

# Terahertz-Spektroskopie mit High-Speed ASOPS

*Albrecht Bartels, Thomas Dekorsy, Universität Konstanz*

Manuskripteingang: 16. November 2007; zur Veröffentlichung angenommen: 17. November 2007

Asynchrones Optisches Abtasten (engl. *asynchronous optical sampling, ASOPS*) ist eine Technik für ultraschnelle zeitaufgelöste Spektroskopie, die im Gegensatz zu konventionellen Methoden ohne mechanische Hilfsmittel zur Zeitverzögerung optischer Pulszüge auskommt. Dies ist zentrale Voraussetzung für eine drastische Verkürzung der Datenerfassungszeiten und ermöglicht Spektroskopie am Limit des Schrotrauschens ohne weitere Maßnahmen zur Unterdrückung technischen Rauschens. Die Verwendung von Femtosekundenlasern mit 1 GHz Pulswiederholrate ermöglicht erstmals *ASOPS* mit einer Zeitauflösung im Bereich von 100 fs. Dieses sogenannte *High-Speed ASOPS* wird damit auch für zeitaufgelöste Terahertz-Spektroskopie bei Frequenzen zwischen 100 GHz und einigen THz interessant. Hier wird ein *High-Speed-ASOPS*-basiertes THz-Spektroskopiesystem mit 3 THz Bandbreite und 1 GHz Frequenzauflösung demonstriert, das binnen nur 1 s Spektren mit hohem Dynamikbereich liefert.

**Schlagwörter:** Ultraschnelle Optik, Femtosekundenlaser, zeitaufgelöste Spektroskopie, THz-Spektroskopie

## THz Spectroscopy Based on High-Speed ASOPS

Asynchronous optical sampling (ASOPS) is a method for ultrafast time-domain spectroscopy that operates without mechanical delay generators that are common to conventional approaches. This is the central prerequisite for a massive reduction of data acquisition time and permits time-domain spectroscopy at the shot-noise limit without additional measures for suppression of technical noise. Mediated through the use of femtosecond lasers with 1 GHz repetition rate, ASOPS can be performed with a time-resolution close to 100 fs. This high-speed ASOPS approach is ideally suited for terahertz time-domain spectroscopy at frequencies ranging from approximately 100 GHz to a few THz. Here, we discuss a THz time-domain spectroscopy system based on high-speed ASOPS with 3 THz bandwidth and 1 GHz frequency resolution that delivers high dynamic range spectra within just 1 s of averaging time.

**Keywords:** Ultrafast optics, femtosecond laser, time-domain spectroscopy, THz spectroscopy

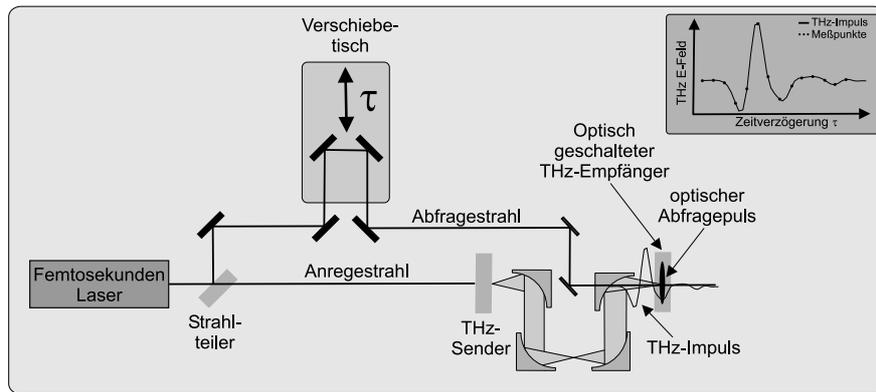
## 1 Einleitung

„Ultraschnelle“ Phänomene in Naturwissenschaften und Technik spielen sich auf einer Zeitskala zwischen ca. 10 fs und einigen 100 ps ab und entziehen sich damit der direkten Beobachtung mit üblichen elektronischen Instrumenten (Kameras, Oszilloskope, etc.). Dies gilt auch für den Spezialfall der elektromagnetischen Impulse, die im Frequenzbereich von 100 GHz bis zu einigen THz von optisch stimulierten photokonduktiven Schaltern oder optischen Gleichrichtern abgestrahlt werden. Das elektrische Feld dieser Impulse wird daher mit sogenannten optischen Korrelationstechniken visualisiert. Korrelationstechnik bedeutet dabei, dass identische THz-Impulse wiederholt durch optische Anregepulse erzeugt werden und zu einem definierten Zeitpunkt nach der Anregung mittels eines optischen Abfragepulses ein Schnappschuss des elektrischen Feldes aufgenommen wird. Eine Serie solcher Schnappschüsse zu verschiedenen Verzögerungspunkten wird dann letztlich zum ‚bewegten‘ Gesamtbild zusammengesetzt, das den THz-Impuls in Amplitude und Phase zeigt. Wenn der Impuls vor seiner Detektion einer Wechselwirkung mit einer Probe unterworfen war, können aus seinem zeitlichen Verlauf alle Informationen über Absorption und Dispersion der Probe im THz-Frequenzbereich gewonnen werden. Diese Art der impulsiven THz-Spektroskopie ist deshalb so nützlich, weil sie in der Lage ist, einen Frequenzbereich von 100 GHz bis zu einigen 10 THz mit einer einzigen Apparatur abzudecken, ohne dass Detektoren bei kryogenen Temperaturen verwendet werden müssen. Im Vergleich zu den gängigsten Dauerstrichmethoden und der Fourier-Transformations-Spektroskopie ist zudem vorteilhaft, dass die Detektion bei optischen Wellenlängen erfolgt und somit technisch ausgereifte, empfindliche und breitbandige Silizium- oder Galliumarsenid-basierte Detektoren zum Einsatz kommen können. Gerade in der jüngeren Vergangenheit hat die THz-Strahlung aufgrund vielfältiger Anwendungen beispielsweise in der Charakterisierung und Identifizierung von Festkörpermateriale, der Gasspektroskopie oder der Untersuchung biologischer Proben enorm an Bedeutung gewonnen [1–4].

Die für die Korrelationstechnik notwendigen Belichtungsimpulse mit einer Dauer von einigen 10 fs werden von modengekoppelten Femtosekundenlasern erzeugt. Am weitesten verbreitet sind Ti:Saphir-Femtosekundenlaser mit einer Ausgangsleistung von ca. 1 Watt im Wellenlängenbereich zwischen 700 nm und 1000 nm und einer Pulswiederholrate zwischen 5 MHz und 5 GHz. Eine zentrale Bedeutung kommt bei der ultraschnellen Spektroskopie der Art und Weise zu, wie der Verzögerungzeitpunkt der Abfragepulse gegenüber den Anregepulsen eingestellt wird.

## 2 Konventionelle Methoden zur zeitaufgelösten THz-Spektroskopie

In konventionellen Aufbauten zur zeitaufgelösten THz-Spektroskopie werden Anrege- und Abfragepulse verwendet, die mit Hilfe eines Strahlteilers aus ein und demselben Laser gewonnen werden. Die Anregepulse erzeugen durch Beleuchtung eines geeigneten Senders THz-Impulse. Diese werden dann an einem anderen Ort mit einem durch die Abfragepulse optisch geschalteten Empfänger, beispielsweise einer photokonduktiven Antenne oder einem elektro-optischen Kristall (z. B. ZnTe), detektiert. Entscheidend ist dabei, dass die Wegstrecke der Anregepulse vor Ankunft am Sender oder die der Abfragepulse vor Ankunft am Detektor variabel ist. Damit wird über die Lichtlaufzeit direkt der Zeitpunkt des Schnappschusses definiert, zu dem das elektrische Feld des THz-Impulses aufgenommen wird. Für eine Reihe von Weglängendifferenzen wird dann ein Wert erfasst, um die Daten später zu einem zeitlichen Gesamtverlauf zusammenzufügen (siehe Illustration in Bild 1). Die Einstellung der Wegstreckendifferenz erfolgt über einen Retroreflektor, der mittels eines Verschiebetisches definiert positioniert werden kann. Obwohl seit vielen Jahren erfolgreich praktiziert, hat diese Methode signifikante Nachteile. Erstens bewirkt die Trägheit des Verschiebetisches, dass pro Datenpunkt die meiste Zeit für das Beschleunigen und Abbremsen benötigt wird und nur relativ wenig Zeit zur Mittelung des Signals verbleibt. In aller Regel erfordert daher die Messung einer Transiente von 1 ns Dauer eine 100 fs Zeitauflösung, obwohl zur reinen Mittelung des Signals zwecks Rauschunterdrückung eigentlich eine Akkumulationszeit von weniger als eine Sekunde ausreichend wäre. Zweitens verursachen unvermeidliche Justagetoleranzen der beweglichen Einheit Kalibrierungsfehler in der experimentellen Zeitachse. Drittens bewirken diese Toleranzen und die Gauß'sche Laserstrahlkaustik während der Messung eine Variation der Strahlage und des Strahldurchmessers am Ort des Senders oder Empfängers und sind damit für Artefakte verantwortlich, die nur schwer vom echten Signal trennbar sind. Alternativ zu Verschiebetischen wurden in der Vergangenheit Ansätze verfolgt, bei denen der Retroreflektor auf einem mechanischen Schwinger montiert wurde. Diese Anordnung moduliert die Zeitverzögerung periodisch mit 10–100 Hz, während die Daten kontinuierlich erfasst werden können. Dies löst zwar teilweise das Problem der ‚verschwendeten‘ Zeit für Beschleunigen und Abbremsen des Verschiebetisches, alle anderen Probleme bleiben jedoch ungelöst. Zudem sorgt die mechanische Vibration in der Apparatur oft für einen störenden



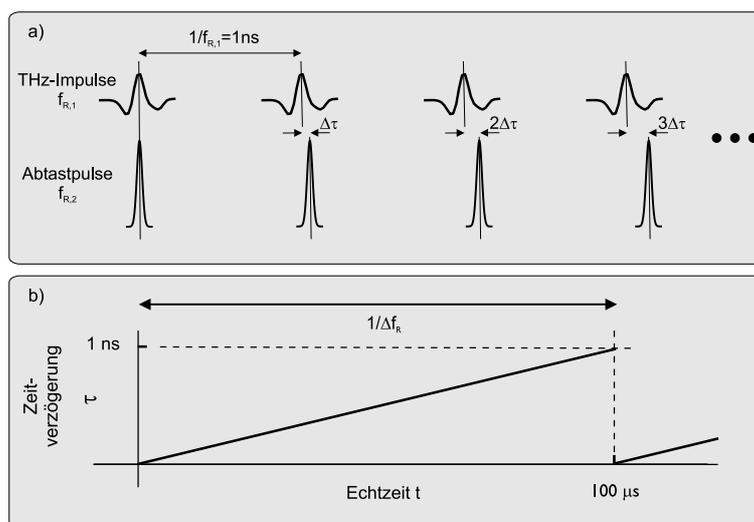
**Bild 1:** Konventioneller Aufbau zur zeitaufgelösten THz-Spektroskopie.  
**Figure 1:** Conventional setup for THz time-domain spectroscopy.

Signaluntergrund und der maximale Verzögerungs-  
 bereich eines mechanischen Schwingers ist bestenfalls auf  
 einige 10 ps begrenzt.

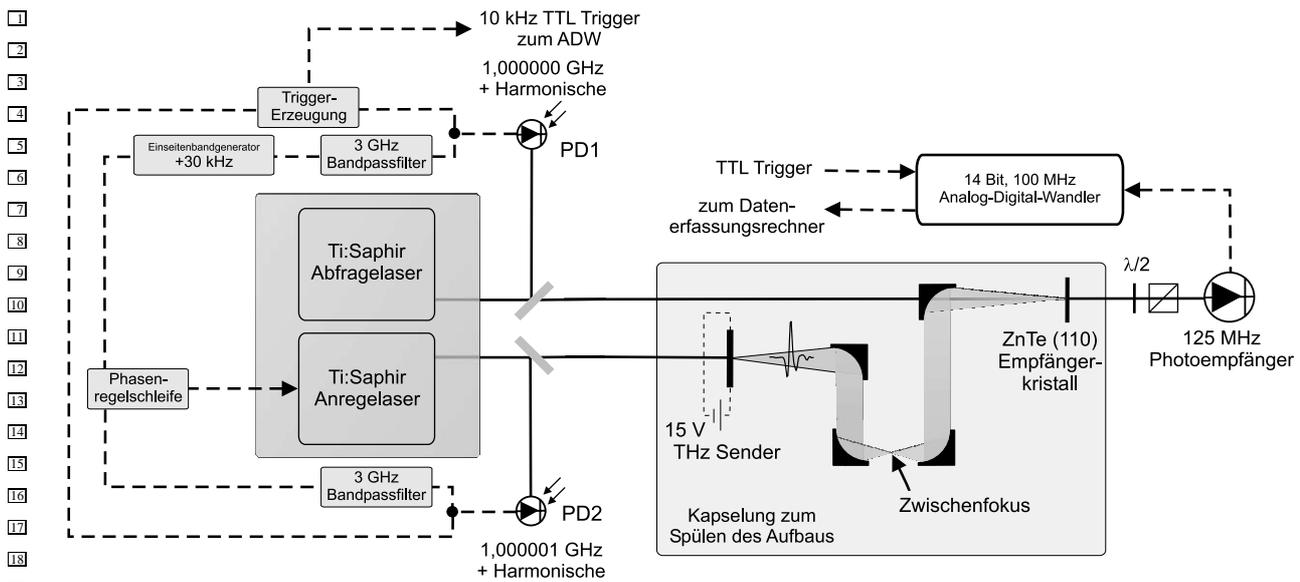
### 3 High-Speed ASOPS: Funktionsprinzip und Lasersystem

Asynchrones Optisches Abtasten (engl. *asynchronous*  
*optical sampling, ASOPS*) kommt gänzlich ohne me-  
 chanische Verzögerungseinheit aus und vermeidet somit  
 alle genannten Nachteile auf sehr elegante Weise. An-  
 statt Pulsen aus einem Laser auf mechanischem Weg

eine variable Wegstreckendifferenz aufzuprägen, werden  
 Anrege- und Abfrageimpulse jeweils aus einem separa-  
 ren Femtosekundenlaser gewonnen. Dabei sorgt eine  
 leichte, aber wohlkontrollierte Verstimmung der Puls-  
 wiederholraten dafür, dass die Verzögerung zwischen  
 den Pulzügen automatisch eine Rampe durchfährt. Hier  
 wird ein System präsentiert, bei dem Pulswiederhol-  
 raten von 1 GHz zur Anwendung kommen. Wird die  
 Pulswiederholrate des Anregelasers  $f_{R,1}$  um  $\Delta f_R$  von  
 10 kHz größer eingestellt als die des Abfragelasers  $f_{R,2}$ ,  
 bewirkt dies, dass die Verzögerung  $\tau$  zwischen sukzes-  
 siven Paaren von THz-Impulsen und Abfragepulsen in-  
 kremental um einen Betrag  $\Delta\tau = \Delta f_R / (f_{R,1} \times f_{R,2})$   
 wächst, hier also um 10 fs. Dieser Sachverhalt ist in  
 Bild 2a) illustriert. Ein Zyklus ist beendet, wenn nach



**Bild 2:** Illustration des Funktionsprinzips von *High-Speed ASOPS*.  
**Figure 2:** Schematic of the high-speed ASOPS timing principle.



**Bild 3:** Skizze eines *High-Speed-ASOPS-THz-Spektroskopiesystems*. Optische Strahlengänge sind durchgezogen gezeichnet, elektrische Signalwege gestrichelt. Weitere Erläuterungen im Text.

**Figure 3:** High-speed ASOPS THz time-domain spectroscopy system. Optical paths are represented by solid lines, electrical paths by dashed lines. See text for further details.

einer Echtzeit von  $\Delta f_R^{-1} = 100 \mu\text{s}$  die Abfragepulse eine Gesamtverzögerung von  $f_{R,1}^{-1} = 1 \text{ ns}$  akkumuliert haben. Sie treffen dann mit dem Maximum des vorhergehenden THz-Impulses zusammen und  $\tau$  wird auf null zurückgesetzt. Die Zeitverzögerung  $\tau$  zwischen THz-Impulsen und Abfragepulsen kann innerhalb eines Zyklus, wie in Bild 2b dargestellt, durch  $\tau = \Delta f_R / f_{R,1} \times t$  als Funktion der Echtzeit  $t$  ausgedrückt werden. Der Faktor  $\Delta f_R / f_{R,1} = 10^{-5}$  erlaubt dabei nach einer Messung die präzise Konvertierung eines Datensatzes von der Echtzeitskala zur Zeitverzögerungsskala. Das verfügbare Messfenster beträgt also  $f_{R,1}^{-1} = 1 \text{ ns}$ ; es wird mit einer Rate von  $\Delta f_R = 10 \text{ kHz}$  periodisch abgetastet. Um das hier vorgestellte System mit Pulswiederholraten von 1 GHz gegen Systeme mit weit geringeren Pulswiederholraten im Bereich von 100 MHz abzugrenzen, wird nachfolgend der Begriff *High-Speed ASOPS* verwendet.

Ein typisches *High-Speed-ASOPS-System* ist in Bild 3 skizziert. Die Anrege- und Abfragepulse werden von zwei in einem gemeinsamen temperaturstabilisierten Gehäuse befindlichen Femtosekundenlasern mit einer Pulswiederholrate von 1 GHz erzeugt (Doppellasersystem Gigajet TWIN, Gigaoptics GmbH). Beide Laser emittieren Pulse mit ca. 30 fs Dauer bei einer mittleren Leistung von etwa 1 W und einer zwischen 750 und 850 nm durchstimmbaren Zentralwellenlänge. Zur aktiven Stabilisierung der Differenz der beiden Pulswiederholraten werden je ca. 10 mW der Strahlleistungen mit Strahlteilern abgezweigt und mit schnellen Photodioden detektiert (PD1 und PD2). Das elektrische Signal

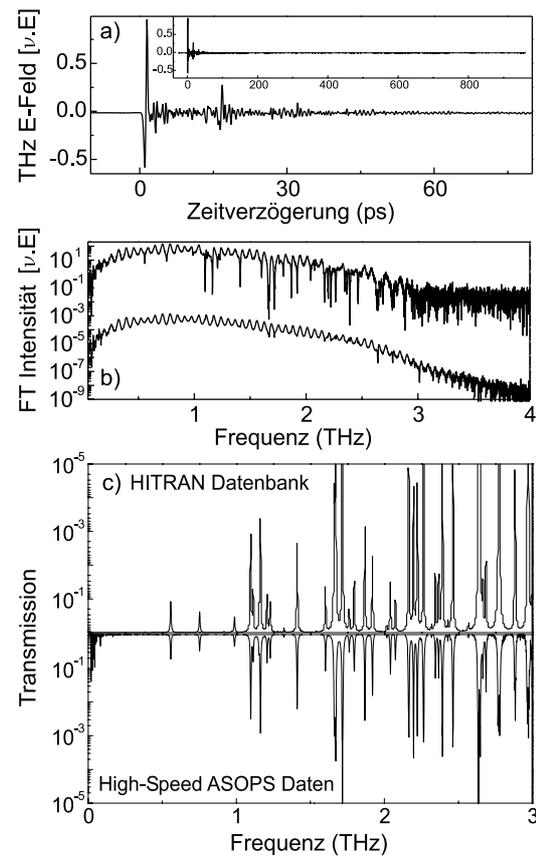
enthält alle Harmonischen der Pulswiederholraten, die innerhalb der 3 GHz Bandbreite der Photodioden liegen. Die 3. Harmonische des Abfragelasers  $3 \times f_{R,2}$  wird mit einem Bandpassfilter isoliert und mit einem Einseitenbandgenerator um 30 kHz verschoben. Die 3. Harmonische des Anregelasers  $3 \times f_{R,1}$  wird dann mit einer aktiven Phasenregelschleife auf dieses verschobene Signal stabilisiert, sodass die Pulswiederholraten eine konstante Differenz von 10 kHz aufweisen. Im Gegensatz zu einer Stabilisierung bei der fundamentalen Pulswiederholrate hat eine Stabilisierung bei einer höheren Harmonischen u. a. den Vorteil, dass die Regelschleife externe Störungen empfindlicher ausgleichen kann. Für dieses System wurde gezeigt, dass die Zeitauflösung über ein Fenster von 1 ns im Bereich von 120 fs liegt. Für Messungen, die sich auf 500 ps beschränken, wird sogar eine Auflösung von ca. 100 fs erreicht [5].

## 4 THz-Spektroskopie mit *High-Speed ASOPS*

Zur Realisierung eines THz-Spektroskopiesystems beleuchten die Pulse aus dem Anregelaser einen speziell für diese Anwendung optimierten Sender (TeraSED, Gigaoptics GmbH). Es handelt sich um einen großflächig elektrisch vorgespannten GaAs-Kristall, in dem die optisch erzeugten Elektron-Loch-Paare lateral beschleunigt werden und Strahlung im Bereich

zwischen etwa 100 GHz und 5 THz emittieren [6; 7].  
 Diese THz-Strahlung wird dann mit Hilfe von parabolischen Spiegeln kollimiert und zu einem Zwischenfokus, an dem eine Probe platziert werden kann, refofokussiert. Nach Wechselwirkung mit der Probe wird wiederum kollimiert und auf einen elektro-optischen ZnTe-Detektorkristall fokussiert. Die transmittierte THz-Strahlung induziert dort proportional zu ihrer Feldstärke eine Polarisationsdrehung der ebenfalls auf den ZnTe-Kristall fokussierten Abfragelaserpulse. Diese kann mit Hilfe von Polarisationsoptiken in eine Intensitätsänderung der Abfragestrahlintensität konvertiert werden. Die Intensitätsmodulationen werden wiederum mit einem 125-MHz-Photoempfänger (Modell 1801, New Focus) detektiert und mit einem 14-Bit-100-MHz-Analog-Digital-Wandler (CompuScope 14200, GaGe Applied Technologies) als Funktion der Echtzeit digitalisiert. Entsprechend dem Funktionsprinzip von ASOPS muss dann lediglich die Echtzeitachse mit dem Skalierungsfaktor  $\Delta f_R / f_{R,1}$  versehen werden, um direkt das elektrische Feld des THz-Impulses in seinem zeitlichen Verlauf zu erhalten. Die Erfassung einer einzigen Transiente erfordert lediglich 100  $\mu$ s. Zur Verminderung des Rauschens werden üblicherweise viele Transienten in Folge erfasst und gemittelt. Damit aufeinanderfolgende Transienten abgesehen vom Rauschen identisch sind, wird jede Messung des Analog-Digital-Wandlers (ADW) durch ein aus den Signalen von PD1 und PD2 synthetisiertes TTL-Triggersignal bei  $\Delta f_R$  mit  $< 10$  ns Anstiegszeit bei exakt derselben Verzögerung  $\tau$  gestartet. Der hier verwendete ADW hat die Fähigkeit, bis zu 1024 Transienten intern zu speichern und als gemittelten Datensatz an den Erfassungsrechner weiterzuleiten. Dort können wiederum beliebig viele solcher Datensätze gespeichert und zur weiteren Erhöhung des Signal-Rausch-Abstandes gemittelt werden. Dies sorgt dafür, dass die für Datentransfer erforderliche Zeit vernachlässigbar klein ( $< 10\%$ ) gegen die tatsächliche Mittelungszeit bleibt.

Bild 4a zeigt den vom Sender abgestrahlten THz-Impuls nach Durchgang durch die 42 cm lange Luftstrecke zwischen Sender und ZnTe-Empfängerkristall bei Umgebungsdruck und 52% relativer Luftfeuchte. Es befand sich keine Probe im Zwischenfokus. Für den gezeigten Datensatz wurden 1024 Einzeltransienten gemittelt, die gesamte Messdauer betrug  $T = 110$  ms, wobei bei etwa 7% für den Datentransfer benötigt werden. Zu negativen Zeitverzögerungen ( $\tau < 0$ ), also vor Ankunft des THz-Impulses auf dem ZnTe-Kristall, ist kein Rauschen auf den Daten erkennbar. Der eigentliche THz-Impuls erscheint zum Zeitnullpunkt und ist gefolgt von Modulationen, die hauptsächlich durch die Absorption der in der Umgebungsluft enthaltenen Wassermoleküle bedingt sind. Zusätzlich sind Echos des Hauptpulses im Abstand von Vielfachen von ca. 16 ps zu erkennen,



**Bild 4:** a) Vom Sender abgestrahlter THz-Impuls nach Durchgang durch 42 cm Umgebungsluft bei 52% Luftfeuchte (Datenerfassungszeit 110 ms). b) Oben: Spektrum eines Signals wie unter a) gezeigt, aber mit Datenerfassungszeit von 1,1 s. Modulationen sind Fabry-Perot-Interferenzen am Senderchip. Unten: Spektrum eines Signals unter Spülung des Aufbaus mit Trockenluft mit 110 s Datenerfassungszeit. c) Oben: Transmissionsspektrum von gasförmigem Wasser unter den gegebenen Umgebungsluftbedingungen, zusammengestellt aus der HITRAN-Datenbank. Unten: mit *High-Speed ASOPS* gemessenes Transmissionsspektrum der Umgebungsluft.

**Figure 4:** a) THz pulse after transmission through 42 cm of ambient air at 52% relative humidity (total acquisition time 110 ms). b) Top: Spectrum of signal as shown in a) with total acquisition time of 1.1 s. The modulation is due to Fabry-Perot interference within the emitter chip. Bottom: Spectrum of signal under dry-air purging of the setup with 110 s acquisition time. c) Top: Transmission spectrum of gaseous water in ambient air compiled from HITRAN data base. Bottom: Transmission spectrum of ambient air measured with high-speed ASOPS system.

die von Vielfachreflexionen innerhalb des  $700\ \mu\text{m}$  dicken Senderchips herrühren. Bild 4b zeigt die Fourier-Transformation (FT) desselben Signals, aber mit  $10 \times 1024$  Mittelungen, d. h.  $T = 1,1\ \text{s}$ . Die Modulationen im Spektrum sind durch den Senderchip bedingte Fabry-Perot-Interferenzen. Außerdem sind deutlich scharfe Absorptionslinien, wiederum bedingt durch Wassermoleküle in der Umgebungsluft, zu erkennen. Weiterhin abgebildet ist die FT eines Signals, das unter Spülung des Aufbaus mit Trockenluft (Restluftfeuchte  $< 2\%$ ), diesmal mit  $1000 \times 1024$  Mittelungen, d. h.  $T = 110\ \text{s}$ , aufgenommen wurde. Der Signal-Rausch-Abstand beträgt nach  $1,1\ \text{s}$  ca.  $37\ \text{dB}$ , nach  $110\ \text{s}$  ca.  $57\ \text{dB}$ . Eine detaillierte Analyse zeigt, dass diese Werte durch das Photoempfänger-Schrotrauschen bedingt sind. Ab einer Messzeit von ca.  $1\ \text{s}$  steht mit dem System eine nutzbare Bandbreite von  $3\ \text{THz}$  zur Verfügung. Durch Bildung des Quotienten aus der FT einer Transiente, die unter Umgebungsbedingungen  $110\ \text{s}$  lang gemittelt wurde, und des in Bild 4b gezeigten Trockenluftspektrums wurde das in Bild 4c gezeigte Transmissionspektrum der Umgebungsluft gewonnen. Die Fabry-Perot-Interferenzen auf den FTs in Bild 4b sind dabei so reproduzierbar, dass sie sich in der Transmissionsdarstellung nicht mehr bemerkbar machen. Bild 4c zeigt zudem das aus der HITRAN-Datenbank gewonnene Transmissionspektrum von  $42\ \text{cm}$  Luft unter den gegebenen Luftfeuchtebedingungen auf einer invertierten Skala [8]. Der Vergleich mit den experimentell gewonnenen Daten zeigt eine exzellente Übereinstimmung der Linienpositionen über den gesamten Frequenzbereich, Abweichungen liegen unterhalb des Auflösungslimits von  $1\ \text{GHz}$ . Bis zu  $2,5\ \text{THz}$  stimmt die Messung auch in den absoluten Absorptionsstärken mit den Werten der HITRAN-Datenbank sehr gut überein. Zu höheren Frequenzen hin macht sich der schlechter werdende Signal-Rausch-Abstand sowie auch Restfeuchte in der verwendeten Trockenluft in größeren Abweichungen bemerkbar.

## 5 Designkriterien und Vorteile

ASOPS ist als Technik nicht neu, sondern wurde bereits 1987 mit modengekoppelten Pikosekundenlasern demonstriert [9]. Dort war die Zeitauflösung naturgemäß durch die Dauer der Laserpulse auf Werte jenseits  $1\ \text{ps}$  begrenzt. Es stellt sich jedoch die Frage, warum trotz der Verfügbarkeit von zuverlässigen Ti:Saphir-Femtosekundenlasern seit den frühen Neunzigern erst 2006 der wirkliche Durchbruch der Technologie in der ultraschnellen Spektroskopie mit Zeitauflösungen im Bereich von  $100\ \text{fs}$  gelungen ist. Dies begründet sich größtenteils darin, dass bei früheren ASOPS-

Experimenten mit Femtosekundenlasern vergleichsweise geringe Pulswiederholraten im Bereich von  $100\ \text{MHz}$  zum Einsatz kamen [10; 11]. In Kombination mit der Tatsache, dass in praktischen Systemen nur eine begrenzte Bandbreite  $B$  zur Detektion, Signalaufbereitung (z. B. durch Stromverstärker) und zur hochauflösenden Digitalisierung zur Verfügung steht, verhindert dies Zeitauflösungen, die sich nennenswert unterhalb einer Pikosekunde bewegen. In einem optimierten System liegt der derzeit beste Wert für  $B$  bei etwa  $125\ \text{MHz}$ . Er ist vor allem durch erhältliche ADWs gegeben. Diese sollten mindestens  $14\ \text{Bit}$  zur Verfügung stellen, um an der Grenze des Schrotrauschens messen zu können (und damit die Vorteile von ASOPS voll auszunutzen). Die effektive Auflösung in Echtzeit beträgt damit  $B^{-1} = 8\ \text{ns}$ . Die Zeitauflösung für ein ASOPS-Experiment erhält man durch Multiplikation mit dem bekannten Konvertierungsfaktor  $\Delta f_R / f_{R,1}$ . Eine gute Zeitauflösung kann also durch eine hohe Pulswiederholrate  $f_{R,2}$  oder eine geringe Differenz  $\Delta f_R$  erzielt werden. Mit Parametern des oben beschriebenen High-Speed-ASOPS-Systems ergeben sich  $80\ \text{fs}$ . Bei Verwendung eines Systems mit  $100\ \text{MHz}$  Pulswiederholrate und  $\Delta f_R$  sind es dagegen nur  $800\ \text{fs}$ . Zusätzlich ist das fundamentale Verzögerungsincrement  $\Delta \tau$  dann unabhängig von  $B$  sogar nur bei  $1\ \text{ps}$ . Dies ist für die meisten Anwendungen der ultraschnellen Spektroskopie bei Weitem nicht ausreichend. Der Nachteil der geringen Pulswiederholrate könnte theoretisch bei einem  $100\text{-MHz}$ -System durch eine Verringerung der Differenz  $\Delta f_R$  auf  $1\ \text{kHz}$  ausgeglichen werden. Dies ist jedoch in einem praktischen System ausgeschlossen, da wesentliche Störeinfüsse auf das System, meist akustischen Ursprungs, bei höheren Frequenzen bis etwa  $2\ \text{kHz}$  auftreten. Damit ist  $1\ \text{kHz}$  als Abtastrate nicht mehr ausreichend, um sowohl technisches Intensitätsrauschen als auch Restabweichungen der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfragepulsen von der idealen linearen Beziehung  $\tau = \Delta f_R / f_{R,1} \times t$  effizient zu unterdrücken. Zudem läge  $\Delta f_R$  dann innerhalb der zur Laserstabilisierung erforderlichen Regelbandbreite von einigen Kilohertz, sodass inhärent auftretende elektronische Störbeiträge bei  $\Delta f_R$  auf die Pulswiederholrate und gegebenenfalls auch auf die Ausgangsleistung des Anregelasers moduliert würden und damit für systematische Fehler in der Kalibrierung der Zeitverzögerungsachse und für einen störenden Signaluntergrund sorgen [5]. Praktisch sind gegenwärtig Werte von  $\Delta f_R$  unterhalb ca.  $5\ \text{kHz}$  ausgeschlossen, wenn eine Zeitauflösung im Bereich von  $100\ \text{fs}$  angestrebt ist.

Einer der wichtigsten Vorteile von High-Speed ASOPS gegenüber konventioneller Messtechnik mit mechanischen Verzögerungseinheiten ist neben der schnellen Messgeschwindigkeit die Tatsache, dass mit  $10\ \text{kHz}$  die Signalabtastung bei einer Frequenz stattfindet, die

1 weit oberhalb dominanter Beiträge des technischen  
 2 Rauschens liegt. Daher können mit *High-Speed-ASOPS*-  
 3 Messungen ohne weitere technische Maßnahmen, wie  
 4 *Lock-in*-Messtechnik oder balancierte Detektion, an der  
 5 Grenze des Schrotrauschens durchgeführt werden. Tech-  
 6 nisches Rauschen kann sich allenfalls in einem Versatz  
 7 der Feldstärke des THz-Impulses um ein statisches Feld  
 8 auswirken. Da jedoch bekannt ist, dass das elektrische  
 9 Feld im ZnTe-Kristall vor Auftreffen des THz-Pulses  
 10 null ist, ist dies bedeutungslos.  
 11 Der Geschwindigkeitsvorteil von *High-Speed ASOPS*  
 12 kann anhand einer hypothetischen Messung mit 1 GHz  
 13 Frequenzauflösung, 3 THz Bandbreite und einem Dyna-  
 14 mikbereich von 40 dB in der spektralen Intensität ver-  
 15 anschaulicht werden. Diese Anforderungen wären bei-  
 16 spielsweise typisch in der Gasspektroskopie und wurden  
 17 so auch mit dem hier vorgestellten *High-Speed-ASOPS*-  
 18 System verwirklicht. Dafür muss ein Fenster von 1 ns  
 19 mit etwa einem Datenpunkt pro 100 fs Zeitverzögerung  
 20 abgetastet werden. Insgesamt müssen also 10 000 Daten-  
 21 punkte erfasst werden, bei einem konventionellen Sys-  
 22 tem muss der Verschiebetisch dazu um insgesamt 15 cm  
 23 bewegt werden. Der THz-Impuls aus dem hier verwen-  
 24 deten Sender verursacht an seinem Maximum eine re-  
 25 lative Änderung des von der Photodiode gemessenen  
 26 Stroms von etwa  $10^{-4}$ . Um noch ein Hundertstel die-  
 27 ses Spitzenwertes vom Rauschen trennen zu können und  
 28 am Maximum der spektralen Intensität einen Dynamik-  
 29 bereich von etwa 40 dB zu erhalten, ist bei ausschließli-  
 30 cher Berücksichtigung des Schrotrauschens (5 mW Leis-  
 31 tung auf der Photodiode, 0,5 A/W Empfindlichkeit) eine  
 32 Mittelungszeit von 60  $\mu$ s pro Datenpunkt erforderlich.  
 33 Bei *High-Speed ASOPS* wird diese Zeit durch Mittelung  
 34 über 6000 Einzelmessungen akkumuliert. Dafür wird  
 35 inklusive Datentransfer mit ca. 650 ms etwas weniger  
 36 als eine Sekunde benötigt. Mit konventioneller Technik  
 37 dagegen verbleibt der Verschiebetisch an jedem Verzö-  
 38 gerungszeitpunkt für die Mittelungszeit von 60  $\mu$ s und  
 39 fährt dann zum nächsten Punkt, bis das ganze Mess-  
 40 fenster abgedeckt ist. Zwischen zwei Punkten benötigt  
 41 der schnellste den Autoren bekannte und geeignete Ver-  
 42 schiebetisch (IMS-LM Serie, Newport) zum Beschleuni-  
 43 gen und Abbremsen jeweils etwa 2 ms. Eine komplette  
 44 Messung erfordert also mindestens 21 s, ohne Berück-  
 45 sichtigung von Datentransferzeiten. Völlig außer Acht  
 46 gelassen wurde bei dieser Betrachtung zudem, dass all-  
 47 gemein zur Unterdrückung von technischem Rauschen  
 48 *Lock-in* Messtechnik mit Zeitkonstanten von deutlich  
 49 mehr als 60  $\mu$ s verwendet werden muss, um technisches  
 50 Rauschen ausreichend zu unterdrücken. *High-Speed*  
 51 *ASOPS* ist also mindestens um eine Größenordnung  
 52 schneller als vergleichbare konventionelle Techniken mit  
 53 mechanischer Verzögerungseinheit.  
 54  
 55

## 6 Zusammenfassung

Zusammenfassend weist *High-Speed ASOPS* bedeutende  
 Vorteile, insbesondere in Bezug auf Geschwindigkeit  
 und Präzision, gegenüber konventionellen Methoden  
 zur zeitaufgelösten Spektroskopie auf. Messungen kön-  
 nen binnen weniger Millisekunden, im Extremfall in  
 nur 100  $\mu$ s, durchgeführt werden, sodass das hier vorge-  
 stellte System zur THz-Spektroskopie ohne Weiteres die  
 Fähigkeit zur Echtzeitspektroskopie bzw. zum ‚Online-  
 Monitoring‘ hat. Dies ist beispielsweise von großer Be-  
 deutung für Experimente unter schnell veränderlichen  
 Umgebungsbedingungen oder für Bildgebungsanwen-  
 dungen, die spektrale Informationen verwerten. *High-  
 Speed ASOPS* hat sich spätestens mit der Möglichkeit,  
 Zeitaufösungen im Bereich von 100 fs zu erreichen,  
 als wichtige Messtechnik etabliert und wird inzwischen  
 routinemässig in unterschiedlichen Bereichen der ul-  
 traschnellen Spektroskopie angewendet. Neben der THz-  
 Spektroskopie mit ihren vielen Anwendungsgebieten  
 zählen dazu auch rein optische Untersuchungen dyna-  
 mischer Prozesse in Halbleitern und Nanostrukturen  
 oder auch die Dünnschichtmetrologie, basierend auf  
 Pikosekunden-Ultraschall [5; 12–15].

Teile dieser Arbeiten wurden durch das Ministe-  
 rium für Wissenschaft, Forschung und Kunst des Landes  
 Baden-Württemberg unterstützt. Die in Bild 4c verwen-  
 dete Aufbereitung von HITRAN-Daten wurde dankens-  
 werterweise von Prof. H. Harde zur Verfügung gestellt.

### Literatur

- [1] M. Tonouchi, *Nature Photonics* **1**, 97 (2007).
- [2] D. Middleman (ed.), *Sensing with THz Radiation*,  
(Springer, Heidelberg, 2002) and references therein.
- [3] H. Harde und D. Grischkowsky, *J. Opt. Soc. Am. B*  
**8**, 6038 (2001).
- [4] C. Kistner, A. Andre, T. Fischer, A. Thoma,  
C. Janke, A. Bartels, T. Gisler, G. Maret, T. Dekorsy,  
*Appl. Phys. Lett.* **90**, 233902 (2007).
- [5] A. Bartels, R. Cerna, C. Kistner, A. Thoma, F. Hu-  
dert, C. Janke und T. Dekorsy, *Rev. Sci. Instrum.*  
**78**, 035107 (2007).
- [6] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy und M. Helm,  
*Appl. Phys. Lett.* **86**, 121114 (2005).
- [7] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, M. Helm und T. Dekorsy,  
*Opt. Lett.* **31**, 1546 (2006).
- [8] High-resolution transmission molecular absorption  
database (HITRAN),  
<http://cfa-www.harvard.edu/HITRAN/>
- [9] P. A. Elzinga, F. E. Lytle, Y. Jian, G. B. King, and  
N. M. Laurendeau, *Appl. Opt.* **26**, 4303 (1987).
- [10] T. Yasui, E. Saneyoshi, and T. Araki, *Appl. Phys.*  
*Lett.* **87**, 061101 (2005).

- [1] [11] M. S. Brown, G. J. Fiechtner, J. V. Rudd, D. A. Zim-  
 [2] dars, M. Warmuth, and J. R. Gord, *Applied*  
 [3] *Spectroscopy* **60**, 261 (2006).  
 [4] [12] T. Dekorsy, F. Hudert, R. Cerna, H. Schäfer,  
 [5] C. Janke, A. Bartels, K. Köhler, S. Braun, M. Wie-  
 [6] mer und S. Mantl, *Proc. SPIE* **6393**, 1, 63930H-11  
 [7] (2006).  
 [8] [13] A. Plech, R. Cerna, V. Kotaidis, F. Hudert,  
 [9] A. Bartels und T. Dekorsy, *Nano Letters* **7**, 1026  
 [10] (2007).  
 [11] [14] R. Taubert, F. Hudert, A. Bartels, F. Merkt, A. Ha-  
 [12] benicht, P. Leiderer und T. Dekorsy, *New J. Phys.*,  
 [13] in press (2007).  
 [14] [15] A. Bartels, F. Hudert, C. Janke, T. Dekorsy und  
 [15] K. Köhler, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 041117 (2006).



**Dr. Albrecht Bartels** studierte an  
 der RWTH Aachen, wo er 1997 das  
 Physik-Diplom erhielt und 2000 am  
 Institut für Halbleitertechnik prom-  
 ovierte. Er ist seit 2000 Geschäftsfüh-  
 rer der Gigaoptics GmbH und war  
 zudem von 2001 bis 2004 am US  
 National Institute of Standards and  
 Technology als Postdoc tätig. Seit

2005 ist er auch Nachwuchsgruppenleiter am Centrum  
 für Angewandte Photonik der Universität Konstanz. Ar-  
 beitsgebiete sind Femtosekundenlaser-Frequenzkämme,  
 Femtosekundenspektroskopie und THz-Spektroskopie.  
**Adresse:** Centrum für Angewandte Photonik, Uni-  
 versität Konstanz, Universitätsstr. 10, 78457 Konstanz,  
 E-Mail: albrecht.bartels@uni-konstanz.de



**Prof. Dr. Thomas Dekorsy** stu-  
 dierte Physik an der RWTH Aa-  
 chen, wo er 1996 promovierte  
 und bis 2000 als Oberingenieur  
 des Instituts für Halbleitertechn-  
 ik tätig war. 2000–2005 war er  
 Abteilungsleiter Halbleiterspek-  
 troskopie am Forschungszentrums  
 Dresden-Rossendorf. Seit 2005 ist

er Professor für Experimentalphysik an der Universi-  
 tät Konstanz und stellvertretender Leiter des Centrums  
 für Angewandte Photonik. Seine Arbeitsgebiete sind  
 Femtosekunden- und THz-Spektroskopie.

**Adresse:** Centrum für Angewandte Photonik, Uni-  
 versität Konstanz, Universitätsstr. 10, 78457 Konstanz,  
 E-Mail: thomas.dekorsy@uni-konstanz.de

[1]  
[2]  
[3]  
[4]  
[5]  
[6]  
[7]  
[8]  
[9]  
[10]  
[11]  
[12]  
[13]  
[14]  
[15]  
[16]  
[17]  
[18]  
[19]  
[20]  
[21]  
[22]  
[23]  
[24]  
[25]  
[26]  
[27]  
[28]  
[29]  
[30]  
[31]  
[32]  
[33]  
[34]  
[35]  
[36]  
[37]  
[38]  
[39]  
[40]  
[41]  
[42]  
[43]  
[44]  
[45]  
[46]  
[47]  
[48]  
[49]  
[50]  
[51]  
[52]  
[53]  
[54]  
[55]