# Höchstempfindliche Absorptionsmessungen im Resonator eines Faserlasers

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades des Departments Physik der Universität Hamburg

vorgelegt von

Sergej Wexler

aus Irkutsk

Hamburg

2007

Gutachter der Dissertation:	Priv. Doz. Dr. V.M. Baev Prof. Dr. W. Neuhauser
Gutachter der Disputation:	Prof. Dr. K. Sengstock Prof. Dr. G. Huber
Datum der Disputation:	14.05.2007
Vorsitzender des Prüfungsausschusses:	Dr. K. Petermann
Vorsitzender des Promotionsausschusses:	Prof. Dr. G. Huber
Dekan der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften:	Prof. Dr. A. Frühwald

#### Zusammenfassung

Ein empfindlicher Nachweis von spezifischen Atomen und Molekülen in der Gasphase ist essentiell für wichtige Anwendungsfelder, z.B. für Umweltanalyse, medizinische Diagnostik, Optimierung von Verbrennungsprozessen oder auch Prozesskontrolle. Diodengepumpte Faserlaser eignen sich aufgrund ihres breiten Emissionsspektrums, kompakten Aufbaus und niedriger Schwellpumpleistungen zur Herstellung von Detektoren für den empfindlichen Nachweis von Gasen, die sich im Laserresonator befinden. Die Absorptionsspektroskopie im Laserresonator (intracavity **a**bsorption **s**pectroscopy, ICAS) ist eine sehr empfindliche Methode, bei der die effektive Absorptionsweglänge durch die Probe mehreren tausend Kilometern Absorptionslänge bei herkömmlichen Absorptionsmessungen entsprechen kann. Das Ziel dieser Arbeit ist es, verschiedene Vielmoden-Faserlaser auf ihre Anwendung für ICAS zu untersuchen und die empfindlichkeitsbegrenzenden Mechanismen zu identifizieren.

Die eingehenden Untersuchungen eines  $Nd^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit atmosphärischer Absorption im Resonator haben gezeigt, dass die wichtigsten empfindlichkeitsbegrenzenden Mechanismen im Faserlaser die Rayleigh-Streuung und die räumliche Inhomogenität der Verstärkung sind. Die erzielte Empfindlichkeit mit dem untersuchten  $Nd^{3+}$ dotierten Faserlaser im Spektralbereich 1,08-1,12 µm entspricht einer Absorptionsweglänge von  $L_{eff} = 40$  km. Eine Erhöhung der Empfindlichkeit wird nur durch die Reduzierung der Wirkung der beiden begrenzenden Mechanismen möglich. Der Einfluss der Rayleigh-Streuung kann z.B. durch Verwendung von Fasern mit einer kleineren numerischen Apertur, geringer Dämpfung und kleiner Länge reduziert werden. Die Wirkung der räumlichen Inhomogenität kann mit einer geeigneten Wahl von Laserparametern verringert oder in der Ringresonator-Konfiguration vollständig beseitigt werden. Dadurch kann die effektive Absorptionsweglänge auf einige tausend Kilometer ansteigen.

Die Anwendung von  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Vielmoden-Faserlasern für ICAS im infraroten Spektralbereich 6200-6550 cm<sup>-1</sup> (1,52-1,61 µm) wurde zum ersten Mal demonstriert. Durch eine bessere Qualität von  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Telekommunikationsfasern ist die erreichte Empfindlichkeit ca. 10 mal höher als die Empfindlichkeit, die mit einem  $\text{Tm}^{3+}$ -dotierten Faserlaser im benachbarten Spektralbereich (1,7-1,8 µm) erreicht wurde, und entspricht einer Absorptionsweglänge von  $L_{\text{eff}} = 54$  km. In der Absorptionsmessung von Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) wurde die Nachweisgrenze zu 60 ppb bestimmt. Umweltrelevante Gase wie Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>) und Kohlenstoffmonoxid (CO) konnten im Laserresonator ebenfalls empfindlich nachgewiesen werden. Ein selektiver Nachweis der für die medizinische Diagnostik der Atemluft wichtigen Isotope <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> wurde demonstriert. Zum ersten Mal wurde die chemische Dynamik von Verbrennungsprodukten HCN und NH<sub>3</sub> in einer Niederdruckflamme durch *in situ* Absorptionsmessungen im Laserresonator beobachtet.

Die Möglichkeit der Anwendung von Lasern mit mikrostrukturierten Fasern für die empfindliche Absorptionsspektroskopie von in den Luftkanälen lokalisierten Proben im evaneszenten Lichtfeld des Vielmoden-Lasers wurde untersucht. Es wurde festgestellt, dass der empfindliche Nachweis von Nanoproben dann möglich wird, wenn die spektrale Verlustmodulation durch die Interferenz der an den Luftkanälen reflektierten transversalen Lichtanteile z.B. durch die Verwendung von Fasern mit einer räumlich irregulären Mantelstruktur beseitigt wird.

#### Abstract

A sensitive detection of specific atoms and molecules in the gas phase is very important for many applications, such as environment analysis, clinical diagnostics, optimization of combustion processes and industrial process monitoring. Diode pumped fiber lasers with a broadband emission spectrum, a compact design and a low power consumption are very suitable for the construction of sensitive analysers for the gases placed inside their cavity. Intracavity absorption spectroscopy (ICAS) is a very sensitive technique for the detection of optical absorption. The sensitivity of ICAS corresponds to conventional absorption measurements with an effective absorption path length, which can extend up to several thousands kilometres. The present work deals with the application of various multimode fibre lasers for ICAS and identification of the mechanisms limiting their sensitivity to intracavity absorption.

The detailed investigations of the Nd<sup>3+</sup>-doped fibre laser with atmospheric absorption inside the cavity have shown that the most important mechanisms limiting the sensitivity of ICAS are the Rayleigh scattering and the spatial inhomogeneity of the gain. The sensitivity reached with this Nd<sup>3+</sup>-doped fibre laser in the spectral range 1,08-1,12  $\mu$ m corresponds to the effective absorption path length of  $L_{eff} = 40$  km. An enhancement of the sensitivity can be achieved by the reduction of the influence of both mechanisms. The Rayleigh scattering can be reduced e.g. by utilizing the fibers with a smaller numerical aperture, reduced scattering rates und a smaller length. The spatial inhomogeneity of the gain can be reduced by the proper choice of the laser parameters and completely suppressed by the use of a ring cavity configuration. In this case the effective absorption path length can be increased up to several thousands kilometres.

An application of  $\text{Er}^{3+}$ -doped multimode fibre lasers emitting in the infrared spectral region 6200-6550 cm<sup>-1</sup> (1,52-1,61 µm) to ICAS has been demonstrated for the first time. The achieved sensitivity corresponds to the effective absorption path length of  $L_{\text{eff}} = 54$  km. Due to a good quality of an  $\text{Er}^{3+}$ -doped telecommunication fibers the achieved sensitivity is ten times higher than it has been reached with a Tm<sup>3+</sup>-doped fibre laser emitting in the neighbouring spectral range (1,7-1,8 µm). The detection limit of 60 ppb has been demonstrated with the measurements of acetylene (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) inside the laser cavity. Other gases such as carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) and carbon monoxide (CO), which are important for the environment monitoring, have been also detected inside the cavity with a high sensitivity. The selective measurements on the isotopes <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>, which are important for the clinical diagnostics of human breath, have been also performed. The chemical dynamics of the combustion products HCN and NH<sub>3</sub> in a low pressure flame has been observed for the first time by *in situ* absorption measurements inside the laser cavity.

The possibility of application of microstructured fiber lasers for the sensitive absorption spectroscopy of the samples inside the fiber holes within the evanescent field of the multimode laser has been investigated. It has been shown, that in order to perform a sensitive detection of nano samples inside the holes, the spectral loss modulation due to the interference of the laser light reflected from the holes must be suppressed, e.g. by the application of the fibers with an irregular hole-cladding structure.

# Inhaltsverzeichnis

Einleitung    5				
1	Absorptionsspektroskopie im Laserresonator			
	1.1	Absorptionsspektroskopie	9	
	1.2	Prinzip der Absorptionsspektroskopie im Laserresonator (ICAS)	15	
	1.3	Begrenzung der Empfindlichkeit eines Vielmoden-Lasers gegen Absorption		
		im Resonator	17	
	1.4	Verwendung verschiedener Lasertypen für ICAS	20	
	1.5	Räumliche Inhomogenität der Verstärkung	22	
	1.6	Rayleigh-Streuung	29	
2	2 Dotierte Glasfasern		33	
	2.1	Lichtführung in optischen Fasern	33	
	2.2	Dotierungen von optischen Glasfasern mit $Nd^{3+}$ , $Er^{3+}$ und $Yb^{3+}$	36	
	2.3	$Nd^{3+}$ , $Er^{3+}$ und $Yb^{3+}$ -dotierte Faserlaser	39	
3	Abs	corptionsspektroskopie im Resonator eines Nd <sup>3+</sup> -dotierten Faserlasers	41	
	3.1	Präparation der Fasern	41	
	3.2	Nd <sup>3+</sup> -dotierter Faserlaser mit ICA	43	
	3.3	Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von Laserparametern	55	
	3.4	Moden-Dynamik	64	
	3.5	Wege zur Steigerung der spektralen Empfindlichkeit	74	
	3.6	Zusammenfassung der Ergebnisse	86	
4	Er <sup>3-</sup>	⁺-dotierter Faserlaser für höchstempfindliche Spektroskopie im		
	Res	onator	87	
	4.1	Spektroskopische Untersuchungen mit Er <sup>3+</sup> -dotierten Faserlasern	87	
	4.2	Charakterisierung des Er <sup>3+</sup> -dotierten Faserlasers	89	
	4.3	Absorptionsmessungen im Resonator des Er <sup>3+</sup> -dotierten Faserlasers	105	
	4.4	Untersuchung einer Niederdruckflamme	124	
	4.5	Zusammenfassung der Ergebnisse	130	
5	Anv	vendung von photonischen Kristallfasern für resonatorinterne		
	Abs	sorptionsmessungen	133	
	5.1	Mikrostrukturierte Fasern	133	
	5.2	Spektroskopie mit mikrostrukturierten Fasern	143	

	5.3	Yb <sup>3+</sup> -dotierte "Photonic Crystal Fiber" Laser mit Absorption im Resonator	153
	5.4	Photonic Crystal Fiber mit kleiner räumlicher Mantelstruktur im Resonator	
		eines Nd <sup>3+</sup> -dotierten Faserlasers	166
	5.5	Zusammenfassung der Ergebnisse	171
Z	Zusam	menfassung und Ausblick	173
Ι	Liste d	er verwendeten Geräte	175
Ι	Literat	urverzeichnis	179

#### Einleitung

Absorptionsspektroskopie ist eine Methode Substanzen auf ihre chemische Zusammensetzung hin zu untersuchen und basiert auf der Bestrahlung einer Probe und anschließender Messung des transmittierten Lichts. Absorptionsspektren liefern auch Informationen über die innere Struktur von Atomen und Molekülen. Die Wellenlänge des absorbierten Lichts, die Tiefe und die Breite der Absorption geben Aufschluss über mögliche Energiezustände des Systems und Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen ihnen. Einen Einsatz findet die Absorptionsspektroskopie z.B. in der Spurengasanalyse, medizinischen Atemluftdiagnostik und Prozesskontrolle. Entscheidend sind dabei die Empfindlichkeit und die spektrale Auflösung, mit der die Absorption nachgewiesen wird. Eine besondere Bedeutung erlangte deswegen die Spektroskopie seit der Entdeckung des Lasers, da die speziellen Eigenschaften des Laserlichts, wie spektrale Reinheit, Kohärenz, hohe Intensität und Abstimmbarkeit der Wellenlänge, die Entwicklung von neuen spektroskopischen Verfahren ermöglichten.

In der Spektroskopie werden häufig Einmoden-Laser eingesetzt. Ohne spektral selektive Filter im Resonator oszilliert allerdings fast jeder Laser in mehreren Moden, deren Anzahl bis zu 10<sup>5</sup> erreichen kann. Ein solcher Vielmoden-Laser reagiert sehr empfindlich auf kleine schmalbandige Variationen der Resonatorverluste. Basierend auf diesem Effekt entwickelte sich eine der empfindlichsten spektroskopischen Nachweismethoden: Absorptionsspektroskopie im Laserresonator (engl.: intracavity absorption spectroscopy, ICAS) [1]. Die hohe Empfindlichkeit wird durch eine große Anzahl von Durchgängen durch die Probe erreicht, die durch den Ausgleich von breitbandigen Verlusten durch die Verstärkung im Lasermedium deutlich höher ist als bei anderen Spektroskopieverfahren wie Multireflexabsorptionszellen [2] oder "cavity ringdown" Spektroskopie (CRDS) [3].

Alle Vielmoden-Laser, deren homogene Linienbreite der Verstärkung größer ist als die Absorptionslinienbreite, können für ICAS angewendet werden. Eine sehr hohe Empfindlichkeit auf die Absorption im Resonator, die bis zu 70.000 km effektiver Absorptionsweglänge entspricht, wurde bisher mit einem Farbstofflaser erreicht [1, 4]. Das mit einem Ti-Saphir-Laser erzielte Ergebnis beläuft sich auf mehrere hundert km [5]. Nachteilig wirkt sich bei diesen Lasertypen die Beschränkung auf den sichtbaren bzw. nahen infraroten Emissionsbereich aus, wo die meisten Moleküle nur relativ schwache Übergänge höherer Ordnungen besitzen.

Eine Alternative kostengünstige und kompakte ICAS-Gasnachweisgeräte zu bauen bieten Vielmoden-Diodenlaser [6] und diodengepumpte Faserlaser [7, 8, 9]. Die letzteren sind für die Anwendung in der höchstempfindlichen resonatorinternen Spektroskopie besonders gut geeignet. Der Emissionsbereich von verschiedenen Faserlasern erstreckt sich von 500 nm bis 3  $\mu$ m. Die große Emissionsbandbreite von bis zu 10 nm und die Verstimmung über einen großen Spektralbereich, die durch das stark inhomogen verbreitete Verstärkungsspektrum gestattet wird, macht den Nachweis verschiedener Stoffe mit einem Aufbau möglich. Die Schwellpumpleistungen von Faserlasern liegen bei einigen Milliwatt, was durch das optische Pumpen mit preiswerten einmodigen Laserdioden erreicht wird. ICAS wurde bereits mit Nd<sup>3+</sup>- und Yb<sup>3+</sup>-dotierten [8, 10, 11] und auch Tm<sup>3+</sup>-dotietren Faserlasern [12, 13] demonstriert.

Ziel dieser Arbeit ist die Bestimmung der Bedingungen für höchstempfindliche Absorptionsmessungen im Resonator eines Faserlasers. Die physikalischen Mechanismen, die die Empfindlichkeit begrenzen, sollen identifiziert und reduziert bzw. beseitigt werden. Der Einsatz eines Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers für ICAS wird geprüft mit dem Ziel den Spektralbereich für Absorptionsmessungen im infraroten zu erweitern. Außerdem werden Laser mit Yb<sup>3+</sup>-dotierten photonischen Kristallfasern untersucht, die den empfindlichen Nachweis von sehr kleinen Probemengen erlauben können.

In Kapitel 1 wird eine Übersicht über verschiedene Methoden der Absorptionsspektroskopie präsentiert und die Grundlagen der Absorptionsspektroskopie im Laserresonator dargestellt. Ein Überblick zu der mit verschiedenen Lasertypen erreichten Empfindlichkeit wird gegeben. Im Rahmen eines Ratengleichungsmodells wird die Empfindlichkeitsbegrenzung durch Spontanemission, räumliche Inhomogenität der Verstärkung und Rayleigh-Streuung behandelt.

Kapitel 2 behandelt Grundlagen der Lichtführung in optischen Fasern und einige Eigenschaften selten-erd-dotierter Gläser, die für ICAS-Messungen in Frage kommen können.

Der Untersuchung des Einflusses von Modenkopplung auf die Laserdynamik und Empfindlichkeit gegen Absorption im Resonator eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers ist das Kapitel 3 gewidmet. Als Absorber wird der atmosphärische Wasserdampf verwendet. Die Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von den Laserparametern wird ermittelt und die wichtigen Begrenzungsmechanismen festgestellt. Die Dynamik von Polarisations- und Longitudinalmoden wird untersucht. Die Ergebnisse weisen darauf hin, dass die Empfindlichkeitsbegrenzung nicht nur durch Rayleigh-Streuung sondern auch durch räumliche Inhomogenität der Verstärkung bedingt ist. Verschiedene Methoden zu deren Beseitigung werden im Experiment geprüft.

In Kapitel 4 wird der Einsatz von  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasern für ICAS im infraroten Spektralbereich von 6200 cm<sup>-1</sup> bis 6550 cm<sup>-1</sup> (1,52 – 1,61 µm) zum ersten Mal gezeigt. Das Hauptanwendungsgebiet von  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Fasern lag bis jetzt in der Telekommunikation, wo eine hohe Qualität der Fasern mit niedrigen Verlusten die Vorraussetzung ist. Diese verspricht auch eine hohe Empfindlichkeit von Absorptionsmessungen. Mit spektral selektiven Elementen im Resonator, z.B. mit einer Linse mit chromatischer Abberation, und zusätzlich durch Variation der Faserlänge bzw. der Dotierungskonzentration lässt sich das Emissionsspektrum weit durchstimmen und verschiedene Gase wie Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>), Kohlenstoffdioxid (Isotope <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>), Kohlenstoffmonoxid (CO) im Resonator empfindlich nachweisen. Im Dauerstrichbetrieb entspricht die Empfindlichkeit einer effektiven Absorptionsweglänge von bis zu 54 km und ist damit ca. 20 mal höher als die bei den Messungen mit einem Tm<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser im benachbarten Spektralbereich 1,7 – 1,9 µm erreichte [12, 13]. Auch der *in situ* Nachweis von Verbrennungsprodukten Ammoniak (NH<sub>3</sub>) und Cyanwasserstoff (HCN) in der inhomogenen und turbulenten Umgebung einer im Laserresonator befindlichen Niederdruckflamme wird durchgeführt [9].

Die Möglichkeit der Anwendung von photonischen Kristallfasern (engl.: Photonic Crystal Fibers, PCF) für ICAS wird in Kapitel 5 behandelt [14]. Es wurde eine sehr starke Kanalisierung von Emissionsspektren der Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF-Lasern festgestellt, die von der Interferenz der transversalen Komponenten des sich in der Faser ausbreitenden Lichts herrührt. Sie lässt sich durch eine kleinere räumliche Struktur des Fasermantels reduzieren. Die verbleibende Modulation und sehr hohe Resonatorverluste behindern noch die emp-findlichen Absorptionsmessungen. Einen besseren Einsatz in der resonatorinternen Spektroskopie können deswegen PCF-Laser mit einer unregelmäßigen Lochmantelstruktur wie z.B. "random-hole optical fibers" finden [15]. In diesem Fall wird erwartet, dass eine in Luftkanälen einer solchen Faser lokalisierte Stoffmenge von ca. nur 1 nl für den Nachweis ausreichend ist.

# Kapitel 1

### Absorptionsspektroskopie im Laserresonator

#### 1.1 Absorptionsspektroskopie

Die Absorptionsspektroskopie ist eine der wichtigsten Methoden zur Untersuchung von Materie, insbesondere von Gasen. Das Licht erfährt beim Durchlaufen einer Probe die Abschwächung bei den für die Substanz spezifischen Wellenlängen. Da für jedes Molekül die Energieniveaus und somit deren Unterschiede charakteristisch sind, können aus dieser Abschwächung Rückschlüsse auf die Zusammensetzung der untersuchten Probe gezogen werden.

Das Ziel vieler Absorptionsmessungen ist es den Absorber in möglichst kleinen Konzentrationen nachzuweisen. Die Konzentration n wird aus der Lichtabschwächung durch die Absorption erhalten. Ist die einfallende Intensität deutlich kleiner als die Sättigungsintensität der Absorption, so ist der differentielle Intensitätsverlust proportional zur Intensität selbst:

$$dI(v) = -k(v) \cdot I_0(v) \cdot dL.$$
(1.1)

Nach Integration erhält man das Lambert-Beer'sche Gesetz:

$$I(v) = I_0(v)e^{-k(v)L}.$$
 (1.2)

Hier ist  $I_0(v)$  die einfallende und I(v) die transmittierte Lichtintensität, L die Länge des Lichtweges durch die Probe und k(v) der Absorptionskoeffizient, gegeben durch die Konzentration n und den Wirkungsquerschnitt  $\sigma(v)$  der Absorption:  $k(v) = n\sigma(v)$ . Das Absorptionssignal K im transmittierten Spektrum wird als

$$K = \ln \frac{I_0}{I} = k(\nu)L \tag{1.3}$$

definiert. Es ist proportional zu dem Absorptionskoeffizienten k(v) und ist ein Maß für die Stärke der Absorption. Mit der Kenntnis des Absorptionssignals K, der Absorptionsweglänge L und des Absorptionsquerschnitts  $\sigma(v)$  lässt sich die Konzentration n des Stoffes bestimmen. Im Laufe der Zeit haben sich mehrere spektroskopische Nachweisverfahren entwickelt, von denen einige unten kurz präsentiert werden.

In der klassischen Absorptionsspektroskopie werden oft Lichtquellen mit einem breiten Emissionskontinuum benutzt (z.B. Hg-Hochdrucklampen, Xe-Blitzlampen usw.). Deren Strahlung wird durch eine Absorptionszelle der Länge *L* geschickt, hinter der sie mit einem Wellenlängenselektor (Spektrograph oder Interferometer) spektral zerlegt und gemessen wird. Durch Vergleich der Spektren mit und ohne Absorption kann mittels der Differenzbildung das Absorptionsspektrum ermittelt werden. Die spektrale Auflösung ist dabei durch das Auflösungsvermögen des verwendeten Spektrographen begrenzt.

Eine hohe Auflösung wird beim Einsatz der Fourier-Transformations-Infra-Rot-Spektroskopie (FTIR) erreicht [16]. Bei dieser Methode wird die zu untersuchende Probe mit einer breitbandigen Lichtquelle bestrahlt und nach deren Durchgang werden mit Hilfe einer Fouriertransformation aus den mit einem Interferometer, z.B. dem Michelson-Interferometer, gemessenen Interferogrammen IR-Spektren berechnet. Das erreichbare spektrale Auflösungsvermögen ist im Wesentlichen durch den endlichen Verstellweg des beweglichen Spiegels (oder der beweglichen Spiegel) des Interferometers bestimmt. Häufig wird die Methode angewendet, um durch die Messung des Absorptionssignals K bei bekannter Konzentration n die Kenntnis über die Positionen und die Stärken der Molekülabsorptionslinien zu erlangen. So wurden z.B. viele Daten für die HITRAN-Datenbank gewonnen (s. z.B. [17, 18]). Auch findet FTIR bei der Prozesskontrolle in der Industrie Anwendung [19]. Die Absorptionsweglängen L sind bei FTIR typischerweise kleiner als 1 m. Für die Messung schwacher Linien werden allerdings Absorptionszellen mit einer Absorptionsweglänge von einigen hundert Metern gebaut [17].

In vielen Experimenten besteht aber die Aufgabe der Spektroskopie darin, noch kleinere Absorptionskoeffizienten nachzuweisen, d.h. Stoffe mit kleinen Absorptionsquerschnitten, z.B. bei der Untersuchung von verbotenen Übergängen, Obertönen von Vibrations- und Rotationsübergängen, oder Stoffe in kleinen Konzentrationen, wie z.B. bei der Spurenanalyse von Gasen. Die Nachweisgrenze eines spektroskopischen Experiments ist durch den kleinsten Absorptionskoeffizienten  $k_{min}$  gegeben, der im Transmissionsspektrum noch nachgewiesen werden kann. Zur Nachweisgrenze tragen zwei Größen multiplikativ bei: Das Signal-Rausch-Verhältnis, d.h. Fähigkeit kleine Unterschiede im Lichtfluss infolge der Absorption zu messen, und die spektrale Empfindlichkeit, die durch das Verhältnis des Absorptionssignals K zu dem entsprechenden Absorptionskoeffizienten k(v) bestimmt wird. Gemäß (1.3) ist die spektrale Empfindlichkeit in einer konventionellen Absorptionsmessung durch die Länge der Probe gegeben. Allgemein wird die spektrale Empfindlichkeit als eine effektive Absorptionsweglänge  $L_{eff}$ 

$$L_{\rm eff} = K/k \tag{1.4}$$

definiert. Für die Nachweisgrenze  $k_{\min}$  ergibt sich somit

$$k_{\min} = K_{\min} / L_{\text{eff,max}}$$
(1.5)

mit dem durch das Rauschen bedingten noch detektierbaren Absorptionssignal  $K_{\min}$  (Nachweisempfindlichkeit) und der maximalen spektralen Empfindlichkeit  $L_{eff,max}$ . Die Nachweis- und die spektrale Empfindlichkeit können bei Absorptionsmessungen in der Regel unabhängig voneinander verbessert werden: erstere durch das Unterdrücken von Rauschen, letztere durch die Verlängerung des Absorptionsweges.

Absorptionsspektroskopie mit durchstimmbaren Laserdioden (engl. Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS) erlaubt eine Verbesserung von sowohl Nachweis- als auch spektraler Empfindlichkeit [20, 21]. Diese Methode wird im infraroten Spektralbereich  $(2-15 \,\mu\text{m})$  eingesetzt, wo viele Moleküle sehr starke Linien der Grundschwingungsabsorption besitzen. Somit ist der Nachweis von kleinen Konzentrationen möglich. Die Strahlung einer Laserdiode ist meistens spektral einmodig. Die Emissionswellenlänge wird durch Variation des Laserdiodenstromes und der Temperatur in einem kleinen Spektralbereich durchgestimmt. Um die Absorptionsweglänge zu erhöhen, wurden sowohl lange, offene Lichtwege durch die atmosphärische Luft [22] als auch Vielfachreflexionszellen [23, 24] benutzt. Um das Signal-Rausch-Verhältnis im aufgenommenen Spektrum zu verbessern werden verschiede Modulationstechniken verwendet [25, 26], vor allem Wellenlängenmodulation [23, 24]. Diese Technik erlaubt die Messung von Absorptionssignalen von  $K = 10^{-5}$  [21]. Der kleinste nachweisbare Absorptionskoeffizient wurde in Experimenten mit L = 100 m zu  $k_{\min} = 10^{-9}$  cm<sup>-1</sup> bestimmt. Die TDLAS findet Anwendung z.B. bei der Bestimmung des Aufbaus der Erdatmosphäre und bei Prozesskontrolle in der Industrie [19].

Ein Nachteil der in TDLAS benutzten Laserdioden ist die Notwendigkeit die aktiven Medien bei Temperaturen bis unter 50 K zu halten. Das erschwert die Handhabung der Apparatur. Aus diesem Grund werden in der letzten Zeit neu entwickelte Qauntenkaskadlaser verwendet, die weniger Kühlung brauchen [27]. Die Ausgangsleistung dieser Laser ist aber im Dauerstrichbetrieb ziemlich gering. Um dieses Problem zu umgehen wird das infrarote Licht durch die Mischung von zwei im nahen Infrarot betriebenen Lasern (z.B. Diodenlaser und Nd:YAG-Laser) und die Differenzfrequenzbildung in einem nichtlinearen Kristall erhalten [28, 29]. Bei diesen Systemen sind allerdings die Anforderungen an die Stabilität der beiden Laser und der Umgebungsbedingungen hoch, da die Konvertierungseffizienz im nichtlinearen Kristall sehr stark von Strahlgeometrie, Wellenlänge der eingestrahlten Leistung und Temperatur abhängt. Im Allgemeinen ist ein TDLAS-System auf einen relativ kleinen Wellenlängenbereich eingeschränkt und wird nur für bestimmte Molekülarten hergestellt. Eine andere empfindliche Methode für den Nachweis von schwacher Absorption stellt die photoakustische Spektroskopie (PAS) dar [21, 30]. Die Methode basiert auf dem im Jahre 1880 von Bell entdeckten photoakustischen Effekt [31] und wird meist angewendet, wenn geringe Konzentrationen einer Molekülsorte in Gegenwart von anderen Gasen bei relativ hohem Druck (bis zu 1 atm) nachgewiesen werden sollen. Dies kann z.B. in der Industrie bei der Überwachung von Luftverschmutzung oder in der Medizin bei der Diagnostik der Atemluft erforderlich sein.

Das Funktionsprinzip beruht auf der Tatsache, dass bei Bestrahlung einer Probe mit Licht die absorbierte Energie teilweise durch strahlungslose Relaxation in thermische Energie der umliegenden Moleküle umgewandelt wird. Dies hat eine Erhöhung des Drucks in der Probe zur Folge. Durch eine mit niedriger Frequenz (unter 10 kHz) modulierte Lichtstrahlung entsteht eine Schallwelle (Druckschwankungen), die von einem empfindlichen Mikrophon an der Innenwand der Messzelle nachgewiesen wird. Eine Besonderheit der photoakustischen Spektroskopie bildet die Ausnutzung von akustischen Resonanzfrequenzen der Messzelle. Durch konstruktive Interferenz der Schallwellen kommt es zur Ausbildung einer stehenden Welle in der Messzelle, die eine starke Signalüberhöhung und damit eine Empfindlichkeitssteigerung zur Folge hat. Wird die eingestrahlte Wellenlänge über eine Absorptionslinie des Gases durchgestimmt, so ist das Ausgangssignal des Mikrophons proportional zur absorbierten Lichtenergie und damit zum Absorptionskoeffizienten. Das unterscheidet die Methode der Photoakustik von den anderen Methoden, bei denen die transmittierte Lichtleistung gemessen wird.

Ein Laser in PAS wurde zum ersten Mal 1968 von Kerr und Atwood verwendet [32]. Mit einem im mittleren Infrarot ( $\lambda = 9,6 \,\mu\text{m}$ ) im Dauerstrich betriebenen CO<sub>2</sub>-Laser konnte bei der Spektroskopie von im Stickstoff (N<sub>2</sub>) gelöstem Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>) ein minimaler nachweisbarer Absorptionskoeffizient von  $k_{\min} = 1,2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$  erreicht werden. Das photoakustische Signal ist direkt proportional zur Laserleistung. Deswegen werden in PAS hauptsächlich leistungsstarke Laser als Strahlungsquellen eingesetzt [33]. Mit einem im Bereich zwischen 9 und 11 µm emittierenden CO<sub>2</sub>-Laser mit einer photoakustischen Zelle im Resonator wurde bei der Spektroskopie von Ethylen (C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>) eine Nachweisgrenze von 6 ppt (parts per trillion) erreicht [34]. Im nahen infraroten Spektralbereich um 1532 nm konnte bei Anwendung einer Laserdiode in Kombination mit einem Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserverstärker Ammoniak (NH<sub>3</sub>) in der Konzentration unterhalb von 6 ppb (parts per billion) in der Luft beim Atmosphärendruck nachgewiesen werden [35].

Da Hochleistungslaser meistens bei bestimmten, festen Wellenlängen emittieren, ist der empfindliche Nachweis mit PAS nur auf einige bestimmte Molekülarten beschränkt. Außerdem tritt in einigen Fällen ein Störeffekt ein, der durch die Absorption des von den Zellfenstern reflektierten Lichts an Zellwänden und die darauf folgende Erwärmung des Probegases zustande kommt. Der resultierende Druckanstieg ist mit der Unterbrechungsfrequenz moduliert und wird vom Detektor als Untergrundsignal registriert. Die Verwendung von Antireflexbelägen für die Zellfenster oder von Brewster-Fenstern bei linear polarisiertem Licht erlaubt diesen Effekt teilweise zu mindern. Nachteil bei PAS ist die Reduzierung der Empfindlichkeit bei kleinen Gasdrücken in der Zelle, da sich die Schallwelle in diesem Fall nicht effektiv ausbreiten kann. Außerdem sinkt die Empfindlichkeit auch bei einem kleinen Umwandlungsgrad der absorbierten Lichtenergie in die kinetische Energie der Gasmoleküle.

Die Nachweisgrenze  $k_{\min}$  kann auch durch die Erhöhung der spektralen Empfindlichkeit  $L_{eff}$  verbessert werden. Dies wird durch die Verlängerung des effektiven Lichtweges durch die Probe erreicht. Es gibt mehrere Möglichkeiten diese Verlängerung zu realisieren, z.B. die Verwendung von Vielfachreflexionszellen, in denen das Licht die Probezelle viele Male durchläuft [2, 36]. Der Absorptionsweg kann um ca. den Faktor 10-20 für thermische und 100-200 für Laser-Lichtquellen verlängert werden. Dieser Faktor ist begrenzt durch Lichtverluste, wie Streuung, Beugung und Spiegeltransmissionen, und durch die Notwendigkeit die einzelnen umlaufenden Lichtstrahlen von einander zu trennen. Bei der Zellenlänge von 25 m wurden z.B. einige Kilometer Absorptionsweglänge realisiert [37].

Wesentlich höhere effektive Absorptionsweglängen werden beim Platzieren des Absorbers in einem optischen Resonator mit sehr hoher Güte erreicht, der aus zwei sehr hochreflektierenden Spiegeln ( $R \ge 0.99$ ) gebildet wird. In den Resonator wird entweder ein kurzer Puls oder kontinuierliche Strahlung eines schmalbandig emittierenden Lasers eingekoppelt. Das Licht wird im Resonator viele Male hin und zurück reflektiert und bei jeder Reflexion am Resonatorspiegel verlässt ein Teil des Lichts den Resonator. Es werden die Zeitkonstanten des exponentiellen Zerfalls dieses Pulses mit und ohne Absorption gemessen: Je mehr Licht pro Durchgang absorbiert wird, desto kürzer ist die gemessene Zerfallszeit. Aus der Differenz der beiden Zeitkonstanten können dementsprechend Rückschlüsse auf die Absorptionsstärke gezogen werden. Wird die Wellenlänge der eingestrahlten Laserstrahlung nach jeder Messung durchgestimmt, so erhält man das Absorptionsspektrum der Probe. Die auf dem beschriebenen Prinzip basierende Methode nennt sich cavity ringdown spectroscopy (CRDS) [38]. Bei der Resonatorlänge von etwa nur 1 m kann die effektive Absorptionsweglänge bei dieser Methode mehr als 10 km betragen. Bei der Spektroskopie der Obertöne höherer Ordnung des Cyanwasserstoff-Moleküls (HCN) im sichtbaren Spektralbereich wurden unter Verwendung von Spiegeln höchster Qualität Absorptionslängen von bis zu 70 km erzielt [3]. Bei der spektroskopischen Untersuchung der Atemluft im Spektralbereich um  $\lambda \approx 3 \,\mu m$  mit den Reflektivitäten der Resonatorspiegel von R = 99,986% wurde mit  $L_{eff} = 3,4$  km die Nachweisgrenze für Ethan (C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>) von 270 ppt (parts per trillion,  $10^{-12}$ ) erzielt [39].

Ein Nachteil der CRDS besteht darin, dass die Empfindlichkeit bei Absorptionsmessungen in turbulenten oder verschmutzten Proben, z.B. bei *in situ* Messungen in einer Flamme, rapide sinkt [40]. Die optischen Verluste und die Instabilität des Systems stellen bei Anwendung dieser Methode ein großes Hindernis dar. Die erhaltenen Ergebnisse können dann unzuverlässig werden [41]. Für die Absorptionsmessungen von in einer Flamme gebildeten Produkten mit Anwendung von CRDS wurden deswegen die nachzuweisenden Gase außerhalb der Flamme untersucht [42, 43]. Um die Gesamtverluste im System möglichst gering zu halten, muss das Gasgemisch vor der Messung unbedingt einer Reinigung unterzogen werden. Dadurch kann aber seine Zusammensetzung stark modifiziert sein, es können z.B. kurzlebige Produkte verschwinden.

Zur Erhöhung der spektralen Empfindlichkeit können auch offene Absorptionswege benutzt werden. Dabei lassen sich Absorptionsweglängen von mehreren Kilometern erreichen [44, 45]. Ein Atlas des Absorptionsspektrums der niedrigen Atmosphäre wurde aus der Messung der Absorption des Lichtes nach Durchlaufen von 16,25 Kilometern über der Chesapeake-Bucht (USA) gewonnen [44]. Eine noch größere Absorptionslänge wurde bei Absorptionsmessungen nach Durchgang des Sonnenlichts durch die Atmosphäre erreicht [46]. Nicht weit über Horizont beträgt sie etwa 30 – 40 km. Diese Messungen sind beschränkt auf die Untersuchung natürlich vorkommender Atmosphären und auf die Bestimmung der Mittelwerte für die Absorption über die gesamte Weglänge. Lokale Änderungen der Zusammensetzung können mit dieser Methode nicht erfasst werden.

Eine sehr hohe spektrale Empfindlichkeit wird bei der Spektroskopie im Resonator eines Vielmoden-Lasers (engl.: intracavity absorption spectroscopy, ICAS) erreicht. Bei dieser Methode befindet sich die absorbierende Substanz im Laserresonator. Die breitbandigen Verluste, die z.B. durch Spiegeltransmission oder Verschmutzung des zu untersuchenden Gasgemisches entstehen, werden in so einem Laser ausgeglichen. Das Emissionsspektrum des Lasers reagiert aber sehr empfindlich auf schmalbandige Verluste, die z.B. durch die Gasabsorption entstehen. Die Absorptionslinien prägen sich dann dem Spektrum auf. Mit Anwendung von ICAS wurde eine effektive Absorptionsweglänge von  $L_{\rm eff} = 70.000$  km bei Einsatz eines Farbstofflasers demonstriert [1, 4]. Ein wesentlicher Vorteil dieser Methode gegenüber den oben beschriebenen Methoden der TDLAS, PAS und CRDS besteht darin, dass durch die breitbandige Laseremission das ganze breite Spektrum gleichzeitig aufgenommen wird. Die Information über alle im beobachteten Spektralbereich vorhandenen Absorptionslinien wird parallel erhalten und es können somit mehrere Substanzen gleichzeitig nachgewiesen werden. Die Zeitauflösung entspricht der Dauer des Laserpulses. Zur Unterdrückung des spektralen Rauschens kann sowohl eine Mittelung über mehrere Aufnahmen vorgenommen als auch verschiedene Modulationstechniken angewendet werden, wie z.B. Kombination der ICAS mit PAS [12, 47].

In den folgenden Abschnitten wird das Prinzip der Spektroskopie im Laserresonator näher beschrieben, wobei auf die die spektrale Empfindlichkeit begrenzenden Prozesse ausführlich eingegangen wird.

#### **1.2** Prinzip der Absorptionsspektroskopie im Laserresonator (ICAS)

Der prinzipielle Aufbau eines ICAS-Experiments ist in Abbildung 1.1 skizziert. Die Probe wird in den optischen Resonator eines Vielmoden-Lasers eingebracht. Der Resonator enthält ein breitbandig verstärkendes Medium und wirkt wie eine Vielfachreflexionszelle, in der die breitbandigen Verluste durch die Verstärkung kompensiert werden. Ist die Verstärkung homogen verbreitert, so werden die durch die Absorption in der Probe verursachten schmalbandigen Verlustvariationen nicht kompensiert, weil sich die Verstärkung in diesem Fall nicht ändert. Da das Laserlicht die Probe viele Male durchläuft und die betroffenen Moden bei jedem Durchgang eine Absorption erfahren, wird das Absorptionssignal im Emissionsspektrum des Lasers mit jedem Durchgang stärker. Die wesentliche Voraussetzung für eine hohe Empfindlichkeit einer ICAS-Messung ist, dass die Linienbreite des Absorbers kleiner ist als die homogene Linienbreite der Verstärkung. Andernfalls entspräche dies der ICAS mit einem "single-mode" Laser, bei der die spektrale Empfindlichkeit der Absorptionsmessungen wesentlich kleiner ist [1].



Abbildung 1.1. Prinzip der Absorptionsspektroskopie im Laserresonator.

ICAS-Messungen liefern die Absorptionsdaten bei den Frequenzen der Lasermoden. Der Frequenzabstand zwischen den Moden in einem typischen Vielmoden-Laser liegt bei  $10^7 - 10^8$  Hz und ist somit kleiner als typische Absorptionslinienbreiten in Gasen von mehr als  $10^9$  Hz. Allerdings stellt der Modenabstand keine Begrenzung für die spektrale Auflösung bei ICAS-Messungen dar. Auch wenn die Linienbreite der Absorption kleiner ist als der Modenabstand, können die Absorptionsmessungen durchgeführt werden, wenn die Lasermoden in ihrer Frequenz durchgestimmt werden [1, 48]. Die Auflösung ist in diesem Fall durch die spektrale Modenbreite bestimmt und beträgt ca.  $10^2 - 10^4$  Hz [1, 49].

Bei einem klassischen Absorptionsexperiment entspricht die spektrale Empfindlichkeit einfach der Länge der Probezelle. Bei einem ICAS-Experiment entspricht sie dem Weg, den das Licht durch den Absorber während des Laserbetriebs zurücklegt. Dieser Weg ist proportional zu der Zeit, die seit Einschalten des Lasers vergangen ist:  $L = c \cdot t$ . Die Absorption im Resonator entwickelt sich dementsprechend gemäß dem modifizierten Lambert-Beer'schen Gesetz:

$$I_k = I_0 e^{-kct}. \tag{1.6}$$

Die Größen  $I_0$  bzw.  $I_k$  bezeichnen die Intensitäten ohne bzw. mit schmalbandiger Absorption. Das Absorptionssignal *K* errechnet sich ähnlich, wie in der Gl. (1.3) angegeben:  $K = \ln(I_0/I_k)$ . Die effektive Absorptionsweglänge wird damit:

$$L_{\rm eff} = \frac{K}{k} = \frac{\ln\left(\frac{I_0}{I_k}\right)}{k} = \begin{cases} ct, \ t < t_s \\ ct_s, \ t > t_s \end{cases},$$
(1.7)

wobei  $t_s$  die spektrale Sättigungszeit des Lasers ist, d.h. die Zeit, die vom Einsetzen der Laseremission bis zum Erreichen des stationären Spektrums verstreicht.

Mit Verwendung von ICAS lassen sich kurzlebige Prozesse spektral verfolgen. Die zeitliche Auflösung ist dabei durch die Entwicklungszeit des Laserpulses t gegeben, die durch die erforderliche Empfindlichkeit  $L_{eff}$  bestimmt wird. Ist z.B. eine effektive Absorptionsweglänge von 1 km ausreichend, so können Absorptionsmessungen mit der Zeitauflösung von 3 µs durchgeführt werden, vorausgesetzt, dass die Laserpulsdauer kleiner als die spektrale Sättigungszeit ist ( $t < t_s$ ). Die zeitaufgelösten ICAS-Messungen finden Anwendung z.B. beim Nachweis von angeregten Atomen und Molekülen oder bei Untersuchung der Dynamik von chemischen Reaktionen [1].

Füllt die Probe den Resonator nicht komplett aus, so muss die effektive Absorptionsweglänge noch mit dem so genannten Füllfaktor des Resonators mit dem Absorber multipliziert werden:

$$L_{\rm eff} = \frac{l}{L_{\rm Resonator}} \cdot c \cdot t = \beta \cdot c \cdot t, \qquad (1.8)$$

wobei *l* die Probelänge und  $L_{\text{Resonator}}$  die optische Gesamtlänge des Resonators ist,  $\beta$  ist dementsprechend der Füllfaktor.

# **1.3** Begrenzung der Empfindlichkeit eines Vielmoden-Lasers gegen Absorption im Resonator

Um die Empfindlichkeit eines 4-Niveau-Vielmoden-Lasers gegen resonatorinterne Absorption theoretisch abzuschätzen werden die Ratengleichungen für die Mittelwerte der Photonenanzahlen  $M_q$  in jeder Mode q und die gemeinsame Inversion N aufgestellt [1]. Wenn **N** Moden gleichzeitig oszillieren, dann stellen sich **N**+1 Ratengleichungen auf:

$$\dot{M}_q = -\gamma M_q + B_q N M_q - kc M_q + X_q, \qquad (1.9)$$

$$\dot{N} = P - AN - N \sum_{q} B_{q} M_{q}.$$
(1.10)

Es sind  $\gamma$  die breitbandigen Resonatorverluste,  $B_q$  die Verstärkung des aktiven Mediums für die Mode q,  $k_q$  der Absorptionskoeffizient des resonatorinternen Absorbers für die Mode q, c die Lichtgeschwindigkeit, P die Pumprate, A die Zerfallsrate des oberen Laserniveaus. Der Term  $X_q$  beschreibt allgemein verschiedene Störungen der Laseremission.

Die Photonenzahlen der Moden,  $M_q$ , sind in diesem Ratengleichungsmodell nur über die Inversion gekoppelt, d.h. alle Moden greifen auf die *gemeinsame* Inversion zu. Daraus resultiert sich eine hohe Empfindlichkeit des Lasers auf die resonatorinterne Absorption: werden einige Moden durch die Absorption abgeschwächt, so bleiben die anderen unbeeinflusst.

Die stationäre Photonenverteilung in einzelnen Moden ist aus der Gl. (1.9) gegeben, wenn  $\dot{M} = 0$ :

$$M_{q,k}^{s} = \frac{X_{q}}{\gamma - B_{q}N^{s} + k_{q}c}.$$
 (1.11)

Die stationäre Inversion  $N^s$  ist durch die Lasermode bestimmt, die die größte Verstärkung erfährt (q = 0). Sie errechnet sich ebenfalls aus der Gl. (1.9) für  $k_q = 0$ :

$$N^{s} = \frac{\gamma}{B_{0}} - \frac{X_{q}}{B_{0}M_{0}^{s}}.$$
 (1.12)

Schmalbandige resonatorinterne Absorption  $k_q$  verursacht zusätzliche Verluste in den betroffenen Moden und dementsprechend den exponentiellen Zerfall der korrespondierenden Photonenzahlen:

$$M_{a,k}(t) = M_a(t) \cdot e^{-k_a c t}, \qquad (1.13)$$

wobei  $M_{q,k}$  die Anzahl der Photonen in der Mode q mit ICA zur Zeit t und  $M_q$  die Anzahl der Photonen in der Mode q ohne Absorption zur Zeit t ist. Die Gleichung (1.13) ist dem Lambert-Beer'schen Absorptionsgesetz Gl. (1.2) mit der effektiven Absorptionsweglänge  $L_{\text{eff}} = c \cdot t$  äquivalent. Demnach lässt sich das Absorptionssignal in der Mode q folgendermaßen bestimmen:

$$K_q = \ln \frac{M_q}{M_{q,k}} = k_q ct.$$
 (1.14)

Mit dieser Definition und der Gl. (1.11) wird das stationäre Absorptionssignal in der Mode q ausgerechnet:

$$K_q^s = \ln\left(1 + \frac{k_q c}{\gamma - B_q N^s}\right). \tag{1.15}$$

Für schwache Absorptionslinien, also mit  $K^s \ll 1$ , lässt sich die Gl. (1.15) umformen zu

$$K_q^s \cong \frac{k_q c M_q^s}{X_q}.$$
 (1.16)

Die spektrale Empfindlichkeit  $L_{eff}$  folgt aus (1.7) und (1.14):

$$L_{\rm eff} = \frac{cM_q^s}{X_q}.$$
 (1.17)

Die Begrenzung der spektralen Empfindlichkeit auf die resonatorinterne Absorption ist somit durch die Störrate  $X_q$  bestimmt. Wenn die Spontanemission die einzige Störung ist, d.h.  $X_q = B_q N$ , dann ist im stationären Zustand  $B_q \cdot N^s = \gamma$  und für die Empfindlichkeit ergibt sich

$$L_{\rm eff} = \frac{cM_q^s}{\gamma}.$$
 (1.18)

Diese Gleichung stellt die *fundamentale Begrenzung* der spektralen Empfindlichkeit dar. Sie wächst mit der Photonenzahl  $M_q$  und damit auch mit zunehmender Pumprate. Dieses Verhalten wurde z.B. bei Diodenlasern bei kleinen Pumpraten nachgewiesen [6, 50]. Wird die Störung der Laseremission durch die Rayleigh-Streuung verursacht, so wird ein Teil des Lichtfeldes in einer Resonatormode in Frequenz und Phase verschoben. Diese Verschiebung ist allerdings so gering, dass das gestreute Licht in derselben Mode bleibt und als eine Kohärenzstörung wirkt [51]. Die Störrate ist gegeben durch den Anteil des gestreuten Lichts je Zeiteinheit  $X_q = RM_q^s$ . *R* ist die Streurate in der Mode *q*. Ist die Rayleigh-Streuung die dominante Störung der spektralen Dynamik, so ergibt sich die Empfindlichkeit aus Gl. (1.17) zu

$$L_{\rm eff} = \frac{c}{R}.$$
 (1.19)

Die effektive Absorptionsweglänge ist somit unabhängig von der Photonenzahl  $M_q$  und damit auch von der Pumprate. In den Experimenten weisen Festkörperlaser mit einem langen Verstärkungsmedium, Ti:Saphir Laser [52] oder dotierte Faserlaser [8], dieses Verhalten auf.

Zur dritten Gruppe der Störungen gehören verschiedene Nichtlinearitäten dritter Ordnung, z.B. Vier-Wellen-Mischung oder stimulierte Brillouin-Streuung [53]. Die Störrate kann mit  $X_q = D \cdot (M_q^s)^2$  genähert werden, wobei *D* eine vom Feld unabhängige Funktion ist [1]. Gemäß Gl. (1.17) nimmt die spektrale Empfindlichkeit mit ansteigender Lichtleistung in der Mode *q* ab:

$$L_{\rm eff} = \frac{c}{DM_{q}^{s}}.$$
 (1.20)

Die Abhängigkeit von der Pumprate ist oft eine andere als die von der Photonenzahl, da die Bandbreite der Emission sich mit der Pumprate ändern kann. Für einen Farbstofflaser mit homogener Verbreiterung der Verstärkung kann diese Abhängigkeit wie folgt angegeben werden [1]:

$$L_{\rm eff} = c \left(\frac{\pi^2 B_0^2 Q^2}{A^2 D^2 \gamma}\right)^{1/3} \frac{1}{(\eta - 1)^{2/3}}.$$
 (1.21)

Hier ist Q die Halbwertsbreite der Verstärkung (HWHM) und  $\eta = P/P_{thr}$  ist die relative Pumprate. Die gemessene Empfindlichkeit kann allerdings von dieser Gleichung abweichen, da sie für den Idealfall berechnet wurde, dass die Nettoverstärkung im Resonator allein durch das Verstärkungsmedium gegeben ist. Im Experiment ist diese jedoch stark modifiziert z.B. durch die spektrale Abhängigkeit der Spiegelreflektivitäten und ICA. Eingehende Untersuchungen dazu sind in [48] beschrieben. Der dominante begrenzende Mechanismus ist von der Art des verwendeten Lasers abhängig.

#### 1.4 Verwendung verschiedener Lasertypen für ICAS

Abbildung 1.2 zeigt gemessene Abhängigkeiten der effektiven Absorptionsweglängen vom Pumpüberschuss  $\eta$ -1 für verschiedene Lasertypen. Sowohl die Größenordnungen als auch die Art der Abhängigkeit von der Pumprate sind unterschiedlich. Aus der qualitativen Art dieser Abhängigkeit kann auf die Natur der Störrate  $X_q$  (Gl. (1.17)) geschlossen werden.

Ein Anstieg der spektralen Empfindlichkeit wurde beim Diodenlaser beobachtet. Das kann durch den Einfluss der Spontanemission erklärt werden. Die Störrate ist in diesem Fall unabhängig von der Photonenzahl in einzelnen Moden und der Pumprate:  $X_q = BN$ . Die maximal erreichte effektive Absorptionsweglänge liegt bei 40 km und ist durch sehr hohe Resonatorumlaufverluste eines Diodenlasers (90%) bestimmt. Um ICAS betreiben zu können, müssen kommerzielle Diodenlaser noch um einen externen Resonator erweitert werden. Die Emissionsbreite des Lasers ist ziemlich schmal, so dass nur kleine spektrale Bereiche untersucht werden können.

Der Farbstofflaser zeigt eine sinkende Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit vom Pumpüberschuss. Bei diesem Laser sind verschiedene nichtlineare Prozesse, wie Vierwellenmischung oder stimulierte Brillouin-Streuung dominierend [1, 48]. Aus (1.20) ergibt sich für Empfindlichkeit  $L_{\text{eff}} \propto (M_q^s)^{-1}$ .

In einigen Experimenten wurde gezeigt, dass Festkörperlaser, wie Ti-Saphir und Faserlaser, nur schwache Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit vom Pumpparameter aufweisen. Dies kann verstanden werden, wenn die Störung durch spontane Streuprozesse wie Rayleigh-Streuung bestimmt ist. Diese Streuung findet hauptsächlich im dichten Medium des Verstärkers statt, in dem lokale Inhomogenitäten das Licht in alle Raumrichtungen streuen. Im Glas sind es lokale Brechungsindexschwankungen [54]. Die Streurate wird durch den Füllfaktor des Resonators mit dem aktiven Medium stark beeinflusst. Bei Faserlasern füllt das Verstärkungsmedium den Resonator etwa zur Hälfte aus; es ist dementsprechend ein großer Einfluss der Rayleigh-Streuung zu erwarten. Verringerung des Füllfaktors des Resonators mit dem Verstärkungsmedium, d.h. Verkürzung der relativen Länge des Verstärkungsmediums im Resonator, mindert diesen Einfluss auf die spektrale Dynamik. Im Experiment aus Abb. 1.2 ist der Füllfaktor beim Ti:Saphir-Laser ca. 10 mal kleiner als beim Faserlaser, entsprechend größer ist die spektrale Empfindlichkeit. Bei einem Farbstofflaser ist der Füllfaktor noch um 2 Größenordnungen geringer und der Einfluss der Rayleigh-Streuung kann vernachlässigt werden [48, 49].



Abbildung 1.2. Gemessene spektrale Empfindlichkeit  $L_{\text{eff}}$  auf ICA und Sättigungszeit  $t_s$  vs. Pumpüberschuss  $\eta - 1$  bei verschiedenen Lasertypen [1, 13].

Die Empfindlichkeit eines Tm<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers liegt bei ungefähr 3 km und ist etwa 10 mal kleiner als die eines Nd<sup>3+</sup>- oder Yb<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers. Das liegt wahrscheinlich an einer vergleichsweise schlechten Qualität von Tm<sup>3+</sup>-dotietren Fasern, die zu hohen Resonatorverlusten führt [13] und sich auch in einer höheren Rate der Rayleigh-Streuung äußert. Eine starke Änderung der spektralen Empfindlichkeit mit der Pumprate wurde auch nicht beobachtet.

Andere Experimente zeigten dagegen, dass die Empfindlichkeit von Faserlasern von der Pumprate jedoch abhängig sein kann [11]. Ferner wurde auch eine Verringerung der Empfindlichkeit mit steigenden Resonatorverlusten gemessen (Kap. 3.3.2). Diese Ergebnisse können nicht durch den Einfluss der Rayleigh-Streuung erklärt werden und deuten somit darauf hin, dass auch andere Mechanismen die Empfindlichkeit gegen die resonatorinterne Absorption begrenzen können. Einer der wichtigen nichtlinearen Prozesse in einem Festkörperlaser ist die entartete Vierwellenmischung, die zu einer räumlichen Inhomogenität der Verstärkung führt, so genanntes räumliches Lochbrennen. Dieser Effekt tritt umso stärker hervor, je größer der Füllfaktor des Resonators mit dem aktiven Medium ist.

#### 1.5 Räumliche Inhomogenität der Verstärkung

Räumliche Inhomogenität der Verstärkung stellt eine ungleichmäßige Sättigung der Inversion im aktiven Medium in Lasern mit stehenden Wellen dar. Abbildung 1.3 zeigt schematisch die Intensitätsverteilung und die Inversion im linearen Resonator eines 2-Moden-Lasers.



Abbildung 1.3. Schematische Darstellung der Inversion (oben) und der Intensitätsverteilung der Stehwellen von zwei Resonatormoden.

Der Lichtfluss einer Mode kann nur dann verstärkt werden, wenn für die Intensität der Mode am Ort z gilt:  $I(z) \neq 0$ . Die Inversion wird an den Stellen der Bäuche der stärkeren Mode ( $q_1$  in Abb. 1.3), wo deren maximale Verstärkung erfolgt, gesättigt und bleibt unberührt an den Stellen der Knoten, wo die Mode  $q_1$  keine Verstärkung erfährt. Einer zweiten schwächeren Mode  $q_2$  steht diese unbenutzte Inversion somit zur Verfügung. Erfährt diese Mode einen zusätzlichen Verlust aufgrund der Absorption, wird er durch den angestiegenen zu ihr gehörenden *eigenen* Inversionsanteil teilweise kompensiert. Die durch diesen Prozess entstandene Entkopplung der Moden kann die spektrale Empfindlichkeit beeinträchtigen.

Die räumliche Leistungsverteilung des Lichtes in einer Mode kann in einem linearen Resonator folgendermaßen

$$\psi_q(z) = 1 - \cos(k_q z), \text{ mit } k_q = \frac{2\pi q}{L}$$
 (1.22)

ausgedrückt werden. Mit L wird in diesem Abschnitt die Resonatorlänge bezeichnet, q ist die Anzahl der in den Resonator passenden halben Wellenlängen. Ersetzen der Inversion und der Pumprate im Ratengleichungssystem (1.9), (1.10) durch ihre ortsabhängigen Dichten ergibt folgende Beschreibung der Laserdynamik [55, 56]:

$$\dot{M}_{q} = B_{q}(M_{q} + 1) \int_{0}^{L} dz [\psi_{q}(z)N(z)] - \gamma(1 + \beta_{q})M_{q}, \qquad (1.23)$$

$$\dot{N}(z) = P(z) - AN(z) - N(z) \sum_{q} B_{q} M_{q} \psi_{q}(z).$$
(1.24)

Der Summand  $\beta_q = k_q c / \gamma$  berücksichtigt zusätzliche Verluste in einzelnen Moden durch die schmalbandige Absorption im Resonator. Ferner wurde angenommen, dass die Störung des resonatorinternen Feldes durch Spontanemission verursacht wird:  $X_q = BN$ .

Wird die Form der Leistungsverteilung (1.22) in die Gleichung (1.23) eingesetzt, so sieht man, dass die Emission in Mode q aus zwei Teilen besteht: der eine stammt aus der über die gesamte Resonatorlänge gemittelten Inversion, der andere aus der zur Ortsfrequenz der Mode passenden Inversion. Es ist somit zweckmäßig, die Inversion und die Pumprate nach diesen Ortsfrequenzen nach Fourier zu entwickeln:

$$N(z,t) = N_0 + 2\sum_{i=1/2,1,...}^{\infty} N_i \cos(k_i z),$$
(1.25)  

$$N_i(t) = \frac{1}{L} \int_0^L dz N(z) \cos(k_i z),$$
  

$$P(z,t) = P_0 + 2\sum_{i=1/2,1,...}^{\infty} P_i \cos(k_i z),$$
  

$$P_i(t) = \frac{1}{L} \int_0^L dz P(z) \cos(k_i z).$$

Dabei ist  $k_i$  so definiert wie  $k_q$  in (1.22). Jetzt setzt man (1.22) in (1.23) ein und benutzt die Fouriertransformation (1.25):

$$\dot{M}_{q}(t) = B_{q}(M_{q}+1)\int_{0}^{L} dz \{N(z)[1+\cos(k_{q}z)]\} - \gamma(1+\beta_{q})M_{q}$$
$$= B_{q}(M_{q}+1)L(N_{0}-N_{q}) - \gamma(1+\beta_{q})M_{q}.$$
(1.26)

Die zeitliche Änderung der Fourierkomponenten der Inversion ist gegeben durch

$$\dot{N}_{i}(t) = \frac{1}{L} \int_{0}^{L} dz \dot{N}(z) \cos(k_{i}z) = \frac{1}{L} \int_{0}^{L} dz \cos(k_{i}z) \left\{ P - N(z) \left[ A + \sum_{q} B_{q} M_{q} (1 - \cos(k_{q}z)) \right] \right\}$$

$$= P_{i} - N_{i} \left( A + \sum_{q} B_{q} M_{q} \right) + \sum_{q} \frac{B_{q} M_{q}}{2} \frac{1}{L} \int_{0}^{L} dz N(z) \left\{ \cos[(k_{i} + k_{q})z] + \cos[(k_{i} - k_{q})z] \right\}$$

$$= P_{i} - N_{i} \left( A + \sum_{q} B_{q} M_{q} \right) + \sum_{q} \frac{B_{q} M_{q}}{2} (N_{q+i} + N_{|q-i|}). \quad (1.27)$$

An Gl. (1.26) ist abzulesen, dass die Leistung in der Mode q nur durch die zu ihrer Ortsfrequenz passenden Inversionskomponente  $N_q$  direkt beeinflusst wird. Jede Inversionskomponente wird allerdings von den Inversionskomponenten  $N_{q+i}$  und  $N_{|q-i|}$  der Summen- und Differenzfrequenzen beeinflusst.

Aus (1.26) kann man die Schwellinversion ermitteln, ab der die stimulierte Emission in die Mode mit der größten Verstärkung  $B_0$  die breitbandigen Verluste  $\gamma$  kompensiert. Die schmalbandige Absorption und die Spontanemission werden dabei vernachlässigt:

$$B_0 M_0 L N_0 = \gamma M_0 \qquad \Longrightarrow \qquad N_{0,\text{thr}} = \frac{\gamma}{B_0 L}.$$

Die Pumpleistung, die nötig ist, um diese Inversion zu erzeugen, wird aus (1.27) erhalten mit  $\dot{N}_0 = 0$ :

$$0 = P_{0,\text{thr}} - N_{0,\text{thr}} A \qquad \Longrightarrow \qquad P_{0,\text{thr}} = \frac{A\gamma}{B_0 L}.$$

Jetzt wird zu den normierten Größen übergegangen. Zunächst werden der Pumpparameter  $\eta$ , die auf die Schwelle normierte Inversion  $n_i$  und die auf ihr Maximum normierte Verstärkung  $b_q$  eingeführt:

$$\eta_i = P_i / P_{0,\text{thr}},$$

$$n_i = N_i / N_{0,\text{thr}},$$

$$b_q = B_q / B_0.$$
(1.28)

Weiter werden die Photonenzahlen und die Zeit normiert und der Dämpfungsparameter G

eingeführt:

$$m_{q} = M_{q}B_{0}/A,$$

$$\tau = tA \qquad \Longrightarrow \qquad \frac{d}{d\tau} = \frac{1}{A}\frac{d}{dt},$$

$$G = \gamma/A.$$
(1.29)

Das Einsetzen aller Normierungen in die Gl. (1.26) und (1.27) ergibt:

$$\frac{d}{d\tau}m_q(\tau) = G[b_q(m_q + \frac{B_0}{A})(n_0 - n_q) - (1 + \beta_q)m_q], \qquad (1.30)$$

$$\frac{d}{d\tau}n_i(\tau) = \eta_i - n_i(1 + \sum_q b_q m_q) + \sum_q \frac{b_q m_q}{2}(n_{q+i} + n_{|q-i|}).$$
(1.31)

In Gl. (1.30) ist 
$$q = \left(q_0 - \frac{\mathbf{N} - 1}{2}\right) \dots \left(q_0 + \frac{\mathbf{N} - 1}{2}\right)$$
, in Gl. (1.31) ist  $i = 0 \dots \infty$ .

Aus (1.30) sieht man, dass auf die Photonenzahl  $m_q$  in der Mode q nur die mittlere Inversion  $n_0$  und die Inversionskomponente mit der gleichen Ortsfrequenz  $n_q$  direkten Einfluss haben. Auf die Dynamik der  $n_q$  haben neben  $n_0$  und  $n_q$  selbst alle möglichen Summen- und Differenzfrequenzen  $n_{q+q'}$  und  $n_{|q-q'|}$  Einfluss, wobei q und q' die Indizes von oszillierenden Moden sind.

Zur Vereinfachung des Ratengleichungssystems werden nur die Inversionskomponenten  $n_q$  berücksichtigt, deren Ortsfrequenz mit der einer oszillierenden Mode übereinstimmt. Es wird unterdessen angenommen, dass die räumliche Verteilung des Pumplichtes im Vergleich zur Laserwellenlänge nur langsam variiert. In den Ratengleichungen taucht deshalb nur die mittlere Pumprate  $\eta = \eta_0$  auf. Bei **N** oszillierenden Moden ergeben sich dann zusammen mit (1.30) folgende 2**N**+1 Ratengleichungen:

$$\frac{d}{d\tau}m_q(\tau) = G[b_q(m_q + \frac{B_0}{A})(n_0 - n_q) - (1 + \beta_q)m_q], \qquad (1.30)$$

$$\frac{d}{d\tau}n_0(\tau) = \eta_0 - n_0(1 + \sum_q b_q m_q) + \sum_q b_q m_q n_q, \qquad (1.32)$$

$$\frac{d}{d\tau}n_{i}(\tau) = -n_{i}(1 + \sum_{q}b_{q}m_{q}) + \frac{b_{i}m_{i}n_{0}}{2}.$$
(1.33)

Um den Einfluss der räumlichen Inhomogenität auf die Empfindlichkeit von Absorptionsmessungen im Laserresonator abzuschätzen, kann aus Gleichungen (1.30), (1.32), (1.33) die spektrale Empfindlichkeit bestimmt werden:

$$L_{\rm eff} = \frac{K}{k} = \frac{\ln(M_q/M_{q,k})}{k} = \frac{\ln(m_q/m_{q,k})}{k}.$$
 (1.34)

Hier ist  $m_{q,k}$  die normierte Photonenzahl mit ( $\beta_{q,k} = kc/\gamma$ ) und  $m_q$  ohne schmalbandige Absorption ( $\beta_q = 0$ ) im Resonator. Die breitbandigen Resonatorverluste  $\gamma$  werden für alle Moden gleich angenommen.

Aus diesen Ratengleichungen (Gl. (1.30), (1.32), (1.33)) lassen sich stationäre Werte für die normierten Photonenzahlen in den einzelnen Moden und die normierte Inversion ableiten. Mit  $\dot{m}_q = 0$  folgt aus Gl. (1.30):

$$n_q = n_0 - \frac{1 + \beta_q}{b_q} \frac{m_q}{(m_q + B_0/A)}.$$
 (1.35)

Nach Einsetzen in Gl. (1.32) und mit  $\dot{n}_q = 0$  ergibt sich der stationäre Wert für  $n_0$ :

$$n_0 = \eta_0 - \sum_q m_q (1 + \beta_q) \frac{m_q}{m_q + B_0 / A}.$$
 (1.36)

Auflösen von Gl. (1.33) nach  $m_i \iff m_q$  und Einsetzen von Gl. (1.35) gibt:

$$m_{q} = \frac{2}{n_{0}b_{q}} \left( n_{0} - \frac{1 + \beta_{q}}{b_{q}} \frac{m_{q}}{m_{q} + B_{0}/A} \right) \left( 1 + \sum_{j} b_{j}m_{j} \right).$$
(1.37)

Die Gleichungen (1.34) und (1.37) ergeben:

$$L_{\rm eff} = -\ln \left( \frac{n_0 - \frac{1 + \beta_{q,k}}{b_q} \frac{m_{q,k}}{m_{q,k} + B_0 / A}}{n_0 - \frac{1}{b_q} \frac{m_q}{m_q + B_0 / A}} \right) \frac{c}{\beta_{q,k} \gamma}.$$
 (1.38)

Wenn die stimulierte Emission viel stärker als die Spontanemission ist, d.h.  $m_q, m_{q,k} >> B_0/A$  bzw.  $m_q/(m_q + B_0/A) \approx 1$ , und nur die Mitte des Spektrums in Betracht gezogen wird ( $b_q = 1$ ), kann der Logarithmus in der Gl. (1.38) in die Reihe entwickelt werden (mit:  $\beta_{q,k} < (n_0 - 1)$  und  $n_0 > 1$ ):

$$L_{\rm eff} \approx c \frac{-\ln\left(1 - \frac{\beta_{q,k}}{n_0 - 1}\right)}{\beta_{q,k}\gamma} \approx \frac{c}{\gamma} \cdot \frac{1}{n_0 - 1}.$$
 (1.39)

Dabei wurde nur der erste Summand der Reihe berücksichtigt. Ohne räumliche Inhomogenität der Verstärkung ist  $n_0$  genau 1, die Abweichung von 1 wird geringer, je mehr Moden oszillieren. Bei einer großen Zahl der oszillierenden Moden (**N** >> 1) und bei Vernachlässigung der Spontanemission kann  $n_0$  abgeschätzt werden zu [57]:

$$\frac{1 - 1/\eta}{2\mathbf{N}} < (n_0 - 1) < \frac{1 - 1/\eta}{1\mathbf{N}}.$$
(1.40)

Dieser Ausdruck gilt nur unter der Annahme, dass sich die Modenzahl **N** mit der Pumprate  $\eta$  und den Resonatorverlusten  $\gamma$  nicht ändert. Aus der oberen Grenze für  $n_0$  lässt sich mit (1.39) eine analytische Abschätzung für die spektrale Empfindlichkeit geben:

$$L_{\rm eff} \approx \frac{c}{\gamma} \cdot \frac{\mathbf{N}}{1 - 1/\eta}.$$
 (1.41)

An Gl. (1.41) ist abzulesen, dass die Wirkung der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung auf die Empfindlichkeitsbegrenzung:

- der Anzahl der oszillierenden Moden reziprok ist,
- mit steigenden Resonatorverlusten steigt,
- zunächst mit der Pumprate  $\eta$  zunimmt und für große Werte von  $\eta$  unabhängig vom Pumpparameter ist.

Diese Empfindlichkeitsbegrenzung durch räumliche Inhomogenität der Verstärkung (Gl. (1.41)) kann mit der fundamentalen Empfindlichkeitsbegrenzung (Gl. (1.18)) verglichen werden. Beide Empfindlichkeitsbegrenzungen sind gleich groß, wenn  $L_{\text{eff,SE}} = L_{\text{eff,RI}}$  (Der Index SE steht für Spontanemission und RI für räumliche Inhomogenität). Mit Gleichungen (1.18) und (1.41) ergibt sich:

$$\frac{cM_q}{\gamma} = \frac{c}{\gamma} \frac{\mathbf{N}}{1 - 1/\eta} \qquad \Leftrightarrow \qquad M_q = \frac{\mathbf{N}}{1 - 1/\eta}. \tag{1.42}$$

Mit der Annahme eines für alle Moden gleichen Verstärkungskoeffizienten lässt sich die Gesamtphotonenzahl im Resonator angeben zu [1]

$$\sum_{q} M_{q}^{s} \cong \frac{A}{B_{0}} (\eta - 1), \qquad (1.43)$$

Demnach bei Gleichverteilung der Photonenzahlen in allen Moden ergibt sich für  $M_q$ :

$$M_q \approx \frac{1}{\mathbf{N}} \frac{A}{B_0} (\eta - 1), \qquad (1.44)$$

und Gl. (1.42) wird zu:

$$\frac{\eta \mathbf{N}^2}{(\eta - 1)^2} \frac{B_0}{A} = 1.$$
(1.45)

Ist der Ausdruck im linken Teil der Gl. (1.45) größer als 1, liegt die Begrenzung durch Spontanemission vor. Dies ist bei einer großen Anzahl der oszillierenden Moden und kleinen Pumpraten zu erwarten. Andernfalls ist das Verhältnis der Parameter des aktiven Mediums  $B_0/A$  entscheidend.

Wirken beide Mechanismen, Spontanemission und räumliche Inhomogenität, so sind die Ratengleichungen (1.30), (1.32), (1.33) analytisch nicht lösbar. Numerische Lösung liefert dann stationäre Emissionsspektren und erlaubt die Bestimmung der spektralen Empfindlichkeit. Abbildung 1.4 zeigt die mit Gl. (1.38) berechnete Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit  $L_{eff}$  vs. Pumpüberschuss  $\eta - 1$  für eine Absorptionslinie bei verschiedener Anzahl der oszillierenden Moden, wobei folgende Simulationsparameter verwendet wurden:

 $\gamma = 1,5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1},$   $A = 10^3 \text{ s}^{-1},$  $B/A = 3,3 \cdot 10^{-9},$ 

konstante (spektral flache) Verstärkung  $b_q = 1$ ,

$$L_{\text{Resonator}} = 2 \text{ m} \Rightarrow \Delta v_{\text{FSR}} = 75 \text{ MHz}$$

parabolischer Verlustverlauf wegen der resonatorinternen Ankoppellinse (s. Kap. 3.2)  $\beta_q = k_q c / \gamma + Z(q - q_0)^2$  mit  $Z = 2,4 \cdot 10^{-10}$ , HWHM = 45000 Moden  $\Leftrightarrow 3,4 \cdot 10^{12}$  s<sup>-1</sup>,

Lorentz-förmige Absorptionslinie im Zentrum des Emissionsspektrums, FWHM = 6 GHz.



Abbildung 1.4. Die aus der Simulation ermittelte Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit  $L_{\text{eff}}$  vom Pumpüberschuss  $\eta - 1$ . Zentrale Absorptionslinie mit  $\beta_{q_0,k} = 9 \cdot 10^{-5} \iff k = 4,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^{-1}$ . Durchgezogene Linien: Abschätzung nach Gl. (1.41). Gestrichelte vertikale Linien markieren jeweils das Maximum der Empfindlichkeit [10].

Dicht an der Schwelle steigt die Empfindlichkeit mit  $\eta$ . In diesem Bereich liegt die Begrenzung durch Spontanemission vor. Weit über der Schwelle nimmt die Empfindlichkeit mit  $\eta$  ab und wird bei größeren Werten der Pumprate von ihr unabhängig. Der Verlauf wird von der analytischen Abschätzung (Gl. (1.41)) für höhere Pumpraten gut genähert (durchgezogene Linien). Die Empfindlichkeit erreicht ein Maximum, wenn die Beiträge zur Begrenzung durch Spontanemission und räumliche Inhomogenität gleich groß sind. Der entsprechende Pumpparameter nach der Abschätzung (1.42) ist jeweils durch gestrichelte vertikale Linien markiert und stimmt mit der analytischen Abschätzung in Gl. (1.45) überein.

#### 1.6 Rayleigh-Streuung

Zusätzlich wird in einem Faserlaser die Empfindlichkeit durch die Rayleigh-Streuung begrenzt, weil das aktive Medium einen großen Teil des Resonators ausfüllt. Rayleigh-Streuung wird durch die Inhomogenitäten im Ausbreitungsmedium verursacht.

Das Lichtfeld regt die elementaren Dipole des Mediums (Atome und Moleküle) zum Schwingen an, die ihrerseits das Licht in alle Raumrichtungen abstrahlen. In einem isotropen Medium, dessen Dipolabstände deutlich kleiner als die Wellenlänge des Lichtes sind, interferieren diese emittierten Lichtwellen nur in die Vorwärtsrichtung konstruktiv. Das Licht wird nicht abgeschwächt und breitet sich so verlustfrei mit der Geschwindigkeit c/n durch das Medium aus (*n* ist der Brechungsindex des Mediums).

Weist das Medium aber lokale Brechungsindexschwankungen auf, dann wird die perfekte Vorwärtsstreuung gestört. Ist die Ausdehnung dieser Schwankungen wesentlich kleiner als die Wellenlänge des Lichts, so wird ein Teil des Lichts in andere Raumrichtungen gestreut. Für die Abschwächung des Lichts durch die Rayleigh-Streuung gilt:

$$\alpha_{\text{Rayleigh}} = \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left\langle \left(\Delta \varepsilon\right)^2 \right\rangle \cdot V = \frac{C_R}{\lambda^4}.$$
 (1.46)

Dabei bezeichnet  $\lambda$  die Lichtwellenlänge und  $\langle (\Delta \varepsilon)^2 \rangle$  die mittlere quadratische Schwankung der Dielektrizitätskonstanten  $\varepsilon$  in einem Volumen *V*, die durch die Temperatur- und Volumen-Schwankungen verursacht wird. Der Rayleigh-Koeffizient *C<sub>R</sub>* wird in der Literatur in der Einheit  $(dB/km)(\mu m)^4$  angegeben.

In besten passiven Fasern wird die Dämpfung  $\delta$  durch die Rayleigh-Streuung bis auf 0,15 dB/km reduziert [58]. In einer dotierten Faser ist aber die Dämpfung  $\delta$  deutlich höher und kann mehr als 10 dB/km betragen. Die gesamte Rayleigh-Streurate errechnet sich mit diesem Wert zu

$$R_{\text{ges}} \cong 0,23\delta c \approx 7 \cdot 10^5 \,\text{s}^{-1}. \tag{1.47}$$

Um die daraus resultierende Grenze der spektralen Empfindlichkeit für ICAS nach Gl. (1.19) zu berechnen muss noch berücksichtigt werden, dass nur der Anteil der Streuung die Kohärenz der Mode stört, der in den Raumwinkel der Divergenz des Laserstrahls erfolgt. Streuung in alle anderen Raumrichtungen erhöht lediglich die Verlustrate  $\gamma$ . Bei isotroper Winkelverteilung der Streuung und bei Berücksichtigung von Vorwärts- und Rückwärtsstreuung sowie des Füllfaktors des Resonators mit dem aktiven Medium  $(L_{\text{Medium}}/L_{\text{Resonator}})$  ergibt sich die Streurate in den Raumwinkel der numerischen Apertur der Faser *NA* (s. Kap. 2) zu:

$$R = R_{\text{ges}} \cdot 2 \cdot \frac{L_{\text{Medium}}}{L_{\text{Resonator}}} \cdot \frac{1 - \cos(\arcsin(NA))}{2}.$$
 (1.48)

Für eine Glasfaser mit NA = 0,2, die den Resonator zur Hälfte ausfüllt  $(L_{\text{Medium}}/L_{\text{Resonator}} = 0,5)$ , folgt aus Gl. (1.48) und (1.19):

 $L_{\rm eff} \approx 40 \, \rm km$ .

Dieser Wert stellt nur eine grobe Abschätzung dar, da sich die Streurate in verschiedenen Fasern sehr stark unterscheiden kann.

Abbildung 1.5 stellt schematisch die Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit vom Pumpüberschuss bei der Zusammenwirkung von verschiedenen begrenzenden Mechanismen dar. Dominiert die Spontanemission (SE) als Störung der Laseremission, dann steigt die Empfindlichkeit mit dem Pumpüberschuss. Aus den Gleichungen (1.44) und (1.18) folgt in diesem Fall  $L_{eff} \sim (\eta - 1)$ . Wirkt die räumliche Inhomogenität der Verstärkung, sinkt die Empfindlichkeit mit der Pumprate (s. Gl. (1.41)). Der Einfluss der Rayleigh-Streuung ist unabhängig vom Pumpparameter. Im Unterschied zu den beiden anderen Effekten erfährt deren Wirkung keine Änderung bei Variation der Resonatorverluste.



Abbildung 1.5. Begrenzung der spektralen Empfindlichkeit durch 3 Mechanismen. SE – Spontanemission, RI – räumliche Inhomogenität, RS – Rayleigh-Streuung,  $\gamma$  – Resonatorverluste.

Welcher Begrenzungsmechanismus entscheidend ist, hängt von den Laserparametern ab (z.B. Verlust- und Pumprate). Bei dem gegebenen Pumpüberschuss ist der Effekt dominierend, der die kleinste Empfindlichkeit ergibt. Nahe an der Schwelle ist es die Spontanemission. Wird die Pumpleistung erhöht, kann die Rayleigh-Streuung die Hauptrolle bei der Begrenzung spielen. Die spektrale Empfindlichkeit bleibt dann in einem gewissen Pumpparameterbereich konstant. Bei weiterer Steigerung der Pumprate wird die räumliche Inhomogenität dominierend. Erhöhen sich die Resonatorumlaufverluste im Laser, so sinkt die spektrale Empfindlichkeit, wie es aus den Gleichungen (1.18) und (1.41) ersichtlich ist. Bei hinreichend großen Verlusten tritt möglicherweise die Begrenzung durch die Rayleigh-Streuung gar nicht auf (s. Abb. 1.5 bei  $\gamma_2$ ). Der Schnittpunkt der beiden Kurven SE und RI kennzeichnet dann den Pumpüberschuss, bei dem die bei gegebenen Laserparametern maximale Empfindlichkeit erreicht werden kann, wie in Abb. 1.4.

Die Identifizierung des dominierenden Mechanismus der Empfindlichkeitsbegrenzung ist wichtig für die Optimierung der Laserparameter mit dem Ziel die höchste Empfindlichkeit zu erreichen. Dafür kann z.B. die Untersuchung der spektralen Dynamik behilflich sein.

# **Kapitel 2**

## **Dotierte Glasfasern**

Die mit Faserlasern erzielte Empfindlichkeit auf die Absorption im Laserresonator ist etwa drei Größenordungen kleiner als die spektrale Empfindlichkeit eines Farbstofflasers und eine Größenordnung kleiner als die eines Ti-Saphir-Lasers. Nichtsdestotrotz bieten Faserlaser einige Vorteile gegenüber den anderen Lasertypen bei Anwendung für ICAS. Die entscheidenden von ihnen sind breite Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich und die Führung des Pump- und Laserlichtes im kleinen Faserkern über fast beliebig große Faserlängen. Damit ist eine nahezu optimale Überlappung von Pump- und Lasermode gewährleistet. Die Aufrecherhaltung hoher Pumpleistungsdichten über große Längen erlaubt eine effektive Ausnutzung auch sehr schwacher Absorptionen zur Pumpanregung. Diese Eigenschaften führen zu niedrigen Laserschwellen von einigen Milliwatt und ausreichender Verstärkung auch an den Flanken der Emissionslinien, infolgedessen die Emission von Faserlasern eine große spektrale Breite besitzt. Deswegen sind die Absorptionsmessungen von verschiedenen Molekülarten mit einem einzigen experimentellen Aufbau möglich. Vielmoden-Faserlaser lassen sich einfach auf die durch den Absorber vorgegebene Wellenlänge mit den resonatorinternen selektiven Elementen abstimmen. Die genannten Vorteile legen es nahe, preiswerte und kompakte ICAS-Spektrometer basiert auf Faserlasern zu konstruieren

#### 2.1 Lichtführung in optischen Fasern

Optische Glasfasern bestehen aus Kern und Mantel. Dabei ist der Brechungsindex des Kerns größer als der des Mantels:  $n_{\rm K} > n_{\rm M}$ . Das Licht wird im Kern der Faser durch die Totalreflexion geführt (Abb. 2.1). Bei einem zylindrischen radialsymmetrischen Aufbau beträgt sein Durchmesser 2*a* typischerweise einige Mikrometer, der Durchmesser des Mantels liegt im Bereich von etwa einem zehntel Millimeter. Die meisten Fasern sind von einer dünnen Kunststoffhülle umgeben, die die Faser vor dem Brechen durch mechanische Belastungen schützt.

Nur das Licht wird geführt, das unter einem Winkel  $\alpha$  in den Kern eintritt, der kleiner ist als ein bestimmter Winkel  $\alpha_{max}$ . Wird dieser Wert überschritten, ist die Bedingung für die Totalreflexion an der Grenzfläche zwischen Kern und Mantel nicht mehr erfüllt und das Licht tritt aus dem Kern aus. Der Sinus von  $\alpha_{max}$  wird als numerische Apertur *NA* der Faser bezeichnet, mit  $n_{\text{Luft}} \approx 1$  folgt aus dem Brechungsgesetz:

$$NA = \sin \alpha_{\max} = \sqrt{n_{\rm K}^2 - n_{\rm M}^2} \tag{2.1}$$

Bei Stufenindexfasern ändert sich der Brechungsindex sprunghaft zwischen Kern und Mantel, das Brechungsindexprofil hat eine Kastenform. Da die Größe des Kerns in der Größenordnung der Wellenlänge liegt, reicht die einfache geometrische Beschreibung nicht aus. Die Wellennatur des Lichtes muss dann berücksichtigt werden. Ausbreitungsgeschwindigkeit, transversale Intensitätsverteilung und Polarisation des geführten Lichtes definieren eine Mode der Faser. Moden ergeben sich als Lösungen der Maxwellgleichungen für einen zylindrischen Wellenleiter unter Berücksichtigung der Randbedingungen an der Grenzfläche zwischen Kern und Mantel. Die Lösung dieses Problems ist im Allgemeinen nur numerisch möglich und wird z.B. in [59] ausführlich behandelt.



Abbildung 2.1. Schematischer Aufbau und Lichtführung in einer Glasfaser.

Für jede Wellenlänge  $\lambda$  gibt es eine endliche Anzahl von Fasermoden, die LP-Moden genannt werden (LP steht für linear polarisiert). Die Eigenschaften der von der Faser geführten Moden werden als Funktion des Faserparameters V – einer verallgemeinerten Frequenz – dargestellt:

$$V = ak_{0}\sqrt{n_{\rm K}^{2} - n_{\rm M}^{2}} = \frac{2\pi a}{\lambda} NA.$$
 (2.2)

Hier ist  $k_0 = 2\pi/\lambda$  die Wellenzahl im Vakuum.

Die Moden breiten sich in einer Faser mit der Ausbreitungskonstanten  $\beta$  aus, die in
der Regel für verschiedene Moden unterschiedlich ist. Häufig wird die normierte Ausbreitungskonstante definiert:

$$b = \frac{\beta^2 / k_0^2 - n_M^2}{n_K^2 - n_M^2}$$
(2.3)

Da für die geführten Moden  $n_M^2 < \beta^2 / k_0^2 < n_K^2$  gilt, lautet diese Bedingung für *b*: 0 < b < 1. In der Abb. 2.2 ist die normierte Ausbreitungskonstante für einige Moden niedriger Ordnung aufgetragen. Unterschreitet die verallgemeinerte Frequenz *V* einen für jede Mode eigenen Wert, so ist für diese Mode b = 0 und sie wird nicht mehr geführt. D.h., es gibt für jede Mode (außer der Grundmode LP<sub>01</sub>!) eine charakteristische Abschneidewellenlänge (engl.: cut off)  $\lambda_{cutoff}$ , oberhalb deren sie sich in der Faser nicht ausbreiten kann. Liegt der Parameter *V* im Bereich 0 < V < 2,4048, so wird nur die Grundmode geführt. Die Faser ist für dieses Licht einmodig (oder "single-mode"). Die Abschneidewellenlänge ergibt sich aus dieser Bedingung und (2.2) zu:

$$\lambda_{\rm cutoff} = \frac{2\pi a}{2,4048} NA \tag{2.4}$$



Abbildung 2.2. Normierte Ausbreitungskonstante b gegen die verallgemeinerte Frequenz V [60].

Fasern, die im optischen Bereich einmodig betrieben werden sollen, müssen demnach einen relativ kleinen Kern besitzen. Typische Kerngrößen liegen im Bereich zwischen 2 µm und 12 µm. Fasern mit kleineren Kerndurchmessern sind technisch schwer herzustellen. Die Forderung nach Einmodigkeit bei möglichst kleinen Wellenlängen führt zu schwach führenden Fasern, d.h. denen mit  $n_{\rm M} \approx n_{\rm K}$  oder:

$$(n_{\rm K} - n_{\rm M})/n_{\rm M} << 1.$$

Typische einmodige Fasern haben Brechungsindexdifferenzen  $n_{\rm K} - n_{\rm M} \approx 0,001$  und numerische Aperturen NA = 0,10 - 0,30.

In einer perfekt zylindersymmetrischen Faser sind die Ausbreitungskonstanten  $\beta$  einer Mode bezüglich der Polarisation entartet, d.h. ein Lichtpuls kann sich ohne Modendispersion in der Faser ausbreiten. Für die LP<sub>01</sub>-Grundmode gilt näherungsweise [61]:

$$\beta = k_0 \sqrt{n_{\rm K}^2 - NA^2 \cdot \frac{\left(1 + \sqrt{2}\right)^2}{\left(1 + \sqrt[4]{4 + V^4}\right)^2}}.$$
(2.5)

Abweichungen von der Kreissymmetrie der Faser heben diese Entartung auf, da V eine Funktion des Faserkerndurchmessers ist. Bei einem elliptischen Kern sind die Ausbreitungskonstanten der in Richtung der beiden Hauptachsen polarisierten  $LP_{01}^{x}$  bzw.  $LP_{01}^{y}$  Moden nach Gl. (2.5) verschieden. Die Faser ist dann stark doppelbrechend. Im Zusammenhang mit der Nachrichtenübertragung durch Lichtwellenleiter wird dies als Polarisationsmoden-Dispersion (PMD) bezeichnet. Als Maß für die Doppelbrechung kann die Brechungsindexdifferenz

$$D = \left| n_x - n_y \right| \tag{2.6}$$

angegeben werden. Typische Werte für *D* liegen im Bereich  $10^{-9}$  bis  $10^{-4}$  [62]. Die kleinsten Werte für *D* beschreiben Fasern mit der besten realisierbaren Zylindersymmetrie, große Werte ( $10^{-4}$ ) beziehen sich auf polarisationserhaltende Fasern (elliptischer Kern). Zur Doppelbrechung trägt auch Spannungsdoppelbrechung bei, die durch Biegung oder Torsion der Faser oder durch unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizienten von Kern- und Mantelmaterial entsteht [63, 64].

## 2.2 Dotierungen von optischen Glasfasern mit Nd<sup>3+</sup>, Er<sup>3+</sup> und Yb<sup>3+</sup>

In den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurden Fasern mit Nd-, Er- und Yb-Dotierungen verwendet. Die Elemente Nd, Er und Yb gehören zu der Reihe der Seltenerdmetalle oder Lanthanoide, die sich von Lanthan (<sup>57</sup>La) bis Lutetium (<sup>71</sup>Lu) erstreckt. Als Dotierung in einem Wirtsmaterial liegen sie meist dreifach ionisiert vor. Die Elektronenkonfiguration lautet somit:  $[Ar]4s^24p^64d^{10}4f^x5s^25p^6$ . [Ar] steht dabei für die abgeschlossenen Schalen des Edelgases Argon und *x* ändert sich je nach Element zwischen 0 und 14.



Abbildung 2.3. Energieniveauschemata des Nd<sup>3+</sup>-, Yb<sup>3+</sup>- und Er<sup>3+</sup>-Ions. Durchgezogene horizontale Linien stellen die Stark-Niveaus dar. Die Verbreiterung durch das Glasmaterial ist grau unterlegt.

Abbildung 2.3 zeigt die Termniveauschemata von Nd<sup>3+</sup>-, Er<sup>3+</sup>- und Yb<sup>3+</sup>-Ionen mit an dem Laserprozess beteiligten Energiezuständen. Die Energiezustände der Ionen werden in der Notation <sup>2S+1</sup>L<sub>J</sub> angegeben. *S* bezeichnet den Gesamtspin, *L* den Gesamtbahndrehimpuls und *J* den Gesamtdrehimpuls des Elektronensystems. Das Nd<sup>3+</sup>-Ion hat 3 4*f*-Elektronen, die zum maximalen Gesamtspin S = 3/2 koppeln. Mit  $L = 6 \equiv I$  lautet die Termbezeichnung des Grundzustandes <sup>4</sup>I<sub>9/2</sub>. Bei dem Er<sup>3+</sup>-Ion verteilen sich die 11 Elektronen der 4*f*-Schale so, dass sich Gesamtspin und Gesamtbahndrehimpuls zu S = 3/2 und L = 6 ergeben. Der Gesamtdrehimpuls beträgt J = 15/2 und der Grundzustand wird demnach mit <sup>4</sup>I<sub>15/2</sub> bezeichnet. 12 von 13 4*f*-Elektronen des Yb<sup>3+</sup>-Ions sind nach dem Pauli-Prinzip jeweils mit antiparallelem Spin angeordnet, so dass S = 1/2. Zur Quantenzahl *L* trägt ebenfalls nur ein einziges Elektron bei. Mit  $L = 3 \equiv F$  lautet die Termbezeichnung des Grundzustandes <sup>2</sup>F<sub>7/2</sub>. Für das Yb<sup>3+</sup>-Ion ergibt sich nur ein einziges angeregtes Energieniveau <sup>2</sup>F<sub>5/2</sub> (J = |L - S|).

Die an den optischen Übergängen beteiligten Elektronen befinden sich in den teilweise gefüllten 4*f* Schalen und werden von den vollständig gefüllten  $5s^2$  und  $5p^6$  Schalen abgeschirmt. Die einzelnen Niveaus spalten im Kristallfeld des umgebenden Wirtsmaterials in bis zu (2J + 1)/2 Stark-Niveaus auf, die in Abb. 2.3 durch durchgezogene horizontale Linien angedeutet sind. Die Gesamtbreite der Aufspaltung beträgt einige 100 cm<sup>-1</sup> und ist zur besseren Darstellung im Verhältnis zu den Niveauabständen erheblich größer gezeichnet.

In Kristallen führt die Abschirmung der optisch aktiven Elektronen zu scharfen Absorptions- und Emissionslinien. In einem inhomogenen Medium wie Glas sind aber die (Kristall-) Felder am Ort verschiedener Ionen unterschiedlich, was dazu führt, dass die Lagen des gesamten Stark-Multiplets jeweils unterschiedlich sind. Für die Gesamtheit der Ionen resultiert sich dieser Umstand zunächst in einer inhomogenen Verbreiterung der Energiezustände (graue Hinterlegung der Niveaus in Abb. 2.3). Die Ionen befinden sich jedoch in der Umgebung des Wirtsmaterials und wechselwirken durch Phononenkopplung, wodurch die homogene Breite der optischen Übergänge vergrößert wird. Diese Kopplung ist auch dafür verantwortlich, dass zwischen den Niveaus eines Stark-Multiplets sehr schnelle ( $\sim 10^{-12}$  s) nichtstrahlende Übergänge stattfinden [65, 66], wodurch deren Besetzung entsprechend dem thermischen Gleichgewicht erzeugt wird. Deshalb können die angeregten Ionen, die sich an gleichen Gitterplätzen aber in unterschiedlichen Stark-Niveaus befinden, eine homogene Klasse bilden. Die spektrale Reichweite dieser Kopplung hängt vom Phononenspektrum ab, d.h. vom Wirtsmaterial und von der Temperatur. Die Temperaturabhängigkeit der homogenen Linienbreite wurde für Nd<sup>3+</sup>- und Er<sup>3+</sup>-dotierte Gläser experimentell zu

$$\Delta v_{\rm hom} \propto T^{1,9\pm0,2} \tag{2.7}$$

bestimmt, während die inhomogene Breite temperaturunabhängig ist [66, 67]. Für die homogenen Verbreiterungen bei Zimmertemperatur  $\Delta \overline{\nu}_{hom}$  findet man in der Literatur folgende Angaben: für Nd<sup>3+</sup>-dotierte Silikatgläser – 20÷30 cm<sup>-1</sup> [68, 69], für Er<sup>3+</sup>-dotierte Silikatgläser etwa 30 cm<sup>-1</sup> [66]. Für das Yb<sup>3+</sup>-Ion gibt es in der Literatur weniger Angaben über homogene bzw. inhomogene Verbreiterungen. Häufig wird es in Silikat-Glas bei Zimmertemperatur als dominant homogen verbreitert bezeichnet [70]. In [11] wurde diese homogene Linienbreite für eine Yb<sup>3+</sup>-dotierte Faser zu ca. 150 cm<sup>-1</sup> bestimmt.

# 2.3 Nd<sup>3+</sup>-, Er<sup>3+</sup> und Yb<sup>3+</sup>-dotierte Faserlaser

Die Anregung des Nd<sup>3+</sup>-Ions erfolgt bei 810 nm vom Grundzustand <sup>4</sup>I<sub>9/2</sub> in das Absorptionsband <sup>4</sup>F<sub>5/2</sub>+<sup>4</sup>H<sub>9/2</sub>. Von diesem Niveau aus relaxiert das Ion mit Zeitkonstanten zwischen 10<sup>-7</sup> s und 10<sup>-8</sup> s in das obere Laserniveau <sup>4</sup>F<sub>3/2</sub>. Danach findet ein strahlender Zerfall entweder in das Niveau <sup>4</sup>I<sub>11/2</sub> (Emissionswellenlänge ca. 1100 nm) oder wieder in den Grundzustand <sup>4</sup>I<sub>9/2</sub> ( $\lambda \approx 935$  nm) statt. Da bei dem letzteren Laser-Übergang das untere Laserniveau auch den Grundzustand darstellt, gehört diese Konfiguration zum 3-Niveau-Laser-Schema. Ein 4-Niveau-Laser liegt dagegen bei der Wellenlänge 1100 nm (Übergang <sup>4</sup>F<sub>3/2</sub>→<sup>4</sup>I<sub>11/2</sub>) vor. Die Energiedifferenz zwischen dem unteren Laserniveau und dem Grundzustand beträgt in diesem Fall ca. 2000 cm<sup>-1</sup>. Insofern ist die thermische Besetzung des unteren Laserniveaus zu vernachlässigen.

Die Anwendung Nd<sup>3+</sup>-dotierter Faserlaser für ICAS wurde bereits in beiden Laser-Übergängen demonstriert [7, 8, 10, 11, 71]. In den dieser Arbeit zugrunde liegenden Versuchanordnungen mit Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasern wird die Emission des  ${}^{4}F_{3/2} \rightarrow {}^{4}I_{11/2}$ -Übergangs (Gesamtspektralbereich 1060-1140 nm) untersucht, um die Ursachen für die Empfindlichkeitsbegrenzung zu bestimmen. Der in der Luft vorkommende Wasserdampf stellt dabei einen natürlichen resonatorinternen Absorber dar, da Wassermoleküle in diesem Spektralintervall viele mittelstarke Absorptionslinien besitzen.

Das  $Er^{3+}$ -Ion wird durch optisches Pumpen mit z.B. einer Laserdiode bei  $\lambda = 980$  nm vom Grundzustand  ${}^{4}I_{15/2}$  auf den Zustand  ${}^{4}I_{11/2}$  angeregt. Von dort aus fällt es durch nichtstrahlenden Übergang in das obere Laserniveau  ${}^{4}I_{13/2}$ . Beim Übergang  ${}^{4}I_{13/2} \rightarrow {}^{4}I_{15/2}$  erfolgt die Laseremission im Spektralbereich 1520-1620 nm. Im Allgemeinen ist daher ein Erbium-Laser ein 3-Niveau-Laser. Jedoch ist das Grundniveau so weit verbreitert, dass dessen höher liegende Unterniveaus thermisch relativ schwach besetzt sind. Findet ein Übergang in eines dieser Niveaus statt, also erfolgt die Emission am langwelligen Ende, so kann sie durch ein 4-Niveau-Modell beschrieben werden. Am kurzwelligen Ende funktioniert der Laser nach dem 3-Niveau-Schema.

Das Hauptinteresse galt bis jetzt den  $Er^{3+}$ -dotierten Faserverstärkern, da ihre Emission bei 1,55 µm im 3. spektralen Transmissionsfenster der Kommunikationstechnik liegt. Aus diesem Grunde sind diese Verstärker für die Verstärkung von Nachrichtenübertragungssignalen sehr gut geeignet [72]. Die  $Er^{3+}$ -dotierten Fasern sind bereits weitgehend optimiert, besitzen kleine Verluste und sind deswegen für ICAS attraktiv. Die hier gezeigte Anwendung für **Vielmoden**-ICAS ist neu und erfolgt mit dem Ziel den Spektralbereich für Absorptionsmessungen zu erweitern und diese Messungen mit hoher spektraler Empfindlichkeit an verschiedenen Spurengasen durchzuführen.

Das Energieniveau-Schema des Yb<sup>3+</sup>-Ions besteht aus nur 2 Niveaus  ${}^{2}F_{7/2}$  und  ${}^{2}F_{5/2}$ , die jeweils durch Stark-Aufspaltung (ca. 900 cm<sup>-1</sup> Energiebreite [73]) verbreitert sind. Das Absorptionsmaximum von Yb<sup>3+</sup> befindet sich bei ca. 975 nm, ein zweites schwächeres und breiteres liegt bei 910 nm. Die Flankenabsorption ist allerdings wegen der großen Niveau-Verbreiterung bis ca. 820 nm möglich. Ein Yb<sup>3+</sup>-dotierter Silikatglas-Faserlaser arbeitet nach dem 3-Niveau-Schema, wenn die Emissionswellenlänge unterhalb von 1040 nm liegt. Andernfalls, also bei  $\lambda_{Em} > 1040$  nm, erfolgt die Emission nach einem Quasi-4-Niveau-Schema. In dem letzteren Fall zerfällt das obere Laserniveau in eins der oberen Unterzustände des Multiplets  ${}^{2}F_{7/2}$ , die bei Zimmertemperatur thermisch nur schwach besetzt sind.

Aufgrund des kleinen Quantendeffekts (kleine Wärmeproduktion) sind Yb<sup>3+</sup>dotierte Fasern sehr attraktiv für den Bau von leistungsstarken Lasern. Erfolgreiche Anwendung fanden dabei Fasern mit dem doppelten Mantel (s. z.B. [74]) und "Large Mode Area Photonic Crystal Fibers" (LMA-PCF, s. Kap. 5) [75]. Die Ausgangsleistungen von mehr als 1000 W mit dem Wirkungsgrad von bis zu 83% wurden erreicht [76]. Auch werden Yb<sup>3+</sup>-Ionen als Co-Dotierung in z.B. Pr<sup>3+</sup>-dotierten Fasern verwendet, um so den Anregungsprozess durch Kreuzrelaxation effizienter zu machen (s. z.B. [71, 77]). In dieser Arbeit wird die Anwendbarkeit von kerngepumpten Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF-Lasern für ICAS geprüft mit dem Ziel den empfindlichen Nachweis von sehr kleinen Mengen der zu untersuchenden Substanz durch die Lokalisierung in den Luftkanälen einer PCF zu ermöglichen.

### **Kapitel 3**

## Absorptionsspektroskopie im Resonator eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers

Mögliche wichtige Mechanismen, die die Empfindlichkeit auf die Absorption im Resonator eines Faserlasers begrenzen können, sind die Spontanemission, die Rayleigh-Streuung und die räumliche Inhomogenität der Verstärkung ( $\Rightarrow$  räumliches Lochbrennen, s. Abb. 1.3) [1, 10, 11]. In diesem Kapitel soll mit Hilfe eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers geprüft werden, inwieweit die funktionale Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von verschiedenen Laserparametern den jeweiligen Modellen entspricht. Vorschläge zur Steigerung der Empfindlichkeit werden erarbeitet und im Experiment umgesetzt.

### 3.1 Präparation der Fasern

Vor dem Betrieb müssen die Faserendflächen sorgfältig präpariert werden. Typische Single-Mode-Fasern haben ca. 125 µm Mantel-Durchmesser. Die Faser ist mit einem weiteren Kunststoffmantel (Schutzhülle) überzogen, was ihr Stabilität und Biegsamkeit verleiht und die Ausbreitung von Mantelmoden unterdrückt. Diese Schutzhülle wird an den Enden (2-3 cm) zuerst im Azeton aufgelöst und dann entfernt. Das Glasmaterial der Faser wird vom Azeton nicht angegriffen. Die entmantelten Faserenden werden dann in die Glaskapillare oder einen FC-Faserstecker eingeklebt und mit einer Poliermaschine |1| poliert. Alternativ können die Fasern mit einem Faserschneidegerät 2 gerade oder unter einem einstellbaren Winkel geschnitten werden (s. Kap. 5.3, 5.4). Die in diesem Kapitel beschriebenen Nd<sup>3+</sup>-dotierten Fasern wurden alle durch die Politur präpariert und anschließend in einer speziellen Anlage direkt mit dielektrischen Spiegeln bzw. Entspiegelungen versehen. Zum Einsatz kamen dabei zwei Materialien: MgF<sub>2</sub> (niedrigbrechend) und ZnS (hochbrechend). Sie wurden durch einfaches thermisches Verdampfen auf die Endflächen abwechselnd aufgedampft und zwar so, dass die erste und die letzte Schicht immer aus MgF<sub>2</sub> bestanden. Die Schichtfolge für die Einkoppelseite einer Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faser ist in Tabelle 3.1 dargestellt.

Die Abbildung 3.1 zeigt den theoretischen Reflexionsverlauf zusammen mit einem Kontrollverlauf für dieses Schichtsystem. Der Kontrollverlauf wurde durch die Messung der Transmission eines mitbedampften Testglases mit einem Photospektrometer |3| und anschließende Umrechnung in die Reflektivität erhalten. Im Emissionsbereich des Lasers

besitzt der Spiegel ein hohes Reflexionsvermögen (>99,6%). Diese Reflexion genügt vollständig den experimentellen Anforderungen. Das Schichtsystem ist so ausgelegt, dass der Spiegel auch bei einem Verrutschen der Reflexionskurve im Emissionsbereich des  $Nd^{3+}$ -Ions hochreflektierend bleibt. Theoretischer Wert der Reflexion bei den möglichen Pumpwellenlängen (800 – 820 nm) liegt fast bei 0. In der Praxis sind die spektralen Wellen in diesem Bereich oft nicht vollständig unterdrückt, eine restliche Pumplichtreflexion von etwa 7% ist aber akzeptabel.

Nr.	Glas							Luft
oder	( <i>n</i> = 1,5)	1 - 2	3 - 4	5 - 14	15 – 16	17 - 18	19	( <i>n</i> = 1)
Bez.								
Dicke	-	335	280	275	280	295	147,5	-
(nm)								

Tabelle 3.1. Dielektrisches Schichtsystem zur Verspiegelung der Einkoppelseite der  $Nd^{3+}$ dotierten Faserlaser. Die ungeraden Schichtnummern entsprechen MgF<sub>2</sub> und die geraden ZnS.



Abbildung 3.1. Theoretischer und gemessener Reflexionsverlauf des aufgedampften dielektrischen Schichtsystems.

Bei der Bedampfung werden die Fasern keinen zu hohen Temperaturen  $(T < 100^{\circ}C)$  ausgesetzt, so dass der Kunststoffschutzmantel unbeschädigt bleibt. Diese "soft-coated" Spiegel sind aber empfindlich gegen mechanische Belastung. Ein entsprechender Schutz ist deswegen bei der Aufbewahrung von bedampften Fasern unumgänglich.

## 3.2 Nd<sup>3+</sup>-dotierter Faserlaser mit ICA

#### 3.2.1 Eigenschaften des Lasers

Abbildung 3.2 präsentiert den schematischen Aufbau eines Faserlasers für ICAS. Die Strahlung einer einmodig emittierenden Pumplaserdiode |4, 5| (maximale Ausgangsleistung ist 150 mW) bei 810 nm wird mit der Linse L1 kollimiert und mit der Linse L2 in die Faser fokussiert. Die Einkoppeleffizienz beträgt 50-60%. Um Ruckreflexe in die Laserdiode zu vermeiden, wurde optional eine optische Diode |6| in den Strahlengang eingebracht. Wie oben beschrieben, wurde der Resonatorspiegel S1 direkt auf das vordere Ende der Faser aufgedampft. Das andere Faserende kann mit einer Antireflexionsbeschichtung (AR) versehen werden. Das aus dem offenen Ende der Faser austretende Licht wird von der asphärischen Linse L3 (|7|: Schott Hoya, A136, f = 15 mm, NA = 0,3, entspiegelt für  $\lambda = 1050 \div 1150$  nm ) auf dem Auskoppelspiegel S2 abgebildet (alternativ: kollimiert) und vom Spiegel S2 in die Faser zurückreflektiert. Die Rückkopplungseffizienz beläuft sich auf etwa 90%. Das an diesem Spiegel ausgekoppelte Licht wird weiter zu einem optischen Spektralanalysator (OSA) geleitet (s. Kap. 3.2.2). Die optische Länge des Laserresonators beträgt:

$$L_{\text{Resonator}} = L_{\text{Faser}} \cdot n_{\text{K}} + L_{\text{extern}}, \qquad n_{\text{K}} \approx 1.5$$

Wegen der chromatischen Abberation der Linse L3 ist die Rückkopplung nur für einen bestimmten Wellenlängenbereich effizient. Die Emission des Faserlasers ist bei einer bestimmten Position dieser Linse auf einen Ausschnitt des gesamten Verstärkungsbereichs begrenzt. Durch die Verschiebung der Linse entlang der optischen Achse des Resonators wird der Laser spektral durchgestimmt. Die hohe Verstärkung ermöglicht die Verstimmung über einen großen Spektralbereich.



Abbildung 3.2. Experimenteller Aufbau eines Faserlasers mit Absorption im Resonator.

Zur ersten Charakterisierung des Faserlasers wurde die Leistungskennlinie aufge-

nommen: die Abhängigkeit der Laserausgangsleistung von der Pumpleistung. Um die von der Laserdiode gelieferte Pumpleistung auf den Laserdiodenstrom zu kalibrieren, erfolgte zuerst die Aufzeichnung der Kennlinie der Laserdiode. Abbildung 3.3 zeigt die mit einem Leistungsmessgerät |8| gemessene Ausgangsleistung der Laserdiode in Abhängigkeit vom Laserdiodenstrom. Ab dem Schwellstrom (ca. 21 mA) ist der Verlauf nahezu linear und wurde mit einer Geraden gefittet. Diese Gerade wurde zur späteren Umrechnung von Strom in Leistung verwendet.



Abbildung 3.3. Kreise: Ausgangsleistung der Pumplaserdiode SDL-5411-G1 |4| vs. Laserdiodenstrom. Durchgezogene Linie: Anpassung durch eine Gerade.



Abbildung 3.4. Ausgangsleistung des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| vs. Pumpleistung.  $L_{\text{Faser}} = 106 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 82 \text{ cm}$ , T(S2) = 6%.

In der Abbildung 3.4 ist die Kennlinie des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers gezeigt. Der absolute Wirkungsgrad liegt bei ca. 3%. Wie bereits erwähnt, beträgt die Ankopplungseffizienz des externen Resonatorteils ca. 90%. Die größte Empfindlichkeit auf ICA wird erwartet, wenn die Resonatorumlaufverluste klein sind (s. Gl. (1.18), (1.41) und [1]). Aus diesem Grund ist eine asphärische resonatorinterne Ankoppellinse mit geringen Abbildungsfehlern unerlässlich.

Bei bekannter Transmission T des Spiegels S2 und Ausgangsintensität I kann der Verstärkungskoeffizient B gemäß

$$B = (\eta - 1) \frac{A \cdot T \cdot c^2 \cdot h}{2 \cdot L_{\text{Resonator}} \cdot \lambda \cdot I}$$
(3.1)

bestimmt werden [10]. Hier ist *A* die Zerfallsrate des oberen Laserniveaus und  $\lambda$  die Emissionswellenlänge. Die erstere stellt den reziproken Wert der Lebensdauer des oberen Laserniveaus des Nd<sup>3+</sup>-Ions <sup>4</sup>F<sub>3/2</sub> ( $\tau = 1/A$ ) dar und kann sich in Abhängigkeit vom Wirtsmaterial variieren. Aus diesem Grunde wurde die Zerfallzeit  $\tau$  in einem Experiment bestimmt.

Der Auskoppelspiegel S2 wurde entfernt und das Signal der Fluoreszenz der Faser wurde mit einer vor der Linse L3 (s. Abb. 3.2) platzierten Photodiode gemessen. Das aus dem offenen Faserende austretende nicht absorbierte Pumplicht wurde herausgefiltert. Die Leistung der Pumplaserdiode wurde dabei mit einem Rechecksignal der Frequenz 250 Hz so moduliert, dass der Laserdiodenstrom für einen Teil der Periode ausgeschaltet wurde. Während dieser Zeit sank das Signal der Fluoreszenz. In einem Idealfall wird eine exponentielle Abnahme der Fluoreszenzintensität erwartet:

$$I(t) = I_0 \cdot \exp(-t/\tau). \tag{3.2}$$

I(t) ist die Intensität zum Zeitpunkt t und  $I_0$  die Anfangsintensität. Abbildung 3.5 zeigt die zeitliche Änderung der Fluoreszenz nach Abschalten der Pumpleistung im Zeitpunkt t = 0. Die Fluoreszenz fällt erst ab der Zeit  $t \approx 0,5$  ms exponentiell ab. Zum einen liegt es daran, dass direkt nach Ausschalten der Pumpleistung bei  $t \le 0,1$  ms noch Zerfälle von energetisch höher gelegenen Niveaus ins obere Laserniveau stattfinden. Zum anderen wird ein Teil der Photonen in der Zeit t < 0,5 ms stimuliert emittiert, was die Zerfallsrate effektiv erhöht. Aus diesem Grund wurde die exponentielle Anpassung im hinteren Bereich der Kurve durchgeführt, wo die genannten Prozesse beendet sind und das obere Laserniveau hauptsächlich durch die Spontanemission entleert wird. Diese Anpassung ergab für das obere Laserniveau eine Lebenszeit von  $\tau \approx 461 \,\mu s$ . Dieses Ergebnis stimmt mit anderen aus der Literatur bekannten Messdaten überein [78, 79].



Abbildung 3.5. Fluoreszenz der Nd<sup>3+</sup>-dotietren Faser |9| bei 1,1 µm nach Ausschalten des Pumplichts ( $\lambda_{Pump} = 810 \text{ nm}$ ).  $L_{Faser} = 106 \text{ cm}$ .

Jetzt lässt sich die Verstärkungsrate *B* bestimmen. Die Steigung der Kennlinie in Abb. 3.4 gibt nach Gl. (3.1)  $B/A = 4,6 \cdot 10^{-9}$ , und daraus ergibt sich mit  $A = 1/\tau = 2169 \text{ s}^{-1}$ .  $B = 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ .

Wie mehrere Festkörperlaser gehört ein Faserlaser zu Class B-Lasern [80], für die  $\gamma \gg A$  gilt. Die Inversion kann hier den Schwankungen des Feldes nicht adiabatisch folgen, weswegen nach dem Einschalten oder einer Veränderung der Pumpleistung gedämpfte Relaxationsoszillationen der Gesamtlaserleistung mit der Kreisfrequenz

$$\omega_0 = \sqrt{A\gamma(\eta - 1)} \tag{3.3}$$

auftreten [81].  $\omega_0 = 2\pi v_0$ , wobei  $v_0$  als Hauptrelaxationsfrequenz des Lasers bezeichnet wird. Die Gleichung (3.3) wurde für einen idealen 4-Niveau-Laser hergeleitet, sie behält aber ihre Gültigkeit auch bei Präsenz der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung [56, 80].

Abbildung 3.6 zeigt typische Relaxationsschwingungen eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers (oberes Diagramm). Der Laserdiodenstrom wurde periodisch mit einem von einem Funktionsgenerator gelieferten Steuerungssignal moduliert. Dieses Steuerungssignal ist im unteren Diagramm der Abb. 3.6 gezeigt: für eine kurze Zeit von etwa 50  $\mu$ s wurde die Pumpleistung aus- und dann für eine wesentlich größere Zeit (ca. 1,4 ms) eingeschaltet. Nach einer Verzögerung, die von der Pumprate  $\eta$  und der Zerfallsrate des oberen Laserniveaus *A* bestimmt wird, schwingt der Laser an.



Abbildung 3.6. Ausgangsleistung des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| nach Einschalten der Pumpleistung im Zeitpunkt t = 0 (oben). Das untere Diagramm zeigt das Steuerungssignal eines Funktionsgenerators.  $L_{\text{Faser}} = 106 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 82 \text{ cm}$ ,  $\eta = 3$ .

Gleich nach dem Anschwing ist der Abstand zwischen einzelnen Relaxationsspitzen größer als der theoretische Wert  $T_0 = 2\pi/\omega_0$ . Dieser Unterschied wird allerdings umso kleiner, je weiter der Vorgang fortgeschritten ist. Deswegen wird zur Bestimmung der Relaxationsfrequenz des Lasers der Zeitbereich herangezogen, wo die Lasergesamtleistung nur kleine Auslenkungen von dem angestrebten Mittelwert aufweist. Eine gewisse Anzahl der Relaxationsschwingungen wird am Oszilloskop abgezählt und deren Periode ausgerechnet.

Um die Resonatorverlustrate zu bestimmen wird die Frequenz der Relaxationsschwingungen bei mehreren Pumpraten gemessen. Danach wird das Quadrat der Kreisrelaxationsfrequenz  $\omega_0^2$  gegen den Pumpüberschuss  $\eta - 1$  aufgetragen, wie es in Abb. 3.7 gezeigt ist. An der Gl. (3.3) ist zu erkennen, dass die Punkte dann auf einer Geraden liegen, die durch den Ursprung verläuft. Diese Gerade lässt sich mittels linearer Regression ausrechnen, ihre Steigung ist das Produkt  $A \cdot \gamma$ . Aus der Ausgleichsgeraden in Abb. 3.7 errechnet sich die Verlustrate zu  $\gamma \approx 10^7$  s<sup>-1</sup>.

Die Verluste pro Umlauf im Resonator sind gegeben durch:

$$\Gamma = 1 - \exp\left(-\frac{2 \cdot L_{\text{Resonator}}}{c}\gamma\right).$$
(3.4)

Für den in Abb. 3.7 dargestellten Fall ergibt sich daraus  $\Gamma \approx 15\%$ . Diese Verluste sind durch die Auskopplung des Lichts (6%) und eine Rückkopplungseffizienz in die Faser von ca. 90% gegeben.



Abbildung 3.7. Quadrat der Hauptrelaxationskreisfrequenz  $(2\pi v_0)^2$  vs. Pumpüberschuss  $\eta - 1$  für den Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser aus Abb. 3.4.

#### 3.2.2 Emissionsspektren

Das Licht des Faserlasers wird in einem Gitterspektrographen |10| spektral zerlegt und von einer CCD-Zeile |11| aufgenommen. Das Bild des Eintrittsspaltes des Spektrographen wird von einem Spiegel der Brennweite f = 1 m nach der Reflexion am Gitter in die Bildebene abgebildet. Dort befindet sich entweder der Austrittspalt (Monochromator-Betrieb) oder die Diodenzeile (Polichromator-Betrieb). Das Beugungsgitter hat N = 29600 Furchen bei B = 100 mm Breite (296 Furchen/mm bzw. Gitterkonstante  $d = 3,4 \mu$ m), es ist für die maximale Reflexion in die Beugungsordnung m = 4 optimiert. Das theoretische Auflösungsvermögen für diese Beugungsordnung beträgt [30]

$$R_{\text{theor}} = \frac{\lambda}{\Delta \lambda} = Nm \approx 1,18 \cdot 10^5.$$
(3.5)

Die im Experiment vorhandene Auflösung des gesamten Systems wird zusätzlich durch die

Diodenzeile begrenzt und beläuft sich auf  $R_{exper} = 4 \cdot 10^4$  [10]. Bei  $\lambda \approx 1 \,\mu\text{m}$  entspricht es dem Auflösungsintervall  $\Delta \lambda = 2,5 \cdot 10^{-2}$  nm. Dieses Ergebnis wird nur bei optimaler Ausleuchtung des Gitters erzielt. Eine optimale Breite des Eintrittsspalts  $\delta x$  ergibt sich aus der Beziehung  $\delta x \approx \lambda f / B \cos \theta$  bei dem Winkel  $\theta$  zwischen der Gitternormalen und der Furchennormalen von 45° zu ca. 14 µm.

Die am Ausgang des Spektrographen befestigte Diodenzeile |11| besteht aus 1728 photoelektrischen Elementen (Pixeln) mit der Pixelbreite 10 µm. Die Belichtungszeit der Zeile lässt sich von ca. 1 ms bis 1 s stufenweise einstellen. Für die spektrale Aufnahme ist die kürzeste Belichtungszeit ausreichend. Um das spektrale Rauschen wegzumitteln wurde bei den meisten dieser Arbeit zugrundeliegenden Messungen die Belichtungszeit auf 27 ms eingestellt. Die Spektren wurden mit einem Transientenrekorder Krenz TRB4000 |12| mit 10 bit dynamischer Auflösung aufgenommen und in dem Computer gespeichert. Die benutzte Software erlaubt es zusätzlich über 512 Belichtungsperioden der Diodenzeile zu mitteln. Dementsprechend kann die Aufnahmezeit eines Emissionsspektrums im Dauerstrichbetrieb bis zu  $512 \times 27$  ms  $\approx 14$  s betragen.

Abbildung 3.8 zeigt stationäre Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotirten Faserlasers bei verschiedenen Pumpraten. In den Spektren sind deutlich Kerben zu erkennen, die durch die atmosphärische Absorption im Resonator verursacht werden. Die Erhöhung der Pumprate resultiert sich in der Vergrößerung der Emissionsbreite der Spektren von  $\Delta \lambda \approx 2,5$  nm bei  $\eta = 1,2$  auf  $\Delta \lambda \approx 8$  nm bei  $\eta = 10$ . Dieses Verhalten deutet auf eine inhomogene spektrale Verbreiterung hin [82]. Die Ionenklasse mit der höchsten Nettoverstärkung erreicht als erste die Laserschwelle, mit zunehmender Pumpleistung überschreiten dann weitere Ionenklassen mit kleinerer Verstärkung die Laserschwelle.

Die Verstärkung des Nd<sup>3+</sup>-Überganges ist im betrachteten Wellenlängenbereich spektral sehr breit. Die Form des Emissionsspektrums wird deswegen hauptsächlich durch die spektrale Selektivität der asphärischen Linse L3 bestimmt. Die chromatische Abberation der Linse bewirkt, dass deren Brennweite mit der Wellenlänge zunimmt. Der Ankopplungswirkungsgrad des externen Resonatorteils an die Faser ist für eine Wellenlänge des Lichtes  $\lambda_0$  hoch, wenn der Abstand Linse-Faser genau der Brennweite der Linse für diese Wellenlänge entspricht. Aufgrund des parabolischen Verlaufs der Dispersion der Linse steigen die Ankopplungsverluste für Wellenlängen  $\lambda \neq \lambda_0$  mit  $|\lambda_0 - \lambda|$  quadratisch an und bedingen damit die Form des Emissionsprofils.



Abbildung 3.8. Stationäre Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| bei verschiedenen Pumpparametern  $\eta$ .  $L_{\text{Faser}} = 106 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 82 \text{ cm}$ ,  $\gamma = 1.9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$  (3 obere Spektren). Das aus der HITRAN-Datenbank berechnete Transmissionsspektrum der Atmosphäre ist unten als Referenz dargestellt [83], L = 40 km.

Die Art der Verbreiterung kann besser identifiziert werden, wenn man die zeitliche Entwicklung des Laserspektrums beobachtet. Dafür werden die Laserspektren zu verschiedenen Zeitpunkten seit Einsetzen der Laseremission aufgenommen. Der Faserlaser wird wie oben beschrieben durch die Modulation des Laserdiodenstroms periodisch ausund eingeschaltet. Während der Faserlaser bei jedem Anschwingen Relaxationsschwingungen ausführt, lenkt ein akusto-optischer Deflektor AOD (|13|: Isomet, 1201E-2) das Laserlicht während eines kurzen Zeitfensters in den Spektrographen während eines kurzen Zeitfensters in den Spektrographen ein. Die Breite  $\Delta \tau$  dieses Zeitfensters gleicht ungefähr der Dauer eines Relaxationsmaximums und es lässt sich mit spezieller Synchronisation auf das gewünschte Maximum einstellen (Abb. 3.9). Da die meiste Zeit der Modulationsperiode das Licht nicht in den Spektrographen geleitet wird, wird die Belichtungszeit der Diodenzeile größer gewählt als bei Messungen im Dauerstrichbetrieb und beträgt 140 ms. Während dieser Zeit wird der Faserlaser über 100 mal aus- und eingeschaltet. Da zudem noch eine Mittelung über 512 Belichtungsperioden möglich ist, können die Spektren zu jedem Zeitpunkt der Entwicklung bis über mehrere zehn tausend Anschwingzyklen gemittelt werden.



Abbildung 3.9. Mess-Schema zur Aufnahme der spektralen Dynamik.

Abbildung 3.10 präsentiert Spektren eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers, die auf diese Weise zeitaufgelöst aufgenommen wurden [8]. Die spektrale Auflösung wurde bewusst kleiner gewählt als bei den in Abb. 3.8 gezeigten Spektren, um die Spektren in voller Breite erfassen zu können. Die spektrale Dynamik ist typisch für einen inhomogen verbreiterten Laser [80]: Die Laseremission schwingt an der Position an, wo die Verstärkung maximal ist. Nach Sättigung der Verstärkung dieser Moden dominieren die benachbarten Spektralbereiche: bei  $t = 60 \,\mu\text{s}$  oszillieren die Moden, deren Verstärkung spektral um eine homogene Linienbreite  $\Delta v_{\text{hom}} = 30 \,\text{cm}^{-1}$  [69] von der Verstärkung der zentralen Moden entfernt sind. Der Abstand zwischen Emissionsmaxima beträgt hier 6 nm und entspricht  $2\Delta v_{\text{hom}} \approx 60 \,\text{cm}^{-1}$ . Bei  $t = 123 \,\mu\text{s}$  ist die Emission dieser Nachbarklassen fast abgeklungen, während wieder die zentralen und die weiter entfernten Moden anfangen zu oszillieren. Das Spektrum wird aber nicht breiter, da es von dem Verlauf der Verluste, die von der Ankoppellinse L3 bestimmt sind, eingegrenzt wird.

Das Wechselspiel zwischen den verschiedenen Verstärkungsklassen führt dementsprechend zu spektralen Wellen, nach deren Ausdämpfung sich ein breites stationäres Spektrum einstellt. Im Gegenteil zu einem homogen verbreiterten Laser verbreitert sich das Spektrum eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers im Zuge der zeitlichen Entwicklung. Diese Eigenschaft ist vorteilhaft, da dadurch die Absorptionsmessungen in einem breiten Spektralbereich ermöglicht werden. Die Anzahl der oszillierenden Moden des Faserlasers in Abb. 3.10 im Dauerstrichbetrieb (cw) erreicht ca. 60000.



Abbildung 3.10. Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| mit der atmosphärischer Absorption im Resonator zu verschiedenen Zeitpunkten nach Einsetzten der Laseremission.  $L_{\text{Faser}} = 78 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 190 \text{ cm}$ ,  $\eta = 5$  [8].

#### 3.2.3 Spektrale Eichung und Bestimmung der Empfindlichkeit

Die spektrale Eichung der gemessenen Spektren und Bestimmung der effektiven Absorptionsweglänge erfolgte durch deren Vergleich mit den Transmissionsspektren, die mit dem auf der HITRAN-Datenbank (**hi**gh resolution **tran**smission absorption database, |14|) basierenden Programm TRANS |15| berechnet wurden. Die HITRAN-Datenbank ist eine Sammlung von Absorptionslinien verschiedener Moleküle in der Atmosphäre. Das Programm TRANS ermöglicht es Absorptionsspektren verschiedener Gasgemische zu erstellen. In die Berechung geht die Zusammensetzung des Gasgemisches ein: die Auswahl der Moleküle und ihre Partialdrücke  $P_{Part.}$ , der Gesamtdruck P, Temperatur T und die Absorptionsweglänge L.

Durch Vergleich der spektralen Lage der Absorptionslinien in gemessenen und berechneten Spektren kann die spektrale Kalibrierung der Diodenzeile durchgeführt werden. Im unteren Teil der Abbildung 3.8 ist das berechnete HITRAN-Spektrum angeführt. Die Übereinstimmung der Lage aller Absorptionslinien bestätigt eine gute spektrale Eichung des Spektrographen und der CCD. Die Pixeldispersion beträgt in der 4. Beugungsordnung des Spektrographen  $d\lambda$ /Pixel = 5,8 · 10<sup>-3</sup> nm/Pixel.

Für die Bestimmung der spektralen Empfindlichkeit werden die Tiefe und die Breite der Linien in gemessenen und berechneten Spektren angepasst. Entscheidend ist dabei der richtige Partialdruck der absorbierenden Moleküle. Der Gesamtdruck wurde immer als "normal" angenommen: P = 1 atm. Alle zur Eichung der Spektren und zur Bestimmung der Empfindlichkeit benutzten Absorptionslinien sind Obertöne des H<sub>2</sub>O-Moleküls. Aus diesem Grunde wurde während jeder Messung die Temperatur und die relative Luftfeuchtigkeit im Labor mit einem Luftfeuchtigkeitsmessgerät |16| gemessen. Aus gemessener Temperatur lässt sich der Sättigungsdruck des Wasserdampfs nach folgendem empirischen Ausdruck errechnen [10]:

$$P_s = 610,7 \text{ Pa} \cdot 10^{\left(\frac{7.5 \cdot T}{T + 235^{\circ} \text{C}}\right)}.$$
 (3.6)

Die Temperatur *T* wird in °Celsius angegeben. Der Partialwasserdampfdruck wird dann durch Multiplikation mit der relativen Feuchtigkeit *r* und dem Füllfaktor des Resonators mit dem Absorber  $\beta$  (Gl. (1.8)) erhalten:

$$P_{\text{Part}} = P_s \cdot r \cdot \beta \,. \tag{3.7}$$

Mit dem auf diese Weise erhaltenen Wert des Partialdrucks wurden im TRANS-Programm Transmissionsspektren verschiedener Weglängen *L* berechnet.



Abbildung 3.11. Das gemessene Faserlaserspektrum aus der Abb. 3.8 bei der Pumprate  $\eta = 2$  (blau) mit (oben) seiner Einhüllenden (rot), (unten) der Anpassung des berechneten HITRAN-Spektrums (grüne Kreise). Das HITRAN-Spektrum wurde für die Absorptionsweglänge L = 40 km berechnet und mit der Apparatefunktion des Spektrographen gefaltet.

Bei der Anpassung an das HITRAN-Spektrum wurde das Emissionsspektrum des Faserlasers auf seine Einhüllende normiert. Die Einhüllende gibt die Form des Spektrums für den Fall wieder, wenn die Absorptionslinien nicht vorhanden wären (Abb. 3.11), und wird so gewählt, dass sie das spektrale Rauschen in der Mitte seiner Amplitude schneidet. Die gemessenen Absorptionslinien werden zudem durch die begrenzte spektrale Auflösung des Gitterspektrographen verbreitert. Bei der Anpassung wurden deswegen alle berechneten HITRAN-Spektren mit der Apparatefunktion  $sinc^2 \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{\Delta \lambda}\right)$  [84] gefaltet

 $(\Delta \lambda = 0,025 \text{ nm} \text{ ist das Auflösungsintervall})$ . Die richtige Breite der Apparatefunktion (das tatsächliche Auflösungsvermögen des ganzen Systems) wurde bei jeder eingestellten

Breite des Eingangsspalts des Spektrographen einmal ermittelt. Danach wurde nur die Absorptionsweglänge variiert bis berechnete und gemessene Spektren in Breite und Tiefe der Absorptionslinien bestmöglich übereinstimmten. Die Absorptionsweglänge L des berechneten Spektrums mit bester Übereinstimmung entspricht dann der im Experiment erhaltenen effektiven Absorptionslänge  $L_{eff}$ . Ein Beispiel dieser Anpassung ist im unteren Teil der Abbildung 3.11 gezeigt. Hier wurde zu dem stationären Spektrum aus der Abbildung 3.8 mit  $\eta = 2$  die effektive Absorptionsweglänge zu 40 km bestimmt.

### 3.3 Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von Laserparametern

Im Kapitel 3.2 wurde gezeigt, dass ein Faserlaser einen sehr einfachen Aufbau eines ICAS-Spektrometers ermöglicht. Die spektrale Empfindlichkeit von Faserlasern auf die Absorption im Resonator ist jedoch kleiner als die eines Ti-Saphir Lasers und eines Farbstofflasers (s. Abb. 1.2). Um die Empfindlichkeit der Faserlaser zu erhöhen, ist es notwendig, die empfindlichkeitsbegrenzenden Mechanismen zu reduzieren oder zu beseitigen. Zur Identifikation dieser Mechanismen ist die Kenntnis der Abhängigkeit der Empfindlichkeit von den Laserparametern unbedingt erforderlich. Die Parameter, die in einem Laserresonator leicht zu variieren sind, sind die Pumprate  $\eta$ , die Verlustrate  $\gamma$  und die Anzahl der oszillierenden Moden **N**.

#### 3.3.1 Variation des Pumpparameters

In früheren Experimenten mit Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasern wurde keine oder sehr schwache Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von der Pumprate festgestellt [8, 71]. Auch die in Abb. 3.8 dargestellten Spektren lassen keine Änderung der Empfindlichkeit bei verschiedenen  $\eta$  erkennen. Abbildung 3.12 zeigt das Absorptionssignal *K* als Funktion des Pumpüberschusses  $\eta - 1$  für die Absorptionslinie bei  $\lambda = 1089,52$  nm (sie ist in Abb. 3.8 mit einem Pfeil markiert). Das Absorptionssignal selbst wurde aus dem Kontrast des Lichtflusses in der Linienmitte und dem maximalen Lichtfluss in der Nachbarschaft bestimmt. In einem weiten Pumpparameterbereich (bis  $\eta = 30$ ) weist es praktisch keine Änderung auf.

Diese Ergebnisse lassen auf die von der Pumprate unabhängige Begrenzung durch die Rayleigh-Streuung schließen (s. Gl. (1.19)). Allerdings, wie man der Abbildung 3.8 entnehmen kann, nimmt die Emissionsbreite infolge der inhomogenen spektralen Verbreiterung mit der Pumprate zu. Damit vergrößert sich automatisch die Zahl der oszillierenden Moden **N**. Die optische Länge des Resonators des Lasers, dessen Emissionsspektren in Abb. 3.8 gezeigt sind, betrug  $L_{\text{Resonator}} = 240 \text{ cm}$ . Der spektrale Abstand zwischen den Mo-

den war somit  $\Delta v = 1/2L_{\text{Resonator}} \approx 2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . Daraus ließ sich bei bekannter Breite des Spektrums jeweils die Modenzahl **N** ermitteln. Sie beläuft sich bei den Spektren aus Abb. (3.8) unter der Voraussetzung, dass keine Lasermoden durch die Etaloneffekte unterdrückt werden, auf folgende Werte:  $\eta = 1,2 \Rightarrow \mathbf{N} \approx 5700$ ,  $\eta = 2 \Rightarrow \mathbf{N} \approx 21000$ ,  $\eta = 10 \Rightarrow \mathbf{N} \approx 31000$ .

Eine andere Situation in Bezug auf die Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von der Pumprate liegt vor, wenn das Emissionsspektrum des Lasers eingegrenzt ist, d.h. seine Breite ändert sich praktisch nicht oder nur unwesentlich mit der Pumpleistung [11]. Abbildung 3.13 zeigt Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers bei 3 verschiedenen Pumpraten. Die Breite der Spektren ist durch sehr starke Absorptionslinien an den Rändern begrenzt. Die spektrale Empfindlichkeit wurde für die zentrale Linie bei  $\lambda = 1117,87$  nm bestimmt. Bei der Erhöhung der Pumprate von  $\eta = 1,07$  auf  $\eta = 23$  sinkt die Empfindlichkeit von 101 km auf 24 km.



Abbildung 3.12. Absorptionssignal der Wasserdampflinie bei  $\lambda = 1089,52$  nm im Spektrum des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| als Funktion des Pumpüberschusses  $\eta - 1$ .  $L_{\text{Faser}} = 70,5$  cm,  $L_{\text{extern}} = 110$  cm.

Die maximal mögliche Zahl der oszillierenden Moden **N** in zentralen Bereichen der in Abb. 3.13 dargestellten Spektren variiert in Abhängigkeit von der Pumprate zwischen 1000 und 2000. Diese Zahl ist somit kleiner als die in den oben beschriebenen Spektren aus Abb. (3.8). Die Abnahme der spektralen Empfindlichkeit mit dem Pumpparameter gibt den Hinweis darauf, dass die Begrenzung weder durch Spontanemission noch durch die Rayleigh-Streuung zustande kommt.



Abbildung 3.13. Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| bei 3 verschiedenen Pumpparametern  $\eta$ .  $L_{\text{Faser}} = 106 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 631 \text{ cm}$  (3 obere Spektren). Das entsprechende HITRAN-Referenzspektrum (L = 24 km, unteres Spektrum) [11].

Aufgrund dieses unterschiedlichen Verhaltens der spektralen Breite der Laseremission bei der Änderung der Pumprate ist die Pumprate allein kein aussagekräftiger Parameter für die Bestimmung der parametrischen Abhängigkeit der Empfindlichkeit. Unter der Annahme, dass die Empfindlichkeit möglicherweise durch die räumliche Inhomogenität der Verstärkung bestimmt ist, wird gemäß Gl. (1.41) die auf die Laserparameter normierte spektrale Empfindlichkeit eingeführt:

$$L_{\rm eff}^* = \frac{\gamma \cdot L_{\rm eff}}{\alpha \cdot \mathbf{N}_{\rm hom} \cdot c} \,. \tag{3.8}$$

 $\alpha$  ist ein zusätzlicher Modendichte-Faktor, der berücksichtigt, dass eventuell nicht alle Resonatormoden oszillieren. Einige Moden dämpfen durch resonatorinterne Etalone aus. Es gilt deswegen:  $\alpha \le 1$ . Die Zahl der tatsächlich oszillierenden Moden ist unbekannt. Die Auflösung des gesamten Aufnahmesystems (Spektrograph und Diodenzeile) beträgt 5 GHz. Dieses Intervall erfasst somit ca. 80 Moden. Einzelne Moden können dementsprechend nicht aufgelöst und deren wirkliche Zahl nicht bestimmt werden. **N**<sub>hom</sub> gibt die maximale Zahl der Lasermoden an, die in der homogenen Linienbreite der Verstärkung (30 cm<sup>-1</sup> für Nd<sup>3+</sup>-Ion) enthalten sind.

Falls die räumliche Inhomogenität die spektrale Empfindlichkeit begrenzt, folgt aus Gl. (1.41) für die normierte Empfindlichkeit:

$$L_{\rm eff}^* = \frac{\eta}{\eta - 1} \,. \tag{3.9}$$

Abbildung 3.14 zeigt die normierte spektrale Empfindlichkeit als Funktion der Pumprate  $\eta$  für kleine (oberes Diagramm) und große (unteres Diagramm) Resonatorverluste. Der Faktor  $\alpha$  wurde überall so angepasst, dass im hinteren Bereich des Pumpparameters die experimentellen Punkte an der berechneten Kurve liegen, die die Funktion  $\eta/(\eta-1)$  darstellt.

Bei kleinen Resonatorverlusten,  $\gamma \leq 3 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ , ist keine eindeutige Abhängigkeit von der Pumprate festzustellen. Nur 2 dicht an der Schwelle liegende Punkte deuten einen Anstieg der normierten spektralen Empfindlichkeit mit der Verkleinerung der Pumprate an. Allerdings ist die Modenzahl in diesem Fall wesentlich kleiner als im übrigen Pumpratenbereich. Bei der Erhöhung der Pumprate werden die Spektren breiter und es ist praktisch keine Variation der normierten Empfindlichkeit mehr zu sehen. Dieses Verhalten ist ein Hinweis darauf, dass die räumliche Inhomogenität der Verstärkung bei kleinen Umlaufverlusten und großer Zahl der oszillierenden Moden nicht die entscheidende Rolle bei der Begrenzung der Empfindlichkeit spielt.

Bei höheren Resonatorverlusten ( $\gamma \ge 4 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ , unteres Diagramm der Abb. 3.14) tritt die Abhängigkeit von der Pumprate deutlicher hervor. Insbesondere bei kleineren Pumpraten wird der bei der Begrenzung durch die räumliche Inhomogenität erwartete Verlauf gut wiedergegeben. Wird die Pumprate erhöht, so ist zu sehen, dass die experimentell ermittelte normierte spektrale Empfindlichkeit sinkt. Bei hohen Pumpraten wird die Abhängigkeit im Allgemeinen schwächer.



Abbildung 3.14. Abhängigkeit der normierten spektralen Empfindlichkeit  $L_{eff}^*$ von der Pumprate  $\eta$  für verschiedene Experimente mit kleinen ( $\gamma \le 3 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ , oben) und großen ( $\gamma \ge 4 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ , unten) Resonatorverlusten.

Bei kleinen Verlustraten wird die Empfindlichkeit dann entweder durch Spontanemission oder die Rayleigh-Streuung begrenzt. Die Kombination der Gleichungen (1.18) und (1.44) und Berücksichtigung der Modenselektion gibt für die durch Spontanemission begrenzte Empfindlichkeit

$$L_{\rm eff,SE} = \frac{c}{\gamma} \cdot \frac{A \cdot (\eta - 1)}{\alpha \cdot \mathbf{N} \cdot B_0}.$$
(3.10)

Bei  $\alpha = 1$  (keine Modenauslöschung) ergibt sich für das Spektrum aus Abb. (3.8) ( $\gamma = 1,9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ) bei der Pumprate  $\eta = 2$   $L_{\text{eff,SE}} \approx 160 \text{ km}$ . Bei dieser Berechnung wird die ganze Breite des Laserspektrums berücksichtigt, unabhängig davon, ob sie die homogene Linienbreite übersteigt, weil die Laserleistung auf alle Moden verteilt ist. Die experimentell erhaltene Empfindlichkeit von  $L_{\text{eff}} = 40 \text{ km}$  ist 4 mal kleiner als diese fundamental begrenzte. Die Erhöhung der Pumprate oder die Einführung zusätzlicher Modenselektion  $(\alpha < 1)$  reduziert den Wert von  $L_{\text{eff,SE}}$  nicht, sondern lässt ihn noch weiter steigen. Die Begrenzung durch Spontanemission ist deswegen unwahrscheinlich.

Ist dann die Rayleigh-Streuung der dominierende Begrenzungsmechanismus bei diesen Laserparametern, so lässt sich die Streurate R und somit die Dämpfung  $\delta$  abschätzen. Aus dem oberen Diagramm in Abb. 3.14 sieht man, dass bei  $\eta \ge 1,5$  die normierte Empfindlichkeit sich nur sehr schwach ändert. Deswegen wird aus allen in diesem Bereich liegenden Punkten ein Mittelwert Z gebildet. Er ist in der Abbildung durch eine horizontale blaue Linie gekennzeichnet. D.h. hier gilt:

$$L_{\rm eff}^* = \frac{\gamma \cdot L_{\rm eff}}{\alpha \cdot \mathbf{N}_{\rm hom} \cdot c} = Z . \qquad (3.11)$$

Die Umformung dieses Ausdrucks gibt die spektrale Empfindlichkeit Leff:

$$L_{\rm eff} = \frac{\alpha \cdot \mathbf{N}_{\rm hom} \cdot c \cdot Z}{\gamma} = \frac{c}{R}.$$
(3.12)

Im rechten Teil steht die durch die Rayleigh-Streuung bestimmte spektrale Empfindlichkeit (G. (1.19)). Daraus kann die Streurate R berechnet werden:

$$R = \frac{\gamma}{\alpha \cdot \mathbf{N}_{\text{hom}} \cdot Z} \,. \tag{3.13}$$

Für Z ergab sich Z = 1,23. Für eine konkrete experimentelle Situation mit  $\gamma = 1,9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ,  $\mathbf{N}_{\text{hom}} = 1,5 \cdot 10^4$  und  $\alpha = 0,15$  errechnet sich R zu  $6,9 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ . Das ist die Streurate in den Raumwinkel der numerischen Apertur der Faser. Mit Gl. (1.48) lässt sich die gesamte Rayleigh-Streurate bestimmen. Im benutzten Faserlaser-Aufbau war  $L_{\text{Medium}} = 160 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Resonator}} = 240 \text{ cm}$  und NA = 0,21. Das Einsetzen dieser Parameter in die Gl. (1.48) gibt  $R_{\text{ges}} \approx 4,6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ , und nach Gl. (1.47) ergibt sich für die Dämpfung  $\delta \approx 7 \text{ dB/km}$ , was einen typischen Wert für dotierte Fasern darstellt.

Diese Ergebnisse zeigen, dass die spektrale Empfindlichkeit bei unterschiedlichen Laserparametern durch verschiedene Mechanismen begrenzt wird. Es wurde auch gezeigt, dass die Resonatorverluste dabei eine wichtige Rolle spielen. Um auf den richtigen Begrenzungsmechanismus schließen zu können, wird deswegen im nächsten Kapitel der Einfluss der Resonatorverlustrate auf die Empfindlichkeit direkt untersucht.

#### 3.3.2 Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von der Resonatorverlustrate

Der Einfluss der Resonatorverluste auf die spektrale Empfindlichkeit wird durch die Variation der Verlustrate untersucht. Diese Variation kann auf unterschiedliche Weise gemacht werden. Eine Möglichkeit bietet der Austausch von Auskoppelspiegeln mit verschiedenem Transmissionsgrad. Diese Methode ist jedoch wegen des Mangels an vorhandenen Spiegeln nur eingeschränkt anwendbar. Eine Verdrehung des Auskoppelspiegels (schlechtere Resonatorjustage) ist zwar auch möglich, kann aber eventuell dazu führen, dass sich transversale Lasermoden ausbilden. Der Abbau der Inversion ist in der Faser nicht homogen: Die Inversion in der Mitte des Kerns wird stärker abgeräumt, als an den Rändern. Durch ein schief zurückgekoppeltes Licht kann diese Randinversion auch intensiver benutzt werden, was die Entstehung von Transversalmoden fördert. Die in diesem Fall auftretende spektrale Modulation [85] kann die Auswertung erheblich erschweren. Eine dritte Möglichkeit ist das Einbringen einer Blende mit variablem Durchmesser in den externen Teil des Resonators. Dieses einfache Vorgehen erlaubt eine fast kontinuierliche Änderung der Verlustrate, wenn die Größe der Blende geändert wird. Diese Methode wurde im Experiment angewendet.

Abbildung 3.15 zeigt beispielhaft 2 Emissionsspektren mit unterschiedlichen Resonatorumlaufverlusten, die durch zwei verschiedene Blendendurchmesser eingestellt wurden, bei der Pumprate  $\eta = 2$ . Deutlich zu erkennen ist, dass die Empfindlichkeit mit den steigenden Resonatorverlusten sinkt: die Tiefe der dem Spektrum aufgeprägten Absorptionskerben wird kleiner. Außerdem weist das Spektrum ein größeres spektrales Rauschen auf. Das liegt offensichtlich an einer zusätzlichen Modenselektion durch die Lichtreflexion von der resonatorinternen Blende.

Abbildung 3.16 zeigt die gemessene spektrale Empfindlichkeit des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers als Funktion der Verlustrate bei der Pumprate  $\eta = 2$ . Die ausgerechneten Abhängigkeiten der Empfindlichkeit von der Verlustrate bei der Wirkung von Spontanemission (SE) bzw. räumlicher Inhomogenität (RI) für  $\eta = 2$  und  $\alpha = 1$  (alle Moden oszillieren) oder  $\alpha = 0,2$  (Oszillation jeder 5. Mode) sind in Abb. 3.16 für entsprechende experimentelle Parameter (Verlustrate  $\gamma$ , maximale Modenzahl **N**) auch dargestellt.

Bei den Verlustraten  $\gamma > 2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$  sinkt die experimentell ermittelte Empfindlichkeit reziprok zu  $\gamma$ . Eine Anpassung  $L_{\text{eff}} \propto 1/\gamma$  der experimentellen Daten gibt dieses Verhalten gut wieder. Es kann entweder der Begrenzung durch Spontanemission oder durch räumliche Inhomogenität entsprechen (s. Gl. (1.18) und (1.41)). Um festzustellen, welcher Begrenzungsmechanismus dominierend ist, wird die gemessene Empfindlichkeit mit den durch den jeweiligen Begrenzungsmechanismus gegebenen und nach analytischen Ausdrücken berechneten verglichen.



Abbildung 3.15. Stationäre Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| bei verschiedenen Verlustraten  $\gamma$  (bzw. Umlaufverlusten  $\Gamma$ ) im Resonator.  $L_{\text{Faser}} = 106 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 82 \text{ cm}$ ,  $\eta = 2$ .

Für die Begrenzung durch Spontanemission gilt Gl. (3.10):

$$L_{\rm eff,SE} = \frac{c}{\gamma} \cdot \frac{A \cdot (\eta - 1)}{\alpha \cdot \mathbf{N} \cdot B_0}.$$
(3.10)

Die durch die räumliche Inhomogenität der Verstärkung begrenzte spektrale Empfindlichkeit ergibt sich gemäß Gl. (1.41) zu:

$$L_{\rm eff,RI} = \frac{c}{\gamma} \cdot \frac{\alpha \cdot \mathbf{N}_{\rm hom}}{1 - 1/\eta} \,. \tag{3.14}$$

Wie man der Abb. 3.16 entnimmt, ist die Begrenzung der Empfindlichkeit durch die Spontanemission maximal, falls alle Moden oszillieren. Es ist auch zu sehen, dass die dadurch bestimmte Empfindlichkeit etwa 3,4 mal über der im Experiment (Exp.) gemessenen liegt. Die durch die räumliche Inhomogenität begrenzte Empfindlichkeit ist in diesem Fall ca. 10 mal so hoch wie die experimentelle. Da in Wirklichkeit nicht alle Moden oszillieren, werden die Berechnungen auch für kleinere Modendichte-Faktoren durchgeführt (gestrichelte grüne und rote Linien in Abb. 3.16). In diesem Fall wird gemäß den Gl. (3.10) und (3.14) der Einfluss der Spontanemission kleiner und der der räumlichen Inhomogenität größer. D.h., wenn die Spontanemission dominiert, steigt die Empfindlichkeit mit der Ver-

ringerung der Modenzahl, und wenn die räumliche Inhomogenität entscheidend ist, ist eine Reduzierung der Empfindlichkeit zu erwarten. In Abb. 3.16 ist dieser Effekt beispielsweise für  $\alpha = 0,2$  demonstriert: Die durch die räumliche Inhomogenität bestimmte spektrale Empfindlichkeit befindet sich näher an der im Experiment beobachteten als bei  $\alpha = 1$ . Oszilliert jede 10. Mode ( $\alpha = 0,1$ ), stimmt diese Empfindlichkeit mit den experimentellen Daten überein. Die Ursache für die Modenselektion im Faserlaser können verschiedene resonatorinterne Etalone sein, z.B. zwischen Faserendfläche, Linse und beiden Resonatorspiegeln. Bei großen Verlusten kommt noch die Blende hinzu, da in diesem Fall der Blendendurchmesser kleiner wird und dadurch mehr Licht in die Moden zurückgestreut wird. Die dabei auftretenden Interferenzen können die Auslöschung von Resonatormoden verstärken.



Abbildung 3.16. Abhängigkeit der spektralen Empfindlichkeit von der Resonatorverlustrate:  $L_{\rm eff}(\gamma)$ . Kreise: experimentelle Daten vom Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser mit der Faser |9|; blaue durchgezogene Linie: Fit-Anpassung an experimentelle Punkte  $L_{\rm eff} \propto 1/\gamma$ ; blaue gestrichelte Linie: Korrektur für kleine Verlustraten; grüne Linien: die durch Spontanemission begrenzte spektrale Empfindlichkeit bei verschiedener Modendichte  $\alpha$ ; rote Linien: die durch räumliche Inhomogenität der Verstärkung begrenzte spektrale Empfindlichkeit bei verschiedener Modendichte  $\alpha$ . Durchgezogen:  $\alpha = 1$ , gestrichelt  $\alpha = 0,2$ . SE – Spontanemission, RI – räumliche Inhomogenität, Exp. – Experiment.  $\eta = 2$ ,  $L_{\rm Faser} = 106$  cm,  $L_{\rm extern} = 82$  cm.

Weiterhin zeigt die Abb. 3.16, dass bei kleinen Verlustraten ( $\gamma \le 2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ) die Empfindlichkeit sich fast nicht ändert. Dies ist durch eine gestrichelte blaue Linie angedeutet. In diesem Fall ist die Begrenzung wahrscheinlich durch die Rayleigh-Streuung gegeben, die von der Verlustrate unabhängig ist (s. Gl. (1.19)). Das Intervall  $2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1} < \gamma < 4 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$  stellt einen Übergangsbereich dar, wo beide Begrenzungsmechanismen, Rayleigh-Streuung und räumliche Inhomogenität der Verstärkung, auf die Empfindlichkeit wirken. Bei weiterer Erhöhung der Resonatorverlustrate ( $\gamma \ge 4 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ) wird die räumliche Inhomogenität bei der Begrenzung der spektralen Empfindlichkeit dominierend.

Um festzustellen, wie sich der Einfluss der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung auf die Laser-Dynamik bei verschiedener Zahl der oszillierenden Moden verhält, wurde das zeitliche Verhalten der Gesamtleistung des Faserlasers und das der einzelnen spektralen Ausschnitte im Dauerstrichbetrieb untersucht.

### 3.4 Moden-Dynamik

Die Untersuchung der Wirkung der räumlichen Inhomogenität auf die spektrale Dynamik wurde auch mit einem Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser durchgeführt. Bei den diesem Kapitel zugrunde liegenden Messungen wurde die Faser Lycom (|17|: NA = 0,22,  $\lambda_{cutoff} = 1080$  nm) verwendet. Die Länge der Faser betrug  $L_{Faser} = 96$  cm, die des externen Teils  $L_{extern} = 82$  cm. Die optische Länge des Resonators betrug demnach  $L_{Resonator} = 226$  cm.

In einem idealen Vielmoden-Laser, d.h. wenn alle Moden nur auf die gemeinsame Inversion zugreifen, kann die Leistung in den einzelnen Moden sehr starke Schwankungen mit der Auslenkung bis 100% ausführen [86], die von Quantenfluktuationen und anderen Störungen angetrieben werden. Die Gesamtleistung des Lasers bleibt aber konstant. Das erklärt sich dadurch, dass die Inversion nur auf die Änderung der Gesamtintensität reagieren kann. D.h. wenn sich in einigen Moden weniger Photonen als der Mittelwert befinden und in anderen mehr und zwar so, dass die Summe gleich bleibt, ändert sich die Inversion nicht.

Das aktive Medium von realen Festkörperlasern ist relativ lang und die aktiven Ionen besitzen feste räumliche Positionen. Die Stehwellenstruktur der Moden führt zur räumlichen Inhomogenität der Verstärkung in der longitudinalen [55, 87, 88] und in der transversalen Richtung [80, 89], wodurch für jede Mode Bereiche der *eigenen* Inversion entstehen (s. Abb. 1.3). Das resultiert sich in einer Entkopplung der Lasermoden. Die Leistungen der einzelnen Moden und die Gesamtleistung führen im Dauerstrichbetrieb charakteristische Schwingungen um einen Mittelwert aus, die von verschiedenen Störungen, wie z.B. mechanischer Instabilität aber auch Quantenfluktuationen, angetrieben werden [56]. Diese Schwingungen äußern sich in den gegenphasigen Oszillationen der Leistungen der Polarisationsmoden und der einzelnen Longitudinalmoden.

Eine ideale Glasfaser mit rundem Querschnitt ist völlig symmetrisch zur optischen Achse. Die Nd<sup>3+</sup>-Ionen sind isotrop orientiert und es gibt deswegen keine Vorzugsrichtung für die Polarisation des Faserlasers. Da allerdings jede Faser bestimmten Fertigungstoleranzen unterliegt, wird in der Faser die Doppelbrechung erzeugt. Dazu tragen auch mechanische Spannungen und Erwärmung der Faser bei. All dies verursacht die Auszeichnung bestimmter Polarisationsrichtungen der Laseremission. Der Faserlaser im Experiment zeigte zwei entsprechende Vorzugsrichtungen für Polarisation.

Um dies zu untersuchen wurden die Leistungen der Emission des Faserlasers in 2 orthogonalen Polarisationen und der Gesamtemission mit dem Speicherozilloskop Lecroy, ([18]: Wave Runner 6050, 500 MHz Frequenzauflösung) aufgenommen und nach Fourier transformiert. Abbildung 3.17 zeigt die mit einer Photodiode hintereinander aufgenommenen Wechselsignalanteile in beiden senkrechten Polarisationsmoden des Lasers. Diese Signale sind durch die mittlere Gesamtleistung geteilt. Die Polarisationsrichtungen wurden mit einem Polarisator ausgewählt, der sich vor der Photodiode befand. Dabei wurde entweder die eine oder die andere Polarisationsmode (Orientierung 90° zueinander) durchgelassen. Die Zeitserien enthalten 10<sup>5</sup> Datenpunkte mit der Auflösung 1  $\mu$ s. Die Leistungen in beiden Polarisationen weisen charakteristische Schwingungen mit der relativen Amplitude von etwa 2% und der Periode von etwa 50  $\mu$ s auf. Die dieser Periode entsprechende Frequenz ist 20 kHz. Es ist die phasengleiche Hauptrelaxationsfrequenz  $v_0$ . Die langsamere gegenphasige Oszillation mit der Frequenz  $v_{Pol}$  ist deutlich schwächer und in den Zeitserien schwer zu erkennen.

Abbildung 3.18 zeigt die Leistungsspektren der beiden Polarisationsmoden. Die Maxima bei beiden Frequenzen  $v_0$  und  $v_{Pol}$  sind gut zu sehen. Zudem ist das Leistungsspektrum der Gesamtintensität im unteren Diagramm der Abb. 3.18 angeführt. Der Beitrag bei der Frequenz  $v_{Pol}$  ist im Leistungsspektrum der Gesamtemission vollständig kompensiert. Dementsprechend sind die absoluten Amplituden der Schwankungen in einzelnen Polarisationsmoden gleich stark und gegenphasig. Kleine Verschiebungen der entsprechenden Frequenzen in verschiedenen Leistungsspektren sind durch zeitlich getrennte Aufnahmen bedingt.



Abbildung 3.17. Die auf die mittlere Gesamtleistung normierten Leistungsschwankungen des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |17| in beiden orthogonalen Polarisationen,  $\eta = 2$ .



Abbildung 3.18. Leistungsspektren der Emission des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |17| in 2 orthogonalen Polarisationen (2 obere Graphen) und der Gesamtemission (unterer Graph).  $\eta = 2$ .

Abbildung 3.19 zeigt die Leistungsspektren des Nd<sup>3+</sup>-Faserlasers von beiden Polarisationen und von der Gesamtemission bei verschiedenen Pumpparametern. Sowohl die Hauptrelaxationsfrequenz  $v_0$  als auch die gegenphasige Relaxationsfrequenz  $v_{Pol}$  steigt mit der Pumprate  $\eta$ . Außerdem werden die Maxima breiter und tiefer, so dass die niederfrequente Komponente bei der Frequenz  $v_{Pol}$  im Leistungsspektrum mit  $\eta = 60$  nicht mehr erkennbar ist. Die Ursache hierfür liegt darin, dass der Einfluss des Quanten- und technischen Rauschens (mechanische Schwankungen des optischen Tisches oder Luftbewegungen im externen Teil des Resonators) mit stärkerem Pumpen abnimmt und die Amplitude der Resonanzschwingungen der Laseremission deswegen kleiner wird. Die sehr schmalen Spitzen in den Leistungsspektren der Abb. 3.19 können dem elektrischen Rauschen im Labor zugeordnet werden. Das Leistungsspektrum des Dunkelsignals der Photodiode ist im unteren Diagramm der Abbildung 3.19 angeführt, woran deutlich zu erkennen ist, dass diese Rauschspitzen in allen Leistungsspektren auftreten.

Die Hauptrelaxationsfrequenz lässt sich aus Gleichung (3.3) bestimmen [56]. Abbildung 3.20 zeigt die Abhängigkeit des Quadrats der Hauptrelaxationsfrequenz vom Pumpüberschuss (Daten aus Abb. 3.19). Der lineare Zusammenhang bestätigt, dass die beobachteten Oszillationen tatsächlich den Schwingungen mit der Hauptrelaxationsfrequenz entsprechen. Genauso, wie bei der Beschreibung der Abb. 3.7 erklärt, ergeben sich aus der Steigung der durch die Messpunkte gelegten Regressionsgeraden die Resonatorverluste zu  $\gamma \cong 6 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ . Das entspricht in diesem Experiment 8,5% Verlust pro Umlauf.

Das Quadrat der Frequenz der Polarisationsmodenoszillationen  $v_{pol}^2$  zeigt auch eine lineare Abhängigkeit vom Pumpüberschuss. Diese Abhängigkeit ist in der Abb. 3.21 dargestellt.

Physikalisch gesehen resultiert sich die Erhöhung der Relaxationsfrequenzen (sowohl  $v_{pol}$  als auch  $v_0$ ) mit der Pumpleistung aus der Erhöhung der Rückstellkraft, die auf die Polarisationsmoden bzw. die Gesamtintensität bei der Auslenkung durch unterschiedliche Störungen aus dem Mittelwert der Photonenzahlen wirkt. Reduziert sich die Anzahl der Photonen in einer Polarisationsmode, so steigt ihre *eigene* Inversion und kompensiert die verlorene Energie. Umgekehrt, befinden sich mehr Photonen in einer Mode als der Mittelwert, sinkt die eigene Inversion dieser Mode, die Verluste übersteigen die Verstärkung und so pendelt sich die Mode auf ihren stationären Zustand wieder ein. Identisch reagiert auch die für alle Moden *gemeinsame* Inversion auf die Änderung der Gesamtphotonenzahl im Resonator. Je stärker gepumpt wird, d.h. je mehr Pumpphotonen pro Zeiteinheit in das aktive Medium eingekoppelt werden, desto schneller wird sowohl die eigene Inversion der einzelnen Polarisationsmoden als auch die gemeinsame Inversion aufgebaut und desto mehr stimulierte Laserphotonen pro Zeiteinheit werden erzeugt.



Abbildung 3.19. Leistungsspektren der Emission des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |17| in 2 orthogonalen Polarisationen und der Gesamtemission bei verschiedenen Pumpraten  $\eta$ . Unterer Graph: Leistungsspektrum des Dunkelsignals der Photodiode.



Abbildung 3.20. Quadrat der Hauptrelaxationsfrequenz  $v_0^2$  vs. Pumpüberschuss  $\eta - 1$  (Kreise). Die durchgezogene Linie zeigt die Regressionsgerade durch die Messpunkte.



Abbildung 3.21. Quadrat der gemessenen Relaxationsfrequenz  $v_{pol}^2$  vs. Pumpüberschuss  $\eta - 1$  (Kreise). Die durchgezogene Linie zeigt die Regressionsgerade durch die Messpunkte.

Um die zeitliche Dynamik der longitudinalen Lasermoden zu untersuchen wurde das Licht des Faserlasers in den Spektrographen geleitet und spektral zerlegt. Der Spektrograph |10| wurde auf Monochromator-Betrieb eingestellt. Das Auflösungsvermögen des Gitterspektrographen beträgt im Monochromator-Betrieb in der 4. Beugungsordnung 2,5 GHz. Der Modenabstand des Faserlasers betrug  $\Delta v = \frac{c}{2L_{\text{Resonator}}} \approx 66 \text{ MHz}$  $(2,2\cdot10^{-3} \text{ cm}^{-1})$ . In dem Auflösungsintervall des Spektrographen waren demnach ca. 38

Moden enthalten. Am Austrittsspalt des Spektrographen wurde eine Photodiode platziert, mit der das Signal dieses schmalen spektralen Ausschnitts aufgenommen wurde. Anschließend wurde das Signal mit dem Oszilloskop Lecroy |18| gespeichert und nach Fourier transformiert.

Abbildung 3.22 zeigt die Wechselsignalanteile der Gesamtleistung und des spektralen Ausschnitts. Beide Signale sind auf ihre Mittelwerte normiert. Die Gesamtleistung zeigt Schwankungen mit der relativen Amplitude von etwa 3% und der Periode von etwa 55  $\mu$ s, die der Hauptrelaxationsfrequenz  $v_0$  entspricht. Da der spektrale Ausschnitt nur einen kleinen Teil des Gesamtspektrums darstellte, war sein zeitliches Signal schwach und wies wesentlich mehr Rauschen als die Gesamtleistung auf. Auf diesem Diagramm sind keine charakteristischen Schwingungen zu erkennen.



Abbildung 3.22. Schwankungen der Gesamtleistung (oben) und des spektralen Ausschnitts (unten) beim Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |17|. Die Leistungen sind auf ihre jeweiligen Mittelwerte normiert.  $L_{\text{Faser}} = 96 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 82 \text{ cm}$ ,  $\eta = 2$ .

In der Abbildung 3.23 sind die Leistungsspektren der Gesamtemission, des spektralen Ausschnitts und des Dunkelsignals der Photodiode dargestellt. Das Leistungsspektrum der Gesamtleistung weist den der Hauptoszillation entsprechenden Beitrag bei  $v_0 \approx 18$  kHz auf. Außerdem erscheint bei der Frequenz von etwa 6,5 kHz ein kleiner Beitrag, der dem unkompensierten Teil der Polarisationsmoden-Schwingung entspricht. Das Leistungsspektrum des schmalen spektralen Ausschnitts zeigt auch den Beitrag bei der Frequenz  $v_0$ . Es weist zudem viele Frequenzkomponenten des Dunkelsignals auf (Vgl. Abb. 3.23 Mitte und unten). Die charakteristische gegenphasige Einzelmoden-
Oszillation [56] erscheint in diesem Leistungsspektrum jedoch nicht. Das liegt offensichtlich daran, dass der Effekt der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung im Laser mit vielen oszillierenden Moden relativ schwach ist. In diesem Fall wird der Anteil der eigenen Inversion für jede Mode klein und die Moden sind zum großen Teil über gemeinsame Inversion gekoppelt.



Abbildung 3.23. Leistungsspektren der Gesamtemission (oben), einer Gruppe der longitudinalen Moden (Mitte) und des Dunkelsignals (unten). Nd<sup>3+</sup>- dotierter Faserlaser mit der Faser |17|,  $L_{\text{Faser}} = 96 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 82 \text{ cm}$ ,  $\eta = 2$ .

Um zu untersuchen, ob die räumliche Inhomogenität der Verstärkung bei wenigen oszillierenden Moden einen Einfluss auf die Laser-Dynamik hat, wurden mehrere Resonatormoden unterdrückt. Dies erfolgte durch das Einbringen eines Etalons in den externen Teil des Resonators. Das in diesem Experiment verwendete Glasetalon war ca. 250 µm dick. Der freie Spektralbereich des Etalons betrug somit 400 GHz bzw. 13 cm<sup>-1</sup>. Abbildung 3.24 zeigt beispielhaft das Emissionsspektrum des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit diesem Etalon. Es ist sehr stark moduliert und besteht aus nur noch 7 Emissionslinien, von denen jede nur wenige Lasermoden enthält. Der freie Spektralbereich des Etalons von 13 cm<sup>-1</sup> ist kleiner als die homogene Linienbreite der Verstärkung (30 cm<sup>-1</sup>). Deswegen konnten zwei benachbarte Emissionslinien um gemeinsame Inversionsanteile konkurrieren.



Abbildung 3.24. Emissionsspektrum eines  $Nd^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit dem Etalon der Dicke  $d = 250 \mu m$  im externen Teil des Resonators.

Zur Aufnahme der Dynamik wurde eine Emissionslinie aus dem Gesamtspektrum mit dem Spektrographen |10| im Monochromator-Betrieb ausgewählt und deren Zeitsignal mit dem Oszilloskop Lecroy |18| untersucht.

In Abb. 3.25 ist die gemessene Schwankung der Gesamtleistung und einer einzelnen Emissionslinie gezeigt. In dieser Darstellung sind die beiden Wechselsignalanteile auch auf ihre jeweiligen Mittelwerte normiert. Die Gesamtleistung weist nur Hauptrelaxationsschwingungen mit der relativen Amplitude von 1% und mit der Periode von etwa 40  $\mu$ s auf. Das Signal der einzelnen Emissionslinie war zwar schwach, zeigt aber dann neben der Hauptrelaxationsschwingung auch eine zweite langsamere Schwingung. Die Periode dieser Schwingung beträgt ungefähr 300  $\mu$ s und entspricht der Einzelmoden-Oszillation mit der Frequenz  $v_q$ .

Abbildung 3.26 zeigt die aus diesen Zeitsignalen berechneten Leistungsspektren der Gesamtemission (oberes Diagramm) und einer einzelnen schmalen Emissionslinie (unteres Diagramm). Im Fourierspektrum der schmalen Emissionslinie erscheinen die beiden Relaxationsfrequenzen:  $v_0$  – die Hauptrelaxationsschwingung und  $v_q$  – die gegenphasige Einzelmoden-Oszillation. Im Leistungsspektrum der Gesamtemission (Abb. 3.26 (oben), schwarze Kurve) ist nur ein Maximum bei der Frequenz  $v_0$  zu erkennen. Die Einzelmoden-Oszillationen sind in der Gesamtleistung perfekt kompensiert. Zum Vergleich sind im oberen Diagramm der Abbildung 3.26 auch die Leistungsspektren der beiden Polarisationsmoden präsentiert (rote und blaue Kurven). Die oben beschriebenen Oszillationen bei der Frequenz  $v_{Pol}$  sind in dem Fourierspektrum der Gesamtleistung auch vollständig kompensiert. Auch im Leistungsspektrum der schmalen Emissionslinie erscheint diese Frequenz nicht, da diese Linie beide Polarisationskomponenten enthält, deren Schwingungen in der Summe ausgeglichen werden.



Abbildung 3.25. Leistung aller Moden (oben) und Leistung einer einzelnen Emissionslinie (unten).  $\eta = 2,7$ . Etalon der Dicke  $d = 250 \,\mu\text{m}$  im externen Teil des Resonators.



Abbildung 3.26. Leistungsspektren aller longitudinalen Moden des Nd<sup>3+</sup>dotierten Faserlasers mit der Faser |17| in 2 orthogonalen Polarisationen und der Gesamtemission (oben) bzw. einer Emissionslinie (unten).  $\eta = 2,7$ . Etalon der Dicke  $d = 250 \,\mu\text{m}$  im externen Teil des Resonators.

Diese Ergebnisse zeigen, dass der Einfluss der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung auf die Laser-Dynamik umso größer wird, je weniger Lasermoden oszillieren. Mit sinkender Modenzahl erhöht sich für jede Mode der Anteil der eigenen Inversion, was den Entkopplungsgrad der Moden steigen lässt. Das kann auch dazu führen, dass die räumliche Inhomogenität bei wenigen oszillierenden Moden die Empfindlichkeit gegen die resonatorinterne Absorption stark begrenzen kann. Bei vielen oszillierenden Moden ist die Wirkung der räumlichen Inhomogenität dagegen kleiner und die spektrale Empfindlichkeit kann von anderen Effekten, wie z.B. Rayleigh-Streuung, beeinflusst werden.

## 3.5 Wege zur Steigerung der spektralen Empfindlichkeit

Die Empfindlichkeit auf die Absorption im Resonator eines Faserlasers kann von einem der 3 Mechanismen begrenzt werden: Spontanemission, Rayleigh-Streuung und räumliche Inhomogenität der Verstärkung. Welcher Mechanismus bei der Begrenzung dominiert, hängt von den Betriebsparametern des Lasers ab. Abbildung 3.27 zeigt die Bereiche des Pumpüberschusses  $\eta - 1$  und der Resonatorverlustrate  $\gamma$  für den Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser aus dem Experiment, in denen die Wirkung von jeweils einem Mechanismus entscheidend ist. Die Berechung wurde unter der Annahme gemacht, dass sich die Modenzahl mit der Pumprate nicht ändert und  $\mathbf{N} = \mathbf{N}_{hom} = 1,5 \cdot 10^4$  gilt. Für die in die Berechnung eingehende Rayleigh-Streurate wurde der in Kap. 3.3.1 ermittelte Wert von  $R = 6,9 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$  verwendet. Die Ergebnisse sind für 2 unterschiedliche Modendichte-Faktoren  $\alpha = 0,2$  (oberes Diagramm) und  $\alpha = 0,05$  (unteres Diagramm) dargestellt.

Die maximale spektrale Empfindlichkeit wird im Bereich der Begrenzung durch die Rayleigh-Streuung erreicht. Bei dem im Experiment verwendeten Faserlaser betrug sie  $L_{\text{eff}} = 40 \text{ km}$ . Liegen die Betriebsparameter des Lasers außerhalb dieses Bereichs, so wird die Empfindlichkeit entweder von der Spontanemission oder der räumlichen Inhomogenität begrenzt und wird geringer als der maximale Wert.

Die Spontanemission begrenzt die spektrale Empfindlichkeit nur bei kleinen Pumpraten. Da die Messungen meist bei höheren Pumpraten durchgeführt werden, ist die Empfindlichkeit in der Praxis entweder von der Rayleigh-Streuung oder von der räumlichen Inhomogenität bestimmt. Die Rayleigh-Streuung ist bei kleinen Verlusten und großer Zahl der oszillierenden Moden dominierend. Werden die Resonatorverluste erhöht, so tritt bei einer festen Pumprate der Einfluss der räumlichen Inhomogenität ein. Die Verlustrate, bei der dieser Übergang stattfindet, ist umso kleiner, je weniger Moden oszillieren. Dies ist aus dem Vergleich der beiden Diagramme der Abb. 3.27 zu sehen. Außerdem sieht man, dass bei großen Verlusten die räumliche Inhomogenität auch bei kleinerer Pumprate dominieren kann, wenn die Modenzahl gering ist.



Abbildung 3.27. Laserparameterbereiche der dominierenden Mechanismen der Begrenzung der spektralen Empfindlichkeit des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers aus dem Experiment bei verschiedener Modendichte  $\alpha$ . SE – Spontanemission, RS – Rayleigh-Streuung, RI – räumliche Inhomogenität.

Der Übergang zwischen der Spontanemission und der Rayleigh-Streuung hängt von der Streurate *R* ab. Ist diese groß, so wird die Empfindlichkeit in einem großen Verlustratenbereich durch die Rayleigh-Streuung begrenzt. Ist die Streurate dagegen klein, dann ist die Wirkung der Rayleigh-Streuung auch klein und die räumliche Inhomogenität wird der entscheidende die Empfindlichkeit begrenzende Faktor.

Um die spektrale Empfindlichkeit zu erhöhen, muss die Wirkung von den beiden Begrenzungsmechanismen reduziert werden. Die räumliche Inhomogenität lässt sich unter Umständen sogar beseitigen.

## 3.5.1 Reduzierung der Rayleigh-Streuung

Eine Methode die Wirkung der Rayleigh-Streuung zu reduzieren ist die Verringerung des Füllfaktors des Resonators mit dem aktiven Medium  $(L_{\text{Medium}}/L_{\text{Resonator}})$ . Im oben beschriebenen Experiment betrug dieser Füllfaktor  $(n_{\text{K}} \cdot L_{\text{Faser}})/L_{\text{Resonator}} \approx 0,66$ . Falls die Faser gekürzt wird, soll die Konzentration von aktiven Ionen erhöht werden um die gleiche Absorption des Pumplichts zu gewährleisten. Wird eine ähnliche Faser wie |9| (NA = 0,21) mit der gleichen Qualität ( $\delta = 7 \text{ dB/km}$ , was  $R_{ges} = 4,6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$  entspricht) verwendet, so lässt sich mit einem 3 mal kleineren Füllfaktor, d.h. mit  $(n_{K} \cdot L_{Faser})/L_{Resonator} = 0,22$ , die Streurate in den Raumwinkel der numerischen Apertur der Faser von  $R \cong 2,3 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$  erreichen (s. Gl. (1.48)). Nach Gl. (1.19) errechnet sich die durch Rayleigh-Streuung begrenzte spektrale Empfindlichkeit zu  $L_{eff} = 130 \text{ km}$ . Dieser Wert ist ca. 3 mal größer als der im Experiment erhaltene.

Eine andere Möglichkeit die durch die Rayleigh-Streuung begrenzte Empfindlichkeit zu erhöhen ist die Verwendung von Fasern mit einer kleineren numerischen Apertur. Mit der Halbierung der numerischen Apertur auf NA = 0,1 und dem Füllfaktor von 0,22 ergibt sich die Streurate in den Akzeptanzwinkel der Faser mit Gl. (1.48) zu  $R \approx 5 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$ . Die Berechnung nach Gl. (1.19) liefert für die Empfindlichkeit  $L_{\text{eff}} = 600 \text{ km}$ . Dieser Wert liegt eine Größenordnung über der im Experiment erreichten Empfindlichkeit. Hierbei muss allerdings darauf geachtet werden, dass die Abschneidewelenlänge unter der Emissionswellenlänge des Faserlasers bleibt. Das bedeutet, dass die Faser einen dickeren Kern besitzen muss, dessen Durchmesser sich gemäß Gl. (2.4) mit  $\lambda_{\text{cutoff}} \sim 1 \,\mu\text{m}$  und NA = 0,1 zu ca. 7,6  $\mu\text{m}$  errechnet. In diesem Fall steigt die Schwellpumpleistung ungefähr auf das 5fache des Wertes des Faserlasers aus dem Experiment an. Für den Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser ergäbe sich dann ca.  $P_{\text{thr}} \approx 30 \text{ mW}$ , was mit einer Laserdiode noch gut erreicht werden kann.

Der weitere Weg die Rate der Rayleigh-Streuung zu minimieren ist die Verbesserung der Qualität von Fasern. Mit einer Dämpfung von  $\delta = 0,65 \text{ dB/km}$  ergibt sich die Gesamtstreurate nach Gl. (1.47) zu  $R_{\text{ges}} \approx 4,5 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ . Wird der oben beschriebene Aufbau verwendet (Faser mit NA = 0,1 und dem Füllfaktor des Resonators mit dem aktiven Medium  $(n_{\text{K}} \cdot L_{\text{Faser}})/L_{\text{Resonator}} = 0,22$ ), so ist  $R = 50 \text{ s}^{-1}$  (Gl. (1.48)). Die sich dadurch ergebende spektrale Empfindlichkeit beläuft sich gemäß Gl. (1.19) auf  $L_{\text{eff}} = 6000 \text{ km}$ . Dieser Wert übersteigt das experimentelle Ergebnis um mehr als 2 Größenordungen. Die Dämpfung durch die Rayleigh-Streuung in passiven Fasern wurde bereits auf 0,15 dB/km reduziert [58]. Deswegen kann die angenommene Dämpfung von 0,65 dB/km in der nächsten Zeit auch in dotierten Fasern erreicht werden.

Es ist anzumerken, dass, wenn der Einfluss der Rayleigh-Streuung verringert wird, dann die Begrenzung durch die räumliche Inhomogenität der Verstärkung dominierend werden kann. Die durch diesen Mechanismus begrenzte spektrale Empfindlichkeit für den Faserlaser aus dem Experiment mit  $\gamma = 1.9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ,  $\mathbf{N}_{\text{hom}} = 1.5 \cdot 10^4$  bei der Pumprate  $\eta = 2$  und ohne Modenselektion ( $\alpha = 1$ ) beläuft sich gemäß Gl. (3.14) auf ca. 470 km. Bei kleinerer Modendichte ist diese Begrenzung noch stärker, z.B. bei  $\alpha = 0,1$  ist  $L_{\text{eff}} = 47 \text{ km}$ . Zur Steigerung der Empfindlichkeit ist es deswegen erforderlich die Wirkung der räumlichen Inhomogenität auch zu minimieren.

## 3.5.2 Reduzierung bzw. Beseitigung der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung

Die Wirkung der räumlichen Inhomogenität der Verstärkung auf die Empfindlichkeit kann durch die richtige Wahl der Betriebsparameter des Lasers reduziert werden. Aus den gezeigten Ergebnissen geht hervor, dass diese Wirkung umso kleiner ist, je geringer die Resonatorverluste sind und je mehr Moden oszillieren. Die Umlaufverluste des Resonators lassen sich durch die Verwendung von resonatorinternen Linsen mit der besten Abbildungsqualität verringern. Auch eine sorgfältige Faserendflächenbearbeitung darf nicht außer Acht gelassen werden.

Der nächste Schritt ist die Erhöhung der Zahl der oszillierenden Moden. Gemäß der in Kap. 3.3.2 gegebenen Abschätzung oszilliert in dem Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser aus dem Experiment nur jede 10. Mode ( $\alpha = 0,1$ ). Die anderen Moden sind durch resonatorinterne Etalone ausgedämpft. Durch Beseitigung von diesen Etalonen kann demnach die Modendichte erhöht werden. Dafür müssen die resonatorinternen Flächen, wie z.B. das offene Faserende und die Ankoppellinse, besonders gut entspiegelt werden. In der Praxis wurden bis jetzt die Reflektivitäten dieser Flächen von ca. 0,1% realisiert. Die Anforderungen an die Qualität der Entspiegelung werden allerdings umso strenger, je größer die zu erwartende Empfindlichkeit ist (man beachte eine größere effektive Anzahl der Umläufe im Resonator). Außerdem werden durch eine gute Entspiegelung die Resonatorverluste zusätzlich reduziert. Alternativ zur Entspiegelung kann das resonatorinterne Faserende unter einem Winkel geschnitten werden. Dieses Verfahren kann aber eine Erhöhung der Verlustrate des Resonators verursachen [10], was die Empfindlichkeit wiederum reduzieren kann. Deswegen ist jeweils zu entscheiden, ob Schrägschnitt der Faser Vorteile bringt. Noch eine Möglichkeit die Modenzahl zu erhöhen ist die Verwendung einer Ankoppellinse mit einer kleineren chromatischen Abberation. Das Spektrum wird in diesem Fall breiter. Ferner resultiert sich die Verlängerung des externen Teils des Resonators in der Verringerung des spektralen Abstands zwischen den Moden. Somit wird auch deren Zahl größer.

Eine weitere Reduzierung der Wirkung der räumlichen Inhomogenität auf die spektrale Empfindlichkeit ist bei dem Betrieb bei kleinen Pumpraten zu erwarten.

Zur weiteren Steigerung der Empfindlichkeit kann die räumliche Inhomogenität durch Modulation der Position der Stehwellenstruktur reduziert werden. Die Realisierungsmöglichkeiten sehen einen beweglichen Auskoppelspiegel oder die Verwendung von elasto-optischen Phasenmodulatoren [90] vor. Weiterhin kann der Effekt des räumlichen Lochbrennens ganz oder teilweise beseitigt werden. Beim Einbringen eines akustooptischen Deflektors (AOD) in den externen Teil des Resonators tritt eine resonatorinterne Frequenzverschiebung der Lasermoden auf, die die konstruktive Interferenz der umlaufenden Wellen verhindert. Die Moden-Struktur wird in diesem Fall aufgelöst und es entsteht ein "modenloser" Laser [91]. Der Aufbau eines Ringfaserlasers mit nur laufenden Wellen erlaubt es die Stehwellen-Struktur ganz zu vermeiden [92]. Im Folgenden wird ein Überblick über diese Methoden gegeben. Zum Teil wurden sie auch experimentell erprobt.

### 3.5.2.1 Räumliche Verschiebung der Stehwellen-Struktur

Die einfachste Methode zur Reduktion der räumlichen Inhomogenität ist die periodische Verschiebung des Auskoppelspiegels (Abb. 3.28). Der eine Spiegel S1 bleibt dabei in Ruhe und der andere S2 wird z.B. mit einem Piezo-Element in Bewegung versetzt. Die Länge des Resonators muss so moduliert werden, dass in der Faser die Stellen der Knoten durch Bäuche ersetzt werden und dann umgekehrt. Da jede Mode an den Spiegeln immer Knoten hat, ist diese Verschiebung der Bäuche und Knoten der stehenden Wellen umso geringer, desto näher sie sich am festen Spiegel S1 befinden. Deswegen lässt sich der Effekt der räumlichen Inhomogenität in einem Laser mit einem direkt auf die Endfläche des aktiven Mediums aufgebrachten Resonatorspiegel nur schwach reduzieren. Bei  $(n_{\rm K} \cdot L_{\rm Faser})/L_{\rm Resonator} = 0,5$  ändert eine stehende Welle in einem am offenen Fasernde nah liegenden Bereich ihre Position um  $\lambda/4$ , wenn der Auskoppelspiegel um  $\lambda/2$  hin- und zurückgeschoben wird. Dieser Prozess muss mindestens genauso schnell erfolgen wie der Zerfall des oberen Laserniveaus. Die Lebensdauer dieses Niveaus für Nd3+-Ion ist  $\tau \approx 460 \,\mu s$  (s. Kap. 3.2.1). Dieser Wert stellt die obere Grenze dar, da bei einem induzierten Übergang sich die Lebensdauer stark verkürzt. Bei der Wellenlänge  $\lambda \approx 1 \, \mu m$  muss demnach die Geschwindigkeit des Auskoppelspiegels  $\mathbf{V} = \frac{\lambda/2}{\tau}$  mindestens 1 mm/s betragen.

Diese Methode wurde im Experiment mit einem  $Nd^{3+}$ -dotierten Faserlaser geprüft. Der Auskoppelspiegel war auf einem mit einer Mirkometerschraube versehenen Verschiebetisch befestigt. Die Mikrometerschraube des Verschiebetisches wurde mit der Hand unterschiedlich schnell gedreht, so dass der Spiegel entlang der optischen Achse des Resonators geleitet wurde. Der Resonator wurde dabei verkürzt, wie es schematisch die Abb. 3.28 zeigt. Jede Verstellung des Spiegels dauerte etwa 0,5 s. Anhand des zurückgelegten Weges (Ablesung des Anfangs- und Endstandes an der Mikrometerschraube) wurde die Bewegungsgeschwindigkeit abgeschätzt. Der maximale Verstellweg des Spiegels betrug ca. 250 µm.



Abbildung 3.28. Veränderung der Stehwellenstruktur bei Verschiebung des Auskoppelspiegels.

Abbildung 3.29 zeigt die stationären Spektren bei verschiedenen Geschwindigkeiten des Resonatorspiegels S2. Zu sehen ist eine starke Änderung des Emissionsspektrums mit steigender Spiegelgeschwindigkeit. Das Verhalten des Absorptionssignals ist nicht eindeutig identifizierbar. Bei V  $\approx$  500 µm/s bildet sich eine breitbandige periodische Struktur aus, die die Bestimmung der spektralen Empfindlichkeit erschwert.

Abbildung 3.30 stellt eine mögliche Erklärung für die Änderung des Spektrums bei der Änderung der Länge des externen Teils des Resonators dar. Ein aus dem aktiven Medium und dem freien Teil bestehender Resonator stellt 2 Etalone mit den optischen Längen  $L_1$  und  $L_2$  dar (s. Abb. 3.28). Ihre freien Spektralbereiche bzw. Modenabstände sind demnach  $\Delta v_1 = c/2L_1$  und  $\Delta v_2 = c/2L_2$ . Der freie Spektralbereich des gesamten Resonators beträgt  $\Delta v = c/2(L_1 + L_2) = c/2L_{\text{Resonator}}$ . Es werden nur die Moden oszillieren, die die geringsten Verluste erfahren, d.h. diejenigen, für die das Produkt der Transmission der beiden Etalone maximal ist. Befinden sich die optischen Längen der Resonatorteile in einem ganzzahligen Verhältnis zueinander, d.h.  $L_1 = n \cdot L_2$ , so fallen die Transmissionsmaxima der Etalone für einige Moden zusammen (grün gekennzeichnete Moden in Abb. 3.30) und diese Moden werden im Laserresonator angeregt (rot gekennzeichnete Moden). Im Experiment betrug das Verhältnis  $L_1/L_2 \approx 2$ . Wird der externe Teil des Resonators um einen Betrag von  $\lambda/4$  verkürzt, dann verschieben sich die Resonanzwellenlängen um  $2 \cdot (\lambda/4) = \lambda/2$ , wie es im unteren Teil der Abbildung 3.30 gezeigt ist. Die Transmissionsmaxima der durch die einzelnen Resonatorteile gebildeten Etalone fallen jetzt für andere Moden zusammen. Die effektive Frequenzverschiebung kann durch diesen Hebeleffekt bis zu mehreren Modenabständen des gesamten Resonators betragen. Wird der Spiegel



Abbildung 3.29. Stationäre Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |9| mit beweglichem Auskoppelspiegel bei verschiedenen Geschwindigkeiten V.  $L_{\text{Faser}} = 106 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 80 \text{ cm}$ .



Abbildung 3.30. Moden der beiden Resonatorteile und des ganzen Resonators (schematische Darstellung). Unten: der externe Teil des Resonators ist um  $\lambda/4$  verkürzt.

weiter verschoben, tritt die Frequenzverschiebung immer wieder auf, bis der Spiegel zum Stillstand gebracht ist. Die so hervorgerufene Wellenlängenverschiebung des Lichtflusses führt dazu, dass spektrale Strukturen im Laserspektrum nicht mehr richtig wiedergegeben werden und die Absorptionslinien lange Flügel bekommen.

Die räumliche Inhomogenität wird noch nicht richtig reduziert, da die maximale Spiegelgeschwindigkeit im Experiment unter 1 mm/s lag. Wegen der starken Verfälschung des Spektrums ist eine weitere Erhöhung der Geschwindigkeit nicht sinnvoll. Deswegen erweist sich diese Methode für den Nd<sup>3+</sup>-dotietren Faserlaser als nicht praktikabel.

Eine andere Möglichkeit die Stehwellen-Struktur über das aktive Medium zu verschieben bietet die Verwendung von elasto-optischen Phasenmodulatoren. Die Abbildung 3.31(a) präsentiert eine mögliche Realisierung dieser Modulation [90]. Eine dotierte Faser ist mit zwei passiven Fasern gespleißt. Jede dieser passiven Fasern ist auf einer Spule aufgewickelt und jede Spule ist mit Piezoelementen versehen. Diese Piezoelemente werden antiphasig betrieben: die Länge der linken passiven Faser ändert sich immer um den gleichen Betrag wie die der rechten, aber die Änderungsrichtung ist entgegengesetzt. Somit bleibt die dotierte Faser in Ruhe und die Resonatorlänge zu jedem Zeitpunkt konstant. Die Stehwellenstruktur wird aber vor- und zurückgeschoben (Abb. 3.31(b)). Ist die Modulationsfrequenz größer gewählt als die Zerfallsrate des oberen Laserniveaus, so kann die Inversion den Variationen der Stehwellen-Struktur nicht folgen und die räumliche Inhomogenität der Verstärkung wird ausgemittelt.



Abbildung 3.31. (a) Faserlaser mit zwei elasto-optischen Phasenmodulatoren und Absorption im Resonator. (b) Hin- und Rückverschiebung der Stehwellenstruktur über das aktive Medium (dotierte Faser).

### 3.5.2.2 Modenloser Laser

Eine noch bessere Reduzierung oder sogar Beseitigung der räumlichen Inhomogenität bietet der Aufbau eines "modenlosen" Lasers mit einem akusto-optischen Deflektor (AOD) im Resonator [91]. Der schematische Aufbau eines Faserlasers mit AOD und der Absorption im Resonator ist in der Abbildung 3.32 gezeigt. Das aus der Faser austretende Licht passiert einen im externen Teil des Resonators befindlichen AOD-Kristall, in dem sich eine Ultraschallwelle ausbreitet. Ultraschallwellen sind periodische Dichteschwankungen, die eine örtlich periodische Änderung des Brechungsindexes im Material erzeugen. Diese Änderung wirkt auf das Licht wie ein Beugungsgitter [93]. Die Ultraschallwelle wird nach Durchlaufen des Modulators absorbiert, so dass keine stehenden Wellen entstehen. Es findet dementsprechend die Beugung an einem bewegten Gitter statt. Durch den Doppler-Effekt tritt eine Frequenzverschiebung des gebeugten Lichtes auf. Während das hindurchlaufende Licht die optische Frequenz  $v_0$  beibehält, ergibt sich in der ersten Beugungsordnung für die Frequenz  $v_0 + \Delta v$  (oder  $v_0 - \Delta v$  abhängig von der Ausbreitungsrichtung der akustischen Welle), wobei  $\Delta v$  die Frequenz der Ultraschallwelle ist. Nach dem Durchgang durch das zu untersuchende Probegas wird das Licht vom Auskoppelspiegel S2 zurückreflektiert und passiert dabei zum zweiten Mal den AOD, wobei es erneut die Frequenzverschiebung in die gleiche Richtung erfährt. D.h. pro Resonatorumlauf ergibt sich für jede Lichtwelle, die sich im Resonator ausbreitet, eine doppelte Verschiebung ihrer Frequenz. Die selektiven Eigenschaften des Resonators werden damit aufgehoben, weil keine feste Phasenbeziehung zwischen den Lichtwellen für aufeinanderfolgende Resonatorumläufe mehr besteht. Hierin besteht der wesentliche Unterschied von den anderen oben beschriebenen Methoden, bei denen die Stehwellenstruktur erhalten bleibt.



Abbildung 3.32. Faserlaser mit AOD und Absorption im Resonator (schematische Anordnung).

Diese Methode wurde mit dem AOD Isomet, 1201E-2 |13| erprobt. Für die Wellenlänge  $\lambda \approx 1 \,\mu m$  besitzt er die maximale Ablenkungseffizienz in die erste Beugungsordnung von etwa 60%. Die Lichtverluste betragen somit bei jedem Durchgang des Resonators 40%. Das bedingte auch, dass der Nd<sup>3+</sup>-dotierte Faserlaser mit diesem AOD im externen Teil des Resonators eine etwa 10 mal größere Schwellpumplistung hatte als einer ohne zusätzliche Elemente im Resonator. Sie betrug ca. 30 mW. Die Abschätzung der Resonatorverluste ergab  $\gamma \approx 10^8 \text{ s}^{-1}$  oder ungefähr 80% pro Umlauf. Die Frequenzverschiebung der Lichtwelle durch den AOD war  $\Delta v_{AOD} = 40 \text{ MHz}$ .

Abbildung 3.33 zeigt das Emissionsspektrum des Faserlasers mit AOD im Resonator. Das durch die Absorptionslinien des Wasserdampfes hervorgerufene Absorptionssignal *K* ist sehr schwach und im Spektrum nicht erkennbar. Die Ursache liegt wahrscheinlich an einer zu großen Verschiebung der Lichtfrequenz durch den AOD. Die Abbildung 3.34 veranschaulicht diesen Sachverhalt.



Abbildung 3.33. Stationäres Emissionsspektrum des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |17| mit dem AOD |13| im externen Teil des Resonators.  $L_{\text{Faser}} = 96 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 93 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{AOD-Kristall}} = 5 \text{ cm}$ .

Die Breite einer Absorptionslinie betrage  $\Delta v_{Abs} = 3 \text{ GHz}$ . Die Frequenz einer Lichtwelle, die sich im Resonator ausbreitet, wird bei jedem Durchgang durch den AOD um 40 MHz verschoben. Deswegen befindet sich ihre Frequenz nur eine begrenzte Zeit im Frequenzbereich der Absorptionslinie. Im betrachteten Beispiel wird die Frequenz der Welle nach 75 Durchgängen diesen Bereich verlassen:  $\frac{\Delta v_{Abs}}{\Delta v_{AOD}} = 75$ . D.h. bei der Länge des externen Resonatorteils, in dem sich der Wasserdampf befindet, von 93 cm, errechnet sich die effektive Absorptionsweglänge zu  $L_{eff} = \frac{\Delta v_{Abs}}{\Delta v_{AOD}} \cdot L_{extern} \approx 70 \text{ m}$ . Bei dem Absorptionskoeffizienten  $k_{H_2O} = 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$  ergibt sich für das Absorptionssignal  $K = k \cdot L_{eff} = 7 \cdot 10^{-3}$ . Es ist damit kleiner als das Rauschen. Um ein besseres Ergebnis zu erzielen muss die Frequenzverschiebung durch den AOD deutlich kleiner gewählt werden. Die technische Realisierung war leider nicht möglich. Ferner muss die Ablenkungseffizienz des AOD verbessert werden, um die Verluste zu minimieren.



Abbildung 3.34. Wirkung der Lichtfrequenzverschiebung durch den im Resonator eines Faserlasers betriebenen AOD auf die resonatorinterne Absorption.

### 3.5.2.3 Ring-Laser

Um den oben beschriebenen unerwünschten Effekt zu umgehen und gleichzeitig das räumliche Lochbrennen aufzuheben empfiehlt sich für resonatorinterne Absorptionsmessungen eine Ringkonfiguration des Resonators, in der das Licht sich nur in eine Richtung ausbreitet. Abbildung 3.35 zeigt schematisch diese Konfiguration. Um die Lichtausbreitung in die entgegengesetzte Richtung und damit die Entstehung von stehenden Wellen zu verhindern muss in den Resonator ein optischer Isolator (optische Diode) eingebracht werden. Im Idealfall oszillieren in so einem Resonator *"laufende"* Moden, deren Wellenlängen die Bedingung erfüllen müssen, dass die Phasenverschiebung nach Durchlaufen des Resonators  $2\pi n$  gleichen muss, wobei *n* eine ganze Zahl ist. Dies ergibt für die Wellenlängen von Lasermoden folgende Bedingung:

$$\lambda_n = \frac{L_{\text{Umf}}}{n} \,. \tag{3.15}$$

 $L_{\text{Umf}}$  ist der Umfang des Resonators. Alle diese laufenden Wellen räumen die Inversion im aktiven Medium im zeitlichen Mittel gleichmäßig ab. Die Bereiche der eigenen Inversion für Lasermoden existieren nicht, weil jede Welle ihre "Bäuche" und "Knoten" zu verschiedenen Zeitpunkten immer an unterschiedlichen Stellen im Raum hat.

Der Ringresonator eines Faserlasers ist schematisch in der Abbildung 3.36 gezeigt. Das Pumplicht wird in eine dotierte Faser über "Wavelength Division Multiplexer" (WDM) eingekoppelt. Das Laserlicht passiert einen optischen Isolator und wird dann mit einer Linse kollimiert. Nach Durchgang der Absorptionszelle mit der zu untersuchenden Probe wird das Licht wieder in das passive Faserstück des zweiten WDM fokussiert und ausgekoppelt.

Die Gesamtverluste können in so einem Ringfaserlaser nicht unerheblich sein. An jeder Verbindungsstelle geht etwa 0,5 dB Licht verloren, was sich insgesamt auf etwa 3 dB oder 50% beläuft. Deswegen müssen alle Komponenten eines Ringresonators möglichst hochqualitativ sein.



Abbildung 3.35. Schematische Darstellung eines einfachsten Ringlaser-Resonators.



Abbildung 3.36. Schematische Darstellung eines Faserlaser-Ringresonators.

## 3.6 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die durchgeführten Experimente haben gezeigt, dass die Empfindlichkeit auf die Absorption im Resonator eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers sowohl durch die Rayleigh-Streuung als auch durch die räumliche Inhomogenität der Verstärkung begrenzt ist. Die relative Wirkung dieser Begrenzungsmechanismen wird durch die Laserparameter, wie Pumprate  $\eta$ , Verlustrate des Resonators  $\gamma$  und die Zahl der oszillierenden Moden **N**, bestimmt. Bei ausreichender Unterdrückung der räumlichen Inhomogenität wird die für den vorhandenen Faserlaser-Aufbau maximale spektrale Empfindlichkeit erreicht, die nur noch durch die Rayleigh-Streuung begrenzt ist und sich bei Variation der Laserparameter nicht mehr ändert. Mit dem in dieser Arbeit verwendeten Nd<sup>3+</sup>-dotietren Faserlaser mit dem Füllfaktor des Resonators mit aktivem Medium  $(n_{\rm K} \cdot L_{\rm Faser})/L_{\rm Resonator} = 0,66$  wurde diese maximale Empfindlichkeit von  $L_{\rm eff} = 40$  km demonstriert.

Für die Erhöhung der spektralen Empfindlichkeit ist es erforderlich die Wirkungen von sowohl der Rayleigh-Streuung als auch der räumlichen Inhomogenität zu reduzieren. Die Reduzierung der Rayleigh-Streuung etwa um Faktor 12 ist z.B. durch die Verringerung des Füllfaktors des Resonators mit der Faser um Faktor 3 ( $(n_{\rm K} \cdot L_{\rm Faser})/L_{\rm Resonator} = 0,22$ ) und die Verwendung einer Faser mit der 2 mal kleineren numerischen Apertur (NA = 0,1) möglich. Die Reduzierung der Wirkung der räumlichen Inhomogenität um Faktor 12 ist auch möglich, z.B. mit der Verringerung der Resonatorverluste, Reduzierung der Pumprate und Erhöhung der Modendichte durch Eliminierung von resonatorinternen Etaloneffekten. Das letztere lässt sich durch Verwendung von besseren Entspiegelungsmethoden für offenes Faserende und Ankoppellinse erreichen. In diesem Fall ist eine Erhöhung des Modendichte-Faktors  $\alpha$  vom jetzigen Wert 0,1 auf  $\alpha = 1$  möglich. Die spektrale Empfindlichkeit kann dann auf die Werte von etwa  $L_{\rm eff} = 600$  km ansteigen.

Eine weitere Steigerung der Empfindlichkeit ist durch Verwendung von technisch verbesserten dotierten Fasern mit der auf die Werte von etwa 0,65 dB/km reduzierten Dämpfung der Rayleigh-Streuung möglich. Die Herstellung von solchen hochqualitativen dotierten Fasern wird in der nächsten Zeit machbar sein, da die heutzutage hergestellten passiven Fasern höchster Güte bereits Dämpfungen von nur 0,15 dB/km aufweisen [58]. Die räumliche Inhomogenität muss in diesem Fall beseitigt werden, was z.B. durch Verwendung eines Ringfaserlasers erfolgen kann. Eine Empfindlichkeit von etwa  $L_{\text{eff}} = 6000 \text{ km}$  kann dann erwartet werden.

# **Kapitel 4**

# Er<sup>3+</sup>-dotierter Faserlaser für höchstempfindliche Spektroskopie im Resonator

Im Kapitel 3 wurde gezeigt, dass die Empfindlichkeit des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers auf die schmalbandige Absorption im Resonator durch die räumliche Inhomogenität der Verstärkung und die Rayleigh-Streuung begrenzt wird. Da die Rayleigh-Streuung sich insbesondere in der Telekommunikationstechnik nachteilig auswirken kann, wo sehr lange Fasern verwendet werden, wurde das Herstellungsverfahren von solchen Fasern in den letzten Jahren ständig verbessert um die Streuverluste zu minimieren. Bei der optischen Nachrichtenübertragung kommen oft  $Er^{3+}$ -dotierte Fasern als Verstärker im Wellenlängenbereich 1,5–1,6 µm zum Einsatz. In diesem Kapitel wird die Anwendung von diesen Hochqualitätsfasern für ICAS im Vielmoden-Betrieb gezeigt. In dem angegebenen Spektralintervall befinden sich Absorptionslinien von mehreren Molekülen, wie z.B. CO<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, HCN und anderen. Außerdem wird die Anwendung des aufgebauten ICAS-Spektrometers für die in situ Analyse von Verbrennungsprodukten in einer Niederdruckflamme präsentiert.

# 4.1 Spektroskopische Untersuchungen mit Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasern

Faserlaser, die im Spektralintervall  $1-2 \mu m$  emittieren, erlauben zuverlässige kompakte Aufbauten von Gasdetektoren bei niedrigen Kosten der Komponenten. Das Problem, dem man dabei begegnet, ist der Nachweis von Absorptionslinien, die üblicherweise Obertöne der Moleküle und somit 2 bis 3 Größenordnungen schwächer als die Grundschwingungsabsorptionen im mittleren Infraroten sind. Deswegen ist es nötig den Nachweis mit hoher spektraler Empfindlichkeit durchzuführen.

Es wurde über verschiedene Verfahren der Spektroskopie mit  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Fasern berichtet. Mit einem schmalbandig emittierenden  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlaser wurde bei der Absorptionsspektroskopie des Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) bei dem Druck von 75 mbar in einer 50 cm langen Absorptionszelle die Intensitätsänderung durch die stärksten Absorptionslinien von 10% gemessen, was einem Absorptionssignal von ca. 0,1 entspricht ( $K \approx 0,1$ ) [94]. Der Laser wurde mit einer Laserdiode bei  $\lambda_{\rm P} = 975$  nm gepumpt und mit einem Faser-Bragg-Gitter (FBG) spektral stabilisiert. Er oszillierte dabei in nur wenigen longitudinalen Moden. Die spektrale Verstimmung über ungefähr 3 nm im Bereich der Azetylenabsorption wurde mit der Temperaturänderung und der Verspannung des FBG realisiert, die mittlere Wellenlänge betrug  $\lambda \approx 1548$  nm. Das Zentrum der Absorptionslinie lag bei v = 6459,0938 cm<sup>-1</sup> ( $\Leftrightarrow \lambda = 1548,2048$  nm), der Absorptionskoeffizient in der Linienmitte betrug  $k_{75mbar} = 2,2 \cdot 10^{-3}$  cm<sup>-1</sup>.

Der Aufbau eines Spektrometers mit einer  $Er^{3+}$ -dotierten Faser für cavity ringdown Spektroskopie wurde in [95] vorgeschlagen. Die  $Er^{3+}$ -dotierte Faser wurde bei 980 nm gepumpt und diente somit als Verstärker für einen schmalbandigen durchstimmbaren Laser. Die internen Verluste durch das Einbringen einer mikrooptischen Absorptionszelle lagen bei 1 dB. Deswegen wurden Fasern mit Längen von 15–20 m verwendet. Es wurde die "ringdown"-Zeit von 2,6 µs erreicht, was ca. 800 m effektiver Absorptionsweglänge entspricht.

Für ICAS wurde bis jetzt nur noch die Anwendung eines einmodigen  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers gezeigt [96]. Eine 1 cm lange mit Azetylen bei verschiedenen Partialdrücken gefüllte Absorptionszelle wurde in den Resonator dieses schmalbandig emittierenden Er<sup>3+</sup>dotierten Faserlasers eingebracht, der auch mit einem FBG auf die mittlere Wellenlänge  $\lambda = 1528,9$  nm stabilisiert war. Da in diesem Fall die Absorptionslinienbreite größer als die Breite der Laseremission ist, entspricht es dem Fall der Einmoden-ICAS [1]. Es wurde ein Empfindlichkeitserhöhungsfaktor von 91 erreicht, was der effektiven Absorptionsweglänge von 91 cm entspricht. Dieses Verfahren braucht im Unterschied zur Vielmoden-ICAS keine spektral auflösende Apparatur, die Empfindlichkeit auf die resonatorinterne Absorption ist aber wesentlich kleiner. Der prinzipielle Unterschied zwischen diesen beiden experimentellen Situationen ist in der Abbildung 4.1 dargestellt. Gezeigt ist die spektrale Verteilung der Resonatorverluste  $\gamma(\nu)$ , die eine Absorptionslinie enthalten, und die spektralen Verteilungen der Verstärkung in den beiden Lasertypen. Im stationären Zustand ist die Verstärkung von der Mode mit den kleinsten Verlusten bestimmt [1]. In einem Vielmoden-Laser ist sie durch die Moden bestimmt, die keine zusätzlichen Verluste durch ICA erfahren (gestrichelte Linie in Abb. 4.1). Somit bleiben diese von der ICA-Linie verursachten Verluste unkompensiert und der Lichtfluss verringert sich im spektralen Bereich der Absorptionslinie. Die Verstärkung eines Einmoden-Lasers ist aber von den Verlusten dieser einen Mode bestimmt. Ist der Laser auf das Zentrum der ICA-Linie abgestimmt, dann setzten sich die Resonatorverluste aus den Verlusten  $\gamma$  und der Absorption zusammen (durchgezogene Linie in Abb. 4.1). In diesem Fall wird der zusätzliche Verlust durch ICA von der gestiegenen Verstärkung kompensiert und die Reduzierung der Laserleistung ist relativ gering.

Für das Verhältnis zwischen der spektralen Empfindlichkeit auf ICA eines Vielmoden- und eines Einmoden-Lasers gilt [1]:

$$L_{\rm eff}^{\rm VM} = M_g^s L_{\rm eff}^{\rm EM} , \qquad (4.1)$$

wobei  $M_q^s$  die Anzahl der Photonen in der betroffenen Mode ist, die viele Größenordnungen betragen kann.



Abbildung 4.1. Verstärkung eines Vielmoden- und eines Einmoden-Lasers mit schmalbandiger Absorption im Resonator.

# 4.2 Charakterisierung des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers

### 4.2.1 Laseremission bei $\lambda = 1,55 \ \mu m$

Der Aufbau eines  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers für Vielmoden-ICAS ist identisch zu Abbildung 3.2. Als Pumpquelle wurde eine Laserdiode (|19|: S-980-9 mm-0350 vom Hersteller Axcel Photonics, maximale Ausgangsleistung 350 mW) mit der Wellenlänge  $\lambda_p = 980$  nm verwendet. Bei der Spektroskopie von Gasen befand sich zusätzlich im offenen Teil des Resonators eine Absorptionszelle mit Brewster-Fenstern. Es wurde eine polarisationserhaltende  $\text{Er}^{3+}$ -dotierte Faser R37PM01 vom Hersteller OFS (Dänemark) mit einem elliptischen Kern (|20|: maximale Absorption bei  $\lambda = 1530$  nm ist 18 dB/m, NA = 0,29,  $\lambda_{\text{cutoff}} = 1048$  nm) der Länge  $L_{\text{Faser}} = 64$  cm verwendet. Ist die Polarisation der Pumpstrahlung (die Strahlung einer Laserdiode ist linear polarisiert) entlang einer Achse des Faserkerns ausgerichtet, so wird eine der beiden Polarisationsmoden wesentlich stärker angeregt als die andere. Das offene Faserende wird dabei so ausgerichtet, dass die stärkere Polarisationsmode keine zusätzlichen Verluste durch die Reflexion an den Brewster-Fenstern erfährt. Zum Fokussieren des Laserlichts auf dem Auskoppelspiegel wurde die gleiche, wie bei dem Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser, asphärische Linse verwendet (als L3 in Abb. 3.2 bezeichnet, |7|: Schott Hoya, A136, f = 15 mm, NA = 0,3, entspiegelt für  $\lambda = 1500 \div 2000$  nm). Die Transmission des Auskoppelspiegels *T* betrug ca. 5%.

Wie in Kapitel 3.1 beschrieben wurden die Faserendflächen sorgfältig mit der Poliermaschine |1| poliert und anschließend bedampft. Die Schichtfolge für den Einkoppelspiegel ist in Tabelle 4.1 dargestellt.

Nr. oder	Glas	1 – 2	3 – 14	15	Luft
Bez.	( <i>n</i> = 1,5)				( <i>n</i> = 1)
Dicke (nm)	_	465	375	187,5	_

Tabelle 4.1. Dielektrisches Schichtsystem zur Verspiegelung der Einkoppelseite von  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasern. Die ungeraden Schichtnummern entsprechen MgF<sub>2</sub> und die geraden ZnS.

Der berechnete und gemessene Reflexionsverlauf dieses Spiegels ist in der Abbildung 4.2 gezeigt. Im Bereich der Laseremission 1500-1600 nm ist der Spiegel hochreflektierend (>99%). Die durch eine Restreflexion von ca. 5% bei der Pumpwellenlänge 980 nm entstehenden Rückreflexe in die Laserdiode werden vermieden, indem eine optische Diode in den Pumpstrahl eingebracht wird (s. Abb. 3.2).

Das andere Faserende wurde entspiegelt, wobei ein wesentlich einfacheres Schichtsystem verwendet wurde (s. Tabelle 4.2).

Nr.	_	1	2	3	_
Material	Glas	MgF <sub>2</sub>	ZnS	MgF <sub>2</sub>	Luft
	(n = 1,5)				( <i>n</i> = 1)
Dicke (nm)	_	100	100	525	_

Tabelle 4.2. Dielektrisches Schichtsystem zur Entspiegelung der Austrittsseite der Er<sup>3+</sup>-dotierten Fasern.

Der theoretische Reflexionsverlauf ist wieder mit einem Kontrollverlauf in der Abbildung 4.3 aufgetragen. Im gesamten Emissionsbereich des Lasers wurde die theoretische Reflexion gering gewählt (<0,3%). Das Minimum des tatsächlichen Verlaufs ist etwas in den langwelligeren Bereich verschoben. Die Reflektivität bleibt im Emissionsbereich unter 1%.



Abbildung 4.2. Theoretischer und gemessener Reflexionsverlauf des aufgedampften dielektrischen Schichtsystems.



Abbildung 4.3. Reflektivität der entspiegelten Faserendfläche (theoretischer und Kontrollverlauf).

Abbildung 4.4 zeigt die Ausgangsleistung der verwendeten Pumplaserdiode |19| in Abhängigkeit vom Laserdiodenstrom. Im Bereich von der Laserschwelle (ca. 21 mA) bis etwa 240 mA ist der Verlauf nahezu linear und wurde mit einer Geraden gefittet (rot). Oberhalb von 240 mA zeigt die Kennlinie einen nicht linearen Verlauf. Dies wird durch eine Veränderung der räumlichen Verteilung der emittierten Strahlung und/oder die Änderung des Emissionsspektrums bei hohen Strömen verursacht. Die Daten aus Abb. 4.4 wurden zur Umrechnung von Strom in Leistung verwendet.



Abbildung 4.4. Blaue Kreise: Ausgangsleistung der Pumplaserdiode |19| vs. Laserdiodenstrom. Rot: Anpassung durch eine Gerade. Blau: Interpolation der gemessenen Werte im nichtlinearen Bereich.

In Abb. 4.5 ist die Kennlinie des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers gezeigt. Die maximale Ausgangsleistung betrug 1,65 mW, die Schwellpumpleistung: 11,6 mW. Ein nicht linearer Verlauf der Leistung im Bereich 225 mW  $< P_{Pump} < 350$  mW ist auf die Veränderungen der Laserdiodenemission bei hohen Strömen zurückzuführen, durch die die Pumpeffizienz variiert.



Abbildung 4.5. Leistungskennlinie des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit der Faser |20| ohne die Absorptionszelle im Resonator.  $L_{\text{Faser}} = 64 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 76 \text{ cm}$ .

Für die praktischen Anwendungen eines  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers für die höchstempfindliche Spektroskopie sind die Emissionsbreite sowie die Durchstimmbarkeit wichtig. Abbildung 4.6 zeigt das Emissionsspektrum eines  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers aufgenommen mit dem Fourierspektrometer |21|. Die Breite des Emissionsspektrums, ca. 10 cm<sup>-1</sup>, ist durch die chromatische Abberation der resonatorinternen Linse bestimmt. Das spektrale Rauschen ist durch Modenfluktuationen und unerwünschte Etaloneffekte im Resonator bedingt und kann durch Mittelung reduziert werden. Ähnlich wie der Nd<sup>3+</sup>-dotierte Faserlaser wurde der  $Er^{3+}$ -dotierte Faserlaser durch die Änderung der Position der resonatorinternen asphärischen Linse L3 entlang der optischen Achse des Resonators durchgestimmt.



Abbildung 4.6. Emissionsspektrum des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit der Faser |20| ohne Absorptionszelle im Resonator.  $L_{\text{Faser}} = 64 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 76 \text{ cm}$ .

Abbildung 4.7 zeigt mehrere auf diese Weise erhaltene Einzelspektren im gesamten Durchstimmbereich des Faserlasers (6200 cm<sup>-1</sup> bis 6550 cm<sup>-1</sup>) ohne Absorptionszelle im Resonator. In diesem Bereich befinden sich starke Absorptionslinien von verschiedenen wichtigen Gasen, z.B. Kohlenstoffdioxid CO<sub>2</sub> (6200-6400 cm<sup>-1</sup>), Kohlenstoffmonoxid CO (6250-6420 cm<sup>-1</sup>), Ammoniak NH<sub>3</sub> (6400-6770 cm<sup>-1</sup>), Azetylen C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> (6450-6650 cm<sup>-1</sup>), Cyanwasserstoff (Blausäure) HCN (6340-6550 cm<sup>-1</sup>), Jodwasserstoff HI (6200-6520 cm<sup>-1</sup>) usw. Ferner weist das Emissionsspektrum eine nur sehr schwache Intensität im Bereich um 6500 cm<sup>-1</sup> auf. Dies wird durch die Energiezustände des Er<sup>3+</sup>-Ions bedingt. Auch mit anderen Er<sup>3+</sup>-dotierten Glasfasern wurde in diesem Bereich ein Minimum der Verstärkung festgestellt [66].

Mit einer Absorptionszelle im externen Teil des Resonators wurde der spektrale Durchstimmbereich reduziert auf: 6400 cm<sup>-1</sup> bis 6550 cm<sup>-1</sup>. Da dies mögliche praktische Anwendungen einschränkt, müssen die Ursachen dieses Verhaltens beseitigt werden. Um die Ursachen zu identifizieren wurden die Untersuchungen durchgeführt, bei denen die Laserleistung, die durchgelassene Pumpleistung und die seitliche Fluoreszenz der Faser gemessen wurden.



Abbildung 4.7. Durchstimmbereich des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit der Faser |20| ohne Absorptionszelle im Resonator. Dargestellt sind 37 Einzelspektren bei verschiedenen Positionen der Ankoppellinse.  $L_{\text{Faser}} = 64 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 76 \text{ cm}$ .

## 4.2.2 Spektrale Eigenschaften der Er<sup>3+</sup>-dotierten Faser

Seitlich der Faser zeigte sich eine starke grüne Fluoreszenz bei den Wellenlängen  $\lambda_1 \approx 525 \text{ nm}$  und  $\lambda_2 \approx 545 \text{ nm}$ . Abbildung 4.8 präsentiert die mit einem Gitterspektrographen Ocean Optics |22| mit der Auflösung 1 nm aufgenommenen Spektren dieser Fluoreszenz ohne und im Laserbetrieb des Faserlasers bei  $\lambda = 1,55 \mu \text{m}$ . Wie man der Abbildung entnimmt, steigt die Intensität der grünen Fluoreszenz, wenn der Faserlaser über der Schwelle angeregt ist. Dagegen war die Fluoreszenz schwach, wenn der externe Auskoppelspiegel dejustiert oder mit einem Schirm verdeckt war, d.h. wenn der Laser nicht oszillierte.

Abbildung 4.9 zeigt das Energieniveaudiagramm des  $Er^{3+}$ -Ions zusammen mit den relevanten Anregungs- und Zerfallsmechanismen. Durch optisches Pumpen bei  $\lambda_p = 980$  nm werden die  $Er^{3+}$ -Ionen vom Grundzustand  ${}^{4}I_{15/2}$  (1) in den Zustand  ${}^{4}I_{11/2}$  (3) angeregt (Absorption vom Grundzustand, engl.: ground state absorption (GSA)). Ein Teil der Ionen fällt von dort aus durch einen schnellen nichtstrahlenden Übergang in das obere Laserniveau  ${}^{4}I_{13/2}$  (2) und steht damit für die Verstärkung bei  $\lambda_{Laser} = 1,55 \,\mu m$  zur Verfügung. Der andere Teil wird weiter angeregt  ${}^{4}I_{11/2} \rightarrow {}^{4}F_{7/2}$  (3  $\rightarrow$  7), was der Absorption



Abbildung 4.8. Spektren der seitlich der Faser |20| gemessenen Fluoreszenz ohne (oberes Spektrum) und mit (unteres Spektrum) Laserbetrieb bei  $\lambda \approx 1,55 \ \mu\text{m}$ .  $L_{\text{Faser}} = 64 \ \text{cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 76 \ \text{cm}$ .



Abbildung 4.9. Energieniveaudiagramm von Er<sup>3+</sup>-Ion mit relevanten Übergängen.

vom angeregten Zustand (engl.: excited state absorption (ESA)) entspricht. Die auf den Zustand  $^4F_{7/2}$  (7) angeregten Ionen erfahren einen schnellen nichtstrahlenden Zerfall

 ${}^{4}F_{7/2} \xrightarrow{\text{nichtstrahlend}} {}^{2}H_{11/2}$ , von wo aus die Ionen teilweise zurück in den Grundzustand zerfallen; dabei kommt es zur Emission von spontanen Photonen bei der Wellenlänge  $\lambda_{1} \approx 525 \text{ nm}$ . Der andere Zerfallskanal ist  ${}^{2}H_{11/2} \xrightarrow{\text{nichtstrahlend}} {}^{4}S_{3/2} \xrightarrow{545 \text{ nm}} {}^{4}I_{15/2}$ , wobei das Licht bei der Wellenlänge  $\lambda_{2} \approx 545 \text{ nm}$  erzeugt wird. Die Niveaus  ${}^{2}S_{3/2}$  und  ${}^{2}H_{11/2}$  sind miteinander stark gekoppelt und werden deswegen im später aufzustellenden Ratengleichungsmodell als ein Zustand 6 betrachtet (Kap. 4.2.3). Zerfälle in tiefer liegende Energieniveaus  ${}^{4}F_{9/2}$  (5),  ${}^{4}I_{9/2}$  (4),  ${}^{4}I_{11/2}$  (3) und  ${}^{4}I_{13/2}$  (2) werden nicht beachtet. Bei ausreichender Pumpanregung konnte 1991 ein auf diesem Prinzip basierender grüner Er $^{3+}$ -dotierter Upconversion Faserlaser zum ersten Mal realisiert werden [97].

Wenn das aktive Medium ( $\text{Er}^{3+}$ -dotierte Faser) gepumpt wird aber die Laseremission bei  $\lambda = 1,55 \,\mu\text{m}$  nicht angeregt wird, werden die aktiven Er-Ionen ins obere Laserniveau 2 angeregt, wo sie wegen der großen Lebensdauer ( $\tau = 10 \,\text{ms}$  [66]) lange bleiben und somit für die Neuanregung nicht zur Verfügung stehen. Wird die Rückkopplung des infraroten Lichts zugeschaltet, zerfallen die Ionen von diesem Niveau stimuliert in den Grundzustand. Im Grundzustand befinden sich demnach mehr Ionen als im Falle ohne den Laserbetrieb, die sowohl der Anregung der infraroten Laseremission als auch der Anregung der grünen Fluoreszenz aus dem Niveau 6 zur Verfügung stehen. Dies erklärt den beobachteten Anstieg dieser Fluoreszenz bei der Anregung der Laseremission bei  $\lambda = 1,55 \,\mu\text{m}$  [98].

Um festzustellen, warum der Faserlaser im spektralen Bereich von 6200 cm<sup>-1</sup> bis 6400 cm<sup>-1</sup> mit der Absorptionszelle im Resonator nicht oszillierte, wurden verschiedene dynamische Eigenschaften des Lasers untersucht. Es wurde die zeitliche Entwicklung der infraroten Laseremission, der durchgelassenen Pumpleistung und der seitlich der Faser emittierten grünen Fluoreszenz nach Einschalten des Lasers in verschiedenen Emissionsbereichen: 6200 cm<sup>-1</sup> (1,61 µm), 6420 cm<sup>-1</sup> (1,56 µm) und 6530 cm<sup>-1</sup> (1,53 µm) gemessen. Abbildung 4.10 zeigt diese Zeitentwicklungen und die dazugehörigen Emissionsspektren des Lasers im Dauerstrichbetrieb. Die durchgelassene Pumpleistung und die grüne Fluoreszenz wurden in einigen Fällen auch ohne Laserbetrieb aufgenommen. Da die grüne Fluoreszenz schwach war, wurde sie mit einem Photomultiplier [23] aufgenommen.

Nach Einschalten der Pumpleistung zeigt der Er<sup>3+</sup>-dotierte Faserlaser nach einer Verzögerung Relaxationsschwingungen, deren Frequenz durch Gl. (3.3) gegeben ist. Die Frequenz der Relaxationsschwingungen des Lasers ändert sich gemäß Abb. 4.10 mit der Emissionswellenlänge. Im niederfrequenten Emissionsbereich bei  $v \approx 6200 \text{ cm}^{-1}$  ist sie ca. 2 mal kleiner als im hochfrequenten bei  $v \approx 6420 \text{ cm}^{-1}$  und  $v \approx 6530 \text{ cm}^{-1}$ . Oszilliert der Faserlaser gleichzeitig in 2 Spektralbereichen,  $v \approx 6200 \text{ cm}^{-1}$  und  $v \approx 6420 \text{ cm}^{-1}$ , (zweites Diagramm von oben in Abb. 4.10), zeigt die Laserintensität beide Frequenzen.

Die Differenz im Signal des durchgelassenen Pumplichts im und ohne Laserbetrieb ändert sich auch mit dem Emissionsspektrum des Faserlasers. Am niederfrequenten Rand bei  $v \approx 6200 \text{ cm}^{-1}$  ist diese Differenz am größten und am hochfrequenten Rand der Emission bei  $v \approx 6530 \text{ cm}^{-1}$  ist sie kaum messbar. Das bedeutet, dass die Pumpphotonen wesentlich stärker absorbiert werden, wenn der Laser bei  $v \approx 6200 \text{ cm}^{-1}$  oszilliert, als im Falle der Oszillation bei  $v > 6400 \text{ cm}^{-1}$ .



Abbildung 4.10. Links: zeitliche Entwicklung der Laseremission (rot), der durchgelassenen Pumpleistung (blau) und der grünen Fluoreszenz (grün) nach Einschalten der Pumpleistung in verschiedenen Spektralbereichen mit und ohne Laserbetrieb. Rechts: die zugehörigen Emissionsspektren des Faserlasers im Dauerstrichbetrieb. Gleiche Pumpleistung für alle Abhängigkeiten. Faser: |20|,  $L_{\text{Faser}} = 64 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 76 \text{ cm}$ .

Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass das obere Laserniveau 2 in zwei Gruppen aufgespalten ist, die in der Abb. 4.9 schematisch mit 2a und 2b gekennzeichnet sind. Da die breitbandigen Resonatorverluste  $\gamma$  und die Pumprate  $\eta$  beim Durchstimmen des Lasers fast unverändert bleiben, kann man darauf schließen, dass der höher liegende Energiezustand 2a, von dem aus der Übergang bei  $\nu > 6400$  cm<sup>-1</sup> stattfindet, gemäß Gl. (3.3) eine größere Zerfallsrate A (bzw. kürzere Lebensdauer  $\tau$ ) als der Zustand 2b hat, der dem Übergang bei  $\nu \approx 6200$  cm<sup>-1</sup> entspricht. Wegen des zweifachen Unterschieds in der Relaxationsfrequenz, ist  $A_{(2a)} \approx 4A_{(2b)}$  (s. Gl. (3.3)).

Ein weiteres Kriterium für das Verhalten des Faserlasers in unterschiedlichen Emissionsbereichen stellt die zeitliche Entwicklung der grünen Fluoreszenz nach Einschalten der Pumpleistung dar. Oszilliert der Faserlaser im infraroten Bereich, nimmt die Intensität der grünen Fluoreszenz deutlich zu. Besonders groß ist diese Zunahme, wenn der Laser im Bereich 6200 cm<sup>-1</sup> oszilliert. In diesem Fall steigt die Fluoreszenzintensität um ca. Faktor 4 im Vergleich zur Situation, wenn der Laser aus ist. Die Ursache liegt in der Sättigung der Pumpabsorption, weil ohne die Laseroszillation bei  $\nu \approx 6200$  cm<sup>-1</sup> viele Er<sup>3+</sup>-Ionen auf den Zustand 2b gebracht werden. Auf dem Grundzustand bleiben dann nur wenige Ionen und dementsprechend werden auch weniger grüne Photonen erzeugt.

Eine starke Wirkung des Laserlichts bei 6200 cm<sup>-1</sup> auf die grüne Fluoreszenz ist insbesondere während der Relaxationsoszillationen des Faserlasers zu sehen. Die Intensität der grünen Fluoreszenz schwingt synchron mit dem Laserlicht (Abb. 4.10, oberstes Diagramm). Die für den Laserbetrieb im Bereich um 6200 cm<sup>-1</sup> benötigte Inversion wird bei einem Relaxationspuls des Faserlasers stark abgebaut und die vielen bis dahin im oberen Laserniveau 2b befindlichen aktiven Ionen werden in den Grundzustand überführt, wo sie für die Neuanregung zur Verfügung stehen. Deswegen wird das Niveau 6 gleich nach dem Relaxationspuls des Lasers durch das optische Pumpen stärker bevölkert. In der Pause zwischen den Laserpulsen wird das obere Laserniveau 2b stärker bevölkert und die grüne Fluoreszenz lässt dementsprechend nach. Oszilliert der Faserlaser dagegen bei  $\nu > 6400$  cm<sup>-1</sup> (Abb. 4.10, 3 untere Diagramme), ist der Anstieg der grünen Fluoreszenz wesentlich kleiner und das Schwingungsverhalten während der Relaxationsoszillationen des Faserlasers nicht mehr nachweisbar. Das liegt offensichtlich daran, dass die Besetzung des Zustands 2b größer als die des Zustands 2a ist. Deswegen entvölkert die Laseremission bei  $v \approx 6200 \text{ cm}^{-1}$  die Gesamtbesetzung auf dem Zustand 2 effektiver als die Laseremission bei  $\nu > 6400 \text{ cm}^{-1}$  und bevölkert damit stärker den Grundzustand. Als Konsequenz führt dies zur beobachteten Modulation der grünen Fluoreszenz.

Abbildung 4.11 zeigt die zeitliche Entwicklung der gleichen Messgrößen wie in Abb. 4.10 bei der Emission des Faserlasers im niederfrequenten Spektralbereich  $(\nu \approx 6200 \text{ cm}^{-1})$  bei verschiedenen Pumpparametern  $\eta$ . Ohne Laserbetrieb wurde die Faser

mit der einer jeweiligen Pumprate entsprechenden Leistung gepumpt. Zusätzlich zu den in der Abb. 4.10 dargestellten Zeitsignalen ist das Steuerungssignal für die Pumplaserdiode hinzugefügt. Dieses Steuerungssignal schaltet die Pumplaserdiode ein, deren Emission nach einer durch die Reaktionszeit des verwendeten Laserdiodentreibers |24| bestimmten Verzögerung einsetzt. Diese Verzögerung ist umso kleiner je größer der Laserdiodenstrom ist. Aus diesem Grunde verschiebt sich der Zeitpunkt, an dem die Laserdiode beginnt zu emittieren, bei steigender Pumprate zum Anfang der Zeitachse hin.



Abbildung 4.11. Zeitliche Entwicklung der Laseremission bei  $v \approx 6200 \text{ cm}^{-1}$  (rot), der durchgelassenen Pumpleistung (blau) und der grünen Fluoreszenz (grün) nach Einschalten der Pumpleistung bei verschiedenen Pumpraten  $\eta$  mit und ohne Laserbetrieb. Steuerung: Modulationssignal vom Funktionsgenerator zum Einschalten der Pumpleistung.

Der Unterschied in der Intensität der grünen Fluoreszenz ohne und im Laserbetrieb bei 6200 cm<sup>-1</sup> steigt mit der Pumprate des Faserlasers. Das liegt daran, dass je größer die Pumpleistung *ohne Laserbetrieb* ist, desto weniger aktive Ionen bleiben im Grundzustand und dementsprechend weniger Ionen stehen für die Anregung der grünen Fluoreszenz zur Verfügung. Der größere Teil der Ionen befindet sich in diesem Fall im oberen Laserniveau 2 und insbesondere im Niveau 2b. Deshalb kann die beobachtete Änderung der grünen Fluoreszenz mit und ohne Laserbetrieb als ein Indiz für die Besetzung des oberen Laserniveaus betrachtet werden.

Anhand der beobachteten Effekte kann man sich folgende Prozesse vorstellen: das obere Laserniveau 2b mit der kleineren Anregungsenergie hat auch eine kleinere Wahrscheinlichkeit des Übergangs in den Grundzustand als der Zustand 2a und dementsprechend einen kleineren Verstärkungsquerschnitt. Während der optischen Anregung ohne Laserbetrieb befinden sich viele Ionen auf den Laserniveaus 2a und 2b. Da die Lebenszeit des Zustands 2b mit der kleineren Anregungsenergie größer ist als die von 2a, ist dann die Besetzung dieses Zustands auch höher. Zusätzlich wird er auch durch den Zerfall aus 2a bevölkert. Die Laseremission bei  $\nu > 6400$  cm<sup>-1</sup> entvölkert den höher liegenden Zustand 2a und reduziert nur wenig die gesamte Besetzung des Zustands 2. Dagegen entvölkert die Laseremission bei  $\nu \approx 6200$  cm<sup>-1</sup> effektiv den Zustand 2b aber auch den Zustand 2a, weil er nichtstahlend in den Zustand 2b zerfällt. Dadurch wird die Gesamtbesetzung des Zustands 2 reduziert und die Besetzung des Grundzustands erhöht.

Die Laseremission bei 6200 cm<sup>-1</sup> erfordert wegen des kleineren Verstärkungsquerschnitts dieses Übergangs mehr Inversion als beim Übergang beiv > 6400 cm<sup>-1</sup>. Bei höheren Resonatorverlusten kann es dazu kommen, dass die Inversion für die Anregung des Laserbetriebs bei 6200 cm<sup>-1</sup> durch die begrenzte Anzahl der Er<sup>3+</sup>-Ionen nicht mehr ausreichend ist. Das kann auch die beobachtete Reduzierung des Durchstimmbereichs des Faserlasers von 6200 – 6550 cm<sup>-1</sup> auf 6400 – 6550 cm<sup>-1</sup> beim Einbringen einer Absorptionszelle in den Laserresonator erklären.

### 4.2.3 Ratengleichungsmodell

Um die Anregungsprozesse in einem  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlaser besser zu verstehen, wurden die Ratengleichungen für die zeitliche Änderung der Besetzungszahlen  $N_i$  der in der Abb. 4.9 eingezeichneten Energieniveaus und die Zahl der Laserphotonen *M* im Resonator aufgestellt. Wie oben bereits erwähnt, werden die Besetzungen der Zustände 4 und 5 vernachlässigt und die Niveaus  ${}^{4}\text{S}_{3/2}$  und  ${}^{2}\text{H}_{11/2}$  als ein Energiezustand 6 betrachtet. Das Ratengleichungssystem ist dann:

$$\dot{N}_1 = -P_{13}(N_1 - N_3) + A_{21}N_2 + A_{31}N_3 + A_{61}N_6 + B_{21}(N_2 - N_1)M, \qquad (4.2)$$

$$\dot{N}_2 = A_{32}N_3 - A_{21}N_2 - B_{21}(N_2 - N_1)M, \qquad (4.3)$$

$$\dot{N}_3 = P_{13}(N_1 - N_3) - A_{32}N_3 - A_{31}N_3 - P_{37}(N_3 - N_7),$$
(4.4)

$$N_6 = A_{76}N_7 - A_{61}N_6, (4.5)$$

$$\dot{N}_7 = P_{37}(N_3 - N_7) - A_{76}N_7, \tag{4.6}$$

$$\dot{M} = -\gamma M + B_{21}(N_2 - N_1)(M + 1)$$
(4.7)

mit

$$N_t = N_1 + N_2 + N_3 + N_6 + N_7. ag{4.8}$$

Hier sind  $P_{ij}$  die absoluten Pumpraten für die Übergänge vom Zustand *i* in den Zustand *j*, wobei *i* energetisch tiefer als *j* liegt.  $A_{ji}$  stellen die Raten des spontanen Zerfalls vom Zustand *j* in den Zustand *i* dar.  $B_{12}$  ist die Übergangsrate für induzierte Emission vom oberen Laserniveau 2 in den Grundzustand 1.  $N_t$  ist die Gesamtzahl der aktiven Ionen.

Da anstatt der absoluten Pumpraten  $P_{13}$  und  $P_{37}$  die relative Pumprate  $\eta = P/P_{thr}$ für den Laser benutzt wird, soll die Schwellpumprate  $P_{thr}$  des Lasers bestimmt werden. Zu deren Berechnung können einige Übergänge vernachlässigt und das Modell eines 3-Niveau-Lasers verwendet werden. D.h. das Gesamtsystem reduziert sich nur auf die Zustände 1, 2 und 3. Die Zerfallsrate  $A_{32}$  wird dabei als unendlich groß angenommen  $(A_{32} = \infty)$ . Die Zerfallsrate  $A_{31}$  und die Besetzung des Niveaus 3 können in diesem Fall vernachlässigt werden  $(A_{31} = 0, N_3 = 0)$ . Das Ratengleichungssystem wird dann wie folgt geschrieben:

$$\dot{N}_2 = P_{13}N_1 - A_{21}N_2 - B_{21}(N_2 - N_1)M, \qquad (4.9)$$

$$\dot{M} = -\gamma M + B_{21}(N_2 - N_1)(M + 1).$$
(4.10)

Für die Inversion N und die Gesamtzahl der aktiven Ionen  $N_t$  gilt:

$$N = N_2 - N_1, (4.11)$$

$$N_t = N_1 + N_2 \,. \tag{4.12}$$

Aus diesen Gleichungen lassen sich die Besetzungszahlen  $N_1$  und  $N_2$  durch die Inversion N und die Gesamtanzahl der aktiven Ionen  $N_t$  ausdrücken:

$$N_1 = \frac{N_t - N}{2}.$$
 (4.13)

$$N_2 = \frac{N_t + N}{2}.$$
 (4.14)

Die Ableitung der Gl. (4.14) nach der Zeit ergibt:

$$\dot{N} = 2\dot{N}_2. \tag{4.15}$$

Bei Anwendung dieser Gleichung und der Gleichungen (4.9), (4.13) und (4.14) wird die Ratengleichung für die Inversion N aufgestellt:

$$N = 2(P_{13}N_1 - A_{21}N_2 - B_{21}NM) =$$
  
=  $2\left(P_{13}\frac{N_t - N}{2} - A_{21}\frac{N_t + N}{2} - B_{21}NM\right).$  (4.16)

Im Dauerstrichbetrieb ( $\dot{N} = 0$ ,  $\dot{M} = 0$ ) haben Inversion und Photonenzahlen stationäre Werte  $N^{s}$  und  $M^{s}$ . Aus Gl. (4.10) folgt dann für die stationäre Inversion:

$$N^{s} = \frac{\gamma}{B_{21}} \left( 1 - \frac{1}{M^{s}} \right) \approx \frac{\gamma}{B_{21}}.$$
(4.17)

Diese Näherung gilt, wenn die stationäre Photonenzahl  $M^s$  groß ist, was bei realistischen Pumpraten immer erfüllt ist. Die stationäre Inversion ist somit unabhängig von der Pumprate  $P_{13}$ .

Aus der Gl. (4.16) folgt für die Schwellpumprate (M = 0):

$$P_{13, \text{thr}} = A_{21} \frac{N_t + N^s}{N_t - N^s} = A_{21} \frac{N_t + \gamma/B_{21}}{N_t - \gamma/B_{21}}.$$
(4.18)

Das Ratengleichungssystem (4.2) – (4.7) wurde dann mit folgenden Parametern numerisch gelöst:  $A_{21} = 10^2 \text{ s}^{-1}$ ;  $A_{31} = 5,5 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ ;  $A_{32} = 10^6 \text{ s}^{-1}$ ;  $A_{61} = 5 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ;  $A_{76} = 10^8 \text{ s}^{-1}$ ;  $B_{21} = 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ;  $\gamma = 3 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$  (entspricht ca. 29% Umlaufverlusten im Resonator bei der Resonatorlänge 1,72 m);  $P_{13} = \eta \cdot P_{13, \text{ thr}}$ ;  $\eta = 5$ ;  $P_{37} = 0,1 \cdot P_{13}$ . Die Berechnung erfolgte für 5 Werte der Gesamtzahl der Ionen:  $N_t = 3,1 \cdot 10^{13}$ ;  $3,5 \cdot 10^{13}$ ;  $4 \cdot 10^{13}$ ;  $5 \cdot 10^{13}$ ;  $10^{14}$ . Das Zeitintervall der Simulation (Rechenschritt) betrug  $\Delta t = 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ .

Abbildung 4.12 zeigt das Verhältnis der stationären Inversion  $N^s = N_2^s - N_1^s$  zur Gesamtzahl der aktiven Ionen  $N_t$  als Funktion von  $N_t$ . Aus dem Diagramm folgt, dass je weniger aktive Ionen zur Verfügung stehen, desto größerer Anteil dieser Ionen für den Aufbau der Inversion verwendet wird.



Abbildung 4.12. Das aus den Berechnungen bei verschiedener Anzahl der aktiven Ionen ermittelte Verhältnis  $N^s/N_t$ .

In der Abb. 4.13 ist die berechnete Zeitentwicklung der Photonenzahl im Resonator des infraroten Faserlasers und der Besetzung des Niveaus 6 für unterschiedliche Gesamtzahl der aktiven Ionen dargestellt. Die Anzahl der aus dem Niveau 6 spontan emittierten Photonen ist proportional zu seiner Besetzung. Auch in der Simulation weist die grüne Fluoreszenz nach Beginn der Laseremission Schwingungen mit der Hauptrelaxationsfrequenz auf. Ähnlich wie im Experiment steigt die Intensität der grünen Fluoreszenz nach jedem Relaxationspuls. Außerdem ist deutlich zu erkennen, dass die relative Modulationsamplitude des grünen Lichts mit der sinkenden Gesamtzahl der aktiven Ionen  $N_t$  steigt. Besonders groß ist diese Modulationsamplitude im Fall, wenn fast alle aktiven Ionen zum Inversionsaufbau verwendet werden, also wenn die Pumplichtabsorption gesättigt ist.

Die relative Amplitude der Oszillationen des grünen Lichts in Abb. 4.13 ist in Abb. 4.14 als Funktion des Verhältnisses der Gesamtzahl der aktiven Ionen zum Schwellwert der Inversion,  $N_t/N^s$ , (aus Gl. (4.17) folgt  $N^s = 3 \cdot 10^{13}$ ) dargestellt. Aus dem Vergleich mit den Messungen (Abb. 4.11) kann aus Abb. 4.14 dieses Verhältnis im Experiment bestimmt werden. Die relative Modulationsamplitude der grünen Fluoreszenz im Experiment beträgt bei  $\eta = 5$  ca. 10%. Für diese Modulation folgt aus Abb. 4.14:  $N_t/N^s = 1,23$ . Somit übersteigt die Gesamtzahl von Ionen im Experiment  $N_t$  den Schwellwert nur um ca. 23%. Das bedeutet, dass die Resonatorverluste maximal nur um 23% erhöht werden dürfen, z.B. durch Einbringen von zusätzlichen Elementen in den Resonator. Andernfalls kann der Laser nicht oszillieren, weil die Gesamtzahl der aktiven Ionen zum Erreichen der Schwellinversion nicht mehr ausreichend ist. Dies entspricht einer möglichen Erhöhung der Resonatorverlustrate von  $\gamma = 3 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$  ( $\Gamma \approx 29\%$ ) auf  $\gamma' = 3,7 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1} (\Gamma' \approx 35\%)$ . Damit dürfen die Verluste pro Resonatorumlauf nicht mehr als um 6% erhöht werden. Das Einbringen einer Absorptionszelle in den Resonator erhöht die Umlaufverluste wegen der restlichen Reflexion an den Brewster-Fenstern und des Astigmatismus offenbar um einen größeren Betrag. Der Faserlaser mit einer Absorptionszelle im Resonator emittierte deswegen im Bereich 6200 – 6400 cm<sup>-1</sup> nicht mehr. Um den Laserbetrieb auch in diesem Spektralbereich zu erreichen, musste die Zahl der aktiven Ionen erhöht werden. Das wurde durch die Verwendung einer höher dotierten oder einer längeren Faser realisiert.



Abbildung 4.13. Simulierter zeitlicher Verlauf der Photonenzahl *M* im Resonator (rot, linke y-Achse) und der Besetzung des Niveaus 6  $N_6$  (grün, rechte y-Achse). Pumpbeginn ist bei t = 0.



Abbildung 4.14. Berechnete relative Amplitude der Relaxationsoszillationen der grünen Fluoreszenz bei verschiedener Anzahl der aktiven Ionen (Kreise) mit der Fitanpassung (durchgezogene Linie).

# 4.3 Absorptionsmessungen im Resonator des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers

Die in dieser Arbeit präsentierten Emissionsspektren der Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser wurden mit zwei Methoden aufgenommen: mit einem Fourierspektrometer |21| am Institut für Laserphysik der Universität Hamburg und mit einem hochauflösenden Gitterspektrographen |25| mit der infrarotempfindlichen Photodiodenzeile |26| an der School of Chemistry der Tel-Aviv University.

#### 4.3.1 Fourierspektrometer

Unter einem Fourierspektrometer versteht man eine Apparatur, die ein Interferogramm von elektromagnetischer Strahlung aufnimmt und mittels Fouriertransformation deren Spektrum berechnet. Fourierspektrometer eignen sich gut für die Spektroskopie im mittleren und fernen Infrarot, wo Photodiodenzeilen entweder nicht empfindlich oder sehr teuer sind. Außerdem liefert das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Fourierspektrometer absolute Werte für Wellenzahl, so dass separate Eichmessungen nicht erforderlich waren. Zu den Nachteilen der Methode kann man die Anforderung an die Stabilität der Laseremissionsspektren und vergleichsweise lange Aufnahmezeiten zählen.

Der schematische Aufbau des am Institut für Laser-Physik benutzten Fourierspektrometers |21| ist in der Abbildung 4.15 gezeigt. Mit einem Interferenzfilter wird das aus dem Faserlaser austretende restliche Pumplicht herausgefiltert und das zu untersuchende Licht mit Hilfe von zwei Umlenkspiegel S5 und S6 ins Spektrometer eingekoppelt.



Abbildung 4.15. Experimenteller Aufbau zur Aufnahme von Laseremissionsspektren im Dauerstrichbetrieb mit einem Fourierspektrometer.

Das eingekoppelte Licht wird durch einen Strahlteiler auf die zwei Arme des Fourierspektrometers gelenkt. Auf jedem Arm trifft das Licht über einen Spiegel (S3 und S4) auf einen Retroreflektor und läuft parallel versetzt zurück auf den Strahlteiler. Hier überlagern sich die beiden Strahlen abhängig von dem Wegunterschied, den sie zurückgelegt haben, konstruktiv oder destruktiv. Das entstehende Interferenzsignal wird mit einer infrarotempfindlichen Photodiode PD1 |27| aufgenommen. Es wird an die Messelektronik weitergeleitet und in einem Rechner gespeichert.

Die Retroreflektoren der beiden Arme sind in einem Gehäuse auf einem beweglichen Schlitten montiert. Der Aufbau ist so angelegt, dass der eine Teilstrahl genau entgegen, der andere genau in der Bewegungsrichtung des Schlittens auf den jeweiligen Retroreflektor trifft. Eine gleichmäßige Bewegung des Schlittens führt zu einem Interferenzsignal, dessen Frequenz proportional zu der des Probelichts ist:
$$\nu_{\text{Interferenz}} = \frac{4 \cdot V_{\text{Schlitten}}}{c} \cdot \nu_{\text{Probelicht}}.$$
(4.19)

Dem Probelicht entgegen läuft der Strahl eines frequenzstabilisierten monochromatischen Helium-Neon-Lasers [28]. Er dient als Referenz für die Aufnahme des Interferenzsignals des Probelasers. Sein sinusförmiges Interferenzsignal (Referenzsignal) wird an einer zweiten Photodiode PD2 [29] aufgenommen und ebenfalls an die Messelektronik weitergeleitet. Diese erzeugt daraus ein TTL-Triggersignal, das zur Aufnahme der Datenpunkte des Interferenzsignals des Faserlasers (Photodiode PD1 in Abb. 4.15) benutzt wird.

Diese Signalaufnahme erfolgt an der Messkarte eines Rechners immer an den Knotenpunkten des Referenzsignals, d.h. wenn der Gangunterschied in den beiden Armen des Spektrometers eine Wellenlänge des HeNe-Lasers  $\lambda_{\text{HeNe}}$  relativ zur vorherigen Position beträgt. Der Schlitten legt dabei eine Strecke von  $\lambda_{\text{HeNe}}/4$  zurück. Dieses Aufnahmeverfahren hat den Vorteil gegenüber der Aufnahme in gleichen Zeitabständen, dass immer in gleichen Wegabständen gemessen wird und Störungen der Geschwindigkeit des Schlittens in ihren Auswirkungen auf das Signal beseitigt werden. Solche Störungen können z.B. durch Luftbewegungen, Reibungsunterschiede auf der Laufschiene des Schlittens oder Schwankungen der Antriebsleistung verursacht werden. Das Emissionsspektrum des Lasers wird durch diskrete Fouriertransformation im Messrechner aus den aufgenommenen Daten berechnet.

Das benutzte Rechnerprogramm erlaubt es, eine beliebige Anzahl von Messungen nacheinander durchzuführen und über die erhaltenen Spektren zu mitteln. Abbildung 4.16 zeigt beispielhaft gemessene Spektren des Faserlasers mit Azetylen als Absorber im Resonator bei unterschiedlicher Anzahl n der Mittelungen. Das Spektrum ohne Mittelungen weist neben starken Absorptionslinien von C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> ein starkes Rauschen auf, was zum einen auf mechanische Instabilitäten und Etaloneffekte zurückgeführt werden kann. Da das Verfahren der schnellen Fouriertransformation (engl.: Fast Fourier Transformation, FFT) eine konstante spektrale Verteilung erfordert, ist die zweite Rauschquelle die in Kapitel 3 beschriebene Instabilität des Emissionsspektrums. Das Rauschen kann allerdings ausgemittelt werden. Eine 4fach gemittelte Messung zeigt bereits ein wesentlich kleineres spektrales Rauschen. Eine höhere Anzahl von Mittelungen verbessert das Signal-Rausch-Verhältnis, führt jedoch zu längeren Messzeiten. Aus diesem Grunde wurden die meisten in dieser Arbeit präsentierten Spektren im Dauerstrichbetrieb 4 mal gemittelt.

Das Fourierspektrometer kann in zwei Aufnahmemodi betrieben werden. Zum einen ist es die Aufnahme von Spektren im Dauerstrichbetrieb des Lasers. Zum anderen kann eine zeitliche Entwicklung der Laserspektren aufgenommen werden (zeitaufgelöste Messung). Beiden Verfahren liegt das oben beschriebene Funktionsprinzip zu Grunde. Die spektrale Auflösung ist durch den optischen Wegunterschied der beiden Spektrometerarme bestimmt und kann den Höchstwert von 0,015 cm<sup>-1</sup> in den beiden Modi erreichen [12].



Abbildung 4.16. Spektren eines  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers im Dauerstrichbetrieb mit einer mit Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) befüllten Absorptionszelle im externen Teil des Resonators bei unterschiedlicher Anzahl *n* der Mittelungen.  $L_{\text{Faser}} = 60 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Zelle}} = 27 \text{ cm}$ .

Abbildung 4.17 zeigt den veränderten schematischen Aufbau des Fourierspektrometers für die Aufnahme der spektralen Entwicklung des Lasers. Das Modulationssignal für die Pumpleistung wird von der Messelektronik erzeugt und an den Laserdiodentreiber gelegt. Es ist ein asymmetrisches Rechtecksignal, dessen Periode  $T_{mod}$  ein einstellbares Vielfaches der Periode des Referenzlasers ist  $(T_{mod} = n \cdot T_{ref})$ . Hiermit wird erreicht, dass sich die Schlittenposition zwischen zwei Modulationsdurchgängen immer um einen konstanten Betrag ändert. Die Periode der Modulation lässt sich über die Schlittengeschwindigkeit einstellen, die so gewählt wird, dass die gewünschte Dauer des Laserbetriebs erreicht wird und eine bestimmte Anzahl an Relaxationsmaxima auftritt. Das Interferogramm wird genau zu den Zeitpunkten der Relaxationsmaxima des Lasers aufgenommen. Um der Messkarte des Rechners den genauen Zeitpunkt dieser Maxima zu übermitteln wird ein Teil des Laserstrahls mit einem Glasplättchen vor dem Fourierspektrometer heraus reflektiert und mit einer Photodiode PD3 30 aufgenommen. Dieses Lasersignal wird in der Messelektronik differenziert und mit einem Schmitt-Trigger in ein Rechtecksignal umgewandelt, das Flanken an den Stellen der Relaxationsmaxima aufweist. Zusammen mit dem Modulationssignal wird es zu einem Triggersignal für die Messkarte verarbeitet. Die Messsoftware ordnet die gemessenen Werte den einzelnen Relaxationsmaxima zu und berechnet die Spektren mit diskreter Fouriertransformation. Ebenso wie bei der Messung von Dauerstrichspektren kann über eine beliebige Anzahl von Messungen gemittelt werden.



Abbildung 4.17. Experimenteller Aufbau zur Aufnahme der zeitlichen Entwicklung von Laseremissionsspektren mit einem Fourierspektrometer.

Abbildung 4.18 zeigt die 4fach gemittelten Spektren in den ersten vier Relaxationsmaxima eines  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers und das Spektrum im Dauerstrichbetrieb (ungemittelt). Im externen Resonatorteil befand sich auch eine mit Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) und Luft befüllte Absorptionszelle. Ähnlich wie bei einem Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser beobachtet man ein durch die spektrale Inhomogenität hervorgerufenes Wechselspiel zwischen verschiedenen Verstärkungsklassen. Ferner ist zu erkennen, dass zum einen die Tiefe der durch die Azetylenabsorption verursachten Kerben in den Spektren mit der Zeit größer wird und zum anderen die parasitären periodischen Strukturen (spektrales Rauschen) immer deutlicher hervortreten. Die Periode dieser Struktur beträgt ca.  $\Delta v = 1/2l \approx 0.4$  cm<sup>-1</sup> und entspricht somit einem Etalon der Dicke l = 1.25 cm, was auf den Arbeitsabstand zwischen der resonatorinternen Linse und dem offenen Faserende zurückgeführt werden kann.



Abbildung 4.18. Die mit dem Fourierspektrometer aufgenommene spektrale Dynamik des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit der Faser |20| (4 obere Spektren, 4fache Mittelung) und das Spektrum im Dauerstrichbetrieb (unten, Einzelaufnahme). Absorptionszelle mit Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) im externen Teil des Resonators,  $L_{\text{Faser}} = 60 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 77 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Zelle}} = 27 \text{ cm}$ . *t* ist die Zeit nach dem ersten Relaxationsmaximum der Laseremission.

Diese Struktur ist dem Emissionsspektrum fest aufgeprägt und wird auch bei einer mehrfachen Mittelung nicht ausgewaschen. Das resultierende Dauerstrichspektrum stellt eine Mischung aus der Struktur und den resonatorinternen Absorptionen dar. Da dies die Auswertung der Spektren in einem nicht unerheblichen Maße erschwert, wurde der Versuch unternommen durch eine schnelle periodische Variation des Abstandes zwischen Linse und Faser in der Größenordnung der Wellenlänge des Laserlichts die Strukturen zu unterdrücken. Hierzu wurde die Fassung der resonatorinternen Ankoppellinse auf Piezoringe aufgeklebt und die Spannung an den Ringen dreiecksförmig moduliert. Es wurden verschieden große Abstandsänderungen von 0  $\mu$ m bis etwa 2  $\mu$ m bei Modulationsfrequenzen von 10 Hz, 1kHz und 2kHz untersucht. In den Messungen stieg das spektrale Rauschen derart stark an, dass eine Auswertung der Spektren selbst mit einer großen Anzahl von Mittelungen (n = 100) nicht möglich war. Ursache hierfür war, dass die Modulation zu einem zeitlich veränderlichen Spektrum führte und hierdurch nach der Fouriertransformation das Rauschen stieg. Aus diesem Grunde wurde auf dieses Verfahren bei der Verwendung des Fourierspektrometers verzichtet.

#### 4.3.2 Gitterspektrograph

Die Aufnahme von Spektren mit einem Gitterspektrographen |25| wurde an der School of Chemistry der Universität Tel-Aviv (Israel) durchgeführt. Der verwendete Aufbau ist in Abbildung 4.19 dargestellt.



Abbildung 4.19. Schematischer Aufbau zur Aufnahme von Spektren mit einem Gitterspektrographen.

Der Faserlaser wurde am Institut für Laser-Physik vorbereitet: die eine Endfläche wurde verspiegelt und die andere entspiegelt, gemäß Abbildungen 4.2 und 4.3. Als Absorptionszelle diente eine Niederdruckkammer mit dem Durchmesser von 40 cm mit Brewster-Fenstern. In der Kammer befand sich ein Brenner, in dessen Flamme Absorpti-

onsmessungen durchgeführt werden konnten. Beim ausgeschalteten Brenner konnten in der Kammer kontrollierte Gasgemische ohne Flamme spektroskopisch untersucht werden. Der Auskoppelspiegel hatte 95% Reflexionsgrad im Emissionsbereich des Faserlasers, seine Rückseite war unter 10° geschnitten. Um das restliche Pumplicht abzuschneiden, wurde hinter dem Auskoppelspiegel ein Filter verwendet.

Bei dem modulierten Laserbetrieb wurde ein Teil des Laserlichts mit einem Glasplättchen herausreflektiert und mit einer Photodiode aufgenommen. Zusammen mit dem Modulationssignal, das von einem Funktionsgenerator erzeugt wurde, wurde dieses Signal mit einem Oszilloskop gemessen. So konnten die Zeitpunkte der Relaxationsmaxima bestimmt werden.

Der größte Teil des zu untersuchenden Laserlichtes wurde mit zwei Spiegeln in den Gitterspektrographen eingekoppelt, von diesem spektral zerlegt und mit der Photodiodenzeile (|26|: Sensors Unlimited Inc., 1024 Pixel, Pixelgröße 25  $\mu$ m) aufgenommen. Die spektrale Auflösung des Aufnahmesystems betrug 0,1 cm<sup>-1</sup>. Ein akusto-optischer Modulator (AOM) |31| zwischen dem Laser und Spektrographen wurde im modulierten Betrieb verwendet, um das Licht in jedem Modulationsdurchgang jeweils nach der gewünschten Entwicklungszeit des Lasers in den Spektrographen zu lenken. Die Daten wurden an einen Messrechner geleitet und gespeichert. Mit Hilfe von gleichen wie im Kapitel 3.2.3 beschriebenen durchgeführten Eichmessungen konnten durch Interpolation bekannter Absorptionslinien im Spektrum den Kanälen der Photodiodenzeile die Wellenzahlen zugeordnet werden.



Abbildung 4.20. Emissionsspektren des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlaser mit der Faser |20| im gesamten Durchstimmbereich mit Niederdruckkammer im Resonator.  $L_{\text{Faser}} = 60 \text{ cm}, L_{\text{extern}} = 87 \text{ cm}, L_{\text{Kammer}} = 40 \text{ cm}.$ 

Der Durchstimmbereich des Faserlasers mit der mit Stickstoff (N<sub>2</sub>) bei einem Druck von  $p_{N_2} = 6,6$  mbar gefüllten Niederdruckkammer ist in der Abbildung 4.20 ge-

zeigt. Er erstreckte sich beim dargestellten Aufbau von 6400 cm<sup>-1</sup> bis 6550 cm<sup>-1</sup> und wies genauso wie in der Laserkonfiguration ohne Niederdruckkammer eine Lücke im Bereich um 6500 cm<sup>-1</sup> auf. In der Abbildung sind sechs Aufnahmen bei verschiedenen Positionen der resonatorinternen Linse dargestellt, die alle im ersten Relaxationsmaximum des Lasers aufgenommen wurden. Die nicht durch die Absorption verursachten spektralen Strukturen waren zeitlich konstant, weswegen bei den Messungen zuerst ein Referenzspektrum ohne und gleich danach ein Spektrum mit dem zu untersuchenden Gas(-gemisch) aufgenommen wurde. Dieses Emissionsspektrum mit Absorptionslinien wurde anschließend durch das Referenzspektrum geteilt. Mit dieser Vorgehensweise konnte ein Signal-Rausch-Verhältnis von etwa 500:1 im zentralen Bereich des Spektrums erreicht werden.

#### 4.3.3 Bestimmung der spektralen Empfindlichkeit

Die maximal erreichbare spektrale Empfindlichkeit ist gemäß Gl (1.7) durch die spektrale Sättigungszeit des Lasers bestimmt. Durch die Messung der zeitlichen Entwicklung des Absorptionssignals und seine anschließende Extrapolation auf den stationären Wert im Dauerstrichbetrieb kann diese ermittelt werden.

Die Messungen wurden im Spektralbereich von 6390 cm<sup>-1</sup> bis 6410 cm<sup>-1</sup> mit Azetylen ( $C_2H_2$ ) im Resonator durchgeführt. Azetylen weist hier einige Absorptionslinien auf, so dass die zeitliche Entwicklung der Laserspektren gut nachvollzogen werden kann. Abbildung 4.21 zeigt die mit dem Fourierspektrometer aufgenommenen Spektren in den ersten 10 Relaxationsmaxima des Faserlasers. Der kontinuierliche Verlauf auf dem 3D-Bild (Abb. 4.21) wurde durch Verbinden der einzelnen Spektren erzeugt.

Das Spektrum in der Mitte des Emissionsprofils entwickelt sich weit über die Messzeit von 80 µs, die aus technischen Gründen nicht größer gewählt werden konnte. Einige Absorptionslinien sind sehr stark und deswegen auch recht schnell gesättigt. Im Laufe der Entwicklung werden sie nur breiter, da bereits die benachbarten Moden mit einem kleineren Absorptionskoeffizienten unterdrückt werden. Zusätzlich zu den zeitaufgelösten Messungen wurde auch ein Spektrum im Dauerstrichbetrieb aufgenommen, an dem die stationären Absorptionssignale bestimmt wurden.

Im ersten Abschnitt der Entwicklungszeit ( $t \ll t_s$ ) beschreiben die Absorptionssignale eine Gerade, deren Steigung  $\varphi$  nach Gl. (1.7) und (1.8)

$$\varphi = \beta \cdot k \cdot c \tag{4.20}$$

beträgt ( $\beta$  ist hier der Füllfaktor des Resonators mit dem Absorber). Im Bereich der spektralen Sättigung nähert sich das Absorptionssignal seinem konstanten Wert im Dauerstrichbetrieb [1].



Abbildung 4.21. Zeitliche Entwicklung der Laseremissionsspektren mit Azetylen im Resonator. Faser |20|,  $L_{\text{Faser}} = 64 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 76 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Zelle}} = 27 \text{ cm}$ .

Es wurde der Verlauf des Absorptionssignals von sieben Linien verfolgt (s. Tabelle 4.3). Fünf von ihnen wiesen relativ starke Absorption auf und gingen ab etwa der sechsten Relaxationsspitze ( $t \approx 50 \,\mu\text{s}$ ) in Sättigung über: (1)(2)(4)(5)(6). Zwei von Ihnen waren deutlich schwächer und selbst im Dauerstrichbetrieb nicht gesättigt: (3) und (7).

Ref.	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)
Wellenzahl (cm <sup>-1</sup> )	6398,5	6399,6	6400,0	6400,5	6400,7	6401,1	6401,5
Sättigung	ja	ja	nein	ja	ja	ja	nein

Tabelle 4.3. Aufstellung von 7 auszuwertenden Absorptionslinien.

Zunächst musste der Startzeitpunkt der Laseremission (oder der Entwicklung des Absorptionssignals) bestimmt werden, da aus der Messung der Relaxationsoszillationen nur die relativen Lagen der Maxima zueinander ablesbar sind. Deswegen wurde anfangs der Nullzeitpunkt willkürlich in das erste Relaxationsmaximum gelegt. Durch lineare Regressionen im ungesättigten Bereich wurden die Schnittpunkte mit der Zeitachse der Absorptionslinien und deren Mittelwert berechnet. Es ergab sich eine Zeit von  $t_0 = -7,2 \ \mu s \pm 1,2 \ \mu s$ . Der Fehler wurde aus den Standardabweichungen der linearen Regression für Steigungen und Achsenabschnitt berechnet. Abbildung 4.22 stellt das Verfahren und die Ergebnisse graphisch dar. Es wurden fünf Absorptionslinien (1)(2)(4)(5)(6) gewählt. Sie wiesen kurz nach dem Einsetzen der Absorption ein ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis auf.



Abbildung 4.22. Bestimmung des Startzeitpunkts der Entwicklung  $t_0$  durch lineare Regression und Mittelung. Die Standardabweichung ist durch gestrichelte Linien auf beiden Seiten des Mittelwerts angedeutet.

Der Nullzeitpunkt wurde nun auf den berechneten Wert gesetzt und die Steigungen  $\varphi_i$  von allen 7 Absorptionslinien berechnet (lineare Regression durch den Ursprung im ungesättigten Bereich). Abbildung 4.23 stellt die auf ihre Absorptionskoeffizienten normierten Absorptionssignale (die effektiven Absorptionslängen) einiger Linien dar. Im ungesättigten Zeitbereich verlaufen sie um die Gerade  $L_{eff} = c \cdot t$  (rote Linie). Im Bereich der Sättigung nähern sie sich der Dauerstrichabsorption (schwarze Linie). Der Schnittpunkt der beiden Linien ergibt die spektrale Empfindlichkeit von:

$$L_{\rm eff,max} = 54 \,\,\mathrm{km} \pm 11 \,\,\mathrm{km} \,.$$

Der Fehlerbereich ist mit grauen gestrichelten Linien angedeutet. Die dunkelblaue gestrichelte Linie zeigt einen möglichen Verlauf der effektiven Absorptionsweglänge.



Abbildung 4.23. Zeitliche Entwicklung der effektiven Absorptionsweglängen  $L_{\text{eff}}(t)$  für 4 verschiedene Absorptionslinien: gesättigte Linien (dunkelrot) und ungesättigte Linien (blau). Durchgezogene rote Linie bezeichnet das lineare Gesetz  $L_{\text{eff}} = c \cdot t$ . Die effektive Absorptionsweglänge  $L_{\text{eff,max}}$  beträgt im Dauerstrichbetrieb 54 km.

Die erreichte Empfindlichkeit des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers ist um ca. 30% höher als die des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers aus Kap. 3 und übersteigt um etwa eine Größenordung die mit im benachbarten Spektralbereich (1,7 µm – 2,0 µm) emittierenden Tm<sup>3+</sup>dotierten Faserlasern erreichte [12, 13]. Die Ursache für diese höhere Empfindlichkeit liegt wahrscheinlich an der Qualität der Er<sup>3+</sup>-dotierten Faser, die eine kleinere Rate der Rayleigh-Streuung besitzt. Da Er<sup>3+</sup>-dotierte Fasern seit längerem in der Telekommunikationstechnik eingesetzt werden, sind die Herstellungsverfahren von diesen Fasern weitgehend optimiert.

### 4.3.4 Empfindlicher Nachweis von Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>)

Die Absorptionsmessungen im Laserresonator eines Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers wurden mit Azetylen im Spektralbereich von 6403 cm<sup>-1</sup> bis 6548 cm<sup>-1</sup> durchgeführt. Azetylen ist in diesem Spektralbereich mit anderen Methoden bereits untersucht worden [99, 100], so dass diese Daten als Referenz verwendet werden können.

Für die Messungen wurde der in Abbildung 4.19 dargestellte Aufbau verwendet. Die Niederdruckkammer (l = 40 cm) wurde laufend abgepumpt und der Gesamtdruck mit einer geregelten Abluftdrossel |32| auf p = 6,6 mbar konstant gehalten. Der Partialdruck von Azetylen betrug  $p_{C_{2H_2}} = 0,02$  mbar. Als Puffergas wurde Stickstoff (N<sub>2</sub>) verwendet. Ein konstantes Verhältnis von Azetylen und Stickstoff wurde mit geeichten Massenflussreglern |33| erreicht. Die gesamte Resonatorlänge betrug  $L_{\text{Resonator}} = 177 \text{ cm}$ . Alle Spektren wurden im gepulsten Betrieb nach einer Entwicklungszeit von  $t = 8 \,\mu\text{s}$  im ersten Relaxationsmaximum des Faserlasers aufgenommen. Dies entspricht einer effektiven Absorptionsweglänge von

$$L_{\rm eff} = c \cdot t \approx 2.4 \ \rm km \tag{4.21}$$

Mit Berücksichtigung des Füllfaktors des Resonators mit dem Absorber  $l/L_{\text{Resonator}} \approx 0,225$ reduziert sich die spektrale Empfindlichkeit auf  $L_{\text{eff}} = 540$  m.

Die Modulation der Pumplaserdiode wurde so eingestellt, dass der Laser einzelne Lichtpulse im Abstand von 200 µs emittierte. Während der Integrationszeit der Photodiodenzeile von 200 ms konnte so über 1000 Spektren gemittelt werden. In dem Messrechner wurde zusätzlich noch über 50 gemessene Spektren gemittelt.

Abbildung 4.24 zeigt ein Beispiel, wie ein normiertes Transmissionsspektrum von Azetylen im Spektralbereich von 6505 cm<sup>-1</sup> bis 6545 cm<sup>-1</sup> erhalten wird. Wie bereits erwähnt, wurde zunächst ein Spektrum ohne Azetylen in der Niederdruckkammer – ein Normierungsspektrum (Abb. 4.24, oben) – aufgenommen. Bei gleich bleibendem Gesamtdruck wurde danach Azetylen zugeführt und ein Emissionsspektrum des  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> im Resonator aufgenommen (mittleres Spektrum in der Abb. 4.24). Das normierte Transmissionsspektrum (Abb. 4.24, unteres Diagramm) wurde durch Teilen der beiden Spektren berechnet. Da die spektralen Strukturen zeitlich konstant blieben, wurde damit auch das spektrale Rauschen weitgehend eliminiert.

Auf diese Weise wurden normierte Transmissionsspektren in verschiedenen Emissionsbereichen des Faserlasers berechnet und anschließend ein Übersichtsspektrum erhalten, indem die einzelnen Transmissionsspektren zusammengefügt wurden. In den Überlappbereichen der benachbarten Spektren wurde über diese Spektren gemittelt. Abbildung 4.25 zeigt ein zusammengesetztes Transmissionsspektrum von Azetylen im Bereich von 6403 cm<sup>-1</sup> bis 6548 cm<sup>-1</sup>. Der Bereich von 6490 cm<sup>-1</sup> bis 6500 cm<sup>-1</sup> weist ein höheres Rauschen auf, weil die Laseremission in diesem Bereich, wie in Abb. 4.20 gezeigt ist, nur sehr schwach war.

Die Positionen der Absorptionslinien stimmen sehr genau mit den bekannten Messungen überein [99]. Im Bereich von 6400 cm<sup>-1</sup> bis 6440 cm<sup>-1</sup> konnten sogar schwache und bisher nicht bekannte Absorptionslinien von Azetylen gemessen werden. Die Übergänge des P-Zweigs des  $(v_1 + v_3)$ -Vibrationsübergangs wurden mit Daten von Kou und Guelachivili [100] identifiziert. Sie stammen aus Messungen mit einer Absorptionsweglänge von 32 m und einer Aufnahmezeit von 10 Stunden.



Abbildung 4.24. Emissionsspektren des  $\text{Er}^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit der Faser |20| ohne (oben) und mit C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>-Absorption (Mitte) im Resonator und das normierte Transmissionsspektrum von Azetylen (unten). Die Messungen wurden im gepulsten Betrieb nach einer Entwicklungszeit von 8 µs durchgeführt.  $L_{\text{Faser}} = 60 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 87 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Abs}} = 40 \text{ cm}$ .



Abbildung 4.25. Zusammengesetztes Transmissionsspektrum von Azetylen  $(L_{\text{eff}} = 540 \text{ m}).$ 

Das in den zentralen Bereichen der Emissionsspektren auftretende Rauschen entspricht einem Absorptionssignal von  $K_{\text{Rauschen}} = 2 \cdot 10^{-3}$ . Das Absorptionssignal der starken Linie P29 ist  $K_{\text{P29}} \approx 0.7$ . Der niedrigste nachweisbare Druck von Azetylen mit dieser Apparatur im ersten Relaxationsmaximum der Laseremission errechnet sich demnach aus dem Verhältnis der beiden Werte und Berücksichtigung des C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>-Partialdrucks im Experiment (0,02 mbar) zu etwa  $p_{\text{C}_{2}\text{H}_{2},\text{min}} = 5.7 \cdot 10^{-5}$  mbar. Im Dauerstrichbetrieb kann eine etwa um einen Faktor 20 größere Empfindlichkeit erwartet werden, so dass in diesem Fall  $p_{\text{C}_{2}\text{H}_{2},\text{min}} \approx 2.8 \cdot 10^{-6}$  mbar.

Bei der Anwendung der Einmoden-ICAS wurde beim Azetylendruck von 10 mbar für die Linie P7 ( $\nu = 6539,45$  cm<sup>-1</sup>) die Absorption von 2 dB gemessen [96]. Bei dem hier präsentierten Experiment wurde beim Azetylendruck von 0,02 mbar für dieselbe Linie die Absorption von 2,3 dB erreicht. Dementsprechend ist die demonstrierte Messung etwa 500 mal empfindlicher. Im Dauerstrichbetrieb ist dann eine etwa 10000 mal höhere Empfindlichkeit zu erwarten.

#### 4.3.5 Erweiterung des Emissionsspektrums

Um auch im niederfrequenten Emissionsbereich des Faserlasers (6200 – 6400 cm<sup>-1</sup>) die Gase spektroskopisch nachweisen zu können musste, wie in Kapitel 4.2.3 erläutert, die Anzahl der aktiven Ionen vergrößert werden. Dies wird entweder durch Verwendung einer Faser mit einer höheren Konzentration der Er<sup>3+</sup>-Ionen oder einer längeren Faser erreicht. Im Experiment wurde eine Faser mit einer ca. 8 mal größeren Konzentration der Er<sup>3+</sup>-Ionen eingesetzt als die Faser |20|. Die Länge dieser hochdotierten Faser (344: EDF150, Hersteller OFS (Dänemark), maximale Absorption bei  $\lambda = 1530$  nm ist 150 dB/m, NA = 0,29,  $\lambda_{cutoff} = 925$  nm ) betrug  $L_{Faser} = 53$  cm. Die Anzahl der Er<sup>3+</sup>-Ionen wurde somit ca. um das sechsfache erhöht im Vergleich zur 60 cm langen Faser [20] aus dem vorigen Experiment. Der Messbereich hat sich wie erwartet ins langwelligere bis auf 6200 cm<sup>-1</sup> erweitert. Damit wurden resonatorinterne Absorptionsmessungen mit 2 Gasen - Kohlenstoffdioxid (CO2) und Kohlenstoffmonoxid (CO) - durchgeführt.

Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>) entsteht sowohl bei der vollständigen Verbrennung von kohlenstoffhaltigen Substanzen unter ausreichendem Sauerstoff als auch im Organismus von Lebewesen als Kuppelprodukt der Zellatmung. CO<sub>2</sub> wird dabei über den Atem abgegeben. Kohlendioxid hat einen Anteil von ca. 9–26% am gesamten natürlichen Treibhauseffekt und ist somit entscheidend für das lebensfreundliche Klima der Erde mitverantwortlich. Der CO<sub>2</sub>-Anteil in der Atmosphäre ist mit dem Beginn der Industrialisierung im 19. Jahrhundert von 280 ppm auf bislang 380 ppm gestiegen und steigt weiter um durchschnittlich 1,5–2 ppm pro Jahr.



Abbildung 4.26. HITRAN-Referenzspektrum (oben). Emissionsspektren des  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers mit der Faser |34| mit dem Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>) bei verschiedenen Partialdrücken (3 mittlere Spektren) und der Atemluft (unten) in der Absorptionszelle.  $P_{total} = 1000 \text{ mbar}$ ,  $L_{Faser} = 53 \text{ cm}$ ,  $L_{extern} = 67 \text{ cm}$ ,  $L_{Zelle} = 27 \text{ cm}$ .

Um die Absorption von  $CO_2$  im Resonator des Faserlasers zu messen, wurde in den externen Teil des Resonators eine mit  $CO_2$  befüllte Absorptionszelle eingeführt und die Emissionsspektren im Dauerstrichbetrieb des Lasers mit dem Fourierspektrometer aufgenommen. Diese Spektren sind in den unteren 4 Diagrammen der Abbildung 4.26 gezeigt. Der Partialdruck von  $CO_2$  wurde variiert, der Gesamtdruck war immer auf 1000 mbar durch Luftzugabe eingestellt. Im oberen Diagramm ist das HITRAN-Referenzspektrum mit  $CO_2$ -Partialdruck von 10 mbar, dem Gesamtdruck von 1000 mbar und L = 1 km präsentiert. Zusätzlich zeigt das untere Spektrum in Abb. 4.26 die Absorption der Atemluft, in der etwa 4% Kohlenstoffdioxid enthalten sind. (Zum Vergleich: in der natürlichen Luft liegt der Konzentrationsanteil von  $CO_2$  bei 0,038% oder 0,38 mbar).

Wie man an dem HITRAN-Spektrum sieht, sind die Absorptionslinien von CO<sub>2</sub> sehr stark. Deswegen sind die Linien in den Emissionsspektren bei den CO<sub>2</sub>-Partialdrücken von 1000 mbar und 100 mbar gesättigt. Das dem Rauschen entsprechende Absorptionssignal beträgt im Spektrum mit  $P_{CO_2} = 10$  mbar ca.  $K_{Rauschen} \approx 0,17$ . Das Absorptionssignal der CO<sub>2</sub>-Absorptionslinie bei  $\nu = 6245$  cm<sup>-1</sup> ist  $K \approx 1,1$ . Aus dem Verhältnis der beiden Werte kann man den in diesem Aufbau minimalen nachweisbaren Druck zu ca. 1,5 mbar abschätzen. Durch die Reduzierung des Rauschens z.B. auf  $K_{Rauschen} \approx 2 \cdot 10^{-3}$ , wie in Abb. 4.25, lässt sich dieser Wert bis auf ca. 0,02 mbar (20 ppm) verringern.

Der empfindliche Nachweis von den in der menschlichen Atemluft enthaltenen Gasen erlaubt medizinische Diagnostik unterschiedlicher Krankheiten [101]. Die Bestimmung des Verhältnisses der Konzentrationen der Isotope <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> in der ausgeatmeten Luft lässt z.B. auf die Infizierung des Patienten mit der für das Entstehen des Magengeschwürs verantwortlichen Bakterie *Helicobacter pylori* schließen [102, 103]. Für die eingehenden Untersuchungen zu diesem Thema wurden die australischen Wissenschaftler B. Marshall und J. Warren 2005 mit dem Nobelpreis für Medizin ausgezeichnet [104, 105]. Dabei kommt oft der spektroskopische isotopenselektive Nachweis zum Einsatz [106]. In dieser Arbeit wurde die Anwendung von ICAS für die Erkennung von Isotopen <sup>12</sup>CO<sub>2</sub>/<sup>13</sup>CO<sub>2</sub> demonstriert.

In dem oberen Diagramm der Abbildung 4.27 sind die für beide Isotope berechneten HITRAN-Referenzspektren gezeigt. An diesen Spektren ist ersichtlich, dass einige Absorptionslinien von <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> spektral voneinander gut getrennt sind. Die anderen Diagramme der Abb. 4.27 zeigen die Emissionsspektren des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit kontrollierten Mischverhältnissen der beiden Isotope in der im Resonator befindlichen Absorptionszelle. Alle Spektren wurden mit dem Fourierspektrometer im ersten Relaxationsmaximum des Lasers aufgenommen. Der Partialdruck von <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> in der Zelle betrug immer 100 mbar. Der Partialdruck von <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und somit der Gesamtdruck wurde stufenweise erhöht. Der Gesamtdruck in der Absorptionszelle war in diesem Experiment dementsprechend:  $P_{\text{total}} = P_{^{13}\text{CO}_2} + P_{^{12}\text{CO}_2} = 100 \text{ mbar} + P_{^{12}\text{CO}_2}$ . In den Laseremissionsspektren sind die Absorptionslinien der beiden Isotope gut erkennbar: die <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>-Linien werden bei der Erhöhung von  $P_{^{12}\text{CO}_2}$  lediglich durch höheren Gesamtdruck breiter, während die <sup>12</sup>CO<sub>2</sub>-Linien immer tiefer werden. Bei  $P_{^{12}\text{CO}_2} = 100 \text{ mbar}$ , d.h. wenn die Partialdrücke der beiden Isotope gleich sind, sind auch die Linien vergleichbar stark. Bei  $P_{^{12}\text{CO}_2} = 300 \text{ mbar}$  sind

die <sup>12</sup>CO<sub>2</sub>-Linien deutlich stärker und bei  $P_{_{1^2}CO_2} = 700$  mbar sind die <sup>13</sup>CO<sub>2</sub>-Linien wegen der Druckverbreiterung nicht mehr gut aufgelöst.



Abbildung 4.27. HITRAN-Referenzspektren von <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> (oben). Emissionsspektren des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |20| mit der mit 100 mbar von <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> und verschiedenen Drücken von <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> gefüllten Absorptionszelle im Resonator (untere fünf Graphen).  $L_{\text{Faser}} = 200 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 66 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Zelle}} = 18 \text{ cm}$ .

Ein weiteres wichtiges atmosphärisches Spurengas ist Kohlenstoffmonoxid (CO). Kohlenstoffmonoxid ist ein farb-, geruch- und geschmackloses Gas. Es entsteht bei der unvollständigen Oxidation von kohlenstoffhaltigen Substanzen. Dies erfolgt zum Beispiel beim Verbrennen dieser Stoffe, wenn nicht genügend Sauerstoff zur Verfügung steht oder die Verbrennung bei hohen Temperaturen stattfindet. Kohlenstoffmonoxid ist brennbar und verbrennt mit Sauerstoff (O<sub>2</sub>) zu Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>). Es ist ein gutes Reduktionsmittel und wird in dieser Funktion vielfältig verwendet. Außerdem geht Kohlenstoffmonoxid starke Komplexbindungen ein und ist deswegen ein sehr guter Ligand zur Metallkomplexierung. Auch seine extreme Giftigkeit ist auf diese Eigenschaft zurückzuführen.

Diese Eigenschaften machen den Nachweis von CO wichtig. Insbesondere kann die ICAS-Methode zur in situ Detektion bei Verbrennung eingesetzt werden (s. Kap. 4.4), wobei die Entstehung und Zerfall von Kohlenstoffmonoxid aufgrund der hohen Empfindlichkeit zeitaufgelöst verfolgt werden kann.

Kohlenstoffmonoxid besitzt starke Absorptionslinien im Bereich 6250-6400 cm<sup>-1</sup>. Abbildung 4.28 (oberes Diagramm) zeigt das im Spektralbereich 6370-6390 cm<sup>-1</sup> berechnete HITRAN-Referenzspektrum mit dem CO-Partialdruck von  $P_{CO} = 100$  mbar, dem Gesamtdruck 1000 mbar und der Absorptionsweglänge L = 50 m. Im dargestellten Bereich befinden sich starke CO-Absorptionslinien. Die anderen drei Diagramme der Abb. 4.28 zeigen die mit dem Fourierspektrometer im ersten Relaxationsmaximum des Lasers aufgenommenen Emissionsspektren des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der mit CO befüllten Absorptionszelle im Resonator. Der Partialdruck von CO wurde verändert, der Gesamtdruck (P<sub>total</sub>) wurde konstant bei 1000 mbar gehalten. Als Puffergas diente die atmosphärische Luft. Trotz des relativ hohen spektralen Rauschens (das dem Rauschen entsprechende Absorptionssignal beträgt ca.  $K_{\text{Rauschen}} \approx 0,28$ ) sind die Absorptionslinien auch bei einem kleinen CO-Partialdruck von 20 mbar gut erkennbar. Gelingt es, z.B. durch Verwendung einer Diodenzeile, das Rauschen auf das gleiche Niveau wie bei den Messungen mit Azetylen (Abb. 4.24 und 4.25) zu reduzieren ( $K_{\text{Rauschen}} = 2 \cdot 10^{-3}$ ), so ist zu erwarten, dass CO-Absorptionslinien auch bei einem Partialdruck von nur ca.  $P_{CO} \approx 0,1$  mbar nachweisbar sind. Im Dauerstrichbetrieb kann sich dieser Wert noch um ca. Faktor 20 verkleinern.



Abbildung 4.28. Oben: HITRAN-Referenzspektrum, 3 untere Spektren: Emissionsspektren des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der Faser |20| bei verschiedenen Partialdrücken von Kohlenstoffmonoxid (CO),  $P_{\text{total}} = 1000 \text{ mbar}$ .  $L_{\text{Faser}} = 200 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{extern}} = 66 \text{ cm}$ ,  $L_{\text{Zelle}} = 18 \text{ cm}$ .

## 4.4 Untersuchung einer Niederdruckflamme

Die Bildungs- und Abbauprozesse von Stickstoffoxiden  $(NO_x)$  während der Verbrennung sind von großem Interesse, da diese an der Entstehung von Ozon in der Troposphäre und von sauerem Regen beteiligt sind. Laserspektroskopische Untersuchungen an wohldefinierten Niederdruckflammen stellen ein wichtiges Werkzeug für die Entwicklung und Überprüfung von Modellen dieser chemischen Vorgänge dar.

Eine Schlüsselrolle spielen dabei Ammoniak (NH<sub>3</sub>) und Cyanwasserstoff (HCN). Die beiden Moleküle tragen zum Abbau von NO bei einem Restverbrennungsprozess bei [107, 108]. Bisher war es jedoch nicht gelungen deren Konzentrationen *direkt in einer Flamme* mit spektroskopischen Methoden zu messen. Die Messungen von Cyanwasserstoff im infraroten Bereich wurden mit der Methode der cavity ringdown Spektroskopie durchgeführt, wobei der Resonator von der Flamme isoliert war und HCN über ein spezielles Röhrensystem in den Resonator gebracht wurde [42, 43]. Ein in situ Nachweis in der Flamme ist mit dieser Methode nicht möglich, da deren Empfindlichkeit und Zuverlässigkeit wegen der zu hohen Verluste in der unwirtlichen Umgebung der Flamme stark sinkt.

Dafür stellt ICAS mit einem Vielmodenlaser eine vielversprechende Untersuchungsmethode dar, da breitbandige Verluste im Resonator durch die Verstärkung ausgeglichen werden. Bis jetzt wurde für die Messungen der Absorption in der Flamme ICAS mit Farbstofflasern im sichtbaren Spektralbereich angewendet [109, 110]. Die Anwendung eines Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit einem viel kompakteren Aufbau im nahen infraroten Spektralbereich ist neu und ebenfalls vielversprechend, da hier sowohl HCN als auch NH<sub>3</sub> starke Absorptionslinien aufweisen.

Für die Messungen wurde der in Abb. 4.19 gezeigte Aufbau verwendet. In der Niederdruckkammer wurde eine flache Flamme der Länge l = 6 cm von einem höhenverstellbaren Brenner |35| erzeugt. Die Bestandteile der stöchiometrischen Flamme waren Methan (CH<sub>4</sub>), Sauerstoff (O<sub>2</sub>) und Stickstoff (N<sub>2</sub>) bei dem durch die geregelte Abluftdrossel |32| konstant gehaltenen Gesamtdruck von 40 mbar mit den Gasflüssen von 450 sccm CH<sub>4</sub>, 900 sccm O<sub>2</sub> und 2990 sccm N<sub>2</sub> (sccm: Standardkubikzentimeter). Die letzteren wurden mit kalibrierten Massenflussreglern |33| eingestellt. Der Flamme konnte 0,13%-1,36% Ammoniak (NH<sub>3</sub>) beigemischt werden. Alle Messungen wurden im ersten Relaxationsmaximum der Emission des Faserlasers nach einer Entwicklungszeit von  $t = 8 \,\mu$ s bei einer Resonatorlänge von  $L_{\text{Resonator}} = 177 \,\text{cm}$  durchgeführt. Die effektive Absorptionsweglänge von  $L_{\text{eff}} = c \cdot t \approx 2,4 \,\text{km}$  reduziert sich mit Berücksichtigung des Füllfaktors des Resonators mit dem Absorber  $l/L_{\text{Resonator}} \approx 0,033$  auf ca.  $L_{\text{eff}} \approx 80 \,\text{m}$ .

Bei jeder Stellung der Ankoppellinse (in jedem Spektralbereich) wurde zunächst ein Normierungsspektrum in einer Höhe von h = 35 cm über dem Brenner aufgenommen. Für die Absorptionsmessungen wurde dann der Flamme Ammoniak beigemischt. Danach wurden für jeden Spektralbereich Absorptionsspektren in verschiedenen Höhen über dem Brenner aufgenommen. Die normierten Transmissionsspektren wurden dann zu einem Übersichtsspektrum zusammengesetzt. Abbildung 4.29 zeigt so ein zusammengesetztes Spektrum zusammen mit den aufgenommenen Emissionsspektren mit Absorption in einer Höhe von h = 14 cm über dem Brenner im gesamten Spektralintervall von 6445 cm<sup>-1</sup> bis 6538 cm<sup>-1</sup> (drei Stellungen der Ankoppellinse). Der Anteil von NH<sub>3</sub> betrug bei dieser Messung 1,36% (0,55 mbar). Bei den Absorptionslinien handelt es sich um die P- und R-Zweige der (20°0)–(00°0)-Übergänge von H<sup>12</sup>C<sup>14</sup>N [111]. Die Referenzdaten [111] wurden durch Absorptionsmessungen im Einfachdurchgang durch eine 1 m lange Absorptionszelle, die mit hochreinem HCN bei einem Druck von  $p_{HCN} = 1,7$  mbar befüllt war, erhalten.



Abbildung 4.29. Zusammengesetztes auf die Laserspektren in einer Höhe von 35 mm über dem Brenner normiertes Transmissionsspektrum (dunkelrot) der Niederdruckflamme. Die Höhe über dem Brenner betrug 14 mm. Im Hintergrund sind die zugrunde liegenden Emissionsspektren des Lasers aufgetragen (verschiedene Farben).  $p_{CH_4} = 4,09$  mbar,  $p_{O_2} = 8,18$  mbar,  $p_{N_2} = 27,18$  mbar,  $p_{NH_2} = 0,55$  mbar.

Das starke Rauschen im zentralen Bereich des Transmissionsspektrums (von 6490 cm<sup>-1</sup> bis 6500 cm<sup>-1</sup>) ist auf die schwache Emission des Lasers in diesem Bereich zurückzuführen. Im linken Bereich dagegen (von 6450 cm<sup>-1</sup> bis ca. 6485 cm<sup>-1</sup>) ist das Rauschen sehr klein und entspricht einem äquivalenten Absorptionssignal von  $K_{\text{Rauschen}} = 4 \cdot 10^{-3}$ . Mit diesem Wert lässt sich der minimale nachweisbare Absorptionskoeffizient bestimmen:  $k_{\text{min}} = K_{\text{Rauschen}} / L_{\text{eff}} = 5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$ , was einer minimalen nachweisbaren Konzentration von  $n_{\text{HCN}} = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  oder dem Druck von  $p_{\text{HCN}} = 4 \cdot 10^{-4}$  mbar entspricht. Diese Abschätzung wurde mit dem Wert des Absorptionsquerschnitts der Absorptionslinie von HCN bei  $v = 6474,16 \text{ cm}^{-1}$  aus [112] gemacht. Dabei wurde auch berücksichtigt, dass die Breite der Absorptionslinien in diesem Experiment 0,1 cm<sup>-1</sup> beträgt.

Die in diesem Experiment mit der Probelänge von nur 6 cm erreichte Nachweisgrenze liegt bei 400 ppb für Raumtemperatur und Standardatmosphärendruck. Mit der Methode der cavity ringdown Spektroskopie wurde die Nachweisgrenze von HCN von 7,9 ppb erreicht, allerdings unter der Bedingung, dass die Probe der Flamme entnommen wurde und den Resonator vollständig ausfüllte  $(l/L_{Resonator} = 1)$  [43]. Diese hohe Empfindlichkeit konnte mit CRDS nur unter der Vorraussetzung erzielt werden, dass die Resonatorverluste klein waren, was in einer Flamme nicht erfüllt ist. Außerdem liegen die auf den Füllfaktor des Resonators mit dem Absorber normierten Nachweisgrenzen der beiden Messungen ungefähr in der gleichen Größenordung:  $\frac{l}{L_{Resonator}} \cdot 400$  ppb  $\approx$  13,5 ppb. Es ist auch anzumerken, dass die Entwicklungszeit des Faserlasers größer gewählt und die Empfindlichkeit weiter gesteigert werden kann.

Abbildung 4.30 zeigt als Beispiel die normierten Transmissionsspektren im Spektralbereich von 6509 cm<sup>-1</sup> bis 6538 cm<sup>-1</sup> (eine Stellung der Ankoppellinse) bei verschiedenen Höhen über dem Brenner *h* mit 1,36% NH<sub>3</sub>. Oben ist das Normierungsspektrum dargestellt, das ohne Zugabe von NH<sub>3</sub> bei *h* = 35 mm aufgenommen wurde. Aus diesen Transmissionsspektren lassen sich Rückschlüsse auf die Höhenentwicklung von Gasenkonzentrationen während der Verbrennung ziehen. Im unteren Bereich der Flamme sind die Absorptionslinien von NH<sub>3</sub> vorhanden, die mit steigender Höhe immer schwächer werden und ab einer Höhe von etwa 11 mm nicht mehr nachweisbar sind. Sie konnten mit Daten aus [113] zugeordnet werden. Die Amplitude der Absorptionslinien von HCN wird zunächst stärker und fällt ab einer Höhe von etwa 11 mm wieder langsam ab. Außerdem wurden unbekannte positive Transmissionssignale bei  $v \approx 6526$  cm<sup>-1</sup> gemessen. Sie deuten darauf hin, dass bestimmte Moleküle erst in höherer Lage über dem Brenner, wo die Normierungsspektren aufgenommen wurden (*h* = 35 mm), vorhanden sind. An der Abbildung ist zu erkennen, dass diese Moleküle etwa in einer Höhe von *h* = 1 mm entstehen. Sie konnten bisher nicht identifiziert werden.

Abbildung 4.31 zeigt die Absorptionssignale für je eine Absorptionslinie von HCN ( $\nu = 6452,55 \text{ cm}^{-1}$ , Abb. 4.31(a)) und NH<sub>3</sub> ( $\nu = 6528,76 \text{ cm}^{-1}$ , Abb. 4.31(b)) in Abhängigkeit von der Höhe über dem Brenner. Zum Vergleich sind die molaren Anteile aus Modellrechnungen [114, 115] aufgetragen. Dieses Modell beschreibt alle chemischen Reaktionen in der Flamme und erlaubt die Konzentrationen unterschiedlicher Moleküle in verschiedenen Höhen über dem Brenner zu berechnen.

Für die NH<sub>3</sub>-Messungen ist eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Modell festzustellen. An der Abb. 4.31(b) ist zu erkennen, dass die NH<sub>3</sub>-Moleküle zum größten Teil in der Höhe bis 10 mm über dem Brenner lokalisiert sind. Die Absorption von HCN bleibt jedoch stark bis zu einer Höhe von 30 mm über dem Brenner (Abb. 4.31(a)). Die Berechnungen sagen aber ein Abfallen der HCN-Konzentration voraus. Die Ursache dieser Diskrepanz könnte in der Zirkulation von HCN-Molekülen in dem Volumen um die Flamme liegen. Diese Moleküle sind wesentlich kälter als die in der Flamme befindlichen und tragen zur Absorption stärker als die heißen Moleküle bei, weil die Besetzungen ihrer Niveaus über eine kleinere Anzahl von Rotationsenergiezuständen verteilt sind. Um das Modell für HCN besser verifizieren zu können, muss der Einfluss dieser Zirkulation verhindert werden. Dies kann z.B. durch direktes Heranführen des Laserlichts an die Flamme in edelgasgefüllten Zylindern erfüllt werden [41].



Abbildung 4.30. Oben (dunkelblau): Emissionsspektrum eines  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers in einer Höhe von 35 mm über dem Brenner ohne Zugabe von NH<sub>3</sub>. Andere Graphen (dunkelrot): Normierte Transmissionsspektren der Niederdruckflamme in verschiedenen Höhen über dem Brenner. Die Partialdrücke sind wie in Abb. 4.29.



Abbildung 4.31. Absorptionssignale der HCN-Linie bei  $v = 6452,55 \text{ cm}^{-1}$  (a) und der NH<sub>3</sub>-Linie bei  $v = 6528,765 \text{ cm}^{-1}$  (b) (Quadrate, linke y-Achsen) und berechnete molare Anteile der beiden Gase (durchgezogene Linien, rechte y-Achsen) in verschiedenen Höhen über dem Brenner. Der Flamme wurde 0,68% (a) oder 1,36% (b) NH<sub>3</sub> beigemischt.

Die Empfindlichkeit der spektroskopischen Messungen kann im vorgestellten Experiment weiter erhöht werden. Die erste Möglichkeit dafür wäre die Vergrößerung des Füllfaktors des Resonators mit dem Absorber  $l/L_{Resonator}$  um eine Größenordung. Die Ausnutzung der gesamten spektralen Sättigungszeit des Lasers von etwa  $t_s = 180 \,\mu\text{s}$  würde eine Empfindlichkeitssteigerung noch um einen Faktor 20 erlauben. Dafür ist jedoch die Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses durch Beseitigung von festen spektralen Strukturen (z.B. bessere Entspiegelungen des offenen Faserendes und der Ankoppellinse) nötig. Werden alle Maßnahmen zusammen ergriffen, kann die Empfindlichkeit mindestens um einen Faktor 100 erhöht werden.

# 4.5 Zusammenfassung der Ergebnisse

Ein Spektrometer für höchstempfindliche Absorptionsmessungen im Resonator (ICAS) eines  $Er^{3+}$ -dotierten Faserlasers im Spektralbereich von 6200 cm<sup>-1</sup> bis 6550 cm<sup>-1</sup> (1,52-1,61 µm) wurde aufgebaut und erfolgreich eingesetzt. Die im Dauerstrichbetrieb erreichte spektrale Empfindlichkeit wurde zu  $L_{eff} = 54$  km bestimmt. Diese Empfindlichkeit ist um 30% höher als die mit dem Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser erzielte und übersteigt um etwa eine Größenordnung die eines Tm<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers [12, 13]. Die Erhöhung der Empfindlichkeit ist durch eine bessere Qualität der  $Er^{3+}$ -dotierten Fasern, vor allem durch kleinere Rayleigh-Streurate, bestimmt. Durch die Optimierung der Laserparameter und die Empfindlichkeit noch weiter gesteigert werden.

Durch das Einbringen einer Absorptionszelle in den externen Teil des Resonators wurde der Durchstimmbereich des Lasers mit der Er<sup>3+</sup>-dotierten Faser |20| der Länge ca. 60 cm auf den Bereich von 6400 cm<sup>-1</sup> bis 6550 cm<sup>-1</sup> beschränkt. Da dies die Einsatzmöglichkeiten von ICAS-Spektrometern in Bezug auf den Gasennachweis einschränkt, wurde nach den Ursachen dieses Verhaltens gesucht. Die experimentellen und theoretischen Untersuchungen haben gezeigt, dass die Ursache für die Reduzierung der Durchstimmbarkeit des Faserlasers an einem kleineren Verstärkungsquerschnitt der Er<sup>3+</sup>-Ionen im Bereich  $6200 - 6400 \text{ cm}^{-1}$  liegt. Wegen der mit einer Absorptionszelle zusätzlich eingeführten Verluste war der Laserbetrieb in diesem Bereich aufgrund einer begrenzten Anzahl der aktiven Ionen nicht mehr möglich. Die Erweiterung der Laseremission auf diesen Bereich wurde durch Verwendung einer höher dotierten oder einer längeren Faser erzielt. Die Absorptionsspektroskopie im Laserresonator des Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers wurde erfolgreich an Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) demonstriert. Mit dem dem Rauschen entsprechenden Absorptionssignal von  $K_{\text{Rauschen}} = 2 \cdot 10^{-3}$  können ca. 60 ppb Azetylen nachgewiesen werden. Außerdem konnten Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>) und Kohlenstoffmonoxid (CO) im Laserresonator nachgewiesen werden. Die Absorption durch die für die medizinische Untersuchung der Atemluft wichtigen Isotope <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> konnte spektral getrennt gemessen werden.

Zum ersten Mal gelang es die Absorptionsspektren von Ammoniak (NH<sub>3</sub>) und Cyanwasserstoff (HCN) in einer Niederdruckflamme im Resonator eines Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers in situ zu vermessen. Die Methode von ICAS mit Faserlasern erlaubt somit einen empfindlichen Nachweis von schmalbandiger Absorption in einer verlustreichen Umgebung einer Flamme, wo die anderen Methoden wegen zu großer Empfindlichkeitseinbußen nicht eingesetzt werden können. Die Nachweisgrenze von 400 ppb für HCN und NH<sub>3</sub> erwies sich als ausreichend für quantitative resonatorinterne Absorptionsmessungen, anhand deren Ergebnisse ein Vergleich mit den chemischen Modellen der Verbrennungsprozesse durchgeführt werden konnte.

Er<sup>3+</sup>-dotierte Faserlaser bieten damit das Potential höchstempfindliche Absorptionsmessungen an verschiedenen niedermolekularen Gasen z.B. Methan (CH<sub>4</sub>), Ammoniak (NH<sub>3</sub>), Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>), Kohlenstoffmonoxid (CO), Stickstoffmonoxid (NO), Cyanwasserstoff (HCN) im Laserresonator mit hoher Empfindlichkeit durchzuführen. Sie eignen sich aufgrund ihres kompakten Aufbaus für die Verwendung als tragbare Detektoren für den Nachweis von den wichtigsten für den Treibhauseffekt verantwortlichen Gasen. Außerdem sind die in situ Untersuchungen von Verbrennungsprozessen möglich.

# **Kapitel 5**

# Anwendung von photonischen Kristallfasern für resonatorinterne Absorptionsmessungen

Die photonischen Kristallfasern (Photonic Crystal Fiber, PCF) mit dotiertem Kern versprechen die Möglichkeit sehr kompakte und empfindliche Gasdetektoren zu bauen, wenn das zu untersuchende Gas in den Luftkanälen einer PCF lokalisiert ist. Auf dem Weg zu diesem Ziel soll im Rahmen dieser Arbeit geprüft werden, inwieweit die photonischen Kristallfasern für ICAS geeignet sind, indem sie als aktive Medien in konventionellen ICAS-Experimenten eingesetzt werden. Dazu werden 2 Faserlaser mit PCFs mit Yb<sup>3+</sup>- dotiertem Kern realisiert und die Emissionseigenschaften der beiden PCF-Laser untersucht. Anschließend wird ein Nd<sup>3+</sup>-dotierter Faserlaser mit einer passiven PCF in seinem Resonator aufgebaut und untersucht.

# 5.1 Mikrostrukturierte Fasern

Eine mikrostrukturierte Faser oder photonische Kristallfaser ist eine Glasfaser mit Lochstruktur (periodisch angeordneten Luftkanälen). Man unterscheidet zwischen einer photonischen Bandstruktur-Faser ("Photonic Bandgap Fiber", PBG-Faser) oder "Hollow-Core Fiber" und der so genannten "High-Index Core Fiber" [116] (Abb. 5.1).

Eine "Photonic Bandgap Fiber" hat in der Mitte ein im Vergleich zu anderen größeres Loch, in dem das Licht geführt wird. Eine "High-Index Core Fiber" besteht dagegen aus einem zentralen Glasstab, der von Luftkanälen umgeben ist. Dieser zentrale Bereich kann mit aktiven Ionen dotiert werden (aktive "High-Index Core Fiber"). Beide Fasertypen haben spezifische Größen, die die Lichtführungseigenschaften bestimmen: Kerndurchmesser D, Durchmesser des aktiven Kernbereichs bei einer aktiven "High Index Core Fiber"  $D_{ak}$ , Lochdurchmesser d und Lochabstand A. Alle diese Größen liegen im Bereich von einigen Mikrometern bis zu einigen zehn Mikrometern.

Das Herstellungsprinzip von PCFs ist in der Abbildung 5.2 dargestellt. Eine Packung von Glaskapillaren und Glasstäben wird in der richtigen Preform verklebt und fixiert (Abb. 5.2(a)), dann wird die Packung unter dem Temperatureinfluss zusammengeschmolzen (Abb. 5.2(b)) und schließlich unter hoher Zugspannung verzogen (Abb. 5.2(c)). Der Ofen wird dabei bis auf 2000°C erhitzt. Im rechten Teil der Abbildung 5.2 sind Fotoaufnahmen einer Glaskapillarschar in der benötigten Preform und eines Querschnitts einer unter dem Mikroskop eingespannten "High-Index Core Fiber" gezeigt.



Abbildung 5.1. Mikrostrukturierte Fasern.



Abbildung 5.2. Prinzip der Herstellung von Photonic Crystal Fibers [117].

Der Unterschied zwischen beiden Fasertypen bestimmt den Mechanismus der Lichtführung. In einer PBG-Faser kann sich das Licht in allen Materialschichten ausbreiten. Die Abbildung 5.3(a) zeigt die mikroskopische Aufnahme der geschnittenen Endfläche einer typischen PBG-Faser mit dem Kerndurchmesser D = 14,8  $\mu$ m und dem Lochabstand  $\Lambda = 4,9 \mu$ m, der Außendurchmesser der Faser beträgt 105  $\mu$ m.

Das Prinzip der Lichtführung in einer PBG-Faser ist in der Abbildung 5.3(b) dargestellt. Der Brechungsindex der Luftkanäle (somit auch der des Kernbereichs) ist kleiner als der des Materials der Faser (Glas). Das Licht wird im zentralen Kern als Ergebnis von zahlreichen Interferenzen an den Grenzflächen von Glas und Luft geführt. Für einige Wellenlängenbereiche ist die Interferenz konstruktiv und es findet die Lichtführung im Faserkern bei diesen Wellenlängen statt. Für andere Wellenlängenbereiche ist sie dagegen destruktiv – das Licht wird aus der Faser weggestreut. Das führt zur Entstehung von so genannten Wellenlängenbändern (engl.: band gaps) im Transmissionsspektrum einer solchen Faser.



Abbildung 5.3. (a) Aufnahme der geschnittenen Endfläche einer PBG-Faser in einem Rasterelektronenmikroskop. (b) Prinzip der Lichtführung in einer Photonic Bandgap Faser;  $n_1 > n_2$ . [118].

Abbildung 5.4 zeigt ein Beispiel des Transmissionsspektrums einer PBG-Faser. In die Faser wurde das weiße Licht eingekoppelt. Die gelb-grüne Verfärbung der Austrittsstrahlung (Abb. 5.4(b)) deckt sich sehr gut mit dem Transmissionsspektrum, das 3 Wellenlängendurchlassbereiche mit den zentralen Wellenlängen von ca. 450 nm, 540 nm und 842 nm aufweist (Abb. 5.4(a)). Innerhalb der Transmissionsbänder sind die Lichtverluste klein, während sie zwischen diesen Bändern sehr groß sind. Ferner ist anzumerken, dass die Transmissionsgebiete der Faser nicht spektral flach sind sondern eine zusätzliche spektrale Modulation aufweisen. Diese Tatsache hat einen erheblichen Einfluss auf die spektralen Eigenschaften der PCF-Laser, auf die in dieser Arbeit im Kapitel 5.3 ausführlich eingegangen wird.

Es wird berichtet über die nicht einmodige Lichtführung in PBG-Fasern, allerdings nur über relativ kleine Längen (einige Meter) [119]. Bei größeren Faserlängen wird das Licht fast im single-mode Betrieb geführt [119, 120].

Die Abbildung 5.5 veranschaulicht diesen Sachverhalt. In der Abbildung 5.5(a) ist eine Mikroskopaufnahme der Endfläche der verwendeten "Hollow-Core" Faser dargestellt,

die für den Wellenlängenbereich rund um 850 nm konzipiert ist. Bei der Beleuchtung der Faser von hinten mit weißem Licht erschien der Mantel (die Lochstruktur) hell, während der Kern dunkel blieb. Um die Modenzusammensetzung des geführten Lichts zu untersuchen wurde die Strahlung eines Ti-Saphir Lasers bei der Wellenlänge 848 nm in die 60 m lange Faser eingekoppelt und das Austrittsende der Faser mit Hilfe eines Mikroskops und einer Digitalkamera aufgenommen (Abb. 5.5(b)). Es ist gut zu erkennen, dass das Licht praktisch nur im Kern geführt wird. Numerische Berechnungen zeigten, dass mehr als 90% des in die Faser eingekoppelten Lichts in der zentralen Kernmode geführt werden und die Mode eine annährend Gauß-Form besitzt. Die Nahfeldaufnahmen mit der Faser bei anderen Wellenlängen des eingekoppelten Lichts ergaben auch eindeutige Hinweise auf die Lichtführung in der Grundmode.



Abbildung 5.4. (a) Transmissionsspektrum einer PBG-Faser (a.u. – arbitrary unities). (b) Mikroskopaufnahme der Faserendfläche. Länge der Faser ist ca. 5 cm. [121].



Abbildung 5.5. (a) Mikroskopaufnahme der Endfläche einer "Hollow-Core" Faser. Der Außendurchmesser der Faser beträgt 85 µm, Lochabstand  $\Lambda = 1,94 \,\mu\text{m}$ , Kerndurchmesser D = 7x6 µm<sup>2</sup>. (b) Nahfeldaufnahme der in der Faser geführten Mode, Faserlänge ist 60 m,  $\lambda = 848 \,\text{nm}$ . Die Positionen und Formen der ersten Ringe von Luftkanälen sind schematisch dargestellt. [119].

Das Anwendungsspektrum von PBG-Fasern ist heutzutage schon ziemlich breit. Sie werden z.B. beim Transport von hohen Laserleistungen sowohl im Dauerstrich- als auch im gepulsten Betrieb (Pulsdauern im Bereich von Subpikosekunden bis zu einigen Nanosekunden) eingesetzt [122]. Dies geschieht viel effektiver als bei konventionellen Fasern, da die nichtlinearen Effekte wegen der einmodigen Lichtausbreitung im Luftkern in so einer Faser stark reduziert sind. Außerdem besitzen sie höhere Zerstörschwellen [123] wegen des sehr schwachen räumlichen Überlapps zwischen der geführten Grundmode und dem Mantel der Faser.

Die Lichtführung in einer transversalen Gauß-Mode eröffnet die Möglichkeit der Atom- und Kleinteilchenführung durch den Luftkern. Dabei wird der Effekt ausgenutzt, dass das sich in der Faser ausbreitende Licht Dipolkräfte auf die zu leitenden Teilchen ausübt, was zum einen deren Anhaftung an der Wand des Faserkerns verhindert und zum anderen sie entlang der optischen Achse beschleunigt. Es wurde berichtet über den Transport von 5 µm großen Polystyrolkügelchen durch eine "Hollow-Core" Faser mit dem Kerndurchmesser von 20 µm [121]. Eine Leistung von nur 80 mW von einem Argonionenlaser bei der Wellenlänge 514 nm reichte aus um die Teilchen durch den Kern einer 150 mm langen Faser zu führen. Diese Technik wird aktuell ausgeweitet um die Atom- und Molekülführung in den "Hollow-Core" Fasern zu ermöglichen.

Wegen ihrer Transmissionseigenschaften können die PBG-Fasern zur spektralen Selektion verwendet werden. Außerdem, wenn der Faserkern mit einem Gas oder einer Flüssigkeit mit niedrigem Brechungsindex gefüllt ist, sind starke Wechselwirkungen mit dem geführten Licht möglich. Dies wurde bereits erfolgreich für die Spektroskopie eines im Luftkern lokalisierten Gases angewendet [124]. (Die Anwendung von mikrostrukturierten Fasern für spektroskopische Untersuchungen wird im Kapitel 5.2 ausführlich behandelt). Die Erzeugung von höheren Harmonischen durch eine sehr starke nichtlineare Lichtwechselwirkung mit bestimmten im Kern einer PBG-Faser lokalisierten Ionen und eine Erhöhung der Effizienz von nichtlinearen Prozessen sind auch denkbar [117].

In einer "High-Index Core Fiber" wird das Licht durch die **modifizierte interne Totalreflexion** geführt (Abb. 5.6). Wie die Bezeichnung der Faser schon ausdrückt, hat der Kern einen höheren Brechungsindex als der **effektive Brechungsindex** des aus Glas und Luftkanälen bestehenden Mantels. Das Licht breitet sich im Kern mit größerem Brechungsindex  $n_1$  aus, ist aber evaneszent im Bereich mit dem niedrigen Index  $n_2$ . Die numerische Apertur einer solchen PCF ist groß, weil der Indexunterschied zwischen Mantel und Kern größer als in einer konventionellen Faser ist. Das macht PCFs sowohl für die Anwendung in der fundamentalen Faseroptik als auch in neuen Bereichen interessant. Als Beispiel sei die Erzeugung von Superkontinuum genannt [125], das eine neue Lichtquelle für Frequenzmetrologie [126], optische Kohärenztomographie [127] und Spektroskopie [128] ist.



Abbildung 5.6. (a) Mikroskopaufnahme der Endfläche einer "High-Index Core" Faser,  $D = 12 \,\mu\text{m}$ ,  $\Lambda = 8 \,\mu\text{m}$ ,  $d = 3,7 \,\mu\text{m}$ . (b) Prinzip der Lichtführung in einer "High-Index Core" Faser. [118].

Die "High-Index Core" Fasern lassen sich in 3 Typen unterteilen, bestimmt durch die Maße der Struktur und ihre spezifischen Eigenschaften: "High Numerical Aperture" Fasern (HNA), "Large Mode Area" Fasern (LMA) und "Highly Non-Linear" Fasern (HNL) (Abb. 5.7).



Abbildung 5.7. Mikroskopaufnahmen der Endflächen von (a) "High Numerical Aperture" (HNA) Faser, (b) "Large Mode Area" (LMA) Faser, (c) "Highly Non-Linear" (HNL) Faser.

Der zentrale Teil einer HNA-Faser ist vom Ring relativ großer Löcher umgeben. Der Vorteil dieser Struktur ist ein großer Sprung im Brechungsindex zwischen dem zentralen Glasstab und dem Luftmantel, was dazu führt, dass die PCFs dieses Typs eine extrem hohe numerische Apertur besitzen. Es wird über Fasern mit NA = 0.9 berichtet [116]. Die Fasern mit hoher numerischer Apertur können das Licht innerhalb eines sehr großen Akzeptanzwinkels auffangen. Dementsprechend ist der Austrittswinkel für das geführte Licht auch groß. Mögliche Anwendungen sind z.B. Lichttransmission von Lasern mit breitem Strahldurchmesser.

LMA-Fasern besitzen relativ große Strukturmaße und einen kleinen effektiven Brechungsindexunterschied zwischen Kern und Mantel. Ein großer Vorteil von Fasern dieses Typs ist ihre transversale Einmodigkeit für fast alle Wellenlängen trotz einer groß angelegten Struktur [129]. Ein breiter "single-mode" Wellenlängenbereich lässt sich durch das Modell des effektiven Brechungsindexes des Mantels erklären: bei kürzeren Wellenlängen ist das Lichtfeld mehr im Glas konzentriert als in den Löchern, was seinerseits den effektiven Brechungsindex des Mantels erhöht [130]. Der effektive Brechungsindex des Mantels wird bei größeren Wellenlängen kleiner und der Faser-Parameter  $V = (2\pi/\lambda)a\sqrt{n_{\rm K}^2 - n_{\rm M}^2}$ bleibt somit wegen seiner reziproken Abhängigkeit von der Wellenlänge ungefähr konstant, was den "single-mode" Betrieb über einen breiten spektralen Bereich ermöglicht [130, 131]. Die Abbildung 5.8 veranschaulicht die einmodige Lichtführung in einer LMA-PCF.



Abbildung 5.8. Konturen der Nahfeldaufnahme der geführten Mode ( $\lambda = 632,8$  nm) überlagert mit der Mikroskopaufnahme der Endfläche einer LMA-PCF. Die Lichtführung erfolgt vorwiegend im Kern [131].

Die LMA-Fasern bieten die Möglichkeit zur Realisierung von Hochleistungslasern mit den Leistungen, die mit konventionellen "single-mode" Faserlasern wegen der unerwünschten intensitätsabhängigen nichtlinearen Effekten nicht zu erreichen sind. Der erste PCF-Laser mit dem Yb<sup>3+</sup>-dotierten Kern wurde im Jahre 2000 realisiert [132] (Abb. 5.9).

Der effektive Brechungsindexunterschied zwischen Kern und Mantel in der in Abb. 5.9(a) gezeigten Faser ist relativ groß und das Lichtfeld ist sehr konzentriert im Kernbereich. Das Pumplicht eines Ti-Saphir Lasers bei 970 nm wurde in den Kern der PCF eingekoppelt. Die Länge der Faser betrug 81 mm. Bei 330 mW Pumpleistung wurde eine PCF-Laserleistung von 14 mW erzielt. Abbildung 5.9(b) zeigt die Emissionsspektren des PCF-Lasers bei verschiedenen Pumpleistungen. Die Emissionsbreite wird mit wachsender Pumpleistung größer. Die Schwellpumpleistung lag bei weniger als 10 mW.



Abbildung 5.9. (a) Mikroskopaufnahme der Endfläche einer Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF.  $\Lambda = 1,2 \,\mu\text{m}$ ,  $d = 0,6 \div 0,8 \,\mu\text{m}$ ,  $D = 1,6 \,\mu\text{m}$ ,  $D_{ak} = 0,9 \,\mu\text{m}$ . (b) Emissionsspektren des Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF-Lasers bei verschiedenen Pumpleistungen: (i) 330 mW, (ii) 100 mW, (iii) 33 mW, (iv) 10 mW, (v) 3,3 mW;  $\lambda_{P} = 970 \,\text{nm}$  [132].

Die Eigenschaften der LMA-Fasern in Kombination mit einem Yb<sup>3+</sup>-dotierten Kern erlauben die Realisierung von PCF-Hochleistungslasern (s. z.B. [75, 133]). Ein kleiner Quantendeffekt von Ytterbium führt zu einer hohen Anregungseffizienz und relativ geringen thermischen Belastung, die auch durch die Geometrie der Faser verringert wird: das große Verhältnis der Faserendfläche zu der des dotierten Bereichs gewährleistet eine gute Wärmeabfuhr. Die Lichtführung über große Längen und ein großer Überlapp zwischen Pump- und Lasermode ermöglichen eine hohe Verstärkung pro Umlauf.

Es wurde berichtet über einen PCF-Hochleistungslaser mit 80 W Ausgangsleistung mit einer 2,3 m langen Yb<sup>3+</sup>-dotierten "air-clad" LMA-Faser, der transversal einmodig mit dem differentiellen Wirkungsgrad von 78% bei der Wellenlänge 1070 nm emittierte (Abb. 5.10) [75]. Die Struktur der Faser ist umgeben vom Netz der "Glasbrücken" (air-cladding), deren Dicke erheblich kleiner ist als die Wellenlänge des Laserlichts. Bei der in der Abbildung 5.10(a) dargestellten Faser beträgt diese Dicke 390 nm, gemessene NA = 0,55. Der Vorteil einer solchen "air-clad" Faser mit hoher *NA* besteht darin, dass der Durchmesser der inneren Struktur verkleinert werden kann, während die Zerstörschwelle des Materials unverändert bleibt. Die beschriebene Faser besitzt eine Pumplichtabsorption von 9,6 dB/m, was fast 5 mal höher ist als bei LMA-Fasern mit kleiner *NA* mit vergleichbarer Zerstörschwelle (ca. 2 dB/m). Die Faser wurde von beiden Enden mit 2 Laserdioden bei 976 nm gepumpt. Die Kennlinie des PCF-Lasers ist in der Abbildung 5.10(b) dargestellt. Die Schwellpumpleistung lag bei 0,75 W. Ein hoher differentieller Wirkungsgrad von 78% weist darauf hin, dass keine zusätzlichen Verluste durch die ungewöhnliche Form des aktiven Kerns und der inneren Struktur hervorgerufen werden.



Abbildung 5.10. (a) Mikroskopaufnahme der Endfläche der Yb<sup>3+</sup>-dotierten "air-clad" LMA-Faser,  $\Lambda = 11,5 \,\mu\text{m}$ ,  $d = 2 \,\mu\text{m}$ ,  $D = D_{ak} = 28 \,\mu\text{m}$ , Durchmesser der inneren Struktur ist 150  $\mu$ m, der Außendurchmesser beträgt 450  $\mu$ m. (b) Ausgangsleistung des PCF-Lasers vs. Pumpleistung [75].

Abbildung 5.11 zeigt das gemessene Strahlprofil dieses PCF-Hochleistungslasers. Der Ausgangsstrahl ist trotz der transversalen Einmodigkeit wegen der nichtrunden Form des Kerns nicht beugungsbegrenzt. Das Strahlprofil weist zwar eine Dreieckform auf, aber der zentrale Teil, wo die meiste Leistung lokalisiert ist, besitzt eine annährend Gaußsche Intensitätsverteilung.



Abbildung 5.11. Gemessene Intensitätsverteilung des emittierten Laserstrahls von der LMA-Faser aus der Abbildung 5.10(a) [75].

"Highly Non-Linear Fibers" (HNL-Fasern) besitzen einen sehr kleinen Kern (einige Mikrometer) und einen großen Luftfüllanteil in der Lochstruktur (Abb. 5.7(c)). Damit ist die Lichtmode sehr eng im Kern konzentriert, was den nichtlinearen Koeffizienten der Faser erhöht. Dementsprechend werden HNL-Fasern hauptsächlich in der nichtlinearen Optik verwendet und ein typisches Beispiel davon ist die Erzeugung vom Superkontinuum (Erzeugung eines sehr breiten Spektrums mit Verwendung einer monochromatischen Licht-

quelle). Wenn ultrakurze Hochleistungspulse so eine Faser passieren, erfährt das optische Spektrum aufgrund von nichtlinearen Effekten eine sehr starke Verbreiterung, wie dies die Abbildung 5.12 zeigt. Die Strahlung eines gepulst betriebenen Ti-Saphir Lasers bei der Wellenlänge 850 nm wurde in eine HNL-Faser eingekoppelt und das Ausgangsspektrum an einem optischen Spektralanalysator vermessen. Das erzeugte Superkontinuum ist etwa 600 nm breit und erstreckt sich vom sichtbaren bis in den nahen infraroten Bereich.



Abbildung 5.12. Ausgangsspektrum nach Durchgang einer 1 m langen HNL-Faser. Pumpen mit einem "mode-locked" Ti-Saphir Laser, Pulsdauer 200 fs, mittlere Leistung 200 mW,  $\lambda = 850$  nm, Pulswiederholrate 76 MHz, Kerndurchmesser der Faser 1,5 µm (Abbildung links unten) [125].

Das Superkontinuum ist nicht kontinuierlich, sondern besteht aus Millionen von einzelnen Frequenzen, deren Abstand der Wiederholrate des Pumplasers gleicht (Abb. 5.13) [117]. Dieser Frequenzkamm kann für sehr genaue Messungen von optischen Frequenzen benutzt werden [126].

Sowohl "Hollow-Core Fibers", als auch "High-Index Core Fibers" wurden erfolgreich für die spektroskopischen Untersuchungen angewendet. Diesem Aspekt der Anwendung von mikrostrukturierten Fasern ist das nächste Kapitel gewidmet.


Abbildung 5.13. Zusammensetzung des Superkontinuums [117].

#### 5.2 Spektroskopie mit mikrostrukturierten Fasern

Die Anwendung von PBG-Fasern für die spektroskopischen Messungen ist in [124] beschrieben. Da der größte Modenanteil des Lichts sich im zentralen hohlen Kern ausbreitet, wird ein guter Überlapp zwischen dem Lichtfeld und dem zu untersuchenden Gas gewährleistet, wenn es in den Kern eingeführt ist. Außerdem sind die PBG-Fasern wenig empfindlich auf die Biegung, was den Bau von kompakten Gasdetektoren erleichtern kann.

In [124] wurden 2 PBG-Fasern verwendet mit unterschiedlichen Transmissionsbereichen. Im Bereich von 1515 nm bis 1545 nm wurden Azetylen ( ${}^{12}C_2H_2$ ) und Cyanwasserstoff (H ${}^{13}CN$ ) und im Bereich von 1315 nm bis 1345 nm Methan (CH<sub>4</sub>), das relativ schwache Absorption aufweist, nachgewiesen. In der Abbildung 5.14 sind die Querschnitte der beiden Fasern dargestellt.



Abbildung 5.14. Mikroskopaufnahmen der Endflächen der (a) PBG1300 und (b) PBG1500 [124].

Die Fasern sind entsprechend ihren Transmissionsbereichen (1300 nm und 1500 nm) als PBG1300 und PBG1500 bezeichnet. Kerndurchmesser betragen 11,6  $\mu$ m bei PBG1300 und 10  $\mu$ m bei PBG1500. Die Transmissionsspektren der Fasern sind in der Abbildung 5.15 gezeigt. Die Wellenlängenbereiche, in denen die Lichtführung erfolgt, decken ungefähr 1240-1460 nm für PBG1300 und 1400-1600 nm für PBG1500 ab.



Abbildung 5.15. Transmissionsspektren von (a) 2 m langer PBG1300 und (b) 3 m langer PBG1500 [124].

Der experimentelle Aufbau, mit dem die Fasern befüllt und anschließend die spektroskopischen Messungen gemacht wurden ist in der Abbildung 5.16 präsentiert. Das Licht von der Quelle (durchstimmbarer Laser oder eine Leuchtdiode (LED)) wurde in eine konventionelle "single-mode" Faser eingekoppelt, die am anderen Ende mit der PBG-Faser gespleißt war. Das zweite Ende der PBG-Faser befand sich in der Vakuumkammer, in die die benötigte Menge vom zu untersuchenden Gas eingeführt wurde. Nach Durchgang der PBG-Faser wurde das Licht in eine "multi-mode" Faser eingekoppelt, an deren Ausgang es in Abhängigkeit von der Wellenlänge aufgenommen wurde.



Abbildung 5.16. Experimenteller Aufbau für Gasdetektion [124].

Mit Hilfe dieses experimentellen Aufbaus wurde die 1 m lange PBG1500 mit Azetylen befüllt und dessen Absorptionsspektrum aufgenommen (Abb. 5.17). Dabei wurde ein durchstimmbarer Laser mit dem Wellenlängenschritt von 1 pm verwendet. Das Signal-Rausch-Verhältnis war mehr als 20 dB. Die gut erkennbaren starken Absorptionslinien weisen auf ein hohes Potential der Anwendung von PBG-Fasern für hochempfindlichen Nachweis von Gasen hin.



Abbildung 5.17. Absorptionsspektrum des P-Zweigs des  $(v_1 + v_3)$ -Übergangs von <sup>12</sup>C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> bei 10 mbar Druck in der 1 m langen PBG1500 [124].

Die Absorption von Cyanwasserstoff (HCN) wurde in diesem Experiment auch untersucht. Zu diesem Zweck wurde die 1 m lange Faser PBG1500 mit dem Isotop H<sup>13</sup>CN bis zum Druck von ca. 50 mbar befüllt. Als Quelle wurde dabei die LED und als Detektor ein optischer Spektralanalysator mit der Auflösung 0,1 nm verwendet. Abbildung 5.18 zeigt die Absorption des R-Zweigs des  $2v_3$ -Übergangs von H<sup>13</sup>CN. Das Spektrum weist etwa 25 starke Linien auf, die durch die Schwingungsrotationsübergänge im Bereich 1525-1545 nm (6472 – 6557 cm<sup>-1</sup>) verursacht werden. Das Auflösungsvermögen des OSA ist begrenzt, weshalb die Linien breiter erscheinen als im Azetylenspektrum (Abb. 5.17).



Abbildung 5.18. Absorptionsspektrum von H<sup>13</sup>CN bei 50 mbar in der 1 m langen PBG1500 [124].

Methan (CH<sub>4</sub>) wurde in der 10 m langen Faser PBG1300 beim Druck von 630 mbar mit dem gleichen Aufbau nachgewiesen (Abb. 5.19). Die Methanabsorption ist viel schwä-

cher als die des Cyanwasserstoffs, deswegen mussten die Messungen in einer längeren Faser und bei einem höheren Druck durchgeführt werden. Trotzdem sind die Linien gut erkennbar, besonders stark tritt die Linie in der Nähe von 1332 nm hervor. Somit wurde gezeigt, dass der Nachweis schwach absorbierender Substanzen mit der beschriebenen Methode auch möglich ist.



Abbildung 5.19. Absorptionsspektrum von CH<sub>4</sub> bei 630 mbar in der 10 m langen PBG1300 [124].

Für einen optimalen Nachweis von Gasen in PBG-Fasern muss die Länge der Faser angepasst werden. Die Faser muss möglichst kurz sein aber lang genug, damit das Absorptionssignal messbar ist. Bei Gasen mit schwacher Absorption oder in kleinen Konzentrationen kann eine längere Faser verwendet werden um die Empfindlichkeit zu steigern. Allerdings steigt dabei die Lichtabschwächung durch die Verluste in der Faser. Im Allgemeinen ist die Empfindlichkeit auf die Absorption im beschriebenen Experiment durch die Verluste und Hintergrundrauschen in der Faser begrenzt. Die Vorteile der Methode liegen im Wesentlichen darin, dass nur eine relativ kleine Menge des zu untersuchenden Gases mit Hilfe eines kompakten Detektors nachgewiesen werden kann.

"High-Index Core" Fasern bieten einige Vorteile gegenüber den "Hollow-Core" Fasern für den optischen Nachweis von in ihren Luftkanälen lokalisierten Substanzen. Der Transmissionsbereich einer PBG-Faser ist sehr empfindlich auf den Brechungsindex des in ihren Löchern lokalisierten Stoffs. Bei jeder Änderung der Probekonzentration wandert somit das Transmissionsfenster der Faser, was in manchen Fällen dazu führen kann, dass es nicht mehr mit dem interessierenden Spektralbereich übereinstimmt. Das erschwert oder begrenzt die Spektralanalyse in "Hollow-Core" Fasern.

In [134] wird vorgeschlagen eine "High-Index Core" Faser für die Spektroskopie im evaneszenten Feld der Luftkanäle zu verwenden. Die verwendete PCF ist in der Abbildung 5.20 dargestellt. Die transversale Komponente des Modenfeldes hat einen guten Überlapp mit der Mantelstruktur, was die Berechnung des Modenfeldes für diese Struktur bestätigt (Abb. 5.20, links oben). Der evaneszente Anteil des Gesamtfeldes beträgt ca. 3,3%, wenn die Luftkanäle mit Wasser befüllt sind (Abb. 5.20, links unten).



Abbildung 5.20. Mikroskopaufnahme der Endfläche einer "High-Index Core" Faser, die für den Nachweis von wasserlöslichem Porphyrin im evaneszenten Feld verwendet wurde. Kerndurchmesser  $D = 2,4 \,\mu\text{m}$ ,  $\Lambda \sim 1,41 \,\mu\text{m}$ ,  $d \sim 0,8 \,\mu\text{m}$ . Oben links: berechnete Modenfeldverteilung, unten links: evaneszentes Feld in den Löchern der Faser entspricht 3,3% der gesamten eingekoppelten Lichtleistung bei  $\lambda = 460 \,\text{nm}$  unter der Bedingung, dass alle Luftkanäle mit reinem Wasser befüllt sind [134].

Für die Messungen wurde das Porphyrin in verschiedenen Konzentrationen im destillierten Wasser gelöst und anschließend in gleich lange (22 cm) Fasern durch den Kapillareffekt eingebracht. Das weiße Licht wurde in die Faser eingekoppelt und das Spektrum wurde mit dem optischen Spektralanalysator am Ausgang der Faser gemessen. Bei allen Messungen wurden die für Porphyrin charakteristischen *B*- und *Q*-Absorptionsbänder beobachtet (Abb. 5.21). Das *B*-Band ist bei den Konzentrationen 4,38 · 10<sup>-5</sup> M und 8,77 · 10<sup>-5</sup> M deutlich zu erkennen, während das *Q*-Band wegen des kleineren Absorptionskoeffizienten nicht so auffällig ist. Die Lösung bei 1,75 · 10<sup>-4</sup> M ergibt eine sehr starke Absorption im *B*-Band, das Signal wird dann gesättigt. Proportional tritt die Absorption des *Q*-Bands viel ausgeprägter hervor. Aufgrund von diesen Ergebnissen kann darauf geschlossen werden, dass der im Vergleich zu den konventionellen Experimenten reduzierte Überlapp zwischen dem Lichtfeld und dem absorbierenden Stoff durch die große Absorptionsweglänge in der Faser ausgeglichen wird und dass die "High-Index-Core" PCFs für die spektroskopischen Untersuchungen von Lösungen verwendet werden können, deren Konzentrationen für den konventionellen Nachweis zu klein sind.



Abbildung 5.21. Transmissionsspektrum nach Durchgang der Faser für reine Faser (Luft in den Luftkanälen), destilliertes Wasser und 3 verschiedene Konzentrationen der Porphyrinlösung in den Luftkanälen der Faser [134].

Ein Versuch sowohl die hohe Nichtlinearität einer mikrostrukturierten "High-Index Core" Faser, als auch die Lokalisierung der absorbierenden Substanz in ihren Luftkanälen auszunutzen wurde von Ritari et. all unternommen [128]. Eine HNL-Faser, deren Löcher mit Azetylen befüllt waren, wurde mit einem gepulst betriebenen Nd:YAG Laser ( $\lambda = 1064$  nm, Pulsdauer ca. 3 ns, Wiederholrate 30 kHz, mittlere Laserleistung ca. 120 mW) gepumpt, wodurch ein Superkontinuum erzeugt wurde, das Absorptionslinien bei spezifischen Wellenlängen von C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> aufwies. Das Ausgangsspektrum wurde mit einem optischen Spektralanalysator aufgenommen. Der experimentelle Aufbau ist in der Abbildung 5.22 präsentiert.

Die beiden im Experiment benutzten Fasern sind in der Abbildung 5.23 gezeigt. Im Spektralbereich um 1530 nm besitzt Azetylen starke Absorptionslinien. Die Berechnungen bei dieser Wellenlänge ergaben, dass 4,5% bei der Faser MF-2.0 und 1,8% bei der Faser MF-3.2 von der Modenleistung in den Luftkanälen konzentriert ist. Dementsprechend ist der Überlapp zwischen der geführten Mode und der absorbierenden Substanz größer in der Faser mit dem kleineren Kern, was zu einer stärkeren Absorption führt. Die Stärke der Absorptionslinien ist allerdings ein Ausgleich zwischen dem Überlapp und der Erzeugung vom Superkontinuum. Idealerweise muss die Faser so gewählt werden, dass die Kontinuumserzeugung im möglichst kurzen Anfangsstück der Faser stattfindet, damit die Länge der Wechselwirkung zwischen seinen Frequenzkomponenten und dem Gas vergrößert wird.



Abbildung 5.22. Experimenteller Aufbau zum Nachweis von in den Luftkanälen einer HNL-Faser lokalisierten Gasmolekülen durch Erzeugung vom Superkontinuum. SMF: "single-mode" Faser, MMF: "multi-mode" Faser, OSA: optischer Spektralanalysator [128].



Abbildung 5.23. Querschnitte der verwendeten HNL-Fasern. MF-2.0: Kerndurchmesser D = 2  $\mu$ m,  $\Lambda$  = 1,4  $\mu$ m, d = 0,91  $\mu$ m; MF-3.2: Kerndurchmesser D = 3,2  $\mu$ m,  $\Lambda$  = 2,1  $\mu$ m, d = 0,94  $\mu$ m [128].

Das in der Faser MF-2.0 erzeugte Superkontinuum ist in Abbildung 5.24(a) dargestellt mit und ohne (rechts unten) Azetylen. Das Spektrum erstreckt sich von 1  $\mu$ m bis etwa 1,7  $\mu$ m. Die Aufnahmen wurden mit der Auflösung 10 nm gemacht. Deutlich erkennbar sind 2 Kerben im in der Faser MF-2.0 erzeugten Superkontinuum. Die erste nah 1390 nm stammt von der Wasserabsorption und die zweite (bei 1530 nm) durch die C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>-Absorption. Die Form des in der Faser MF-3.2 erzeugten Superkontinuums ist dem Spektrum von MF-2.0 sehr ähnlich (Abb. 5.24(b)), allerdings ist im Bereich um 1530 nm keine Vertiefung zu sehen, weil die Absorptionslinien wegen des kleineren nichtlinearen Koeffizienten der Faser und schlechteren Überlapps zwischen dem Modenfeld und den Löchern viel schwächer sind.

Falls das Absorptionsspektrum mit einer höheren Auflösung von 0,1 nm nur im Absorptionsbereich von  ${}^{12}C_{2}H_{2}$  aufgenommen wird, wird die Feinstruktur seiner *R*- und *P*-Zweige aufgelöst (Abb. 5.25). Das hochaufgelöste Spektrum von der Faser MF-3.2 weist auch die Absorptionslinien auf (Abb. 5.25(b)), die aber tatsächlich wesentlich schwächer sind als bei der Verwendung der Faser MF-2.0 (Abb. X5.25(a)).



Abbildung 5.24. Superkontinuum, das in (a) MF-2.0 und (b) MF-3.2 mit Azetylen in den Löchern erzeugt wurde. Einsschub rechts unten in (a) präsentiert das Superkontinuum in MF-2.0 ohne  $C_2H_2$ . Längen der Fasern: MF-2.0 – 15 m, MF-3.2 – 19 m; Azetylendruck: 1,26 bar [128].



Abbildung 5.25. Hochaufgelöste Spektren der *R*- und *P*-Zweige des  $(v_1 + v_3)$ -Übergangs von Azetylen bei 1,26 bar in (a) MF-2.0 und (b) MF-3.2 [128].

Einen anderen Typ von mikrostrukturierten Fasern stellen so genannte "Random-Hole Optical Fibers" (RHOF) dar (Abb. 5.26). Die RHO-Fasern bestehen aus einem zentralen Kern und tausenden von Löchern, die zufällig rund um den Kern verteilt sind und zufällige Durchmesser und Längen besitzen. Diese Fasern haben eine viel größere Anzahl von Löchern als die oben beschriebenen PCFs mit angeordnet verteilten Luftkanälen und eignen sich auch für den spektroskopischen Nachweis von Gasen [15]. Der Wechselwirkungsgrad zwischen dem sich in der Faser ausbreitenden Lichtfeld und der absorbierenden Substanz kann größer sein als in einer PCF, da die effektive Fläche der Kanäle größer ist. Genauso wie im Falle einer "High-Index-Core" Faser, wechselwirken die evaneszenten Anteile des Modenfeldes mit den in den Löchern lokalisierten Gasmolekülen, was sich in der Abschwächung des Lichtes bei den für ein konkretes Gas spezifischen Wellenlängen wiederspiegelt.



Abbildung 5.26. RHOF: (a) Querschnitt, (b) Schematische Darstellung [15].

Um die Verwendbarkeit von RHO-Fasern bei der Gasdetektion zu prüfen wurde das in Abb. 5.27 schematisch gezeigte Experiment durchgeführt. Eine RHO-Faser der Länge 25 cm wurde in einer Vakuumkammer untergebracht und an deren beiden Enden mit konventionellen "single-mode" Fasern verbunden. Die Kammer wurde abgepumpt und das Probegas (Azetylen) wurde zugeführt. Azetylen drang in die Löcher mittels Diffusion vor. Der Laser (als "Tunable laser" in der Abbildung 5.27 bezeichnet) wurde von 1520 nm bis 1570 nm ( $6370 - 6579 \text{ cm}^{-1}$ ) mit dem Schritt 2,5 pm durchgestimmt und die Lichtabschwächung wurde in Abhängigkeit von der Wellenlänge am Ausgang der Kammer gemessen.

Das Ergebnis dieser Messung ist in der Abbildung 5.28 präsentiert. Abbildung 5.28(a) zeigt das Transmissionsspektrum der RHO-Faser ohne das absorbierende Gas, 5.28(b) – mit Azetylen und 5.28(c) – das normierte Absorptionsspektrum des Azetylen: Transmissionsspektrum mit  $C_2H_2$  geteilt durch das Transmissionsspektrum der Faser ohne Gas. Der Azetylendruck betrug 1,38 bar. Die Absorptionslinien von Azetylen sind deutlich zu erkennen, womit klargestellt wird, dass auch diese Art von Fasern für empfindliche Spektroskopie im evaneszenten Feld geeignet ist.



Abbildung 5.27. Schematischer experimenteller Aufbau eines RHOF-Gasdetektors [15].



Abbildung 5.28. Spektren nach Durchgang einer 25 cm langen RHO-Faser: (a) Hintergrundspektrum ohne Azetylen, (b) Absorptionsspektrum des in den Löchern lokalisierten Azetylen, (c) normiertes Absorptionsspektrum des Azetylen,  $P_{C,H_2} = 1,38$  bar [15].

Mikrostrukturierte Fasern stellen ein neues bequemes Instrument für die spektroskopischen Untersuchungen dar. Die Luftkanäle einer Faser dienen als Absorptionszellen der mikroskopischen Größe, so dass oft nur eine geringe Menge der absorbierenden Substanz (Gas oder Flüssigkeit) für den Nachweis ausreichend ist. Die Absorptionsweglänge kann mehrere zehn Meter betragen und ist auf einen Einfachdurchgang durch die Faser begrenzt. Eine Erhöhung der Absorptionsweglänge kann durch Vereinigung des Lasers und Detektors in einem Gerät möglich sein. Dieser Versuch wurde im Rahmen dieser Arbeit unternommen.

# **5.3** Yb<sup>3+</sup>-dotierte "Photonic Crystal Fiber" Laser mit Absorption im Resonator

Die spektrale Empfindlichkeit kann bei Absorptionsmessungen im Resonator eines Lasers mit einer dotierten PCF im Vergleich zu den oben beschriebenen Experimenten mit Einwegabsorption in PCFs prinzipiell um das Vielfache erhöht werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde geprüft, inwieweit dotierte PCFs für resonatorinterne Absorptionsmessungen geeignet sind. Der schematische Aufbau eines kompakten Vielmoden-Lasers mit einer "High Index Core" PCF für ICAS ist in der Abbildung 5.29 dargestellt. Die Strahlung des Pumplasers wird mit Hilfe des Linsensystems in den dotierten Kern der Faser eingekoppelt. Die beiden Spiegel S1 und S2 werden direkt auf die Faserendflächen aufgebracht. Der Einkoppelspiegel S1 ist hochreflektierend für das Laserlicht und transparent für das Pumplicht. In den Luftkanälen wird eine Probe lokalisiert, mit der die evaneszenten Anteile des Modenfeldes wechselwirken, was zur Abschwächung des Lichtes bei den für die absorbierende Substanz spezifischen Wellenlängen führt und somit deren spektroskopischen Nachweis ermöglicht.



Abbildung 5.29. Schematischer Aufbau eines ICAS-Spektrometers mit einer "High Index Core" PCF als aktives Medium und die Probezelle.

In den Experimenten wurden zwei Laser mit unterschiedlichen Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCFs aufgebaut und untersucht. Die Parameter der ersten PCF |36| (in der weiteren Darlegung als 1a bezeichnet) sind:  $D = 14 \ \mu m$ ,  $D_{ak} = 10 \ \mu m$ ,  $d = 6 \ \mu m$ ,  $\Lambda = 12,5 \ \mu m$ , die der zweiten PCF |37| (1b):  $D = 25 \ \mu m$ ,  $D_{ak} = 9,2 \ \mu m$ ,  $d = 2,7 \ \mu m$ ,  $\Lambda = 15 \ \mu m$ . Die Fasern sind mit einem Kunststoffmantel (Schutzhülle) überzogen, der sich nur in der konzentrierten Schwefelsäure auflösen ließ. Ferner musste darauf geachtet werden, dass die Flüssigkeit nicht in die Luftkanäle durch die Kapillarkräfte eingezogen wird. Nach Abziehen der Schutzhülle wurde die Faser mit einem Faserschneidegerät |2| gerade geschnitten und anschließend in die Glaskapillare so eingeklebt, dass die geschnittenen Faserendflächen vom Kleber unberührt blieben. Das Polieren der eingeklebten PCFs ist wegen ihrer spezifischen

Mantelstruktur ausgeschlossen. Eine der auf diese Weise präparierten Faserenden wurde dann im Vakuum mit dielektrischen Schichten verspiegelt. Ähnlich wie bei dem Nd<sup>3+</sup>dotierten Faserlaser aus Kap. 3 besteht der Einkoppelspiegel eines Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF-Lasers aus 19 alternierenden MgF<sub>2</sub> und ZnS Schichten. Die Schichtfolge ist in Tabelle 5.1 aufgeführt, der theoretische und der gemessene Reflexionsverlauf sind in Abb. 5.30 gezeigt. In dem Pumpwellenlängenbereich von 850 bis ca. 900 nm bleibt die Reflektivität des Spiegels unter 10%, dann steigt sie merklich an. In dem Maximum der Yb-Absorption bei  $\lambda_p \approx 975$  nm beträgt sie etwa 30%. In dem Emissionsbereich des Yb<sup>3+</sup>-Ions (oberhalb von 1020 nm) ist der Spiegel hochreflektierend.

Nr.	Glas							Luft
oder	( <i>n</i> = 1,5)	1 – 2	3 – 4	5 - 14	15 – 16	17 - 18	19	( <i>n</i> = 1)
Bez.								
Dicke (nm)	_	350	300	290	300	310	155	_

Tabelle 5.1. Dielektrisches Schichtsystem zur Verspiegelung der Einkoppelseite von  $Yb^{3+}$ dotierten PCF-Lasern. Die ungeraden Schichtnummern entsprechen MgF<sub>2</sub> und die geraden ZnS.



Abbildung 5.30. Theoretischer und gemessener Reflexionsverlauf des aufgedampften dielektrischen Schichtsystems.

Abbildung 5.31 zeigt den unbedampften und den verspiegelten Querschnitt der Endfläche der Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF 1a. Die Faser wurde im Mikroskop Olympus |38| eingespannt und die Aufnahmen wurden in 1000-facher Vergrößerung mit einer Digitalkamera

gemacht. Die schwarzen Öffnungen im Bild mit der unverspiegelten Faserendfläche sind die Luftkanäle der PCF. Sie sind so angeordnet, dass die Mantelstruktur der Faser eine Zylindersymmetrie aufweist. An der bedampften Endfläche kann man erkennen, dass die Schichtmaterialien bei der Bedampfung in die Luftkanäle eindringen.



Abbildung 5.31. Querschnitte der beiden Endflächen der Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF 1a: D = 14  $\mu$ m, D<sub>ak</sub> = 10  $\mu$ m,  $\Lambda$  = 12,5  $\mu$ m, d = 6  $\mu$ m.

Die Untersuchungen mit Yb<sup>3+</sup>-dotietren PCF-Lasern mit atmosphärischer Absorption im Resonator wurden mit dem experimentellen Aufbau durchgeführt, der schematisch in der Abbildung 5.32 gezeigt ist. Abwechselnd wurden die beiden Yb<sup>3+</sup>-dotietren PCFs 1a und 1b verwendet. Der Spiegel S1 ist der aufgedampfte Einkoppelspiegel und S2 ist der externe Auskoppelspiegel ( $T(S2) \approx 3\%$ ). Als Pumpquelle wurde in diesem Fall ein Ti-Saphir Laser benutzt. Da die beiden Fasern ursprünglich für Mantelpumpen konzipiert waren, musste darauf geachtet werden, dass das Pumplicht in den Kern einkoppelt wird. Nur dann konnte der Laserbetrieb mit einer moderaten Pumpleistung von etwa ein bis wenigen hundert mW erzielt werden. Beim Betrieb mit Mantelpumpen ist eine sehr große Faserlänge erforderlich. Das austretende Fluoreszenzlicht der Faser wurde von der resonatorinternen Linse L2 (|7|: Schott Hoya, A136, f = 15 mm, NA = 0,3, entspiegelt für  $\lambda = 1050 \div 1150$  nm ) auf dem Spiegel S2 fokussiert und zurückreflektiert. Das ausgekoppelte Laserlicht wurde spektral analysiert.



Abbildung 5.32. Aufbau eines PCF-Lasers mit Luftabsorption im Resonator.

Abbildung 5.33 zeigt den Absorptionsquerschnitt des Yb<sup>3+</sup>-Ions in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Dieses Absorptionsspektrum ist ziemlich breit, die Pumpwellenlängen können von 850 nm bis 1000 nm (gestrichelter Bereich) variiert werden. Die maximale Pumpeffizienz ist bei  $\lambda_{\rm P} \approx 976$  nm zu erwarten.



Abbildung 5.33. Absorptionsspektrum von Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCFs [135]. Bei einigen in dem gestichelten Bereich liegenden Wellenlängen wurde der TiSa-Pumplaser betrieben.

In Abb. 5.34 ist die Kennlinie der Ausgangsleistung des Lasers mit der PCF 1a gezeigt. Die Länge der Faser betrug  $L_{PCF} = 44$  cm, die des externen Resonatorteils  $L_{extern} = 47$  cm. Die maximale Ausgangsleistung war ca. 4 mW. Die Schwellpumpleistung des PCF-Lasers lag bei ca. 90 mW bei der Pumpwellenlänge  $\lambda_p = 908$  nm. Der Verstärkungskoeffizient *B* ergibt sich aus der Steigung der Kennlinie und Gl. (3.1) zu  $B = 5,6 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ , wobei für die Zerfallsrate des oberen Laserniveaus *A* der Literaturwert von  $A = 1000 \text{ s}^{-1}$  (oder für die Lebensdauer  $\tau = 1/A = 1 \text{ ms}$ ) [136] verwendet wurde.

Die Resonatorverlustrate  $\gamma$  wurde wie in Kap. 3 beschrieben aus den Frequenzen der bei verschiedenen Pumpraten  $\eta = P/P_{thr}$  gemessenen Relaxationsschwingungen mit Verwendung der Gl. (3.3) berechnet. Abbildung 5.35 zeigt die Abhängigkeit des Quadrates der Kreisfrequenz der Hauptrelaxation vom Pumpüberschuss. Die Verlustrate  $\gamma$  für den Laser mit der ersten Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF 1a errechnet sich demnach zu  $\gamma = 2,1 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$  oder 80% pro Umlauf. Ein Großteil der Verluste ist durch die Lichtführungseigenschaften der beiden verwendeten Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCFs bedingt. Bei einer leichten Biegung wurde das Licht nicht mehr im Kern geführt, was zum kompletten Zusammenbruch des Laserprozesses führte. Auch bei einer gerade gestreckten Faser breitete sich ein erheblicher Teil des Pumplichts im Mantel aus und stand damit für die effiziente Anregung von aktiven Ionen nicht zur Verfügung.



Abbildung 5.34. Ausgangsleistung vs. Pumpleistung für den Laser mit der PCF 1a. Pumpquelle: Ti-Saphir Laser,  $\lambda_{\rm P} = 908$  nm,  $L_{\rm PCF} = 44$  cm,  $L_{\rm extern} = 47$  cm.



Abbildung 5.35. Quadrat der Hauptrelaxationskreisfrequenz  $(2\pi\nu_0)^2$  vs. Pumpüberschuss  $\eta - 1$  für den Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF-Laser mit der PCF 1a aus Abb. 5.34.

Die Laserspektren wurden mit zwei Gitterspektrographen aufgenommen: Ocean Optics mit der Auflösung 1 nm |22| oder Jarrel Ash mit der Auflösung 0,02 nm |10|. Abbildung 5.36 zeigt Emissionsspektren des Lasers mit PCF 1a bei verschiedenen Pumpraten  $\eta$ . Die Spektren bestehen aus einzelnen schmalen und periodischen Emissionsbändern. Die untere Graphik in der Abbildung zeigt ein mit hoher Auflösung aufgenommenes Spektrum des zentralen Maximums bei 1035 nm. Die Breite des Bandes beträgt etwa 0,2 nm. Mit der Erhöhung der Pumprate wird zuerst das zentrale Emissionsband größer, nachher treten auch die Seitenbänder stärker hervor.



Abbildung 5.36. Oben: die mit der spektralen Auflösung von 1 nm aufgenommenen Emissionsspektren des Lasers mit der Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF 1a bei verschiedenen Pumpparametern  $\eta$ . Unten: hochaufgelöstes Spektrum des Emissionsbandes bei 1035 nm.

Die Aufnahmen der Spektren hinter einem Polarisator haben ergeben, dass die einzelnen Emissionsbänder abwechselnde Polarisation besitzen, wie es in der Abbildung 5.37 gezeigt ist (hochaufgelöste Spektren). Zwei benachbarte Bänder sind unterschiedlich polarisiert, das dritte aber befindet sich im gleichen Polarisationszustand wie das erste. Der spektrale Abstand zwischen den Bändern einer Polarisation beträgt ca. 98 cm<sup>-1</sup> ( $\Delta v \approx 98$  cm<sup>-1</sup>). Das entspricht einem Etalon mit dem Flächenabstand  $L_{\rm Et}$  von ca. 34 µm:

$$\Delta v = \frac{1}{2L_{\rm Et}n} \approx 98 \,\,{\rm cm}^{-1},\tag{5.1}$$

wobei *n* der Brechungsindex des Etalons ist und es wurde angenommen, dass n = 1,5. Damit weist dieses Ergebnis auf die Interferenz der an den Luftkanälen der Faser reflektierten transversalen Komponenten des Lichtfeldes hin. Der Abstand zwischen dem innersten und dem äußersten Loch der Mantelstruktur beträgt ca. 34 µm (s. Abb. 5.31) und stimmt somit mit dem erwarteten Etalonabstand überein. Das Spektrum des PCF-Lasers reagiert sehr empfindlich auf diese Interferenz, genauso wie auf die schmalbandige resonatorinterne Absorption. Das führt zur Emission in nur schmalen spektral periodischen Bändern.



Abbildung 5.37. Spektren des Lasers mit der Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF 1a in der Gesamtemission (oberes Diagramm) und in einzelnen Polarisationszuständen (hinter Polarisator, zwei untere Diagramme).

Die Emissionsdynamik des Lasers mit der PCF 1a wurde im Dauerstrichbetrieb untersucht. Dafür wurden mit dem Oszilloskop Lecroy |18| 500 ms lange Zeitserien der Intensitäten einzelner spektraler Komponenten (Emissionsbänder) am Ausgang des Spektrographen [10] im Monochromatorbetrieb und der Gesamtintensität mit 5 µs Auflösung nacheinander aufgenommen und daraus die Fourierspektren berechnet. Abbildung 5.38 zeigt diese Leistungsspektren. Wie auch zu erwarten war, ist das Maximum bei der Hauptrelaxationsfrequenz  $v_0$  (ca. 35 kHz) in allen Leistungsspektren vorhanden: alle Komponenten schwingen bei dieser Frequenz in Phase. Der Beitrag der gegenphasigen Oszillation bei der Frequenz  $v_q \approx 20$  kHz taucht in den Leistungsspektren der Emissionsbänder mit den Wellenlängen  $\lambda_1 \approx 1034,6$  nm und  $\lambda_3 \approx 1045,1$  nm auf, die die gleiche Polarisation besitzen und um gemeinsame Inversionsbereiche konkurrieren. Zudem koppeln sie zu einer Polarisationsmode, was zur gegenphasigen Oszillation mit der anders polarisierten Emissionskomponente mit  $\lambda_2 \approx 1040,0$  nm bei der Frequenz  $v_{Pol} \approx 13$  kHz führt. Einen dieser Frequenz entsprechenden Beitrag weisen alle Leistungsspektren der Einzelbänder auf. Bemerkenswert ist es, dass im Gegensatz zu den in Abb. 3.26 gezeigten Leistungsspektren hier  $v_q > v_0$  gilt. D.h. die spektralen Komponenten einer Polarisation aber unterschiedlicher Frequenz sind stärker entkoppelt, als die Polarisationsmoden. Mögliche Ursache hierfür ist ein relativ großer spektraler Abstand von ca. 98 cm<sup>-1</sup> und somit eine erhöhte Entkopplung der Emissionsbänder durch spektrale Inhomogenität. Außerdem tritt das Maximum bei der Frequenz  $v_{Pol}$  für das Emissionsband 2 (mittleres spektrales Maximum in der Abb. 5.37) etwa 8 mal stärker hervor als für Komponenten 1 und 3. Die in dem Leistungsspektrum der Gesamtintensität vorhandenen den beiden gegenphasigen Schwingungen entsprechenden Beiträge sind auf eine unvollständige Kompensation dieser Teile zurückzuführen. Sie sind allerdings etwa 100 mal schwächer als der Beitrag der Hauptrelaxationsoszillation.



Abbildung 5.38. Leistungsspektren der Gesamtemission (oben) und der einzelnen Emissionsbänder (drei untere Diagramme) des Lasers mit der PCF 1a.

Es ist zu prüfen, ob und inwieweit sich der PCF-Laser durch Variation der Pumpwellenlänge durchstimmen lässt. Dafür wurde der Ti-Saphir Pumplaser im Bereich von 870 nm bis 970 nm durchgestimmt. Abbildung 5.39 zeigt die entsprechenden Ausgangsspektren des Lasers mit PCF 1a, die mit der Auflösung 1 nm aufgenommen wurden. Das durchgelassene Pumplicht wurde nicht herausgefiltert, sondern nur abgeschwächt. Somit ist sein Spektrum im linken Teil der Abb. 5.39 auch zu sehen. Aufgrund von unterschiedlicher Besetzungsverteilung und der Temperaturänderung im Glasmaterial bei verschiedenen Pumpwellenlängen konnte das Emissionsspektrum des PCF-Lasers in der Tat verändert werden. Eine systematische Entwicklung bezüglich der Durchstimmrichtung konnte dabei aber nicht beobachtet werden. Der Laser konnte nur auf 3 Wellenlängen – 1023,5 nm, 1034,1 nm, und 1044,7 nm – emittieren. Bei einer Pumpwellenlänge wurden allerdings maximal nur 2 Emissionsbänder angeregt. Diese Kanalisierung des Laserspektrums ist die Folge der oben beschriebenen spektralen Selektion durch das von der Mantelstruktur der Faser gebildete Etalon.



Abbildung 5.39. Emissionsspektren des Lasers mit der PCF 1a bei verschiedenen Pumpwellenlängen.

Die Effizienz des Laserprozesses ist stark von der Wellenlänge des Pumplasers abhängig, wie es die Abbildung 5.40 zeigt. Die höchste Ausgangsleistung des Lasers mit der PCF 1a wurde bei der Pumpwellenlänge  $\lambda_p = 920$  nm erreicht, sie lag bei ca. 4,4 mW (Abb. 5.40(a)). Die Leistung des verwendeten TiSa-Lasers sinkt allerdings mit der Wellenlänge (Abb. 5.40(b)). Deswegen ist es sinnvoll die Pumpeffizienz, d.h. das Verhältnis der Ausgangsleistung des PCF-Lasers zur Pumpleistung, gegen die Pumpwellenlänge aufzutragen (Abb. 5.40(c)). Dabei wurde die in der Abb. 5.40(b) als durchgezogen eingezeichnete Spline-Kurve über die gemessenen Punkte benutzt. Am effizientesten oszilliert der PCF-Laser bei  $\lambda_p \approx 976$  nm, wo Ytterbium das Maximum der Absorption besitzt. Die Form der Pumpeffizienz spiegelt das Absorptionsspektrum in der Abbildung 5.33 gut wider.



Abbildung 5.40. (a) absolute Ausgangsleistung des Lasers mit der PCF 1a vs. Pumpwellenlänge; (b) Ausgangsleistung des TiSa-Pumplasers vs. Emissionswellenlänge; (c) die auf die Pumpleistung normierte Ausgangsleistung des PCF-Lasers vs. Pumpwellenlänge. Der TiSa-Pumplaser wurde mit der konstanten Leistung gepumpt.

Um den Einfluss der Mantelstruktur auf das Emissionsspektrum zu untersuchen wurde noch ein zweiter Laser mit der Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCF 1b (|37|) aufgebaut. Die Länge dieser Faser betrug  $L_{PCF} = 82,5$  cm, die des externen Resonatorteils  $L_{extern} = 94$  cm. Abbildung 5.41 zeigt die beiden Endflächen der Faser. Im linken Teil der Abbildung 5.41 ist die unbedampfte und im rechten ist die von hinten mit grünem Licht beleuchtete verspiegelte Faserendfläche dargestellt. In der Mitte dieser verspiegelten PCF-Endfläche ist der Kernbereich zu sehen. Die Faser besitzt eine "double-clad" Struktur: der dotierte Kern ist vom inneren Mantel umgeben. Seine kleinen Löcher bestimmen dessen effektiven Brechungs-index. Der äußere Mantel ist von großen Luftkanälen gebildet. Es ist gut erkennbar, dass die Mantelstruktur der Faser im Unterschied zu der der PCF 1a keine zylindrische Symmetrie aufweist. Aus diesem Grunde ist eine Veränderung des Emissionsspektrums zu erwarten.

In der Abbildung 5.42 ist die Kenlinie des Lasers mit der PCF 1b dargestellt. Die Wellenlänge des TiSa-Pumplasers betrug  $\lambda_{p} = 906$  nm. Die Schwellpumpleistung lag bei

ungefähr 300 mW. Die erreichte Höchstausgangsleistung war 2,2 mW bei 700 mW Pumpleistung. Die Verlustrate wurde zu  $\gamma = 1,6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$  bestimmt, was 90% pro Umlauf entspricht.



Abbildung 5.41. Querschnitte der unbedampften und der verspiegelten Endfläche der PCF 1b. D = 25  $\mu$ m, D<sub>ak</sub> = 9,2  $\mu$ m,  $\Lambda$  = 15  $\mu$ m, d = 2,7  $\mu$ m.



Abbildung 5.42. Kreise: Ausgangsleistung vs. Pumpleistung für den Laser mit der PCF 1b. Durchgezogene Linie: Ausgleichsgerade über den linearen Bereich der Kennlinie.  $\lambda_{\rm p} = 906$  nm,  $L_{\rm PCF} = 82,5$  cm,  $L_{\rm extern} = 94$  cm.

Das Spektrum dieses PCF-Lasers wurde auch bei verschiedenen Pumpwellenlängen mit dem Gitterspektrographen Ocean Optics |22| mit der Auflösung 1 nm aufgenommen. Das Ergebnis dieser Aufnahmen ist in der Abbildung 5.43 gezeigt. Bei der Erhöhung von  $\lambda_{\rm P}$  von 898 nm auf 920 nm wanderte die Laseremission schrittweise von  $\lambda = 1046$  nm auf  $\lambda = 1037$  nm. Bei jeder Pumpwellenlänge emittierte der PCF-Laser in einer oder 2 Emissionsbändern. Die Abstände zwischen den einzelnen spektralen Komponenten waren jedoch unterschiedlich. Dies lässt sich möglicherweise durch eine andere als bei der PCF 1a Symmetrie der Mantelstruktur erklären: zur Überlagerung von transversalen Komponenten des Lichtfeldes kommt es nach Reflexion von unterschiedlich entfernten Grenzflächen im Mantel der Faser.



Abbildung 5.43. Emissionsspektren des Lasers mit der PCF 1b bei verschiedenen Pumpwellenlängen.

In den Emissionsspektren der Laser mit den beiden Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCFs 1a und 1b sind die Interferenzen der evaneszenten Anteile des Modenfeldes stark ausgeprägt. Diese Interferenzen kommen durch Reflexionen an Grenzflächen von Glas und Luft in der Mantelstruktur der Faser zustande. Das führt zu einer Lichtemission nur in schmalen spektralen Bändern, die bei einer zylindrisch symmetrischen Struktur des Fasermantels auch periodisch hervortreten. Diese spektralen Strukturen verhindern die resonatorinternen Absorptionsmessungen. Eine Möglichkeit zur Reduzierung oder Beseitigung dieser Strukturen bietet die Verwendung von PCFs mit einer kleineren räumlichen Lochstruktur des Mantels.

## **5.4** Photonic Crystal Fiber mit kleiner räumlicher Mantelstruktur im Resonator eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers

Es wurde die Dynamik eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit einer passiven (undotierten) PCF mit einer kleinen räumlichen Struktur des Mantels im externen Teil des Resonators untersucht. Dafür wurden 2 PCFs abwechselnd im Experiment eingesetzt. Die beiden Fasern sind vom Hersteller Crystal Fibre (Dänemark). Die erste PCF |39| (im Folgenden als 2a bezeichnet) hat folgende Parameter: Typ NL-2.0-740, Manteldurchmesser 115 µm, Kerndurchmesser D = 1,9 µm, NA = 0,38. Die Parameter der zweiten PCF (2b) (|40|) sind: Typ NL-1050-ZERO-2, Manteldurchmesser 127 µm, Kerndurchmesser D = 2,3 µm, NA = 0,37. Die übrigen Maße wie Lochdurchmesser d und Lochabstand  $\Lambda$ betragen bei beiden Fasern ca. 2 µm. Die PCF 2a war 200 cm lang und vom Hersteller an beiden Enden mit FC-Steckern versehen. Die Endflächen dieser Faser waren in die Steckerferrulen eingeschmolzen, so dass keine Möglichkeit bestand Mikroskopfotoaufnahmen von der inneren Struktur der PCF zu machen. Die zweite PCF 2b war lose und wurde mit dem Faserschneidegerät |2| gerade geschnitten. Die beiden Enden wurden in die Glaskapillare eingeklebt. Die Länge dieser Faser betrug 155 cm. Die Mikroskopaufnahme ihrer Endfläche ist in Abb. 5.44 gezeigt.



Abbildung 5.44. Querschnitt der passiven PCF 2b. D = 2,3  $\mu$ m,  $\Lambda \approx d \approx 2 \mu$ m [137].

Der experimentelle Aufbau ist in der Abbildung 5.45 schematisch dargestellt. Die Strahlung des Pumpdiodenlasers wird vom Linsensystem L1 in die 70 cm lange Nd<sup>3+</sup>- dotierte Faser |9| eingekoppelt. Der Reflexionsverlauf des auf die Faserendfläche aufgedampften Resonatorspiegels S1 ist identisch mit dem in der Abb. 3.1 dargestellten. Die Pumpwellenlänge betrug  $\lambda_p = 810$  nm. Das Fluoreszenzlicht, das aus dem offenen Ende der Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faser austritt, wird von der Linse L2 (|7|: Schott Hoya, A136, f = 15 mm, *NA* = 0,3, entspiegelt für  $\lambda = 1050 \div 1150$  nm) kollimiert und von der Linse L3 (|41|: Thorlabs, C350TM-C, asphärisch, f = 4,5 mm, *NA* = 0,41, entspiegelt für  $\lambda = 1050 \div 1150$  nm) in die passive PCF fokussiert. Nach Durchgang der PCF wird das

Licht von der Linse L4 (die gleiche wie L3) auf dem Auskoppelspiegel S2 ( $T(S2) \approx 3\%$ ) abgebildet und zurückreflektiert. Das ausgekoppelte Licht wurde mit dem Gitterspektographen Jarrel Ash |10| (spektrale Auflösung 0,025 nm) spektral analysiert.



Abbildung 5.45. Experimenteller Aufbau eines Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit einer passiven "Photonic Crystal Fiber" im Resonator.

Die Ausgangsleistungen des Faserlasers mit der PCF 2a oder der PCF 2b im externen Resonatorteil in Abhängigkeit von der Pumpleistung sind in der Abbildung 5.46 gezeigt. Die Effizienz war sehr gering: die maximal erreichte Laserleistung mit der PCF 2a betrug 60  $\mu$ W bei einer Pumpleistung von 153 mW. Mit der PCF 2b ließ sich nur etwa 1/3 dieser Leistung erzielen, ca. 20  $\mu$ W. Die experimentell ermittelten Parameter der beiden Laser sind in der Tabelle 5.2 zusammengestellt. Sehr hohe Raten der Resonatorverluste sind durch die Einkopplung des Lichts in die PCF und in die dotierte Faser und durch Lichtverluste bei der Ausbreitung in der PCF bestimmt. Der Betrieb der beiden Laser war sehr instabil. Diese Instabilität spiegelt sich in dem Leistungsspektrum der Gesamtintensität des Faserlasers wider. Abbildung 5.47 zeigt das Fourierspektrum des 200 ms langen mit 2  $\mu$ s Auflösung aufgenommenen Wechselsignalanteils für den Laser mit der PCF 2a. Neben der Frequenz der Hauptrelaxation  $v_0$  von ca. 34 kHz sind auch die Beiträge bei der Frequenz der zweiten  $2v_0$  und der dritten  $3v_0$  Harmonischen zu sehen. Das geschieht, weil die Oszillationen der Laseremission sehr stark sind.

Abbildung 5.48 zeigt ein Emissionsspektrum des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der PCF 2a im Resonator. Um das spektrale Rauschen zu reduzieren wurde der Auskoppelspiegel S2 während der Messung langsam und gleichmäßig verschoben. Die Emission erfolgte nicht mehr in schmalen Bändern, wie es bei den Lasern mit Yb<sup>3+</sup>-dotierten PCFs 1a und 1b der Fall war. Das dargestellte Spektrum weist zwei ca. 1 nm breite Maxima auf. Das kann möglicherweise dadurch erklärt werden, dass der räumliche Abstand zwischen den Luftkanälen der PCF 2a wesentlich kleiner ist als bei den PCFs 1a und 1b.

Abbildung 5.49 zeigt drei Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlaser mit der PCF 2a im Resonator (rot, grün, blau) zusammen mit dem für L = 6 km berechneten HITRAN-Referenzspektrum der atmosphärischen Absorption (schwarz). Eine Biegung der PCF führte dazu, dass die Laseremission über einen Bereich von ca. 1087 nm bis 1091 nm verstimmt wurde. Die verschiedenen Laserspektren in Abb. 5.49 entsprechen unterschied-

lichen Biegungsradien der im Resonator befindlichen PCF. An den Spektren sind auch einige Linien der atmosphärischen Absorption zu erkennen. Deutlich zu sehen ist die Absorptionslinie bei  $\lambda = 1090,4$  nm. Die erreichte spektrale Empfindlichkeit ist geringer als die von in Kapiteln 3 und 4 beschriebenen Nd<sup>3+</sup>- und Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasern und beträgt nur einige Kilometer. Das liegt wahrscheinlich daran, dass die Resonatorverluste durch Ankopplung der PCF, Rayleigh-Streuung und eine schlechte optische Qualität der PCF sehr groß sind.



Abbildung 5.46. Ausgangsleistung vs. Pumpleistung des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers (Faser |9|) mit der passiven PCF 2a (blau) oder 2b (grün) im Resonator. Kreise und Quadrate: experimentelle Daten, durchgezogene Linien: Ausgleichgeraden in den linearen Bereichen.

PCF im externen Teil des Resonators	optische Resonatorlänge $L_{\text{Resonator}}$ , cm	P <sub>thr</sub> , mW	Verlustrate $\gamma$ , s <sup>-1</sup>	Umlauf- verluste Γ
PCF 2a ( $L_{PCF} = 200 \text{ cm}$ )	579	61	$8 \cdot 10^7$	95%
PCF 2b ( $L_{PCF} = 155 \text{ cm}$ )	512	74	9,9·10 <sup>7</sup>	96,6%

Tabelle 5.2: Zusammenstellung der Parameter des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit 2 unterschiedlichen PCFs im Resonator. Die Lebensdauer des oberen Laserniveaus wurde  $\tau = 460 \,\mu s$  angenommen.



Abbildung 5.47. Leistungsspektrum der Gesamtemission des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers (Faser |9|) mit der PCF 2a im externen Teil des Resonators.



Abbildung 5.48. Emissionsspektrum des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers (Faser |9|) mit der PCF 2a im externen Teil des Resonators.



Abbildung 5.49. Die Emissionsspektren des  $Nd^{3+}$ -dotierten Faserlasers (Faser |9|) mit der PCF 2a im externen Teil des Resonators (grün, rot und blau) bei verschiedenen Biegungsradien der PCF dargestellt zusammen mit dem HITRAN-Spektrum (schwarz, L = 6 km).

Abbildung 5.50 zeigt Emissionsspektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers mit der PCF 2b im Resonator. Das über 512 Belichtungsperioden der Diodenzeile gemittelte Spektrum (Gesamtaufnahmezeit ca. 14 s, Abb. 5.50(a)) weist eine unregelmäßigere Struktur im Vergleich zum in Abb. 5.48 gezeigten Spektrum mit der PCF 2a im Resonator auf. Die Linien der atmosphärischen Absorption sind im Spektrum in Abb. 5.50(a) nicht mehr erkennbar.



Abbildung 5.50. Spektren des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers (Faser |9|) mit der PCF 2b im externen Teil des Resonators bei unterschiedlichen Aufnahmezeiten.

Um einen Aufschluss über die Ursachen einer so starken Modulation zu bekommen, wurde das Spektrum während einer relativ kurzen Belichtungszeit der Diodenzeile (27 ms) aufgenommen. Es ist in Abb. 5.50(b) gezeigt. Es weist eine sehr ausgeprägte periodische Struktur mit 250-350 GHz Spektralabstand auf. Dies entspräche einem Etalon im Resonator mit der Dicke von etwa 0,5 mm. Eine Ursache für diese Etalonstrukturen könnte die Doppelbrechung sein. Für einen Laser mit einem doppelbrechenden Medium der Länge  $L_{Medium}$  und der Doppelbrechungsstärke  $\Delta n$  (Brechungsindexdifferenz zwischen zwei Polarisationsrichtungen) ergibt sich eine Verlustmodulation mit dem freien Spektralbereich (analog zum Lyot-Filter [30, 92]):

$$\Delta v_{\rm Lyot} = c / (2L_{\rm Medium} |\Delta n|) .$$
(5.2)

Daraus lässt sich für die PCF 2b bei einem mittleren Frequenzabstand der Spitzen von 300 GHz die Brechungsindexdifferenz  $\Delta n_w$  zu ca.  $3.2 \cdot 10^{-4}$  abschätzen.

Die spektralen Positionen der Interferenzstrukturen sind nicht stabil und ändern sich mit der Zeit. Die Schwankungen führen zu glatten Spektren bei längeren Aufnahmezeiten (Abb. 5.50(a)). Allerdings ist das restliche Rauschen immer noch größer als das durch den im Resonator befindlichen atmosphärischen Wasserdampf hervorgerufene Absorptionssignal. Um empfindliche resonatorinterne Absorptionsmessungen durchführen zu können muss dieser Doppelbrechungseffekt vermindert werden.

#### 5.5 Zusammenfassung der Ergebnisse

Es wurde dargestellt, dass mirkostrukturierte Fasern für den spektroskopischen Nachweis von in ihren Luftkanälen lokalisierten Stoffen geeignet sind [15, 124, 128, 134]. Die Empfindlichkeit dieser Absorptionsmessungen ist allerdings auf den Einfachdurchgang durch die Faser begrenzt. Um sie zu erhöhen muss die Faser möglichst lang sein. Eine andere Möglichkeit für die Empfindlichkeitssteigerung ist die Verwendung von dotierten PCFs in einem ICAS-Aufbau.

Im Experiment wurde gezeigt, dass empfindliche Absorptionsmessungen im Resonator eines Lasers mit PCF möglich sind. Die spektrale Empfindlichkeit ist allerdings zurzeit auf wenige Kilometer begrenzt. Außerdem sind die Emissionsspektren durch eine sehr starke Modulation gekennzeichnet, die durch die Interferenzen der an den Grenzflächen zwischen Glasmaterial und Luftkanälen reflektierten transversalen Lichtanteile und durch Doppelbrechung zustande kommt. Da das Emissionsspektrum eines Vielmoden-Lasers auf schmalbandige resonatorinterne Verluste sehr empfindlich reagiert, hat dieser Effekt eine wesentlich stärkere Wirkung als bei den in Kap. 5.2 beschriebenen Experimenten mit Einwegspektroskopie. Ein weiteres Hindernis für die höchstempfindlichen resonatorinternen Absorptionsmessungen mit PCFs stellen die hohen Resonatorverluste dar. Sie sind durch eine schlechte Lichtführung im Kern der PCF und durch eine begrenzte Einkoppeleffizienz des Laserlichts in PCF bedingt.

Um kleine in den Luftkanälen einer mikrostrukturierten Faser lokalisierte Probemengen mit hoher Empfindlichkeit nachweisen zu können muss deswegen die spektrale Struktur z.B. durch Verwendung von dotierten mikrostrukturierten Fasern mit einer irregulären räumlichen Mantelstruktur beseitigt und die Resonatorumlaufverluste verringert werden.

#### Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden  $Nd^{3+}$ -,  $Yb^{3+}$ - und  $Er^{3+}$ -dotierte Faserlaser bezüglich ihrer Anwendung für höchstempfindliche resonatorinterne Absorptionsmessungen (ICAS) untersucht.

Die maximal erzielte Empfindlichkeit auf die atmosphärische Absorption im Resonator des im Experiment aufgebauten Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers im Spektralbereich 1,08–1,12 µm entspricht einer effektiven Absorptionsweglänge von  $L_{eff}$  = 40 km. Als empfindlichkeitsbegrenzende Mechanismen wurden die Rayleigh-Streuung und die räumliche Inhomogenität der Verstärkung identifiziert. Eine Erhöhung der spektralen Empfindlichkeit kann durch die Reduzierung der Wirkung der beiden Mechanismen erreicht werden. Der Einfluss der Rayleigh-Streuung lässt sich durch die Verringerung des Füllfaktors des Resonators mit dem aktiven Medium (Faser), Verwendung von Fasern mit kleinerer numerischer Apertur und hochqualitativen Fasern mit geringer Dämpfung reduzieren. Die Wirkung der räumlichen Inhomogenität kann durch die Reduzierung der Pumprate und der Resonatorverluste und durch die Erhöhung der Zahl der oszillierenden Moden verringert werden. Der Aufbau eines Faserlasers in der Ringresonator-Konfiguration ermöglicht es die räumliche Inhomogenität vollständig zu beseitigen. Durch die Reduzierung der beiden begrenzenden Mechanismen kann die spektrale Empfindlichkeit auf einige tausend Kilometer ansteigen.

Die Anwendung von vielmodigen Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasern für ICAS im weiteren infraroten Spektralbereich  $6200-6550 \text{ cm}^{-1}$  (1,52-1,61 µm) wurde zum ersten Mal erfolgreich demonstriert. In diesem Spektralintervall befinden sich starke Absorptionslinien von verschiedenen niedermolekularen Gasen, wie z.B. Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>), Kohlenstoffmonoxid (CO), Methan (CH<sub>4</sub>), Azetylen (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>), Ammoniak (NH<sub>3</sub>), Cyanwasserstoff (HCN). Die ereichte spektrale Empfindlichkeit entspricht einer effektiven Absorptionsweglänge von  $L_{\text{eff}} = 54 \text{ km}$ . Sie ist somit höher als die des Nd<sup>3+</sup>-dotierten Faselasers, was auf eine bessere Herstellungsqualität von Er3+-dotierten Telekommunikationsfasern zurückgeführt werden kann. In der Messung mit Azetylen als Absorber wurde die Nachweisgrenze zu 60 ppb bestimmt. Umweltrelevante Gase CO2 und CO konnten im Laserresonator auch empfindlich nachgewiesen werden. Ein selektiver Nachweis von für die medizinische Diagnostik der Atemluft wichtigen Isotopen <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> und <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> wurde demonstriert. Zum ersten Mal wurde die chemische Dynamik von Verbrennungsprodukten HCN und NH3 in einer Niederdruckflamme durch in situ Absorptionsmessungen im Resonator eines Er<sup>3+</sup>-dotierten Faserlasers beobachtet. Die Empfindlichkeitserhöhung kann auch mit diesem Laser durch die Optimierung von Laserbetriebsparametern erreicht werden.

Absorptionsmessungen von in den Luftkanälen mirkostrukturierter Fasern lokalisierten Proben erfordern nur geringe Substanzmengen. Die Empfindlichkeit dieser Messungen kann erhöht werden, wenn die mikrostrukturierte Faser im Resonator eines Lasers platziert wird. Allerdings muss dafür die durch die Interferenz der an den Luftkanälen reflektierten transversalen Lichtanteile hervorgerufene spektrale Verlustmodulation beseitigt werden. Die Verwendung von mikrostrukturierten Fasern höherer Qualität mit einer räumlich irregulären Mantelstruktur im Laserresonator kann einen sehr empfindlichen Nachweis von geringen Probemengen ermöglichen.

Eine hohe Empfindlichkeit bei Absorptionsmessungen im Resonator eines Faserlasers bietet die Möglichkeit ein kompaktes Gerät für den Nachweis von verschiedenen Atomen und Molekülen herzustellen. Die möglichen Anwendungen beinhalten unter anderem: Umweltanalyse, medizinische Diagnostik, Optimierung von Verbrennungsprozessen und Prozesskontrolle.

### Liste der verwendeten Geräte

- |1| Faserpoliermaschine: Ultra Tec 8801-1.
- 2 Faserschneidegerät, York FK 12 Angled Fiber Cleaver.
- |3| Photospektrometer: Varian Cary 5000 UV-Vis-NIR.
- |4| Laserdiode, SDL, 810 nm, 100 mW.
- [5] Laserdiode, DL-LS2031A, 808 nm, 150 mW.
- 6 Optische Diode: Gsänger FR500/1100/5.
- |7|Linse A136, Schott Hoya, Linsenprofil: eine Seite (Fokusseite) plan, andereSeite asphärische Fläche, f = 15 mm, NA = 0,3, Material M-LaC130.
- [8] Leistungsmessgerät Fieldmaster (Fa. Coherent), Detektoren LM-2 (Si) bzw.LM-2-IR (Ge).
- |9| Nd<sup>3+</sup>-dotierte Faser, Hersteller: York, Faser-Typ ND95020/E, Durchmesser 125 ± 5 µm, Kerndurchmesser  $2a = 3,5 \pm 0,5$ µm,  $NA = 0,21 \pm 0,03$ ,  $\lambda_{\text{cutoff}} = 950 \pm 75$  nm.
- |10| Jarrel Ash 1m-Czerny-Turner Scanning Spectrometer.
- |11| CCD-Zeile, Thomson, TH 7803A, 10x13  $\mu$ m<sup>2</sup>, 10  $\mu$ m Pixel-Pixel Abstand.
- [12] Transientenrekorder, Krenz TRB4000, 10 bit dynamischer Bereich.
- AOD, Isomet, Typ 1201E-2, Treiber: Typ: 231A-2.
- |14| HITRAN-Datenbank, Hitran 96.
- 15 TRANS for Windows, Version 2.51, ONTAR-Corporation.
- 16 Luftfeuchtigkeitsmessgerät, Hygrotec 8703.

- |17| Nd<sup>3+</sup>-dotierte Faser, Hersteller: Lycom, Faser-Typ R11002, Durchmesser 127 µm, Kerndurchmesser 2a = 3,7 µm, NA = 0,22,  $\lambda_{cutoff} = 1080$  nm.
- [18] Oszilliskop Lecroy Wave Runner 6050, 500 MHz Frequenzauflösung.
- [19] Laserdiode, Axcel Photonics S-980-9 mm-0350,  $\lambda = 980 \pm 5$  nm, 350 mW.
- |20| Er<sup>3+</sup>-dotierte polarisationserhaltende Faser, Hersteller OFS, Faser-Typ R37PM01, Durchmesser 125  $\mu$ m, Kerndurchmesser 2*a*  $\approx$  3  $\mu$ m (elliptisch), *NA* = 0,29,  $\lambda_{cutoff}$  = 1048 nm, max. Absorption bei  $\lambda$  = 1530 nm : 18 dB/m.
- |21| Fourierspektrometer zur Untersuchung der Emissionsspektren von Lasern, maximale Auflösung  $\Delta v = 0,015 \text{ cm}^{-1}$ , entwickelt und aufgebaut von S. Salewski.
- 22 Spectrometer Ocean Optics, HR2000CG-UV-NIR, Auflösung 1 nm.
- |23| Photomultiplier SO 1030 SF.
- |24| Laserdiodentreiber: Thorlabs LDC 220,  $I_{max} = 2 A$ .
- [25] Gitterspektrograph: SPEX 1000M, 100 Furchen/mm.
- |26| Photodiodenzeile: Sensors Unlimited Inc., 1024 Pixel, Pixelgröße 25 μm.
- |27| InGaAs-Photodiode: Hamamatsu G5852-11 mit Kühlkörper.
- [28] Helium-Neon-Laser: SIOS Messtechnik SL 02/1, frequenzstabilisiert.
- 29 Universalphotodiode für sichtbares Licht.
- |30| Photodiode: Thorlabs DET410 (InGaAs PIN),  $\lambda_{empf} = 700 1800 \text{ nm}$ (maximale Empfindlichkeit bei  $\lambda = 1500 \text{ nm}$ ).
- [31] Akusto-optischer Modulator: IntraAction Corp. ACM-402-AA1.
- [32] Geregelte Abluftdrossel: MKS Instruments 252/253.

- [33] Massenflussregler: MKS Instruments 1259.
- [34] Er<sup>3+</sup>-dotierte Faser, Hersteller: OFS, Faser-Typ EDF150, Durchmesser125 μm, Kerndurchmesser 2a ≈ 2,4 μm, NA = 0,29, λ<sub>cutoff</sub> = 925 nm,max. Absorption bei λ = 1530 nm : 150 dB/m.
- [35] Brenner: McKenna flat flame burner.
- |36| Yb<sup>3+</sup>-dotierte PCF, Hersteller: Institute for Physical High Technology, Jena,Kerndurchmesser D = 14 μm, Durchmesser des dotierten BereichsD<sub>ak</sub> = 10 μm, Lochdurchmesser d = 6 μm, Lochabstand Λ = 12,5 μm.
- $\begin{array}{ll} |37| & Yb^{3+}\mbox{-}dotierte PCF, \mbox{ Hersteller: Institute for Physical High Technology, Jena,} \\ & Kerndurchmesser \ D = 25 \ \mu m \ , \ Durchmesser \ des \ dotierten \ Bereichs \\ & D_{ak} = 9,2 \ \mu m \ , \ Lochdurchmesser \ d = 2,7 \ \mu m \ , \ Lochabstand \ \Lambda = 15 \ \mu m \ . \end{array}$
- |38| Mikroskop Olympus BX41.
- |39| PCF NL-2.0-740, Hersteller: Crystal Fibre (Dänemark), Durchmesser 115  $\mu$ m, Kerndurchmesser D = 1,9  $\mu$ m, NA = 0,38.
- |40| PCF NL-1050-ZERO-2, Hersteller: Crystal Fibre (Dänemark), Durchmesser 127 μm, Kerndurchmesser  $D = 2,3 \mu m$ , NA = 0,37.
- |41| Linse C350TM-C, Thorlabs, asphärisch, f = 4,5 mm, NA = 0,41, Material C0550, Entspiegelung:  $\lambda = 1050 \div 1150 \text{ nm}$ .
## Literaturverzeichnis

- [1] V.M. Baev, T. Latz, P.E. Toschek, "Laser intracavity absorption spectroscopy", Appl. Phys. B, **69**, 171-202, 1999.
- [2] J.U. White, "Long Optical Paths of Large Aperture", J. Opt. Soc. Am., **32**, 285-288, 1942.
- [3] D. Romanini, K.K. Lehmann, "Ring-down cavity absorption spectroscopy of the very weak HCN overtone bands with six, seven, and eight stretching quanta", J. Chem. Phys., 99, 6287-6301, 1993.
- [4] J. Sierks, T. Latz, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Proceedings of the 1996 European Quantum Electronics Conference (EQEC96)", Hamburg 8.-13. September 1996, S. 100, QWB6.
- [5] J. Sierks, J. Eschner, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Sensitivity of intracavity absorption measurements with Ti:sapphire laser", Opt. Comm., 102, 265-270, 1993.
- [6] V.M. Baev, J. Eschner, E. Paeth, R. Schüler, P.E. Toschek, "Intra-Cavity Spectroscopy with Diode Lasers", Appl. Phys. B, **55**, 463-477, 1992.
- [7] R. Böhm, A. Stephani, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Intracavity absorption spectroscopy with a Nd<sup>3+</sup>-doped fiber laser", Opt. Lett., **18**, 1955-1957, 1993.
- [8] J. Hünkemeier, R. Bohm, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Spectral dynamics of multimode Nd<sup>3+</sup>- and Yb<sup>3+</sup>-doped fibre lasers with intracavity absorption", Opt. Comm., **176**, 417-428, 2000.
- [9] A. Goldman, I. Rahinov, S. Cheskis, B. Löhden, S. Wexler, K. Sengstock, V.M. Baev, "Fiber laser intracavity absorption spectroscopy of ammonia and hydrogen cyanide in low pressure hydrocarbon flames", Chem. Phys. Lett., 423, 147-151, 2006.
- [10] J. Hünkemeier, "Dynamik und Absorptionsempfindlichkeit von vielmodigen Faser- und Glas-Lasern", Dissertation, Universität Hamburg, 2001.

- [11] E. Ovchinnikov, "Influence of spectral and spatial inhomogeneities of the active medium on spectral dynamics of multimode solid-state lasers", Dissertation, Universität Hamburg, 2003.
- [12] A. Stark, L. Correia, M. Teichmann, S. Salewski, C. Larsen, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Intracavity absorption spectroscopy with thulium-doped fibre laser", Opt. Comm., 215, 113-123, 2003.
- [13] G. Rapior, "Untersuchung der Empfindlichkeit von Intracavity-Spektroskopie mit Tm-dotierten Faserlasern", Diplomarbeit, Universität Hamburg, 2004.
- [14] S. Wexler, K. Mörl, K. Sengstock, V.M. Baev, "Emissionsspektrum eines mit Yb dotierten mikrostrukturierten Faserlasers", Frühjahrstagung der AG Quantenoptik und Photonik der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Frankfurt, 13.03-17.03.2006, Verhandl. DPG (VI) 41, 7/145, Q35.5 (2006).
- [15] G. Pickrell, W. Peng, A. Wang, "Random-hole optical fiber evanescent-wave gas sensing", Opt. Lett., **29**, 1476-1478, 2004.
- [16] R.J. Bell, *Introductory Fourier Transform Spectroscopy*, Academic Press, New York and London, 1972.
- [17] R.A. Toth, "Measurements of  $H_2^{16}O$  Line Positions and Strengths: 11610 to 12861 cm<sup>-1</sup>", J. Molec. Spectr., **166**, 176-183, 1994.
- [18] R.A. Toth,  $_{,,2}v_2-v_2$  and  $2v_2$  bands of  $H_2^{16}O$ ,  $H_2^{17}O$ , and  $H_2^{18}O$ : line positions and strengths", J. Opt. Soc. Am. B, **10**, 1526-1544, 1993.
- [19] P. Martin, R. Holdsworth, "High-resolution infrared spectroscopy for *in situ* industrial process monitoring", Spectr. Europe, **16**, 8-15, 2004.
- [20] E.D. Hinkley, "High-resolution infrared spectroscopy with a tunable diode laser", Appl. Phys. Lett., **16**, 351-354, 1970.
- [21] M.W. Sigrist, Air Monitoring by Spectroscopic Techniques, Chemical Analysis Series, 127, Wiley, New York, 1994.
- [22] R.T. Ku, E.D. Hinkley, J.O. Sample, "Long-Path Monitoring of Atmospheric Carbon Monoxide with a Tunable Diode Laser System", Appl. Opt., 14, 854-861, 1975.

- [23] J. Reid, J. Shewchun, B.K. Garside, E.A. Ballik, "High sensitivity pollution detection employing tunable diode lasers", Appl. Opt., **17**, 300-307, 1978.
- [24] J. Reid, M. El-Sherbiny, B.K. Garside, E.A. Ballik, "Sensitivity limits of a tunable diode laser spectrometer, with application to the detection of NO<sub>2</sub> at the 100ppt level", Appl. Opt., **19**, 3349-3354, 1980.
- [25] J.A. Silver, "Frequency-modulation spectroscopy for trace species detection: theory and comparison among experimental methods", Appl. Opt., **31**, 707-717, 1992.
- [26] J. Ye, L.-S. Ma, J.L. Hall, "Ultrasensitive detections in atomic and molecular physics: demonstration in molecular overtone spectroscopy", J. Opt. Soc. Am. B, 15, 6-15, 1998.
- [27] G. Duxbury, N. Langford, "Quantum cascade lasers bring sensitivity and speed to infrared gas sensing", Spectr. Europe, **18**, 18-23, 2006.
- [28] K.P. Petrov, R.F. Curl, F.K. Tittel, "Compact laser difference-frequency spectrometer for multicomponent trace gas detection", Appl. Phys. B, 66, 531-538, 1998.
- [29] R. Barron-Jimenez, J.A. Caton, T.N. Anderson, R.P. Lucht, T. Walther, S. Roy, M.S. Brown, J.R. Gord, "Application of a difference-frequency-mixing based diode-laser sensor for carbon monoxide detection in the 4.4-4.8 μm spectral region", Appl. Phys. B, 85, 185-197, 2006.
- [30] W. Demtröder, *Laserspektroskopie*, Springer Verlag, Berlin, 1991.
- [31] A.G. Bell, "On the production and reproduction of sound by light", Am. J. Science, **20**, 305-324, 1880.
- [32] E.L. Kerr, J.G. Atwood, "The Laser Illuminated Absorptivity Spectrophone: A Method for Measurement of Weak Absorptivity in Gases at Laser Wavelengths", Appl. Opt., 7, 915-921, 1968.
- [33] A. Thöny, M.W. Sigrist, "New developments in CO<sub>2</sub>-Laser photoacoustic monitoring of trace gases", Infrared Phys. Technol., 36, 585-615, 1995.

- [34] F.J.M. Harren, F.G.C. Bijnen, J. Reuss, L.A.C.J. Voesenek, C.W.P.M. Blom, "Sensitive Intracavity Photoacoustic Measurements with a CO<sub>2</sub> Waveguide Laser", Appl. Phys. B, 50, 137-144, 1990.
- [35] J.-P. Besson, S. Schilt, E. Rochat, L. Thevenaz, "Ammonia trace measurements at ppb level based on near-IR photoacoustic spectroscopy", Appl. Phys. B, **85**, 323-328, 2006.
- [36] J. Ballard, K. Strong, J.J. Remedios, M. Page, W.B. Johnston, "A coolable long path absorption cell for laboratory spectroscopic studies of gases", J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 52, 677-691, 1994.
- [37] R.W. Boese, J.H. Miller, E.C.Y. Inn, "Intensity measurements of the 1 μm CO<sub>2</sub> bands", J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 6, 717-725, 1966.
- [38] A. O'Keefe, D.A.G. Deacon, "Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources", Rev. Sci. Instrum., 59, 2544-2551, 1988.
- [39] D. Halmer, S. Thelen, P. Hering, M. Mürtz, "Online monitoring of ethane traces in exhaled breath with a difference frequency generation spectrometer", Appl. Phys. B, 85, 437-443, 2006.
- [40] I. Rahinov, A. Goldman, S. Cheskis, "Intracavity laser absorption spectroscopy and cavity ring-down spectroscopy in low-pressure flames", Appl. Phys. B, 81, 143-149, 2005.
- [41] A. Goldman, I. Rahinov, S. Cheskis, "Molecular oxygen detection in low pressure flames using cavity ring-down spectroscopy", Appl. Phys. B, 82, 659-663, 2006.
- [42] J.H. Miller, A.R. Awtry, M.E. Moses, A.D. Jewell, E.L. Wilson, "Measurements of hydrogen cyanide and its chemical production rate in a laminar methane/air, non-premixed flame using cw cavity ringdown spectroscopy", Proc. Comb. Inst., 29, 2203-2209, 2002.
- [43] A.R. Awtry, J.H. Miller, "Development of a cw-laser-based cavity-ringdown sensor aboard a spacecraft for trace air constituents", Appl. Phys. B, 75, 255-260, 2002.

- [44] J.A. Curcio, L.F. Drummeter, G.L. Knestrick, "An Atlas of the Absorption Spectrum of the Lower Atmosphere from 5400 Å to 8520 Å", Appl. Opt., 3, 1401-1409, 1964.
- [45] H. Edner, P. Ragnarson, S. Spännare, S. Svanberg, "Differential optical absorption spectroscopy (DOAS) system for urban atmospheric pollution monitoring", Appl. Opt., 32, 327-333, 1993.
- [46] C.E. Moore, M.G.J. Minnaert, J. Hautgast, *The solar spectrum from 2935 to* 8770 Å, National Bureau of Standards, Monograph 61, 1966.
- [47] T.J. Latz, G. Weirauch, V.M. Baev, P.E. Toschek, "External photoacoustic detection of a trace vapor inside a multimode laser", Appl. Opt., **38**, 2625-2629, 1999.
- [48] T. Latz, "Spektroskopie im Laser-Resonator mit höchster Nachweisempfindlichkeit und spektraler Auflösung", Dissertation, Universität Hamburg, 2000.
- [49] T. Latz, F. Aupers, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Emission spectrum of a multimode dye laser with frequency-shifted feedback for the simulation of Rayleigh scattering", Opt. Comm., 156, 210-218, 1998.
- [50] J. Eschner, "Dynamik und Absorptionsempfindlichkeit eines Vielmoden-Lasers", Dissertation, Universität Hamburg, 1993.
- [51] S. Wu, A. Yariv, H. Blauvelt, N. Kwong, "Theoretical and experimental investigation of conversion of phase noise to intensity noise by Rayleigh scattering in optical fibers", Appl. Phys. Lett., 59, 1156-1158, 1991.
- [52] J. Hünkemeier, "Empfindlichkeit eines Vielmoden-Titan:Saphir-Lasers gegen Absorption im Resonator", Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1995.
- [53] J. Sierks, T.J. Latz, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Dynamics of a cw multimode dye laser", Phys. Rev. A, **57**, 2186-2203, 1998.
- [54] R. Olshansky, "Propagation in glass optical waveguides", Reviews of Modern Physics, 51, 341-367, 1979.
- [55] C.L. Tang, H. Statz, G. deMars, "Spectral Output and Spiking Behavior of Solid-State Lasers", J. Appl. Phys., 34, 2289-2295, 1963.

- [56] B. Peters, J. Hünkemeier, V.M. Baev, Y.I. Khanin, "Low-frequency dynamics of a Nd-doped glass laser", Phys. Rev. A, **64**, 023816, 2001.
- [57] B. Peters, "Räumliches Lochbrennen in einem Vielmodenlaser", Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1999.
- [58] K. Saito, M. Yamaguchi, H. Kakiuchida, A.J. Ikushima, K. Ohsono, Y. Kurosawa, "Limit of the Rayleigh scattering loss in silica fiber", Appl. Phys. Lett., 83, 5175-5177, 2003.
- [59] A. Ghatak, K. Thyagarajan, *Introduction to fiber optics*, Cambridge University Press, 1998.
- [60] P.-A. Bélanger, *Optical Fiber Theory*, World Scientific, Singapore, 1993.
- [61] D. Gloge, "Weakly Guiding Fibers", Appl. Opt., **10**, 2252-2258, 1971.
- [62] I.P. Kaminov, "Polarisation in Optical Fibers", IEEE J. Quant. Electr., **17**, 15-22, 1981.
- [63] S. Geckeler, *Lichtwellenleiter für die optische Nachrichtenübertragung*, Springer Verlag Berlin, 1990.
- [64] D. Derickson (Hrsg.), *Fiber Optic Test and Measurement*, Hewlett-Packard Professional Books, Prentice-Hall, Inc., New Jersey 1998.
- [65] M.J.F. Digonnet, *Rare Earth Fiber Lasers and Amplifiers*, Marcel Dekker, Inc., New York, 1993.
- [66] E. Desurvire, *Erbium-Doped Fiber Amplifiers: Principles and Applications*, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1994.
- [67] J.M. Pellegrino, W.M. Yen, M.J. Weber, "Composition dependence of Nd<sup>3+</sup> homogeneous linewidths in glasses", J. Appl. Phys., 51, 6332-6336, 1980.
- [68] D.W. Hall, M.J. Weber, R.T. Brundage, "Fluorescence line narrowing in neodymium laser glasses", J. Appl. Phys., **55**, 2642-2647, 1984.

- [69] T.P. Belikova, E.A. Sviridenkov, L.V. Titova, "Method of measuring the homogeneous broadening of the gain in Nd<sup>3+</sup>-doped glass", Kratk. Soobsch. Fiz., 5, 48-51, 1972.
- [70] R. Paschotta, J. Nilsson, A.C. Tropper. D.C. Hanna, "Ytterbium-doped fiber amplifiers", IEEE J. of Quant. Electr., **33**, 1049-1056, 1997.
- [71] R. Böhm, "Über die Dynamik von Faser-Lasern", Dissertation, Hamburg, 1997.
- [72] P.W. France, *Optical Fibre Lasers and Amplifiers*, Blackie, Glasgow and London, 1991.
- [73] D.C. Hanna, R.M. Percival, I.R. Perry, R.G. Smart, P.J. Suni, A.C. Tropper, "An ytterbium-doped monomode fibre laser: broadly tunable operation from 1.010 μm to 1.162 μm and three-level operation at 974 nm", J. Mod. Opt., 37, 517-525, 1990.
- [74] H.M. Pask, J.L. Archambault, D.C. Hanna, L. Reekie, P.St.J. Russel, J.E. Townsend, A.C. Tropper, "Operation of cladding-pumped Yb<sup>3+</sup>-doped silica fiber lasers in 1 μm region", Electron. Lett., **30**, 863-865, 1994.
- [75] J. Limpert, T. Schreiber, S. Nolte, H. Zellmer, A. Tünnermann, R. Iliew, F. Lederer, J. Broeng, G. Vienne, A. Petersson, C. Jakobsen, "High-power air-clad large-mode-area photonic crystal fiber laser", Opt. Expr., **11**, 818-823, 2003.
- Y. Jeong, J.K. Sahu, D.N. Payne, J. Nilsson, "Ytterbium-doped large-core fiber laser with 1.36 kW continuous-wave output power", Opt. Expr., 12, 6088-6092, 2004.
- [77] J.Y. Allain, M. Monerie, H. Poignant, "Red upconversion Yb-sensitesed Pr fluoride fibre laser pumped in 0.8 μm region", Electr. Lett., 27, 1156, 1991.
- [78] W.L. Barnes, P.R. Morkel, J.E. Townsend, "Detailed characterization of Nd<sup>3+</sup> doped SiO<sub>2</sub>-GeO<sub>2</sub> glass fibre lasers", Opt. Comm., 82, 282-288, 1991.
- [79] R. Böhm, V.M. Baev, P.E. Toschek, "Measurements of operation parameters and nonlinearity of a Nd<sup>3+</sup>-doped fibre laser by relaxation oscillations", Opt. Comm., 134, 537-546, 1997.

- [80] Y.I. Khanin, *Principles of Laser Dynamics*, Elsevier Sience B.V., Amsterdam, 1995.
- [81] A.E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley, California, 1986.
- [82] W.H. Keene, J.A. Weiss, "The Time-Resolved Spectrum of a Neodymium Glass Laser", Appl. Opt., **3**, 545-547, 1964.
- [83] L.S. Rothman et. al., "The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database",J. Quant. Spectr. and Radiat. Transfer, 96, 139-204, 2005.
- [84] S.P. Davis, *Diffraction Grating Spectrographs*, Holt, Rinehart and Winston, New York, 1970.
- [85] A. Stark, "Laserdioden-erregte Pr<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>-dotierte Fluoridglas-Faserlaser", Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1997.
- [86] S.A. Kovalenko, "Quantum intensity fluctuations in multimode cw lasers and maximum sensitivity of intracavity laser spectroscopy", Sov. J. Quant. Electr., 11 (6), 759, 1981.
- [87] E. Lacot, F. Stoeckel, "Nonlinear mode coupling in a microchip laser", J. Opt. Soc. Am. B., 13, 2034-2040, 1996.
- [88] P. Mandel, B.A. Nguyen, K. Otsuka, "Universal dynamical properties of threemode Fabry-Perot lasers", Quant. Semiclassic. Opt., **9**, 365-380, 1997.
- [89] S. Bielawski, D. Derozier, P. Glorieux, "Antiphase dynamics and polarization effects in the Nd-doped fiber laser", Phys. Rew. A, **46**, 2811-2822, 1992.
- [90] H. Sabert, R. Ulrich, "Spatial hole burning in Nd<sup>3+</sup>-fiber lasers suppressed by push-pull phase modulation", Appl. Phys. Lett., **58**, 2323-2325, 1991.
- [91] I.C.M. Littler, S. Balle, K. Bergmann, "The cw modeless laser: spectral control, performance data and build-up dynamics", Opt. Comm., **88**, 514-522, 1992.
- [92] O. Svelto, *Principles of Lasers*, Fourth Edition, Plenum Press, New York, 1998.
- [93] J. Eichler, H.-J. Eichler, *Laser: Grundlagen, Systeme, Anwendungen*, Springer Verlag, Berlin, 1990.

- [94] E.T. Wetjen, D.M. Sonnenfroh, M.G. Allen, T.F. Morse, "Demonstration of a rapidly strain tuned Er<sup>3+</sup>-doped fiber laser for sensitive gas detection", Appl. Opt., **38**, 3370-3375, 1999.
- [95] G. Stewart, K. Atherton, H. Yu, B. Culshaw, "An investigation of an optical fibre amplifier loop for intra-cavity and ring-down cavity loss measurements", Meas. Sci. Technol., 12, 843-849, 2001.
- Y. Zhang, M. Zhang, W. Jin, H.L. Ho, M.S. Demokan, X.H. Fang, B. Culshaw,
  G. Stewart, "Investigation of erbium-doped fiber laser intra-cavity absorption sensor for gas detection", Opt. Comm., 234, 435-441, 2004.
- [97] T.J. Whitley, C.A. Millar, R. Wyatt, M.C. Brierley, D. Szebesta, "Upconversion pumped green lasing in erbium doped fluorozirconate fibre", Electr. Lett., 27, 1785-1786, 1991.
- [98] J.Y. Allain, M. Monerie, H. Poignant, "Tunable green upconversion erbium fibre laser", Electr. Lett., **28**, 111-113, 1992.
- [99] G. Guelachvili, K. Narahari Rao, Handbook of infrared standards II: with spectral coverage of 1.4 μm - 4μm and 6.2 μm – 7.7 μm, Academic Press Inc. Ltd., London, 1993.
- [100] Q. Kou, G. Guelachvili, "The absorption spectrum of  $C_2H_2$  arround  $v_1+v_3$ : energy standards in the 1.5 µm region and vibrational clustering", Canad. J. of Phys., **72**, 1241, 1994.
- [101] A. Amann, D. Smith, *Breath analysis for clinical diagnosis and therapeutic monitoring*, World Scientific, New Jersey, 2005.
- [102] P. Griñó, S. Pascual, J. Such, J.A. Casellas, M. Niveiro, M. Andreu, J. Sáez, E. Griñó, J.P. Palazón, F. Carnicer, M. Pérez-Mateo, "Comparison of diagnostic methods for *Helicobacter pylori* infection in patients with upper gastrointestinal bleeding", Scand J. Gastroenterol, **36**, 1254-1258, 2001.
- [103] E. Kawakami, R.S. Machado, M. Reber, F.R.S. Patrício, "<sup>13</sup>C-Urea Breath Test With Infrared Spectroscopy for Diagnosing *Helicobacter pylori* Infection in Children and Adolescents", J. of Ped. Gastr. and Nutrit., **35**, 39-43, 2002.

- B.J. Marshall, "Helicobacter Connections", Nobel Lecture, Physics, 250-277, 2005, <u>http://nobelprize.org/nobel\_prizes/medicine/laureates/2005/marshall-lecture.html</u>.
- [105] J.R. Warren, "Helicobacter the ease and difficulty of a new discovery", Nobel Lecture, Physics, 292-305, 2005, http://nobelprize.org/nobel\_prizes/medicine/laureates/2005/warren-lecture.html.
- [106] M. Wolff, H.G. Groninga, H. Harde, "Isotope-selective sensor for medical diagnostics based on PAS", J. Phys. IV France, 125, 773-775, 2005.
- [107] A.M. Dean, J.W. Bozzelli, in: W.C. Gardiner, *Gas Phase Combustion Chemistry*, Springer, New York, 2000, S. 125.
- [108] J.A. Miller, M.J. Pilling, J. Troe, "Unravelling combustion mechanisms through a quantitative understanding of elementary reactions", Proc. of the Combust. Instit., 30, 43 (2005).
- [109] V.A. Lozovsky, I. Rahinov, N. Ditzian, S. Cheskis, Faraday Discuss., 119, 321, 2001.
- [110] I. Rahinov, N. Ditzian, A. Goldman, S. Cheskis, Proc. Combust. Inst. **30**, 1575, 2005.
- [111] H. Sasada, K. Yamada, "Calibration lines of HCN in the 1.5 μm region", Appl. Opt., 29, 3535-3547, 1990.
- [112] A.M. Smith, S.L. Coy, W. Klemperer, K. Lehmann, "Fourier transform spectra of overtone bands of HCN from 5400 to 15100 cm<sup>-1</sup>", **134**, 134-153, 1989.
- [113] L. Lundsberg-Nielsen, F. Hegelund, F.M. Nicolaisen, "Analysis of the highresolution spectrum of ammonia (<sup>14</sup>NH<sub>3</sub>) in the near-infrared region, 6400-6900 cm<sup>-1</sup>", J. of Molec. Spectr., **162**, 230-245, 1993.
- [114] R.J. Kee, J.F. Grcar, M.D. Smoke, J.A. Miller, A Fortran program for modelling steady one-dimensional premixed flames, Sandia Report SAND85-8240, Sandia National Laboratories, Livermore, CA, 1991.

- [115] D.M. Golden, M. Frenklach, N.W. Moriarty, B. Eiteneer, M. Goldenberg, C.T. Bowman, R.K. Hanson, S. Song, W.C. Gardiner, V.V. Lissianski, Z. Qin. Available from: <u>http://www.me.berkeley.edu/gri\_mesh/</u>.
- [116] A. Bjarklev, et. all, *Photonic Crystal Fibres*, Kluwer Academic Publishers, Boston / Dordrecht / London, 2003.
- [117] P. Russell, "Photonic Crystal Fibers", Science, **299**, 358-362, 2003.
- [118] R.F. Cregan, B.J. Mangan, J.C. Knight, T.A. Birks, P.St.J. Russell, P.J. Roberts, D.C. Allan "Single-Mode Photonic Band Gap Guidance of Light in Air", Science, 285, 1537-1539, 1999.
- [119] G. Bouwmans, F. Luan, J.C. Knight, P.St.J. Russell, L. Farr, B.J. Mangan, H. Sabert, "Properties of a hollow-core photonic bandgap fiber at 850 nm wave-length", Opt. Expr., 11, 1613-1620, 2003.
- [120] J.C. Knight, "Photonic crystal fibres", Nature, **424**, 847-851, 2003.
- [121] F. Benabid, J.C. Knight, P.St.J. Russell, "Particle levitation and guidance in hollow-core photonic crystal fiber", Opt. Expr., 10, 1195-1203, 2002.
- [122] G. Humbert, J.C. Knight, G. Bouwmans, P.St.J. Russell, D.P. Williams, P.J. Roberts, B.J. Mangan, "Hollow core photonic crystal fibers for beam delivery", Opt. Expr., **12**, 1477-1484, 2004.
- [123] J.D. Shephard, J.D.C. Jones, D.P. Hand, G. Bouwmans, J.C. Knight, P.St.J. Russell, B.J. Mangan, "High energy nanosecond laser pulses delivered single-mode through hollow-core PBG fibers", Opt. Expr., 12, 717-723, 2004.
- T. Ritari, J. Tuominen, H. Ludvigsen, J.C. Petersen, T. Sørensen, T. P. Hansen, H.R. Simonsen, "Gas sensing using air-guiding photonic bandgap fibers", Opt. Expr., 12, 4080-4087, 2004.
- W.J. Wadsworth, A. Ortigosa-Blanch, J.C. Knight, T.A. Birks, T.-P. Martin Man,
  P.St.J. Russell, "Supercontinuum generation in photonic crystal fibers and optical fibre tapers: a novel light source", J. Opt. Soc. Am. B, 19, 2148-2155, 2002.
- [126] T. Udem, R. Holzwarth, T.W. Hänsch, "Optical frequency metrology", Nature, 416, 233-237, 2002.

- B. Povazay, K. Bizheva, A. Unterhuber, B. Hermann, H. Sattmann, A.F. Fercher, W. Drexler, A. Apolonski, W.J. Wadsworth, J.C. Knight, P.St.J. Russell, M. Vetterlein, E. Scherzer, "Submicrometer axial resolution optical coherence tomography", Opt. Lett., 27, 1800-1802, 2002.
- [128] T. Ritari, G. Genty, H. Ludvigsen, "Supercontinuum and gas cell in a single microstructured fiber", Opt. Lett., 30, 3380-3382, 2005.
- [129] J.C. Knight, T.A. Birks, R.F. Cregan, P.St.J. Russel, J.-P. de Sandro, "Large mode area photonic crystal fibre", Electr. Lett., **34**, 1347-1348, 1998.
- [130] T.A. Birks, J.C. Knight, P.St.J. Russell, "Endlessly single-mode photonic crystal fiber", Opt. Lett., 22, 961-963, 1997.
- [131] J.C. Knight, T.A. Birks, P.St.J. Russell, D.M. Atkin, "All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding", Opt. Lett., **21**, 1547-1549, 1996.
- [132] W.J. Wadsworth, J.C. Knight, W.H. Reeves, P.St.J. Russel, J. Arriaga, "Yb<sup>3+</sup>doped photonic crystal fibre laser", Electr. Lett., 36, 1452-1454, 2000.
- [133] J. Limpert, T. Schreiber, A. Liem, S. Nolte, H. Zellmer, T. Peschel, V. Guyenot,
  A. Tünnermann, "Thermo-optical properties of air-clad photonic crystal fiber lasers in high power operation", Opt. Expr., 11, 2982-2990, 2003.
- [134] C. Martelli, J. Canning, D. Stocks, M.J. Crossley, "Water-soluble porphyrin detection in a pure-silica photonic crystal fiber", Opt. Expr., 31, 2100-2102, 2006.
- [135] K. Mörl, Institute for Physical High Technology, Jena, private Mitteilung.
- [136] R. Paschotta, J. Nilsson, P.R. Barber, J.E. Caplen, A.C. Tropper, D.C. Hanna, "Lifetime quenching in Yb-doped fibres", Opt. Comm., **136**, 375-378, 1997.
- [137] Datenblatt der Fa. Crystal Fibre (Dänemark) für Photonic Crystal Fiber NL-1050-ZERO-2, <u>http://www.crystal-fibre.com/datasheets/NL-1050-ZERO-2.pdf</u>.

## Danksagung

Herrn Prof. Dr. Klaus Sengstock danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Forschungsgruppe durchführen zu können, sowie für die Förderung, die ich von ihm erfahren habe.

Herrn Priv. Doz. Dr. Valery M. Baev danke ich für die interessante Aufgabenstellung und die ausgezeichnete Betreuung.

Dem Graduiertenkolleg "Spektroskopie an lokalisierten atomaren Systemen – Felder und lokalisierte Atome – Atome und lokalisierte Felder" und seinem Sprecher Herrn Prof. Dr. Günter Huber danke ich für die Finanzierung dieser Arbeit.

Für die Einführung, Unterstützung und Diskussionen in der Anfangsphase meiner Arbeit gilt mein Dank Herrn Dr. Evgeny Ovchinnikov.

Für die hervorragende Zusammenarbeit danke ich Herrn Dipl. Phys. Benjamin Löhden und Herrn Philip von Ende. An der Stelle gilt mein großer Dank Herrn Prof. Dr. Sergei Cheskis von der School of Chemistry der Tel-Aviv University, Israel auch für die hervorragende Zusammenarbeit.

Den Herren Bera Pálsdóttir und Christian Larsen von OFS Fitel, Dänemark, danke ich für das Zurverfügungstellen von Er<sup>3+</sup>-dotierten Fasern. Auch Herrn Klaus Mörl vom Institute for Physical High Technology, Jena, danke ich für das Zurverfügungstellen von Yb<sup>3+</sup>-dotierten Photonic Crystal Fibers.

Herrn Dipl. Phys. Gerald Rapior, Herrn Dipl. Phys. Ortwin Hellmig und Herrn Dipl. Phys. Arnold Stark danke ich für die stete Unterstützung bei vielen Fragen und Angelegenheiten, sowohl im Beruflichen als auch im Privaten. Herrn Dr. Stefan Salewski sei an der Stelle für zahlreiche Hilfen auch gedankt.

Herrn Dipl. Phys. Oliver Back und Herrn Dipl. Phys. Tim Bonin danke ich für interessante Diskussionen zur Dynamik von Vielmoden-Lasern.

Für die Unterstützung in organisatorischen und administrativen Angelegenheiten danke ich Frau Victoria Romano, Frau Silke Frömmig, Frau Sabine Schreiner, Frau Sylke Strien und Herrn Ralf Lühr.

Dem Werkstattpersonal, insbesondere Herrn Frank Jonas, Herrn Stephan Garbers und Herrn Stephan Fleig danke ich für die tadellose und fristgerechte Fertigung vom Laborzubehör. Herrn Reinhard Mielk gilt mein Dank für die Unterstützung bei den Elektronikfragen. Herrn Dieter Barlösius danke ich für die Anfertigung von Spiegeln und Entspiegelungen.

Herrn Dipl. Phys. Jörg Schwenke und Herrn Florian Engel und allen anderen Mitgliedern der Forschungsgruppe "Quantengase und Spektroskopie" danke ich für die angenehme und freundliche Atmosphäre.

An meine Eltern, die mich auch in sehr schwierigen Lebenslagen während der Anfertigung dieser Arbeit unterstützt haben, richtet sich mein besonderer Dank.