

## Schlussbericht

- zum Vorhaben:** Pumplaser für ETPA-Lichtquellen und Fluoreszenzmessungen an einem Spektrometer mittels ETPA-Anregung
- des Verbundprojekt:** Exploiting Entangled two-photon absorption - E2TPA
- Zuwendungsempfänger:** PicoQuant GmbH. Unternehmen für optoelektronische Forschung und Entwicklung
- Förderkennzeichen:** 13N16353
- Laufzeit des Vorhabens:** 01.07.2022 – 30.06.2025

Der vorliegende Bericht ist zur Veröffentlichung bestimmt. Ggf. vertrauliche Ergebnisse/Informationen werden im Erfolgskontrollbericht dargestellt.

## Zusammenfassung

Das Teilprojekt verfolgte drei Ziele: Die Erforschung gepulster Laser-Pumpquellen bei 532 nm als Grundlage für die Erzeugung verschränkter Photonenpaare in Lithium-Niobat-Quellen an der Universität Paderborn, sowie den Aufbau eines Demonstrators einer ETPA-Quelle basierend auf den Vorarbeiten an den Universitäten in Paderborn und Genf und der Demonstration von Zweiphotonen-Anregung in der Spektroskopie.

Das erste Ziel wurden vollständig erreicht. Das zweite und dritte Ziel wurde in Abstimmung mit dem VDI nicht weiterverfolgt und damit auch nicht erreicht.

Die gepulsten Pumplaser bei 532 nm wurden erfolgreich erforscht und als Demonstratoren dem Projektpartner Universität Paderborn fristgerecht und mit den gemeinsam erarbeiteten Spezifikationen bereitgestellt. Mittels der beiden Pumplaser konnten verschränkte Photonenpaare in Lithium-Niobat-Quellen grundsätzlich realisiert werden. Es zeigte sich jedoch, dass die Verwendung von gepulsten Lasersystemen für das verwendete Materialsystem zu keinen signifikanten Vorteil bei ETPA Messungen gegenüber CW-Lasern führt.

Da sich im Laufe des Projektes herausgestellt hat, dass die Methode ETPA nicht universell einsetzbar ist, wurden der Aufbau des Demonstrators und die Applikationstests nicht durchgeführt.

## 2 Hauptteil

### 2.1 Ergebnisse und Arbeiten zu dem einzelnen Arbeitspaketen

#### AP 1: Systemspezifikationen & Analyse des wiss.-techn. Fortschritts (alle)

##### Ziele:

In diesem AP war der wissenschaftliche Austausch aller Projektpartner bezüglich der Systemspezifikationen (elektronische, optische, mechanische und Steuerungsschnittstellen zwischen den einzelnen Subkomponenten) das Ziel.

##### Ergebnisse:

Dieses AP wurde über die gesamte Projektlauf durch online Zwischenmeetings als auch Vorort Meetings in Genf und Torun dauerhaft bearbeitet. Seine direkten Ausarbeitungen flossen in jedes Einzelarbeitspaket und ermöglichten den fließenden Arbeitsablauf durch beständigen Austausch der Projektpartner bezüglich ihrer jeweiligen neuen Erkenntnisse.

##### Soll/Ist-Vergleich:

Die Gesamtziele des AP 1 wurden für AP 2 erreicht. Die Erkenntnisse aus dem AP waren auch Grundlage für die Entscheidung nach ca. der Hälfte der Projektlaufzeit die AP 3 und 4 nicht weiter zu verfolgen.

#### AP2: Pumplaser bei 532nm (PQ, UPB)

Für die effiziente Erzeugung verschränkter Photonenpaare im Rahmen des Verbundprojektes waren schmalbandige, gepulste Laserquellen bei 532 nm mit sowohl Pikosekunden als auch variablen Nanosekundenpulsen zu erforschen.

Zur Realisierung dieser Anforderungsschar entwickelte PicoQuant basierend auf der vorhandenen jahrelangen Erfahrung mit faserverstärkten Lasersystemen zwei verschiedene Laser-Pumpquellen. Dabei wurden die Arbeitsschritte in zwei Unterarbeitspunkte gegliedert, welche nachfolgend einzeln bezüglich ihrer Umsetzung und ihren Ergebnissen beschrieben werden.

AP 2.1 ps-gepulster Pumplaser bei 532 nm

AP 2.2 ns-gepulster Pumplaser mit variablen Pulsbreiten bei 532 nm

#### AP 2.1 ps-gepulster Pumplaser bei 532 nm

##### Ziele:

Ziel des AP 2.1 war es zeitnah nach Projektstart einen 532 nm-Pumplaser mit Pulsen im Bereich <100 ps mit variablen Wiederholraten der Universität Paderborn zur Verfügung zu stellen. Dieser Laser wurde benötigt, um fundamentale Untersuchungen zur Generierung der verschränkten Photonenpaare durchzuführen.

##### Ergebnisse:

Zur Bereitstellung dieses Lasers wurde auf die [VisUV/IR](#)-Produktfamilie von PicoQuant zurückgegriffen, einer Produktlinie die auf dem Master Oscillator Fiber Amplifier (MOFA) Konzept mit optionaler Frequenzkonversionsstufen basiert.

Es entstand ein zweistufiges Verstärkersystem welches Ytterbium-dotierte Fasern als Verstärkungsmedium nutzt. Als Seeddiode wurde eine selektierte DFB-Diode bei 1064 nm eingesetzt, mittels derer eine Halbwertsbreite der Pulslänge von 92 ps sowie eine spektrale Halbwertsbreite von 100 pm erreicht werden konnte (s. Abb. 1). Die Pulsenergie liegt zudem stabil bei  $18 \pm 2$  pJ über einen weiten Bereich von Wiederholraten von 32 kHz bis 80 MHz.

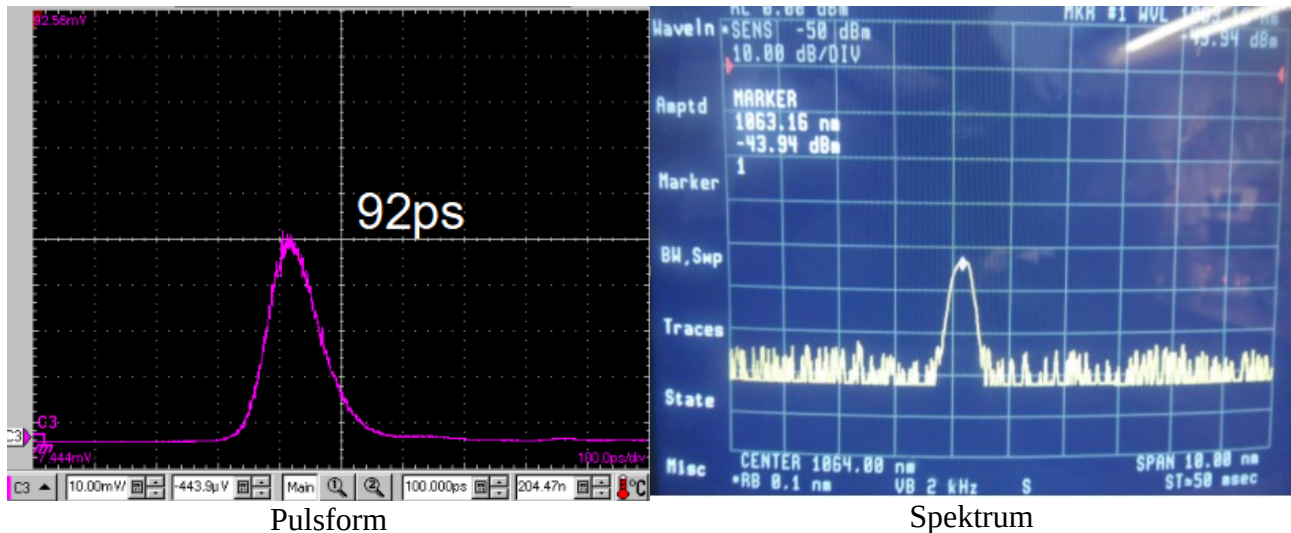


Abb 1: Pulsform und Spektrum der selektierten Seed-Laserdiode bei 80 MHz

Im zweiten Schritt erfolgte der Aufbau eines zweistufigen Faserverstärkers für die Seedwellenlänge 1064 nm. Besonderes Augenmerk lag hier auf der Vermeidung von spektraler Verbreiterung durch nicht-lineare Effekte aufgrund zu langer Propagation in optischen Fasern. Daher wurden Faserkomponenten mit besonders kurzen Eingangs- und Ausgangsfasern verbaut sowie die Faserlängen der Verstärkerfasern so kurz wie nötig gewählt. Die Pulsenergie wurde entsprechend gesteigert von ursprünglich 18 pJ des Seedlasers auf etwa 13.5 nJ nach der zweiten Verstärkerstufe. Die spektrale Breite des Nutzsignals wurde innerhalb der Messgenauigkeit nicht signifikant verändert.

Über nachfolgende SHG-Stufe bestehend aus einem nichtlinearen Kristall (Material: PPLN, periodisch gepolter Lithium Niobat Kristall) und passenden Fokussierungsoptiken wurde das Seedsignal von 1064 nm dann auf die Zielwellenlänge 532 nm umgewandelt. Die final erzielte Pulsenergie bei 532 nm liegt bei 6.9 nJ, was etwa 50% Konversionseffizienz entspricht. Die Pulslänge verkürzt sich durch die Frequenzkonversion zudem auf 80 ps (s. Abb. 2). Die maximale theoretische Verkürzung um einen Faktor 0.7 wird nicht ganz erreicht, da Sättigungseffekte im Konversionsprozess der Verkürzung entgegenwirken. Der Laser wurde im Dezember 2022 an die Universität Paderborn übergeben.

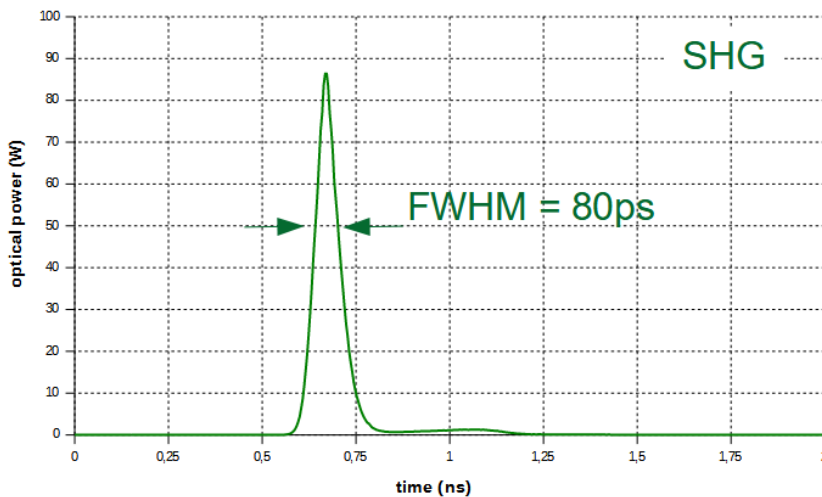


Abb. 2: Pulsform nach Frequenzkonversion zu 532 nm bei 80 MHz.

### Soll/Ist-Vergleich:

Die Gesamtziele des Arbeitspakets 2.1 wurden vollumfänglich erreicht.

## AP 2.1 ns-gepulster Pumplaser mit variablen Pulsbreiten bei 532 nm

### Ziele:

Ziel des AP 2.2 war die Erforschung eines Pumplaser mit variablen Nanosekundenpulsen bei 532 nm. Für diese Pumpquelle wurden zu Projektbeginn mit der Universität Paderborn folgende Zielparameter vereinbart:

Parameter	Zielwert
Wellenlänge	532 nm
Pulsbreite	0.5...95 ns; variabel oder CW
Wiederholrate	~10 MHz (9.76 MHz)
Trigger	intern
Mittlere Leistung	25 mW
Spitzenleistung	invers zur Pulslänge, 5...500 mW
Spektrale Breite	Faktor von 1...3x des Fourier Limits
Ausgang	PM Faser, FC/APC Anschluss
Pulsform	Rechteck, <1 ns steigende/fallende Flanke

Tabelle 1: Vereinbarte Parameter / Eigenschaften für den ns-Laser

### Ergebnisse:

Die Erzeugung der gewünschten Pulsparameter ist über Frequenzkonversion einer nachverstärkten Laserdiode bei 1064 nm realisiert wurden. Dabei mussten zwei Probleme, „Overshoot“ und „Nichtlinearitäten in der Verstärkung“ im Laufe des Projektes gelöst werden.

## Overshoot

Das sehr schnelle An- und Ausschalten des Betriebsstromes führt bei Laserdioden zu Oszillationen der Pulsamplitude an der ansteigenden Flanke des Pulses und nicht zu einer Rechteckform (s. Abbildung 3). Dieser sogenannte *Overshoot* ist inhärent und lässt sich auch durch optimierte elektrische Schaltungen nicht komplett vermeiden

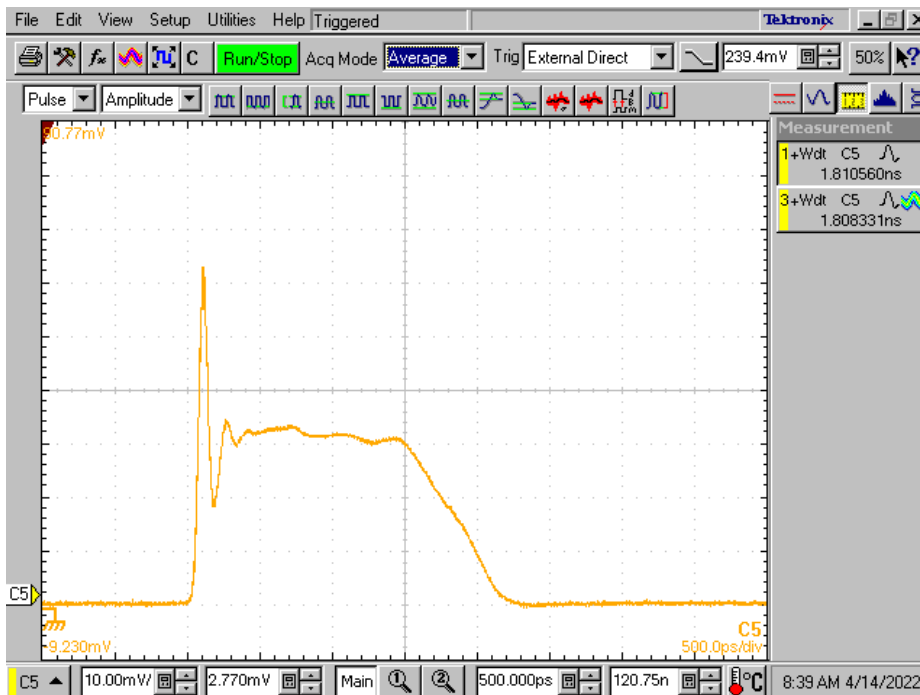


Abbildung 3: Beispiel einer direkt modulierten Laserdiode und dem charakteristischen Einschwingverhalten mit Overshoot.

Zur Verringerung des *Overshoots* besteht die gewählte Lösung daher darin, nicht die Laserdiode sondern einen Halbleiterverstärker (*Semiconductor Optical Amplifier – SOA*) über geeignete elektrische Signale zu pulsen. Durch die Kombination einer kontinuierlich laufenden Laserdiode und der anschließenden Modulation des Signals mittels SOA folgt die optische Pulsform nahezu linear dem anliegenden elektrischen Signal. Im Vergleich zur direkt modulierten Laserdiode wird hierbei beim Einschalten des Stroms sofort das bereits anliegende CW-Signal verstärkt und nicht erst eine hohe Ladungsträgerinversion aufgebaut, aus der sich die optische Leistung spontan entlädt und so zu einem Einschwingvorgang der optischen Leistung innerhalb einiger Nanosekunden führt. Der realisierte Aufbau besteht demnach aus einer Seed-Laserdiode bei 1064nm, welche im Dauerstrichbetrieb (*continuous wave – cw*) betrieben wird und dem gepulsten SOA. Der cw Betrieb des Seedlasers hat gegenüber dem gepulsten Betrieb zudem den Vorteil, dass die Emissionswellenlänge über eine Temperatursteuerung der Diode in einem Bereich von  $1064.3 \pm 0.5$  nm eingestellt werden kann und dass die spektrale Breite der Emission geringer ist als im gepulsten Betrieb.

### „Nichtlinearitäten in der Verstärkung“

Verstärkungen in einem Faserverstärker in Kombination mit einer nachgeschalteten SHG Einheit sind nicht gleichmäßig, sondern zeigen Nichtlinearitäten, die dazu führen, dass die Verstärkung zu Beginn eines Pulses höher ist als am Ende eines Pulses. Dies führt zu einer abfallenden Leistung innerhalb eines Pulses und nicht zu dem gewünschten Rechteckprofil (s. Abbildung 4). Die Nichtlinearitäten des Faserverstärkers lassen sich nicht durch geeignete elektrische Schaltungen verringern.



Abbildung 4: Durch Sättigungseffekte im Faserverstärker und SHG Modul bleibt eine Rechteckpulsform des Seedlasers nicht erhalten.

Zur Umgehung dieses Problems wurde im Projekt eine Lösung realisiert, die darin besteht die Pulsform des zu verstärkenden Signals so anzupassen, dass die Nichtlinearitäten des Verstärkers ausgeglichen werden. Da diese Nichtlinearitäten für jeden Verstärkeraufbau unterschiedlich sind, wurde zudem eine Möglichkeit geschaffen, individuell die Pulsform zu variieren, um das gewünschte Ergebnis zu erhalten. Dies ist ein iterativer Prozess, bei dem die erhaltene Pulsform nach dem Verstärker gemessen und dann die Pulsform vor dem Verstärker angepasst wird, bis ein zufriedenstellendes Ergebnis erreicht ist (s. Abbildung 5).

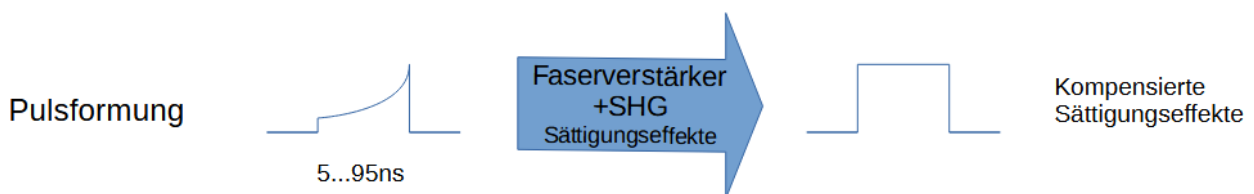


Abbildung 5: Durch Pulsformung des Seedlasers lassen sich Sättigungseffekte im Faserverstärker und SHG Modul kompensieren, so dass wieder die gewünschte Rechteckpulsform entsteht.

Zur Realisierung dieser variablen Pulsformen wurde im Projekt ein programmierbarer Digital-Analog Konverter mit 512 Speicherzellen und einer Speichertiefe von 8bit eingesetzt. Diese Speicherzellen werden mit 2 GHz ausgelesen und in eine elektrische Spannung im Bereich 0-12 V konvertiert. Jede Speicherzelle entspricht demnach einer Zeiteinheit von 200 ps und die Auslesedauer des kompletten Speichers beträgt 102,4 ns (9,76 MHz). Das elektrische Ausgangssignals des Pulsgenerators wird dann zur Steuerung des SOA und damit zur Erzeugung variabler optischer Pulse mit einer festen Wiederholrate genutzt.

Der final realisierte komplette Aufbau des Lasers besteht demnach aus fünf Kernkomponenten: cw-Seedlaser, SOA gepulst durch programmierbaren Pulsgenerator, 2-stufiger Faserverstärker und SHG Einheit (s. Abbildung 6). Die optischen Einheiten wurden

mittels optischer Singlemodedfasern verbunden, was den kompletten Aufbau justagefrei und zudem weniger anfällig gegenüber Umwelteinflüsse (Staub) macht. Die Laserstrahlung wird aus einer polarisationserhaltenden Singlemode Faser mit FC/APC Stecker emittiert. Für das realisierte Funktionsmuster wurden zudem die einzelnen Bausteine aus dem bei PicoQuant bestehenden Baukasten von mechanischen Gehäusen und elektrischen Steuerplatinen realisiert.

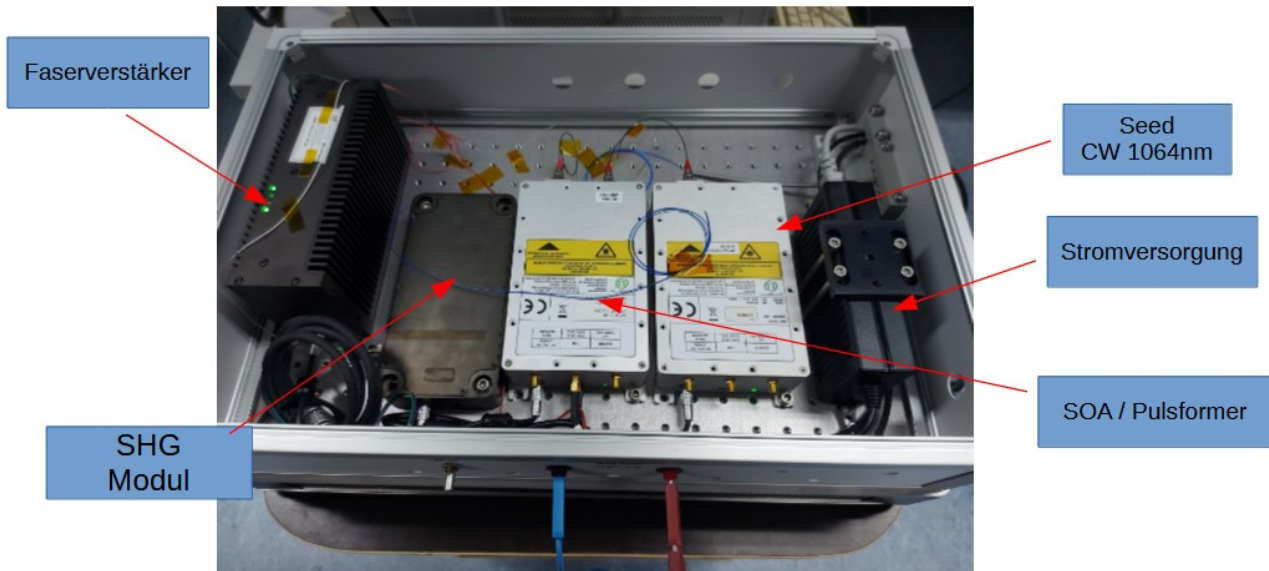


Abbildung 6: Foto des finalen Funktionsmusters mit den Kernkomponenten.

## Messergebnisse

Mit dem so realisierten Aufbau liessen sich Pulse bei 532 nm mit Pulsbreiten im Bereich zwischen ca. 1 ns und 100 ns problemlos realisieren. Die Sättigungseffekte durch den Faserverstärker und das SHG Modul waren durch eine angepasste Pulsform des Seedlasers kompensierbar (s. Abb. 7). *Overshoot* an der ansteigenden Flanke war nicht sichtbar.

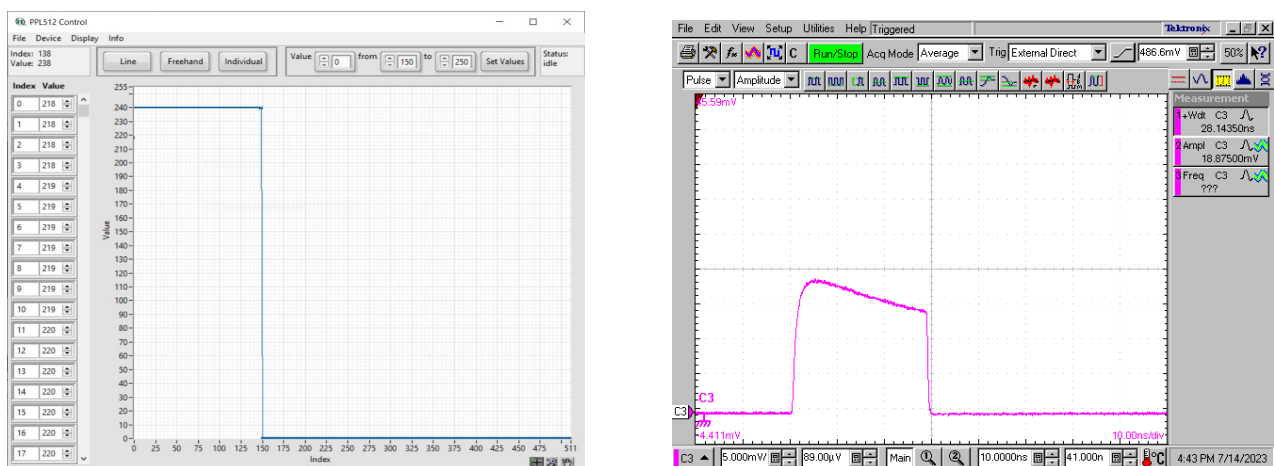


Abbildung 7a: Beispiel für eine nicht angepasste Pulsform des Seed-Lasers. Das linke Bild zeigt die elektrische Pulsform, die zur Steuerung des SOA verwendet wurde. Die konstante Pumpenergie führt aufgrund von Sättigungseffekten zu einer abfallenden Flanke nach Faserverstärker und SHG Modul (rechts). *Overshoot* an der ansteigenden Flanke ist nicht sichtbar.

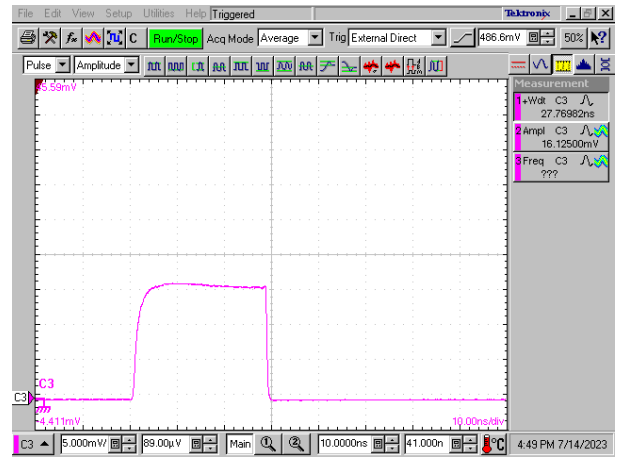
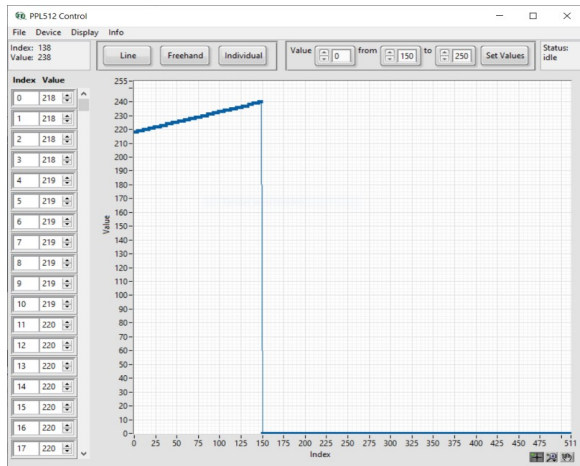


Abbildung 7b: Beispiel für eine angepasste Pulsform des Seed-Lasers. Das linke Bild zeigt die elektrische Pulsform, die zur Steuerung des SOA verwendet wurde. Die ansteigende Pulsenergie des Seedlasers führt zu einer Pulsform nach Faserverstärker und SHG Modul, die deutlich dichter an der angestrebten Rechteckform ist (rechts). Overshoot an der ansteigenden Flanke ist nicht sichtbar.

### Soll/Ist-Vergleich:

Mit dem Funktionsmuster sind alle Anforderungen realisiert oder sogar übertroffen worden.

Parameter	Zielwert	Im Funktionsmuster realisiert
Wellenlänge	532 nm	532,20 ± 0,25 nm
Pulsbreite	0.5...95 ns; variabel oder CW	1 ns .. 100 ns, variabel, CW
Wiederholrate	~10 MHz (9.76 MHz)	9.76 MHz
Trigger	intern	intern
Mittlere Leistung	25 mW	10 mW .. >50 mW, je nach Pulsbreite
Spitzenleistung	invers zur Pulslänge 5....500 mW	invers zur Pulslänge 5....500 mW
Spektrale Breite	Faktor von 1...3x des Fourier Limits	Faktor von 1...3x des Fourier Limits
Ausgang	PM Faser, FC/APC Anschluss	PM Faser, FC/APC Anschluss
Pulsform	Rechteck, <1 ns steigende/fallende Flanke	Rechteck, <1 ns steigende/fallende Flanke

Tabelle 2: Gegenüberstellung der vereinbarten und erreichten Parameter / Eigenschaften für den ns-Laser

Der Laser wurde im März 2024 an die Universität Paderborn geliefert und dort zur Erzeugung und zur Untersuchung von verschränkten Photonenpaare in Lithium-Niobat-Kristallen eingesetzt.

## **AP 3 Aufbau Demonstrationssystem**

### **AP 4 Applikationstests im Spektrometer**

#### **Ziele:**

Ziel der AP 3 und 4 war die Integration der ETPA-Quelle von der Universität Paderborn in ein Fluoreszenzspektrometer von PicoQuant sowie Applikationstest der ETPA-Quelle mittels Fluoreszenzmessungen an geeigneten flüssigen oder festen Testproben (z.B. Rhodamin 6G oder CIGS Solarzellen).

#### **Ergebnisse:**

Beide AP wurden nach Rücksprache mit dem VDI nicht durchgeführt, da sich im Lauf des Projektes herausgestellt hat, dass ETPA als Methode nicht universell einsetzbar ist. Der wesentliche Grund hierfür liegt in der spektralen Breite der Absorptionsbande. Die Zeit-Frequenz Verschränkung der Photonen in einem ETPA Experiment lässt den größten Vorteil bei spektral schmalbandigen Absorbieren erwarten, wie es auch früher schon in Experimenten bestätigt wurde. Anwendungsrelevante Fluorophore und Fluoreszenzmarker haben jedoch vergleichsweise breite spektrale Absorptionsbanden. Dies bedingt im Experiment dann ein geringes Signal-zu-Rausch Verhältnis, welches unpraktikabel lange Messzeiten nach sich zieht. Weiterhin legten Ergebnisse innerhalb des Konsortiums nahe, dass die elektronische Konfiguration des Absorbers einen signifikant größeren Einfluss hat als bisher erwartet. Dies führt dazu, dass kleine Änderungen der Konzentration des Absorbers oder des umgebenden Mediums bereits zu signifikanten Signalverlusten führen können. ETPA ist insofern nur unter sehr eingeschränkten Rahmenbedingungen nutzbar. Eine nachhaltige Überführung von ETPA in eine marktnahe oder sogar marktreife Anwendung für Messungen in einem Fluoreszenzspektrometer war dadurch nicht mehr absehbar.

## **AP 5 Wissensmanagement und Projektplanungen**

### **2.2 Verwertung**

Da sich die ETPA-Anregung als nicht universell einsetzbar erwiesen hat, ist es zum jetzigen Zeitpunkt nicht absehbar, dass das Funktionsmuster mit variablen ns-Pulsen zu einem eigenständigen Produkt weiter entwickelt wird. Die Ergebnisse an der Universität Paderborn haben zudem gezeigt, dass die erreichbare Quellenhelligkeit im verwendeten Lithium-Niobat-Material durch das Material begrenzt ist, so dass die Verwendung von gepulsten Lasersystemen keinen direkten Vorteil für ETPA Messungen verspricht.

Das Funktionsmuster mit variablen ns-Pulsen steht grundsätzlich als Labormuster zur Verfügung und kann bei Bedarf auch anderen Interessenten zur Verfügung gestellt werden.

Einzelne Aspekte aus den gewonnenen Erkenntnissen aus den AP 2 (Laser-Pumpquellen) sind darüber hinaus in die Verbesserung der Faserlaser-Produkte von PicoQuant eingeflossen.