Halbwertsbreite (FWHM: Full Width at Half Maximum)  $\Delta t$ . Da die Autokorrelationsmessung auf der Faltung zweier Pulse beruht, muss man  $\Delta t$  wieder entfalten (s. a. Kapitel 1.5) und erhält so die Pulsdauer  $\Delta\tau$ .

### 1.3.2 Bestimmung der spektralen Bandbreite $\Delta\nu$

Die spektrale Bandbreite  $\Delta\nu$  wird aus dem gemessenen Emissionsspektrum über die volle Halbwertsbreite  $\Delta\lambda$  (FWHM) gemäß Gleichung 3 berechnet. Dabei entspricht  $\lambda_{\max}$  dem Argumentwert, bei dem das Maximum angenommen wird.  $\Delta\lambda$  entspricht der Differenz der beiden Argumentwerte, bei denen die Funktion gerade die Hälfte des Maximalwertes annimmt.

$$\Delta\nu = c \left( \frac{1}{\lambda_{\max} - \frac{1}{2}\Delta\lambda} - \frac{1}{\lambda_{\max} + \frac{1}{2}\Delta\lambda} \right) \quad (3)$$

### 1.3.3 Äußere Einflüsse auf den Laserpuls

Zeitliches und spektrales Verhalten werden durch Fourier-Transformation ineinander überführt. Daraus ergibt sich, dass der Einfluss der optischen Komponenten auf das Pulsspektrum immer auch die Pulsdauer beeinflusst. Daher müssen die spektralen Eigenschaften sämtlicher Komponenten genau betrachtet werden. Im Allgemeinen versucht man äußere Störungen möglichst gering zu halten. Wie bereits oben erwähnt, geht ein weiterer wichtiger Einfluss auf die Pulsdauer von der Dispersion aus. Diese resultiert aus der Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex. Die unterschiedlichen spektralen Komponenten laufen beim Durchtritt durch ein Medium aufgrund ihrer unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeit zeitlich auseinander. Das Ergebnis ist eine so genannte Frequenzmodulation (engl. „Chirp“).

---

## Exkurs

### 1.4 Erzeugung von ultrakurzen Pulsen – Modenkopplung

Im Gegensatz zum kontinuierlichen Laser, der in der Regel nur bei einer Frequenz emittiert, kann man durch Modenkopplung die Erzeugung periodischer Laserpulse (Pulszüge) mit einem breiten Frequenzspektrum erreichen. Es gilt: Je größer die Anzahl der Moden, desto kürzer wird der Puls und umso breiter ist das Frequenzspektrum. Mit zunehmender Zahl koppelnder Moden steigt auch die Intensität pro Puls. Der Einfachheit halber sollen zunächst nur zwei Moden betrachtet werden. In der Realität werden jedoch mehr Moden (bis zu  $10^5$ ) verwendet (gekoppelt). Mathematisch lassen sich die elektromagnetischen Felder zweier Moden folgendermaßen beschreiben

$$\text{Mode 1 : } e_1 = E_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1(t))$$

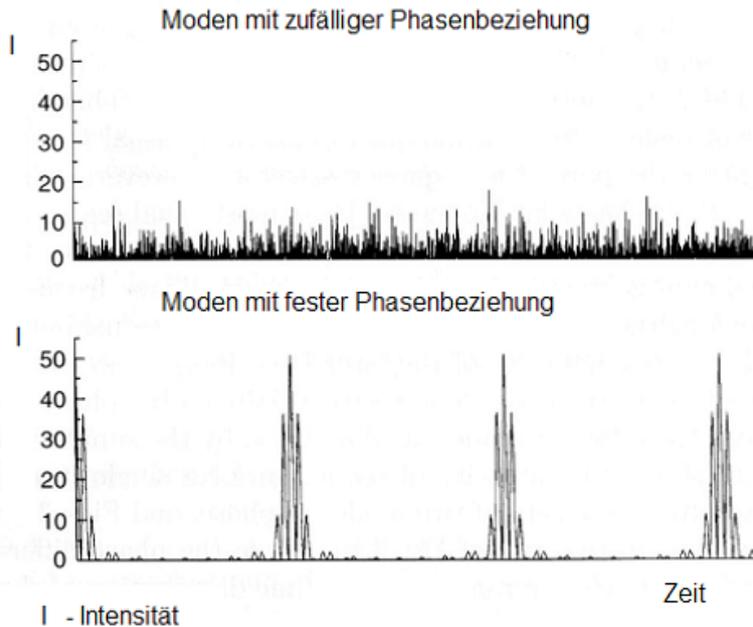
$$\text{Mode 2 : } e_2 = E_2 \cos(\omega_2 t + \varphi_2(t))$$

Dabei gilt:  $\omega_1 \neq \omega_2$ ,  $\omega_1, \omega_2$  Winkelgeschwindigkeit,  $E_1, E_2$  maximale Amplitude,  $\varphi_1(t), \varphi_2(t)$  Phasenverschiebung.

Gewöhnlich ist in Lasern die Phasendifferenz zwischen den Moden zufälliger Natur und zeigt eine zeitabhängige Intensitätsverteilung wie in Abbildung 2 (oben: willkürlich fluktuierende Phasen, unten: 8 gekoppelte Moden) zu sehen ist. Dies ist immer der Fall, wenn die Longitudinalmoden eines Lasers nicht gekoppelt sind, d. h. die Phasen  $\varphi_i$  nicht voneinander abhängen. Beim Modenkoppeln schwingen die Moden für  $\varphi_1(t) = \varphi_2(t)$  anfänglich in gleicher Phase, so dass sie konstruktiv interferieren. Mit der Zeit laufen sie aufgrund ihrer unterschiedlichen Frequenzen ( $\omega_1, \omega_2$ ) auseinander und interferieren destruktiv. Nach einer gewissen Zeit stellt sich dann wieder konstruktive Interferenz ein und so weiter. Auf die beschriebene Weise ergibt sich so eine periodische Verteilung der Intensität. Die Periodizität der Pulse ist dabei durch die Repetitionsrate des Lasers charakterisiert und ergibt sich aus:

$$\nu = \frac{c}{2nL} \quad (4)$$

c – Lichtgeschwindigkeit  
 L – Länge des Resonators  
 n – Brechungsindex



**Abbildung 2: Zeitabhängige Intensitätsverteilung bei zufälliger und fester Phasenbeziehung der Lasermoden (hier 8 Moden, entnommen aus [2]).**

Um Modenkopplung zu erreichen, benötigt man in der Regel nichtlineare Verfahren, z. B. die Selbstfokussierung durch den Kerr-Linsen-Effekt in einem mit Titan-Ionen dotierten Saphir-Kristall ( $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ ) [2]. Danach ist der Brechungsindex  $n$  von der Intensität (und zwar in der Zeit- und Ortsdomäne) abhängig:

$$n = n_0 + n_2 I$$

Ist der Kerr-Koeffizient  $n_2$  positiv, so findet Selbstfokussierung statt. Die stärkste Brechung im Medium erfolgt in Richtung der Strahlachse, was dem Prinzip einer Kerr-Linse entspricht. Dabei ist die Wirkung ähnlich einer Sammellinse. Die Intensität wird durch einen Anregungslaser hochgehalten, der auf den  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ -Kristall trifft. Es gilt: Je größer die Intensität, desto größer die Selbstfokussierung.

Beim  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ -Kristall handelt es sich um eine Saphir-Matrix, bei der einige  $\text{Al}^{3+}$ - durch  $\text{Ti}^{3+}$ -Ionen ersetzt werden, sodass ca. 0,1% der Masse der Matrix mit  $\text{Ti}^{3+}$ -Ionen dotiert ist. Absorptionsspektren dieser Kristalle zeigen eine breite Bande im blau-grünen Bereich des sichtbaren Spektrums. Der Ionen-Radius von  $\text{Ti}^{3+}$  ist 26% größer im Vergleich zu  $\text{Al}^{3+}$ -Ionen, sodass die lokale Umgebung von  $\text{Ti}^{3+}$  gestört wird und sich ein starkes lokales elektrisches Feld aufbaut. Somit führt die Absorption zu Übergängen zwischen dem  ${}^2T_g$ -Grundzustand und dem  ${}^2E_g$ -angeregten Zustand. Der angeregte Zustand ist dabei durch das lokale elektrische Feld in zwei Niveaus aufgespalten. Weiterhin sind Grund- und angeregte Zustände mit den Schwingungsmoden der Saphir-Matrix gekoppelt, sodass es zu einer starken Verbreiterung der Emissionsbande kommt; so kann beispielsweise bei einem Emissionsmaximum von 800 nm die spektrale Verbreiterung durchaus 200 nm und

mehr betragen. Diese große Bandbreite ermöglicht es, äußerst kurze Laserpulse zu erzeugen (vgl. Gleichung (1)), sodass man heute mit einem  $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ -Kristall Pulse bis in den Bereich von 10 fs und darunter erzeugen kann [2].

---

## 1.5 Indirekte Messmethoden - Korrelationsfunktionen

### 1.5.1 Indirekte Messmethoden

Wie bereits erwähnt, bedarf es für die Messung solcher ultrakurzer Pulse indirekter Messmethoden. Eine zentrale Rolle spielen in diesem Zusammenhang Korrelationsmessungen. Dabei werden zwei Pulse in einem bestimmten Medium zur Überlappung gebracht und eine Antwort des Mediums gemessen. Unterscheiden sich die beiden Pulse in ihren Eigenschaften (Pulsdauer, Spektrum), so spricht man von Kreuzkorrelation. Handelt es sich hingegen um zwei identische Kopien desselben Pulses, so spricht man von Autokorrelation. Die Korrelationsmessung beruht darauf, dass man mithilfe nichtlinearer optischer Effekte (hier: Frequenzverdopplung) die Korrelationsfunktion in Abhängigkeit der zeitlichen Überlappung der Pulse misst [5].

Zur Charakterisierung von Pulsen im fs-Bereich verwendet man häufig die Autokorrelation 2. Ordnung. Machen Sie sich daher mit den Grundlagen der Frequenzverdopplung (SHG: second harmonic generation, nichtlineare Optik) vertraut. Ein wichtiges Element ist ein nichtlinearer Kristall, wie zum Beispiel  $\beta$ -Bariumborat (BBO), in welchem zwei zuvor am Strahlteiler getrennte Pulse unter einem kleinen Winkel im BBO wieder zusammengeführt werden und es zur SHG kommt. Wenn die Pulse im BBO zeitlich und räumlich überlappen, kann eine 2.-Ordnungs-Autokorrelationsfunktion aufgenommen werden.

Frequenzverdopplung kann man an der Farbänderung des einstrahlenden roten Lichts erkennen. Hält man ein Papier hinter den Kristall, sieht man zwei blau-rote Punkte. Korrelieren die beiden Strahlen, so erscheint zusätzlich ein blauer Punkt in der Mitte. Dieser mittlere blaue Strahl wird vom Detektor aufgefangen, seine Intensität ist abhängig von der Verzögerungsstrecke, also von der zeitlichen Verzögerung der einen Kopie des Strahls bezüglich der anderen. Die Intensität des blauen Lichts nimmt ab, je größer die zeitliche Verzögerung der beiden Teilstrahlen zueinander ist. Die größte Intensität erhält man, wenn die Wegstrecken beider Verzögerungseinheiten gleich lang sind.

Die Intensitäten werden in Abhängigkeit der Verzögerungsstrecke detektiert und zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses in einem Lock-In-Verstärker verarbeitet. Dieser verbessert das periodische Eingangssignal (gegeben durch den Chopper/Lichtzerhacker), indem man ein Referenzsignal dazu mischt. Auf diese Weise erhöht man die Amplitude des Signals. Abhängig von der Phasenverschiebung des Eingangs- und Referenzsignals oszilliert der angezeigte Wert für die Intensität am Lock-In-Verstärker.

## 1.5.2 Korrelationsfunktionen und Berechnung der Intensitätskorrelation 2. Ordnung

Es gilt für die Intensitätskorrelation 2. Ordnung:

$$I_1(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (5)$$

$I_1$  steht für die Intensität der Korrelation. Hierbei handelt es sich um eine Faltung zweier Laserpulse mit identischer Intensität  $I$ .  $\tau$  ist die zeitliche Verzögerung zwischen den Pulsen. Diese Formulierung ist prinzipiell auf Auto- und Kreuzkorrelationen anwendbar. Für die Intensität eines Lichtfeldes gilt:

$$I(t) = |E(t)|^2 \quad (6)$$

Das bedeutet insbesondere, dass die Intensitätsautokorrelation keine Phaseninformation enthält. Wollte man die Phase bestimmen, bräuchte man daher andere Verfahren (z. B. die interferometrische Autokorrelationsmessung). Beachtet werden muss auch, dass man durch die Autokorrelation 2. Ordnung einen Wert erhält, der aus der Faltung zweier Pulse entstanden ist. Um diese wieder zu ‚entfalten‘, um letztlich die gesuchte Pulsdauer zu ermitteln, muss durch den Entfaltungsfaktor dividiert werden. Dieser ist wiederum von der postulierten Pulsform abhängig.

Pulsform	Entfaltungsfaktor
Gauß	$\sqrt{2}$
sech <sup>2</sup> (x)	1,55

Tabelle 2

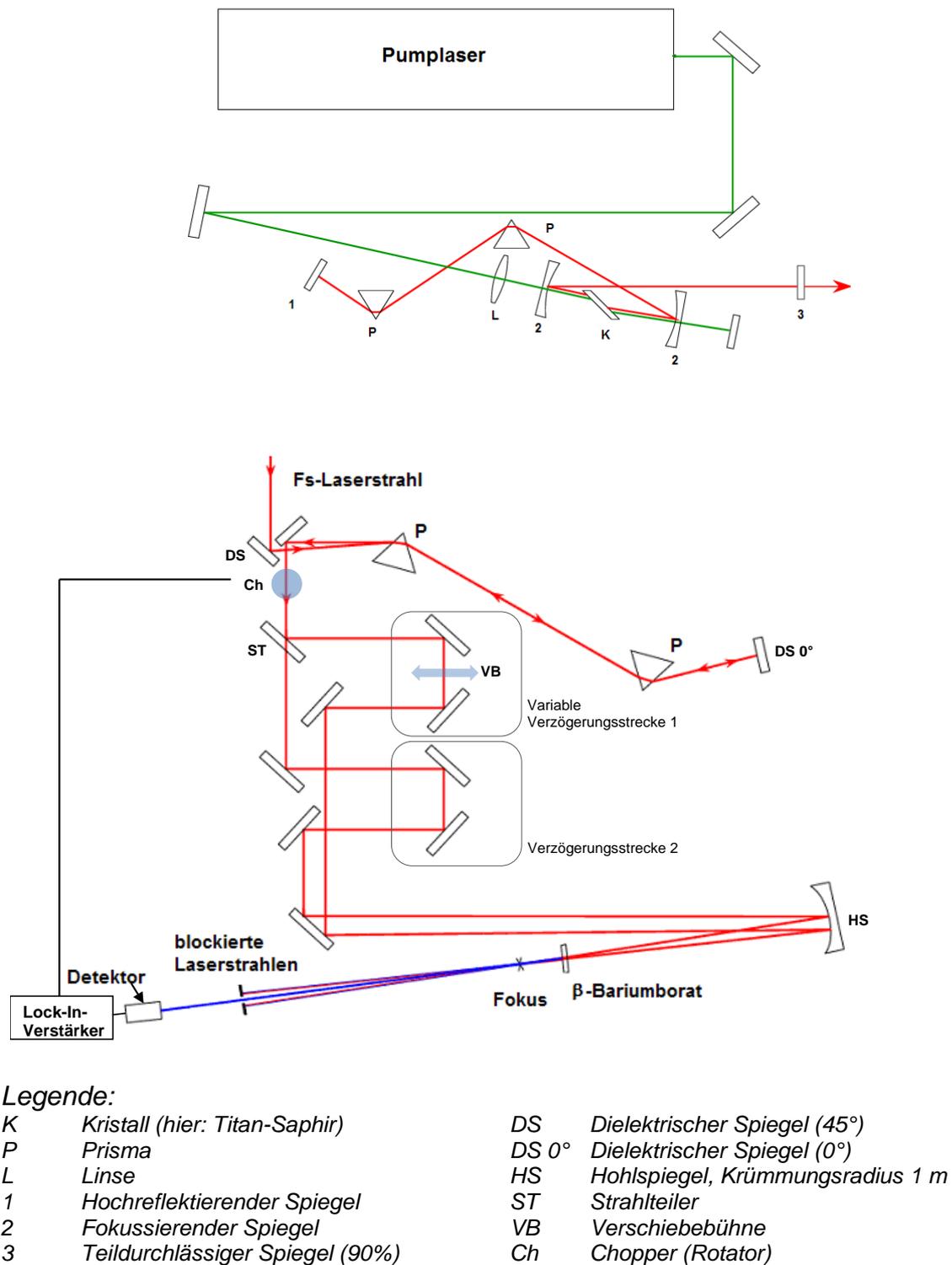
Weitere Autokorrelationsmethoden können in der Chemie z. B. bei der Partikelgrößenbestimmung (vgl. F68: Dynamische Lichtstreuung) angewandt werden.

Autokorrelationsfunktionen 2. Ordnung sind intrinsisch symmetrisch, sodass auch keine Aussagen über Pulsformen gemacht werden können. Diese müssen daher angenommen werden. Will man Pulsformen von fs-Lasern rekonstruieren, bedarf es deutlich verfeinerter Methoden, wie z. B. FROG (frequency-resolved optical gating).

Bei der Berechnung von Korrelationsfunktionen spielt das Wiener-Chintschin-Theorem eine wichtige Rolle. Mit dessen Hilfe lässt sich ein Spektrum durch eine Autokorrelationsfunktion beschreiben. Um eine Korrelation (hier: Intensitätskorrelation) zweier kontinuierlicher Funktionen (hier: Intensität zweier identischer Kopien des Laserstrahls) zu bestimmen, werden die Funktionen gefaltet und ihr zeitliches Mittel berechnet. Mittels Fourier-Transformation (FT) kann man dann die Korrelation als Funktion der Frequenz angeben. Wichtig für den vorliegenden Fall ist, dass man bei Messung einer Autokorrelationsfunktion 1. Ordnung (d. h. ohne Nichtlinearität) lediglich das über FT verknüpfte Emissionsspektrum des fs-Lasers erhalten würde. Somit würde man zweimal die gleiche Eigenschaft (hier:  $\Delta\nu$ ) bestimmen und die Bestimmung des Zeit-Bandbreitenprodukts nach Gleichung (2) wäre nur unter der Annahme eines Fourier-limitierten (d. h. ohne „Chirp“) Pulses

möglich. Es soll aber genau diese Abweichung vom theoretischen Limit bestimmt werden.

## 1.6 Aufbau des Lasers – Überblick über Strahlengänge



## 2. Durchführung

### 2.1 Sicherheitsbelehrungen

Zu Beginn des Praktikumsversuches findet eine allgemeine **Sicherheitsbelehrung** durch den zuständigen Betreuer statt. **In deren Anschluss** wird das Labor **gemeinsam** betreten.

Die Kenntnis der in der allgemeinen Sicherheitsbelehrung angesprochenen Schutzmaßnahmen zu Beginn des Praktikums wird vorausgesetzt.



### Arbeitsschutzvorschrift: Umgang mit Lasern

In diesem Versuch wird mit einem Lasersystem – bestehend aus einem Pump laser und einem fs-Oszillator – der **Gefahrenklasse 4** gearbeitet. Direkte sowie indirekte oder diffus reflektierte Strahlen stellen sowohl für das Auge als auch für die Haut eine erhebliche Gefährdung dar. Sie können zu **ernsthaften, irreparablen Schäden** führen. Es muss daran gedacht werden, dass sowohl mit **sichtbarer als auch mit unsichtbarer Strahlung** gearbeitet wird. Eine genaue Einhaltung der Sicherheitsvorschriften sowie eine exakte Kenntnis der Strahlengänge sind daher unbedingt notwendig.

#### Sicherheitsvorschriften:

- Das **Labor** darf **nicht ohne eine Sicherheitsbelehrung** durch den Betreuer betreten werden.
- Das **Lasersystem** darf nur **nach einer Sicherheitsbelehrung** durch den Betreuer benutzt werden. Arbeiten am Lasersystem sind nicht erlaubt.
- **Niemals direkt in den Laserstrahl schauen.**
- Experimente müssen so durchgeführt werden, dass sich der Laserstrahl nicht auf Augenhöhe befindet.
- Wenn möglich und sinnvoll, geeignete Schutzbrille tragen.
- Reflektierende Gegenstände (Uhr, Armband, Gürtel, ...) sollten verdeckt oder gar nicht getragen werden.
- Der Aufbau der Apparatur darf nicht eigenmächtig verändert werden.
- Das Labor ist auch ein **chemisches** Labor. Die entsprechenden Sicherheitsvorschriften sind einzuhalten.

### Weitere Sicherheitshinweise:

- Der Versuch wird im Dunkeln durchgeführt: Bei Unwohlsein das Labor verlassen und den Betreuer informieren.
- Es können jederzeit Pausen gemacht werden – abhängig von der persönlichen Gewöhnung an die Dunkelheit.
- Nicht unnötig lange in die Reflexe des Laserstrahls schauen, da hierbei die Gefahr einer (kurzzeitigen) Übersättigung des Auges besteht.



## 2.2 Aufnahme eines Emissionsspektrums

Gemeinsam mit dem Betreuer wird ein Emissionsspektrum aufgenommen. Hierbei ist darauf zu achten, dass der Detektor des Spektrometers nicht übersättigt wird (d. h. nicht mehr als 4000 Einheiten Signalintensität). Zunächst sollen das Dunkelspektrum (Spektrum bei geblocktem Strahl) sowie das Emissionsspektrum des Ti:Saphir-Kristalls aufgenommen werden. Die Messung muss gespeichert werden, wobei der Dateiname sowohl Auskunft über die Gruppennummer als auch über das Datum des Versuchstages enthalten sollte. Die entsprechenden Dateien können **nach** dem Versuch per E-Mail oder mittels eines mitzubringenden USB-Sticks übertragen werden. Dies gilt auch für die Daten aus 2.4b.

## 2.3 Bestimmung der Repetitionsrate

Die Wiederholrate der Laserpulse wird am Oszilloskop bestimmt. Hierzu muss die Taste ‚cursor and measure‘ gedrückt werden. ‚Measure‘ muss hierbei auf Parameter gestellt werden. Der Modus (Mode) muss auf Zeit (time) eingestellt sein. Jetzt lässt sich die Periode direkt am Bildschirm ablesen. Evtl. muss der ermittelte Wert noch durch die Anzahl der auf dem Bildschirm sichtbaren Perioden geteilt werden, bevor die tatsächliche Repetitionsrate (in Hz) bestimmt werden kann.

## 2.4 Durchführung der Autokorrelationsmessungen

Vor Beginn der ersten Autokorrelationsmessung müssen Sie sich mit dem Ablesen der Verschiebebühne vertraut machen. Hierbei wird unter Anleitung des Betreuers mit einer Taschenlampe im Dunkeln gearbeitet. Achten Sie auf eine von oben kommende, senkrechte Handführung, um nicht versehentlich Strahlengänge zu berühren bzw. zu unterbrechen. Achten Sie zudem darauf, dass Sie keine unbedachten Bewegungen machen und dass Sie über genug Abstand zum Rotator (Chopper) verfügen. Die Spannung, die am Lock-In-Verstärker angezeigt wird, kann nun in Abhängigkeit der Auslenkung der Verschiebebühne ermittelt werden.

**Achtung:** Der zu Beginn gemessene maximale Spannungswert sollte sich während der gesamten Messung um maximal 10% verändern. Bei größeren Änderungen muss der Betreuer informiert werden, um eine Nachjustierung des Aufbaus vorzunehmen.

- a) Manuelle Datenerfassung: Zu Beginn wird durch Verstellen der Mikrometerschraube an der Verschiebebühne der Maximalwert der Spannung gesucht und die Verschiebebühne so eingestellt, dass dieser angezeigt wird. Der Spannungswert (in mV) sowie die Auslenkung (in  $\mu\text{m}$ ) werden notiert. Anschließend wird die Auslenkung der Mikrometerschraube um jeweils  $1\ \mu\text{m}$  ( $\cong 6,7\ \text{fs}$ ) erhöht und der zugehörige Spannungswert abgelesen. Dies wird so lange fortgeführt, bis sich der Wert nicht mehr signifikant ändert (+ zusätzlich 5 weitere Datenpunkte im Abstand von jeweils  $1\ \mu\text{m}$ ). Daraufhin wird erneut der Maximalwert eingestellt (und geprüft) und in analoger Weise die Auslenkung der Mikrometerschraube um jeweils  $1\ \mu\text{m}$  verringert, bis sich auch hier der Spannungswert nicht mehr signifikant ändert (+ zusätzlich 5 weitere Datenpunkte im Abstand von jeweils  $1\ \mu\text{m}$ ). Danach wird die gesamte Messung wiederholt.

**Am Ende der Messungen die Mikrometerschraube wieder so einstellen, dass der maximale Spannungswert angezeigt wird!**

Es sollte darauf geachtet werden, dass die Messungen relativ schnell erfolgen, da sich die Stabilität des Lasers mit der Zeit verändern kann. Falls die Werte stark schwanken, muss ein vernünftiger Mittelwert gewählt werden.

- b) Computergesteuerte Datenerfassung: Mithilfe eines Messprogramms in Labview soll ebenfalls eine Autokorrelationsmessung durchgeführt werden. Dazu wird zunächst kontrolliert, ob der maximale Spannungswert im Messprogramm richtig ausgelesen wird und mögliche alte Daten aus dem Speicher gelöscht (Reiter *„measurement“*: *„Reset tab“*). Anschließend wird über den Reiter *„Axis 1“*: *„relative step size“* die Bühne um  $25\ \mu\text{m}$  (25.00) in die negative Richtung (*„backward direction“*) bewegt (*„move relative“*) und dann die Schrittweite von  $1\ \mu\text{m}$  (*„backward direction“* ausschalten) eingestellt. Als Gesamtzahl der Messpunkte gibt man zweckmäßigerweise 50 vor (Reiter *„measurement“*: *„number of steps“*) und startet die Messung (*„start“*). Durch Drücken auf *„Stage 3 on X(2)“* kann die Aufnahme der Autokorrelationsmessung direkt verfolgt werden. Die Messung ist beendet, sobald die Zahl der Messschritte im Programm 51 (*„step“*) erreicht hat. Die Messung muss dann abgespeichert (*„save file“*), die Verschiebebühne wieder zurückgefahren (*„Axis 1“*: *„backward direction“*, *„relative step size: 25“*, *„move relative“*) und überprüft werden, ob der maximale Spannungswert erreicht wurde.

**Der Laser wird gemeinsam mit dem Betreuer ausgeschaltet!**

### 3. Auswertung

#### 3.1

Skizzieren Sie eigenständig den Aufbau des Femtosekunden-Laseroszillators und den Verlauf der Strahlengänge des Autokorrelatoraufbaus.

### 3.2

Ermitteln Sie aus der bestimmten Repetitionsrate die Länge des Resonators.

### 3.3

Daten aus den Autokorrelationsmessungen: Geben Sie Ihre manuell gemessenen Werte in zwei Tabellen an (eine mit der Einheit  $\{\mu\text{m}\}$  und eine mit der Einheit  $\{\text{fs}\}$  als jeweilige relative Verzögerung, d. h. der maximale Intensitätswert wird der relativen Verzögerungszeit von 0 fs zugeordnet).

Stellen Sie Ihre Messwerte (2x manuell und 1x computergesteuert) mit einem Programm Ihrer Wahl graphisch dar und ermitteln Sie daraus die volle Halbwertsbreite (FWHM). Sollten Sie die FWHM mithilfe einer Gauß-Funktion bestimmen, achten Sie bitte darauf, dass je nach Normierung dieser Funktion der erhaltene Wert noch um den Faktor  $\sqrt{2\ln(2)}$  korrigiert werden muss. Aus der FWHM wird anschließend unter Verwendung der Entfaltungsfaktoren aus Tabelle 2 die Pulsdauer  $\Delta\tau$  unter der Annahme folgender Pulsformen bestimmt: a) Gauß, b)  $\text{sech}^2$ .

### 3.4

Erstellen Sie zwei Schaubilder des Emissionsspektrums mit der Abszisse Wellenlänge (in nm) bzw. Energie (in eV). Aus diesen Spektren ist das Maximum sowie die Halbwertsbreite  $\Delta\lambda$  wie folgt zu bestimmen:

- a) per Hand (graphisch)
- b) per nichtlinearem Fit (z. B. mittels Gauß-Funktion)

Für die weiteren Rechnungen soll der Wert aus b) verwendet werden.

Berechnen Sie die spektrale Bandbreite  $\Delta\nu$  in  $\text{cm}^{-1}$ .

### 3.5

Bestimmen Sie aus den Daten von 3.3 und 3.4 das Zeit-Bandbreitenprodukt für manuelle und computerunterstützte Autokorrelationsmessungen. Geben Sie die prozentuale Abweichung zum Fourier-Limit an.

### 3.6

Führen Sie eine qualitative sowie eine quantitative Fehleranalyse durch. Nehmen Sie hierzu die folgenden Gerätefehler an:  $\Delta\lambda = 3,0 \text{ nm}$  für die Emissionsmessungen sowie  $\Delta(\Delta\tau) = 6,7 \text{ fs}$  für die Autokorrelationsmessungen.

Prüfen Sie insbesondere, ob Ihre Messungen unter diesen Annahmen das Fourier-Limit erreicht haben.

## 4. Diskussion

- 4.1 Vergleichen Sie die Ergebnisse aus 3.3 a) und 3.3 b) sowie die manuellen Messungen mit der computergesteuerten. Welche Pulsform ist für die Anpassungen besser geeignet?
- 4.2 Machen Sie eine Aussage, ob die von Ihnen untersuchten Laserpulse transformlimitiert sind. Begründen Sie Ihre Antwort sorgfältig.
- 4.3 Der Autokorrelationsaufbau, wie er in diesem Versuch vorgestellt wird, ähnelt dem für die Durchführung von fs-Experimenten an chemischen Substanzen (Femtochemie). Welche Komponenten müssten Sie im Autokorrelationsaufbau ändern bzw. verschieben, um ein Anregungs-Abfrage-Absorptionsexperiment mit fs-Zeitauflösung durchführen zu können?
- 4.4 Machen Sie nach Literaturstudium einen Vorschlag für den Aufbau einer interferometrischen Autokorrelationsmessung 2. Ordnung (d. h. Phaseninformationen können zusätzlich erhalten werden) zur Bestimmung der Pulsdauer eines fs-Pulses z. B. mittels eines Michelson-Interferometers. Skizzieren Sie den experimentellen Aufbau sowie den zeitlichen Verlauf einer interferometrischen Autokorrelation 2. Ordnung eines Pulses mit wenigen fs Pulsdauer.

## 5. Literatur

- [1] G.R. Fleming, Chemical Applications of Ultrafast Spectroscopy, Oxford University Press, 1986
- [2] C. Rullière, Femtosecond Laser Pulses. Principles and Experiments, Springer 1998
- [3] s. z. B. J. I. Steinfeld, J. S. Francisco, W. L. Hase, "Chemical Kinetics And Dynamics", Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, New Jersey, 1989.
- [4] Ahmed H. Zewail, "Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond Using Ultrafast Lasers" (Nobel Lecture), Angew. Chem. Int. Ed. 2000, 39, 2587.
- [5]: J.-C. Diels und W. Rudolf, Ultrafast Laser Pulse Phenomena, Academic Press, San Diego, 1966