

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit

im Studiengang Physik

vorgelegt von

Eva Rittweger

aus Köln

(2004)



# Zeitliche Formung von Femtosekunden–Laserpulsen

Die Diplomarbeit wurde von Eva Rittweger ausgeführt am

Max-Planck Institut für Kernphysik, Heidelberg

unter der Betreuung von

Herrn Priv. Doz. Dr. Uwe Morgner.

(September 2004)

# Zeitliche Formung von Femtosekunden–Laserpulsen

Die Pulsformung besitzt vielfältige Anwendungen in der Laserphysik, wie z.B. die Pulskomprimierung von dispersiv verbreiterten Pulsen und die kohärente Kontrolle von chemischen Prozessen.

Diese Diplomarbeit beschäftigt sich mit der Formung von Pulsen mit oktavbreiten Spektren durch reine Phasenmodulation. Als Quelle für die extrem kurzen Pulse dient ein 5 fs–Titan–Saphir–Laser. Um die Phasenmodulation experimentell zu implementieren, wurde ein 4-f–Aufbau mit zwei Prismen, zwei Hohlspiegeln und einem Flüssigkristalldisplay entwickelt. Bei der verwendeten Methode der direkten Phasenmanipulation wird das SPIDER–Verfahren benutzt, um die spektrale Phase des Eingangspulses zu messen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Weiterentwicklung des verwendeten SPIDER–Aufbau durch Typ II–Phasen Anpassung konzipiert und realisiert. Mit Hilfe des Pulsformers wurde die vollständige Dispersionskompensation durch Realisierung einer annähernd flachen Phase gezeigt. Durch die flexible, kontrollierte Phasenmanipulation der Pulsformung ist es möglich, eine vorgegebene zeitliche Pulsform zu erreichen. Im Experiment wurden Pulszüge generiert und die theoretischen Grundlagen zur Erzeugung von komplexeren Pulsformen geschaffen. Ausgehend davon könnten sich viele interessante Experimente anschließen.

## Temporal shaping of femtosecond laserpulses

There are many applications of pulse shaping in laser physics, e.g. pulse compression of chirped pulses and coherent control of chemical processes.

This thesis (Diplomarbeit) deals with the shaping of pulses with octave–spanning spectra using phase–only modulation. A 5 fs–Ti:sapphire laser provides these ultrashort pulses. In order to implement the phase modulation in the experiment, a 4-f–arrangement including two prisms, two parabolic mirrors and a liquid crystal display was built and calibrated. The chosen method of open loop control utilizes the SPIDER technique to measure the spectral phase of the initial pulse. In the scope of this thesis an enhanced SPIDER setup was designed and built. By means of the pulse shaper a complete dispersion compensation was shown by realising a flat phase. Through the flexible, controlled phase manipulation via pulse shaping it is possible, to achieve almost any desired temporal pulse shape. Pulse trains were generated experimentally and the theoretical basis for the generation of more complex pulse shapes was established. These results could be the starting point for many interesting experiments.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Laser . . . . .	3
2.1.1	Prinzip . . . . .	3
2.1.2	Erzeugung kurzer Laserpulse . . . . .	4
2.1.3	Der Titan-Saphir-Laser . . . . .	6
2.2	Dispersion . . . . .	9
2.2.1	Dispersion als Materialeigenschaft . . . . .	9
2.2.2	Dispersive Pulsverbreiterung . . . . .	10
2.2.3	Dispersionskompensation . . . . .	12
<b>3</b>	<b>SPIDER</b>	<b>19</b>
3.1	Charakterisierung ultrakurzer Pulse . . . . .	19
3.1.1	Interferometrische Autokorrelation . . . . .	19
3.1.2	SPIDER . . . . .	22
3.2	SPIDER mit Typ II-Phasen Anpassung . . . . .	27
3.2.1	Prinzip . . . . .	27
3.2.2	Aufbau . . . . .	30
3.2.3	Ergebnisse . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Pulsformer</b>	<b>39</b>
4.1	Prinzip . . . . .	39
4.2	Aufbau . . . . .	41
4.3	Kalibration . . . . .	47
4.3.1	Bestimmung des Phasenhubs . . . . .	47
4.3.2	Fokussierung am LC-Display . . . . .	51
4.3.3	Frequenzabbildung auf das LC-Display . . . . .	52
4.4	Vorkompensation . . . . .	53

<b>5 Pulsformung ultrakurzer Laserpulse</b>	<b>57</b>
5.1 Methoden der Pulsformung . . . . .	57
5.2 Direkte Phasenkompensation . . . . .	58
5.3 Erzeugung von komplexen Pulsformen . . . . .	66
5.4 Genetische Optimierung . . . . .	70
<b>6 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>75</b>
<b>A Interferometrische Autokorrelation</b>	<b>77</b>
<b>B Wellenlängenabhängigkeit der Phasenverzögerung</b>	<b>79</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Seit der Erfindung des Lasers vor mehr als 40 Jahren gibt es ein großes Interesse, Laserpulse mit möglichst geringer Dauer zu erzeugen. Im gepulsten Betriebszustand wird die Emission des Lasers nicht kontinuierlich, sondern in sehr kurzen Zeitintervallen abgegeben. Dadurch wird auch bei niedriger Pulsenergie eine hohe Spitzenleistung erreicht. Solche Kurzpuls-Laser finden vielfältige Anwendungen in der Forschung, aber auch in Bereichen der Medizin und Industrie.

Durch die Erfindung von phasenkorrigierenden Spiegeln wurde es möglich, Laserpulse mit einer Dauer von wenigen Femtosekunden zu generieren. Für die Experimente dieser Arbeit wurde ein Titan-Saphir-Laser verwendet, der mit seinem oktavbreiten Spektrum die zur Zeit kürzesten Pulse von 5 fs direkt aus dem Oszillator liefert. Mit der Zentralwellenlänge von 800 nm enthält dieser kurze Puls nur etwa eineinhalb optische Zyklen des elektrischen Feldes.

Neben der Erzeugung ist die Kontrolle und Formung von Laserpulsen ein Forschungsgebiet von wachsendem Interesse. Dabei werden mit Hilfe von Amplituden- und Phasenmodulation das Spektrum und die spektrale Phase des Pulses verändert. Zusätzlich ist es auch möglich, den Polarisationszustand des Lichts kontrolliert zu beeinflussen. Auf diese Weise können Laserpulse mit fast beliebiger Form und Polarisation generiert werden. Im Bereich der kohärenten Kontrolle (engl. "coherent control") wird die Pulsformung verwendet, um die Wechselwirkung von Licht und Materie zu steuern. Dabei wird durch Variieren der Pulsform z.B. die Ausbeute einer photoinduzierten chemischen Reaktion optimiert.

Eines der gängigsten Verfahren zur Pulsformung ist die Phasenmodulation mittels eines Flüssigkristalldisplays. Bei dieser Methode durchlaufen die räumlich aufgefächerten Frequenzkomponenten des Pulses unterschiedliche optische Wege. Auf diese Weise wird die relative spektrale Phase des Pulses beeinflusst und dadurch die zeitliche Form des Pulses verändert.

Es gibt bereits viele Experimente, die sich mit der Formung von Pulsen mit relativ schmalbandigen Spektren beschäftigen [Ass98, Bar00]. Dabei wird ein 4-f-Aufbau mit Gittern verwendet, um eine dispersionfreie Versuchsanordnung zu ermöglichen. Ziel dieser Arbeit war es, die Pulsformung ultrakurzer Laserpulse von 5 fs bei einer hohen Effizienz zu erreichen. Aus diesem Grund wurden Komponenten für den im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Pulsformer verwendet, die das breite Spektrum von einer Oktave unterstützen und geringe Verluste aufweisen: hochbrechende Prismen, Silberhohlspiegel und ein Flüssigkristalldisplay mit der großen Anzahl von 640 Pixeln. Die Benutzung von Prismen hat aber den Nachteil, dass man sehr viel Materialdispersion in den Versuchsaufbau einbringt. Für Pulse im 5 fs-Bereich ist eine weitere Anwendung des Pulsformers als flexibles Instrument zur Dispersionskompensation von großer Bedeutung, da die dispersive Verbreiterung ein erhebliches Problem bei Experimenten mit ultrakurzen Pulsen darstellt.

Da man mit Hilfe der Computeransteuerung die angelegte Phasenkurve flexibel einstellen kann, ist es möglich, außer der Rekomprimierung des Pulses fast jede beliebige zeitliche Form zu generieren. Auf diese Weise wurde ein Verfahren realisiert, um kontrolliert die zeitliche Form der Laserpulse zu verändern. Diese flexible Beeinflussung der Pulsform könnte der Startpunkt einer Vielzahl von interessanten Experimenten sein.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 wird auf die Grundlagen dieser Arbeit eingegangen. Dabei wird der verwendete Laser und der Einfluss von Dispersion auf die Ausbreitung der Laserpulse behandelt. Im dritten Kapitel werden die verwendeten Pulscharakterisierungs-Methoden und der SPIDER-Aufbau, der im Rahmen dieser Arbeit konzipiert und realisiert wurde, beschrieben. Der Inhalt von Kapitel 4 umfasst die Grundlagen der Pulsformung, eine genaue Beschreibung des experimentellen Aufbaus und dessen Kalibration. Im letzten Kapitel werden die Ergebnisse der Experimente, die zur Dispersionskompensation und Formung ultrakurzer Laserpulse durchgeführt wurden, präsentiert.



# Kapitel 2

## Grundlagen

Im folgenden Kapitel werden die Grundlagen, die für das Verständnis dieser Arbeit wichtig sind, zusammengefasst. Zuerst wird die Erzeugung kurzer Laserpulse beschrieben und auf die wichtigsten Eigenschaften des verwendeten Titan-Saphir-Pulslasers eingegangen. Danach wird der Einfluss der Dispersion auf die Ausbreitung kurzer Laserpulse erläutert.

### 2.1 Laser

#### 2.1.1 Prinzip

Um einen Laser (engl. "light amplification by stimulated emission radiation") zu bauen, benötigt man einen Resonator bestehend aus mindestens zwei Spiegeln im Abstand  $L$ , zwischen denen das im Lasermedium verstärkte Licht umlaufen kann. Das Lasermedium wird durch Zuführung von Energie zur Inversion gebracht. Durch stimulierte Emission wird diese Besetzungsinversion abgebaut. Dabei wird das umlaufende Licht kohärent verstärkt. Ein Teil der im Resonator gespeicherten Energie wird durch den Auskoppler kontinuierlich nach außen abgestrahlt. In diesem sogenannten CW-Betrieb (engl. "continuous wave") ist die Ausgangsleistung daher niedrig. Durch die Randbedingung des Resonators können sich im Laser nur stehende Wellen mit einer Wellenlänge von  $m \cdot \lambda/2 = L$  mit  $m \in \mathbf{N}$  ausbilden. In Abb. 2.1 ist der Resonator mit einigen Moden schematisch dargestellt. Gelingt es nun, diese Resonatormoden mit einem Frequenz-Abstand von  $\Delta f_{\text{mod}} = c/2L$  phasenstarr zu überlagern, wird ein kurzer Puls im Laser generiert. Dabei wird die Energie in scharf begrenzten, kurzen Zeitintervallen abgegeben. Die erzeugten Spitzenleistungen sind daher um Größenordnungen höher. Dadurch ergeben sich vielfältige Anwendungen von Kurzpuls-Lasern z.B. in der Materialbearbeitung

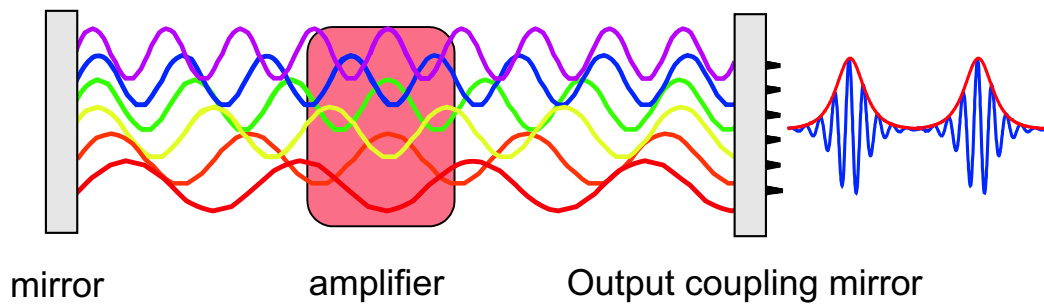


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau eines linearen Laserresonators.

oder in der nichtlinearen Optik [Bra00, Dre99, Ose04]. Im nächsten Kapitel wird erklärt, wie durch Kopplung der Frequenzmoden ein Laserpuls gebildet werden kann.

### 2.1.2 Erzeugung kurzer Laserpulse

Eine Methode zur Erzeugung ultrakurzer Pulse ist die passive Modenkopplung, die im Folgenden erläutert werden soll.

Ist die Verstärkungsbandbreite  $\Delta f$  des Lasermediums groß genug ( $\Delta f \gg \Delta f_{\text{mod}}$ ) können im Laser viele Moden verschiedener Frequenz anschwingen. Gelingt es nun, zwischen diesen eine feste Phasenbeziehung zu etablieren, ergibt sich durch Interferenz der Moden eine zeitliche Modulation der Leistung. Bei Kopplung vieler Wellenzüge kommt es dann in einem kurzen Moment zur konstruktiven Überlagerung, ansonsten interferieren sie destruktiv (siehe Abb. 2.2).

Die fundamentale untere Grenze für die zeitliche Dauer des so erzeugten Pulses ist durch das Zeit-Bandbreite-Produkt gegeben:  $\Delta\nu \Delta t = \text{const.}$ . Dabei ist  $\Delta\nu$  die spektrale Breite,  $\Delta t$  die Pulsdauer. Die Konstante ist durch die Pulsform gegeben. Diese Beziehung ist eine Sonderform der Unschärferelation. Je breiter das erzeugte Spektrum beziehungsweise je größer die Anzahl der im Laser verstärkten Moden, desto kürzer sind die möglichen Pulse. Die aus dem Spektrum mit der Annahme einer glatten Phase errechnete, minimale Pulsdauer wird auch als Fourierlimit bezeichnet. In der Praxis werden die großen Frequenzbandbreiten und kurzen Pulse durch breitbandige Verstärkermedien wie z.B. Titan-Saphir und/oder durch nichtlineare Effekte wie der Selbstphasenmodulation (SPM) erreicht.

Um Laserpulse erzeugen zu können, muss man erreichen, dass die Verluste im Laser für den gepulsten Betrieb kleiner sind als für den CW-Betrieb. Das kann z.B. durch Einbau eines intensitätsabhängigen Absorbers erreicht werden. Ei-

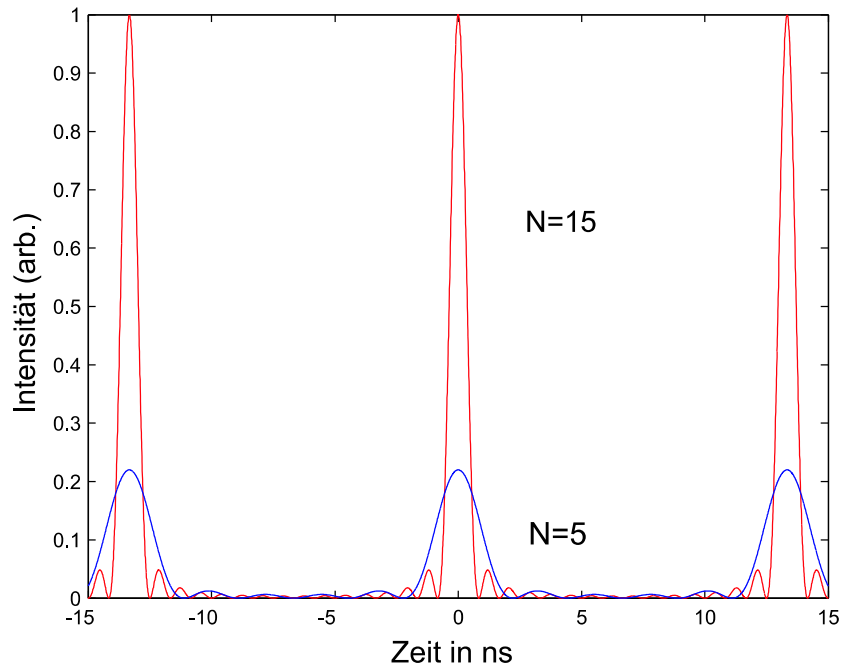


Abbildung 2.2: Zeitlicher Verlauf der Laserleistung bei Überlagerung von 5 und 15 Moden gleicher Amplitude.

ne Möglichkeit einen solchen Absorber zu realisieren, ist die Verwendung eines sättigbaren Halbleiterspiegels (SESAM) im Laser [Kel96b]. Da dieser Spiegel bei niedrigen Leistungen absorbierend und erst bei höheren Leistungen hochreflektierend wirkt, ist der CW-Betrieb mit höheren Verlusten behaftet.

Ein weiteres Verfahren zur Pulserzeugung ist die Kerr-Linsen-Modenkopplung (KLM). Dabei wirkt der intensitätsabhängige Brechungsindex bei den im Pulsbetrieb erreichten, großen Intensitäten im Kristall wie eine Linse. Dieser nichtlineare Effekt der Selbstfokussierung kann benutzt werden, um einen künstlichen sättigbaren Absorber z.B. durch Einbauen einer Blende in den Laser (hard aperture) zu realisieren. Bei geringen Intensitäten wird ein Teil des Lichts von der Blende absorbiert, da wenig Selbstfokussierung auftritt und somit der Strahlradius größer als die Blendenöffnung ist. Ist die Intensität hoch, ist der Strahl klein genug, um verlustfrei durch die Blende zu gelangen. Dadurch wird der Pulsbetrieb bevorzugt.

Bei dem Laser, der für diese Arbeit verwendet wurde, wird dieser Verlustmechanismus auf eine andere Weise erreicht. Konstruiert man den Laser so, dass der Strahldurchmesser des Lasermoden im Kristall größer ist als der des Pumpstrahls, wird die vorhandene Inversion aufgrund des schlechten Überlapps nicht optimal ausgenutzt. Geht der Laser in den gepulsten Betrieb über, fokussiert sich der

Strahl im Kristall selbst und verbessert den Überlapp mit dem Pumpstrahl. Er erfährt folglich mehr Gewinn. Dies ist am Beispiel des verwendeten Titan-Saphir-Lasers in Abb. 2.3 gut zu erkennen.

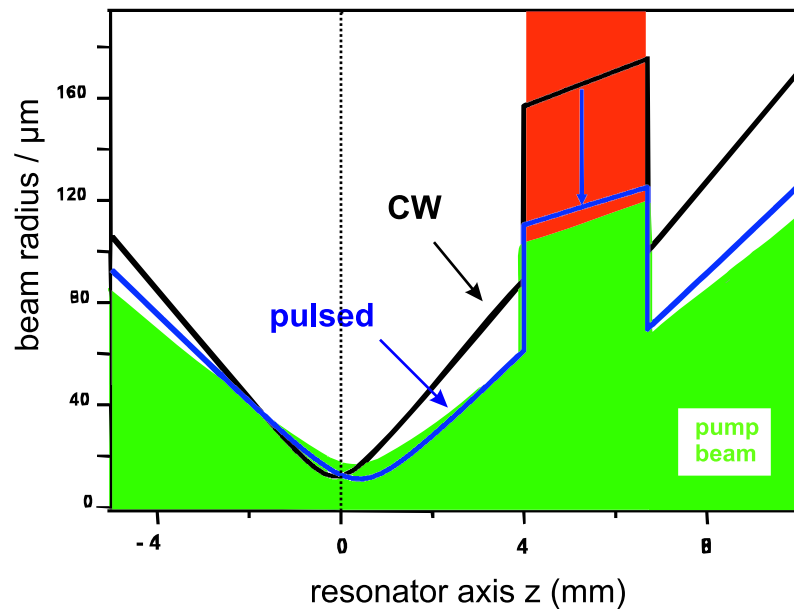


Abbildung 2.3: Strahlradien des Laser- und Pumpstrahls im Titan-Saphir-Kristalls des Lasers (aus [Ell01]).

Diese Methode der Modenkopplung hat gegenüber dem SESAM den Nachteil, dass KLM sehr justage kritisch ist und daher nur bedingt für die industrielle Anwendung geeignet ist. Andererseits ist der Kerr-Effekt beinahe instantan ( $\approx 1$  fs) und macht daher die Erzeugung ultrakurzer Pulse im Bereich weniger Femtosekunden möglich.

Im folgenden Abschnitt wird auf den verwendeten Laseraufbau und seine Besonderheiten eingegangen.

### 2.1.3 Der Titan-Saphir-Laser

Der für diese Arbeit verwendete Laser ist schematisch in Abb. 2.4 dargestellt. Er liefert die kürzesten Pulse direkt aus dem Oszillator und ist mit seinem extrem breiten Spektrum einzigartig [Ell03].

Als Lasermaterial wird ein mit Titan dotierter Saphir-Kristall verwendet, da dieser durch sein breites Emissionsspektrum die Erzeugung extrem kurzer Pulse ermöglicht. Die Verstärkungsbandbreite ist in Abb. 2.5 dargestellt. Als Pumpla-

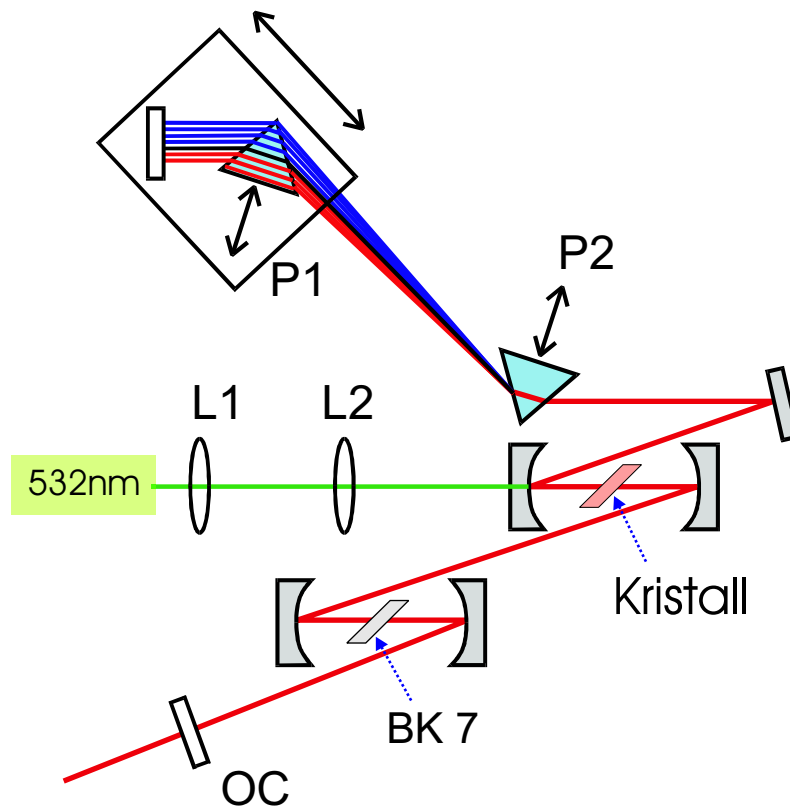


Abbildung 2.4: Aufbau des Titan-Saphir-Pulslasers:  $\text{CaF}_2$  Prismen ( $P_1$ ,  $P_2$ ), Linsen ( $L_1$ ,  $L_2$ ), Kristall Ti:Saphir, OC Auskoppelspiegel.

ser dient ein Festkörperlaser<sup>1</sup>, der bei einer Wellenlänge von 532 nm mit einer Pumpleistung von 6 W betrieben wird. Wie schon in Abbildung 2.3 gesehen, ist der Laser so justiert, dass im gepulsten Betrieb ein möglichst guter Überlapp von Pump- und Lasermode erreicht wird.

Zusätzlich zu dem Fokus im Titan-Saphir-Kristall gibt es einen zweiten Fokus, in dem zusätzliches Spektrum entweder durch Selbstphasenmodulation (SPM) in einem Glasplättchen (BK 7) oder mit einem nichtlinearen Kristall (BBO, KTP) erzeugt wird. Damit dieses breite Laserspektrum auch im Resonator verstärkt werden kann, werden breitbandige Spiegel verwendet, die zusammen mit einer Kalzium-Fluorid-Prismenstrecke für einen Dispersionsausgleich sorgen. Auf die Dispersionskompensation im Laser wird ausführlich im Kapitel 2.2.3 eingegangen. Als Auskoppelspiegel (OC) wird ein ZnSe/MgF<sub>2</sub>-Spiegel verwendet, der bei 800 nm 1% der resonatorinternen Leistung auskoppelt, an den Flanken des Spektrums aber eine wesentlich höhere Transmission aufweist. Ein typisches Spektrum

<sup>1</sup>Verdi-V 10 Firma coherent

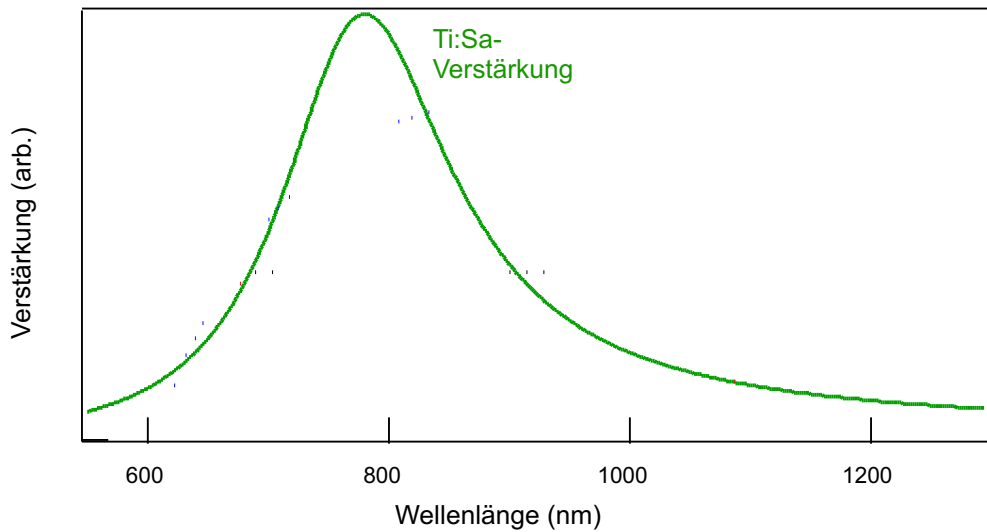


Abbildung 2.5: Emissionsspektrum eines Titan-Saphir-Kristalls.

des Lasers ist in [Abbildung 2.6](#) zu sehen. Es ist deutlich zu erkennen, dass es durch die Selbstphasenmodulation wesentlich breiter ist, als es nur durch Verstärkung im Titan-Saphir-Kristalls möglich wäre. Das Spektrum unterstützt theoretisch eine Pulsdauer von 4,3 fs (Fourierlimit).

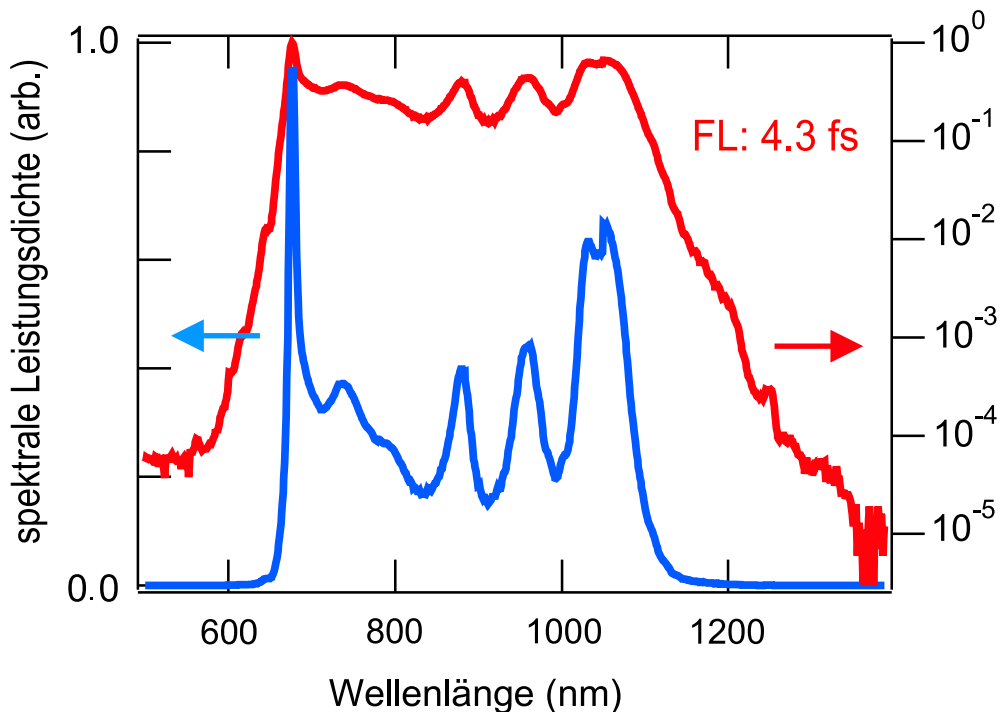


Abbildung 2.6: Oktavbreites Spektrum des Lasers (aus [\[Eil01\]](#)).

## 2.2 Dispersion

Unter Dispersion versteht man die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex. Daraus folgt, dass verschiedene Frequenzen in einem Wellenpaket sich mit unterschiedlicher Gruppen- und Phasengeschwindigkeit ausbreiten. Da ein Lichtpuls aus vielen spektralen Komponenten besteht, die im dispersiven Medium unterschiedlich schnell propagieren, wird der Puls mit der Zeit auseinanderlaufen und eine Pulsdauer größer als das Fourierlimit aufweisen. Aus diesem Grund ist die Dispersion für die Erzeugung und das Experimentieren mit ultrakurzen Pulsen im Bereich von Femtosekunden von großer Bedeutung.

### 2.2.1 Dispersion als Materialeigenschaft

Die Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle ist durch die Dispersionsrelation festgelegt:

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} n_c(\omega) = \frac{\omega}{c} \sqrt{1 + \chi(\omega)} \quad (2.1)$$

mit der Wellenzahl  $k$ , dem komplexen Brechungsindex  $n_c$  und der dielektrischen Suszeptibilität  $\chi = \chi_R + i\chi_I$ . Die Suszeptibilität bestimmt die dispersiven und absorptiven Eigenschaften eines Materials. In der Näherung für schwach absorbierende Medien wird die Absorptionskonstante durch  $\chi_I$  bestimmt und der Brechungsindex  $n$  durch  $\chi_R$ . Der Real- und Imaginäranteil der Suszeptibilität und des Brechungsindex hängen dabei über die Kramers-Kronig-Relationen zusammen, die darauf beruhen, dass zwischen dem elektrischen Feld und der Polarisation eine lineare, zeitunabhängige und kausale Beziehung besteht. Aus diesem Grund hängt der reale Brechungsindex, der für die Dispersion verantwortlich ist, von der Absorption eines Materials ab. Da diese oft einfacher zu messen ist, wird der Brechungsindex in vielen Fällen über das frequenzabhängige Absorptionsverhalten und die Kramers-Kronig-Beziehung bestimmt. In transparenten Medien liegen die Resonanzen meist außerhalb des sichtbaren Spektrums. Deshalb kann der Imaginärteil der Suszeptibilität in diesem Spektralbereich durch Deltafunktionen der Stärke  $A_i$  an den Resonanzstellen  $\omega_i$  genähert werden:

$$\chi_I = \sum_i A_i \delta(\omega - \omega_i). \quad (2.2)$$

Setzt man diese Beziehung in die Kramers-Kronig-Relationen ein, ergibt sich die sogenannte Sellmeiergleichung:

$$n^2 = 1 + \sum_i a_i \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_i^2} \quad (2.3)$$

Die Dispersionsverläufe optischer Medien können dadurch in guter Näherung durch die Konstanten  $a_i$  und  $\lambda_i$  spezifiziert werden. In Diagramm 2.7 sind die Dispersionskurven von drei für diese Arbeit wichtigen Materialien aufgetragen.

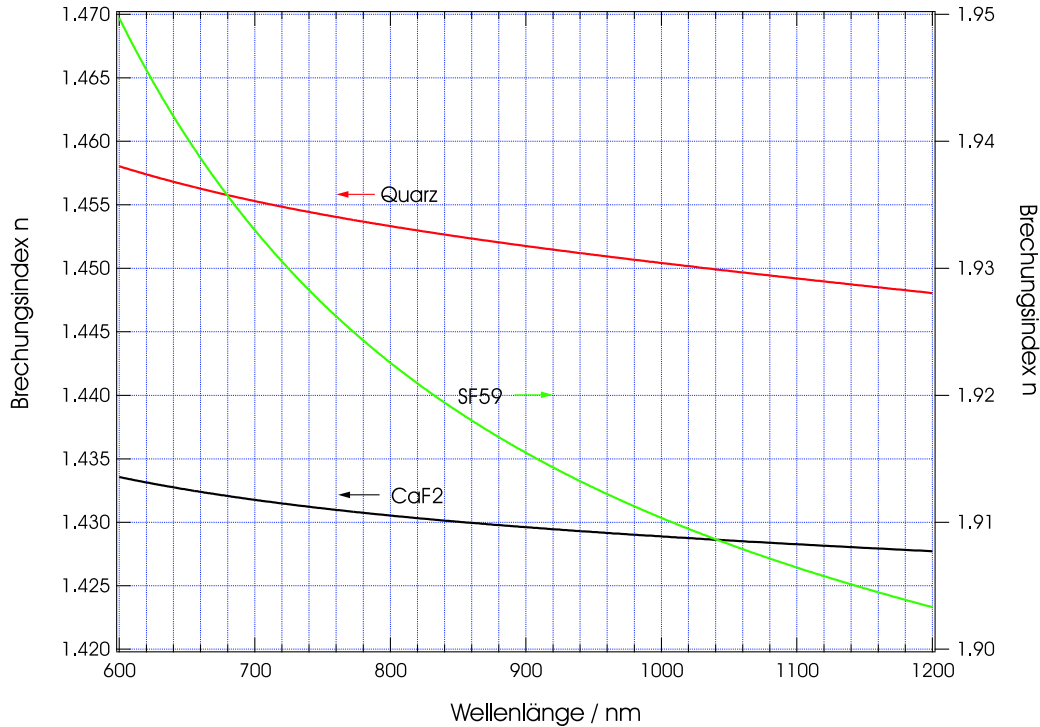


Abbildung 2.7: Brechungsindex in Abhängigkeit von der Wellenlänge für  $\text{CaF}_2$ , Quarz und SF 59.

## 2.2.2 Dispersive Pulsverbreiterung

Das elektrische Feld  $E$  eines Laserpulses kann als Superposition von ebenen Wellen beschrieben werden:

$$E(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int \tilde{E}(\omega) e^{i(\omega t - k(\omega)z)} d\omega \quad (2.4)$$

Durch eine Koordinatentransformation  $\Delta\omega := \omega - \omega_0$  mit der Zentralfrequenz  $\omega_0$  kann dieses Wellenpaket in einen schnell oszillierenden Anteil, den man Träger nennt, und eine Einhüllenden-Funktion zerlegt werden:

$$E(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int \tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i((\omega_0 + \Delta\omega)t - k(\omega_0 + \Delta\omega)z)} d\Delta\omega \quad (2.5)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \underbrace{(e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z))})}_{\text{Träger}} \underbrace{\int \tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i(\Delta\omega t - \Delta k(\Delta\omega)z)} d\Delta\omega}_{\text{Einhüllende}} \quad (2.6)$$

$$= \sqrt{2Z} e^{i(\omega_0 t - k(\omega_0)z)} A(z, t) \quad (2.7)$$



mit der Impedanz im dispersiven Medium  $Z = \sqrt{\mu\mu_0/\epsilon\epsilon_0}$ , der Dielektrizitätskonstante im Vakuum  $\epsilon_0$  und im Material  $\epsilon$ , der magnetische Permeabilität im Vakuum  $\mu_0$  und im Material  $\mu$ . Die Normierung wurde so gewählt, dass  $|A(z, t)|^2$  die Intensität ergibt.

Um den Einfluss der Dispersion auf den Lichtpuls besser verstehen zu können, ist es hilfreich, die Phase des Pulses um die Zentralfrequenz  $\omega_0$  zu entwickeln.

$$\phi(z, \omega) = \Delta k(\Delta\omega) \cdot z = (k(\omega_0 + \Delta\omega) - k(\omega_0)) \cdot z \quad (2.8)$$

$$= \phi(\omega_0) + \left. \frac{\partial\phi}{\partial\omega} \right|_{\omega_0} \Delta\omega + \sum_{m=2}^{\infty} \frac{(\Delta\omega)^m}{m!} \left. \frac{\partial^m\phi}{\partial\omega^m} \right|_{\omega_0} \quad (2.9)$$

$$= zk(\omega_0) + z \left. \frac{\partial k}{\partial\omega} \right|_{\omega_0} \Delta\omega + z \sum_{m=2}^{\infty} \frac{(\Delta\omega)^m}{m!} \left. \frac{\partial^m k}{\partial\omega^m} \right|_{\omega_0} \quad (2.10)$$

Die Koeffizienten dieser Taylorentwicklung sind als die verschiedenen Ordnungen der Dispersion definiert.

Die erste Ordnung ist die Gruppenverzögerung (engl. "group delay"):

$$D_1 = \text{GD}(\omega) = \frac{\partial\phi}{\partial\omega} = \frac{z}{v_g} \quad (2.11)$$

mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g = \frac{\partial\omega}{\partial k}$ .

Die zweite Ordnung ist die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (engl. "group delay dispersion"):

$$D_2 = \text{GDD}(\omega) = \frac{\partial^2\phi}{\partial\omega^2} \quad (2.12)$$

Die dritte Ordnung (engl. "third order dispersion") ist definiert als

$$D_3 = \text{TOD}(\omega) = \frac{\partial^3\phi}{\partial\omega^3}. \quad (2.13)$$

Die Koeffizienten der Entwicklung der Propagationskonstanten  $k$  ergeben sich analog und sind unabhängig von der Ausbreitungscoordinate  $z$ :

$$k_i = \frac{\partial^i k}{\partial\omega^i} = \frac{D_i}{z}. \quad (2.14)$$

Berücksichtigt man nur die Dispersion erster Ordnung, erhält man für die Einhüllende nach Propagation der Länge  $z$

$$A(z, t) = \sqrt{2Z} \int \tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i(\Delta\omega t - \frac{\Delta\omega}{v_g} z)} d\Delta\omega \quad (2.15)$$

$$= A\left(z, t - \frac{z}{v_g}\right) \quad (2.16)$$

Daraus folgt, dass dieser Term nur eine Laufzeitverzögerung bewirkt.

Bricht man die Taylorentwicklung erst nach dem zweiten Term ab, erhält man für die Einhüllende folgende Differentialgleichung:

$$\frac{\partial A(z, t')}{\partial z} = -i \frac{k_2}{2} \frac{\partial^2 A(z, t')}{\partial t'^2} \quad (2.17)$$

mit der retardierten Zeit  $t' = t - \frac{z}{v_g}$ . Diese Gleichung beschreibt wie die Schrödinger-Gleichung eines nichtrelativistischen, freien Teilchens das Zerfließen eines Wellenpakets. Daraus folgt, dass der Lichtpuls unter Einfluss von Dispersion zweiter oder höherer Ordnungen verbreitert wird.

Wenn  $k_2 > 0$  ist, spricht man von positiver oder normaler Dispersion, d.h. der Brechungsindex nimmt mit der Frequenz zu bzw. mit der Wellenlänge ab. In diesem Fall propagieren die langwelligen Anteile schneller als die kurzwelligen. Negative bzw. anomale Dispersion ist umgekehrt definiert:  $k_2 < 0$ .

Der Einfluss der Dispersion zweiter Ordnung auf die Pulslänge eines gaußförmigen Pulses mit der fourierlimitierten Pulsdauer  $\tau_0$  nach einer durchlaufenen Strecke  $z$  ist durch folgende Gleichung gegeben [Mor03]:

$$\tau_{\text{FWHM}}(z) = \tau_{0,\text{FWHM}} \sqrt{1 + \frac{16 \ln(2)^2 k_2^2 z^2}{\tau_{0,\text{FWHM}}^4}} \stackrel{z \rightarrow \infty}{\approx} 4 \ln 2 \frac{k_2 z}{\tau_0}. \quad (2.18)$$

Anhand dieser Gleichung erkennt man, dass der Einfluss der Dispersion um so größer ist, je kürzer der Ursprungspuls ist, da die Pulsdauer im Fernfeld inversproportional zu  $\tau_0$  verläuft. So verbreitert sich ein 5 fs-Puls durch 1 mm dickes Stück BK 7-Glas ( $k_2 = 44,8 \text{ fs}^2/\text{mm}$ ) auf ca. 25 fs. Im Gegensatz dazu verlängert sich die Pulsdauer eines 50 fs-Pulses nur um 60 as.

Wie man dieser dispersiven Pulsverbreiterung entgegenwirken kann, wird im nächsten Abschnitt beschrieben.

### 2.2.3 Dispersionskompensation

Um mit ultrakurzen Laserpulsen arbeiten zu können, muss man für einen Ausgleich der positiven Materialdispersion im Aufbau sorgen, da wie gesehen schon geringe Mengen Glas oder Luft zu einer erheblichen Pulsverbreiterung führen. Im sichtbaren und nahen Infrarot-Bereich gibt es keine Materialien, die breitbandig negative Dispersion aufweisen. Man ist darauf angewiesen, unterschiedlich lange optische Wege zu verwenden, um die langwelligen gegen die kurzwelligen Spektralanteile zu verzögern. Dies wird in der Regel mit Prismen- oder Gitterstrecken realisiert. Dispersive Spiegel (DCM) beruhen auch auf diesem Prinzip. Im Folgenden soll auf diese zwei Arten der Dispersionskompensation näher eingegangen werden.

## Prismen–Strecke

Eine typische Prismen–Strecke besteht aus zwei im Brewster–Winkel geschnittenen Prismen. In Abbildung 2.8 ist die Anordnung der beiden, entgegengesetzt orientierten Prismen zu sehen.

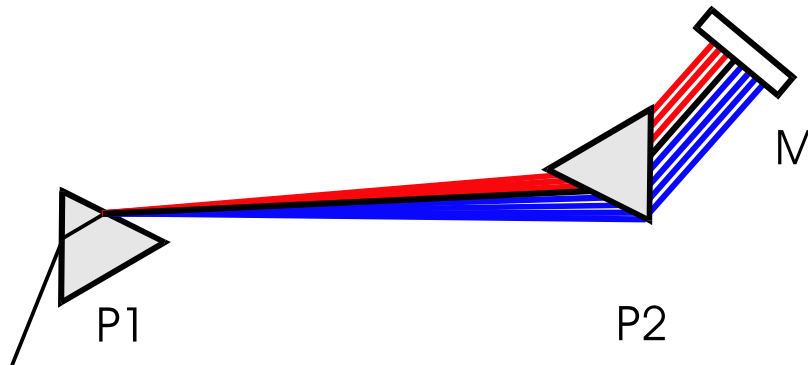


Abbildung 2.8: Prismenstrecke zur Dispersionskompensation; Prismen P1, P2; Spiegel M.

Das erste Prisma fächert den Lichtstrahl spektral auf, während das zweite die Frequenzkomponenten wieder parallel ausrichtet, bevor sie von einem Planspiegel zurückreflektiert werden. Durch diese Geometrie durchlaufen die langwelligeren Anteile mehr Material als die kurzwelligen. Dadurch wird anomale Dispersion erzeugt. Die Dispersionseigenschaften der Strecke können durch Entfernung, Material und Eindringtiefe der Prismen angepasst werden.

Die Dispersionseigenschaften der Prismenstrecke lassen sich auf zwei Arten berechnen. Eine analytische Methode ist von Fork et al. beschrieben worden [For84]. Alternativ kann man eine Strahlverfolgungsmethode verwenden [Mor01]. Bei diesem Verfahren wird für einen bestimmten Strahl der optische Weg  $p(\lambda)$  durch die Prismenstrecke berechnet. Die Dispersionseigenschaften erhält man in diesem Fall durch numerisches Ableiten der Phase  $\phi(\lambda) = \frac{2\pi}{\lambda}p(\lambda)$ . In Abb. 2.9 sind die Dispersionskurven zweier Prismenstrecken, die in dieser Arbeit zur Dispersionskompensation verwendet wurden, aufgetragen.

Der Nachteil von Prismenstrecken ist, dass aufgrund der Materialdispersion der Prismen immer auch höhere Dispersionsordnungen erzeugt werden. Ist die Strecke so ausgelegt, dass sie eine GDD von  $0 \text{ fs}^2$  bei der Zentralwellenlänge erzeugt, ist dies nur für eine geringe Bandbreite der Fall. Die Dispersionskurve der Prismenstrecke weist eine starke Krümmung auf. In Kombination mit dispersiven Spiegeln kann die dritte Ordnung weitgehend ausgeglichen werden.

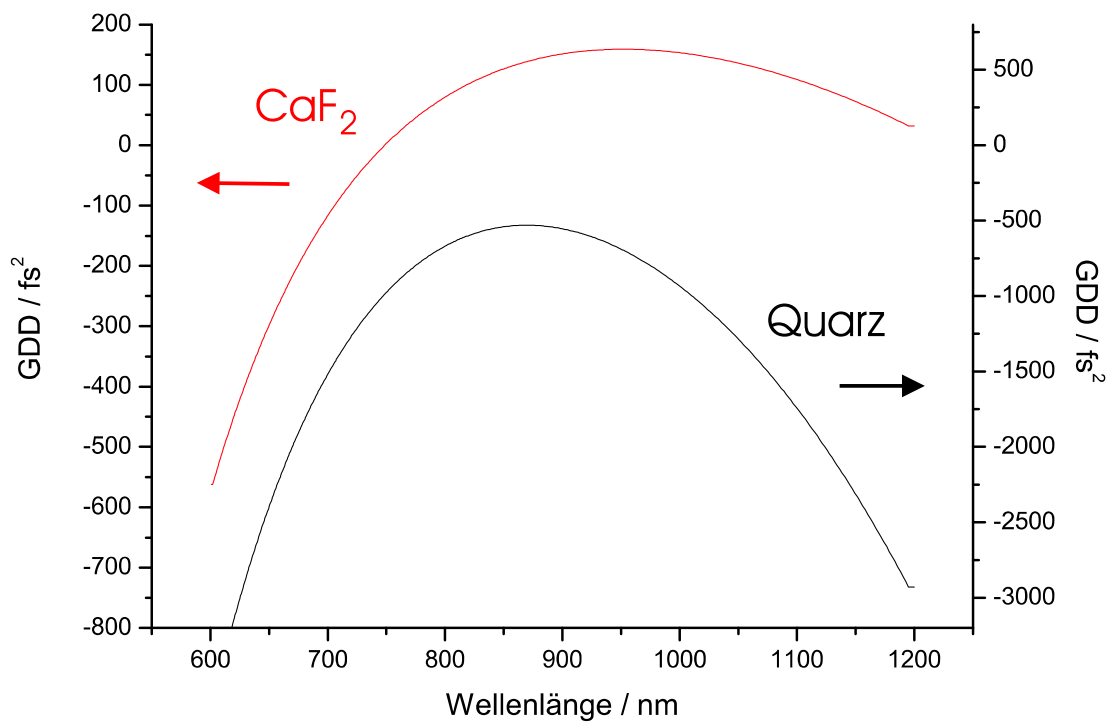


Abbildung 2.9: Dispersionskurven einer  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke (Abstand: 500 mm; Eindringtiefe: 6 mm) und einer Quarz-Prismenstrecke (Abstand: 1200 mm; Eindringtiefe: 18 mm)

Es werden gelegentlich Prismenstrecken mit vier Prismen [Pro92] oder Splitprismen [Mor01], die aus zwei Materialien mit unterschiedlichen Brechungsindizes bestehen, verwendet. Auf sie soll hier nicht näher eingegangen werden, da sie keine Relevanz für diese Arbeit haben.

## Dispersive Spiegel

Ein Meilenstein für die Erzeugung kurzer Laserpulse war die Erfindung von phasenkorrigierenden Spiegel. Diese sind ähnlich aufgebaut wie hochreflektierende Braggspiegel, bei denen dielektrische Schichten mit möglichst großem Unterschied der Brechungsindizes im Abstand von einem Viertel der Wellenlänge abwechselnd aufgedampft wurden. Bei solchen Braggspiegeln interferieren die an den Grenzschichten teilreflektierten Strahlen konstruktiv zu einem reflektierten Strahl. So werden sehr hohe Reflektivitäten erreicht. Wenn man den Schichtstapel so konstruiert, dass die Braggbedingung für langwellige Komponenten tiefer im Material erfüllt ist als für kurzwellige, wirkt er negativ dispersiv. Eine schematische Zeichnung eines solchen Spiegels ist in Abb. 2.10 zu sehen.

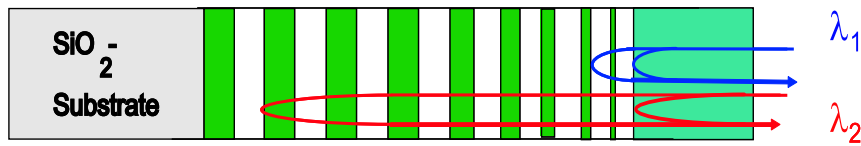


Abbildung 2.10: Schichtstapel eines phasenkorrigierenden Spiegels.

Dispersive Spiegel erlauben eine angepasste Kompensation der Dispersion über große Bandbreiten hinweg. Sie ermöglichen dadurch die Unterschreitung der 10 fs-Markierung. Diese Spiegel können über ein analytisches Modell beschrieben werden [Kär97]. Die genauen Spezifikationen für den Spiegel und die passende Antireflexbedampfung lassen sich mit Hilfe einer numerischen Computeroptimierung bestimmen [Mor01].

Es ist essentiell, einen impedanzangepassten Übergang des Lichts von der Luft bis zum Reflexionspunkt im Braggstapel zu gewährleisten. Man muss also für einen sanften Anstieg der Impedanz im Spiegel sorgen, um alle Reflexionen außer der Hauptreflexion zu unterdrücken. Andernfalls bilden sich Satellitenpulse aus, bzw. – im Fourierraum betrachtet – Oszillationen in der Dispersionskurve. Solche speziell angepassten Spiegel nennt man doppelt-durchgestimmte Spiegel (engl. "double chirped mirror", DCM). Die unerwünschten Oszillationen kann man mit Hilfe von sogenannten DCM-Paaren unterdrücken, indem einer der beiden Spiegel mit einer zusätzlichen  $\lambda/4$ -Schicht bedampft wird. Dies führt dazu, dass die Oszillationen um  $\pi$  verschoben sind und bei der Kombination von zwei Reflexionen auf solch einem Spiegelpaar stark verringert werden. In der Praxis hat sich gezeigt, dass die Oszillationen durch die Verwendung von DCM-Paaren um den Faktor 3 reduziert werden können.

Diese speziellen Spiegel werden mit Hilfe von Ionen-Strahl-Sputtern Schicht für Schicht gefertigt. Die für die Spiegel notwendige Präzision im Bereich von wenigen nm erfordert ein langsames Wachstum, was die möglichen Schichtdicken beschränkt. Aufgrund der erforderlichen Genauigkeit ist es möglich, dass die gefertigten Spiegel von den berechneten Eigenschaften abweichen. Der erreichte Dispersionsverlauf der Spiegel lässt sich mit Hilfe von Weißlicht-Interferometrie messen [Mit04].

## Resonatorinternes Dispersionsmanagement

Ein stationärer Zustand kann sich im Laser nur dann ausbilden, wenn das elektrische Feld nach einem Umlauf im Resonator exakt reproduziert wird. Dies ist

für kurze Pulse nur durch Dispersionskompensation im Laser möglich, da wie in Kapitel 2.2.2 gezeigt, schon sehr kleine Dispersionsbeiträge den Puls stark verbreitern und sich so kein stabiler Puls im Resonator aufbauen kann [Che99]. Deshalb ist es notwendig, nach einem Umlauf eine verschwindende Gesamtdispersion zu erreichen.

Im verwendeten Resonator tragen 2 x 2,7 mm des Saphir-Kristalls, 2 x 2,3 mm BK7-Glas und 2 x 2,25 m Luft zur Dispersion bei. Sie wird mit Hilfe von einer CaF<sub>2</sub>-Prismenstrecke und 11 Reflexionen auf DCM-Paaren ausgeglichen. Die berechnete Dispersion für die einzelnen Komponenten ist in Abb. 2.11 dargestellt.

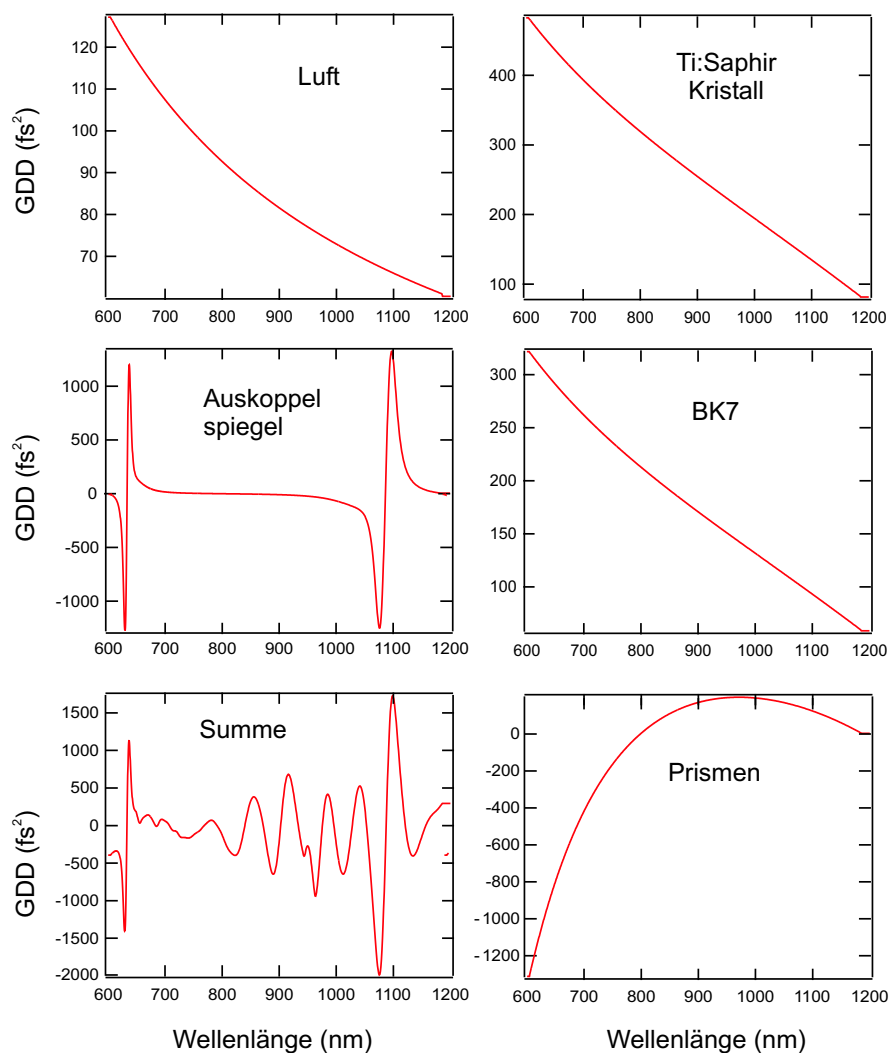


Abbildung 2.11: Dispersion im Laserresonator: 4,5 m Luft, 5,4 mm Saphir, 4,6 mm BK7, CaF<sub>2</sub>-Prismenstrecke (Abstand: 1 m, Eindringtiefe: 10 mm), Gesamtdispersion zusammen mit 11 Reflexionen auf DCM-Paaren (aus [Mor01]).

Im Mittel ist die Gesamtdispersion nach einem Umlauf Null, wodurch zusammen mit dem breiten Spektrum die Erzeugung von 5 fs-Pulsen direkt aus dem Oszillator ermöglicht wird.

### Resonatorexterne Dispersionskompensation

Aufgrund des drastischen Einflusses der Dispersion auf ultrakurze Pulse ist es für Experimente mit sub-10 fs-Pulsen essentiell, für eine Kompensation der Dispersion auch außerhalb des Resonators zu sorgen, da schon die Luft auf dem Weg zum Experiment den Puls um einige Größenordnungen verlängern würde. Auch für die externe Kompensation liefern eine  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke und Mehrfachreflexionen auf einem DCM-Paar die notwendige negative Dispersion. In Abb. 2.12 ist die Dispersion des Pulses nach Durchlaufen der Prismenstrecke und den dispersiven Spiegeln dargestellt. Sie wurde mit dem Pulscharakterisierungs-Verfahren SPIDER (engl. "spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction") gemessen, das im nächsten Kapitel beschrieben wird.

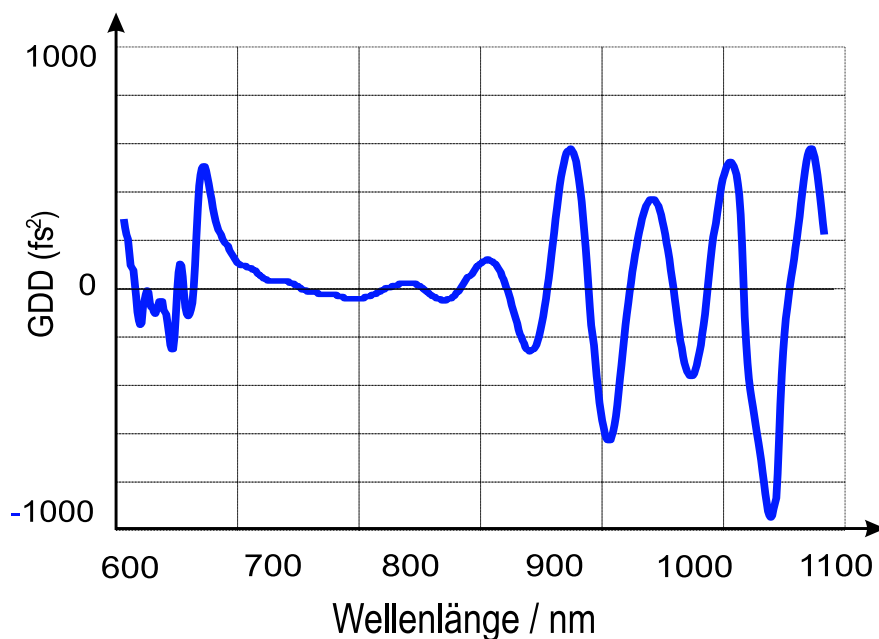


Abbildung 2.12: Mit SPIDER gemessene Dispersion, zu der alle resonatorinternen und -externen Komponenten des Aufbaus beitragen.

Dieser Verlauf kommt dem Ziel von einer Gesamtdispersion von Null sehr nahe. Wie man anhand der starken Oszillationen in der Dispersionskurve sehen kann, wurde allerdings keine glatte Pulsphase realisiert, die für das Erreichen des Fourierlimits notwendig wäre. Der zeitliche Intensitätsverlauf des Pulses, dargestellt

in Abb. 2.13, zeigt Vor- und Nachpulse als Untergrund. Ein Ziel des in dieser Arbeit aufgebauten Pulsformers war unter anderem, eine Alternative für diese externe Dispersionskompensation zu schaffen, um völlig flexibel die verschiedenen Ordnungen der Dispersion kompensieren zu können.

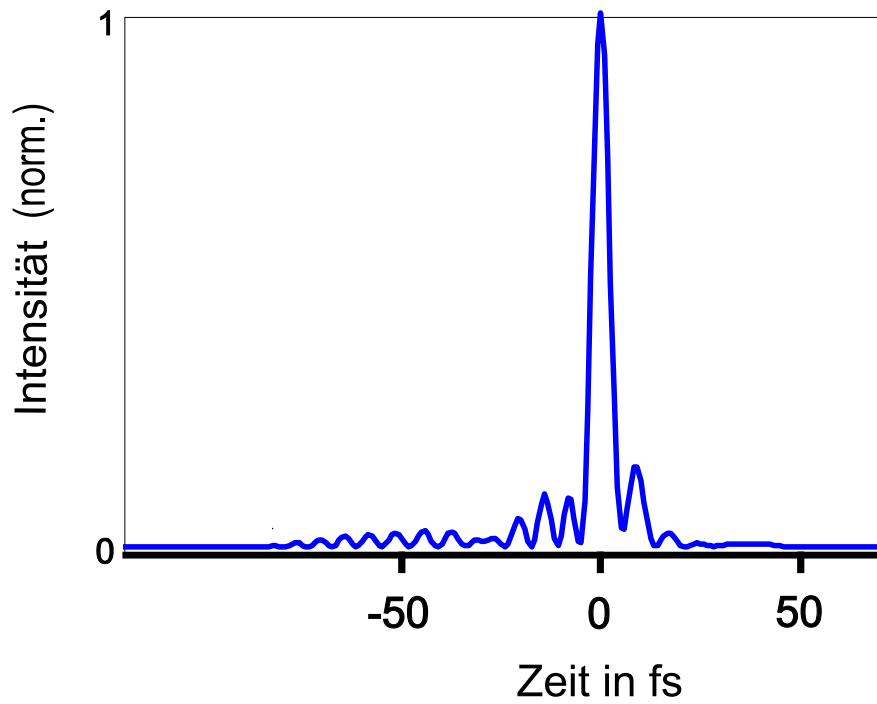


Abbildung 2.13: Intensität eines 4,9 fs-Pulses; mit SPIDER gemessen.



# Kapitel 3

## SPIDER

Durch die Erzeugung immer kürzerer Laserpulse wachsen auch die Anforderungen an eine präzise Pulscharakterisierung. Im folgenden Kapitel werden die in dieser Arbeit verwendeten Verfahren zur Charakterisierung und Detektion der Laserpulse präsentiert. Im zweiten Teil des Kapitels wird der SPIDER–Aufbau beschrieben, der im Rahmen dieser Arbeit konzipiert und aufgebaut wurde.

### 3.1 Charakterisierung ultrakurzer Pulse

Für die ersten gepulsten Laser Ende der sechziger Jahre waren schnelle Photodioden mit einer Anstiegszeit im Nanosekundenbereich ausreichend, um die Pulsdauer direkt elektronisch zu messen. Dies ist im Bereich von Femtosekunden nicht mehr möglich. Die heute elektronisch erreichbare Detektionsbandbreite liegt im Bereich von 100 GHz, d.h. die Zeitauflösung ist auf ca. 10 ps begrenzt.

Deshalb basieren alle Pulscharakterisierungsmethoden im Femtosekundenbereich darauf, den Lichtpuls selbst als zeitliche Referenz für die Messung zu verwenden. In den nächsten Abschnitten werden die beiden verwendeten Pulscharakterisierungsverfahren näher erklärt: die interferometrische Autokorrelation und eine Methode der spektralen Interferometrie, die SPIDER genannt wird.

#### 3.1.1 Interferometrische Autokorrelation

Bei der interferometrischen Autokorrelation (IAC) werden zwei zeitverzögerte Kopien des zu messenden Pulses zum Überlapp und zur Frequenzverdopplung gebracht. Der Aufbau der IAC ist in Abb. 3.1 dargestellt. In einem Mach–Zehnder–Interferometer wird der Puls aufgeteilt und eine der Kopien zeitlich variabel durch einen Piezo verzögert. Der Mach–Zehnder–Aufbau garantiert, dass die Dispersion

in beiden Armen ausgeglichen ist. Das wäre mit einem einzigen Strahlteiler nicht möglich und würde bei sehr kurzen Pulsen zu falschen Ergebnissen führen [Spi97]. Die zeitlich zueinander verschobenen Pulse werden kollinear in einen nichtlinearen Kristall fokussiert, in dem frequenzverdoppelte Strahlung erzeugt wird. Dafür wird ein gekeilter KDP-Kristall ( $10\text{-}50\ \mu\text{m}$ ) verwendet. Die Intensität des verdoppelten Lichts wird nach einem Filter für das Fundamentallicht mit Hilfe eines Photomultipliers und eines Oszilloskops gemessen.

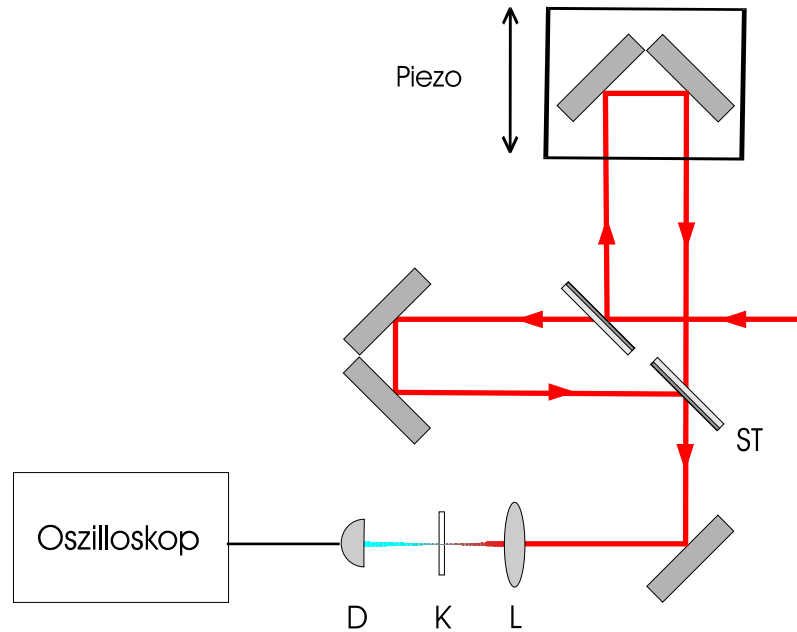


Abbildung 3.1: Aufbau des interferometrischen Autokorrelators; Strahlteiler ST; Photomultiplier D; Kristall K; Hohlspiegel L.

Nimmt man an, dass der Kristall hinreichend dünn ist, so dass keine Beschränkung der Bandbreite auftritt, so gilt:

$$I_{\text{IAC}}(\tau) \propto \int |E(t) + E(t + \tau)|^4 dt \quad (3.1)$$

Durch die Autokorrelationsmessung hat man die für die Detektion zu schnelle Zeitskala  $t$  des Pulses auf die langsame Zeitskala  $\tau = \Delta s/v_P$  des Piezos projiziert, die allein davon abhängt, mit welcher Geschwindigkeit  $v_P$  der Piezo die Pulse um eine Strecke  $\Delta s$  verzögert.

Eine genaue Berechnung der Autokorrelationsfunktion (3.1) findet man im Anhang A. Diese ist immer symmetrisch  $I_{\text{IAC}}(\tau) = I_{\text{IAC}}(-\tau)$ . Deshalb kann man die Zeitrichtung nicht unterscheiden, d.h. es kann nicht entschieden werden, welcher Teil der Pulsfront und welcher der Rückseite des Pulses entspricht. Ist die

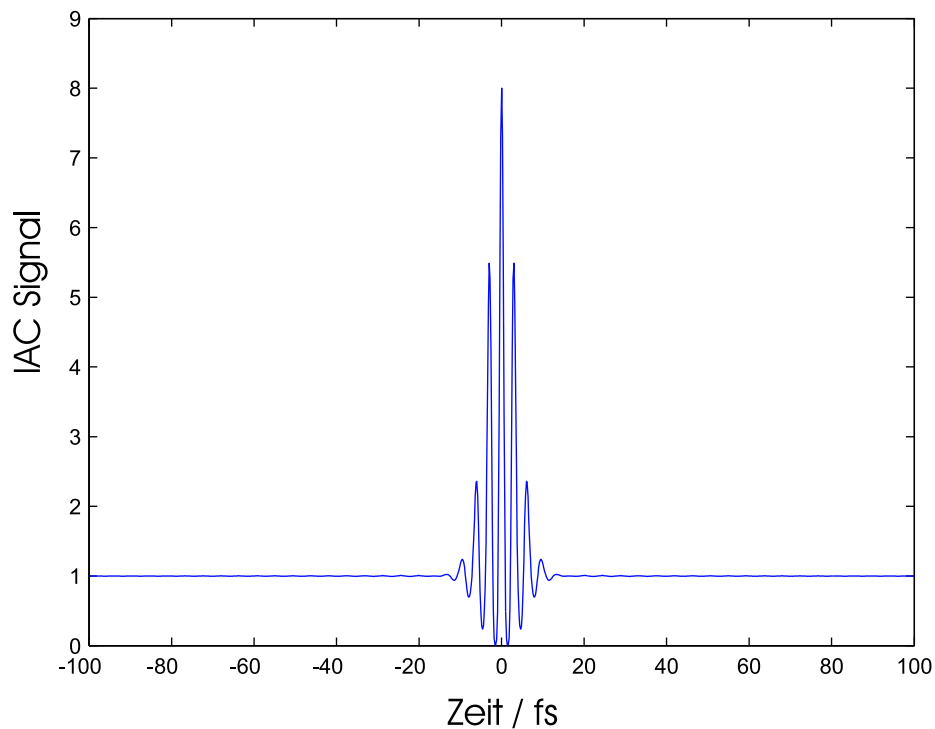


Abbildung 3.2: Berechnete Autokorrelation eines Pulses mit gaussförmigem Spektrum (Halbwertsbreite 150 nm).

Messung nicht symmetrisch, dann liegt das an einer schlechten Einkopplung oder schlechten Justage des Autokorrelators. Außerdem zeigt die Autokorrelation, wie im Anhang gezeigt wird, immer das Verhältnis 8:1 vom maximalen Signal zum Hintergrund. In Abb. 3.2 ist als Beispiel die Autokorrelation eines Gauß-Pulses mit 150 nm Halbwertsbreite dargestellt. Es bleibt noch zu erwähnen, dass die nichtlineare Wechselwirkung notwendig ist, um die Pulsdauer zu messen, da ein gewöhnliches, lineares Interferogramm nicht mehr Information enthält als das Intensitätsspektrum.

Ein großer Nachteil der IAC besteht darin, dass die direkte Phaseninformation verloren geht und folglich nur indirekt aus der Autokorrelationsfunktion Gl. (3.1) rekonstruiert werden kann. Kennt man die zeitliche Pulsform genau, kann man die Pulsdauer bestimmen, indem man die Autokorrelationsfunktion mit einem entsprechenden Umrechnungsfaktor skaliert. Ist die Pulsform nicht a priori bekannt, ist es schwierig, den Puls eindeutig zu charakterisieren. Mit Hilfe eines numerischen Optimierungsverfahrens wird ein Phasenverlauf angenommen und zusammen mit dem Leistungsspektrum daraus eine Pulsform errechnet. Die daraus ermittelte IAC wird mit der gemessenen verglichen. Die Phase wird nun

solange optimiert, bis eine zufriedenstellende Übereinstimmung erreicht wurde. Diese Art der Rekonstruktion ist nicht eindeutig. Es kann auch mathematisch kein eindeutiger Phasenverlauf bewiesen werden, da das Problem der Phasenrekonstruktion nicht umkehrbar ist. Aus diesem Grund haben sich Messverfahren, die diese Mehrdeutigkeit verringern oder wie beim SPIDER gar nicht erst besitzen, als die allgemein anerkannten Methoden zur Pulscharakterisierung von Pulsen im 5 fs-Bereich durchgesetzt.

Trotzdem ist die IAC im experimentellen Alltag von praktischem Nutzen. Anhand der Anzahl und der relativen Amplitude der Oszillationen der Autokorrelation ist mit etwas Erfahrung eine grobe Abschätzung der Pulsdauer möglich. So kann eine Optimierung der Dispersion mit einem experimentell einfachen Aufbau vorgenommen werden, ohne einen Rekonstruktionsalgorithmus zu verwenden.

### 3.1.2 SPIDER

Aus den oben erwähnten Gründen werden zur Charakterisierung von sehr kurzen Pulsen mittlerweile Verfahren favorisiert, die einen leichteren Zugang zur Pulsphase ermöglichen. Eine Weiterentwicklung der IAC ist das sogenannte FROG-Verfahren (engl. "frequency-resolved optical gating"), bei dem das Interferenzsignal der beiden Puls kopien nicht auf einem Detektor integriert, sondern in einem Spektrometer aufgenommen wird [DeL94]. Man erhält dadurch zweidimensionale Bilder (FROG trace), auf denen die zeitliche Verzögerung der Spektralkomponenten veranschaulicht ist. Um allerdings die Pulsphase zu bestimmen, ist wieder eine aufwändige Rekonstruktion notwendig. Die Mehrdeutigkeit ist dabei allerdings durch die Zweidimensionalität des Signals verringert. Da für die Rekonstruktion ein zeitintensiver Algorithmus verwendet wird, ist dieses Verfahren für eine Echtzeit-Optimierung des Pulses nur bedingt geeignet.

Der SPIDER-Aufbau (engl. "spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction") ermöglicht es dagegen, Phase und Pulsform in Echtzeit zu bestimmen [Iac99]. Dadurch ist die Methode allen anderen Pulscharakterisierungsverfahren überlegen. Leider bringen diese Verbesserungen die Notwendigkeit eines justage kritischen Aufbaus mit sich, da nun drei Strahlen in Raum und Zeit überlappt werden müssen.

Wie schon im vorherigen Kapitel erwähnt, enthält ein lineares Interferogramm keine Information über die Pulsdauer, da die spektralen Phasen der Pulse gleich sind und sich somit gegenseitig aufheben. Wäre es möglich, das Spektrum eines Pulses um eine konstante Frequenz  $\Omega$  zu verschieben, wären die Phasen der interferierenden Spektralkomponenten nicht mehr identisch. Im spektral aufgelösten

Interferogramm lassen sich dann die relativen spektralen Phasen  $\phi(\omega - \Omega) - \phi(\omega)$  messen.

Das elektrische Feld der beiden um  $\tau$  zeitverzögerten Teilpulse mit Träger und Einhüllenden ist wie in Kapitel 2.2.2 gegeben durch:

$$E_1(t) = A(t)e^{i\omega_0 t} \quad (3.2)$$

$$E_2(t) = A(t - \tau)e^{i\omega_0(t-\tau)} \quad (3.3)$$

Wird das Spektrum des ersten Pulses um  $\Omega$  verschoben, wird Gleichung (3.2) zu

$$E_1(t) = A(t)e^{i(\omega_0 + \Omega)t}. \quad (3.4)$$

Im Spektrometer wird der Puls in seine spektralen Komponenten zerlegt, was mathematisch einer Fouriertransformation entspricht. Mit dieser Transformation ergibt sich für die Intensität des Interferogramms

$$I_{\text{SPIDER}}(\omega) = \left| \tilde{E}_1(\omega) + \tilde{E}_2(\omega) \right|^2 \quad (3.5)$$

$$= \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0 - \Omega) + \tilde{A}(\omega - \omega_0)e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (3.6)$$

$$= \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0 - \Omega) \right|^2 + \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0) \right|^2 \\ + \tilde{A}(\omega - \omega_0 - \Omega)\tilde{A}^*(\omega - \omega_0)e^{i\omega\tau} \\ + \tilde{A}^*(\omega - \omega_0 - \Omega)\tilde{A}(\omega - \omega_0)e^{-i\omega\tau} \quad (3.7)$$

$$= \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0 - \Omega) \right|^2 + \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0) \right|^2 \\ + \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0 - \Omega) \right| \cdot \left| \tilde{A}(\omega - \omega_0) \right| \\ \cdot 2 \cos(\phi(\omega - \omega_0 - \Omega) - \phi(\omega - \omega_0) - \omega\tau) \quad (3.8)$$

Um die SPIDER-Phase  $\varphi_{\text{SP}}$

$$\varphi_{\text{SP}} = \phi(\omega - \omega_0 - \Omega) - \phi(\omega - \omega_0) \quad (3.9)$$

aus dem Interferenzsignal zu erhalten, muss man den oszillierenden Term vom konstanten Term in Gleichung (3.8) trennen. Durch eine Fouriertransformation in den Zeitbereich lassen sich die beiden Terme durch Multiplikation einer Super-Gauß-Funktion  $H(t)$  separieren

$$I_{\text{SPIDER}}^{\text{AC}}(\omega) = \mathcal{FT}^{-1}(H(t - \tau) \cdot \mathcal{FT}(I_{\text{SPIDER}})). \quad (3.10)$$

Zieht man von der Phase dieses Terms den durch die Verzögerung der Pulse entstandenen Anteil  $\omega\tau$  ab, erhält man die SPIDER-Phase.

Ist der Frequenzabstand  $\Omega$  klein genug, kann man folgende Näherung machen:

$$\varphi_{\text{SP}}(\omega) = \phi(\omega - \omega_0 - \Omega) - \phi(\omega - \omega_0) \approx \Omega \frac{d\phi(\omega - \omega_0)}{d\omega}. \quad (3.11)$$

Das bedeutet, dass das gemessene Signal proportional zur Ableitung der spektralen Phase des Pulses ist. Die Pulsphase erhält man durch Integration

$$\boxed{\phi(\omega - \omega_0) \approx \frac{1}{\Omega} \int \varphi_{\text{SP}}(\omega) d\omega.} \quad (3.12)$$

Es wurde gezeigt, dass durch die Verschiebung des Spektrums eines der Pulse die Bestimmung der spektralen Phase aus dem Interferogramm möglich ist. Aber wie kann man so eine spektrale Verschiebung experimentell implementieren? Dies soll im Folgenden erläutert werden.

### SPIDER–Aufbau

Zur Realisierung des SPIDER werden drei Teilpulse erzeugt, von denen zwei in einem Mach–Zehnder–Aufbau zeitlich gegeneinander verschoben werden. Der dritte Puls wird dispersiv um etwa einen Faktor 1000 verbreitert. Dadurch wird das Spektrum des Pulses zeitlich aufgefächert (engl. "chirp"). Mit diesen drei Pulsen wird in einem nichtlinearen Kristall die Summenfrequenz (SFG) von den kurzen Pulsen mit jeweils einem quasi–monochromatischen Teil des langen Pulses gebildet. Dabei mischen die Spektren der kurzen Pulse durch die zeitliche Verzögerung mit Frequenzen des langen Pulses, die sich aufgrund des starken chirps um  $\Omega$  unterscheiden. Auf diese Weise wird die angestrebte spektrale Verschiebung (engl. "shear") erreicht. Abbildung 3.3 verdeutlicht dieses Prinzip.

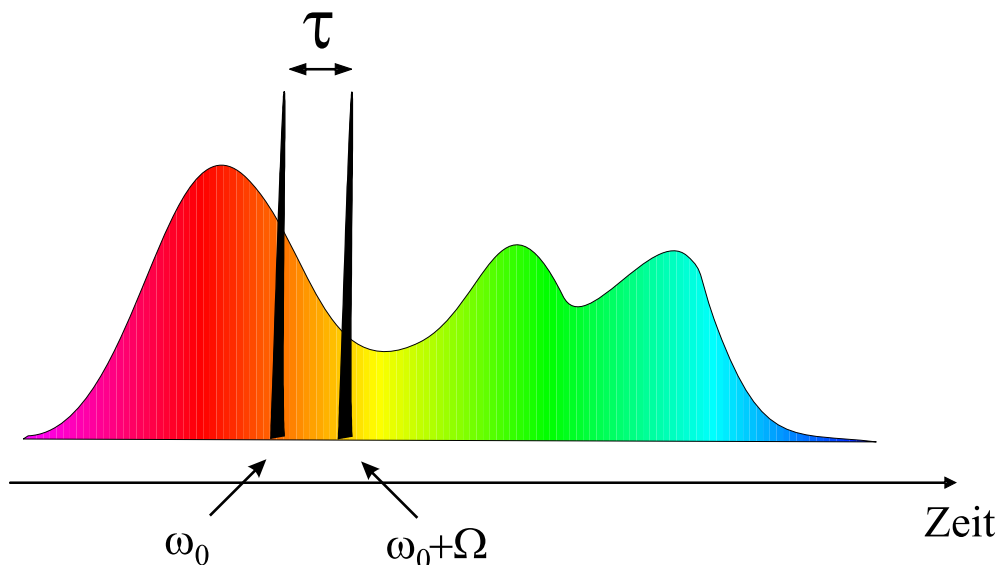


Abbildung 3.3: Spektrale Verschiebung der Teilpulse im SPIDER.

In Diagramm 3.4 ist der verwendete experimentelle Aufbau abgebildet. Ein 6 cm dicker SF 10-Block sorgt für ca.  $10.000 \text{ fs}^2 \text{ GDD}$ . Damit wird der Puls auf ca. 6 ps verlängert. In diesem Arm des Aufbaus sorgt eine Verzögerungsstrecke für den

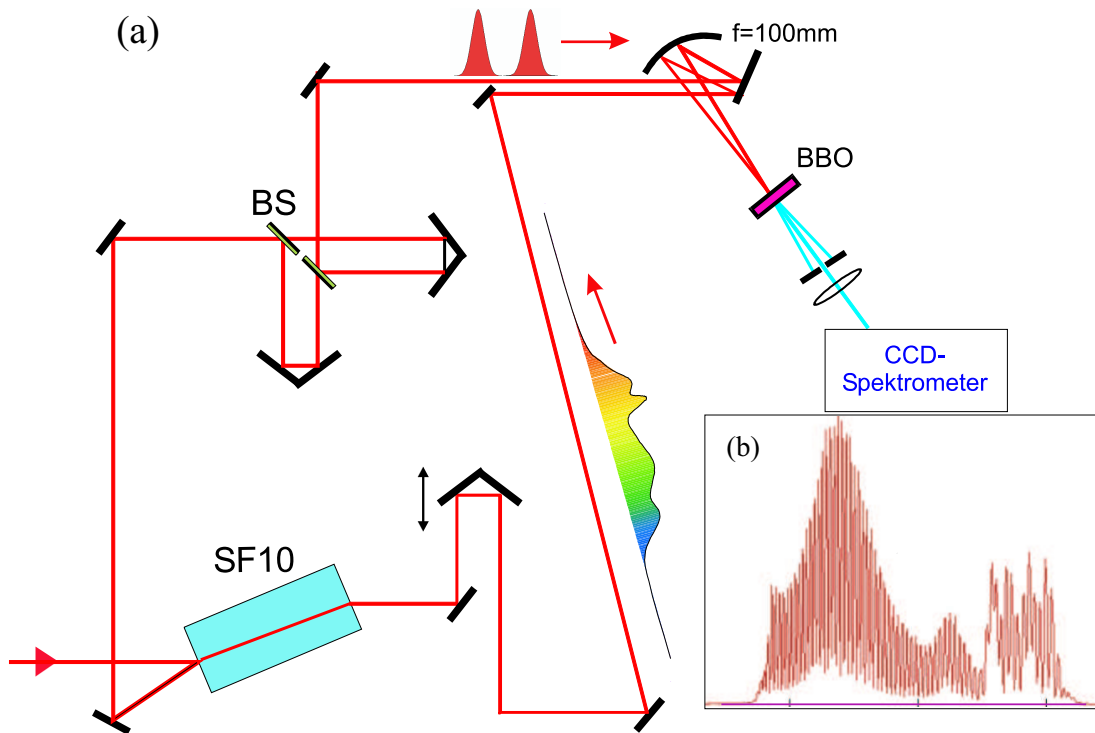


Abbildung 3.4: (a) SPIDER-Aufbau. (b) Interferenzsignal.

zeitlichen Überlapp der kurzen Pulse mit dem langen Puls. Ein reflektives Objektiv<sup>1</sup> fokussiert die parallel justierten Strahlen in den Kristall (gekeilter BBO,  $10\text{-}50 \mu\text{m}$ ). Aufgrund der nicht kollinearen Anordnung können die Strahlen der Frequenzverdopplung mit Hilfe einer Blende geblockt werden. Der mittlere Strahl, der das Summenfrequenzsignal enthält, wird durch eine Linse in das Spektrometer<sup>2</sup> fokussiert. Das Licht wird mit Hilfe einer CCD-Kamera<sup>3</sup> aufgenommen. Die Daten werden durch eine GPIB Verbindung ausgelesen und im Computer verarbeitet.

<sup>1</sup>Ealing-Coherent, x35, NA=0.5, f=5.4 mm

<sup>2</sup>Andor DU420 CCI 010, 1024 x 255 pixel

<sup>3</sup>Lot-Oriel MS260i

## Kalibration des SPIDER–Aufbaus

Für die Pulscharakterisierung mit dem SPIDER müssen drei Größen mit großer Genauigkeit gemessen werden: die zeitliche Verzögerung zwischen den kurzen Pulsen  $\tau$ , die Frequenzverschiebung  $\omega_{\text{shift}}$  (engl. "Shift"), die beide Pulse gleichermaßen durch die Summenfrequenzbildung erhalten, und die spektrale Verschiebung zwischen den beiden Pulsen  $\Omega$  (engl. "shear").

### Zeitverzögerung $\tau$ :

Um die spektrale Phase der Pulse aus dem SPIDER-Signal Gl. (3.8) bestimmen zu können, muss man den zeitlichen Abstand der Pulse  $\tau$  sehr genau kennen. Eine mögliche Methode, diese Größe zu messen, besteht darin, das Interferogramm der kurzen Pulse ohne den langen Puls im Spektrometer aufzunehmen. Dann ist der Abstand der Interferenzstreifen genau  $1/\tau$ , da ohne die spektrale Verschiebung des langen Pulses die Pulsphase in Gl. (3.8) herausfällt. Dies kann man experimentell durch Einkopplung des frequenzverdoppelten Lichts der beiden kurzen Pulse in das Spektrometer realisieren.

Im Moment wird die  $\tau$ -Kalibration auf eine andere Weise durchgeführt. Ist der Puls nicht zu stark dispersiv verbreitert, kann  $\tau$  auch aus dem Wert der Fouriertransformierten von  $I_{\text{SP}}(\omega)$  im Zeitbereich bestimmt werden. Diese Methode ist nur näherungsweise korrekt.

Da das SPIDER-Signal der Ableitung der Pulsphase entspricht und  $\tau$  dort linear eingeht, führt eine Fehlbestimmung von  $\tau$  zu einem konstanten Beitrag von Dispersion zweiter Ordnung in der Phasenmessung. Minimiert man nun gleichzeitig die GDD mit Hilfe der Vorkompensation und des Autokorrelators, kann die Abweichung vom geometrischen  $\tau$ -Wert dadurch korrigiert werden, dass  $\tau$  so lange verändert wird, bis die minimale Pulsdauer mit SPIDER bestimmt wurde.

### Shift $\omega_{\text{shift}}$ :

Das ursprüngliche Spektrum wird durch die Summenfrequenzbildung um etwa 450 nm zu kleineren Wellenlängen verschoben. Das Quadrat des gemessenen Interferogramms hat bei guter Justage des SPIDER–Aufbaus eine ähnliche Form wie das ursprüngliche Spektrum. Den Frequenzabstand  $\omega_{\text{shift}}$  kann man bestimmen, in dem man eine Korrelation der beiden Spektren vornimmt. Danach können beide Spektren übereinander geschoben werden. Am Bildschirm ist dann eine visuelle Feinabstimmung per Tastendruck möglich.

### spektrale Verschiebung $\Omega$ :

Die spektrale Verschiebung wird durch eine Korrelation der Spektren der kurzen Pulse ähnlich wie zur Bestimmung des Shifts ermittelt. Die Formen der beiden



Spektren können justagebedingt von einander abweichen. Die daraus resultierende Fehlbestimmung der spektralen Verschiebung geht linear in die Gleichung für die spektrale Phase ein (3.12). Das bedeutet,  $\Omega$  skaliert die gemessenen Phasenwerte und ist damit für die Bestimmung der Pulsdauer weniger kritisch als die zeitliche Verzögerung  $\tau$ .

## 3.2 SPIDER mit Typ II-Phasen Anpassung

Der im letzten Kapitel beschriebene SPIDER-Aufbau besitzt noch Verbesserungspotential. Insbesondere lassen sich Pulse niedriger Energie ( $< 1 \text{ nJ}$ ) nur sehr schwer detektieren. Da der verwendete Laser eine relativ geringe Ausgangsleistung aufweist (100 mW), war eine Messung mit dem vorhandenen SPIDER-Aufbau nur mit Hilfe einer sehr sensitiven, und damit teuren CCD-Kamera möglich. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuer SPIDER aufgebaut, dessen Verbesserungen und Unterschiede zum alten Aufbau im folgenden Kapitel beschrieben werden.

### 3.2.1 Prinzip

Bei dem im vorherigen Kapitel beschriebenen SPIDER-Aufbau wird Typ I-Phasen Anpassung für die Summenfrequenzbildung (SFG) verwendet. Um die Vorteile der Typ II-Phasen Anpassung darzulegen, wird im Folgenden näher auf die Einzelheiten der nichtlinearen Wechselwirkung im Kristall eingegangen.

Phasen Anpassung ist bei vielen nichtlinearen Prozessen essentiell. Hier soll nur die im SPIDER verwendete Summenfrequenzbildung erläutert werden. Die gekoppelten Gleichungen für die Amplituden der Frequenzen der Grundwellen  $E(\omega_1)$ ,  $E(\omega_2)$  und der konvertierten Strahlung  $E(\omega_3)$  bei diesem  $\chi^{(2)}$ -Prozess lauten

$$\frac{\partial E(\omega_1)}{\partial z} = -i\kappa_1 E(\omega_3) E^*(\omega_2) e^{-i\Delta kz} \quad (3.13)$$

$$\frac{\partial E(\omega_2)}{\partial z} = -i\kappa_2 E(\omega_3) E^*(\omega_1) e^{-i\Delta kz} \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial E(\omega_3)}{\partial z} = -i\kappa_3 E(\omega_1) E(\omega_2) e^{i\Delta kz} \quad (3.15)$$

mit  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$  und  $\kappa_i = \omega_i d_{eff} / n_i c$  [Mor02]. Der effektive Verdopplungskoeffizient  $d_{eff}$  beinhaltet die nichtlinearen Koeffizienten  $\chi^{(2)}$  des Kristalls. Betrachtet man die Näherung für kleine Konversion, das heisst man nimmt an, dass die Grundwellen nicht nennenswert umgewandelt und somit nicht abgebaut werden, können (3.14) und (3.15) als stationär betrachtet werden und somit gleich Null gesetzt werden. In diesem Fall lässt sich die Intensität der Summenfrequenz durch

Integration der dritten Differentialgleichung über die Länge des Kristalls  $l$  lösen:

$$I(\omega_3, l) = \frac{2\kappa_3^2 n_3}{n_2 n_2 c \epsilon_0} l^2 I(\omega_1) I(\omega_2) \left( \frac{\sin \Delta k l / 2}{\Delta k l / 2} \right)^2 \quad (3.16)$$

Erreicht man ideale Phasenanpassung

$$\Delta k = k(\omega_1 + \omega_2) - k(\omega_1) - k(\omega_2) = 0, \quad (3.17)$$

so nimmt die Intensität der konvertierten Strahlung quadratisch mit der Kristalllänge und linear mit den Intensitäten der Grundwellen zu. Gelingt dies nicht, ist also die Differenz zwischen den Propagationskonstanten der Grundwellen und der Summenfrequenz nicht Null, dann läuft das Feld, das bei der Summenfrequenz erzeugt wird, mit dem der Grundwellen auseinander. Für  $\Delta k \neq 0$  kommt es daher zu einer Oszillation zwischen bereits konvertiertem Licht und Rückkonversion in die Grundwellen. Dadurch ist je nach Dicke des Kristalls die Konversionseffizienz wesentlich schlechter als im Fall von Phasenanpassung. Durch die Wahl eines dünnen Kristalls ( $l < l_c = \pi / \Delta k$ ) kann man diesem Effekt entgegenwirken, da es auf Strecken kürzer als die Kohärenzlänge  $l_c$  noch nicht zur Rückkonversion kommt.

Um das Prinzip der Phasenanpassung zu veranschaulichen, wird im Weiteren angenommen, dass  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$  ist. In diesem Fall müssen die Brechungsindizes der Grundwellen und der Summenfrequenz gleich sein, um Phasenanpassung zu erreichen:

$$\Delta k = k(2\omega) - k(\omega) - k(\omega) \quad (3.18)$$

$$= \frac{2\omega}{c} n(2\omega) - 2 \frac{\omega}{c} n(\omega) \stackrel{!}{=} 0 \quad (3.19)$$

Die Materialdispersion macht es unmöglich, diese Gleichung zu erfüllen, da der Brechungsindex frequenzabhängig ist. Sind die Grundwellen und die Summenfrequenz in einem negativ doppelbrechenden Kristall unterschiedlich polarisiert, kann es sein, dass durch  $n_e(2\omega) = n_o(\omega)$  die Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist. Dies nennt man nichtkritisch phasenangepasst. Diese Übereinstimmung ist aber relativ zufällig und in der Regel nur durch Temperaturabstimmung zu erreichen.

Bei doppelbrechenden Kristallen ist es möglich, durch Abstimmung des Einfallswinkels  $\theta$  zur optischen Achse des Kristalls den Wert des Brechungsindex zwischen  $n_o$  und  $n_e$  zu variieren. Insbesondere kann man erreichen, dass  $n_\theta(2\omega) = n_o(\omega)$  gilt. Dabei wird das Fundamentallicht in ordentlicher Kristallachse eingestrahlt. Diesen Fall nennt man Typ I kritische Phasenanpassung. Wird

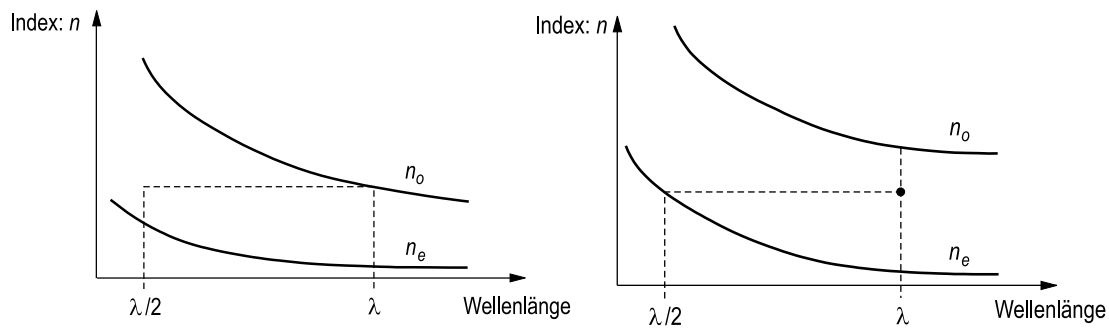


Abbildung 3.5: kritische Phasen Anpassung: im linken Bild ist Typ I dargestellt, im rechten Typ II.

eine Grundwelle in ordentlicher und die andere in außerordentlicher Achse eingestrahlt, spricht man von Typ II-Phasen Anpassung. Abb. 3.5 soll die Abstimmung der Brechungsindizes für beide Fälle verdeutlichen.

Aus der Bedingung der Phasen Anpassung ( $\Delta k = 0$ ) leitet sich die Akzeptanz-Bandbreite des SFG-Prozesses ab. Sie ist invers proportional zur Länge des Kristalls, da wie oben erwähnt die Phasen Anpassung bei dünnen Kristallen nicht so kritisch ist. Um die Bandbreite zu erreichen, die für die Konversion kurzer Pulse notwendig ist, kann man nur Kristalle mit einer Dicke von einigen  $\mu\text{m}$  verwenden. Dies führt zu relativ schlechten Konversionseffizienzen, da die Dicke des Kristalls quadratisch in die Intensität der konvertierten Strahlung eingeht (Gl. 3.16).

Es zeigt sich, dass bei Summenfrequenzbildung die Bandbreite für den Typ II-Prozess etwa doppelt so groß ist wie für Typ I. Aus diesem Grund kann man bei gleicher Bandbreite einen doppelt so dicken Kristall verwenden. Deshalb erwartet man viermal mehr SFG-Signal bei Typ II-Phasen Anpassung als bei Typ I. In Diagramm 3.6 sind die errechneten Bandbreiten des verwendeten BBO-Kristalls (Dicke  $100 \mu\text{m}$ ) für den ooe-Typ II<sup>4</sup> und ooe-Typ I SFG-Prozess für beide Phasen Anpassarten aufgetragen.

Für Typ II-Phasen Anpassung muss man dafür sorgen, dass die Eingangsstrahlen senkrecht zueinander polarisiert sind, um zu gewährleisten, dass ein Strahl in ordentlicher und einer in außerordentlicher Richtung eingestrahlt wird. Die experimentielle Umsetzung des Typ II-SPIDER wird im nächsten Abschnitt beschrieben.

<sup>4</sup>Beim ooe-Prozess wird der kurze Puls in ordentlicher Kristallachse und die CW-Komponente des langen Puls in außerordentlicher Achse eingestrahlt. Das konvertierte Licht verlässt den Kristall in außerordentlicher Richtung.

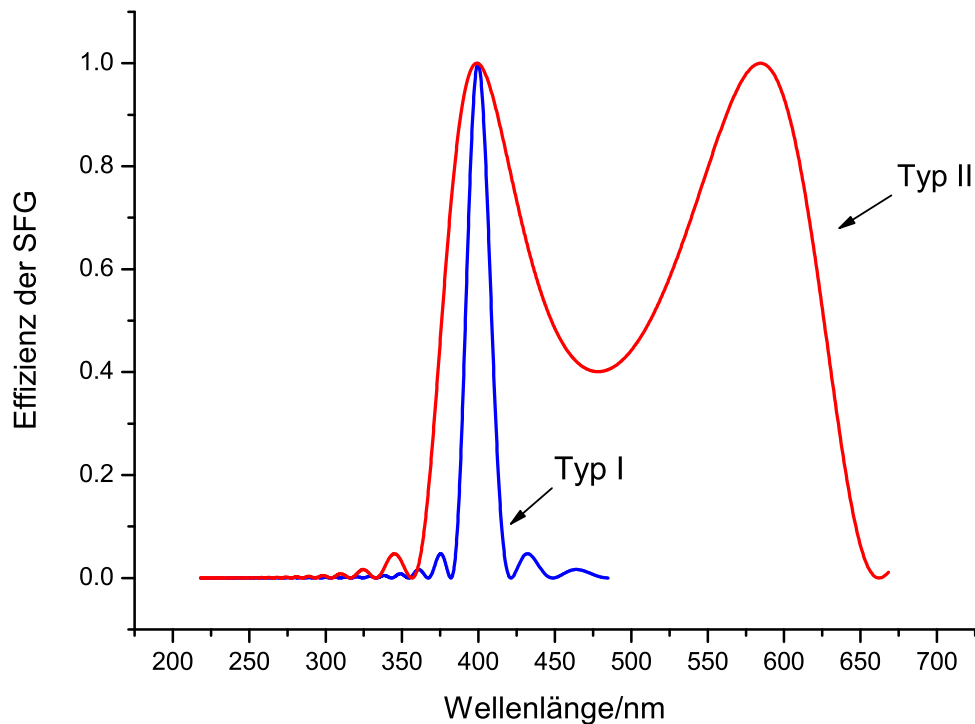


Abbildung 3.6: Bandbreiten für den SFG-Prozess mit ooe-Typ I- und ooe-Typ II-Phasenanpassung eines  $100 \mu\text{m}$  dicken BBO-Kristall.

### 3.2.2 Aufbau

Der neue Aufbau sollte nicht nur bezüglich der Art der Phasenanpassung verbessert werden, sondern auch durch eine kompakte Bauweise eine erhöhte Stabilität erreichen. Damit wäre der SPIDER-Aufbau zusätzlich transportabel und zur Charakterisierung bei anderen Experimenten mit kurzen Pulsen einsetzbar. Daher wurde der Aufbau für eine kleine Lochrasterplatte ( $40 \text{ cm} \times 50 \text{ cm}$ ) konzipiert und hauptsächlich 1/2-Zoll-Optik verwendet. In Diagramm 3.7 ist eine schematische Zeichnung des Aufbaus abgebildet. Die Polarisation des langen Pulses wird mit Hilfe eines Periskops gedreht. Damit alle Strahlen parallel zum Tisch verlaufen, wird der Höhenversatz des anderen Arms ebenfalls mit einem Periskop überwunden, allerdings diesmal ohne die Polarisation zu ändern.

Die zeitliche Verzögerung der beiden kurzen Pulse wird in manchen Aufbauten durch ein dünnes Etalon anstelle des Mach-Zehnder-Interferometers realisiert. Dies hat den Vorteil, dass die Justage des Interferometers wegfällt und dadurch viele Komponenten eingespart werden. Dabei ist allerdings die Verzögerung  $\tau$

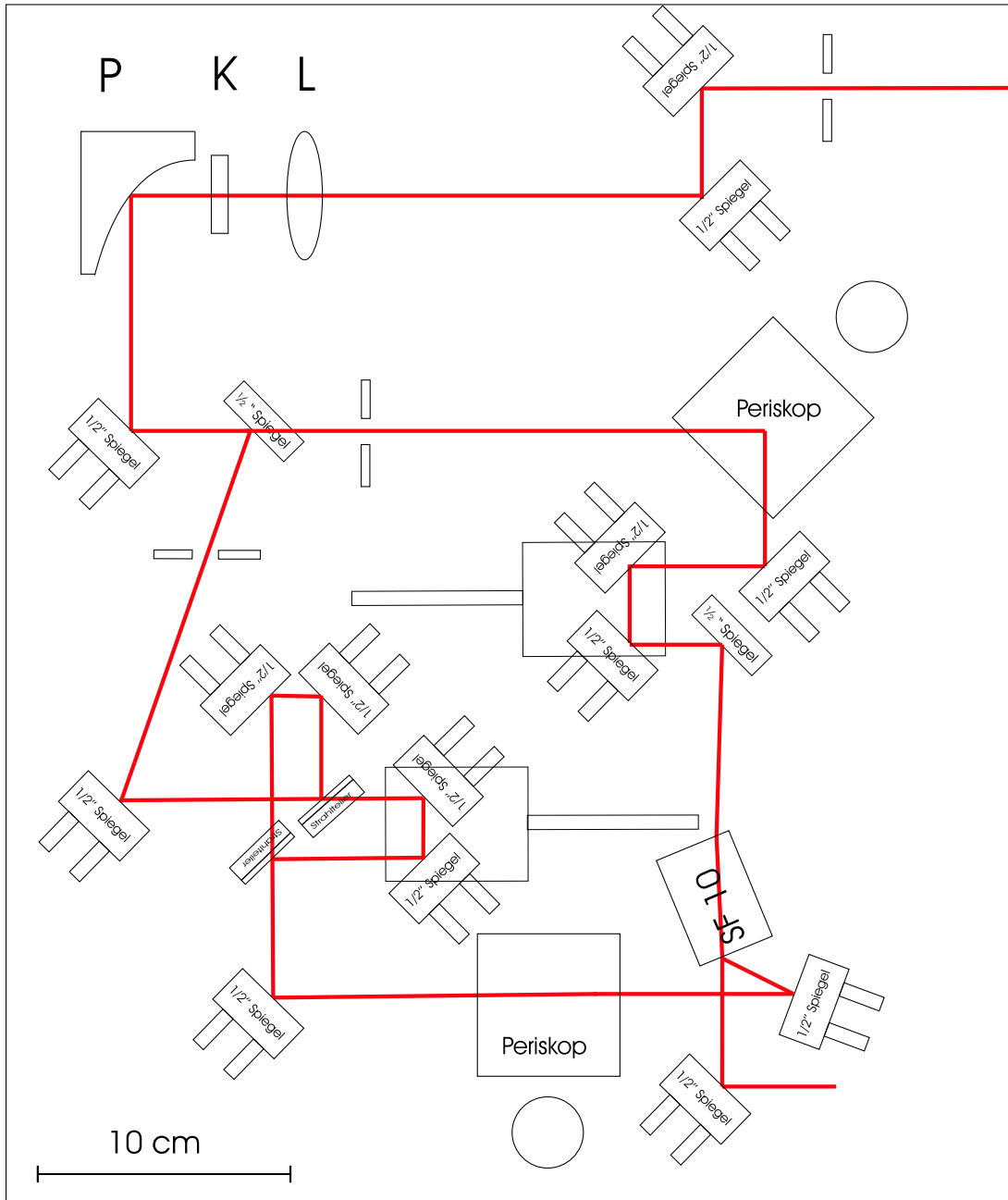


Abbildung 3.7: Schematischer Aufbau des Typ II-SPIDERS; P: Off-Axis-Parabolspiegel, K: Kristall ( $100 \mu\text{m}$  BBO), L: Linse

der Pulse festgelegt, und es entstehen unerwünschte Mehrfachreflektionen. Das Hauptproblem besteht aber darin, dass der verzögerte Puls Dispersion durch die dünne Glasschicht erfährt. Wenn die Dispersion zwischen den zwei kurzen Pulsen nicht austariert ist, wird das Signal bei sub-10 fs-Pulsen signifikant verfälscht. Dadurch ist das Etalon nur zur Detektion von längeren Pulsen geeignet.

Die Verwendung eines Michelson-Interferometers würde einen kompakteren Aufbau ermöglichen. Auch bei dieser Anordnung ist der Ausgleich der Dispersion zwischen beiden Strahlen nicht gegeben, was zur Charakterisierung von kurzen Pulsen essentiell ist. Da durch ein Ausgleichssubstrat das Interferometer in etwa die gleichen Abmessungen wie ein Mach-Zehnder-Aufbau gehabt hätte, wurde die Mach-Zehnder-Anordnung beibehalten, um die Zeitverzögerung  $\tau$  zu realisieren. Der optimale Wert dieser Größe liegt zwischen 200 fs und 300 fs. Für kleinere Werte ist der Abstand zwischen den Oszillationen des SPIDER-Interferogramms für eine genaue Phasenbestimmung zu groß. Hat  $\tau$  einen größeren Wert, werden die Abstände der Interferenzstreifen zu klein, um sie mit dem Spektrometer mit ausreichender Genauigkeit auflösen zu können.

Eine weitere Verbesserung soll durch die Verwendung breitbandiger, dielektrischer Strahlteiler erreicht werden, die kaum Absorption aufweisen. Im alten Aufbau standen nur metallbeschichtete Strahlteiler zur Verfügung, die ca. 40% der Leistung absorbieren. Da zwei dieser Strahlteiler benutzt werden, ist der Verlust an Lichtintensität erheblich. Durch die verbesserten Strahlteiler werden nun 50% anstatt zuvor 20% des Ausgangsstrahls durch das Interferometer transmittiert. Das sollte eine deutliche Verbesserung des Signals bringen.

Da die kurzen Pulse, wie in Abb. 3.3 zu sehen, nur mit einem schmalen Spektralanteil des langen Pulses Summenfrequenz bilden, wird nur ein Fresnel-Reflex des SF 10-Block für die kurzen Pulse verwendet. Das optimale SFG-Signal erhält man, wenn die Intensitäten der kurzen Pulse und der quasi monochromatischen Spektralkomponenten des dispersiv verbreiterten Pulses übereinstimmen.

Aus dieser Bedingung für die Intensitäten der Pulse lässt sich auch der optimale Wert für die dispersive Verbreiterung des langen Pulses für den festgelegten zeitlichen Abstand  $\tau$  der Pulse bestimmen. Würde man den Puls nicht sehr stark verlängern, wäre die Intensität in den spektralen Komponenten größer und damit das Signal stärker. Auf der anderen Seite führt dies auch zu einem großen Wert für die spektrale Verschiebung  $\Omega$ , da bei einem relativ schwach gec chirpten Puls die Differenz zwischen den Frequenzen, die um den Abstand der kurzen Pulse  $\tau$  auseinander gelaufen sind, sehr groß ist. Für einen großen Wert für  $\Omega$  ist aber die Näherung der konstanten Frequenz nicht mehr gegeben, dass das SPIDER-Signal

der Ableitung der Phase entspricht (vgl. Gl. (3.12)).

Der verwendete SF 10-Block ist 4 cm lang und verbreitert den Puls auf ca. 4 ps. Dies stellt einen guten Kompromiss zwischen beiden Bestrebungen dar. Im Vergleich zum alten Aufbau wird der lange Puls nicht so stark verlängert, was auch zu einem verbesserten Signal beitragen soll.

Bisher wurde zur Fokussierung ein dispersionsfreies, reflektives Objektiv verwendet. Diese Bauteile sind sehr teuer, justage-kritisch und besitzen mit ca. 50% Durchsatz eine schlechte Effizienz. Da man keine dispersive Optik wegen den kurzen Pulse verwenden kann, soll als preiswerte Alternative ein Off-Axis-Paraboloid verwendet werden. Allerdings muss für ein optimales SFG-Signal ein sehr harter Fokus erreicht werden. Es ist fraglich, ob dies mit dem Paraboloid erzielt werden kann.

Wenn durch alle erwähnten Verbesserungen so viel Signalgewinn erreicht wird, dass ein weniger sensitives Spektrometer zur Detektion des Signals ausreicht, könnte man die teure CCD-Kamera ersetzen. Dies würde einen preiswerteren und kompakteren Aufbau ermöglichen. In Abb. 3.8 ist ein Photo des experimentellen Aufbaus zu sehen.

### 3.2.3 Ergebnisse

Die Justage des SPIDER-Aufbaus ist sehr kritisch, da man die drei Pulse sowohl zeitlich als auch räumlich zum Überlapp bringen muss, um ein Signal zu erhalten. Glücklicherweise kann man diese beiden Probleme getrennt angehen, wie in den nächsten Abschnitten im Detail beschrieben wird. Nachdem der zeitliche Abstand der beiden kurzen Pulse im Interferometer eingestellt ist, stellt man sicher, dass die optischen Wege für den dispersiv verbreiterten Puls und die beiden kurzen Pulse gleich lang sind, damit sie zur gleichen Zeit den Kristall durchlaufen. Danach wurde dafür gesorgt, dass die Foki der beiden Strahlen im BBO-Kristall überlappen. Am Schluss wird die erste Messung des SPIDER-Signals präsentiert.

### Messung des zeitlichen Überlapps

Um den zeitlichen Abstand zweier Pulse zu messen, koppelt man beide in eine Faser ein, die an ein Spektrometer<sup>5</sup> angeschlossen ist. Im Spektrometer wird der Puls in seine Spektralkomponenten zerlegt. Dort interferieren diese, was aufgrund des zeitlichen Abstands zu einer Amplitudenmodulation des gemessenen Spektrums führt. Aus dem Abstand zweier Maxima der Modulation  $\Delta\lambda$  kann

---

<sup>5</sup>Ando AO-6315 B

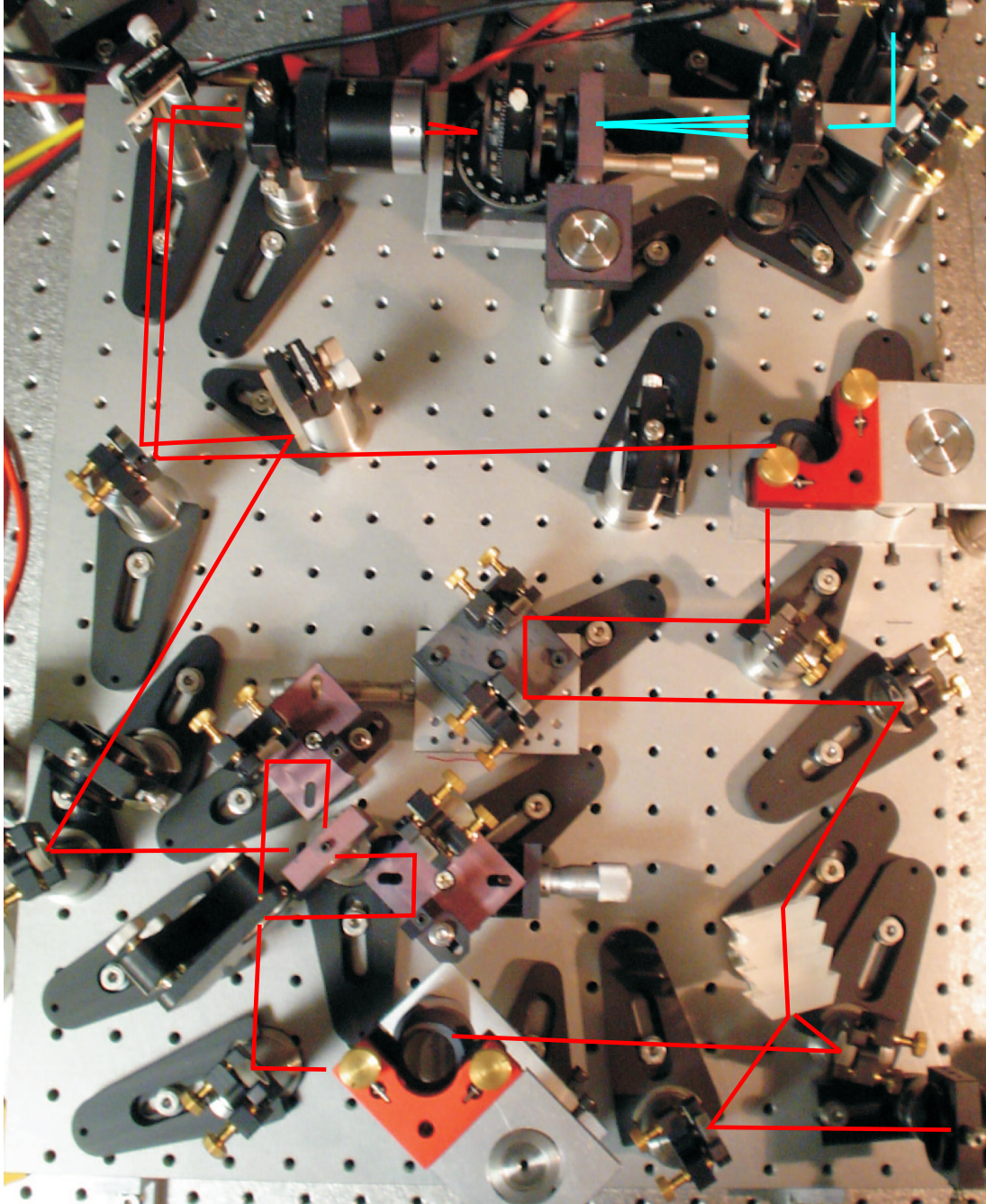


Abbildung 3.8: Photographie des SPIDER-Aufbaus mit Typ II-Phasenanpassung.



man die Zeitverzögerung  $\tau$  der beiden Pulse bestimmen:

$$\tau = \frac{c}{\lambda^2} \Delta\lambda \quad (3.20)$$

### Einstellen der Zeitverzögerung $\tau$ :

Diese Methode wurde zur Messung des zeitlichen Abstands der beiden kurzen Pulse verwendet. In Abb. 3.9 ist die auf diese Weise bestimmte Zeitverzögerung über der Position des Verschiebetischs im Interferometer aufgetragen. Über einen linearen Fit kann die Verschiebetischposition für den gewünschten  $\tau$ -Wert bestimmt werden. Nach dieser Messung konnte der zeitliche Abstand der kurzen Pulse des neuen SPIDER-Aufbaus eingestellt werden. Die Position des Verschiebetischs im Interferometer wurde so gewählt, dass der eine Puls 230 fs gegenüber dem anderen verzögert wird.

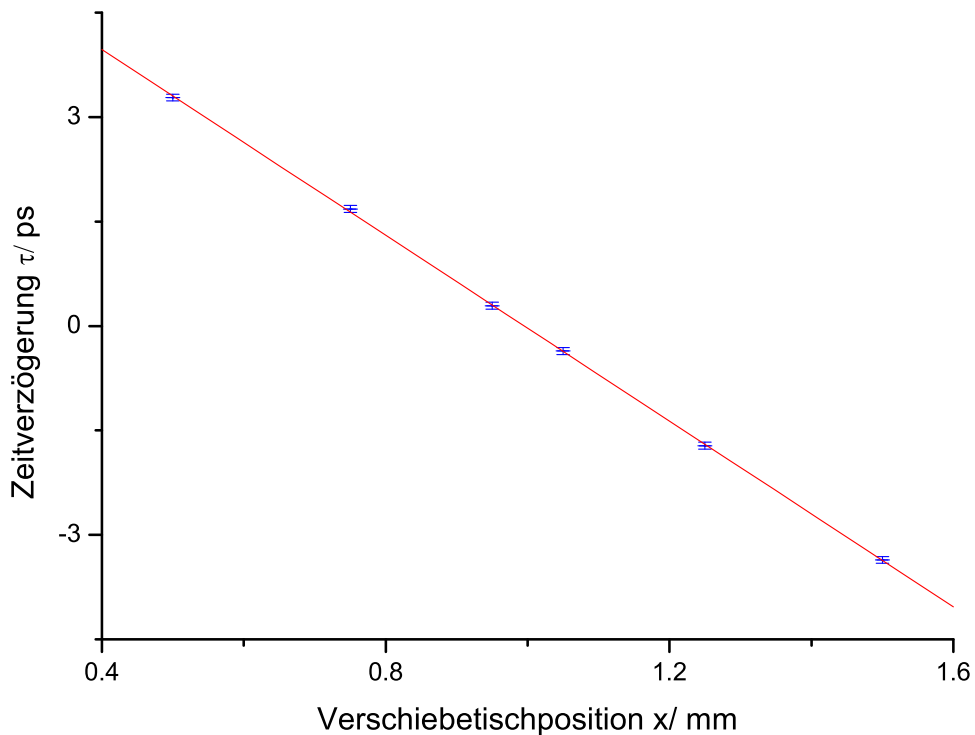


Abbildung 3.9: Messung der zeitlichen Verzögerung im Mach-Zehnder-Interferometer. Eichung des Verschiebetischs.

### Einstellen des zeitlichen Überlapps:

Damit man ein Summenfrequenz-Signal von allen drei Pulsen erhält, müssen die optischen Wege für den langen und die beiden kurzen Pulse bis zum Kristall gleich lang sein. Dies kann über die zweite Verzögerungsstrecke im Aufbau eingestellt werden (Abb. 3.7). Die Messung verläuft ganz analog zur  $\tau$ -Messung, diesmal werden nur einer der kurzen Pulse und der lange Puls in die Faser eingekoppelt. Die Messergebnisse sind in Diagramm 3.10 dargestellt. In diesem Fall wird der Wert für den Verschiebetisch so gewählt, dass der zeitliche Abstand der Pulse Null beträgt.

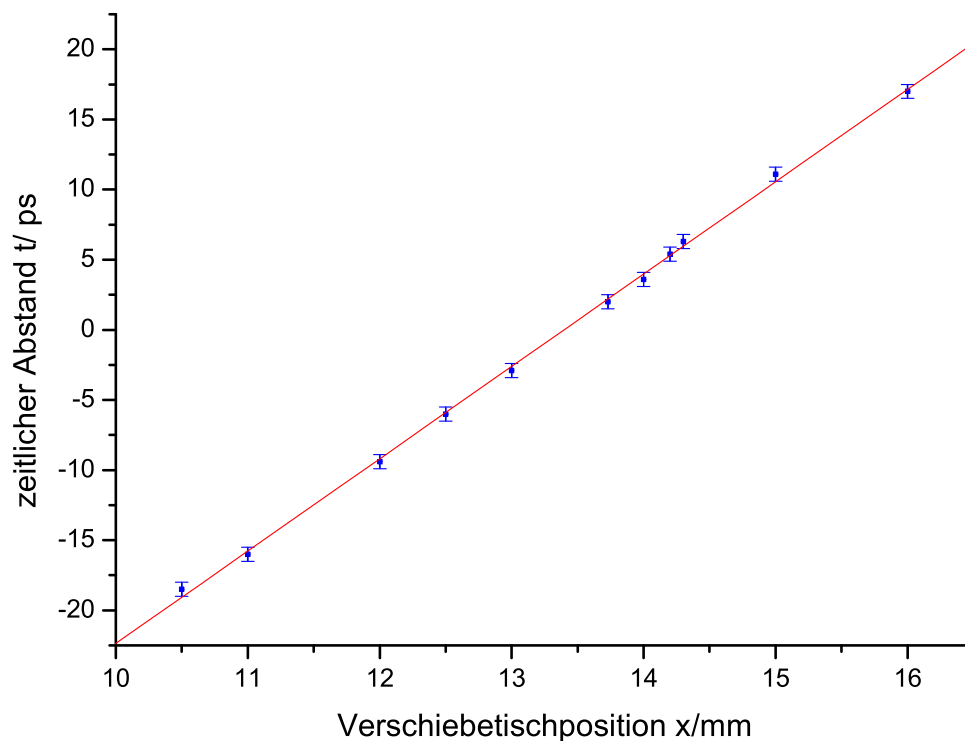


Abbildung 3.10: Messung des zeitlichen Abstands zwischen den kurzen und dem dispersiv verbreiterten Puls.

### Räumlicher Überlapp

Wenn die zeitliche Anordnung der drei Pulse gewährleistet ist, muss man noch dafür sorgen, dass die Foki der beiden Strahlen im Kristall übereinander liegen. Eine einfach zu justierende, kollineare Geometrie ist leider nicht möglich, da in

diesem Fall die Frequenzverdopplungs-Signale der Einzelstrahlen das eigentliche SFG-Signal überlagern. Um diesen Untergrund abzuschwächen, strahlt man beide Strahlen parallel ein, damit sie nach der Fokussierung gekreuzt durch den Kristall verlaufen. So ist es möglich, mit Hilfe einer Blende das SPIDER-Signal von dem SHG-Licht der beiden Arme zu trennen.

Zur Signalsuche wird ein Chopper-Rad<sup>6</sup> und ein Lock-In-Verstärker<sup>7</sup> verwendet. Dabei wird der lange Puls mit der Frequenz  $f_1$ , die beiden kurzen Pulse mit  $f_2$  moduliert. Das SFG-Signal kann dann bei der Differenzfrequenz  $f_1 - f_2$  detektiert und so vom Untergrund getrennt werden. Als Detektor für diese Justage-Messung dient ein Photomultiplier<sup>8</sup>. Wenn das Signal gefunden wurde, wird der zeitliche und räumliche Überlapp optimiert, bevor das Signal mit Hilfe einer Linse in das Spektrometer eingekoppelt wird, in dem dann die SPIDER-Messung vorgenommen wird.

Abb. 3.11 zeigt die erste Messung des SPIDER-Signals. Um das Signal zu finden, wurde der Laser so justiert, dass er mit mehr Leistung, aber mit relativ schmaltem Spektrum pulst.

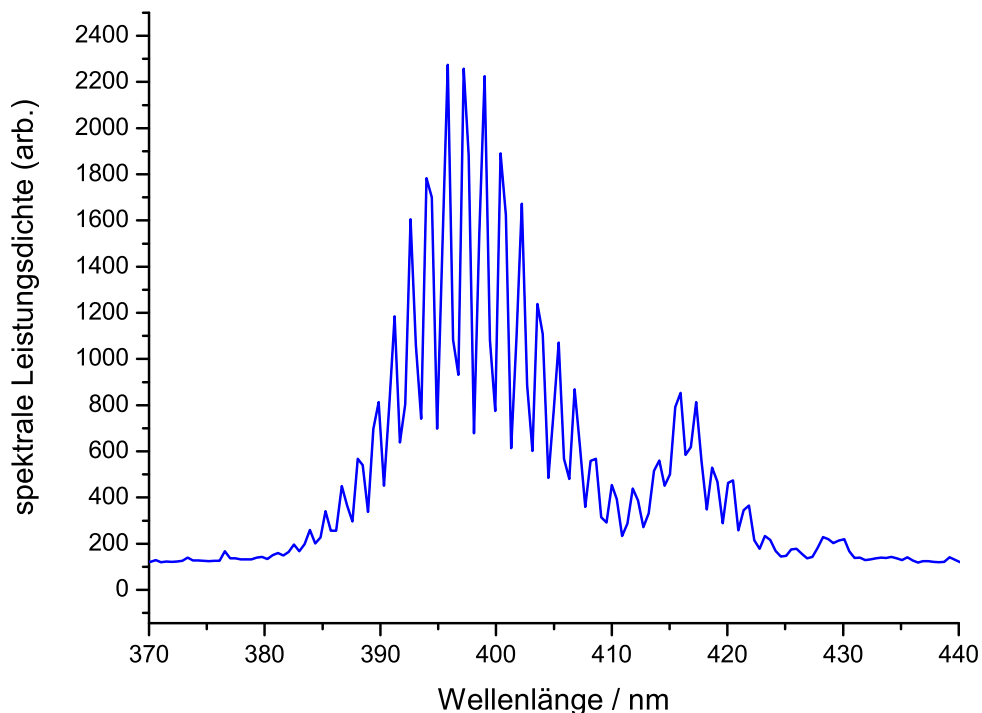


Abbildung 3.11: Erstes SPIDER-Signal des Typ II-Aufbaus.

<sup>6</sup>Stanford Research Systems Inc.; SR 540 chopper control'er

<sup>7</sup>Stanford Research Systems Inc.; FR 830 DSP log-in amplifier

<sup>8</sup>Hamamatsu; Sensor Modul H6780-06

Aus diesem Grund ist auch das Interferogramm schmalbandig. Zu dieser Messung wurde noch das bewährte reflektive Objektiv anstelle des Paraboloiden verwendet. Das abgebildete Interferogramm konnte mit einem kompakten und preiswerten Spektrometer aufgenommen werden, das aber für einen viel größeren Spektralbereich bei einer für das SPIDER-Interferogramm unzureichenden Auflösung von 0,5 nm konzipiert ist. Die schlechte Auflösung ist am gezackten Verlauf der Oszillationen zu erkennen, da nur etwa drei Messpunkte auf jeden Interferenzstreifen entfallen. Nachdem das Signal gefunden wurde, kann nun die Optimierung mit dem bereits vorhandenen Spektrometer des alten SPIDER-Aufbaus vorgenommen werden, bis ein geeignetes, neues Spektrometer verfügbar ist. Gelingt dann noch die Ersetzung des Objektivs durch den Parabol-Spiegel ist das Ziel eines kompakten und preiswerten Aufbaus realisiert.

# Kapitel 4

## Pulsformer

Das folgende Kapitel befasst sich mit den Grundlagen der Pulsformung. Es wird die experimentelle Umsetzung des im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Pulsformers und dessen Kalibrierung beschrieben. Des Weiteren wird auf die verwendete Vorkompensation eingegangen.

### 4.1 Prinzip

Wie schon in Kapitel 2.2.3 beschrieben werden zur Dispersionskompensation meist Prismen- und Gitterstrecken verwendet. Diese haben spezifische Dispersionsseigenschaften und können nur durch Variieren der Parameter wie z.B. Abstand, Eindringtiefe der Prismen und Strichzahl der Gitter auf die experimentellen Gegebenheiten abgestimmt werden. So ist es unmöglich, die verschiedenen Dispersionsordnungen vollständig auszugleichen. Dispersive Spiegel (DCMs) können für eine bestimmte Dispersionskompensation entworfen werden, sind dann aber nicht mehr flexibel und weisen Oszillationen in der Dispersionskurve auf.

Die Pulsformung hingegen bietet ein Werkzeug, um die Phase kontrollieren zu können, und somit die Möglichkeit, alle Ordnungen der Dispersion unabhängig einzustellen. Deshalb ist ein Pulsformer die ideale Methode, um das Ziel einer glatten Phase zu realisieren [Xu00]. Da durch einen idealen Pulsformer theoretisch jedes Phasemuster erzeugt werden kann, ergeben sich darüber hinaus viele Anwendungsmöglichkeiten. Im Bereich der Quantenkontrolle werden Pulse mit sehr kompliziertem zeitlichen Verlauf hergestellt, um beispielsweise laserinduzierte, chemische Reaktionen zu optimieren.

Pulsformung kann allgemein wie eine lineare Filterung beschrieben werden. Der Filter wird dabei im Zeitraum durch die Antwortfunktion  $h(t)$  charakterisiert. Die Funktion des Ausgangspulses  $e_{\text{aus}}(t)$  erhält man durch Faltung des Eingangspulses

$e_{\text{ein}}(t)$  mit der Filterfunktion

$$e_{\text{aus}}(t) = e_{\text{ein}}(t) \circ h(t) = \int dt' e_{\text{ein}}(t') h(t - t'). \quad (4.1)$$

Für die Pulsformung von Lichtimpulsen ist es vorteilhaft, den Vorgang im Frequenzraum zu betrachten, da bei der gängigsten Methode zur Formung von Femtosekunden-Pulsen eine Maske in der Fourierebene verwendet wird. Durch eine Fouriertransformation ergibt sich für die Filterfunktion im Frequenzraum  $H(\omega)$ :

$$E_{\text{aus}}(\omega) = E_{\text{ein}}(\omega) H(\omega) \quad \text{mit } H(\omega) = \int dt h(t) e^{-i\omega t}. \quad (4.2)$$

Mit der Maske wird das räumlich aufgefächerte optische Spektrum moduliert. Diese Methode hat den Vorteil, dass die Manipulation im Frequenzraum stattfindet. So kann man sehr kurze Pulse mit großen Frequenzbandbreiten formen, ohne ultraschnelle Modulatoren verwenden zu müssen. Als pulsformende Elemente werden z.B. einzelne feste Masken, Flüssigkristalldisplays (LCD), akusto-optische Modulatoren (AOM) oder deformierbare Spiegel verwendet [Wei00]. Die letzten drei Verfahren bieten die Möglichkeit der Computeransteuerung. Dadurch können die pulsformenden Muster flexibel per Software verändert werden, so dass nicht für jedes Experiment eine neue Maske angefertigt werden muss.

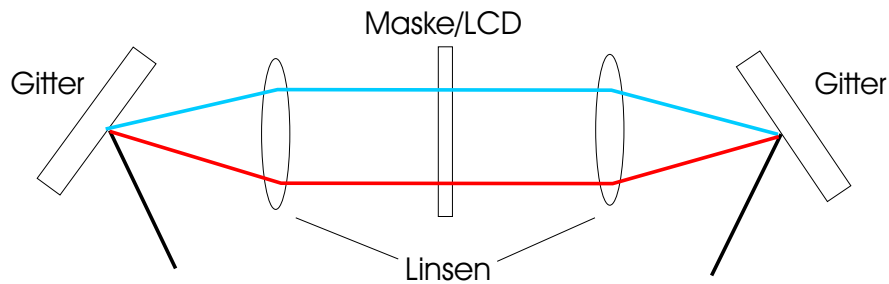


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau eines Pulsformers.

Der prinzipielle Aufbau eines Pulsformers ist in Abb. 4.1 (mit Gitter und Linsen) dargestellt. Mit einem Gitter bzw. Prisma werden die Frequenzkomponenten, aus denen der kurze Lichtpuls besteht, räumlich aufgefächert. Eine Linse im Abstand ihrer Brennweite macht dieses Licht parallel und fokussiert gleichzeitig die einzelnen Frequenzmoden auf die Maske in der Fourierebene. Hinter der Maske folgen dann die zweite Linse und das zweite Gitter, um das Licht wieder zu einem kollimierten Strahl zusammenzuführen.

## 4.2 Aufbau

Zur Realisierung des im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Pulsformers wurde als modulierendes Element ein Flüssigkristalldisplay benutzt. Üblicherweise werden zur Aufspaltung der Spektralkomponenten Gitter verwendet, um einen dispersionsfreien Aufbau zu gewährleisten. Der Nachteil eines Gitters ist, dass die Verluste sehr hoch sind und die Bandbreite begrenzt ist. Für einen Frequenzbereich von 600 nm bis 1200 nm sind bestenfalls Reflektivitäten von ca. 40-50 % erreichbar, wodurch sich bei zweifacher Reflexion eine Effizienz von unter 20% ergibt. Außerdem überlappen die erste und zweite Beugungsordnung bei oktavbreiten Spektren. Eine gezielte Phasenmodulation dieser überlagerten Spektralanteile ist dadurch nicht möglich. Um einen hohen Durchsatz und die Formung des oktavbreiten Laserspektrum zu ermöglichen, werden Prismen verwendet. Dadurch wird eine sehr gute Transmission von 70% durch den Aufbau erreicht. Da die Zielsetzung die Formung von ultrakurzen Pulsen im Bereich von 5 fs und möglichst großer Bandbreite von einer Oktave umfasst, müssen die Linsen durch Silberhohlspiegel und die Gitter durch SF 59-Prismen ersetzt werden. Eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus findet man in Abb. 4.2.

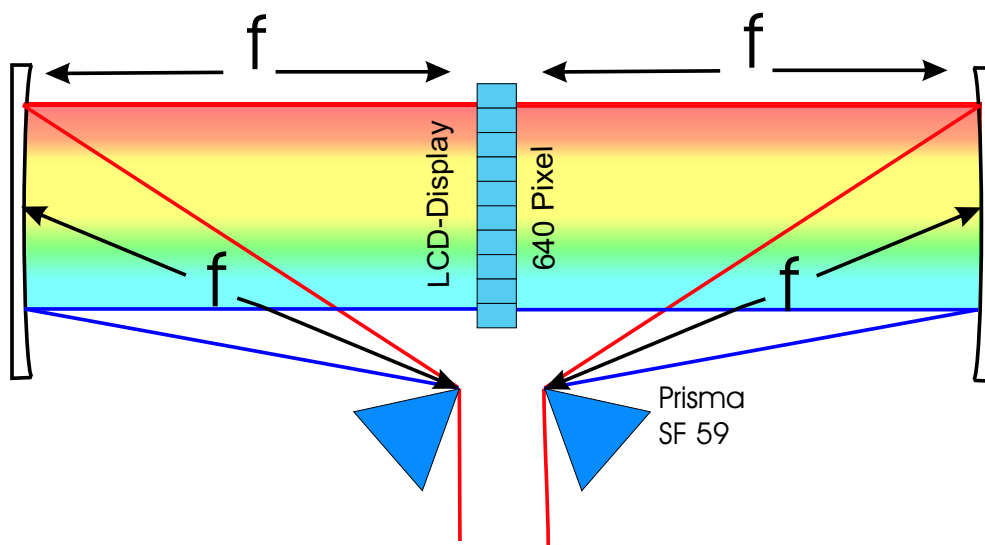


Abbildung 4.2: 4-f-Aufbau des Pulsformers mit SF 59-Prismen, Silberhohlspiegeln ( $f=660$  mm) und einem LC-Display.

Die Benutzung von hochbrechenden Prismen bringt allerdings ein neues Problem mit sich. Durch das vom Strahl durchdrungene Glas wird sehr viel Dispersion in den Aufbau gebracht, was zu einer starken dispersiven Verbreiterung des Pul-

ses führt. Das verwendete SF 59 hat eine große Gruppenverzögerungsdispersion (GDD) von  $295 \text{ fs}^2/\text{mm}$  bei einer Wellenlänge von  $800 \text{ nm}$ . Um dieses Problem zu lösen, wurde eine Vorkompensationsstrecke verwendet (siehe Kapitel 4.4).

Im Weiteren soll nun auf die Justage der einzelnen Komponenten eingegangen werden.

## Prismen

Die Prismen stehen im Brewster-Winkel ( $\phi_1 = 62,4^\circ$  für SF 59) zum einfallenden p-polarisierten Strahl, um möglichst wenig Verluste zu erzielen. Der Apexwinkel der Prismen beträgt  $\alpha = 55^\circ$ .

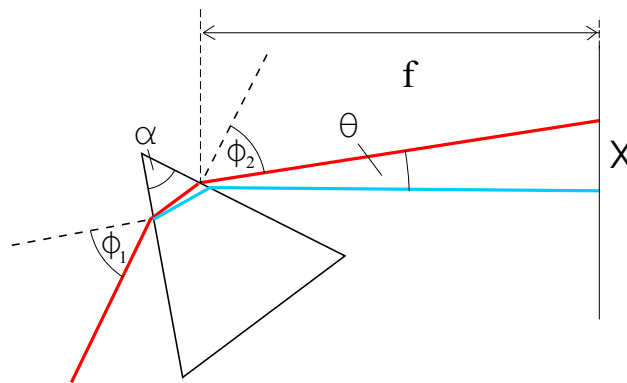


Abbildung 4.3: Ablenkung der SF 59-Prismen:  $\phi_1$ =Einfallswinkel,  $\phi_2$ =Ausfallswinkel,  $\alpha$ =Apexwinkel.

Wendet man zweimal das Snellius'sche Brechungsgesetz an, erhält man für den wellenlängenabhängigen Ablenkungswinkel  $\phi_2$

$$\phi_2(\lambda) = \arcsin \left( n(\lambda) \sin \left( \alpha - \arcsin \left( \frac{\sin(\phi_1)}{n(\lambda)} \right) \right) \right). \quad (4.3)$$

Aufgrund dieser Ablenkung laufen die spektralen Komponenten auseinander, was zu einer vom Material der Prismen abhängigen räumlichen Dispersion führt.

Mit den Brechungsindizes  $n(600 \text{ nm}) = 1,95$  und  $n(1200 \text{ nm}) = 1,90$  ergibt sich mit der Beziehung

$$x = f \tan \theta \quad (4.4)$$

und  $f = 660 \text{ mm}$  die Breite  $\Delta x$  des aufgefächerten Strahls auf dem Hohlspiegel und damit auch am Flüssigkristalldisplay zu  $\Delta x = 6,3 \text{ cm}$ . Mit dieser Aufspaltung leuchtet der Strahl das aktive Fenster des LC-Displays fast vollständig aus.



Um also die große Anzahl von Pixeln des Displays für die Phasenmodulation ausnutzen zu können, ist die starke Dispersion der Prismen erforderlich.

Die Aufspaltung der Frequenzkomponenten ist bei Verwendung von Prismen fast linear in der Frequenz. Dies bedeutet, dass zwischen den einzelnen Streifen des Displays im Gegensatz zu Gittern näherungsweise der gleiche Frequenzabstand  $\Delta f$  besteht. Somit ist die spektrale Auflösung über das ganze Display fast konstant.

Der Winkel des zweiten Prismas in Abb. 4.2 wird auf das erste so abgestimmt, dass keine räumliche Aufspaltung der Frequenzkomponenten im Ausgangsstrahl vorhanden ist. Dieser Parameter sollte regelmäßig überprüft werden, da er relativ kritisch für die Justage ist. Sind die Prismen nicht richtig zueinander ausgerichtet, verlaufen die spektralen Komponenten nach dem Pulsformer–Aufbau räumlich getrennt. Dieser Parameter lässt sich leicht überprüfen, indem man ein Papier durch den Strahl in der Fourierebene am Display, in der die Frequenzkomponenten aufgefächert sind, zieht. Dabei kontrolliert man am Ausgang des Pulsformers, ob alle Komponenten übereinander liegen. Ist dies der Fall, sind die Prismen richtig zueinander orientiert.

## Hohlspiegel

Der Durchmesser der Hohlspiegel beträgt 4 Zoll, um der Aufspaltung des Strahls Rechnung zu tragen. Die Prismen und das Flüssigkristalldisplay stehen im Abstand der Brennweite der Hohlspiegel ( $f = 660 \text{ mm}$ ). Dieser 4-f–Aufbau sorgt dafür, dass die Spektralkomponenten scharf und parallel auf das Display des Pulsformers abgebildet werden und danach wieder zu einem kollinearen Strahl zusammengeführt werden. Bei der Justage der Hohlspiegel ist es wichtig, auf einen möglichst senkrechten Einfall zur Spiegelebene zu achten, da andernfalls Astigmatismus auftreten würde. Die Foki der horizontalen und vertikalen Achse liegen dann nicht mehr übereinander. Dadurch wird der Strahl elliptisch. Um dies zu vermeiden, wurde abweichend von der schematischen Skizze des Aufbaus (Abb. 4.2) der Strahl nach Durchlaufen des Prisma mit Hilfe eines planen Silberspiegels gefaltet, um den Hohlspiegel aufsteigend fast senkrecht zu treffen (vergleiche mit Photo, Abb. 4.4).

In einigen Aufbauten mit hohen Laserleistungen werden Zylinderspiegel verwendet, um in der vertikalen Achse keine Fokussierung zu erhalten. So wird die Zerstörschwelle der Kristalle nicht überschritten. Für die exakte Rückführung der Spektralkomponenten zu einem Puls ist die Justage des relativen Winkels der beiden Spiegel recht kritisch. Da die Leistung des verwendeten Lasers unter

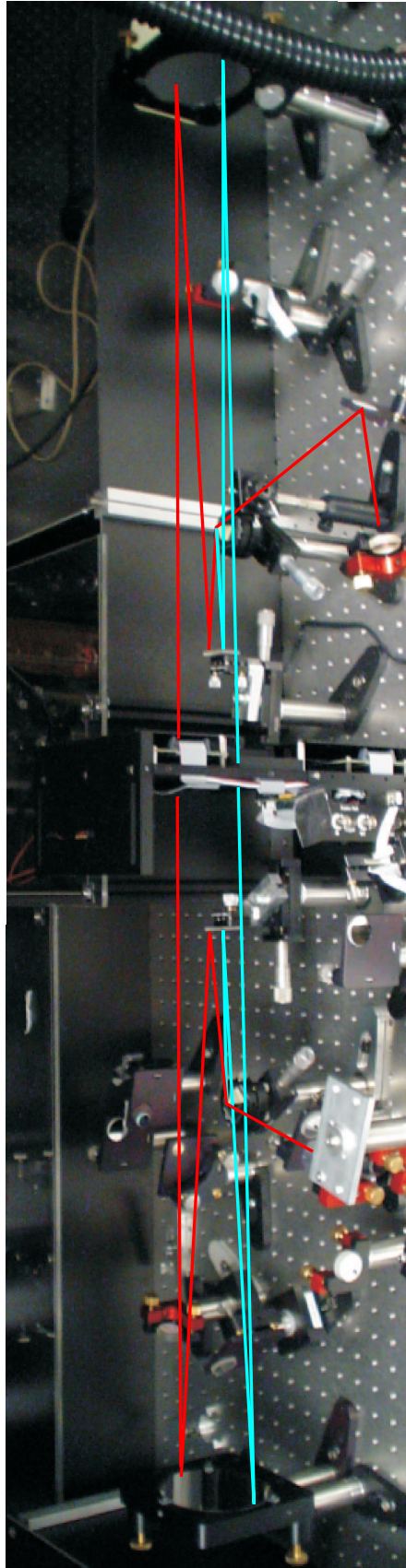


Abbildung 4.4: Photographie des Pulsformer-Aufbaus.

dem Wert liegt, bei dem eine Beschädigung des Display wahrscheinlich ist, werden parabolische Spiegel verwendet, so dass dieser Parameter bei diesem Aufbau unproblematisch ist.

## Flüssigkristalldisplay

Das Herzstück des Pulsformers ist das Flüssigkristalldisplay<sup>1</sup> (engl. "liquid crystal display", LCD) mit 640 Pixeln. Die einzelnen Pixel sind  $97\ \mu\text{m}$  breit und durch jeweils einen  $3\ \mu\text{m}$  großen Spalt getrennt. Jede Zelle besteht aus zwei Glasplatten,

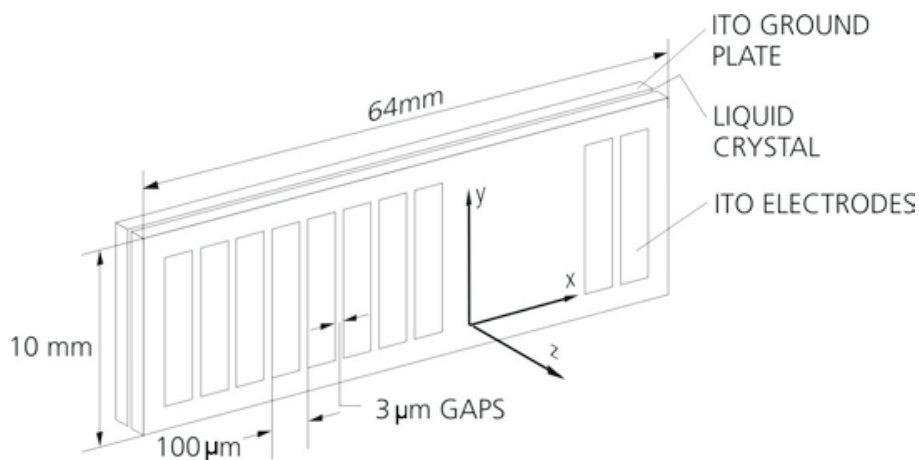


Abbildung 4.5: Streifen des Flüssigkristalldisplays; aus [Jen03].

an denen zwei transparente Elektroden angebracht sind. Dazwischen befinden sich längliche Moleküle eines nematischen Flüssigkristalls, die ohne elektrisches Feld parallel zu den Glasplatten orientiert sind. Legt man eine elektrische Spannung an, richten sich die Moleküle im Feld aus, wie in Abbildung 4.6 dargestellt. Diese Umorientierung ist reversibel. Die Flüssigkristalle haben unterschiedliche Brechungsindizes entlang der verschiedenen Kristallachsen ähnlich zu einachsigen doppelbrechenden Kristallen. Die optische Achse der Kristalle verläuft in der horizontalen Ebene ( $x$ - $z$ -Ebene), in der daher keine Doppelbrechung stattfindet. Durch Anlegen der Spannung  $U$  werden die Flüssigkristalle um den Winkel  $\theta$  ausgelenkt. Durch Variation der Spannung kann der Brechungsindex  $n_\theta$  für in  $x$ -Richtung linear polarisiertes Licht vom Brechungsindex in ordentlicher Richtung  $n_o(U_{\max})$  bis zu dem in außerordentlicher Richtung  $n_e(U=0)$  verändert werden.

<sup>1</sup>SLM-S 640/12, Jenoptik LOS

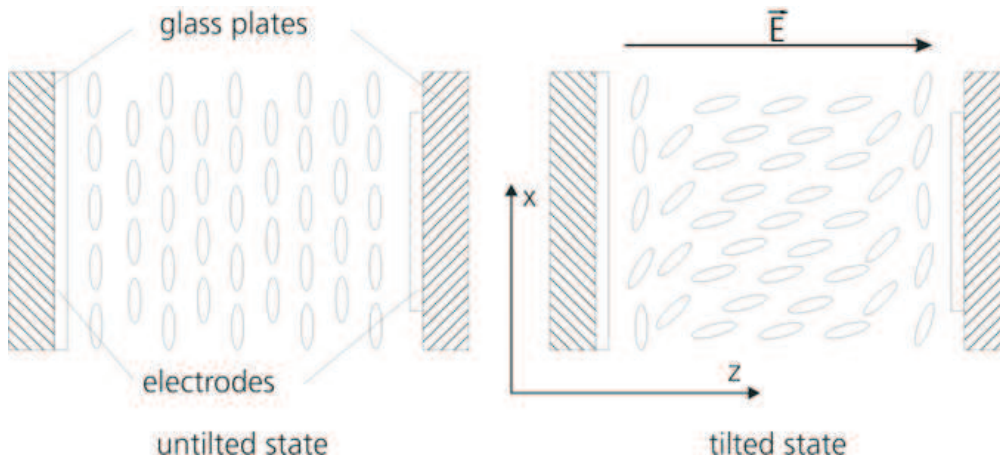


Abbildung 4.6: Auslenkung der Kristalle im elektrischen Feld; aus [Jen03].

Der funktionale Zusammenhang ergibt sich aus dem Brechungsindexellipsoid zu:

$$\frac{1}{n_{\theta}^2(U)} = \frac{\cos^2(\theta(U))}{n_e^2} + \frac{\sin^2(\theta(U))}{n_o^2} \quad (4.5)$$

Die Spannung  $U$  kann mit einer Auflösung von 12 Bit von 0 bis 8 V variiert werden. Der Brechungsindex in der  $y$ -Achse kann nicht variiert werden und beträgt immer  $n_o$ . Aus diesem Grund muss das Licht für die Pulsformung linear in  $x$ -Richtung polarisiert sein.

Die Phasenverzögerung  $\Gamma$  für eine Wellenlänge  $\lambda$  ergibt sich aus der Dicke  $d$  der Streifen:

$$\Gamma(U) = \frac{2\pi d}{\lambda} n_{\theta}(U). \quad (4.6)$$

Da die einzelnen Spektralkomponenten verschiedene Pixel des Displays beleuchten, kann man mit dieser Phasenverzögerung  $\Gamma(U)$  durch Wahl der Spannungen an den einzelnen Streifen eine Veränderung der spektralen Phase  $\phi(\omega)$  erreichen. Bei der Pulsformung durch reine Phasenmodulation ist die Filterfunktion aus Gleichung (4.2) unter der Annahme, dass die Strahlen unendlich scharf auf das Display abgebildet werden, durch eine Exponential-Funktion gegeben:

$$E_{\text{out}}(\omega) = E_{\text{in}}(\omega)e^{-i\phi(\omega)}. \quad (4.7)$$

Wie man im nächsten Abschnitt sehen wird, beträgt der maximale Phasenhub der Flüssigkristallstreifen je nach Wellenlänge wenige Vielfache von  $2\pi$ . Der für die Pulsformung zugängliche Phasenbereich lässt sich erweitern, indem man die gewünschte Phase in den Bereich zwischen 0 und  $2\pi$  faltet, da alle Phasen modulo

$2\pi$  in der Exponential-Funktion aus (4.7) den gleichen Wert für das elektrische Feld des Lichts ergeben.

Ein Nachteil der Pulsformung mit Hilfe eines LC-Displays ist die diskrete Modulation durch die endliche Anzahl der Streifen. So können nur diskrete Phasenmuster mit einer Stufenbreite, die der Breite der Pixel entspricht, angelegt werden, da die Phase  $\phi(\omega)$  entlang einer Zelle konstant ist. Durch diese Diskretisierung ist die maximale Steigung der Phasenkurve beschränkt. Außerdem wird das Licht, das auf die Zwischenräume fällt, gar nicht am Pulsformungsprozess beteiligt.

## 4.3 Kalibration

### 4.3.1 Bestimmung des Phasenhubs

Um mit dem Pulsformer gezielt Phasenmuster anlegen zu können, muss man den Zusammenhang zwischen der angelegten Spannung und der Phasenverzögerung, die das Licht erfährt, kennen. Zur Messung dieser funktionellen Abhängigkeit  $\Gamma(U)$  werden zwei gekreuzte Polarisationsfilter, wie in Abb. 4.7 dargestellt, angeordnet. Auf diese Weise erhält man Anteile von p- und s-polarisiertem Licht. Die Transmission durch diesen Aufbau hängt von dem Unterschied zwischen der Phasenmodulation entlang der x- und der y-Richtung ab, da sich aufgrund der Phasendifferenz zwischen den beiden Achsen der Polarisationszustand des Lichts ändert. Deshalb lässt sich aus der in Abhängigkeit von der Spannung gemessenen Transmission auf die Phasenverzögerung schließen.

Durch die Änderung der Spannung  $U$  kann, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, nur die Phasenverzögerung in x-Richtung beeinflusst werden, da der Brechungsindex in y-Richtung konstant ist.

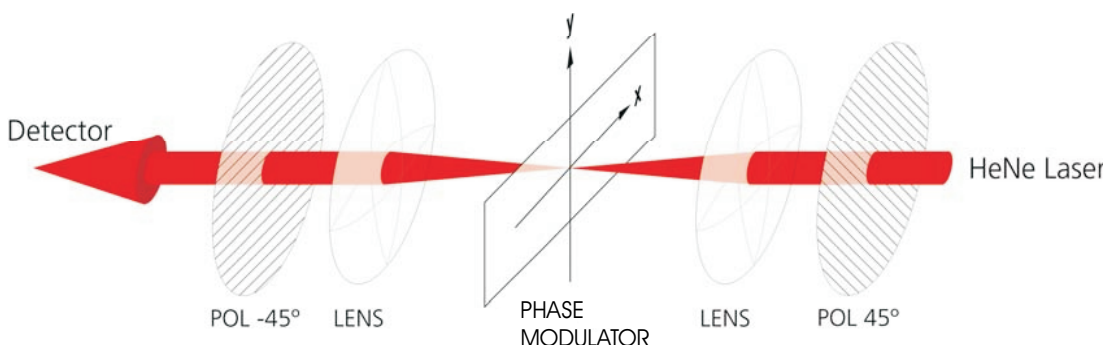


Abbildung 4.7: Aufbau zur Amplitudenmodulation. Die Linsen fokussieren den Strahl auf einen einzelnen Streifen. Aus [Jen03].

Die Phasendifferenz zwischen in x- und y-Richtung polarisiertem Licht ist gegeben durch:

$$\Delta\Gamma(U) = \frac{2\pi d}{\lambda} (n_\theta(U) - n_o). \quad (4.8)$$

Die größte Phasendifferenz wird erreicht, wenn die Spannung Null ist, da dann  $n_\theta(U = 0) = n_e$  gilt. Für die Transmission in Abhängigkeit von der Phasendifferenz ergibt sich:

$$T = \frac{T_0}{2} (1 - \cos(\Delta\Gamma(U))) = T_0 \sin^2\left(\frac{\Delta\Gamma(U)}{2}\right) \quad (4.9)$$

Die Phasendifferenz lässt sich damit aus der Bestimmung der Umkehrfunktion unter Berücksichtigung der Periodizität der Sinus-Funktion berechnen:

$$\Delta\Gamma(U) = 2k\pi \pm 2 \arcsin \sqrt{\frac{T}{T_0}} \quad \text{mit } k \in \mathbf{N} \quad (4.10)$$

In Diagramm 4.8 ist der Verlauf der relativen Phasenverzögerung abgebildet, der von Jenoptik auf die beschriebene Weise für die Wellenlänge 633 nm gemessen wurde.

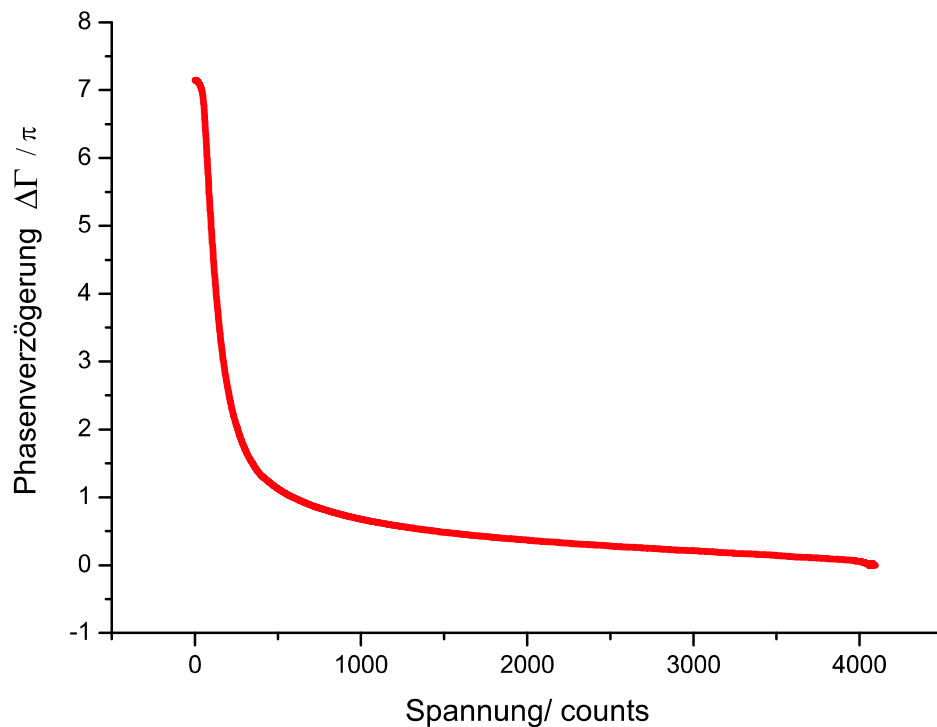


Abbildung 4.8: Für das verwendete Display gemessener Verlauf der Phasenverzögerung  $\Delta\Gamma$  in Abhängigkeit der Spannung für 633 nm (aus [Jen03]).

Die Phasenverzögerung für die reine Phasenmodulation aus Gl. (4.6) für in x-Richtung polarisiertes Licht unterscheidet sich von der relativen Phasenverzögerung (4.8) nur um den spannungsunabhängigen Teil  $\Gamma_o$  des in y-Richtung polarisierten Lichts:

$$\Gamma(U) = \Delta\Gamma(U) - \Gamma_o = \Delta\Gamma(U) - \frac{2\pi d}{\lambda} n_o.$$

Der Term  $\Gamma_o$  wirkt wie eine konstante Materialdispersion, da er nicht von der Spannung abhängt. Diese ist bei einer Dicke der Streifen von  $d = 10\mu\text{m}$  vernachlässigbar. Aus diesem Grund kann  $\Delta\Gamma(U)$  zur Kalibration des Pulsformers verwendet werden.

Die Wellenlängenabhängigkeit der Phasenverzögerung  $\Delta\Gamma(U)$  kann bei den meisten Experimenten vernachlässigt werden, da sie sich bei schmalen Spektren nicht nennenswert auswirkt [Efi95]. In diesen Fällen ist es ausreichend, wenn die Kalibration für eine Wellenlänge durchgeführt wird. Für ein oktavbreites Spektrum ist es aber notwendig die Phasenverzögerung, die für eine Wellenlänge bekannt ist, auf die anderen Komponenten des Spektrums umzurechnen. Im Anhang B wird diese Umrechnung beschrieben, dabei werden die Phasenwerte für jede Wellenlänge auf die bekannte Kalibrierkurve bezogen. Diese Umrechnung und die Kalibrationsdaten von Jenoptik (Abb. 4.8) werden verwendet, um in dem Programm zur Computeransteuerung des LC-Displays aus der gewünschten Phasenkurve die Spannungswerte für die einzelnen Pixel zu berechnen.

Unabhängig davon wurde eine Transmissionsmessung über die gesamte Bandbreite des Lasers aufgenommen. Dabei wurde der Aufbau zur Amplitudenmodulation verwendet, wie er in Abb. 4.7 schematisch dargestellt ist. Mittels dieser Messung wäre eine rein experimentell bestimmte Kalibration über das gesamte Spektrum möglich. Abbildung 4.9 zeigt die gemessene Transmissionskurve für die Wellenlänge 750 nm. Aus der dargestellten Fitkurve, bei der eine Funktion mit drei Exponentialtermen für den Phasenverlauf angenommen wurde, wurde die Phasenverzögerung bestimmt, die in Abb. 4.10 dargestellt ist. Die gemessene Phasenkurve zeigt den erwarteten, stark nichtlinearen Verlauf.

Da durch die starke Oszillation der Transmissionskurve allerdings eine große Anzahl von Messpunkten notwendig ist, ist eine lange Messdauer erforderlich. Über diese Zeit kann man nicht gewährleisten, dass die Ausgangsleistung und das Spektrum des Lasers konstant bleiben, was zu Ungenauigkeiten in der Messung führt. Außerdem ist die Bandbreite der Polarisatoren auf ca. 150 nm begrenzt. Außerhalb dieses Bereichs wird das Licht trotz der gekreuzten Anordnung transmittiert. Deshalb ist bei der langen Messdauer und mit diesen Polarisatoren keine

verlässliche Messung über den gesamten Spektralbereich möglich, mit der man den Pulsformer ohne die Wellenlängenumrechnung kalibrieren könnte. Aus diesem Grund wurden die Kalibrationsdaten von Jenoptik für die Computeransteuerung des LC-Displays verwendet.

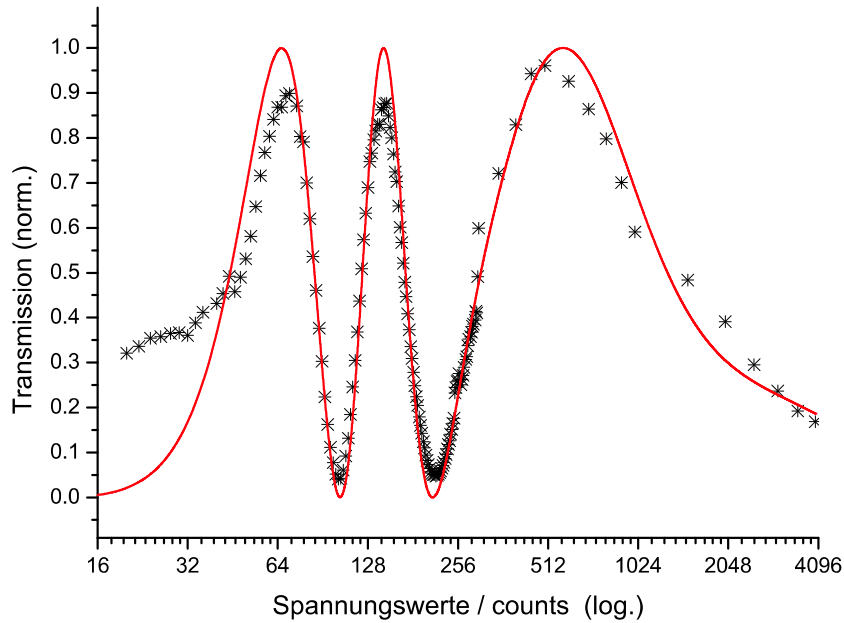


Abbildung 4.9: Gemessene Transmissionswerte bei 750 nm mit passender Fitkurve.

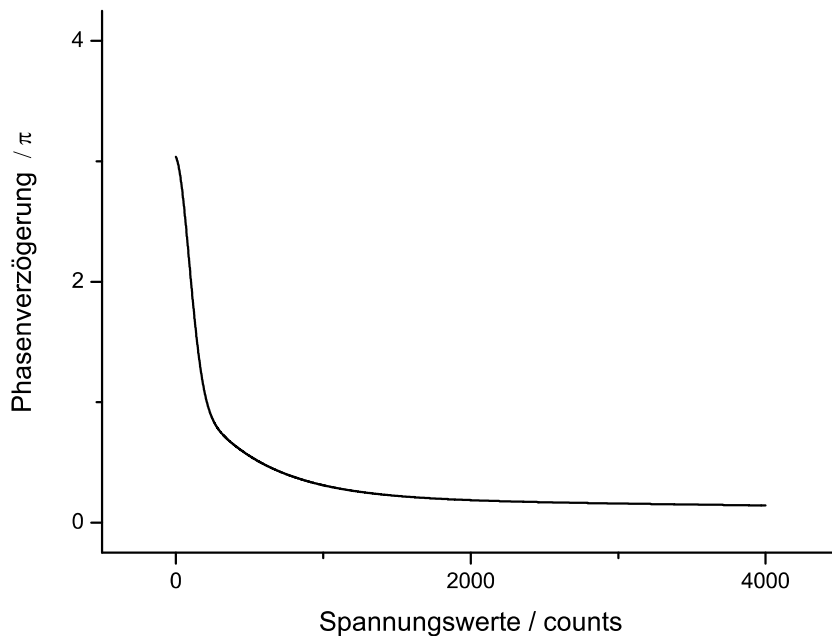


Abbildung 4.10: Verlauf der Phasenverzögerung  $\Delta\Gamma$  in Abhängigkeit der Spannung, aus den Messdaten aus Diagramm 4.9 bestimmt.



### 4.3.2 Fokussierung am LC-Display

Betrachtet man im Formalismus der linearen Filterung das elektrische Feld direkt hinter dem Pulsformer unter Berücksichtigung des Gaußschen Strahlprofils der spektralen Komponenten, erhält man folgenden Ausdruck:

$$E_M(x, \omega) \propto E_{\text{in}}(\omega) e^{-(x-\alpha\omega)^2/w_0^2} M(x). \quad (4.11)$$

Hierbei ist  $\alpha$  die räumliche Dispersion in Einheiten von cm s/rad, die von den Prismen hervorgerufen wird und angibt, um wieviel sich die Frequenz über der Position am LC-Display verändert, und  $w_0$  ist die Strahlbreite im Fokus in der Maskenebene. Um den Zusammenhang zwischen der Maskenfunktion  $M(x)$  und der Filterfunktion  $H(\omega)$  zu erhalten, muss man die nicht separierbare Funktion  $E(x, \omega)$  der Frequenz und des Ortes zu einer Funktion vereinfachen, die nur von der Frequenz abhängt. Dies kann durch eine räumliche Filteroperation erreicht werden, bei der alle räumlichen Moden außer der fundamentalen Gauß-Mode eliminiert werden. Dann erhält man folgenden Ausdruck für die Filterfunktion aus Gleichung (4.2):

$$H(\omega) = \left( \frac{2}{\pi w_0^2} \right)^{1/2} \int dx M(x) e^{-2(x-\alpha\omega)^2/w_0^2}. \quad (4.12)$$

Somit ist die Filterfunktion die Faltung der Maskenfunktion mit dem Intensitätsprofil des Eingangsstrahls. Diese Faltung schränkt die spektrale Auflösung des Pulsformers ein, da Muster kleiner als  $w_0$  ausgeschmiert werden. Wenn die Phasemuster stärker variieren als die spektrale Auflösung es zulässt, beleuchtet jede Spektralkomponente mehrere Pixel, an denen unterschiedliche Phasen anliegen. Aufgrund dieser Phasenunterschiede werden diese Frequenzkomponenten teilweise weginterferiert. So wird aus einer reinen Phasenmodulation eine Amplitudenmodulation.

Damit man keine Verluste durch solche Interferenzeffekte bekommt, muss sichergestellt werden, dass möglichst nur ein Pixel von einer Frequenzmode beleuchtet wird, da die Breite der Streifen in jedem Fall die kleinsten Muster darstellen. Dies erreicht man durch Fokussierung des Lichts mit Hilfe der Hohlspiegel auf ca. 100  $\mu\text{m}$  Durchmesser. Für eine möglichst gute Fokussierung ist ein relativ großer, kollimierter Eingangsstrahl am Hohlspiegel wünschenswert. Dieser sollte aber gleichzeitig klein an den SF 59-Prismen sein, um so wenig Dispersion wie möglich in den Puls einzubringen. Als Kompromiss zwischen diesen beiden gegenläufigen Anforderungen wurde ein Strahlradius am Prisma von  $w=1\text{ mm}$  gewählt. Daraus ergibt sich für den Fokus ein Radius von ca.  $w=100\mu\text{m}$ . Außerdem ist es wichtig, dass der Strahl kollimiert auf den Hohlspiegel trifft, damit der

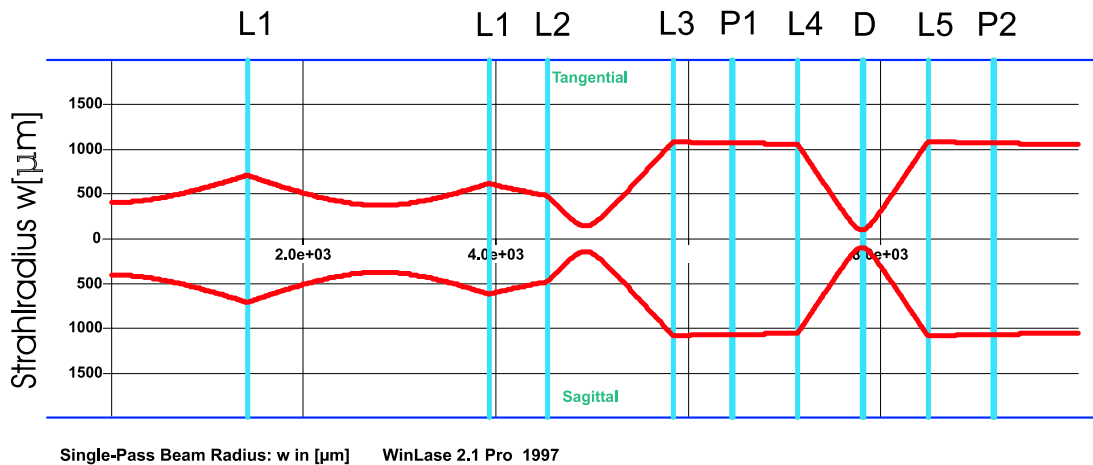


Abbildung 4.11: Verlauf des Strahldurchmessers berechnet mit Winlase; der erste Fokus befindet sich in der Quarzprismenstrecke der Vorkompensation, der ein Hohlspiegel L1 vorangestellt ist ( $f=1000$  mm), der zweite Fokus befindet sich im Teleskop (L2:  $f=500$  mm und L3:  $f=1000$  mm), der Fokus am Schluss der Strecke ist der am LC-Display D; SF 59 Prismen (P1, P2), Silberhohlspiegel des Pulsformers (L4, L5).

Fokus nicht vor oder hinter dem LC-Display liegt. Aus diesem Grund wurde ein Teleskop aufgebaut, mit dem die Strahlgröße und -divergenz kontrolliert werden kann.

In Abbildung 4.11 wird der gesamte Strahlverlauf vom Laser bis zum Pulsformer dargestellt (berechnet mit WinLase<sup>2</sup>).

Der Strahldurchmesser des Ausgangsstrahls und der des Strahls im Fokus wurde mit Hilfe des Beammasters<sup>3</sup> gemessen, der mit Hilfe von sieben Klingen ein zweidimensionales Intensitätsprofil des Strahls erstellt. Die gemessenen Strahlradien an der Position des Prismas und des LC-Displays entsprechen den berechneten Werten.

### 4.3.3 Frequenzabbildung auf das LC-Display

Damit die Frequenzmoden die zugehörige Phasenänderung erfahren, muss man sicherstellen, dass man genau weiß, welche Frequenz auf welches Pixel trifft. Um diese Zuordnung zu bestimmen, wurde folgendes Muster an das LC-Display an-

<sup>2</sup>WinLase Version 2.1 Professional

<sup>3</sup>BeamMaster BM-7, Firma Coherent

gelegt: alle Pixel wurden auf Phase Null gesetzt, jedes 50. Pixel auf Phase  $\pi$ . Da man nicht verhindern kann, dass zwei Pixel mit der gleichen Frequenz beleuchtet werden, sieht man wie in Abb. 4.12 starke Minima im Abstand von 50 Pixeln im Spektrum, da dort diese Frequenzanteile destruktiv interferieren.

In Abbildung 4.13 ist der fast lineare Zusammenhang zwischen Frequenz und Position am LC-Display dargestellt.

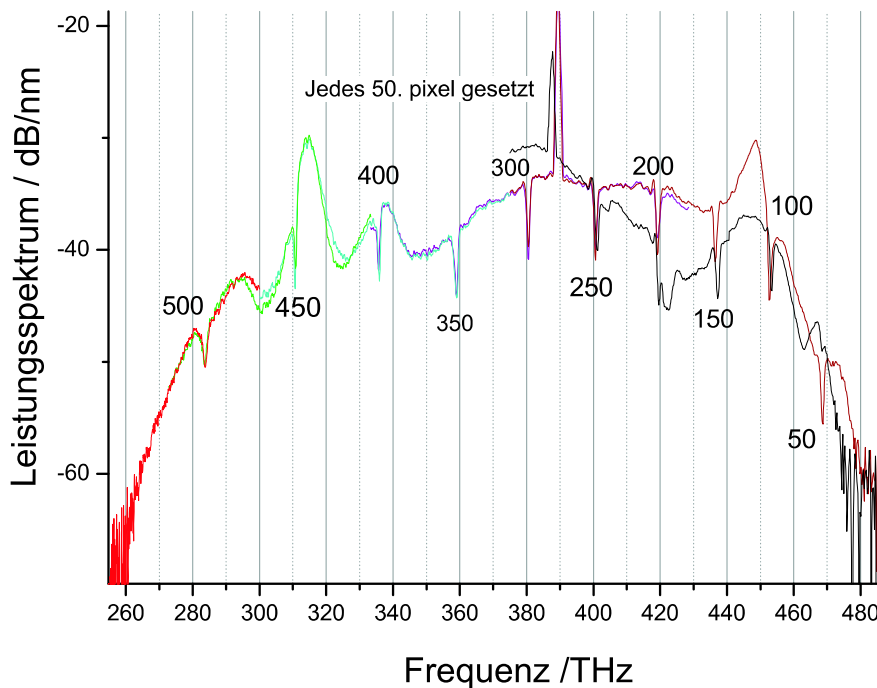


Abbildung 4.12: Gemessenes Leistungsspektrum, bei dem jedes 50. Pixel des SLM auf Phase  $\pi$  gesetzt ist.

## 4.4 Vorkompensation

Da der Aufbau dieses Pulsformers nicht dispersionsfrei ist, muss man die Materialdispersion der SF 59-Prismen vorkompensieren. Das Display selbst erzeugt auch Dispersion, die aber vergleichsweise vernachlässigbar ist. Zur Kompensation wurde eine Quarz-Prismen-Strecke verwendet, deren Dispersionkurve in Diagramm 2.9 abgebildet ist.

Um die notwendige negative Dispersion erzeugen zu können, müssen die Prismen in einem großen Abstand voneinander stehen (1,2 m). Durch Veränderung der Eindringtiefe der Prismen lässt sich die Dispersion fein einstellen.

In Abbildung 4.14 sieht man den berechneten Verlauf der Phase, die der Puls

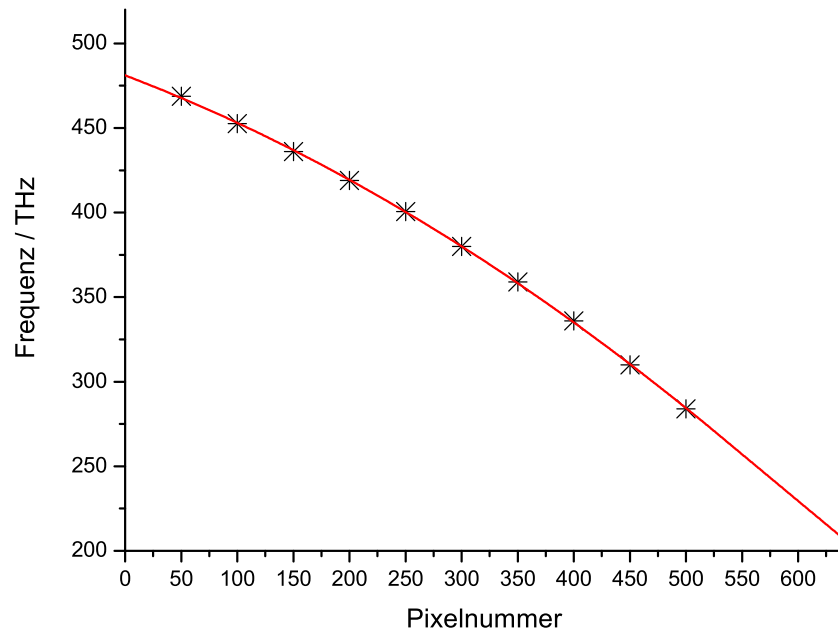


Abbildung 4.13: Zuordnung von Frequenz zu Position am LC-Display.

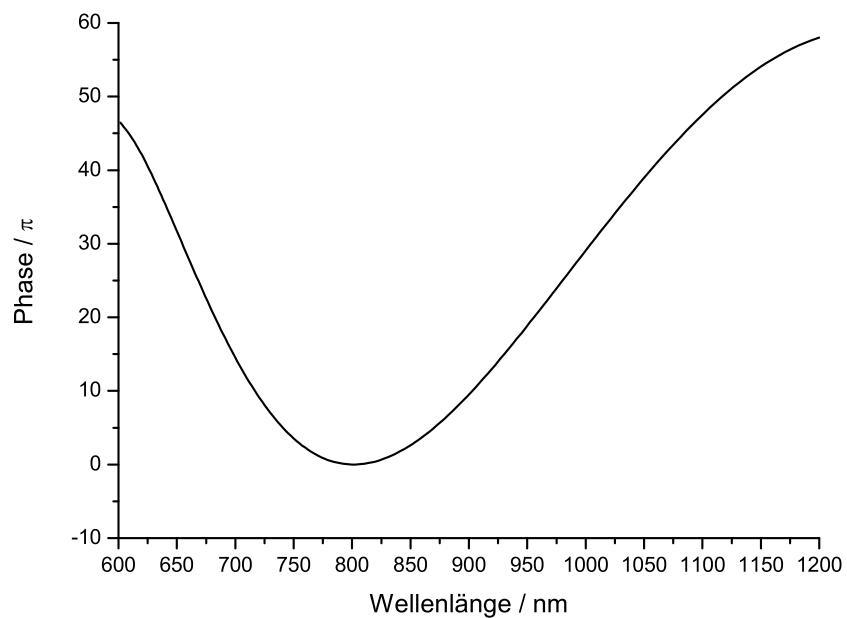


Abbildung 4.14: Berechnete Phasenverschiebung auf Grund des Pulsformer-Aufbaus und der Vorkompensationsstrecke.

durch die SF 59-Prismen und die Quarz-Prismen-Strecke erfährt. Die Phase weist eine große Dispersion dritter Ordnung auf, was für eine solche Prismenstrecke charakteristisch ist. Damit die Phasenkurve durch die endliche Anzahl der Pixel mit ausreichender Abtastung realisiert werden kann, sollte die Steigung der Phasenkurve (GD) möglichst klein sein. Aus diesem Grund wurde die Vorkompensation so gewählt, dass die Dispersion erster Ordnung minimal ist. Dies führt zu einem starken parabolischen Anteil der Phase (GDD), der deutlich in Abb. 4.14 zu erkennen ist.



# Kapitel 5

## Pulsformung ultrakurzer Laserpulse

Nachdem die Grundlagen für das Verständnis der Pulsformung und die experimentelle Versuchsanordnung beschrieben wurden, sollen nun die Experimente, die zur Formung ultrakurzer Pulse durchgeführt wurden, Gegenstand des nächsten Kapitels sein.

### 5.1 Methoden der Pulsformung

Bei der Formung ultrakurzer Pulse gibt es unterschiedliche Herangehensweisen, wie man den gewünschten zeitlichen Verlauf des Pulses am Ausgang des Pulsformers erreichen kann: die direkte Phasenmanipulation und die adaptive Pulsformung.

Bei der direkten Phasenmanipulation ist das Spektrum und die gewünschte Pulsform des Ausgangsstrahls vorgegeben. Zur Bestimmung der Phasenkurve, durch die das vorgegebene Ergebnis erzielt wird, ist eine genaue Kenntnis des Eingangsstrahls erforderlich. Das bedeutet, man muss in der Lage sein, die Phase des ursprünglichen Pulses zu messen. Außerdem erfordert dieses Verfahren eine präzise Kalibrierung des Pulsformers, damit die Spannungswerte am LC-Display auch genau der gewünschten Phasenkurve entsprechen.

Bei der adaptiven Pulsformung hingegen wird die Pulsform im Hinblick auf eine bestimmte Größe, z.B. auf das Signal der zweiten Harmonischen oder die Konzentration der Produkte einer chemischen Reaktion, optimiert [Ass98]. In der Regel startet man mit einem zufälligen Phasenmuster, das mit Hilfe eines numerischen Algorithmus variiert wird. Die Phasenkurve wird solange optimiert, bis sich der maximale Wert der Zielfunktion (engl. "figure of merit") eingestellt hat. Bei die-

sem Optimierungsverfahren ist weder eine genaue Kenntnis des Pulses, noch des zu optimierenden Prozesses nötig. Die Kalibration des Pulsformers ist nur dann wichtig, wenn man am Ende aus der Optimierung die Phasenkurve bestimmen will. Über dieses Phasenmuster lassen sich dann unter Umständen Rückschlüsse auf die der Reaktion zugrunde liegenden Mechanismen ableiten.

Im Folgenden werden die Experimente und ihre Ergebnisse beschrieben, die zur Formung der Pulse des im Kapitel 2.1.3 beschriebenen Lasers durchgeführt wurden.

Bei den Messungen wurde der Schwerpunkt auf die direkte Phasenmodulation gelegt, da die Pulsphase mit Hilfe des SPIDER-Aufbaus direkt zugänglich ist. Dies ermöglicht eine genaue Kenntnis der Phase des Ausgangspulses, die mit Hilfe des Pulsformers kontrolliert manipuliert werden kann. Da bei dieser Methode die Phasenwerte, die an den Pulsformer angelegt werden sollen, vor der Pulsformung berechnet werden, ist dabei eine Kalibration des Pulsformers notwendig. Bei einer schlechten Kalibration erhält man Fehler in der Phasenkurve und hat wenig Aussicht, die gewünschte Pulsform zu erreichen.

Es wurden auch Messungen zur adaptiven Pulsformung durchgeführt, die keinerlei Kenntnis der Pulsphase oder wirkliches Verständnis des Pulsformers erfordern. Da in vielen Fällen keine Apparatur zur Phasenmessung vorhanden ist, bleibt nur die Möglichkeit der Pulsformung durch einen Optimierungsalgorithmus. Außerdem ist bei der Untersuchung von komplizierten Reaktionen die analytische Bestimmung der optimalen Pulsform und -phase zu komplex, um sie im Voraus zu bestimmen. Aus diesen Gründen ist die adaptive Methode im Gebiet der Pulsformung weit verbreitet.

## 5.2 Direkte Phasenkompensation

Bei den folgenden Experimenten wurde die Erzeugung eines fourier-limitierten Pulses durch gezielte und vollständige Dispersionskompensation angestrebt, die nicht auf einem iterativen Optimierungsalgorithmus beruht. Dazu ist eine genaue Kenntnis der Pulsphase und eine gute Kalibrierung bzw. Frequenzabbildung am Pulsformer notwendig, um einen Puls mit konstanter Phase zu generieren.

Um dies experimentell zu realisieren, wurde die Pulsphase mit dem in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen SPIDER-Aufbau gemessen. Die Inverse der gemessenen Phase wird dann mit Hilfe eines Computerprogramms in Spannungswerte für die Pixel des LC-Displays übersetzt, die per Softwareansteuerung an den Pulsformer angelegt werden. Durch eine erneute SPIDER-Messung kann verifiziert werden, ob



der Puls insgesamt eine konstante Phase aufweist. Falls die gemessene Phase immer noch eine Struktur aufweist, wird dieser Vorgang gegebenenfalls zwei- bis dreimal wiederholt.

Zwischen dem Laser und dem SPIDER durchläuft der Strahl die Quarz-Prismenstrecke der Vorkompensation und den Pulsformer-Aufbau. Die spektrale Phase des Ausgangspulses wurde mit SPIDER gemessen, dabei waren alle Pixel des LC-Displays auf Null gesetzt. Diese Messung ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Es besteht eine große Übereinstimmung mit dem berechneten Phasenverlauf der SF 59-Prismen in Kombination mit der Quarz-Prismenstrecke, der in Abb. 4.14 dargestellt ist. Da im SPIDER nur relative Phasen und relative Gruppenverzögerungen gemessen werden, die keine pulsformende Wirkung haben, muss beim Vergleich berücksichtigt werden, dass man einen konstanten und linearen Phasenterm von der Kurve abziehen darf.

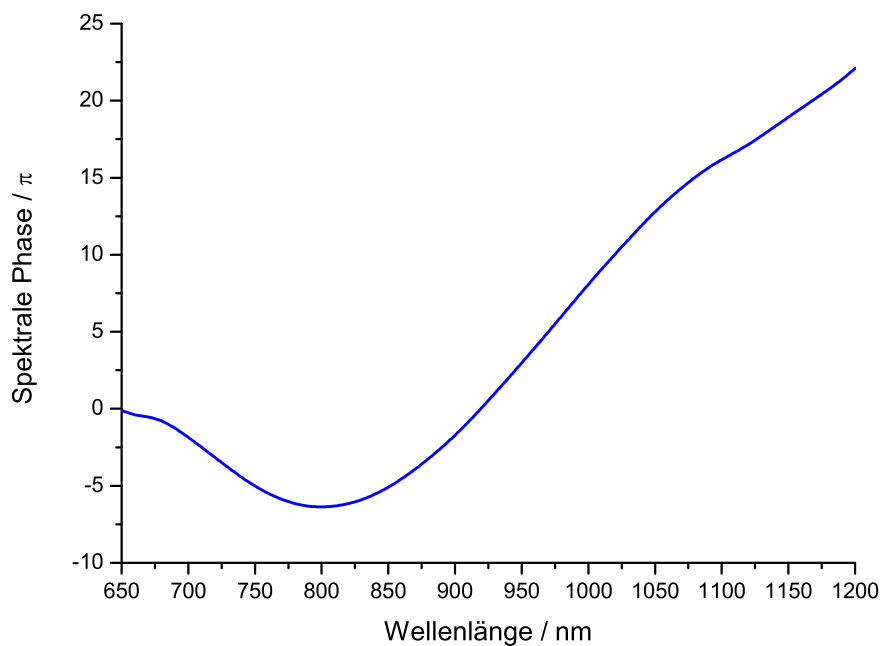


Abbildung 5.1: Spektrale Phase des Pulses, wenn an allen Streifen des LCDs die Spannung Null anliegt.

Aufgrund des schwachen Signals des verbreiterten Pulses war es schwierig, eine Autokorrelation aufzunehmen, die die üblichen Eigenschaften der Symmetrie und das Verhältnis 8:1 des Maximums zum Hintergrund aufweist. Die Autokorrelation eines stark gechirpten Pulses wird nicht nur länger als die eines fourierli-

miterten Pulses, sondern verändert auch ihre Form [Kel96a]. Die Flügel der IAC liegen dann deutlich höher und fallen nur langsam auf den Wert des Hintergrundsignals ab. Ist das Zeitfenster, das durch den maximalen Hub des Piezos limitiert ist, zu klein, wird es unmöglich, das Signal auf 8:1 zu normieren, da der Hintergrundanteil der IAC sich nicht mehr im Messbereich befindet. In Abb. 5.2 ist die Autokorrelation abgebildet, die durch bestmögliche Einkopplung erreicht werden konnte.

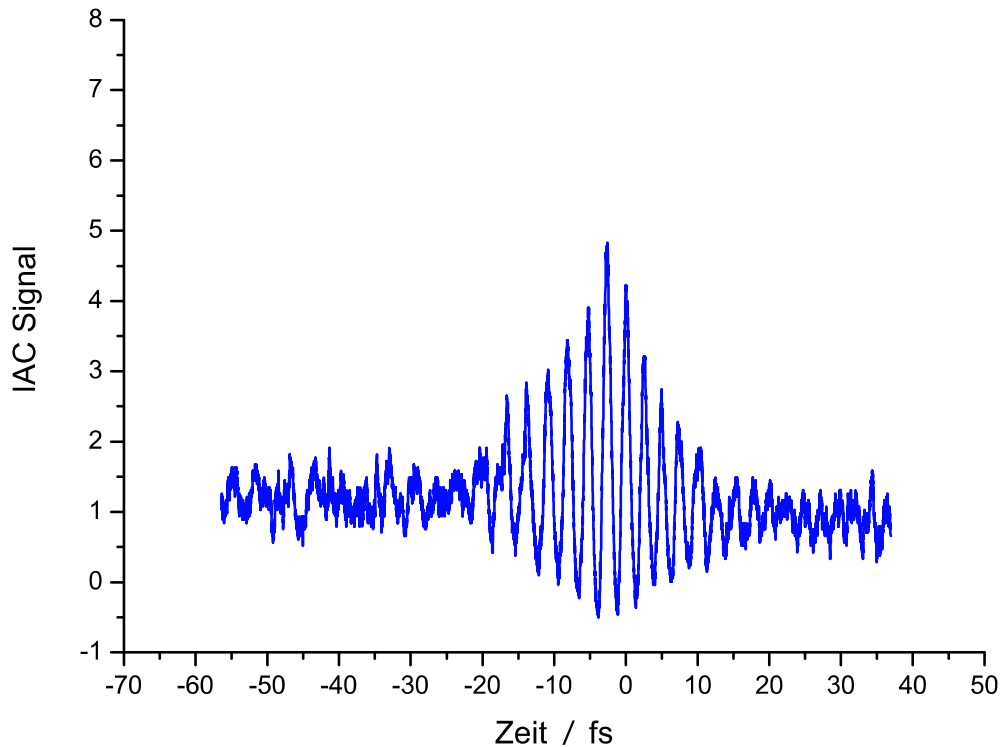


Abbildung 5.2: Autokorrelation des Pulses vor Anlegen der Gegenphase.

Am LC-Display wurden dann die Spannungswerte angelegt, die dem zur abgebildeten Phase komplementären Verlauf entsprechen. Dadurch sollte sich die Phasenbeziehung zwischen den spektralen Komponenten so verändern, dass wieder ein kurzer Puls entsteht.

Die Phasenkurve nach drei Iterationen der Pulsformung ist in Diagramm 5.3 dargestellt. Die Schwankungen in der Phase sind kleiner als  $0,1\pi$ . Es wurde also das Ziel eines glatten Verlaufs sehr gut realisiert. An den Rändern, an denen die Phasenkurve steil abbricht, ist kein Signal bzw. Spektrum mehr vorhanden, diese Messwerte gehen also nicht in die Pulsformung ein.

Da es mit SPIDER nur möglich ist, relative Phasen aufzunehmen und die konstanten und linearen Anteile der Phase keine pulsformende Wirkung besitzen (vgl.

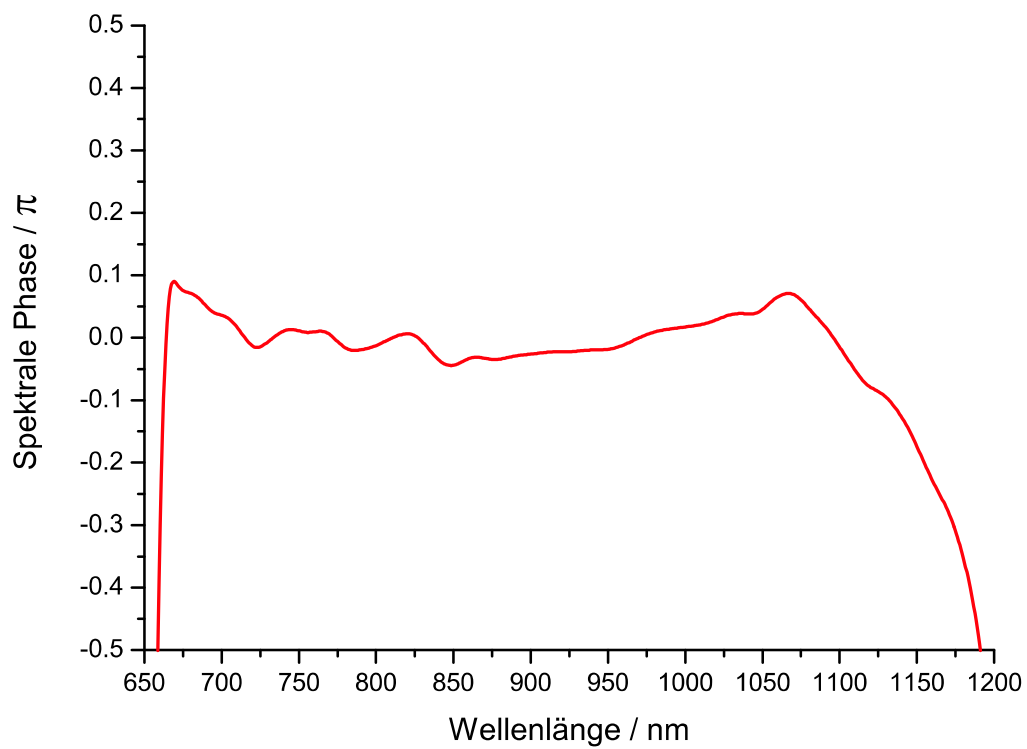


Abbildung 5.3: Spektrale Phase des geformten Pulses.

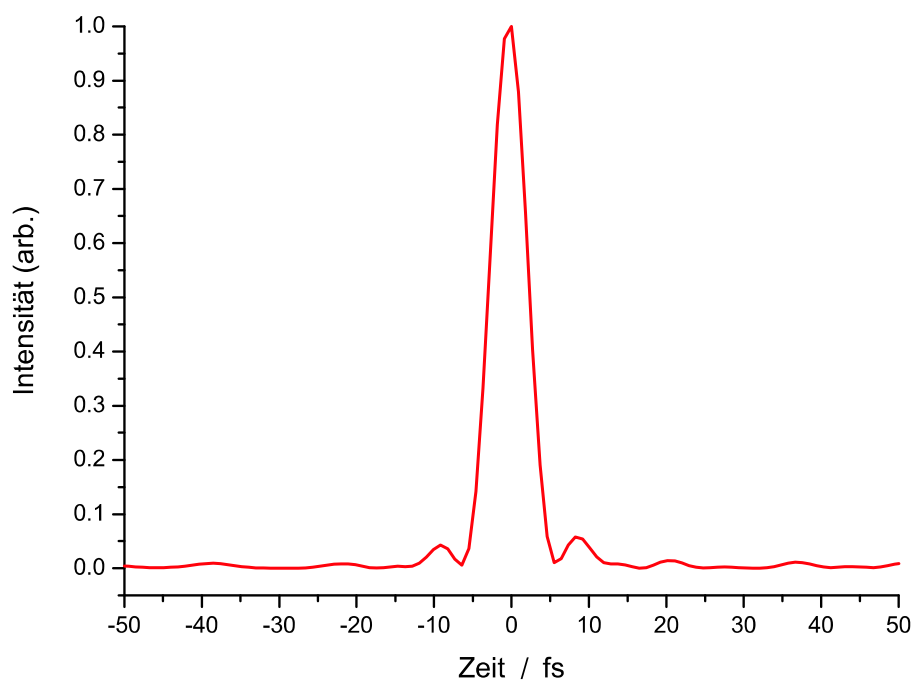


Abbildung 5.4: Intensitätsverlauf des rekomprierten Pulses; mit SPIDER gemessen.

Abschnitt 2.2.2), wurden bei allen Phasenkurven eine Konstante und eine Gerade subtrahiert, um nur den Phasenverlauf zu erhalten, der die Pulsform bestimmt. In Abb. 5.4 ist die Intensität des gemessenen Pulses über der Zeit aufgetragen. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Puls nach dem Anlegen der Gegenphase rekomprimiert ist, und weder Vor- noch Nachpulse vorhanden sind, was mit der vorherigen externen Dispersionskompensation der Fall war (vgl. Abb. 2.13). Die beiden Seitenmaxima resultieren aus der Form des Spektrums und sind auch in einer Berechnung des zeitlichen Intensitätsverlaufs mit glatter Phase für das gemessene Spektrum zu sehen.

Es wurde zusätzlich zur SPIDER-Messung die IAC des Pulses aufgenommen, die in Abb. 5.5 dargestellt ist. Um sicherzustellen, dass der Puls nicht über- oder unterkompensiert wurde, wurde die Eindringtiefe eines Prismas der Vorkompensation variiert. Sowohl bei Vergrößerung als auch Verkleinerung der Glasmenge, die der Strahl in der Prismenstrecke durchläuft, ergab sich eine längere Autokorrelation. Das bedeutet, dass der Puls die minimale Dispersion zweiter Ordnung aufwies, da sowohl negative als auch positive Dispersion eine Verbreiterung bewirken.

In der Autokorrelation ist kein Chirp des Pulses zu erkennen und bestätigt somit

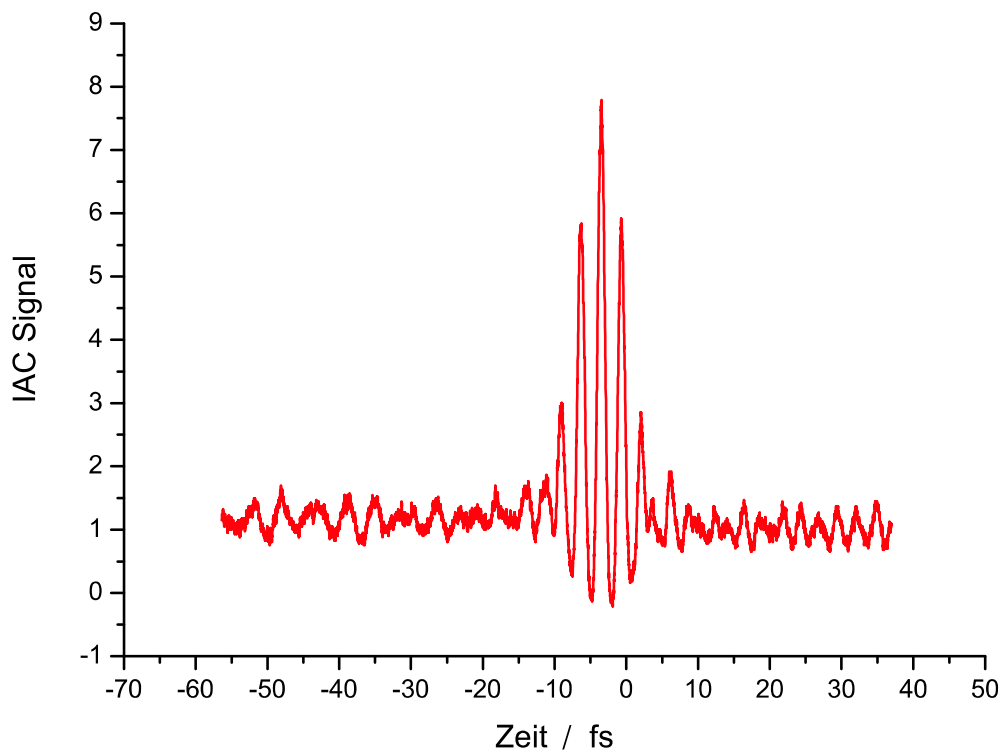


Abbildung 5.5: Autokorrelation des rekomprimierten Pulses.

die Ergebnisse der SPIDER-Messung. Die Pulsdauer ist kürzer als 6 fs, und auch hier sind keine Satellitenpulse zu sehen.

Es wurde die Rekomprimierung eines Pulses mit oktravbreitem Spektrum gezeigt, die trotz der großen Materialdispersion der SF 59-Prismen mit einer transmittierten Leistung  $> 50\%$  erreicht wurde. Dabei wurde durch die Pulsphase die Dispersion des Aufbaus direkt gemessen und kontrolliert die komplementäre Phase durch den Pulsformer erzeugt. Dies ist die exakteste Methode, Dispersionskompensation zu betreiben. Dieses Verfahren zur Rekomprimierung ist schnell und anpassungsfähig, da die Messung in wenigen Minuten durchgeführt wird und die Dispersionskompensation flexibel auf die Gegebenheiten des Aufbaus eingestellt werden kann. Dies macht es möglich, schnell und ohne Aufwand den Aufbau zu modifizieren oder zwischen Versuchsanordnungen mit unterschiedlicher Dispersion zu wechseln. Dies wird folgend beispielhaft anhand der Kompensation einer BK 7-Platte gezeigt.

Soll der kurze Puls für ein Experiment verwendet werden, sind durch die Komponenten des Versuchsaufbaus noch zusätzliche Dispersionsbeiträge auszugleichen. Man kann mit dem Pulsformer dafür sorgen, dass auch dieses zusätzliche Material kompensiert wird, damit der Puls am Ort des Experiments die kürzeste Dauer aufweist.

Nach der Rekomprimierung des Pulses wurden 5 mm BK 7-Glas in den Strahl eingebracht. Berechnet man die Dispersion zweiter Ordnung dieser Menge Glas mit Hilfe der Sellmeier-Gleichung (2.3), erhält man eine Gerade mit schwacher Steigung und einen Wert von ca.  $220 \text{ fs}^2$  bei 800 nm. Dieser Verlauf ist auch bei der gemessenen GDD in Diagramm 5.6 zu sehen, in dem die Kurven ohne BK 7, mit BK 7 vor und nach der Kompensation abgebildet sind. Nach der Messung der Änderung der spektralen Phase durch das zusätzliche Material kann die neue Gegenphase berechnet und zur Kompensation auf den Pulsformer gegeben werden. Die dritte Kurve zeigt die GDD nach der Kompensation, die wieder auf Null zurückgegangen ist.

Die beschriebenen Messungen zeigen, dass der Pulsformer zur Dispersionskompensation gut geeignet ist. Trotz guter Kontrolle des Pulsformers erzielt man allerdings erst nach drei Iterationen zufriedenstellende Ergebnisse. Außerdem ist die erreichte Pulsdauer nicht kürzer als bei der bisherigen Dispersionskompensation mit Prismen und DCMs, d.h. das Fourierlimit konnte noch nicht ausgeschöpft werden. Die dafür verantwortlichen möglichen Fehlerquellen und ihre Relevanz sollen im Folgenden diskutiert werden.

Wie bereits erwähnt, muss für die direkte Phasenmanipulation die ursprüngliche

Pulsphase sehr genau bekannt sein. Dafür ist eine gute Kalibration des SPIDER nötig. Durch eine falsche Bestimmung von z.B.  $\omega_{\text{shift}}$  werden in der Phasenkurve den Spektralkomponenten falsche Phasenwerte zugewiesen. Dieser Fehler wirkt wie eine falsche Zuordnung der Frequenzen zu der Position am LC-Display und wirkt sich stärker aus, wenn die Phasenkurve eine starke Struktur aufweist.

Eine Fehlbestimmung des  $\tau$  bewirkt, dass zwar die höheren Ordnungen der Dispersion kompensiert werden, aber eine konstante GDD des Pulses verbleibt. Da selbst kleine Abweichungen im  $\tau$  den Puls deutlich verlängern, hat dieser Fehler einen großen Einfluss auf die Messung. Auf der anderen Seite lässt sich diese Abweichung leicht durch die Autokorrelation überprüfen und beheben.

Andererseits kann es auch bei Anlegen der zum Ausgleich berechneten Phase an das Display zu Ungenauigkeiten kommen. Beim Pulsformer-Aufbau ist es ratsam, die Zuordnung der Frequenzen zu den Pixeln des LC-Display gelegentlich zu kontrollieren und die Strahlführung mit Hilfe von Blenden zu fixieren, damit sichergestellt ist, dass man den spektralen Komponenten die richtigen Phasenwerte zuweist.

Macht man Fehler bei der Kalibrierung des Pulsformers, stimmen die durch die

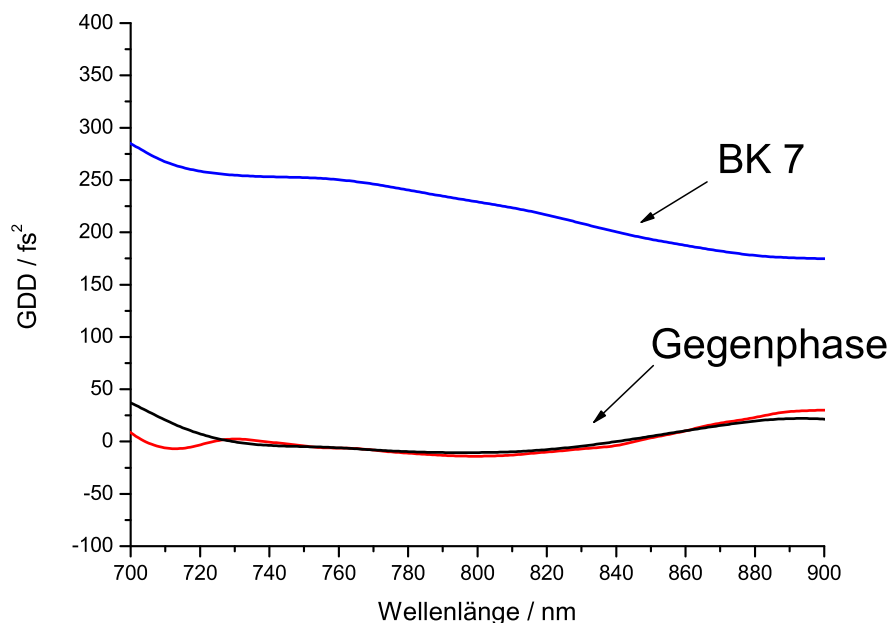


Abbildung 5.6: GDD ohne (schwarz) und mit 5 mm dickem BK7-Substrat (vor und nach der Kompression (blau, rot)).

Spannungswerte verursachte Phasenmodulation nicht mit der erwünschten überein.

Alle bisher beschriebenen Fehler sollten bei mehrfacher Iteration der Gegenphase verringert werden können. Die Abweichung zur vorgegebenen Pulsphase kann nach der Komprimierung gemessen werden. Addiert man diese Phase zu der im ersten Schritt angelegten Phase dazu, macht man zwar immer noch einen Fehler, aber man nähert sich weiter dem gewünschten Ergebnis an. Ein großes Problem bei der Handhabung des Pulsformers ist jedoch die in Abschnitt 4.3.2 bereits beschriebene Amplitudenmodulation, die durch die Beleuchtung mehrerer Pixel mit den gleichen Spektralkomponenten zustandekommt. Wenn die angelegten Phasenwerte eine große Steigung aufweisen, rückt der Phasensprung zwischen zwei Pixeln nahe an  $\pi$ . Dann interferieren Komponenten der gleichen Frequenz fast ausschließlich destruktiv. Dies führt zu starken Einbrüchen im Spektrum und zu einem sehr schlechten bis fast nicht messbaren SPIDER-Signal.

Wie schon im vorherigen Kapitel beschrieben, lässt sich dieses Problem nicht auf einfache Weise beheben. Durch einen größeren Eingangsstrahl würden die Spektralkomponenten schärfer durch die Hohlspiegel auf das Display abgebildet. Dies würde diesen Effekt zwar verringern, aber auch mehr Materialdispersion durch den großen Strahldurchmesser an den SF 59-Prismen mit sich bringen. Um dafür einen Ausgleich zu schaffen, wurde die Vorkompensation durch ein zusätzliches DCM-Paar ergänzt. Durch die vielen Reflexionen auf diesen Spiegeln war das SPIDER-Signal aber schwächer als vorher. Dies führte dazu, dass eine kontrollierte Pulsformung schon bei nicht so stark ausgeprägten Interferenzeffekten unmöglich war. So war die Phasenkompensation effektiv schlechter als nur mit der Quarz-Prismenstrecke. Aus diesem Grund haben sich DCMs als Ergänzung der Vorkompensation nicht bewährt.

Eine andere Möglichkeit wäre, Hohlspiegel mit kürzeren Brennweiten zu verwenden, um einen härteren Fokus zu erreichen. Um mit dem extrem breiten Spektrum das ganze Display ausnutzen zu können, ist aber der große Abstand vom Prisma zum Hohlspiegel notwendig. Bei der großen Brennweite ( $f = 660\text{mm}$ ) ist der Fokus für den noch tragbaren Strahldurchmesser nicht klein genug, um zu gewährleisten, dass die einzelnen Spektralkomponenten nur ein Pixel beleuchten. Da SF 59 schon eines der hochbrechendsten Materialien ist, aus dem Prismen gefertigt werden, ist es schwierig, diesen Abstand zu verkürzen. Die Verwendung von zwei hintereinander stehenden Prismen, wäre eine denkbare Möglichkeit, um die stärkere Aufspaltung zu realisieren.

Die schlechte Fokussierung auf das LCD ist im Moment der limitierende Fak-

tor des Aufbaus. Theoretisch ist die Phasenmodulation des Pulsformers durch die Diskretisierung der Phasenkurve begrenzt. Mit Hilfe des Nyquist–Theorems kann eine sehr grobe, obere Grenze für die maximale Steigung der Phasenkurve festgelegt werden [Sto01]. Bei dieser Abschätzung darf der Phasensprung zwischen zwei Pixeln nicht größer als  $\pi$  werden. Nimmt man eine rein lineare Phase bei einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$  und einer spektralen Breite von  $\Delta\lambda = 600 \text{ nm}$  an, ergibt diese Bedingung eine maximale GD von

$$\text{GD}_{\max} = \frac{\lambda_0^2}{2c\Delta\lambda} \approx 1000 \text{ fs.} \quad (5.1)$$

Für eine rein quadratische Phase ist die maximale GDD gegeben durch

$$\text{GDD}_{\max} = \frac{\lambda_0^4}{N\pi c^2 \Delta\lambda^2} \approx 2000 \text{ fs}^2, \quad (5.2)$$

mit der Anzahl der Pixel  $N=640$ .

Aus dieser sehr groben Abschätzung ergibt sich ein maximaler Phasenhub von  $2000 \text{ fs}^2$ . Im Experiment hat sich gezeigt, dass das Limit der GDD bei ca.  $400 \text{ fs}^2$  liegt. Versucht man mehr Dispersion am Pulsformer zu kompensieren, ist keine kontrollierte Pulsformung mehr möglich. Diese experimentelle Grenze entspricht einer minimalen Abtastung von einem  $\pi$ -Sprung durch fünf Pixel, um die Phasenkurve auf das Spektrum abzubilden. Diese Abtastrate ist also für Anwendung die realistischere Annahme.

### 5.3 Erzeugung von komplexen Pulsformen

Da der Pulsformer beliebige Phasenmuster generieren kann, ist seine Anwendung nicht auf die Dispersionskompensation beschränkt. Es ist vorstellbar, fast jede beliebige Pulsform zu erzeugen, die durch reine Phasenmodulation mit dem gegebenen Spektrum generiert werden kann.

Das einfachste Beispiel eine komplexe Pulsform herzustellen, ist die Bildung von Mehrfachpulsen durch eine sinusförmige Phasenfunktion mit Amplitude  $C$

$$E_{\text{out}}(\omega) = E_{\text{in}}(\omega) \exp(-iC \sin \omega T). \quad (5.3)$$

Durch diese Sinusmodulation der spektralen Phase wird ein Pulszug mit einem zeitlichen Abstand von  $T$  zwischen den Pulsen erzeugt.

In Abb. 5.7 sind die berechneten Ergebnisse für den Feldverlauf, die Intensität sowie die Autokorrelation der Mehrfachpulse für eine sinusförmige Modulation eines Rechteckspektrums dargestellt. Für diese Parameter bildet sich ein Pulszug aus, dessen drei Zentralpulse in etwa die gleiche Amplitude aufweisen, und bei



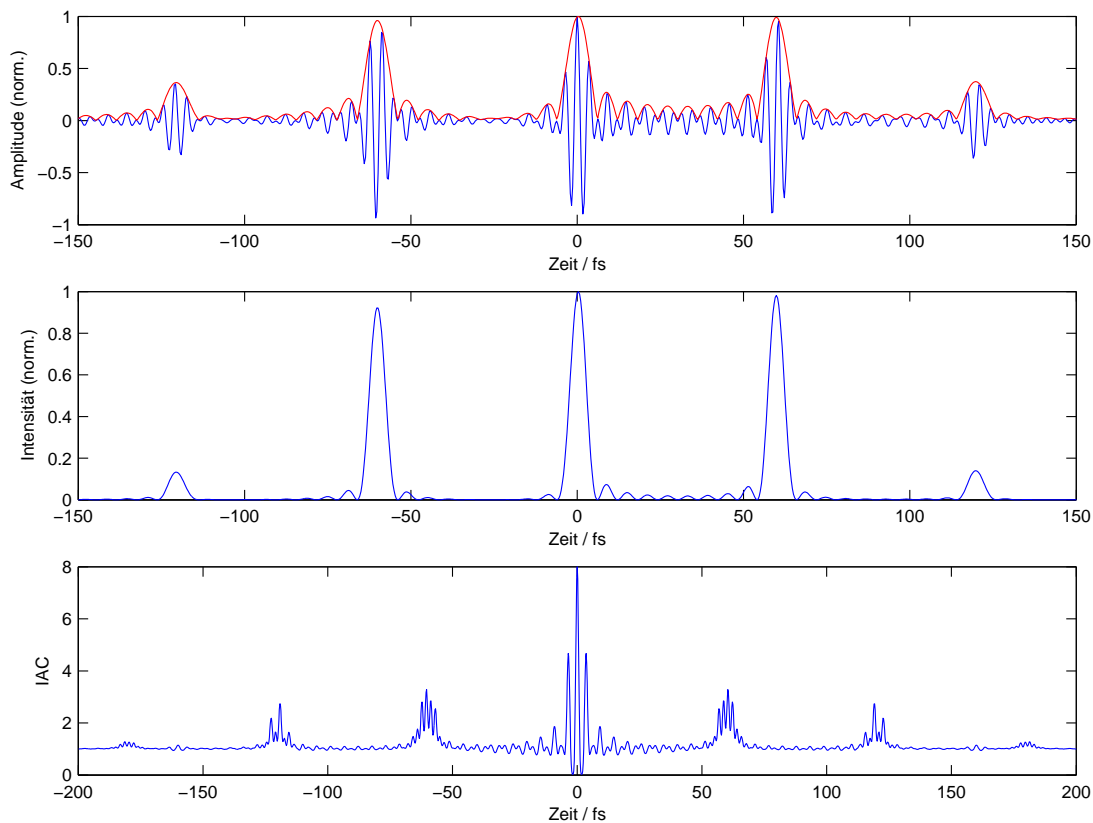


Abbildung 5.7: Simulation der sinusförmigen Phase ( $C = 1,4$ ;  $T = 60$  fs) für ein Rechteckspektrum mit einer Bandbreite von 160 THz; oben: elektrisches Feld; mitte: Intensität; unten: Autokorrelation.

dem die Amplitude der Pulse mit größerem zeitlichen Abstand stark abfällt. Die Form der Einhüllenden des Pulszuges hängt dabei von der Amplitude  $C$  der Phasenmodulation ab. Der Abstand, der durch die Periode des Sinus gegeben ist, beträgt in Abb. 5.7 60 fs.

Bei der berechneten Autokorrelation zeigt sich, dass nur das Interferenzmuster des Hauptpulses eine vollständige Modulation aufweist. Der Grund für die schwache Interferenz der weiteren Anteile der Autokorrelation ist, dass die Pulse unterschiedliche Träger–Einhüllenden–Phasen (CEO–Phasen, engl. "carrier envelope offset") besitzen. Diese Größe charakterisiert die Lage die Träger–Oszillation unter der Einhüllenden des Pulses [Cum02]. Für  $\phi_{\text{CEO}} = 0$  liegen die Maxima von Träger und Einhüllenden übereinander, für  $\phi_{\text{CEO}} = \pi$  befindet sich ein Träger–Minimum an der Stelle des Maximums der Einhüllenden. Im ersten Graph von Abb. 5.7 kann man deutlich erkennen, dass die Maxima der Oszillationen des Feldes sich nicht an den gleichen Positionen unter der Einhüllenden befinden, folglich

haben sie unterschiedliche CEO-Phasen. Aufgrund dieser unterschiedlichen Phasen befinden sich die Maxima der Interferogramme an verschiedenen Positionen. Werden diese Interferenzsignale auf dem Photomultiplier des Autokorrelators addiert, ist die Modulation der Autokorrelation nicht so stark ausgeprägt, da die Maxima und Minima nicht genau übereinander liegen. Nur wenn alle Pulse mit ihren exakten Kopien interferieren, kommt es zu einem vollständig durchmodulierten Signal bei  $t = 0$  fs.

Im Experiment konnten diese Eigenschaften verifiziert werden. Zusätzlich zur Grundkompensation wurden drei verschiedene Sinusfunktionen mit  $C = 1, 4$  auf das LC-Display gegeben:  $T = 20$  fs,  $40$  fs,  $60$  fs. Nach Anlegen dieses Phasensystems wurde die Autokorrelation der Pulse gemessen. Sowohl die Ergebnisse der Messung als auch die jeweils berechneten Autokorrelationen sind in Abb. 5.8 zu sehen. Die Pulse weisen in etwa die erwarteten Abstände auf, und auch die schlechte Modulation des IAC-Signals ist in der Grafik gut zu sehen. Bis auf die Tatsache, dass die Pulse der Messung etwas länger sind als die in der Simulation, ist eine exzellente Übereinstimmung von Theorie und Experiment gegeben.

Ausgehend von diesen Experimenten stellt sich die Frage: Wie kann man eine beliebige, gewünschte Pulsform herstellen und wie ermittelt man die Phasenfunktion, die sie erzeugt? Der Algorithmus, der die Antwort auf diese Frage liefert, funktioniert nach dem gleichen Prinzip wie die Rekonstruktion der Phase aus dem Signal einer Autokorrelation. Ausgehend von zufälligen Phasenwerten, die durch Spline-Funktionen interpoliert werden, wird die für das gemessene Leistungsspektrum mit dieser Phasenkurve berechnete mit der vorgegebenen Intensitätsverteilung des Pulses verglichen. Dann werden die Phasenwerte solange variiert, bis sich ein Optimum einstellt. Dabei dient das Quadrat der Abweichung zwischen den beiden Intensitätskurven als Maß der Übereinstimmung. Wenn sich die Optimierung nicht weiter durch Variieren der Phasenwerte verbessern lässt, wird die Anzahl der Stützstellen der Spline-Funktionen erhöht. Mit Hilfe dieses Vorgehens lässt sich eine Phasenkurve bestimmen, die durch reine Phasenmodulation mit einem vorgegebenem Spektrum einen Puls mit der gewünschten Intensitätsverteilung generiert.

In Abb. 5.9 ist ein Beispiel gezeigt, bei dem die Intensitätsverteilung für einen Doppelpuls im Abstand von  $40$  fs und mit einem Amplitudenverhältnis  $1:2$  vorgegeben wurde. Vor der Optimierung kann man den Abstand, die Pulsdauer und die Intensitäten der Pulse frei wählen. Solche Doppelpulse sind für Anrege-Abfrage-Experimente (engl. "pump probe") interessant, bei denen beispielsweise ein Molekül mit dem ersten, schwächeren Puls angeregt wird. Mit Hilfe des zweiten

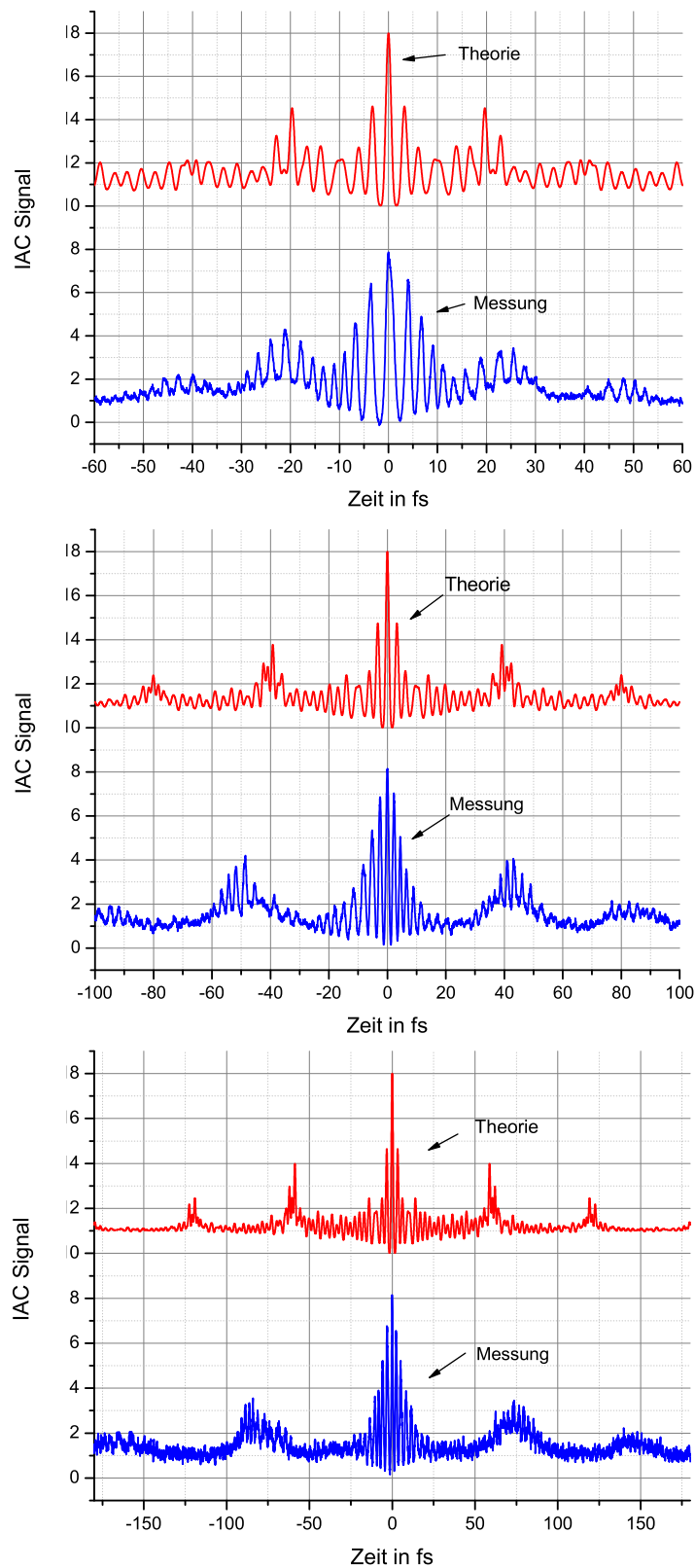


Abbildung 5.8: gemessene und berechnete Autokorrelationen für eine sinusförmige spektrale Phase mit den Werten  $C = 1, 4$  und  $T = 20$  fs; 40 fs; 60 fs.

Pulses wird diese Anregung dann untersucht.

Der nächste Schritt ist die Umsetzung dieser Ergebnisse im Experiment.

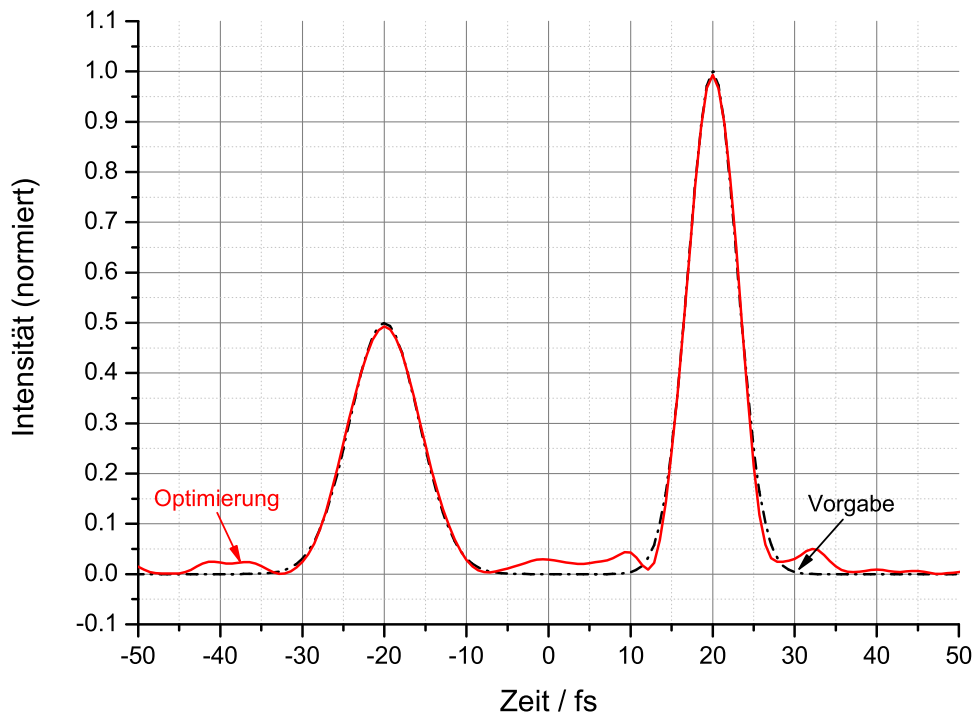


Abbildung 5.9: Intensitätsverteilung des Vorgabepulses und des optimierten Pulses; die Optimierung wurde mit dem Spektrum des Lasers durchgeführt.

## 5.4 Genetische Optimierung

Im Gegensatz zur bisher diskutierten, direkten Phasenmanipulation nähert man sich bei der adaptiven Pulsformung mit Hilfe eines Optimierungsalgorithmus dem gewünschten Ergebnis an. Dabei startet man mit einer zufälligen Verteilung der Spannungswerte am LC-Display. Diese werden dann im Hinblick auf eine Messgröße optimiert, die für den gewünschten Puls maximal ist.

Im Folgenden wird der zur Pulskomprimierung verwendete genetische Optimierungsalgorithmus im Detail beschrieben. Ausgangspunkt sind 50 völlig zufällige Muster von Spannungswerten des Pulsformers, die sogenannte "Population". Jedes dieser Muster wird an den Pulsformer angelegt und dabei das in einem KDP-Kristall (ca. 30  $\mu\text{m}$  Dicke) erzeugte SHG-Signal gemessen. Da die Frequenzverdopplung, wie Gleichung (3.16) zeigt, vom Quadrat der Intensität der Grundwelle

abhängt, ist sie unter der Annahme von gleichbleibender Durchschnittsleistung ein Maß für die Pulsdauer, da für kurze Pulse die Spitzenintensitäten höher sind. Nachdem für alle Muster dieser Wert gemessen wurde, werden die Muster nach der Stärke des SHG-Lichts sortiert. Während der Optimierung werden Generation für Generation zwei dieser Muster zufällig, aber nach ihrer Rangfolge gewichtet ausgewählt. Diese zwei Muster werden an einer zufälligen Stelle getrennt und jeweils der vordere Teil eines Musters mit dem hinteren Teil des anderen zu einem neuen Muster zusammengefügt. Dieses Muster wird an den Pulsformer angelegt und je nach erzieltm SHG-Signal an die richtige Stelle in die Reihenfolge der Population eingefügt. Dabei wird jeweils das schlechteste Muster entfernt. Auf diese

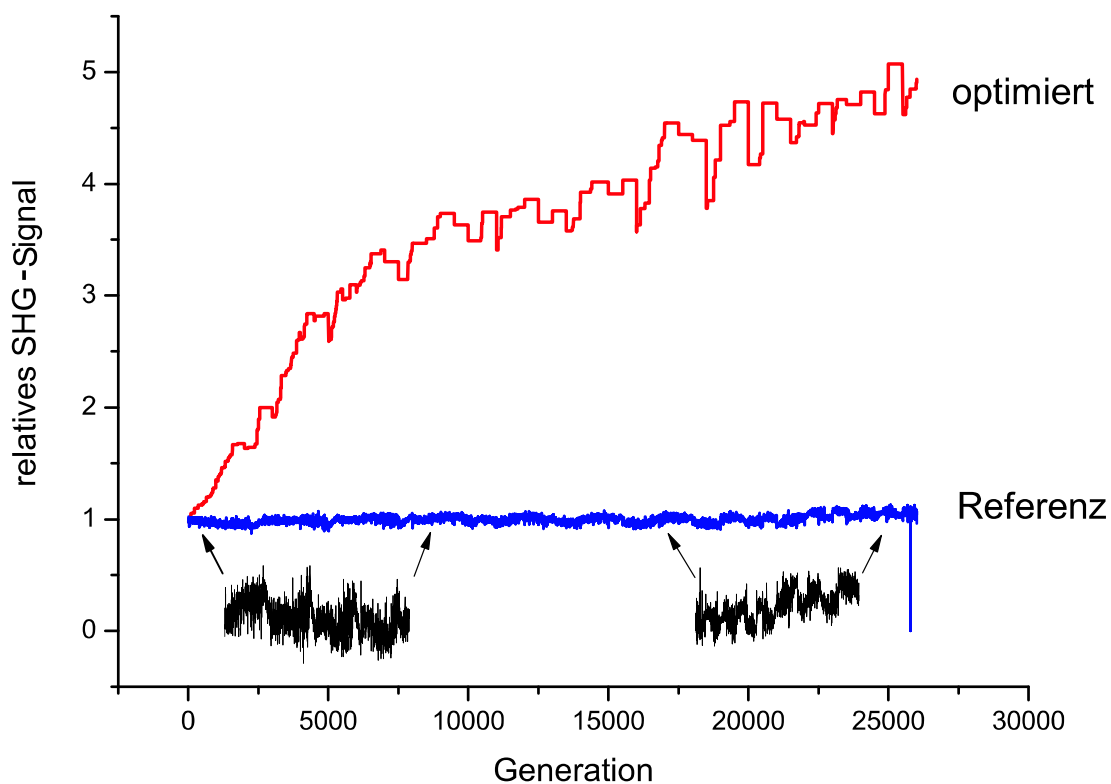


Abbildung 5.10: SHG-Signal für das mit dem evolutionären Algorithmus optimierten Muster und für Spannung Null am LC-Display (Referenz).

Weise nähert man sich ausgehend von zufälligen Mustern nur durch Messung des SHG-Signals einem Optimum an. Wie schnell der Algorithmus konvergiert, hängt von der Anzahl der diskreten Spannungswerte, der Größe der Population und vom Laserrauschen ab. Man kann durch "Mutationen" ein weiteres Zufallsmoment einbringen, in dem man ein oder mehrere Spannungswerte des neu generierten Musters zufällig verändert.

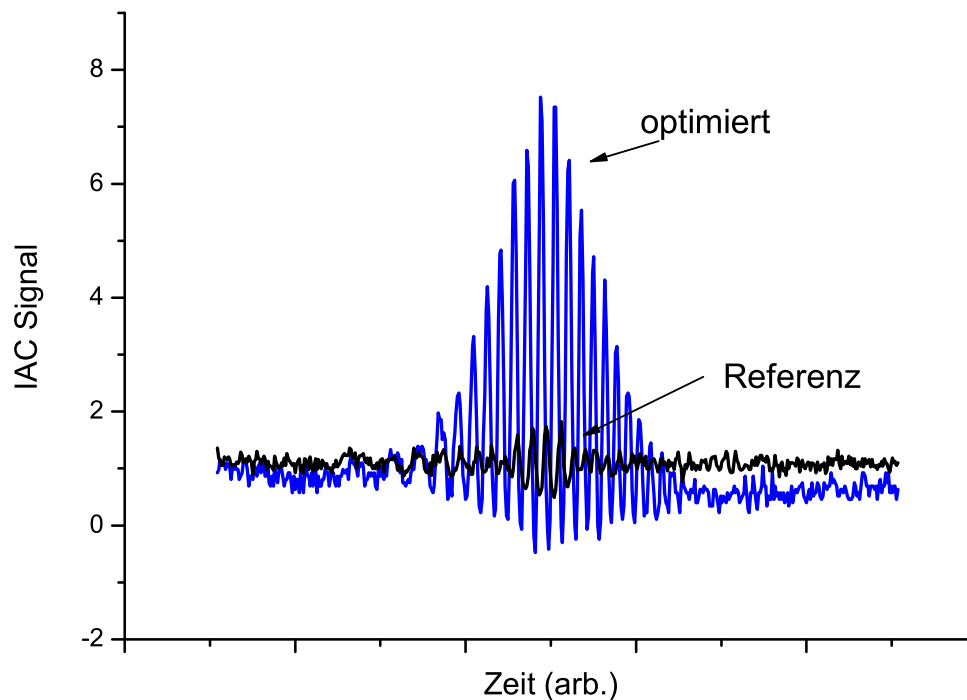


Abbildung 5.11: Autokorrelationen für das optimierte Muster und Spannung Null am LC-Display (Referenz).

Abb. 5.10 zeigt den Verlauf einer Optimierung. Dargestellt ist das optimierte SHG-Signal und als Referenz die Intensität des verdoppelten Lichts, wenn alle Spannungswerte auf Null gesetzt sind. In den vergrößerten Ausschnitten sind deutlich Schwankungen der Referenz zu sehen, die von Fluktuationen in der Ausgangsleistung des Lasers herrühren. Aufgrund dieser Schwankungen wurde alle 500 Generationen eine Neusortierung der Muster vorgenommen, damit die Optimierung nicht bei einem Muster stecken bleibt, das zufällig zu einem Zeitpunkt angelegt wurde, als der Laser eine große Ausgangsleistung aufwies. Aus diesem Grund steigt die optimierte Kurve nicht monoton, sondern weist Sprünge auf. Diese Optimierung wurde über Nacht durchgeführt und dauerte etwa 14 Stunden (ca. 26 000 Generationen). Der Verlauf zeigt eine Sättigung bei dem fünffachen SHG-Signal vom optimierten Signal zur Referenz. Dies ist zwar eine signifikante Verbesserung, aber noch weit vom angestrebten Fourierlimit entfernt.

In Diagramm 5.11 sind die Autokorrelationen der Pulse für das optimierte Muster und Spannung Null am Pulsformer dargestellt. Die Normierung ist für beide Signale gleich gewählt worden, damit die Verbesserung deutlich erkennbar ist.

Wie schon der Verlauf gezeigt hat, ist das optimierte Signal um einen Faktor fünf größer geworden. Die Autokorrelation ist zwar kürzer, aber die Pulsdauer beträgt mehr als 10 fs. Es wurde also trotz der langen Messzeit nur ein lokales Maximum gefunden. Der Grund für diesen nur bedingten Erfolg der genetischen Optimierung sind die Schwankungen des Lasers. Es hat sich gezeigt, dass die Schwankungen des Referenz-Signals dem Verlauf der Labortemperatur folgen. Die Überschwingungen der Klimaanlage, die die Labortemperatur auf ein Grad genau einstellen soll, schlagen sich in der Ausgangsleistung des Lasers nieder. Aus diesem Grund schwankt das SHG-Signal um bis zu 10%. Bei diesem Rauschen ist es schwierig bis unmöglich ein Optimum zu finden, bevor der Laser ausgeht oder sich das Spektrum leicht verändert.

In Abb. 5.12 ist das Muster der Phasenwerte des Pulsformers dargestellt. Es sieht, wie die Anfangswerte, völlig zufällig aus. Es zeigt keinerlei Struktur, aus der man etwas über die optimale Phase lernen könnte.

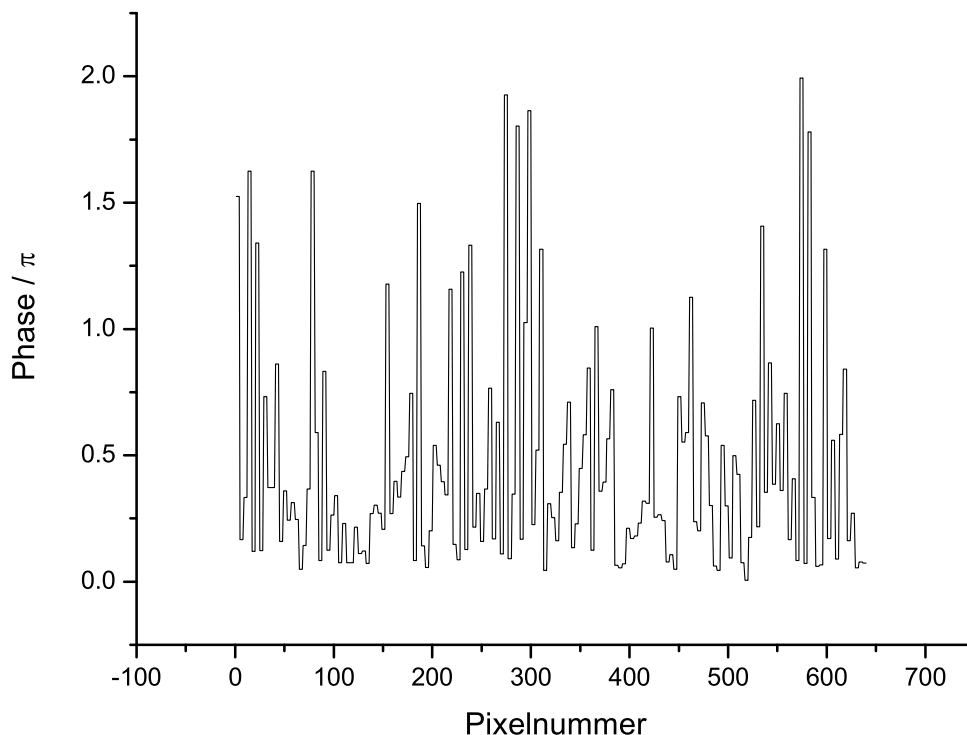


Abbildung 5.12: Das mit dem evolutionären Algorithmus bestimmte, optimale Phasenmuster

Es hat sich herausgestellt, dass zur Rekomprimierung des Pulses die direkte Phasenkompensation die besseren Ergebnisse liefert. Da die Methode der adaptiven

Pulsformung keine Verbesserung zum Verständnis des Aufbaus verspricht und das Rauschen nicht so einfach reduziert werden kann, wurde dieser Weg bis jetzt nicht weiterverfolgt.



# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

Um die Grundlagen zum Verständnis dieser Arbeit zu legen, wurde das Prinzip der Erzeugung von Laserpulsen und der verwendete 5 fs–Titan–Saphir–Laser, sowie der Einfluss der Dispersion auf die Propagation von Laserpulsen beschrieben. Des Weiteren wurden die verwendeten Pulscharakterisierungsmethoden der interferometrischen Autokorrelation und des SPIDER–Verfahrens erklärt. Mit Hilfe des SPIDER–Aufbaus ist es möglich, die spektrale Phase in Echtzeit ohne Mehrdeutigkeiten zu bestimmen. Diese Methode wird bei der Pulsformung zur Messung der Phase des Eingangsstrahls benutzt, was eine Voraussetzung zur kontrollierten Manipulation der Phase ist. Während dieser Arbeit wurde ein neuer SPIDER–Aufbau mit Typ II–Phasen Anpassung realisiert. Die Verbesserungen im Vergleich zum alten Aufbau wurden herausgestellt, und die Messergebnisse zur Bestimmung des zeitlichen und räumlichen Überlapps, sowie ein erstes SPIDER–Signal wurden präsentiert.

Anschließend wurden die Details des Aufbaus zur Formung von Pulsen mit oktavbreiten Spektren und die einzelnen Schritte dokumentiert, die zur Kalibration erforderlich sind. Dabei wurde die Notwendigkeit der Verwendung von hochbrechenden SF 59–Prismen und die Problematik ihrer großen Materialdispersion herausgearbeitet. Dieses Problem wurde mittels einer Vorkompensation mit einer Quarz–Prismenstrecke gelöst. Zur zeitlichen Formung von Laserpulsen durch Phasenmodulation ist die Bestimmung des Phasenhubs des LC–Display essentiell. Es wurde beschrieben, wie man diese Kalibration der induzierten Phasenverzögerung messen kann. Desweiteren wurde die Problematik der Amplitudenmodulation erläutert, die durch die Beleuchtung von mehreren Pixeln mit der gleichen Frequenz zustande kommt.

Mit Hilfe des aufgebauten Pulsformers wurden Experimente zur Pulskomprimierung durch eine genetische Optimierung durchgeführt. Es hat sich herausgestellt,

dass diese Methode der Pulsformung bei dem starken Rauschen des Lasers nicht sehr vielversprechend ist.

Deshalb lag der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Pulsformung durch direkte Phasenmanipulation. Mit dieser Methode wurde die Rekomprimierung des durch die SF 59–Prismen stark gechirpten Laserpulses gezeigt. Durch Messen der Pulsphase und deren Kompensation mit Hilfe des LC–Displays wurde ein Puls mit beinahe flacher Phase erreicht. Desweiteren konnte anhand von BK 7 gezeigt werden, dass auch zusätzliche Materialdispersion ausgeglichen werden kann und der Pulsformer zur flexiblen Dispersionskompensation mit hoher Effizienz geeignet ist.

Ein weiteres Ziel der Arbeit war die flexible Beeinflussung der zeitlichen Pulsform aufgrund einer reinen Phasenmodulation. Im Experiment wurden Pulszüge mit unterschiedlichen Abständen zwischen den Pulsen durch eine sinusförmige Phasenmodulation erzeugt. Durch einen Rekonstruktionsalgorithmus lässt sich numerisch die Phasenkurve zu einer vorgegebenen Pulsform bestimmen. Durch diese Vorarbeiten sollte der Weg zur Realisierung fast jeder gewünschten zeitlichen Pulsform geebnet sein.

Während dieser Experimente konnten einige verbliebene Fehlerquellen identifiziert werden. Der im Moment limitierende Faktor des Aufbaus ist die beschriebene Amplitudenmodulation. Um dieses Problem verringern zu können, muss eine schärfere Abbildung der Spektralkomponenten auf das LC–Display erreicht werden. Optimal wäre ein Strahlradius im Fokus, der deutlich kleiner als die Größe eines Pixels ist. Man kann eine härtere Fokussierung entweder durch einen größeren Eingangsstrahl oder durch Verwendung von Hohlspiegeln mit kleineren Brennweiten erreichen. Im weiteren Verlauf dieses Projekts ist eine Änderung der Vorkompensation geplant. Die zusätzliche negative Dispersion, die man dadurch erreichen könnte, würde einen größeren Strahldurchmesser an den Prismen erlauben. Um kürzere Brennweiten verwenden zu können, muss man eine stärkere spektrale Aufspaltung des Pulses erreichen, damit man immer noch die gesamte Breite des Displays zur Pulsformung ausnutzen kann. Da das verwendete SF 59 schon eines der hochbrechendsten Materialien ist, kann man dies nicht durch Benutzung von anderen Prismen realisieren. Die Ersetzung der beiden SF 59–Prismen durch eine 4–Prismen–Anordnung wäre eine denkbare Möglichkeit, diese stärkere Aufspaltung zu erreichen. Dabei wird der bereits durch das erste Prisma aufgespaltene Strahl durch ein weiteres Prisma gebrochen. Auf diese Weise könnte man die Auffächerung des Spektrums auf die Breite des Displays auf einer kürzeren Distanz erzielen.

# Anhang A

## Interferometrische Autokorrelation

Die interferometrische Autokorrelation (IAC) ist eine weitverbreitete Methode zur Pulscharakterisierung. Im Folgenden wird die Autokorrelationsfunktion  $I_{\text{IAC}}$  berechnet und einige ihrer Eigenschaften diskutiert.

Bei der IAC werden zwei zeitverzögerte Pulskopien des zu messenden Pulses kollinear in einen nichtlinearen Kristall fokussiert. Wie aus der nichtlinearen Optik bekannt, ist das elektrische Feld der erzeugten zweiten Harmonischen proportional zum Quadrat des elektrischen Feldes des Fundamentallichts, das eine Superposition der beiden Pulse ist:

$$E_{2\omega}(t, \tau) \propto (E(t + \tau) + E(t))^2. \quad (\text{A.1})$$

Verwendet man die Notation von Träger und Einhüllende, die im Abschnitt [2.2.2](#) eingeführt wurde<sup>1</sup>, ergibt sich für die Intensität der Autokorrelation folgender Ausdruck:

$$I_{2\omega}(t, \tau) \propto \left| (A(t + \tau)e^{i\omega_0(t+\tau)} + A(t)e^{i\omega_0 t})^2 \right|^2. \quad (\text{A.2})$$

Bei der Detektion mit dem Photomultiplier wird über das frequenzverdoppelte Signal integriert:

$$\begin{aligned} I_{\text{IAC}}(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} \left| (A(t + \tau)e^{i\omega_0(t+\tau)} + A(t)e^{i\omega_0 t})^2 \right|^2 dt \\ &\propto \int_{-\infty}^{\infty} \left| A^2(t + \tau)e^{i2\omega_0(t+\tau)} \right. \\ &\quad \left. + 2A(t + \tau)A(t)e^{i\omega_0(t+\tau)}e^{i\omega_0 t} + A^2(t)e^{i2\omega_0 t} \right|^2 dt \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

---

<sup>1</sup>Die Einhüllende  $A(t)$  war dabei so definiert, dass  $|A(t)|^2$  der Intensität entspricht.

Das Integral kann in folgende Terme gegliedert werden

$$I_{\text{IAC}}(\tau) = I_{\text{back}} + I_{\text{int}}(\tau) + I_{\omega}(\tau) + I_{2\omega}(\tau) \quad (\text{A.4})$$

wobei

$$I_{\text{back}} = \int_{-\infty}^{\infty} |A(t + \tau)|^4 + |A(t)|^4 dt = 2 \int_{-\infty}^{\infty} I^2(t) dt \quad (\text{A.5})$$

$$I_{\text{int}}(\tau) = 4 \int_{-\infty}^{\infty} |A(t + \tau)|^2 |A(t)|^2 dt = 4 \int_{-\infty}^{\infty} I(t + \tau) I(t) dt \quad (\text{A.6})$$

$$I_{\omega}(\tau) = 4 \int_{-\infty}^{\infty} \text{Re} \{ (I(t) + I(t + \tau)) A(t + \tau) A^*(t) e^{i\omega_0 \tau} \} dt \quad (\text{A.7})$$

$$I_{2\omega}(\tau) = 2 \int_{-\infty}^{\infty} \text{Re} \{ (A^*(t + \tau))^2 A^2(t) e^{i2\omega_0 \tau} \} dt. \quad (\text{A.8})$$

Die Terme der Autokorrelationsfunktion haben folgende physikalische Bedeutung:  $I_{\text{back}}$  ist der Hintergrundanteil der Strahlung,  $I_{\text{int}}$  entspricht der Intensitätsautokorrelation.  $I_{\omega}$  und  $I_{2\omega}$  beschreiben die oszillierenden Terme der interferometrischen Autokorrelation.

Da  $A(t)$  die Pulseinhüllende ist, verschwindet sie für  $t \rightarrow \infty$ . Deshalb verschwinden alle Terme ausser dem Hintergrundanteil, wenn die beiden Puls kopien zeitlich sehr weit auseinander sind ( $\tau \rightarrow \infty$ ). Es gilt  $I_{\text{IAC}}(\infty) = I_{\text{back}}$ . Aus diesem Grund normiert man die Autokorrelation relativ zur Hintergrundintensität  $I_{\text{back}}$ :

$$I_{\text{IAC}}(\tau) = 1 + \frac{I_{\text{int}}}{I_{\text{back}}} + \frac{I_{\omega} + I_{2\omega}}{I_{\text{back}}}. \quad (\text{A.9})$$

Zwei wichtige Eigenschaften dieser Funktion sind:

- Sie ist immer symmetrisch, da  $I_{\text{IAC}}(\tau) = I_{\text{IAC}}(-\tau)$  gilt. Deshalb kann die Zeitrichtung nicht eindeutig bestimmt werden.
- Für  $\tau = 0$  ergeben sich folgende Werte für die Integrale:

$$I_{\text{int}}(0) = 2I_{\text{back}} \quad (\text{A.10})$$

$$I_{\omega}(0) = 4I_{\text{back}} \quad (\text{A.11})$$

$$I_{2\omega}(0) = I_{\text{back}}. \quad (\text{A.12})$$

Diese Werte eingesetzt in (A.9), ergibt  $I_{\text{IAC}}(0) = 8$ . Daraus folgt für die normierte Autokorrelationsfunktion, dass das Verhältnis von Maximum zum Hintergrund 8:1 ist.

# Anhang B

## Wellenlängenabhängigkeit der Phasenverzögerung

Zur Pulsformung mit einem Flüssigkristalldisplay (LCD) ist es notwendig, den Zusammenhang zwischen der Spannung, die an den Streifen des Display anliegt, und der Phasenverzögerung, die das Licht erfährt, zu bestimmen.

In Abschnitt 4.3 wurde bereits beschrieben, wie man durch Amplitudenmodulation die relative Phasenverzögerung  $\Delta\Gamma(U)$  zwischen in ordentlicher und außerordentlicher Achse polarisiertes Lichts messen kann. Diese Phasendifferenz ist gegeben durch:

$$\Delta\Gamma(U, \lambda) = \frac{2\pi d}{\lambda} \Delta n(U, \lambda) \quad \text{mit} \quad \Delta n(U, \lambda) = n_\theta(U, \lambda) - n_o(\lambda). \quad (\text{B.1})$$

Wenn diese Beziehung von Spannung zu Phasenänderung für eine Wellenlänge gemessen wurde, kann sie als Eichkurve verwendet werden, um diese Abhängigkeit für jede beliebige Wellenlänge zu bestimmen. Für diese Umrechnung teilt man die Phasenverzögerung aus Gl. (B.1) für die gewünschte Wellenlänge  $\lambda$  durch den gleichen Ausdruck für die Wellenlänge der Eichkurve  $\lambda_m$ :

$$\Delta\Gamma(U, \lambda) = \Delta\Gamma(U, \lambda_m) \frac{\lambda_m}{\lambda} \frac{\Delta n(U, \lambda)}{\Delta n(U, \lambda_m)}. \quad (\text{B.2})$$

Da  $n_e$  und  $n_o$  nahezu die gleiche Wellenlängenabhängigkeit besitzen, kann man  $\Delta n$  wie folgt separieren:

$$\Delta n(U, \lambda) = \Delta n(\lambda) \cdot f(U) \quad (\text{B.3})$$

Durch diese Separation kann  $\Delta\Gamma$  für jede Wellenlänge berechnet werden, wenn der Verlauf von  $\Delta n(\lambda)$  über der Wellenlänge bekannt ist:

$$\Delta\Gamma(U, \lambda) = \Delta\Gamma(U, \lambda_m) \frac{\lambda_m}{\lambda} \frac{\Delta n(\lambda)}{\Delta n(\lambda_m)}. \quad (\text{B.4})$$

Die Wellenlängenabhängigkeit von  $\Delta n$  wurde aus der technischen Dokumentation des LC-Displays von der Firma Jenoptik entnommen [Jen03]. Der Verlauf ist in Abb. B.1 dargestellt und kann über folgende Fit-Funktion berechnet werden:

$$\Delta n^2 = \frac{A + B \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - C}, \quad (\text{B.5})$$

wobei  $A=0$ ;  $B=0,04008$ ;  $C=0,10722$  und die Wellenlänge  $\lambda$  in  $\mu\text{m}$  verwendet wurde.

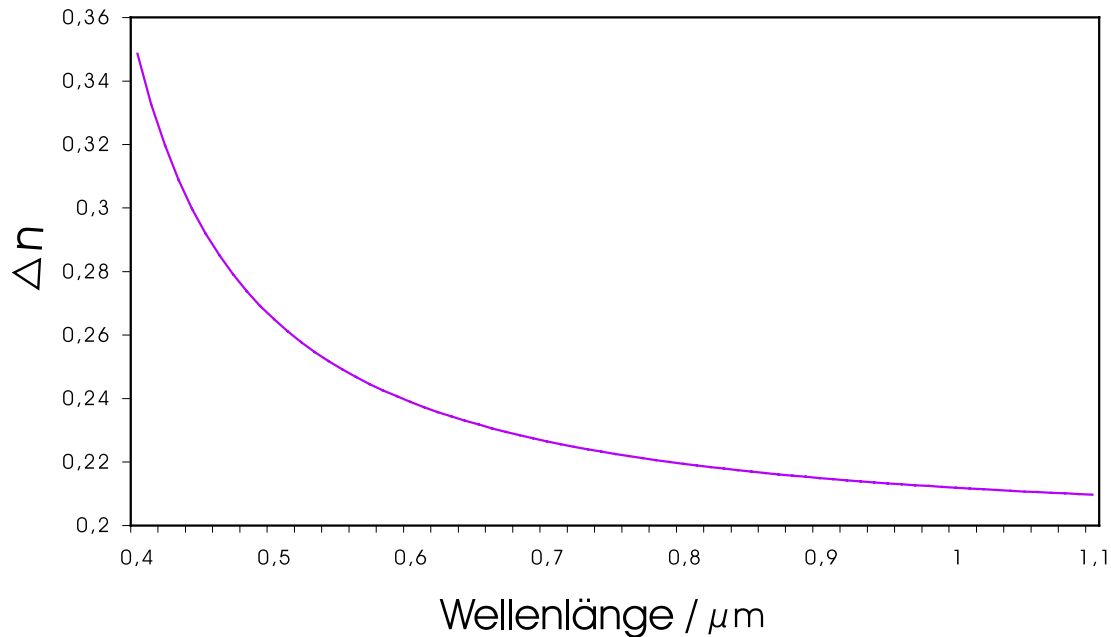


Abbildung B.1: Wellenlängenabhängigkeit der Differenz der Brechungsindizes  $\Delta n(\lambda) = n_e(\lambda) - n_o(\lambda)$  (aus [Jen03]).

Auf diese Weise wurde mit Hilfe der Kalibrierkurve und der beschriebenen Wellenlängenumrechnung ein eindeutiger Zusammenhang von der angelegten Spannung zu der induzierten Phasenänderung hergestellt.

Im Falle der direkten Phasenmanipulation ist es notwendig, aus Phasenwerten zugehörige Spannungen zu bestimmen. Dies ist über die Umkehrfunktion der Kalibrierkurve möglich. Dabei ist darauf zu achten, dass die gewünschte Phase vor der Wellenlängenumrechnung in einen Bereich von  $2\pi$  gefaltet wird, der in der Kalibrierkurve enthalten ist.

# Literaturverzeichnis

- [Ass98] A. Assion, T. Baumert, M. Berget, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber, *Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses*, Science **282**, 919–22 (1998). [2](#), [57](#)
- [Bar00] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I.P.Christov, M. Murnane, H. C. Kapteyn, *Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays*, Nature **406**, 164–66 (2000). [2](#)
- [Bra00] T. Brabec, F. Krausz, *Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics*, Rev. Mod. Phys. **72**, 545–91 (2000). [4](#)
- [Che99] Y. Chen, F. Kärtner, U. Morgner, S. Cho, H. Haus, E. Ippen, J. Fujimoto, *Dispersion-managed mode locking*, J. Opt. Soc. Am. **B 16**, 1999–2004 (1999). [16](#)
- [Cun02] S. Cundiff, *Phase stabilization of ultrashort optical pulses*, J. Phys. D: Appl. Phys. **35**, R43–59 (2002). [67](#)
- [DeL94] K. W. DeLong, R. Trebino, *Improved ultrashort pulse-retrieval algorithm for frequency-resolved-optical-gating*, J. Opt. Soc. Am. **A 11**, 2429–37 (1994). [22](#)
- [Dre99] W. Drexler, U. Morgner, F. Kärtner, C. Pitris, S. Boppard, X. Li, E. Ippen, J. Fujimoto, *In vivo ultrahigh-resolution optical coherence tomography*, Opt. Lett. **24**, 1221–3 (1999). [4](#)
- [Ef95] A. Efimov, C. Schaffer, D. Reitze, *Programmable shaping of ultrabroad-bandwidth pulses from a Ti:sapphire laser*, J. Opt. Soc. Am. **B 12**, 1968–80 (1995). [49](#)
- [Ell01] R. Ell, U. Morgner, F. Kärtner, J. Fujimoto, E. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, M. Lederer, A. Boiko, B. Luther-Davies, Ge-

- neration of 5 fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.* **26**, 373–5 (2001). 6, 8
- [Ell03] R. Ell, *Sub-two cycle Ti:sapphire laser and phase sensitive nonlinear optics*, Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (2003). 6
- [For84] R. L. Fork, O. E. Martinez, J. P. Gordon, *Negative dispersion using pairs of prisms*, *Opt. Lett.* **9**, 150–2 (1984). 13
- [Iac99] C. Iaconis, I. Walmsley, *Self-referencing Spectral Interferometry for Measuring Ultrashort Optical Pulses*, *IEEE Journ. of Quantum Electron.* **35**, 501–9 (1999). 22
- [Jen03] *SLM-S 640/12 Technische Dokumentation*, Jenoptik LOS (2003). 45, 46, 47, 48, 80
- [Kär97] F. Kärtner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Scheuer, M. Tilsch, T. Tschudi, *Design and fabrication of double-chirped mirrors*, *Opt. Lett.* **22**, 831–3 (1997). 15
- [Kel96a] U. Keller, *Ultrakurzzeit-Laserphysik*, Vorlesungsskript, ETH Zürich (1996). 60
- [Kel96b] U. Keller, K. Weingarten, F. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I. Jung, R. Fluck, C. Hönniger, N. Matuschek, J. a.d.Au, *Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM's) for Femtosecond to Nanosecond Pulse Generation in Solid-State Lasers*, *IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron.* **2**, 435 (1996). 5
- [Mit04] M. Mitzel, *Messverfahren zur Dispersionsmessung für Laserspiegel*, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (2004). 15
- [Mor01] U. Morgner, *Erzeugung kürzester Laserpulse im nahen Infraroten*, Habilitationsarbeit, Universität Karlsruhe (2001). 13, 14, 15, 16
- [Mor02] U. Morgner, *Nichtlineare Optik*, Vorlesungsskript, IHQ, Universität Karlsruhe (2002). 27
- [Mor03] U. Morgner, *Erzeugung und Propagation optischer Laserpulse—Optische Nachrichtentechnik IV*, Vorlesungsskript, IHQ, Universität Karlsruhe (2003). 12



- [Ose04] R. Osellame, N. Chiodo, G. Valle, S. Taccheo, R. Ramponi, G. Cerullo, A. Killi, D. K. U. Morgner, M. Lederer, *Optical waveguide writing with a diode-pumped femtosecond oscillator*, Opt. Lett. **29**, 1900–02 (2004). [4](#)
- [Pro92] B. Proctor, F. Wise, *Quarz prism sequence for reduction of cubic phase in a mode-locked Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser*, Opt. Lett. **17**, 1295–97 (1992). [14](#)
- [Spi97] C. Spielmann, L. Xu, F. Krausz, *Measurement of interferometric auto-correlations: comment*, Appl. Opt. **36**, 2523–5 (1997). [20](#)
- [Sto01] G. Stobrawa, M. Hacker, T. Feurer, D. Zeidler, M. Motzkus, F. Reichel, *A new high-resolution femtosecond pulse shaper*, Appl. Phys. **B 72**, 627–30 (2001). [66](#)
- [Wei00] A. Weiner, *Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators*, Rev. Sci. Instrum. **71**, 1930–60 (2000). [40](#)
- [Xu00] L. Xu, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita, *Programmable chirp compensation for 6-fs pulse generation with a prism-pair-formed pulse shaper*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **36**, 893–99 (2000). [39](#)



# Danksagung

Ich möchte allen Menschen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, ein Dankeschön aussprechen.

Ich möchte meinem Betreuer Uwe Morgner danken, der immer eine Antwort für meine Fragen parat hatte. Außerdem hat er mit seiner ruhigen, optimistischen Art für Aufmunterung im Labor gesorgt, wenn ein Teil des Experiments mal wieder mehr Zeit als geplant in Anspruch nahm.

Dann danke ich "meinem" Doktoranden Thomas Binhammer, der mir beigebracht hat, wie man so einen störrischen Laser zähmt, und der sich als direkter Betreuer für mich und mein Projekt verantwortlich gefühlt hat.

Ich danke allen Kollegen des Femtolabs (Jochen Dörring, Hartmut Gimpel, Simone Draxler, Sebastian Dewald, Alexander Killi) für die tolle Arbeitsatmosphäre und für viele leckere Kochtage.

Außerdem bedanke ich mich beim Cusanuswerk, das mir mit seiner finanziellen und idealen Förderung viele bereichernde Erfahrungen während meines Studiums ermöglicht hat.

Ich danke ganz herzlich meiner Familie und meinen Freunden. Besonders bedanke ich mich bei meinen Eltern, die mir zwar fachlich nicht helfen können, die aber trotzdem immer wissen, wie sie mir am besten unter die Arme greifen.

Erklärung:

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 8.9.2004