

Kapitel 4

Formung von Femtosekundenpulsen

Dieses Kapitel stellt die Formung von Femtosekundenpulsen vor, die das zentrale Element der in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Steuerungsexperimente darstellt. Zunächst wird eine theoretische Beschreibung geformter fs-Pulse gegeben, an die sich eine Darstellung der verwendeten experimentellen Pulsformung mittels Flüssigkristall-Modulatoren anschließt. Es folgen die Verfahren zur Vermessung und Charakterisierung der Pulsformen, die für die Interpretation der Ergebnisse besonders wichtig sind. Zum Abschluss werden ausgewählte Pulsformen vorgestellt.

4.1 Beschreibung geformter fs-Pulse

Die Formung des zeitlichen Intensitäts- und Phasenverlaufs der fs-Pulse wird durch die Modulation des Laserfeldes im Frequenzraum erreicht. Um die Pulsformung beschreiben zu können, werden die elektrischen Felder der Pulse als komplexe Größen ausgedrückt und durch ihre Amplitude und Phase charakterisiert. Die Darstellung erfolgt je nach Problemstellung im Zeit- oder Frequenzraum, deren Verknüpfung durch die Fouriertransformation erreicht wird. Die folgende Begriffseinführung findet unter besonderer Berücksichtigung der physikalischen Bedeutung der spektralen und zeitlichen Phase des elektrischen Feldes statt.

Eine direkte Beeinflussung der zeitlichen Phase ist nur sehr eingeschränkt möglich. Wird beim Durchgang eines fs-Pulses durch transparente Materie der Brechungsindex zeitabhängig, so wird die zeitliche Phase moduliert [102, 106]. Dies führt zu einer Veränderung des Spektrums, ohne die zeitliche Form des Pulses zu verändern. Umgekehrt führt eine Modulation der spektralen Phase, die z.B. ein durch Materie laufender Puls moderater Leistung aufgrund der Dispersion erfährt, zu einer Veränderung der Pulsform, ohne dass das Spektrum verändert wird. Sollen sowohl die zeitliche Form als auch die zeitliche Phase des Pulses unabhängig voneinander moduliert werden, kann dies über eine entsprechende Manipulation von Phase und Amplitude im Frequenzraum und anschließender Transformation in den Zeitraum erreicht werden.

Mit Hilfe der komplexen Fouriertransformation (\mathcal{F}) läßt sich das reelle elektrische Feld $E(t)$ in die komplexe spektrale Feldstärke $\tilde{E}(\omega)$ überführen:

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t)e^{-i\omega t} dt \quad (4.1)$$

Da das elektrische Feld $E(t)$ eine reelle Größe ist, gilt $\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}(-\omega)^*$ [107]. Mittels der

inversen Fouriertransformation (\mathcal{F}^{-1}) erhält man aus $\tilde{E}(\omega)$ das elektrische Feld im Zeitraum:

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (4.2)$$

Aus praktischen Erwägungen ist allerdings eine Darstellung zu vermeiden, in der nichtverschwindende Werte für negative Frequenzen erscheinen. So werden die folgenden komplexen Felder eingeführt [102]:

$$E^+(t) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (4.3)$$

$$\tilde{E}^+(\omega) = \begin{cases} \tilde{E}(\omega) & \text{für } \omega \geq 0 \\ 0 & \text{für } \omega < 0 \end{cases} \quad (4.4)$$

$E^+(t)$ und $\tilde{E}^+(\omega)$ sind gemäß (4.1) und (4.2) miteinander verknüpft. Mit den entsprechenden Größen $E^-(t)$ und $\tilde{E}^-(\omega)$ der negativen Frequenzen lassen sich das reelle elektrische Feld $E(t) = E^+(t) + E^-(t)$ und die komplexe Fouriertransformierte $\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}^+(\omega) + \tilde{E}^-(\omega)$ zurückgewinnen.

4.1.1 Phasenmodulation im Zeitraum

Das in Gleichung (4.3) definierte zeitabhängige komplexe elektrische Feld $E^+(t)$ kann gemäß

$$E^+(t) = F(t) \cdot e^{i\Gamma(t)} \quad (4.5)$$

in die Einhüllende $F(t)$ und den Phasenfaktor $\Gamma(t)$ zerlegt werden. Da die spektrale Amplitude der fs-Pulse ausserhalb der Halbwertsbreite $\Delta\omega$ um die Zentralfrequenz ω_0 gegen Null läuft, wobei $\Delta\omega \ll \omega_0$ ist, kann $\Gamma(t)$ wiederum in die Trägerfrequenz ω_0 und die Phase $\varphi(t)$ zerlegt werden:

$$E^+(t) = F(t) \cdot e^{i\omega_0 t} e^{-i\varphi(t)} \quad (4.6)$$

Die zeitliche Ableitung des Phasenfaktors $\Gamma(t)$ ergibt dann eine zeitabhängige Frequenz:

$$\frac{d}{dt}\Gamma(t) = \omega(t) = \omega_0 - \frac{d}{dt}\varphi(t) \quad (4.7)$$

Ist $\varphi(t) = a_1 \cdot t$ lediglich linear abhängig von t , so ergibt sich mit $\frac{d\varphi(t)}{dt} := a_1 = \text{const.}$ eine Verschiebung der Trägerfrequenz ω_0 zu $\omega'_0 = \omega_0 - a_1$. Für $\frac{d\varphi(t)}{dt} = f(t)$ wird sich die Frequenz innerhalb der Pulsdauer mit der Zeit ändern, d.h. der Puls ist *gechirpt* (*to chirp*=zwitschern)¹. Für eine genauere Analyse wird die sogenannte Chirpentwicklung der Phase im Zeitraum betrachtet, bei der die Phase $\varphi(t)$ um eine Zeit t_0 entwickelt wird:

$$\varphi(t) = a_0 + a_1(t - t_0) + \frac{1}{2} a_2 (t - t_0)^2 + \dots \quad (4.8)$$

Die Größe $a_0 = \varphi(t_0)$ ist die konstante Phase des elektrischen Feldes, die die genaue Position der Oszillation relativ zur Einhüllenden bestimmt. Die Verschiebung der Trägerfrequenz ω_0 wird durch den Term $a_1 = \left. \frac{d\varphi(t)}{dt} \right|_{t_0}$ beschrieben. Der sogenannte lineare Chirp

¹Der Begriff "Chirp" wird in Analogie zur Musik verwendet. Die zeitlich veränderlichen Frequenzkomponenten entsprechen den Noten einer Melodie, die nacheinander abgespielt werden.

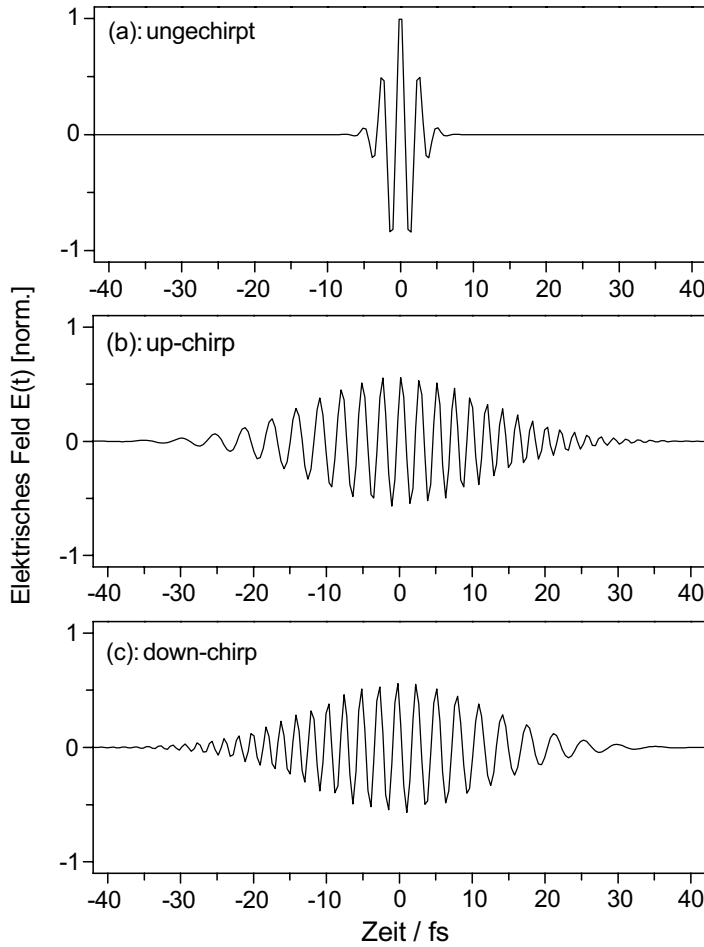


Abbildung 4.1: Vergleich eines ungechirpten Pulses mit einem positiv und einem negativ gechirpten Puls. Aufgetragen sind die elektrischen Felder. (a): transformlimitierter Puls mit einer Länge von $\Delta t = 3,5$ fs. Der Puls besteht aus wenigen Oszillationen des elektrischen Feldes und besitzt eine spektrale Breite von $\Delta\lambda = 250$ nm bei $\lambda_0 = 770$ nm. (b): Positiv gechirpter Puls (up-chirp). Die Frequenz des elektrischen Feldes steigt linear mit der Zeit an. (c): Negativ gechirpter Puls (down-chirp). Der Parameter des linearen Zeitraum-Chirps der Pulse beträgt $a_2 = \pm 0.039$ fs $^{-2}$. Die zeitliche Breite der gechirpten Pulse beträgt $\Delta t = 20,2$ fs. Der lineare Chirp wurde mit einer spektralen Phasenmodulation von $b_2 = 25$ fs 2 erzeugt (siehe Abschnitt 4.1.2).

$a_2 = \frac{d^2\varphi(t)}{dt^2}|_{t_0}$ gibt die lineare Änderung der momentanen Frequenz $\omega(t) = \omega_0 - a_2(t - t_0)$ des elektrischen Feldes an. Steigt die momentane Frequenz eines Laserpulses mit der Zeit an, so spricht man von einem *up-chirp* oder positiven Chirp. Der andere Fall, wenn also die momentane Frequenz mit der Zeit abnimmt, wird als *down-chirp* oder negativer Chirp bezeichnet. Die Größen $a_3 = \frac{d^3\varphi(t)}{dt^3}|_{t_0}$ und höhere Terme geben die quadratischen und höheren Ordnungen der zeitlichen Frequenzänderung an. Ein Chirp (n-1)-ter Ordnung wird üblicherweise in der Einheit fs $^{-n}$ angegeben. Für einen ungechirpten Puls verschwinden alle Terme der Chirpentwicklung ab dem quadratischen Glied, d.h. die zeitliche Phase $\varphi(t)$ hängt nur linear von der Zeit ab: $\varphi(t) = a_0 + a_1 t$.

Die Phasenmodulation ungechirpter fs-Pulse, die zu einer Veränderung des Spektrums führt, bezeichnet man als die nichtlineare Antwort² eines modulierenden Systems. Der Phasenterm der Modulation $\psi(t)$ kann durch einen zeitlich veränderlichen Brechungsindex $n(t)$ beschrieben werden [102]:

$$\psi(t) = -\frac{2\pi}{\lambda_0} n(t) d \quad (4.9)$$

Dabei ist λ_0 die Zentralwellenlänge des Pulses und d die Länge des optischen Mediums.

²In der Optik bedeutet *nichtlinear* die Berücksichtigung intensitätsabhängiger Effekte (Intensität $I \propto E^2$)

Ein bekanntes Beispiel der nichtlinearen Phasenmodulation ist die Selbstphasen-Modulation (SPM). Hier erzeugt die Intensitätsänderung der Einhüllenden des Pulses selbst die Zeitabhängigkeit des Brechungsindex $n(t)$.

4.1.2 Phasenmodulation im Frequenzraum

Im Gegensatz zur nichtlinearen Phasenmodulation kann die lineare Phasenmodulation, die das Spektrum unverändert läßt, durch den zeitunabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ des optischen Mediums beschrieben werden. Durchläuft der Puls ein optisches Mediums der Dicke d , so erhält man einen zusätzlichen Phasenterm [108]

$$\psi(\omega) = \frac{2\pi}{\lambda_0} n(\omega) d = \frac{\omega}{c} n(\omega) d, \quad (4.10)$$

der eine Modulation des elektrischen Feldes $E^+(\omega)$ bewirkt. Die Beschreibung der linearen Phasenmodulation kann somit im Frequenzraum gegeben werden. Der häufigste Fall spektraler Phasenmodulation ist Materialdispersion, die ein fs-Puls beim Durchgang durch ein transparentes Medium (z.B. Glas) erfährt und die zu frequenzabhängigen optischen Weglängen $P_{OL}(\omega)$ führt. Man spricht an dieser Stelle auch von Gruppengeschwindigkeits-Dispersion (GVD=*Group Velocity Dispersion*)³. Auch der in dieser Arbeit verwendete Pulsformer erzeugt eine Phasenmodulation gemäß Gleichung 4.10.

Im folgenden sollen die Eigenschaften der modulierten spektralen Phase betrachtet werden: Wie im Zeitraum kann auch im Frequenzraum der einlaufende Laserpuls in seine Einhüllende $G(\omega)$ und seine Phase $\varphi(\omega)$ zerlegt werden:

$$\tilde{E}_{in}^+(\omega) = G(\omega) \cdot e^{-i\varphi(\omega)} \quad (4.11)$$

Die Einhüllende ergibt sich dabei durch $G(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\epsilon_0}} \sqrt{I(\omega)}$ aus dem experimentell gemessenen Frequenzspektrum $I(\omega)$.

Der einlaufende Laserpuls sei ungechirped, d.h. $\varphi(\omega) = \varphi_0 + \omega_0 t$. Das modulierende optische Element wird durch die komplexe Funktion $H(\omega) = R(\omega)e^{-i\psi}$ beschrieben. Damit erhalten wir ein auslaufendes Laserfeld gemäß

$$\tilde{E}_{out}^+(\omega) = H(\omega) \cdot \tilde{E}_{in}^+(\omega) \quad (4.12)$$

$$= R(\omega) e^{-i\psi(\omega)} \cdot \tilde{E}_{in}^+(\omega) \quad (4.13)$$

$R(\omega)$ beschreibt einen spektralen Amplitudenfilter, der an dieser Stelle als konstant angesehen wird, d.h. $R(\omega) = R_0 = const$. Der modulierende Phasenfaktor $\psi(\omega)$ kann als Phasenverzögerung verstanden werden, die die jeweilige Frequenzkomponente erfährt. Nun führt man wie im Zeitraum eine Taylorentwicklung von $\psi(\omega)$ um die Zentralfrequenz ω_0 durch:

$$\psi(\omega) = b_0 + b_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} b_2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} b_3(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (4.14)$$

Die Taylorkoeffizienten $b_n = \frac{d^n \psi}{d\omega^n} |_{\omega_0}$ für $n \geq 2$ sind die Chirp-Parameter im Frequenzraum. Die Bedeutung der ersten beiden Taylorkoeffizienten b_0 und $b_1 = \frac{d\psi}{d\omega} |_{\omega_0}$ kann abgelesen werden, wenn man $\psi(\omega)$ in (4.12) einsetzt und eine Fouriertransformation durchführt:

³Zur Definition der GVD siehe zum Beispiel [102].

$$E_{out}^+(t) = \frac{1}{2\pi} R_0 e^{-ib_0} e^{i\omega_0 t} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}_{in}^+(\omega) e^{-i \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!} b_n (\omega - \omega_0)^n} e^{i(\omega - \omega_0)(t - b_1)} d\omega \quad (4.15)$$

Der Term e^{-ib_0} des nullten Taylorgliedes ist eine konstante Phasenverschiebung und legt die Position der Lichtschwingung relativ zu ihrer Einhüllenden fest. Damit bestimmt b_0 die relative zeitliche Phase des Pulses. Der lineare Koeffizient $b_1 = \left. \frac{d\psi}{d\omega} \right|_{\omega_0}$ führt lediglich zu einer Zeitverschiebung des Gesamtpulses und stellt die Gruppenverzögerung dar. Mit b_1 kann somit die Position des Pulses variiert werden.

Die Koeffizienten $b_{n,n \geq 2}$ höherer Taylorordnungen führen zu Änderungen der Pulseinhüllenden und zu Chirp. Durch $b_2 = \left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0}$ wird der **lineare Frequenzraum-Chirp** bestimmt. Allgemein wird $b_n = \left. \frac{d^n\psi}{d\omega^n} \right|_{\omega_0}$ als Frequenzraum-Chirp (n-1)-ter Ordnung bezeichnet.

Mit einem gaußförmigen Pulsverlauf kann leicht die zeitliche Auswirkung eines linearen Frequenzraum-Chirps mit $b_2 = \left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} \neq 0$ gezeigt werden. **Gaußpulse** sind theoretisch einfach zu beschreiben und entsprechen in vielen Fällen den gemessenen Pulsverläufen:

$$E^+(t) = \frac{E_0}{2} e^{-2\ln 2 \frac{t^2}{\Delta t^2}} \cdot e^{i\omega t} \quad (4.16)$$

$$\tilde{E}^+(\omega) = \frac{E_0 \Delta t}{4\sqrt{\ln 2}} \cdot e^{-\frac{\Delta t^2}{8\ln 2} (\omega - \omega_0)^2} \quad (4.17)$$

Der Gaußpuls besitzt eine Dauer Δt , die der Halbwertsbreite der Einhüllenden der Intensität $I(t) = \epsilon_0 E(t)^2$ entspricht. Die Zentralfrequenz des elektrischen Feldes ist durch ω_0 gegeben.

Ein Gaußpuls mit linearem Frequenzraumchirp $\left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} =: \psi''$ führt auch im Zeitraum zu einem linearen Chirp. Diese Analogie gilt allerdings nicht für Chirps beliebiger Ordnung. Die komplexen Felder des linear gechirpten Gaußpulses ergeben sich zu [109]

$$E^+(t) = \frac{E_0}{2\gamma^{\frac{1}{4}}} e^{-\frac{t^2}{4\beta\gamma}} e^{i(\delta t^2 - \epsilon)} e^{i\omega_0 t} \quad (4.18)$$

$$\tilde{E}^+(\omega) = \frac{E_0 \Delta t}{4\sqrt{\ln 2}} e^{-\frac{\Delta t^2}{8\ln 2} (\omega - \omega_0)^2} e^{-\frac{1}{2}i(\omega - \omega_0)^2 \psi''} \quad (4.19)$$

Dabei gelten die Abkürzungen $\beta = \frac{\Delta t^2}{8\ln 2}$, $\gamma = 1 + \frac{\psi''^2}{4\beta^2}$, $\delta = \frac{\psi''}{8\beta^2\gamma}$ und $\epsilon = \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{\psi''}{2\beta}\right)$. Die quadratische spektrale Phasenfunktion des linearen Frequenzraum-Chirps führt also zu einer quadratischen zeitlichen Phasenfunktion des linearen Zeitraum-Chirps, der durch δ bestimmt ist. Der Chirp ψ'' führt ebenfalls zu einer Verbreiterung des Pulses, dessen Dauer durch $\sqrt{\gamma}\Delta t$ gegeben ist.

Abbildung 4.2 verdeutlicht anhand von Simulationen gechirpter Gaußpulse den Zusammenhang zwischen Frequenzraum- und Zeitraum-Chirps bis zu Phasenmodulationen vierter Ordnung. Gezeigt sind Amplitude (Einhüllende) und Phase des spektralen Feldes (links) und die zugehörigen zeitlichen Felder (rechts) für spektral phasenmodulierte Pulse. Eine lineare spektrale Phasenmodulation (a und a') verursacht, wie oben gezeigt, eine zeitliche Verschiebung des Pulses, ohne die Pulsbreite und zeitliche Phase zu verändern. Die quadratische Phasenmodulation (linearer Frequenzraum-Chirp) in Abbildung 4.2 (b) und (b') führt zu einer quadratischen zeitlichen Phasenfunktion (b') und damit zu einem linearen Zeitraum-Chirp.

Material	λ_0	$n(\omega_0)$	$n'(\omega_0)$ / 10^{-2} fs	$n''(\omega_0)$ / 10^{-3} fs ²	$n'''(\omega_0)$ / 10^{-4} fs ³	$\psi''(\omega_0)$ / fs ² mm ⁻¹	$\psi'''(\omega_0)$ / fs ³ mm ⁻¹
BK7	400	1.5307	1.3	3.0	6.9	133.8	40.8
	800	1.5106	0.67	0.06	39	45.14	31
Quarzglas	400	1.4701	0.93	2.3	6	98	32.4
	800	1.4533	0.58	-0.4	41	35.5	28
SF 14	400	1.8185	5.3	27	187	777	533.7
	800	1.7430	1.8	7	54	161	112

Tabelle 4.1: Dispersionparameter und Frequenzraum-Chirps für drei Gläser mit unterschiedlichen Brechungsindizes. Die Werte sind für zwei verschiedenen Wellenlängen aufgetragen (aus [102]).

Ebenso nimmt die Pulsbreite zu, womit eine Reduktion der Maximalamplitude verbunden ist. Im Gegensatz zur quadratischen führt die kubische spektrale Phasenmodulation (Abbildung 4.2 c) nicht zu einer zeitlichen Phasenfunktion dritter Ordnung (c') und damit auch nicht zu einem quadratischen Zeitraum-Chirp. Die Amplitude ist durch einen einseitigen Pulszug bestimmt. Spektrale Phasenmodulationen vierter Ordnung (Abbildung 4.2 d) behalten die Ordnung im Zeitraum bei (d'). Allgemein führen nur spektrale Phasenmodulationen gerader Ordnungen zu entsprechenden Ordnungen der zeitlichen Phasenfunktionen. Damit führen lediglich die Frequenzraum-Chirps ungerader Ordnung zu entsprechenden Zeitraum-Chirps. In Kapitel 4.4 werden ausgewählte Modulationsfunktionen anhand der geformten Femtosekundenpulse diskutiert.

Aus Gleichung 4.10 lassen sich der lineare und quadratische Frequenzraum-Chirp eines durch ein dispersives Medium mit Brechungsindex $n(\omega)$ laufenden Pulses bestimmen: Der lineare Chirp ergibt sich zu

$$\left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} = \frac{d}{c} \left(2 \frac{dn}{d\omega} + \omega \frac{d^2n}{d\omega^2} \right) \Big|_{\omega_0}, \quad (4.20)$$

während man für den quadratischen Chirp

$$\left. \frac{d^3\psi}{d\omega^3} \right|_{\omega_0} = \frac{d}{c} \left(3 \frac{d^2n}{d\omega^2} + \omega \frac{d^3n}{d\omega^3} \right) \Big|_{\omega_0} \quad (4.21)$$

findet. Mit den in Tabelle 4.1 angegebenen $\frac{d^i n}{d\omega^i}$ [102] kann der lineare und quadratische Chirp für die unterschiedlich dispersiven BK7-, Quarz- und SF14-Gläser bestimmt werden. Dabei wird die Wellenlängenabhängigkeit durch den Vergleich zwischen der TiSa-Fundamentalen $\lambda_0 = 800$ nm und der zweiten Harmonischen $\lambda_0 = 400$ nm angegeben.

Ein Vergleich zwischen BK7 und SF 14 zeigt: Während das Standardglas BK7 bei 800 nm einen linearen Chirp von $\left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} = 45 \frac{fs^2}{mm}$ verursacht, ergibt sich beim hochdispersiven SF 14 ein Wert von $161 \frac{fs^2}{mm}$ für den linearen Chirp. Im UV bei 400 nm wächst der lineare Chirp des SF14 auf $777 \frac{fs^2}{mm}$. Für den quadratischen Chirp finden sich die Werte $31 \frac{fs^3}{mm}$ für BK7 und $112 \frac{fs^3}{mm}$ für SF14.

Vergleicht man die entsprechenden Größen für linearen und quadratischen Chirp, so können Aussagen über die Bedeutung der verschiedenen Chirp-Anteile bei der Dispersion gemacht

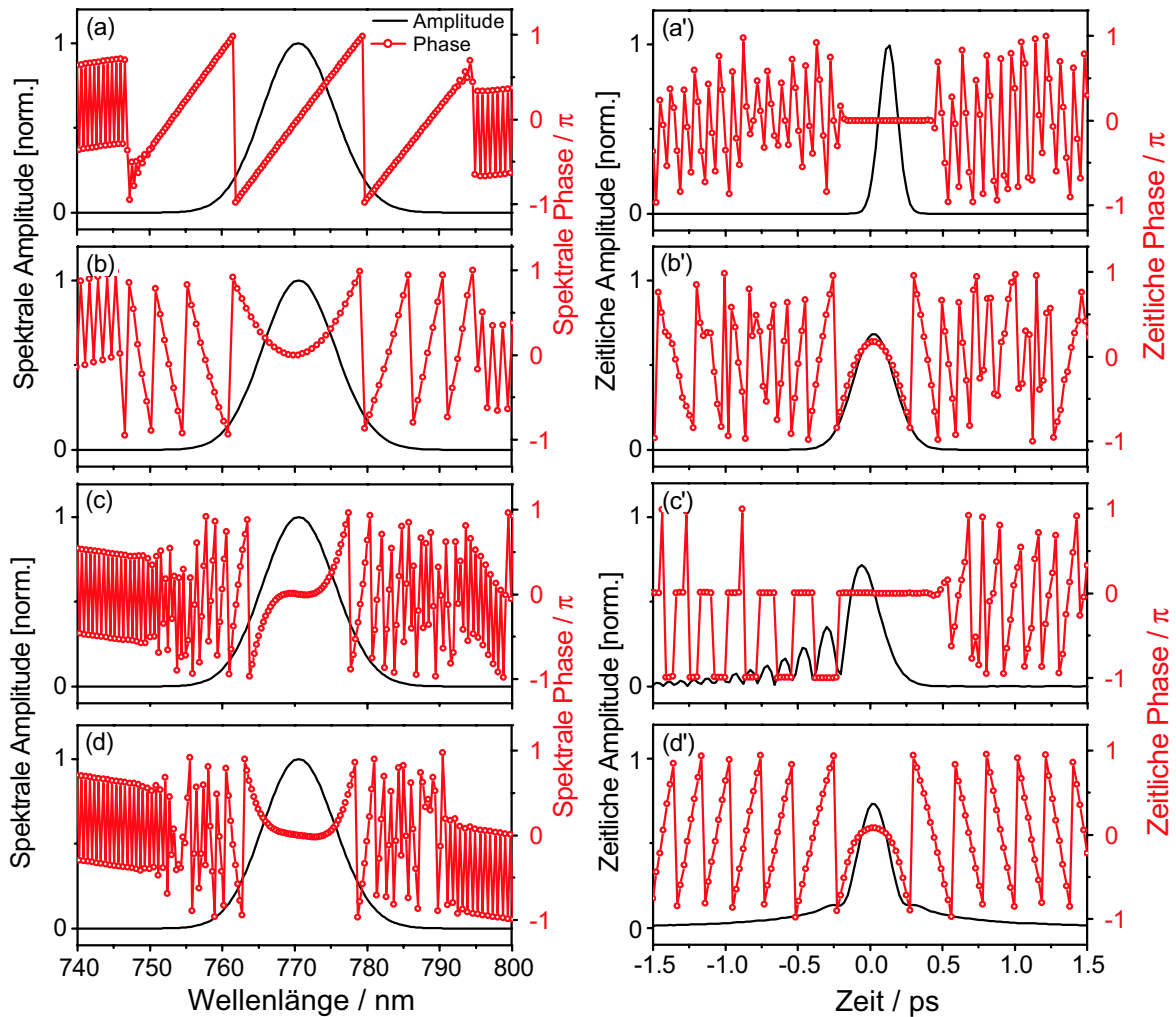


Abbildung 4.2: Amplitude (durchgezogen) und Phase (Kreise) des spektralen (links) und zeitlichen (rechts) elektrischen Feldes für spektrale Phasenmodulationen unterschiedlicher Ordnungen. Die Amplituden sind normiert, die Phasen jeweils bei π bzw. $-\pi$ umgeklappt (phase wrapping). (a): Lineare spektrale Phasenmodulation mit $b_1 = 200$ fs. (a'): Die zeitliche Amplitude wird lediglich verschoben. (b): Quadratische Phasenmodulation mit $b_2 = 8000$ fs². (b'): Das resultierende zeitliche Feld zeigt ebenfalls einen quadratischen Phasenverlauf. Die Einhüllende wird verbreitert. (c): Kubische Phasenmodulation mit $b_3 = 2 \cdot 10^6$ fs³. (c'): Die zeitliche Amplitude zeigt einen einseitigen, nach außen abnehmenden Pulszug. Der Phasenverlauf ist unsymmetrisch. (d): Die Phasenmodulation vierter Ordnung mit $b_4 = 2 \cdot 10^8$ fs⁴ führt wieder zu einem zeitlichen Phasenverlauf vierter Ordnung (d'). Die numerische Simulation wurde mit Gaußpulsen durchgeführt.

werden: Für Pulse einer Länge von 80 fs ($\Delta\lambda \approx 8$ nm) ist hauptsächlich der lineare Chirp bedeutsam, während bei sehr kurzen Pulsen aufgrund der großen spektralen Breite auch der Anteil des quadratischen Chirps berücksichtigt werden muss. Ein transform-limitierter gaußförmiger 80-fs Puls hat bei $\lambda_0 = 800$ nm eine halbe spektrale Halbwertsbreite von $\Delta\omega = 1.7319 \cdot 10^{13}$ Hz. Im Falle des SF14 ändert sich durch den linearen Chirp in diesem Intervall die Phase $\psi(\omega)$ um $\Delta\psi = 0.048 \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$. Die Änderung durch den quadratischen Chirp beträgt allerdings nur $\Delta\psi = 0.00058 \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$. Im Falle eines kürzeren Pulses mit $\Delta t = 20$ fs erhalten wir unter gleichen Bedingungen $\Delta\psi = 0.773 \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$ für den linearen Chirp, und $\Delta\psi = 0.037 \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$ für den quadratischen Chirp. Hier ist der Beitrag des quadratischen Chirps nicht mehr vernachlässigbar. Bei $\Delta t = 10$ fs wird der quadratische Chirp mit $\Delta\psi = 0.3 \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$ dann wesentlich (linearer Chirp: $\Delta\psi = 3.1 \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$). Bei der Rekompensation ultrakurzer Pulse muss daher der quadratische Chirp berücksichtigt werden [110].

4.1.3 Gitter-Kompressor

Die Materialdispersion führt im sichtbaren Spektralbereich zu einem positiven Chirp. In vielen Fällen ist es wünschenswert, diese Phasenmodulation wieder auszugleichen und damit den Puls zu reprimieren. Es wird also eine Methode benötigt, negativen Chirp in einem Puls zu erzeugen. Dazu werden Aufbauten mit dispersiven Elementen wie Gittern und Prismen verwendet. Die Winkeldispersion eines Gitters kann dazu verwendet werden, die einzelnen Spektralkomponenten des Pulses unterschiedlich lange Wege $P_{OL}(\omega)$ zurücklegen zu lassen. Mit einer geeigneten Anordnung mehrerer Beugungsgitter kann somit ein linearer negativer Chirp eingeführt werden [111]. Abbildung 4.3 (a) zeigt einen solchen Aufbau, den man Gitter-Kompressor nennt. Der fs-Puls wird am ersten Gitter spektral zerlegt. Das zweite Gitter ist so positioniert, dass die einzelnen Frequenzkomponenten unterschiedlich lange geometrische Wege durchlaufen. Am zweiten Gitter werden die Frequenzkomponenten parallelisiert und durch die symmetrische Anordnung von Gitter 3 und 4 wieder zusammengeführt. Häufig wird in die Symmetrieebene ein Spiegel gestellt und damit auf die beiden hinteren Gitter verzichtet. Die unterschiedlichen geometrischen Wege $P_{OL}(\omega)$ der Frequenzkomponenten führen zu einem zusätzlichen Phasenterm $\psi(\omega) = \frac{\omega}{c} P_{OL}(\omega)$ (siehe Abschnitt 4.1.2). Daraus ergibt sich der lineare Chirp $\frac{d^2\psi}{d\omega^2}|_{\omega_0}$ zu [102]

$$\frac{d^2\psi}{d\omega^2}\Big|_{\omega_0} = -\frac{4\pi^2 c}{\omega_0^3 d^2 \cos^2(\theta_{out}(\omega_0))} \cdot l. \quad (4.22)$$

Mit d wird die Gitterkonstante und mit $\theta_{out}(\omega_0)$ der Beugungswinkel des Gitters für die Zentralwellenlänge bezeichnet. Die Größe l ist der Abstand der beiden ersten Gitter entlang des Strahlengangs der Zentralwellenlänge. Über die Variation von l kann somit der lineare Chirp kontinuierlich verschoben werden. Es ist zu beachten, daß wegen der Winkeldispersion der Gitter lediglich negativer Chirp erzeugt werden kann. Für ein Gitter mit 1200 Furchen pro mm findet man zum Beispiel bei 620 nm einen linearen Chirp von $-1410 \frac{\text{fs}^2}{\text{mm}}$ in Littrow-Anordnung ($\theta_{in}(\omega_0) = \theta_{out}(\omega_0)$).

Alternativ kann zur Pulskompression ein Prismenkompressor verwendet werden. Entsprechend dem Gitterkompressor wird die Winkeldispersion der Prismen ausgenutzt, um die optischen Wege der Spektralkomponenten $P_{OL}(\omega)$ gegeneinander zu verschieben. Die Materialdispersion des Prismas führt allerdings zu einem zusätzlichen Chirp, dessen Vorzeichen dem der

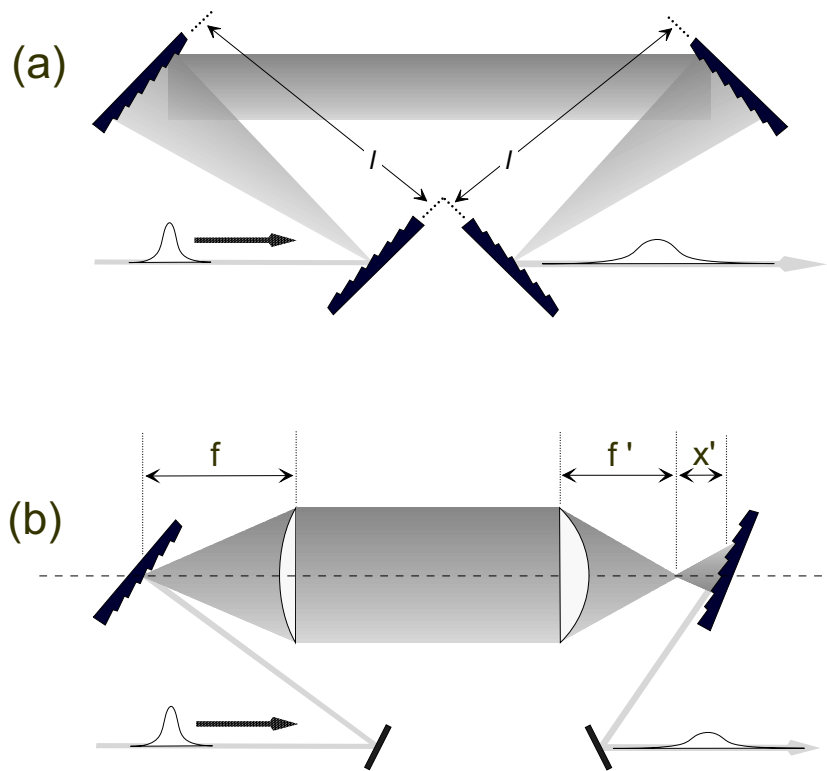


Abbildung 4.3: a: Schematische Darstellung eines Gitterkompressors. Die Winkeldispersion der Gitter führt zu unterschiedlichen optischen Weglängen für die einzelnen Frequenzkomponenten. Der resultierende negative lineare Chirp kann kontinuierlich über den Abstand l variiert werden. b: Schematische Darstellung eines kombinierten Gitter- und Linsenkompressors. Die Einführung des Teleskops in einen Gitterkompressor läßt die Erzeugung von positivem und negativem Chirp zu. Ebenso erhöht sich die Größe des erreichbaren Chirps.

Winkeldispersion entgegensteht [102]. Damit kann sowohl positiver als auch negativer linearer Chirp erzeugt werden. Die erreichten Werte des eingeführten Chirps sind allerdings wesentlich geringer als beim Gitterkompressor [102].

4.1.4 Kombiniertes Gitter- und Linsen-Kompressor

Sowohl positiver als auch negativer Chirp lassen sich durch die Kombination aus Gitterkompressor und Teleskop erreichen [112]. Die Anordnung gewährt zusätzlich die Erzeugung extrem großer Chirpwerte. Der Aufbau besteht aus zwei optischen Gittern, die ein Teleskop aus 2 Sammellinsen einschließen, dessen Objektpunkt im ersten Gitter liegt (siehe Abbildung 4.3 b).

Der einlaufende Laserpuls wird am ersten Gitter spektral zerlegt. Das vom Gitter divergent auseinanderlaufende Spektrum wird von der ersten Linse parallelisiert und von der zweiten Linse auf das zweite Gitter fokussiert, das die Rücktransformation in die Zeitdomäne leistet. Stehen alle optischen Komponenten in einem Abstand von f (Brennweite der Linsen) zueinander, verläßt idealerweise der Puls den Aufbau unverändert, d.h es findet keine Phasenmodulation statt. In dieser Einstellung wird der Aufbau Null-Dispersions-Kompressor genannt (siehe auch Abbildung 4.4).

Wie Martinez gezeigt hat, kann durch Verschieben der Gitter aus den Brennpunkten der Linsen sowohl positiver als auch negativer Chirp erzielt werden [112]. Um das zu sehen, verschieben wir das zweite Gitter um x' . Damit wird die Winkeldispersion des ersten Gitters in eine frequenzabhängige Verschiebung der optischen Weglänge P_{OL} übertragen. Ist x' positiv, so erhält man wie im Falle des reinen Gitter-Kompressors einen negativen Chirp. Wird allerdings das Gitter um $-x'$ verschoben, so dreht sich wegen des Kreuzungspunktes in F' das Vorzeichen des Chirps um. Wirkt das Teleskop vergrößernd, d.h. ist $M = f/f' > 1$, so führt

dies zu einer Vergrößerung der Winkeldispersion um $M \frac{d\alpha}{d\lambda}$.

Der resultierende Chirp ergibt sich zu [102]

$$\left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} = -\frac{\omega_l}{c} \left(\left. \frac{d\alpha}{d\omega} \right|_{\omega_l} \right)^2 x' M^2 \quad (4.23)$$

Im allgemeinen Fall kann auch das erste Gitter um x verschoben werden. Man erhält dann

$$\left. \frac{d^2\psi}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} = -\frac{\omega_l}{c} \left(\left. \frac{d\alpha}{d\omega} \right|_{\omega_l} \right)^2 x' M^2 + x \quad (4.24)$$

Hieraus folgt für $(x' M^2 + x) < 0$ ein positiver Chirp. Die größten Werte des positiven Chirps werden somit für $x' = -f'$ und $x = -f$ erreicht. Um einen parallelen Ausgangsstrahl zu erzielen, muß der Winkel des zweiten Gitters entsprechend nachgeführt werden. Für $x' \neq 0$, d.h. bei Erzeugung von linearem Chirp, wird der Ausgangsstrahl einen zusätzlichen *räumlichen Chirp* aufweisen. Dies kann wie im Falle des Gitterkompressors durch einen Spiegel und antiparalleles Zurücklaufen des Strahls ausgeglichen werden. Kombinationen aus fokussierenden und winkeldispersiven Elementen zur Erzeugung von gechirpten Pulsen kommen heute vielseitig zum Einsatz. Ein bekanntes Beispiel ist die Streckung des Eingangspulses im sog. *Strecker* eines optischen Pulsverstärkersystems (*chirped amplifier*). Hier werden kurze Eingangspulse von Pulslängen unter 100 fs auf über 20 ps gestreckt. In der vorliegenden Arbeit bildet der Aufbau mit $x' = 0$ als Null-Dispersions-Kompressor die Basis für die Pulsformung.

4.2 Der Pulsformer

Die gezielte Formung von fs-Pulsen wird in dieser Arbeit über die Modulation des spektralen elektrischen Feldes $\tilde{E}(\omega)$ mit einem programmierbaren Flüssigkristallfilter vorgenommen, der sowohl die Phase als auch die Amplitude modulieren kann. Die ersten Pulsformungen mit spektralen Filtern wurden durch Froehly et al. an ps-Pulsen vorgenommen [113]. J. Heritage, A. Weiner und Mitarbeiter [114, 115] erweiterten die Methode auf fs-Pulse und entwickelten sie entscheidend weiter. Als spektrale Filter dienten zunächst mikrolithographisch bearbeitete Quarzglasmasken. Ein binärer Phasenfilter entsteht zum Beispiel, wenn einzelne Furchen einer Tiefe von $D = \lambda/2 (n-1)$ (n : Brechungsindex des Quarzglases) [115] in das Substrat geätzt werden. Auch binäre Amplitudenfilter lassen sich herstellen. Dazu werden lichtundurchlässige Titan-Goldfilme streifenförmig auf das Substrat gedampft. Allerdings muss für jede gewünschte Pulsform eine eigene Maske erstellt werden. Mit einer computergestützt steuerbaren Flüssigkristallmaske [116, 3] lassen sich Phasenmuster mit einer Taktrate von über 10 Hz erzeugen. Der Wechsel der Pulsform ist allein durch die Trägheit der Flüssigkristall-Moleküle begrenzt. Die Kombination von zwei Flüssigkristallmasken erlaubt die Modulation von Phase und Amplitude [117, 118, 119]. Die Flüssigkristall-Modulatoren sind derzeit die am weitesten verbreitete Methode der fs-Pulsformung.

In den letzten Jahren sind unterschiedliche Methoden der fs-Pulsformung entwickelt worden. Eine derzeit erfolgreich eingesetzte Alternative zu den Flüssigkristall-Modulatoren sind die Akusto-optischen Modulatoren (AOM) [120]. Mit einem Radiofrequenz-Funktionsgenerator wird über einen Piezo-Kontakt eine willkürlich geformte Schallwelle in einem Kristall erzeugt, so dass ein beliebig einstellbares Transmissionsgitter entsteht. Die Modulation der Radiofrequenz und somit der Schallwelle führt zu einer Phasen- und Amplitudenmodulation

des gebeugten Spektrums und damit zu einer gezielten Pulsformung. Der gepulste Betrieb des AOM führt zwar zu einer schnellen Schaltung der Pulsmodulation. Aufgrund der (langsamen) Schallausbreitung im Kristall beträgt die Erneuerungsdauer des akustischen Gitters allerdings einige Mikrosekunden [121]. Bei einer Repetitionsrate von 80 MHz treffen die Pulse in einem zeitlichen Abstand von etwa 12,5 ns hintereinander ein. Damit kann die Kombination aus einem AOM-Pulsformer und einem Lasersystem mit MHz-Repetitionsrate ausgeschlossen werden. Insbesondere konnte daher bei den vorliegenden Messungen, die mit einem MHz-Oszillatorsystem durchgeführt wurden, ein AOM-Pulsformer nicht eingesetzt werden. Ein weiterer Nachteil in Bezug auf die hier vorgestellten Messungen ist die durch die Beugungseffizienz im Kristall bedingte niedrige Transmissionsrate, die zu hohen Verlusten der Pulsintensität führt. Daher kommen AOM-Pulsformer meist bei verstärkten Pulsen zum Einsatz [122]. Hier sind insbesondere neueste Entwicklungen bei der Kombination aus AOM-Pulsformern und NOPA-Systemen (*Non-collinear Optical Parametric Amplification*) zu erwähnen, die die abstimmbaren Pulse in einem zweistufigen Aufbau zunächst parametrisch verstärken, dann formen und anschließend erneut verstärken [123, 124]. Derselbe Aufbau erlaubt ebenfalls die Erzeugung von geformten Pulsen im nahen Infrarot [125]. Weitere Details zu AOM-Pulsformern siehe [120, 121]. In einem einstufigen NOPA-System konnte durch die Modulierung des Weißlichts eine flexible Formung von abstimmbaren Pulsen mit Flüssigkristall-Modulatoren erreicht werden [126]. Erste Ansätze neuerer Entwicklungen der Pulsformungstechnologie versprechen eine direkte Abbildung der Maskenform auf die zeitliche Struktur der Pulse, ohne den "Umweg" der Fouriertransformation [127, 128]. Im folgenden wird der optische Aufbau des Pulsformers, die Funktionsweise des Flüssigkristallmodulators und die Methode der spektralen Pulsformung vorgestellt.

4.2.1 Pulsformung durch spektrale Filter

Um eine Modulation der spektralen Phase und Amplitude vornehmen zu können, muß eine sog. **Fourierebene** erzeugt werden, in der die Frequenzkomponenten des Spektrums räumlich zerlegt vorliegen. Dies kann mit einem in Abschnitt 4.2.2 beschriebenen *Null-Dispersions Kompressor* erreicht werden.

Das eingestrahelte Laserfeld $E_{in}^+(t) = F(t) \cdot e^{i\varphi(t)}$ wird am ersten Gitter in das spektrale Feld $\tilde{E}_{in}^+(\omega)$ überführt. Dies entspricht mathematisch einer Fouriertransformation:

$$\tilde{E}_{in}^+(\omega) = \mathcal{F}\{E_{in}(t)\} \quad (4.25)$$

Wird in die Fourierebene eine Filtermaske gestellt, die das Laserfeldes $\tilde{E}_{in}^+(\omega) = g(\omega) \cdot e^{-i\varphi(\omega)}$ in seinen spektralen Eigenschaften Phase $\varphi(\omega)$ und Amplitude $g(\omega)$ beeinflusst, so erhält man ein moduliertes Laserfeld gemäß

$$\tilde{E}_{out}^+(\omega) = \tilde{E}_{in}^+(\omega) \cdot R(\omega)e^{i\psi(\omega)} \quad (4.26)$$

$R(\omega)$ beschreibt die spektrale Amplitudenmodulation und $\psi(\omega)$ die spektrale Phasenmodulation. Am zweiten Gitter wird das spektral modulierte Feld über eine inverse Fouriertransformation in ein zeitlich moduliertes Laserfeld $E_{out}^+(t) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{E}_{out}^+(\omega)\}$ zurücktransformiert. $E_{out}^+(t)$ ist der gesuchte modulierte Laserpuls. Die spektrale Filtermaske $R(\omega)e^{i\psi(\omega)}$ kann eine reine Phasenmaske ($R(\omega) \equiv 1$), eine reine Amplitudenmaske ($\psi(\omega) \equiv 0$) oder eine kombinierte Phasen- und Amplitudenmaske sein.

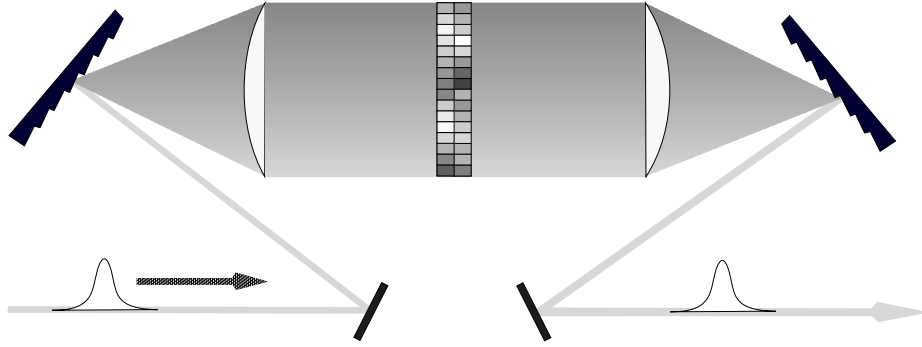


Abbildung 4.4: Null-Dispersions-Kompressor. Die symmetrische Anordnung von zwei Gittern und zwei Linsen, bei denen die Gitter im Brennpunkt der Linsen stehen, erzeugt keinen Chirp. In der Symmetrieebene entsteht die Fourierebene, in der das Spektrum moduliert werden kann, indem dort eine Filtermaske platziert wird, die aus Flüssigkristallen besteht.

4.2.2 Null-Dispersions-Kompressor

Der Null-Dispersions-Kompressor [112] ist ein symmetrischer Gitter- und Linsen-Kompressor, dessen Gitter und Linsen im Abstand der Brennweite f zueinander stehen (siehe Abbildung 4.4). Durchläuft der Puls den Aufbau in dieser Anordnung, wird kein Chirp erzeugt. Dies kann am einfachsten mit Hilfe des Fermat'schen Prinzips verstanden werden. Ein Teleskop bildet eine punktförmige Lichtquelle, die im vorderen Brennpunkt der ersten Linse steht, wieder scharf auf den hinteren Brennpunkt der zweiten Linse ab. Für das dispergierte Spektrum des ersten Gitters ist dies unter Vernachlässigung von chromatischen Abbildungsfehlern ebenfalls gültig. Gemäß des Fermat'schen Prinzips besitzen dabei alle Frequenzkomponenten die selbe optische Weglänge P_{OL} . Damit kann keine Phasenverschiebung des Pulsspektrums auftreten.

Im Zentrum des Teleskops entsteht die Fourierebene, in die die spektralen Komponenten des Pulses fokussiert werden. Wird dort die Flüssigkristall-Filtermaske platziert, kann das Spektrum moduliert werden. Die Linse erfüllt einen doppelten Zweck (siehe Abbildung 4.5). Der Abstand zwischen dem ersten Gitter und der ersten Linse muß der Brennweite f entsprechen, damit das divergente Spektrum parallelisiert wird. Jede einzelne Frequenzkomponente allerdings verlässt das Gitter parallel mit einer räumlichen Ausdehnung, die dem Strahldurchmesser vor dem Gitter entspricht. Die Linse fokussiert jede einzelne Frequenzkomponente in die Fourierebene. Erst dort sind die Frequenzkomponenten nahezu räumlich getrennt, während sie außerhalb der Fourierebene aufgrund des Strahldurchmessers überlappen. Daher muß die Filtermaske in den hinteren Brennpunkt der ersten Linse gestellt werden, der wegen des dispergierten Spektrums zu einer Brennnlinie wird. Die Fokusbreite jeder einzelnen Frequenzkomponente entlang der Brennnlinie ist im wesentlichen durch den Strahldurchmesser des Eingangsstrahls und die Brennweite der Linse bestimmt. In Abschnitt 4.2.5 wird der Effekt der endlichen Fokusbreite auf die Form des Pulses untersucht. Da der Aufbau symmetrisch ist (siehe Abbildung 4.4), kann der Puls den Aufbau ohne Filtermaske ungechirpt verlassen.

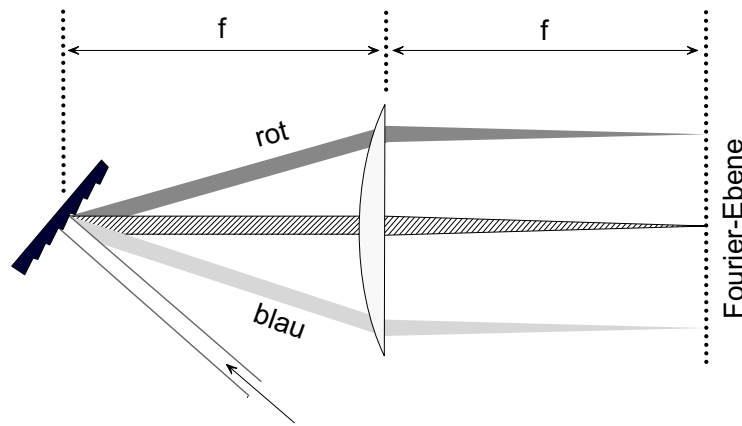


Abbildung 4.5: Die einzelnen Frequenzkomponenten des Pulses werden am Gitter räumlich zerlegt. Eine rote und eine blaue Frequenzkomponente sind exemplarisch dargestellt. Jede Frequenzkomponente hat die Breite des Strahldurchmessers und wird von der Linse auf die Fourierebene fokussiert.

Linearer refraktiver Aufbau

In den folgenden zwei Unterkapiteln werden zwei Varianten des Null-Dispersions-Kompressors dargestellt. Während der lineare refraktive Aufbau für Laser-Bandbreiten unter $\Delta\lambda \approx 10$ nm geeignet ist, wurde der gefaltete reflektive Aufbau gebaut, um Pulse hoher Bandbreite um etwa $\Delta\lambda \approx 40$ nm zu formen. Beide Aufbauten sind im Rahmen dieser Arbeit eingerichtet worden. Der lineare refraktive Aufbau wurde bei den hier vorgestellten Messungen mit dem TSUNAMI-Oszillator verwendet und ist in Abbildung 4.4 gezeigt. Die Gitter und Linsen⁴ sind in einer linearen Konfiguration angeordnet⁵. Die Reflexionsgitter sind goldbeschichtet, um die Reflektivität im nahen Infrarot zu erhöhen. Die Blazewellenlänge der Gitter beträgt $\lambda_B = 700$ nm bei einer Gitterkonstante von 1200 Linien/mm. In Littrow-Anordnung ergibt sich für λ_B ein Blazewinkel von $\Theta_B = 24.8^\circ$. Da die Geometrie des Aufbaus eine Littrow-Anordnung nicht zulässt, muss ein Einstrahlwinkel von $\Theta_{in} = 35^\circ$ gewählt werden. Damit reduziert sich die Effizienz des Gitters von $I = 80\%$ für $\lambda = 700$ nm auf $I = 72\%$ beim Einstrahlwinkel Θ_{in} .

Die Beugung an einem Gitter wird gegeben durch die Gittergleichung

$$\sin(\Theta_{in}) + \sin(\Theta_{out}) = \frac{n\lambda}{d}, \quad n \in \mathbf{N}. \quad (4.27)$$

Unter dem Einfallswinkel Θ_{in} wird damit der Ausfallswinkel der ersten Ordnung $n = 1$ der dispergierten Spektralkomponente λ_i

$$\Theta_{out}(\lambda_i) = \arcsin\left(\frac{\lambda_i}{d} - \sin(\theta_{in})\right). \quad (4.28)$$

Dabei gibt die Gitterkonstante d den Abstand zwischen zwei Gitterfurchen an. Die erste Linse (mit Brennweite f) parallelisiert das divergent gebeugte Spektrum. Über eine einfache

⁴Bei der Bandbreite des verwendeten Lasers von etwa $\Delta\lambda \approx 8.5$ nm (entspricht $\Delta\omega = 25.5$ THz) können die Farb-Abbildungsfehler der Linsen in erster Näherung vernachlässigt werden.

⁵Die lineare Konfiguration erleichtert die Justage gegenüber dem gefalteten Aufbau, benötigt allerdings mehr Platz auf dem optischen Tisch.

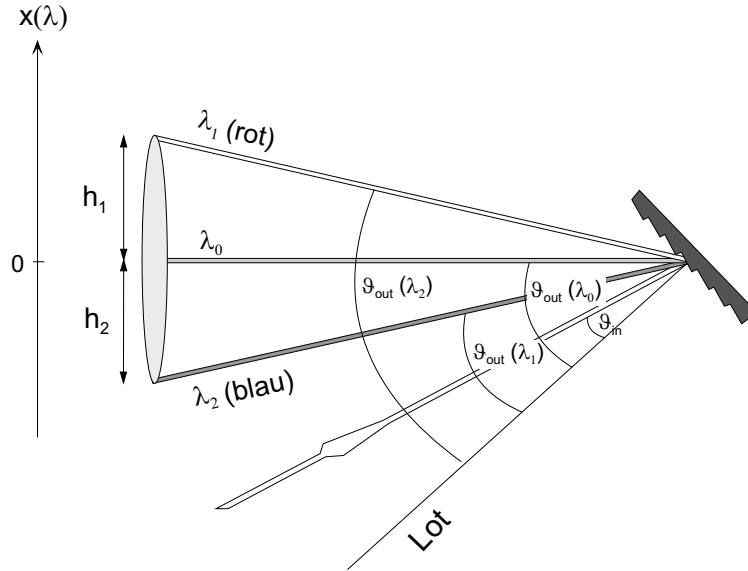


Abbildung 4.6: Beugung am ersten Gitter. Aus der Gittergleichung kann der Beugungswinkel der verschiedenen Frequenzkomponenten und über den Tangens die räumliche Position hinter der ersten Linse bestimmt werden.

trigonometrische Beziehung (siehe Abbildung 4.6) kann die räumliche Position der i -ten Frequenzkomponente hinter der Linse $x(\lambda_i)$ als Abstand von der Zentralwellenlänge λ_0 angegeben werden:

$$x(\lambda_i) = f \cdot \tan(\Theta_{out}(\lambda_i) - \Theta_{out}(\lambda_0)) \quad (4.29)$$

Die Fensterbreite der Flüssigkristallmaske beträgt 12.8 mm. Um das Spektrum des Laserfeldes nicht zu beschneiden, muß mindestens die dreifache Halbwertsbreite des Spektrums auf das Flüssigkristalldisplay abgebildet werden. Indem $\Theta_{out}(\lambda)$ aus Gleichung 4.28 in Gleichung 4.29 eingesetzt wird, ergibt sich für eine gegebene Bandbreite $\Delta\lambda$ die räumliche Ausdehnung des Spektrums in der Fourierebene zu (siehe Abbildung 4.6)

$$H = h_1 + h_2 = f (\tan(\Theta_{out}(\lambda_2) - \Theta_{out}(\lambda_0)) + \tan(\Theta_{out}(\lambda_0) - \Theta_{out}(\lambda_1))) \quad (4.30)$$

Die räumliche Ausdehnung des Spektrums kann in der Fourierebene in vielen Fällen linear approximiert werden. Dazu wird $x(\lambda)$ aus Gleichung 4.29 in einer Taylorreihe entwickelt:

$$x(\omega) = f \left(\left. \frac{\partial \Theta_{out}}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \Theta_{out}}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \right) \quad (4.31)$$

und die Entwicklung nach dem ersten Glied abgebrochen. Für größere Bandbreiten führt diese Näherung allerdings zu deutlichen Fehlern. Bei der Bandbreite des TSUNAMI bleibt das Verhältnis von Zweite-Ordnung-Term zu Erste-Ordnung-Term jedoch unter 5%. Auf die

Auswirkungen dieser Näherung wird in Abschnitt 4.4.5 eingegangen. Mit

$$\left. \frac{\partial \Theta_{out}}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} = \frac{-2\pi c}{\omega_0^2} \frac{1}{d \cos(\Theta_{out}(\omega_0))} \quad (4.32)$$

und der Lichtgeschwindigkeit c , der Gitterkonstanten d und der Zentralfrequenz ω_0 ergibt sich dann die räumliche Position der Frequenzkomponenten des Spektrums zu

$$x(\omega) = \frac{-2\pi c f}{\omega_0^2 d \cos(\Theta_{out}(\omega_0))} (\omega - \omega_0) \quad (4.33)$$

$$:= \alpha (\omega - \omega_0) \quad (4.34)$$

Dabei wurde mit α die räumliche Dispersion des Aufbaus definiert. Mit $\Theta_{out}(\omega_0) = 35^\circ$, $f = 200 \text{ mm}$ und $\lambda_0 = 770 \text{ nm}$ beträgt hier $\alpha = 9.218 \cdot 10^{17} \text{ ms}$. Daraus folgt $x = 0.292 \frac{\text{mm}}{\text{nm}}$. Mit einer Pixelbreite des Flüssigkristallmodulators von $\Delta x = 100 \mu\text{m}$ ergibt sich schließlich der spektrale Abstand zweier Pixel des Flüssigkristall-Modulators zu $0.342 \frac{\text{nm}}{\text{Pixel}}$.

Bei einer durchschnittlich Bandbreite $\Delta\lambda = 8.5 \text{ nm}$ wird somit etwa die fünffache Halbwertsbreite auf das Modulatorfenster abgebildet. Damit reduziert sich bei den vorliegenden Messungen die aktive Modulationsfläche auf etwa 75 beleuchtete Modulatorstreifen.

Die Flüssigkristallmaske befindet sich im Fokus der ersten Linse. Es besteht somit die Gefahr der Zerstörung der Polarisatoren. Um dieser Gefahr vorzubeugen, werden zylindrische Linsen verwendet. Die einzelnen Spektralkomponenten werden in der x-Ebene fokussiert, während der Strahl in der y-Ebene unfokussiert bleibt. Damit ist die Ausdehnung der Fokuslinie in y-Richtung durch das Strahlprofil des Lasers vor dem ersten Gitter gegeben. Die Höhe des aktiven Flüssigkristall-Fensters beträgt 2 mm. Gegebenenfalls muss das Strahlprofil vor dem Pulsformer mit einem Teleskop auf einen Durchmesser von 2 mm reduziert werden. Um maximale Effizienz der Gitter zu erreichen, muss das einfallende Licht horizontal polarisiert sein. Ist der Laserstrahl vertikal polarisiert, kann die Polarisation mit Hilfe von Halbwellenverzögerungsplatten angepasst werden, die vor den Gittern angebracht sind.

Wird beispielsweise durch einen Rückreflex in den Laserresonator die Modenkopplung gestört, so kann es zur Emission von Pulsen im ps-Bereich und damit zu einer deutlichen Einengung des Spektrum kommen. Die Folge ist, daß sich die gesamte Energie auf eine spektrale Region um die Zentralwellenlänge konzentriert. Da damit eine punktuelle Zerstörung des Modulators einhergehen kann, ist vor dem Pulsformer ein sogenannter *beam block* installiert, der den Laserstrahl blockiert, wenn die Modenkopplung gestört wird. Dazu wird etwa 1% der Intensität des Laserstrahls ausgekoppelt und auf ein Gitter gestrahlt. Die dispergierte erste Ordnung beleuchtet zwei Photodioden. Wird die Modenkopplung gestört, können die Photodioden nicht mehr beleuchtet werden, und über eine Regelelektronik wird ein Elektromagnet angesteuert, der einen Blocker in den Strahlengang fallen lässt⁶. Eine genaue Beschreibung findet sich in der Diplomarbeit von P. Wetzel [129].

Der Null-Dispersions-Kompressor muss im Falle einer fehlenden oder unbeschalteten Maske einen unveränderten Puls ausgeben. Stehen die Linsen des Teleskops nicht im Abstand $2 \cdot f$ zueinander, so entsteht ein divergenter Laserstrahl. Stehen die Gitter nicht im Abstand f zu

⁶Laborjargon: *Guillotine*

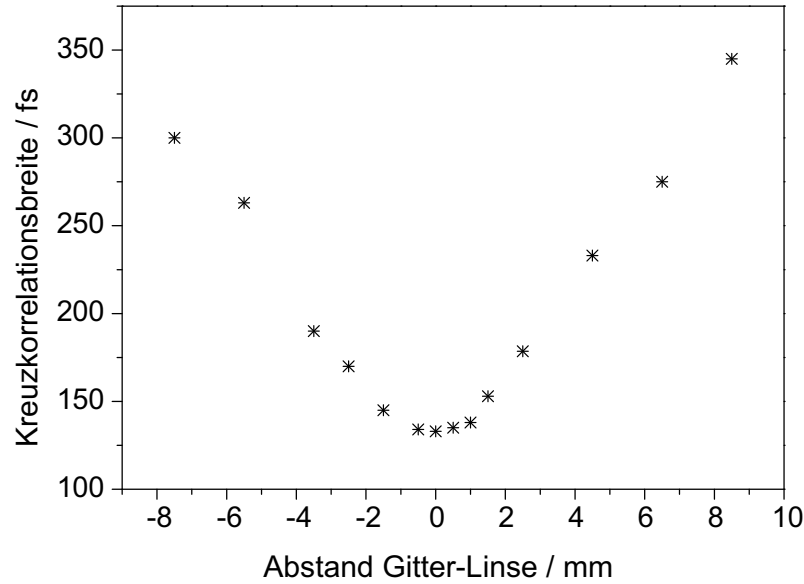


Abbildung 4.7: Kreuzkorrelationsbreiten für verschiedene Positionen des zweiten Gitters im Gitter- und-Linsenkompressor. Für $x = 0$ erhält man den kürzesten Puls. Der lineare Chirp wechselt bei $x = 0$ das Vorzeichen.

den Linsen, kann gemäß Gleichung (4.24) ein Chirp erzeugt werden. Wie in Abschnitt 4.1.4 gezeigt, kann über die Position der Gitter sowohl ein positiver als auch ein negativer linearer Chirp erzeugt werden. Nur wenn die Gitter in den Brennpunkten stehen, verlässt der Puls den Aufbau ungechirpt. Abbildung 4.7 zeigt das Ergebnis von Kreuzkorrelationsmessungen der Pulse nach dem Aufbau für verschiedene Positionen des 2. Gitters. Für $x = 0$ ergibt sich eine minimale Kreuzkorrelationsbreite von $\Delta t = 130$ fs (nahezu transform-limitiert).

Stehen die Gitter nicht im Brennpunkt, wird zusätzlich ein sogenannter *räumlicher Chirp* erzeugt. Gemeint ist ein Laserpuls, dessen Spektralkomponenten über den Strahlquerschnitt des Lasers verteilt sind. Der räumliche Chirp zerstört die zeitliche Phasenstruktur, kann nicht wieder ausgeglichen werden und sollte daher bei der Justage vermieden werden. Eine asymmetrische Ausrichtung der Gitter bezüglich der Fourierebene kann eine sogenannte verkippte Pulsfront (*tilted pulse shapes*) [130] erzeugen, die ebenfalls nicht kompensiert werden kann. Im Anhang A findet sich eine kurze Anleitung zur Justage des Null-Dispersions-Kompressors.

Gefalteter reflektiver Aufbau

Sind ultrakurze Pulse großer spektraler Breite zu formen, kann der lineare Aufbau wegen der chromatischen Abberation⁷ der Linsen nicht weiter verwendet werden. In der Arbeitsgruppe besteht seit kurzer Zeit ein neues Verstärkersystem (QUANTRONIX ODIN) mit einer Bandbreite von $\Delta\lambda \approx 40$ nm (bei $\lambda_0 = 800$ nm). Im einfachsten Fall können die Linsen durch achromatische Linsensysteme ersetzt werden. Diese bestehen aus konkaven und konvexen Linsen unterschiedlichen Materials und Brennweite, die zusammengefügt werden. Bei geeigneter

⁷Chromatische Abberation bezeichnet den Abbildungsfehler einer Linse, der durch die Abhängigkeit der Brennweite vom Brechungsindex $n(\lambda)$ des Glases hervorgerufen wird.

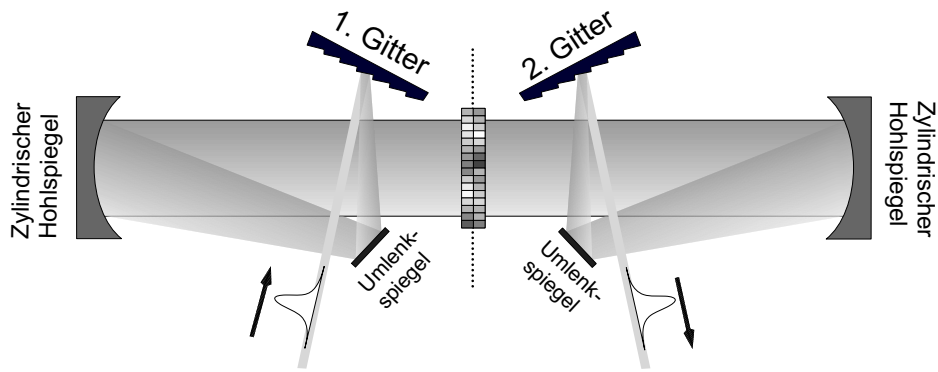


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung des gefalteten reflektiven Null-Dispersions-Kompressors. Der Eingangspuls wird zunächst am ersten Gitter spektral zerlegt und über einen Umlenkspiegel auf den zylindrischen Fokussierspiegel gegeben. Die Spektralkomponenten werden in die Fourierebene fokussiert. Der Aufbau ist symmetrisch bezüglich der Fourierebene, so dass der Puls ohne Modulator den Aufbau ungechirpt verlässt.

Wahl der Gläser kann die Dispersion invers zur Brechkraft sein. Damit kann eine effektive Brennweite mit stark reduzierter Dispersion erreicht werden. Im Falle kleiner Intensitäten und dem damit möglichen Einsatz von sphärischen Linsen ist diese Lösung bei uns zum Einsatz gekommen. Um höhere Intensitäten zu verwenden, könnten achromatische Zylinderlinsen verwendet werden. Im Handel sind solche Optiken allerdings nur zu sehr hohen Preisen erhältlich. Wir haben uns daher für einen gefalteten Aufbau entschieden, bei dem die Fokussierung durch zylindrische Hohlspiegel bewerkstelligt wird. Die Substrate sind zylindrische Plankonkavlinen, deren konkave Innenseite mit einer dielektrischen Schicht bedampft sind. Damit ist im Wellenlängenbereich zwischen 750 und 840 nm eine Reflektivität von $R=99\%$ gewährleistet. Die Hohlspiegel sind zylindrisch gekrümmt. Wird das Spektrum unter einem Winkel α zur optischen Achse auf den Hohlspiegel gestrahlt, so tritt ein *off-axis*-Fehler ein. Um diesen Fehler zu minimieren, stehen zwei weitere Umlenkspiegel in dem Strahlengang⁸ (siehe Abbildung 4.8). Der einlaufende Puls wird so vom ersten Gitter (links in Abbildung 4.8) spektral zerlegt und über den Umlenkspiegel auf den zylindrischen Hohlspiegel gestrahlt. Entsprechend der Funktion der Linsen im linearen Aufbau (Abschnitt 4.2.2) werden die Spektralkomponenten in die Fourierebene fokussiert. Der Aufbau ist symmetrisch bezüglich der Fourierebene. Um die dreifache Halbwertsbreite $3 \times \Delta\lambda \leq 120$ nm des Pulsspektrums auf das Fenster der Flüssigkristallmaske (Breite=12.8 mm) zu fokussieren, werden schwächer dispergierende Reflexionsgitter mit 600 Strichen/mm verwendet. Damit benötigt man gemäß Gleichung 4.28 Hohlspiegel einer Brennweite $f = 150$ mm. Die Gitter sind wegen der höheren Reflektivität im nahen Infrarot goldbedampft und mit einer Blazewellenlänge von $\lambda_{Bl} = 750$ nm versehen.

⁸Die Gitter müssten im gefalteten Aufbau in der Fourierebene direkt neben dem Maskenfenster stehen. Die Breite der Flüssigkristallmaske beträgt allerdings 20 cm, wodurch die Gitter weit außen positioniert wären und damit einen großen *off-axis*-Fehler verursachen würden. Bei neu entwickelten Flüssigkristallmasken sind die Gitterhalter direkt neben dem Flüssigkristall-Fenster platziert worden [131].

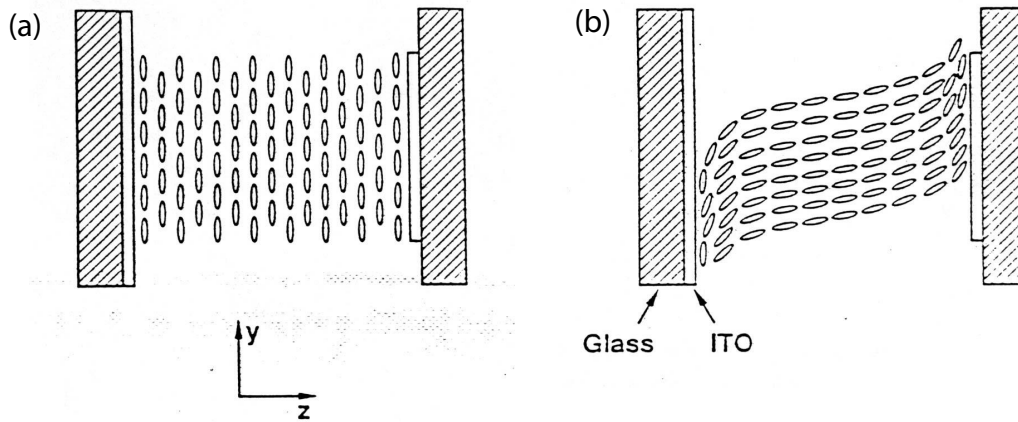


Abbildung 4.9: Schnitt durch eine Flüssigkristallschicht zwischen zwei Glasplatten. Ohne elektrisches Feld sind die Moleküle des Flüssigkristalls in y -Richtung orientiert. Wird an die ITO-Elektroden eine Spannung angelegt, so dass ein elektrisches Feld in z -Richtung entsteht, kippen die Moleküle in z -Richtung und bewirken eine Änderung des Brechungsindex für y -polarisiertes Licht (aus [3]).

4.2.3 Funktionsweise der Flüssigkristall-Modulatoren

Flüssigkristalle können durch Anlegen einer Spannung ihren Brechungsindex $n(\omega)$ ändern. Ein Lichtstrahl erfährt beim Durchgang durch den Flüssigkristall eine spektrale Phasenverschiebung $\Delta\phi = 2\pi n(V) \frac{d}{\lambda_0}$ (siehe auch Gleichung 4.10), die proportional zur spannungsabhängigen Änderung des Brechungsindex $n(V)$ ist. Wird ein Flüssigkristalldisplay in die Fourierebene des Null-Dispersions-Kompressors gestellt, können die Spektralkomponenten des Laserpulses gegeneinander phasenverschoben werden. So können nahezu beliebige spektrale Phasenverläufe eingestellt werden, solange die Nyquist-Grenze der diskreten Modulationsfunktion berücksichtigt wird (siehe Abschnitt 4.2.6).

Flüssigkristall-Display

Flüssigkristalle bestehen aus langgestreckten Molekülen, die eine Ordnung bezüglich der Orientierung im Raum aufweisen, deren räumliche Position allerdings keiner Ordnung unterliegt (im Gegensatz zu einem Kristall). Diese Flüssigkeit besitzt wegen der gestreckten Form der Moleküle und deren Orientierung einen anisotropen Dielektrizitätstensor und ist damit einachsiger doppelbrechend. Es existieren drei Phasen der Flüssigkristalle (*nematic*, *smectic* und *cholesteric*), die sich durch die unterschiedliche Anordnung der Flüssigkristalle im Volumen unterscheiden. Hier ist im weiteren nur die nematische Phase von Interesse.

Im Modulator werden die Flüssigkristalle zwischen zwei Glasplatten gehalten, deren typischer Abstand d etwa $10 \mu\text{m}$ beträgt. Um zunächst eine Orientierung der Moleküle zu gewährleisten, werden die Innenseiten der Glasplatten gebürstet, wodurch sich die länglichen Moleküle entlang der Furchen ausrichten. Eine solche Flüssigkristallzelle wirkt auf Licht wie ein doppelbrechender Kristall. Die optisch aktive Achse (sogenannte schnelle Achse) des Flüssigkristalls verläuft in Richtung der Molekülachse. Ist das Licht in dieser Richtung polarisiert, erfährt es einen anderen Brechungsindex als senkrecht dazu polarisiertes Licht. Es sei zunächst der Fall betrachtet, dass die schnelle Achse parallel zur y -Achse ausgerichtet ist und somit

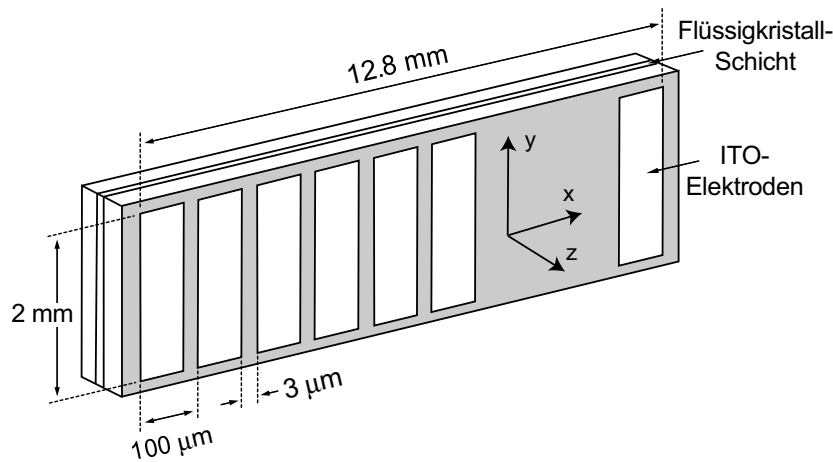


Abbildung 4.10: Das Flüssigkristall-Display. Die Elektrodenstreifen aus Indium-Zinn-Oxyd (ITO) sind $97 \mu\text{m}$ breit und in einem Abstand von $3 \mu\text{m}$ angebracht (gaps). Die Breite des gesamten Modulfensters beträgt 12.8 mm .

parallel zur Polarisationsrichtung verläuft. Die Einstrahlrichtung des Lichtes verläuft parallel zur z -Achse (siehe Abbildung 4.9).

Der Brechungsindex für das in y -Richtung polarisierte Licht ist veränderbar, indem die Moleküle um einen Winkel θ in z -Richtung gedreht werden. Willkürlich polarisiertes Licht wird beim Eintreffen in den Flüssigkristall wie bei jedem anderen doppelbrechenden Kristall in einen Strahl mit senkrechter und einen mit paralleler Polarisation bezüglich der optischen Achse (ordentlicher und außerordentlicher Strahl) zerlegt. Wird eine Spannung in z -Richtung angelegt, kann der Winkel θ variiert werden. Damit ist eine Beeinflussung des außerordentlichen Brechungsindex $n(\theta)$ möglich, während der ordentliche Brechungsindex n_0 immer konstant bleibt. Die resultierende Phasenretardierung des außerordentlichen Strahls gegenüber dem ordentlichen Strahl hängt weiterhin von dem Verhältnis aus Schichtdicke d und Wellenlänge λ ab und beträgt [132]

$$\Gamma = 2\pi(n(\theta) - n_0) d/\lambda \quad (4.35)$$

Die zur Drehung der Moleküle notwendige Spannung muss in z -Richtung (also in Ausbreitungsrichtung des Lichts) angelegt werden. Daher sind transparente Elektroden notwendig.

Im Flüssigkristall-Modulator ist die Innenseite einer Glasplatte mit einem dünnen Film aus Indium-Zinn-Oxyd (ITO, *Indium Tin Oxide*) bedeckt, der aus 128 einzelnen Streifen besteht. Die Breite eines jeden Streifens beträgt $100 \mu\text{m}$, der Abstand zwischen den Streifen $3 \mu\text{m}$ (kein Kontakt) und die Höhe 2 mm . Die Ausmaße des aktiven Flüssigkristallfensters betragen damit $12.8 \times 2 \text{ mm}$ (siehe Abbildung 4.10).

Die Abbildung 4.9 zeigt schematisch die Drehung der Flüssigkristalle, nachdem ein elektrisches Feld in z -Richtung angelegt wurde. Die schnelle Achse wird in y -Richtung (senkrecht zum Array) ausgerichtet, damit die elektrischen Querfelder, die aufgrund von Differenzpotenzialen benachbarter Streifen entstehen, einen minimalen Effekt auf die Drehung der Moleküle ausüben [3]. Im Raum zwischen den Elektroden (*gaps*) wird die Phase nur durch diese Seitenfelder bestimmt. Daher werden die Abstände so gering wie möglich gehalten.

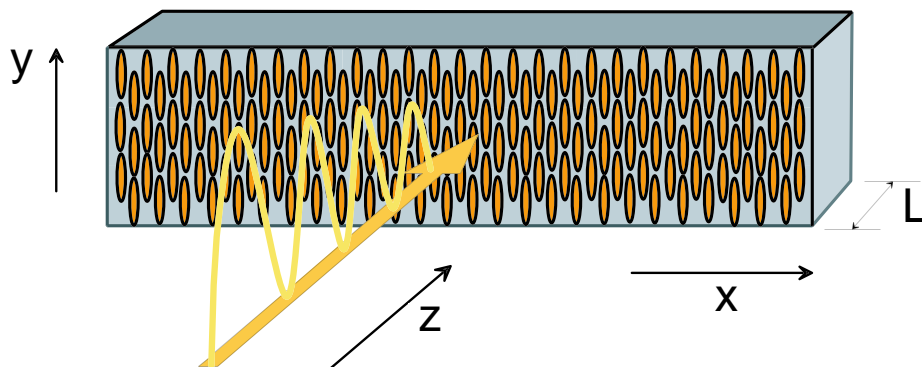


Abbildung 4.11: Anordnung des Flüssigkristalldisplays für reine Phasenmodulation. Die Flüssigkristall-Moleküle sind parallel zur Polarisation des Lichts orientiert.

Flüssigkristall-Modulatoren können als reine Phasenschieber, als reine Amplitudenmodulatoren oder als kombinierte Phasen- und Amplitudenmodulatoren fungieren. Die jeweilige Funktion hängt von der relativen Ausrichtung der eingestrahnten Polarisation, den Flüssigkristallachsen und dem nachgeschalteten Polarisator ab. Im folgenden werden die einzelnen Funktionsweisen erläutert.

Reine Phasenmodulation

Mit dem Phasenmodulator werden die durch die einzelnen Streifen definierten Frequenzbündel gegeneinander phasenverschoben. Das dispergierte Spektrum wird üblicherweise hinter dem ersten Gitter mit einer $\lambda/2$ -Platte um 90° gedreht, so dass die Polarisation parallel zur schnellen Achse des Flüssigkristalls verläuft. Die Phasenverschiebung des i -ten Frequenzbündels ist dann gemäß Gleichung 4.35 $\Delta\phi_i(V) = 2\pi\Delta n(V) d/\lambda$. Nach der Spannungs-Kalibrierung, die den Zusammenhang zwischen der Phasenverschiebung und der angelegten Spannung angibt, kann somit durch Variation der Spannung eine hochaufgelöste Graustufen-Phasenmodulation erreicht werden. Die maximal mögliche Änderung des Brechungsindex und die Schichtdicke d sollten dabei mindestens eine Phasenverschiebung von $\Delta\phi_j(V) = 2\pi$ zulassen. Abbildung 4.11 zeigt schematisch die Anordnung des Flüssigkristalldisplays für reine Phasenmodulation. Der Phasenfilter des n -ten Streifens ergibt sich aus der Phasenverschiebung zu

$$R_n = R_0 \cdot e^{i\Delta\phi_n(V_n)} \quad n \in (1, \dots, 128) \quad (4.36)$$

Amplitudenmodulation

Ein Flüssigkristalldisplay kann auch zur Modulation der Amplitude verwandt werden. Die Richtung der schnellen Achse wird gegenüber der Polarisation des eingestrahnten Lichtes um 45° gedreht (siehe Abbildung 4.12). Jetzt kann wie bei einer $\lambda/2$ -Platte die Polarisationsrichtung vektoriell in eine Komponente parallel und eine senkrecht zur schnellen Achse zerlegt werden. Damit sorgt die Phasenretardierung Γ der schnellen Achse dafür, dass die Polarisation hinter dem Kristall gedreht wird. Befindet sich ein Polarisationsfilter hinter dem Flüssigkristall, kann durch Variation des Drehwinkels α die Abschwächung zwischen 0 und 1 durchgeführt werden. Während bei einer $\lambda/2$ -Platte die Drehung des Polarisationswinkels $\alpha = 2\beta$

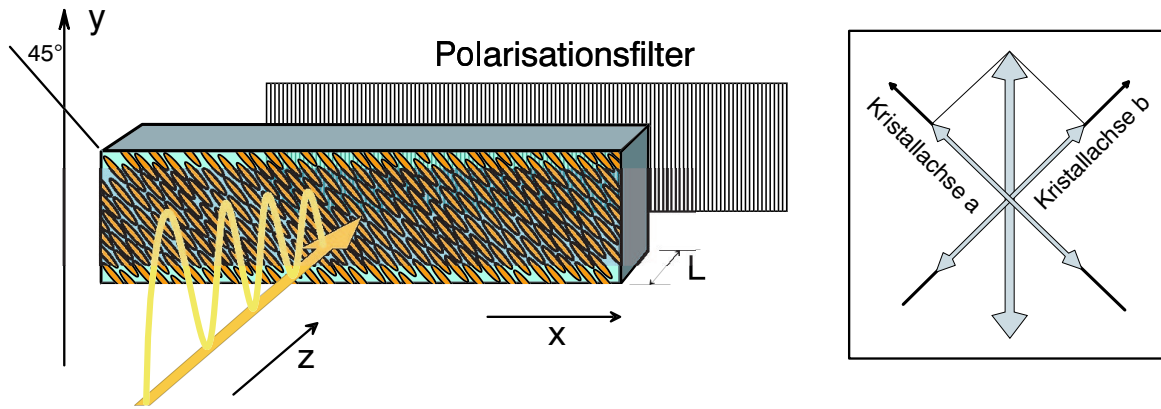


Abbildung 4.12: Links: Flüssigkristallarray und Polarisator in Amplitudenmodulations-Anordnung. Die lange Achse der Flüssigkristalle ist um 45° gegenüber der Polarisation des eingestrahnten Lichts gedreht. Der Polarisator ist parallel zur Polarisation des eingestrahnten Lichts orientiert. Rechts: Die eingestrahlte Polarisationsrichtung wird vektoriell in eine Komponente parallel zur schnellen Kristallachse a und eine Komponente parallel zur Achse b zerlegt.

über den doppelten Winkel β zwischen Polarisation und Kristallachse bestimmt wird [132], ergibt sich der Drehwinkel beim Flüssigkristall über die spannungsabhängige Retardierung. Dabei entspricht der Drehwinkel der Polarisation der halben Phasenretardierung.

Allerdings ist mit der Drehung immer auch eine Phasenverschiebung verbunden. Diese ist gerade gleich dem Mittelwert der Phasenverschiebungen der beiden Komponenten, also gleich der halben Phasenretardierung $\frac{1}{2}\Delta\phi_n(V_n)$. Ist das eingestrahlte Licht x-polarisiert, und die Richtung der schnellen Achse a gleich der Winkelhalbierenden zwischen x- und y-Achse, so ist die Filterfunktion gegeben durch [133]

$$R_n = \underbrace{\left(\hat{x} \cos\left(\frac{1}{2}\Delta\phi_n(V_n)\right) + i\hat{y} \sin\left(\frac{1}{2}\Delta\phi_n(V_n)\right) \right)}_{\text{Amplitudenfaktor}} \cdot \underbrace{e^{\frac{i}{2}\Delta\phi_n(V_n)}}_{\text{Phasenfaktor}} \quad (4.37)$$

Betrachten wir den Fall, dass eine Spannung angelegt ist, die wie eine $\lambda/2$ -Platte eine Phasenretardierung von π erzeugt. Nach Gleichung 4.37 erfährt dann das in x-Richtung polarisiert Licht eine Drehung um 90° und damit hinter einem ebenfalls in x-Richtung orientierten Polarisator vollständige Auslöschung. Zum selben Ergebnis gelangt man mit einer $\lambda/2$ -Platte, die um 45° zur eingestrahnten Polarisation gedreht wurde ($\alpha = 2\beta$). Aus Gleichung 4.37 ist ebenfalls ersichtlich, dass durch die Drehung der Polarisationsrichtung ein zusätzlicher Phasenterm $e^{\frac{i}{2}\Delta\phi_n(V_n)}$ erzeugt wird.

Unabhängige Phasen- und Amplitudenmodulation

Um einen Modulator zu bauen, der gleichzeitig Phase und Amplitude moduliert, kann man den Amplitudenmodulator hinter dem Phasenmodulator positionieren. Dies hat allerdings den Nachteil, dass gemäß Gleichung 4.37 bei der Amplitudenmodulation ein zusätzlicher Phasenterm auftritt, der von der Größe der Amplitudenmodulation abhängt. Bei dem hier verwendeten Gerät werden zwei Flüssigkristallarrays in Reihe geschaltet, die sich beide in Amplitudenmodulationsposition befinden. Die Richtungen der schnellen Achsen der beiden Arrays

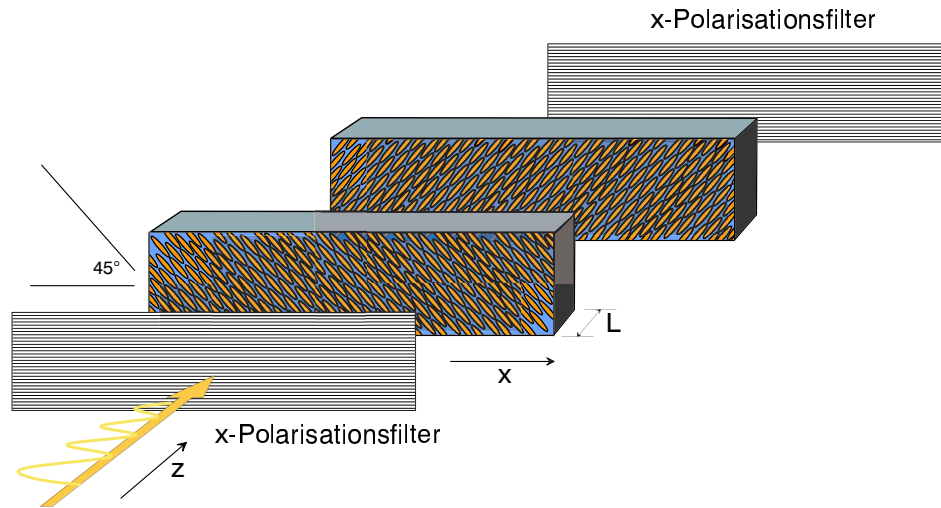


Abbildung 4.13: Auseinandergezogene schematische Darstellung eines Phasen- und Amplitudenmodulators mit Flüssigkristallen. Die eingestrahelte Polarisation ist horizontal. Die schnellen Achsen der beiden Flüssigkristallarrays sind um $\pm 45^\circ$ zur Horizontalen gedreht. Der hintere Polarisator ist wieder horizontal ausgerichtet.

sind um 45° gegen die eingestrahelte Polarisation (x-Achse) gedreht. Gegeneinander sind die schnellen Achsen um 90° verschoben, so dass die Polarisationsdrehung entgegengesetzt verläuft.

Im ersten Flüssigkristallarray ist die Kristallachse a die schnelle Achse. Es kommt zu einer Drehung der Polarisation und einer Phasenretardierung $\Delta\phi^{(1)}$ gemäß Gleichung 4.37. Im zweiten Flüssigkristallarray findet die spannungsabhängige Phasenretardierung $\Delta\phi^{(2)}$ für die andere Komponente in Richtung der Kristallachse b statt. Mit dem zweiten Display kann somit z.B. die Phasenretardierung zwischen den beiden senkrechten Komponenten ausgeglichen werden. Die Polarisationsrichtung kann "zurückgedreht" und damit die Abschwächung ausgeglichen werden, während sich insgesamt eine Phasenverschiebung ergibt. Die Drehung der Polarisation hängt nur von der Differenz der beiden Retardierungen $\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)}$ ab. Auch hier gilt wieder (siehe Amplitudenmodulation), dass der Drehwinkel gleich der halben effektiven Phasenretardierung ist. Die Phasenverschiebung ist durch den Mittelwert der beiden Retardierungen $(\Delta\phi^{(1)} + \Delta\phi^{(2)})/2$ gegeben.

Abbildung 4.14 veranschaulicht diesen Sachverhalt. Zwei mögliche Einstellungen der Retardierungen für Achse a und b sind dargestellt. Es sind zwei verschiedene Retardierungen der Kristallachse a (dicke Kurven) um $\Delta\phi_a^{(1)} = \pi$ und $\Delta\phi_a^{(2)} = \frac{3}{2}\pi$ bezüglich der unverschobenen Welle (gestrichelte Kurve) eingezeichnet. Zusätzlich sind zwei mögliche Retardierungen (dünne durchgezogene Kurven) der Achse b dargestellt. In beiden Fällen besteht eine Differenz $\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)} = \frac{\pi}{4}$ zwischen den Phasen der beiden Polarisationsrichtungen. Wie im rechten Teilbild von Abbildung 4.14 erklärt, führt dies zu einer Polarisationsdrehung. Die Abschwächung hinter dem Polarisator wird also in beiden Fällen identisch sein. Die gesamte Phasenverschiebung ist für beide Fälle allerdings unterschiedlich und differiert um $\frac{\pi}{2}$. Es wird deutlich, dass in dieser Anordnung eine unabhängige Modulation der Phase und Amplitude des spektralen Laserfeldes möglich ist.

Das Feld für das n-te Frequenzbündel nach dem Doppeldisplay lässt sich schreiben als [133]

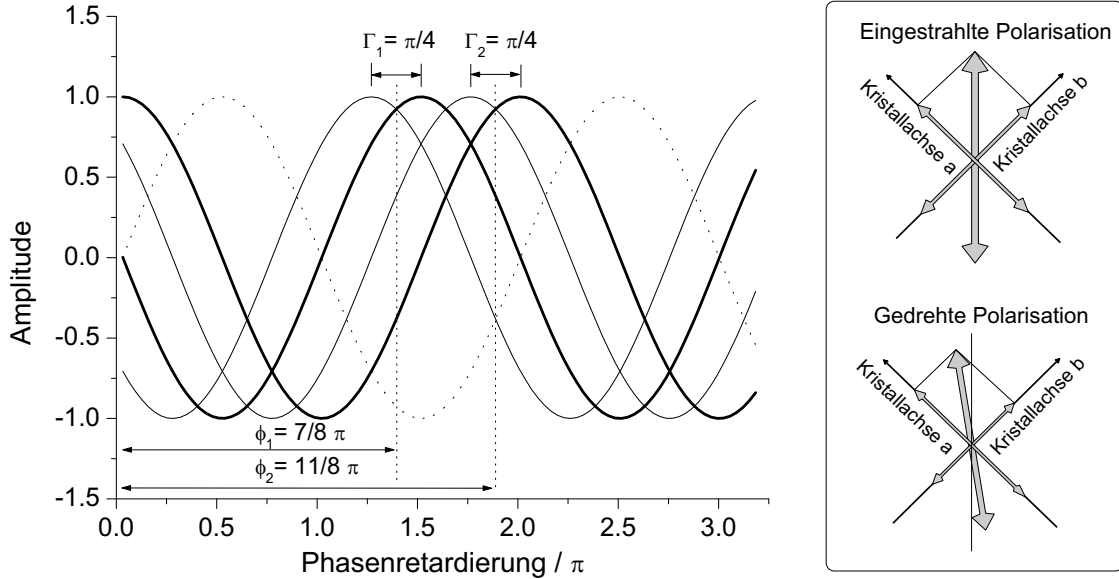


Abbildung 4.14: Linkes Teilbild: Zwei mögliche Fälle von Phasenretardierungen der Kristallachsen a und b für ein Flüssigkristall-Doppelarray. Bezüglich der Eingangswelle (gestrichelt) wird die Polarisation in Richtung der Achse a (dicke durchgezogene Kurven) jeweils um π und $\frac{3}{2}\pi$ retardiert. Die Retardierung für die dazu senkrechte Polarisation (dünne durchgezogene Kurve) ist jeweils um $\frac{\pi}{4}$ geringer. Die Differenz $\frac{\pi}{4}$ der Retardierungen führt zu der selben Polarisationsdrehung, wie das rechte Teilbild verdeutlicht. Damit wird in beiden Fällen die selbe Abschwächung erreicht. Die totale Phasenverschiebung φ ist für beide Fälle verschieden und differiert um $\frac{\pi}{2}$.

$$E_{n,out} = E_{n,in} \cdot R_n \quad (4.38)$$

$$= E_{n,in} \cdot e^{(\Delta\phi^{(1)} + \Delta\phi^{(2)})/2} \cdot \left(\hat{x} \cos((\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)})/2) + i\hat{y} \sin((\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)})/2) \right) \quad (4.39)$$

Nach dem hinteren Polarisator in x-Richtung bleibt dann

$$E_{n,out} = E_{n,in} \cdot \underbrace{e^{(\Delta\phi^{(1)} + \Delta\phi^{(2)})/2}}_{\text{Phasenmodulation}} \cdot \underbrace{\cos((\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)})/2)}_{\text{Amplitudenmodulation}} \quad (4.40)$$

Die pixelabhängigen Spannungen für die Retardierungen $\Delta\phi^{(i)}(V_n^{(i)})$ sind zugunsten der Übersichtlichkeit weggelassen worden.

4.2.4 Phasen-und Amplitudenmodulator SLM-256

Der in dieser Arbeit verwendete Phasen-und Amplitudenmodulator (SLM 256, Cambridge Research and Instrumentation) besteht wie im vorhergehenden Kapitel beschrieben aus zwei

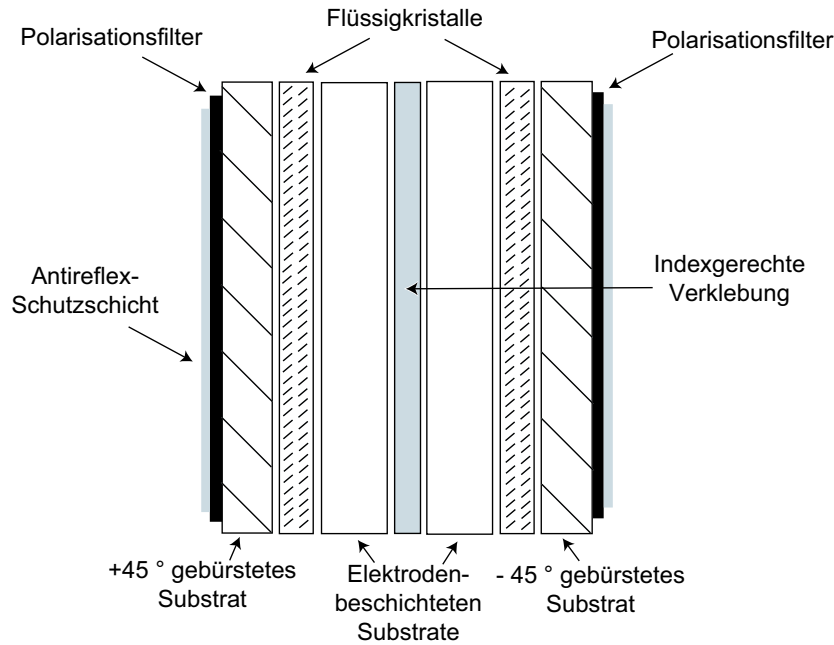


Abbildung 4.15: Schnitt durch den SLM-256. Dargestellt sind die Polarisatoren, die in $\pm 45^\circ$ -Richtung gebürsteten Glasplatten, die mit ITO-Elektroden beschichteten Substrate, die Flüssigkristallschichten und die indexgerechte Verklebung.

Flüssigkristallarrays mit jeweils 128 Streifen. Die beiden Arrays sind so miteinander verklebt, dass die Streifen mit selben Indizes direkt übereinanderliegen. Abbildung 4.15 zeigt einen Schnitt durch den SLM. Die Polarisatoren werden entweder auf die äußeren Substratoberflächen geklebt oder separat an das Gehäuse geschraubt. Letzteres hat den Vorteil, dass im Falle einer Zerstörung durch zu hohe Bestrahlung ein Wechsel erleichtert wird. Die Bürstungsrichtung der Substrate ist ebenfalls eingezeichnet. Auf den inneren Substratoberflächen befinden sich die transparenten ITO-Elektroden.

Die Ansteuerung

Durch Anlegen einer Spannung an einen Flüssigkristall-Streifen wird eine Phasenretardierung erzeugt (siehe Abschnitt 4.2.3), wobei das Verhältnis von Spannung und Phasenretardierung experimentell bestimmt werden muss (siehe folgenden Abschnitt). Über die Phasenretardierung $\Delta\phi^{(1)}$ der schnellen Achse des ersten Kristalls und $\Delta\phi^{(2)}$ der schnellen Achse des zweiten Kristall ergibt sich die Phase φ und Transmission T des jeweiligen Frequenzbündels eines Doppelarray-Streifens. Aus Gleichung 4.40 ergibt sich der Transmissionsfilter des Doppelarrays zu

$$T = \cos^2 \left(\frac{1}{2} (\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)}) \right), \quad (4.41)$$

und der Phasenfilter zu

$$\varphi = \frac{1}{2} (\Delta\phi^{(1)} + \Delta\phi^{(2)}). \quad (4.42)$$

Durch Umformen erhalten wir die Phasenretardierungen für Array 1 und Array 2

$$\Delta\phi^{(1)} = \arccos(\sqrt{T}) + \varphi \quad (4.43)$$

$$\Delta\phi^{(2)} = \varphi - \arccos(\sqrt{T}) \quad (4.44)$$

Um keine physikalisch unmöglichen negativen Phasenretardierungen zu erhalten, wird ein konstanter Phasenfaktor $\phi_0 = \frac{\pi}{2}$ addiert. Da dies gleichermaßen für alle 256 Streifen gilt, besteht kein Netto-Effekt. Somit ergeben sich die auf die beiden Modulatorarrays zu schreibenden Phasenretardierungen:

$$\Delta\phi^{(1)} = \frac{\pi}{2} + \arccos(\sqrt{T}) + \varphi \quad (4.45)$$

$$\Delta\phi^{(2)} = \frac{\pi}{2} + \varphi - \arccos(\sqrt{T}) \quad (4.46)$$

Es können nun die Transmission T und Phase φ für jeden Streifen vorgegeben werden und über die Gleichungen 4.45 und 4.46 in die Phasenretardierungen der beiden Arrays umgerechnet werden.

Kalibrierung des Phasen- und Amplitudenmodulators

Die Abhängigkeit des Brechungsindex $n(V)$ der Flüssigkristalle von der angelegten Spannung V ist für jeden Flüssigkristall verschieden. Daher muss der Zusammenhang zwischen den Phasenretardierungen $\Delta\phi^{(1)}$ und $\Delta\phi^{(2)}$ sowie den angelegten Spannungen U_1 und U_2 experimentell ermittelt werden (Kalibrierung). Zudem bestimmt zum Beispiel der Winkel, unter dem das Spektrum auf den Flüssigkristall trifft, den Brechungsindex $n(\lambda)$ zusätzlich. Damit sollte nach Justage des Null-Dispersion-Kompressors eine neue Kalibrierung durchgeführt werden.

Dazu wird die Transmission des Doppelarrays in Abhängigkeit von der Spannung aufgezeichnet. Um die Antwort für jedes Array getrennt zu bestimmen, wird der jeweils andere Array auf den maximalen Spannungswert $U_{max} = 10V$ gelegt. Die Spannung kann mit einer Auflösung von 12 bit angesteuert werden. Damit beträgt die Schrittweite 2.44 mV. Die erhaltenen Transmissionswerte $T(V)$ für die 4096 Spannung-Steuerwerte S sind für beide Arrays in Abbildung 4.16(a) und (b) dargestellt.

Die Transmission der Gesamtanordnung in Abhängigkeit von der Spannung des ersten Arrays ist

$$T(S_1) = \cos^2 \left(\frac{1}{2} (\Delta\phi^{(1)}(S_1) - \Delta\phi^{(2)}(S_{max})) \right) \quad (4.47)$$

Daraus lässt sich $\Delta\phi^{(1)}(S_1)$ bis auf die Konstante $\Delta\phi^{(2)}(S_{max})$ bestimmen:

$$\Delta\phi^{(1)}(S_1) = 2 \cdot \arccos \left(\sqrt{T(S_1)} \right) + \Delta\phi^{(2)}(S_{max}) \quad (4.48)$$

Entsprechend ist $\Delta\phi^{(2)}(S_2)$ über die Transmission für das zweite Array

$$T(S_2) = \cos^2 \left(\frac{1}{2} (\Delta\phi^{(1)}(S_{max}) - \Delta\phi^{(2)}(S_2)) \right) \quad (4.49)$$

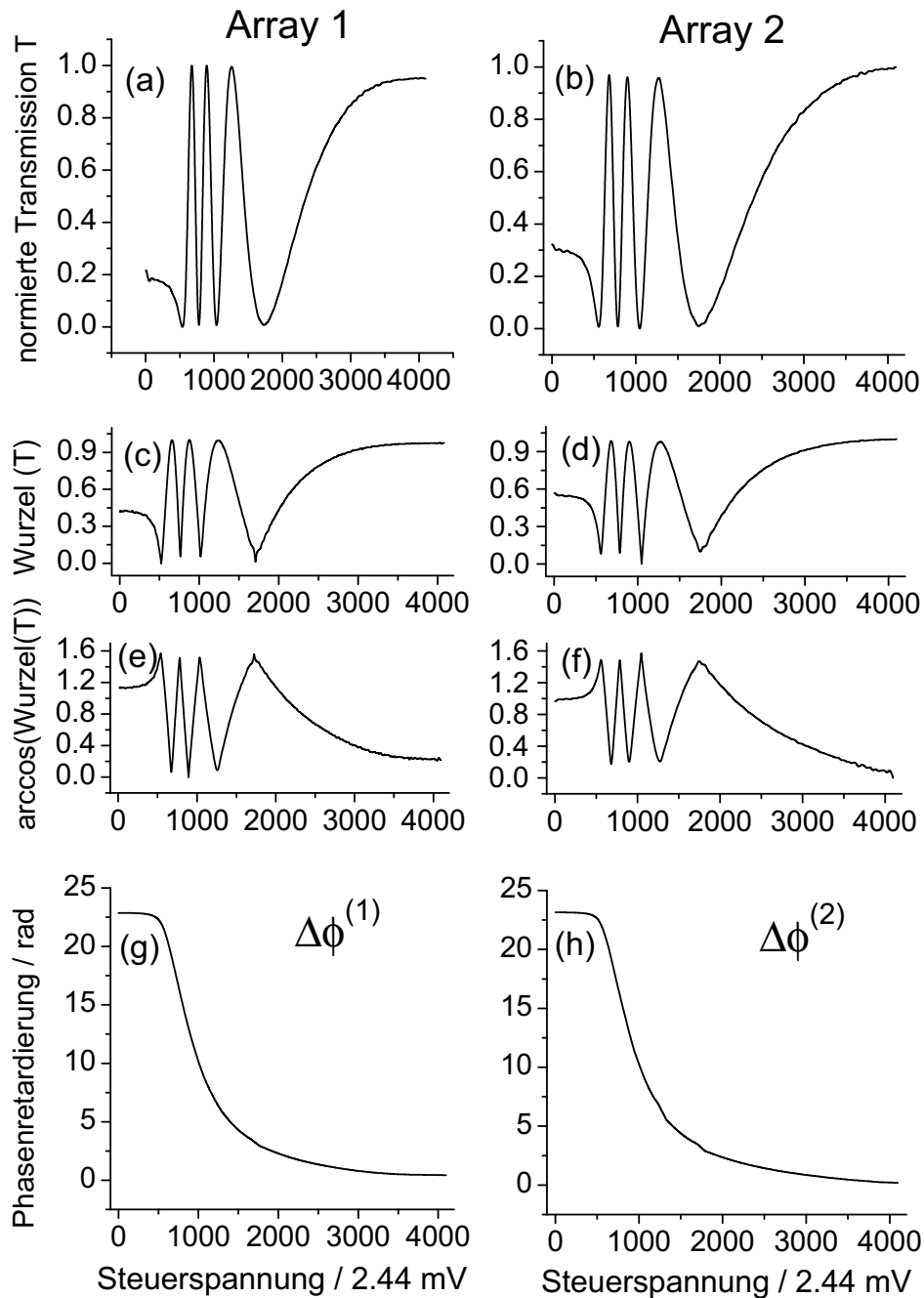


Abbildung 4.16: Bestimmung der Eichfunktion, die den Zusammenhang zwischen Phasenretardierung und Spannungswert beider Flüssigkristallarrays herstellt. Die Transmission wird unter konstanter Schaltung des jeweils anderen Arrays getrennt für beide Arrays gemessen [(a) und (b)]. Um auf die Phasenretardierung schließen zu können, muss die Quadratwurzel gebildet [(c) und (d)] und die Arkuskosinusfunktion [(e) und (f)] angewendet werden. Die Unbestimmtheit beider Funktionen wird physikalisch gelöst. Es ergeben sich die beiden Eichfunktionen (g) und (h). Aus der Umkehrfunktion kann der benötigte Spannungswert bestimmt werden.

nur bis auf die Konstante $\Delta\phi^{(1)}(S_{max})$ bestimmt:

$$\Delta\phi^{(2)}(S_2) = 2 \cdot \arccos\left(\sqrt{T(S_2)}\right) - \Delta\phi^{(2)}(S_{max}) \quad (4.50)$$

Die Faktoren $\Delta\phi^{(i)}(S_{max})$ sind konstante Phasenretardierungen. Die Gesamtphase φ hängt von der Summe der Retardierungen ($\Delta\phi^{(1)} + \Delta\phi^{(2)}$) ab. Daher bedeuten die konstanten $\Delta\phi^{(i)}(S_{max})$ für die Phase φ lediglich eine konstante Phasenverschiebung und können weggelassen werden. Die Transmission allerdings hängt von der Differenz der Retardierungen ($\Delta\phi^{(1)} - \Delta\phi^{(2)}$) ab. Es kann daher einer der unbekanntenen Phasenfaktoren gleich Null gesetzt werden. $\Delta\phi^{(2)}(S_{max})$ wird in Gleichung 4.48 gestrichen und dafür

$$\delta\phi := \Delta\phi^{(1)}(S_{max}) - \Delta\phi^{(2)}(S_{max}) \quad (4.51)$$

zu Gleichung 4.50 addiert. Damit ist die Differenz der Phasenretardierungen ausgeglichen worden. Man erhält also die spannungsabhängigen Phasenretardierungen

$$\Delta\phi^{(1)}(S^{(1)}) = 2 \cdot \arccos(\sqrt{T(S_1)}) \quad (4.52)$$

$$\Delta\phi^{(2)}(S^{(2)}) = 2 \cdot \arccos(\sqrt{T(S_2)}) + \delta\phi \quad (4.53)$$

Abbildung 4.16 verdeutlicht die Vorgehensweise. Die (normierte) Transmission als Funktion der Spannung zeigt einen oszillatorischen Verlauf mit exponentiell abnehmender Frequenz. Die Rechenschritte beinhalten gemäß Gleichung 4.52 und 4.53 die Wurzel- und Arkuskosinus-Funktion. Abbildung 4.16 (c) bis (f) gibt die Ergebnisse für beide Arrays wieder. Deutlich ist die gefaltete Struktur des Kurvenverlaufs zu erkennen. Die Ursache liegt in der Uneindeutigkeit der Wurzel- und Arkuskosinus-Funktionen. Um die Kurven (e) und (f) zu entfalten, müssen physikalische Argumente herangezogen werden.

Zum einen ist wegen $\cos(x) = \cos(-x)$ apriori nicht festgelegt, ob die Eichfunktion steigend oder fallend ist. Im Prinzip ist die an $\Delta\phi = 0$ gespiegelte Funktion ebenfalls eine mathematisch mögliche Lösung. Der Brechungsindex für parallel zur Symmetrieachse der Flüssigkristallmoleküle polarisiertes Licht nimmt mit der Drehung der Moleküle ab. Der Grund liegt in der größeren Polarisierbarkeit der Moleküle in Achsrichtung. Die angelegte Spannung sorgt für das Verkippen der Moleküle; der Brechungsindex nimmt also für diese Polarisationsrichtung ab. Damit muss die Eichkurve $\Delta\phi(V)$ mit zunehmender Spannung abfallen.

Die zweite Uneindeutigkeit liegt an $\cos(x) = \cos(x + 2\pi)$. Die Eichkurve kann also mathematisch auch um $n \cdot 2\pi$ nach oben oder unten verschoben sein. Da allerdings die Flüssigkristallmoleküle für große Spannungen vollständig gedreht sind, wird im Grenzfall $U = 10V$ der Brechungsindex für parallel zur Molekülachse polarisiertes Licht $n(V)$ gleich dem konstanten Brechungsindex n_0 sein. Somit muss die Phasenretardierung für große Spannungen gegen 0 gehen. Mit diesen beiden physikalischen Annahmen sind die Eichkurven bestimmt. Abbildung 4.16 zeigt für beide Arrays das Ergebnis. Die Phasenretardierung bleibt bis etwa $500 \cdot 2.44$ mV nahezu konstant, um dann exponentiell gegen 0 abzufallen.

Bei der vorliegenden Schichtdicke wird ein Phasenhub von über 7π erreicht. Für eine Phasenmodulation zwischen 0 und 2π und einer Amplitudenmodulation zwischen 0 und 1 ergibt sich eine maximal notwendige Phasenretardierung von $\Delta\phi^{(1)} = 9.42$ rad (bei $T=0$ und $\varphi = 2\pi$).

Von Gleichung 4.52 und 4.53 müssen die Umkehrfunktionen gebildet werden. Damit ergeben sich die gesuchten Ausdrücke $U_1(\Delta\phi^{(1)})$ und $U_2(\Delta\phi^{(2)})$, die die Spannungen der Flüssigkristallarrays steuern.

Es sollte nach jeder Justage des Pulsformeraufbaus eine Neukalibrierung durchgeführt werden. Um die oben beschriebene Berechnung der Eichfunktion zu erleichtern, wurde ein Programm unter Labview 5.1 geschrieben, das die einzelnen Schritte anpasst und die Funktionen $S_1(\Delta\phi^1)$ und $S_2(\Delta\phi^2)$ in eine Datei schreibt (*“look-up-table”*). Bei jeder Ansteuerung des Modulators kann somit der entsprechende Steuerwert ausgelesen werden.

Der SLM besitzt einen zusätzlichen Kalibrierpixel, der mit 2×2 mm deutlich größer ist als die anderen Streifen und elektrisch mit Streifen 128 verbunden ist. Es hat sich gezeigt, dass die Position des Modulators nach der Kalibrierung nicht verändert werden sollte. Daher hat es sich als zweckmäßig erwiesen, die Kalibrierung mit dem gesamten Array durchzuführen. Die Abweichung der Transmissionskurven über die Bandbreite des Lasers beträgt etwa 1% [134].

Es muss darauf geachtet werden, dass die Ansteuerung den mittleren Bereich der Eichkurve verwendet. Die maximal notwendige Phasenretardierung beträgt $\Delta\phi = 9.42$ rad. Es wird daher nur ein Teil der Eichkurve benötigt. Es sollte der mittlere Ansteuerbereich gewählt werden, in dem der exponentielle Abfall und damit die Dynamik groß sind, d.h. für einen gegebenen Phasensprung bedarf es nur einer kleineren Spannungsänderung. Bei zu hohen Spannungen können Feldübergriffe in den Gaps (Raum zwischen den Streifen) auftreten. Diese sogenannten „transversalen Felder“ (*transverse fields*) [134] führen dazu, dass die Flüssigkristallmoleküle in x-Richtung gedreht werden und damit zusätzlich in die Ebene der Ausbreitungsrichtung verkippt werden. Dies bedeutet eine Änderung des Brechungsindex und damit eine Ungenauigkeit in der Ansteuerung. Bei zu niedrigen Spannungen wird die Antwortzeit des Displays zu lang.

4.2.5 Diskrete Pulsformung

In Kapitel 4.1.2 wurde das spektral modulierte Feld beschrieben durch

$$\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega) \cdot \tilde{H}(\omega). \quad (4.54)$$

Die komplexe Modulationsfunktion $\tilde{H}(\omega) = R(\omega) \cdot e^{-i\psi(\omega)}$ ergibt sich aus der Fouriertransformation der gewünschten zeitlichen Pulsform $E_{out}(t)$. In diesem Sinne ist $H(\omega)$ die ideale Modulationsfunktion, die die physikalischen Grenzen von Filtermaske und Pulsformer-Aufbau nicht berücksichtigt.

Die Modulatormaske besteht aus 128 Streifen der Breite $\delta x = 100 \mu\text{m}$, d.h. die Modulationsfunktion muß diskretisiert werden. Die diskrete Maskenfunktion wird $M(\omega)$ genannt, die Frequenzbreite eines Streifens $\delta\omega$. Im folgenden werden die Auswirkungen der Diskretisierung auf die erzeugte Pulsform beschrieben. Der Null-Dispersions-Kompressor hat eine endliche Frequenz-Auflösung in der Fourierebene, die zu einer Verschmierung der diskreten Struktur führen kann. Das real modulierte elektrische Feld wird dann gemäß

$$\tilde{E}_{out}^{real}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega) \cdot \tilde{M}_{eff}(\omega) \quad (4.55)$$

durch eine effektive Maskenfunktion $\tilde{M}_{eff}(\omega)$ beschrieben.

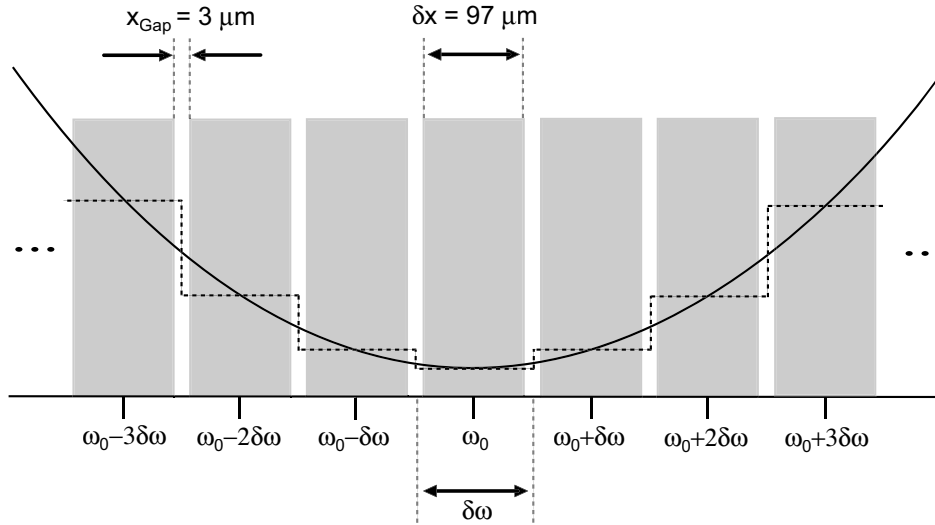


Abbildung 4.17: Diskretisierung der Maskenfunktion. Die Streifenbreite δx definiert die Schrittweite $\delta\omega$ der Frequenzachse. Zur Illustration ist eine quadratische Phasenfunktion und die sie approximierende Stufenfunktion eingezeichnet. Die Breite der Blindbereiche zwischen den Streifen beträgt $x_{Gap} = 3 \mu\text{m}$.

Die Diskretisierung der Phasenmaske

Die Modulatormaske besteht aus 128 transparenten Elektrodenstreifen der Breite $\delta x = 97 \mu\text{m}$, die jeweils durch kleine transparente nicht-modulierende Blindbereiche (*gaps*) getrennt sind (siehe Abbildung 4.17).

Die Maskenfunktion $M(\omega)$ ergibt sich aus der Diskretisierung der komplexen Transmission jeder Frequenzkomponente $H(\omega)$:

$$\tilde{M}(\omega) = \left(\tilde{H}(\omega) \cdot \sum_{n=-N/2}^{N/2-1} \delta(\omega - n\delta\omega) \right) * \text{rect}\left(\frac{\omega}{\delta\omega}\right) \quad (4.56)$$

$\delta(x)$ ist die Dirac'sche Deltafunktion, die sich die Werte von $\tilde{H}(\omega)$ an den Stellen $n\delta\omega$ "herauspickt". Die Faltung (Symbol: $*$) mit der Rechteckfunktion $\text{rect}(x)$, deren Wert für $|x| < \frac{1}{2}$ $\text{rect}(x) = 1$ beträgt und sonst verschwindet, führt zu einer Übertragung der erhaltenen Werte auf den Bereich zwischen $(n - \frac{1}{2})\delta\omega$ und $(n + \frac{1}{2})\delta\omega$. Die spektrale Breite eines durch einen einzelnen Streifen tretenden Frequenzbündels ist $\delta\omega$.

Von besonderem Interesse ist nun der Einfluß der Diskretisierung auf die zeitliche Struktur der Pulse. Die Fouriertransformation des modulierten spektralen Feldes $\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{M}(\omega) \cdot \tilde{E}_{in}(\omega)$ liefert den gesuchten Ausdruck [3]:

$$E_{out}(t) = E_{in}(t) * \left[\left(\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \sum_{m=-\infty}^{\infty} h\left(t - m \frac{2\pi}{\delta\omega}\right) \right) \cdot \text{sinc}\left(\frac{\delta\omega t}{2}\right) \right] \quad (4.57)$$

Dabei wird $h(t)$, die Fouriertransformierte von $\tilde{H}(\omega)$, als Antwortfunktion (*impulse response function*) bezeichnet. Das Resultat einer diskreten Modulationsfunktion läßt sich nun

ablesen. Dazu vergleicht man den Ausdruck mit der Gleichung

$$E_{out}(t) = E_{in}(t) * h(t), \quad (4.58)$$

die das elektrische Feld für eine nichtdiskrete Phasenmodulation $\tilde{H}(\omega)$ angibt. Zwei Unterschiede sind festzustellen: Die Summation über m und die Multiplikation mit einer sinc-Funktion ($\text{sinc}(x) = \frac{1}{x} \sin(x)$).

1. Die Summation bewirkt, dass zur Intensitätsverteilung in Gleichung 4.58 sogenannte Replika-Pulse hinzukommen: Identische Pulse, die im Abstand $\Delta t = \frac{2\pi}{\delta\omega}$ vor und nach dem eigentlichen Puls erscheinen.
2. Die Multiplikation mit der sinc-Funktion führt dazu, dass die Intensitäten der Replika zu beiden Seiten nach außen hin stark abnehmen. Die Nullstellen der sinc-Funktion $t_0 = \frac{2\pi}{\delta\omega}$ sind identisch mit den Zeitpunkten der Replika. Damit wird die Erzeugung der Replika weitestgehend unterdrückt, was sich allerdings ändert, wenn eine nicht-konstante Phasenfunktion angelegt wird.

Wie ist die Erzeugung der Replika und die Modulation durch die sinc-Funktion zu verstehen? Man betrachte die in Abbildung 4.17 dargestellte Pixelierung, durch die äquidistante Frequenzbündel der Breite $\delta\omega$ entstehen, deren Zentralfrequenzen sich ebenfalls jeweils um $\delta\omega$ unterscheiden. Hinter dem zweiten Gitter (entspricht Fouriertransformation) interferieren die zu den äquidistanten Frequenzbündeln gehörigen phasengekoppelten Wellenzüge. Analog zur Erzeugung von fs-Pulsen im Oszillator eines fs-Lasers (siehe zum Beispiel [106]) führt diese Interferenz zu Pulszügen, deren Pulse einen Abstand von $\Delta t = \frac{2\pi}{\delta\omega}$ aufweisen.

Die sinc-Funktion ist auf die Rechteck-Funktion der einzelnen Frequenzbündel zurückzuführen. Jeder Streifen "schneidet" dem jeweiligen Wellenzug ein rechteckiges Spektrum heraus. Die Fouriertransformierte eines rechteckigen Spektrums ist eine sinc-Funktion, wobei gilt: Ist die Breite des Rechtecks $\delta\omega$, so ist die Fouriertransformierte $F(t) \propto \text{sinc}(\delta\omega \frac{t}{2})$ [107]. Deren erste Nullstelle befindet sich bei $t_0 = \frac{2\pi}{\delta\omega}$. Damit ist die Pulsform eines jeden Streifens das zeitliche Analogon zur Beugungsfunktion hinter einem Spalt, die bekanntlich sinc-förmig verläuft.

Der "eigentümliche" Sachverhalt, dass sich sowohl Replika als auch Nullstelle an der selben Stelle befinden, begründet sich also aus der Tatsache, dass Streifenbreite und Abstand der Streifenbreiten identisch gleich $\delta\omega$ sind. Der gesamte Sachverhalt ist in Abbildung 4.18 festgehalten.

Die Formung eines Pulses ist auf den zeitlichen Bereich $\Delta t = \frac{2\pi}{\delta\omega}$ begrenzt. Dieser wird um so größer, je kleiner $\delta\omega$ wird. Im vorliegenden Fall errechnet sich ein freies Zeitfenster der Pulsformung von $\Delta t = 5.8$ ps. Für größere Bandbreite von etwa $\Delta\lambda \approx 40$ nm (in Kombination mit dem gefalteten Null-Dispersions-Kompressor, siehe Abschnitt 4.2.2) reduziert sich das Kontrollfenster auf $\Delta t \approx 2$ ps.

Endliche Breite der Frequenzkomponenten

Bei der bisherigen Ableitung der Diskretisierungseffekte wurde vorausgesetzt, dass die Breite einer einzelnen Frequenzkomponente in der Fourierebene unendlich klein ist. Tatsächlich besitzt im Experiment jede Frequenzkomponente allerdings einen endlichen Durchmesser w_0 , der zu einer Verschmierung der diskreten SLM-Struktur führt. Der effektive Modulationsfilter M_{eff} lässt sich schreiben als Faltung der räumlichen Modulationsfunktion $M(x)$ (komplexe

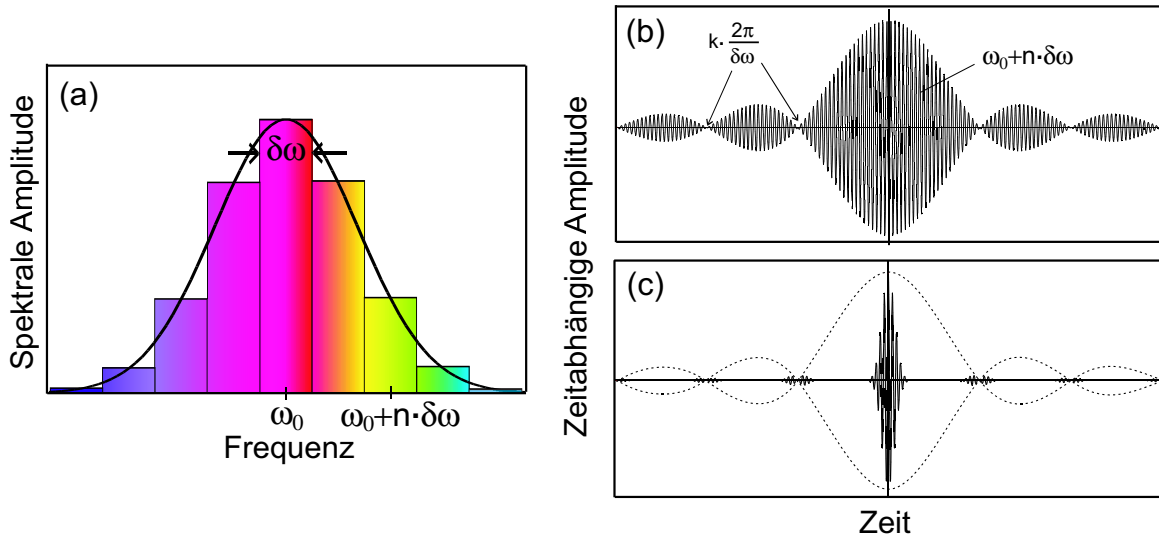


Abbildung 4.18: Auswirkungen der diskretisierten Maskenfunktion auf die Pulsstruktur. (a): Discretisiertes Pulsspektrum in der Fourierebene. Die Breite eines Frequenzbündels beträgt $\delta\omega$. (b): Pulsform eines einzelnen Frequenzbündels nach Durchgang durch einen rechteckigen Streifen. Die Nullstellen befinden sich bei $t_0 = k \cdot \frac{2\pi}{\delta\omega}$ mit $k \in \mathbb{N}$. (c): Überlagerung aller 128 Teilwellen aus (b), wobei deren Frequenzdifferenz nach (a) $\Delta\omega = \delta\omega$ beträgt. Die Replika-Pulse entstehen bei $\Delta T = k \cdot \frac{2\pi}{\delta\omega}$ und sitzen damit in den Nullstellen der sinc-Funktion.

Transmission am Ort x der physikalischen Maske) mit dem Gaußförmigen Strahlprofil der einzelnen Frequenzkomponenten im Fokus [3, 127]:

$$\tilde{M}_{eff}(\omega) = \int M(x) \cdot e^{-2(x-\alpha\omega)^2/w_0^2} dx \quad (4.59)$$

Dabei ist α die in Gleichung 4.33 definierte räumliche Dispersion. Die Auflösung w_0 des Gitter- und Linsen-Aufbaus hängt im wesentlichen von der Linsenbrennweite und dem Strahlprofil vor dem ersten Gitter ab. Falls die Maske feinere Strukturen als w_0 aufweist, „verschmiert“ die Faltung diese Strukturen, so dass die spektral feinstmöglichen Formen der Maske auf eine Breite der Ordnung w_0/α begrenzt werden [3].

Unter Berücksichtigung der durch Gleichung 4.59 beschriebenen Faltung erhält man im Ausdruck für den modulierten Puls in der Zeit einen zusätzlichen Term: Gleichung 4.57 wird multipliziert mit einer zeitabhängigen Gaußfunktion der Form $\exp(-w_0^2 t^2 / 8\alpha^2)$ [133, 135, 3].

Im vorliegenden Fall bleibt die Spotgröße w_0 unter der Breite δx der Modulatorstreifen. In erster Näherung ergibt die Fokussierung eines Gaußstrahls (Strahldurchmesser w_{in}) mit einer Linse der Brennweite f eine Spotgröße [132]

$$w_0 = \frac{\lambda f}{\pi w_{in}}. \quad (4.60)$$

Mit $f = 200$ mm und $\lambda_0 = 770$ nm findet man $w_0 = 25$ μm . Zusammen mit der räumlichen Dispersion $\alpha = \frac{dx}{d\omega} = 9.218 \cdot 10^{17}$ ms (Abschnitt 4.2.2) ergibt sich eine Breite der Gaußfunktion (proportional zum Verhältnis von Spotgröße zu Streifenbreite ($\frac{w_0}{\delta x}$)) in der Größenordnung der sinc-Funktion. Wegen des schnelleren Abfalls der Gaußfunktion werden allerdings die ersten Replika zusätzlich verringert, während die übrigen Replika komplett unterdrückt werden.

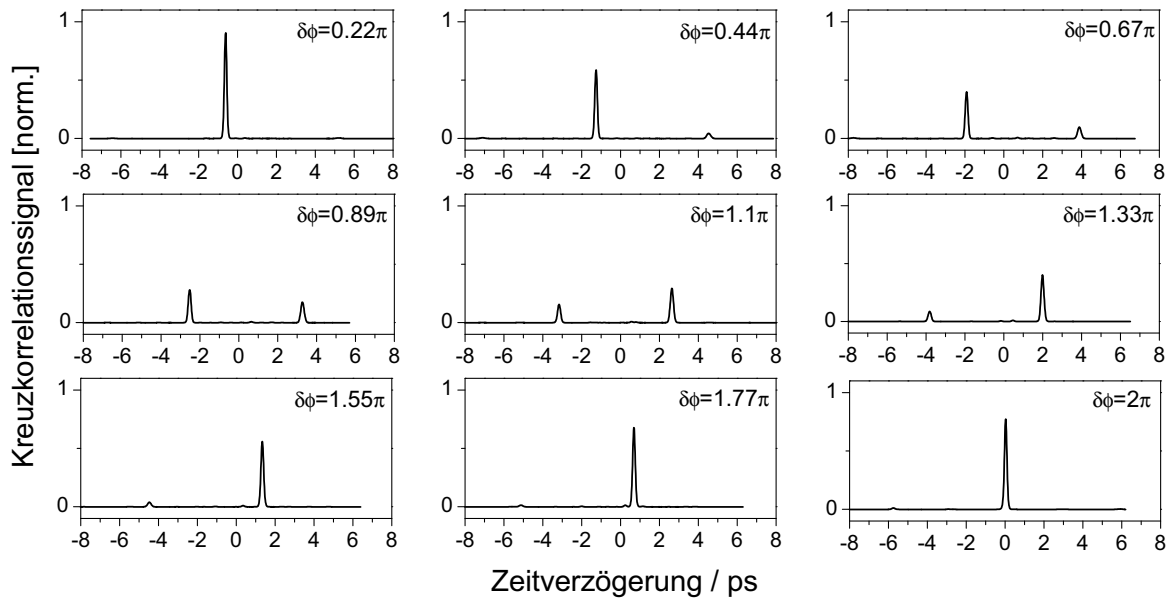


Abbildung 4.19: Kreuzkorrelationen von linear phasenmodulierten fs-Pulsen. Die lineare Phasenfunktion $\psi(\omega) = \tau\omega$ ist steigend. Die Phasendifferenz zwischen zwei Modulatorpixeln wird jeweils um $\delta\psi = 0.22\pi$ erhöht. Der Puls wird gemäß $\tau = \frac{\delta\psi}{\delta\omega}$ zeitlich verschoben. Mit zunehmender Steigung entstehen in einem Abstand von $\Delta t = \frac{2\pi}{\delta\omega} = 5.77$ ps Replika-Pulse. Für $\delta\psi = \pi$ sind zwei gleich intensive Pulse entstanden, und nach $\delta\psi = 2\pi$ ist der Replikapuls zum „Hauptpuls“ geworden.

Zur Vollständigkeit sei noch auf zwei weitere Effekte der diskretisierten Maskenform hingewiesen (eine analytische Ableitung findet sich in [133]). Die **Blindbereiche** der Breite x_{Gap} zwischen den Elektroden (Abbildung 4.17) führen zu einem Abbild des Eingangspulses mit verringerter Amplitude, das sich im Zentrum der Pulsform befindet (falls sie transparent sind) [133]. Aufgrund der endlichen Breite w_0 werden alle Frequenzkomponenten des Spektrums von den Blindbereichen unmoduliert transmittiert und können hinter dem zweiten Gitter zu einem Abbild des Eingangspulses interferieren.

Aufgrund von Beugungseffekten an den Streifengrenzen kommt es zu einer Kopplung des modulierten Ausgangsfelds in Raum und Zeit. Die Frequenzkomponenten werden aufgrund der scharfen Phasen- und Amplitudenstufen an den Streifengrenzen unterschiedlich stark gebeugt und führen hinter dem zweiten Gitter zu sowohl räumlich als auch zeitlich geformten Pulsstrukturen. Für eine detaillierte Beschreibung der Raum-Zeit-Kopplungseffekte siehe [133].

Zeitliche Verschiebung durch lineare Phasenmodulation

In diesem Unterkapitel werden die Auswirkungen der Diskreten Natur der Phasenfunktion auf die Pulsformung am Beispiel einer einfachen Phasenmodulation untersucht: Die Pulsverschiebung durch eine lineare Phasenfunktion.

Die Modulationsfunktion einer linearen Phasenrampe lautet $\tilde{H}(\omega) = e^{-i\tau\omega}$. Nach dem 1. Verschiebungssatz der Fouriertransformation [107] erzeugt eine lineare Phasenmodulation beim Ausgangsfeld $\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega) \cdot \tilde{H}(\omega)$ wegen $E_{out}(t) = E_{in}(t) * \delta(t - \tau) = E_{in}(t - \tau)$ eine Verschiebung des Pulses in der Zeit um $\Delta t = -\tau$. Einsetzen der linearen Modulation in Gleichung 4.56 liefert die diskretisierte Filterfunktion $\tilde{M}(\omega)$

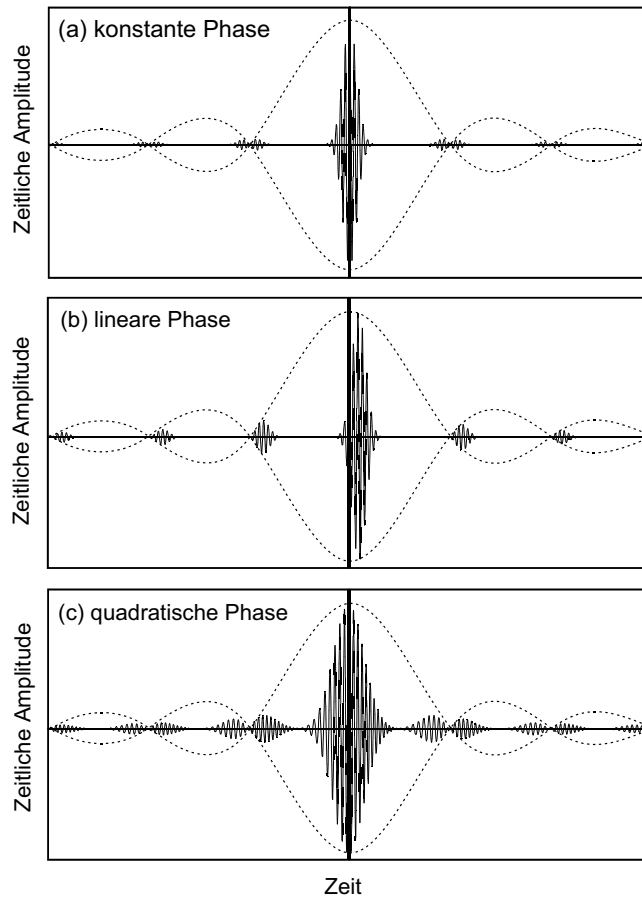


Abbildung 4.20: Zustandekommen der Replikapulse bei diskretisierter linearer und quadratischer Phasenmodulation. (a): Bei einer konstanten Phase sitzen die Replika in den Nullstellen der sinc-Einhüllenden. (b): Die lineare Phase verschiebt das Interferenzmuster und damit die Replikapulse aus den Nullstellen. (c): Die quadratische Phase verbreitert auch die Replikapulse in den Nullstellen.

$$\tilde{M}(\omega) = \left(\sum_{n=-N/2}^{N/2} e^{-in\delta\omega\tau} \delta(\omega - n\delta\omega) \right) * \text{rect}\left(\frac{\omega}{\delta\omega}\right) \quad (4.61)$$

Für $\tau = l \cdot \frac{2\pi}{\delta\omega}$ ($l \in \mathbf{Z}$) bewirkt die Filterfunktion keine Phasenmodulation, d.h der Ausgangspuls entspricht wieder dem Eingangspuls.

In Abbildung 4.19 sind Kreuzkorrelationen linear phasenmodulierter Pulse dargestellt, die bei einer Zentralwellenlänge $\lambda_0 = 770$ nm und einer spektralen Breite von $\Delta\lambda = 8.5$ nm ($\Delta\omega = 2.64 \cdot 10^{13}$ Hz) aufgenommen wurden.

Es ist eine Abfolge von Pulsen mit steigender linearer Phasenrampe aufgetragen. Die Phasendifferenz $\delta\psi$ zwischen zwei benachbarten Modulatorstreifen wird dabei jeweils um $\delta\psi = 0.22 \pi$ erhöht. Der Puls schiebt zunächst linear zu negativen Zeiten, ohne dass ein Einfluss der Pixelierung zu bemerken ist. Bald entstehen jedoch Vor- und Nachpulse unterschiedlicher Intensität in einem Abstand von $\Delta t = 5.77$ ps vom Hauptpuls. Aus Gleichung 4.57 ist bekannt, dass der Abstand zwischen Puls und erstem Replika $\Delta t = \frac{2\pi}{\delta\omega}$ beträgt. Der daraus errechnete Wert $\Delta t = 5.78$ ps steht damit in guter Übereinstimmung.

Während der Puls zeitlich verschoben wird, sinkt die Intensität und wird auf die entstehenden Satellitenpulse verteilt. Der erste Nachpuls wächst langsam an, bis bei $\delta\psi = \pi$ Hauptpuls und Nachpuls gleich intensiv sind. Man beachte, dass hier die Kreuzkorrelations-Intensität aufgetragen ist, die quadratisch mit der Pulsintensität skaliert. Daher erscheinen die beiden Zwillingspulse bei $\delta\psi = \pi$ deutlich kleiner als der halbe Hauptpuls. Die Breite des Pulses nimmt leicht von $\Delta t = 126$ fs auf $\Delta t = 150$ fs zu. Der Nachpuls bewegt sich auf den Zeitnullpunkt zu und übernimmt die Funktion des Hauptpulses. Allerdings sind auch hier bereits Replikapulse zu erkennen. Der Ausgangspuls entspricht zum ersten Mal bei einer Phasendifferenz $\delta\psi \approx 2\pi$ wieder dem Eingangspuls (siehe Abbildung 4.19), wie es die Theorie voraussagt. Die Intensität der ersten Replika hat sich etwa auf die Hälfte gegenüber dem Eingangspuls reduziert. Zudem hat sich der Puls leicht verbreitert. Diese beiden Effekte sind darauf zurückzuführen, dass in unserer bisherigen Beschreibung die Diskretisierung als äquidistant angenommen wurde. Tatsächlich ist die Winkeldispersion geringfügig nichtlinear, was zu einer nicht-äquidistanten Diskretisierung führt. Als Folge werden die Pulse bei $\tau = l \cdot \frac{2\pi}{\delta\omega}$ nicht mehr vollständig komprimiert. Dieser Effekt nimmt zu, wenn Pulse großer Bandbreite verwendet werden.

Warum entstehen nun bei einer linearen Phasenfunktion derart ausgeprägte Replikapulse? In Abbildung 4.18 wurde gezeigt, dass die Replikapulse in den Nullstellen der sinc-Funktion sitzen. Legt man nun eine lineare Phasenfunktion an, so verschiebt sich das gesamte Interferenzmuster zeitlich. Da allerdings die Streifenbreite unverändert bleibt, ändert sich die Position der sinc-Modulation nicht. Damit können die Replikapulse aus den Nullstellen laufen und in Erscheinung treten. Auf der anderen Seite wird nun auch die Intensität des Hauptpulses durch die Einhüllende der sinc-Funktion moduliert. Abbildung 4.20 zeigt Simulationen der Interferenz- und Beugungsmuster für eine konstante Phase (a), eine lineare Phase (b) und eine quadratische Phase (c). Im letzteren Fall werden die Pulse zwar nicht verschoben, die Replika können aber zum Vorschein kommen, da aufgrund des linearen Chirps der quadratischen Phase eine Pulsverbreiterung eintritt, die in gleicher Weise für die Replikapulse zutrifft.

4.2.6 Nyquists Grenze der Pulsformung

Durch die Diskretisierung der Phasenfunktion sind der Erzeugung von Pulsformen Grenzen gesetzt. In diesem Abschnitt werden die Grenzen für lineare und quadratische Phasenfunktionen hergeleitet. Die Verschiebung durch eine lineare Phase wurde bereits diskutiert. In den Abschnitten 4.4.2 und 4.4.3 werden die gemessenen Pulsformen vorgestellt.

Die Ursache für die Limitierung möglicher Pulsformen liegt in Nyquist's Sampling Theorem begründet und ist in der Theorie der diskreten Fouriertransformation als *aliasing* bekannt (siehe zum Beispiel [107]). Jede Modulationsfunktion muss auf die 128 Stützpunkte der Modulatorpixel diskretisiert werden. Das Sampling Theorem besagt, dass jede Periodische Funktion mindestens durch 2 Stützpunkte pro Periode dargestellt werden muss, um Eindeutigkeit zu gewährleisten. Die Samplingfrequenz ν_{smp} legt also eine Grenzfrequenz, die sogenannte Nyquistfrequenz $\nu_{Ny} = \frac{\nu_{smp}}{2}$, fest. Zwei Stützpunkte pro Periode bedeutet mindestens zwei über eine Periode von 2π . Die Phasenfunktion des Pulsformers muss also derart beschaffen sein, dass ein Phasenhub von $\Delta\psi = 2\pi$ mindestens über zwei Pixel verläuft, d.h. die Phasendifferenz zwischen zwei benachbarten Pixeln $\delta\psi$ darf π nicht überschreiten:

$$\delta\psi < \pi \quad (4.62)$$

Es können folglich nur Phasenfunktionen eindeutig abgebildet werden, deren Steigung $\frac{d\psi}{d\omega} < \pi$

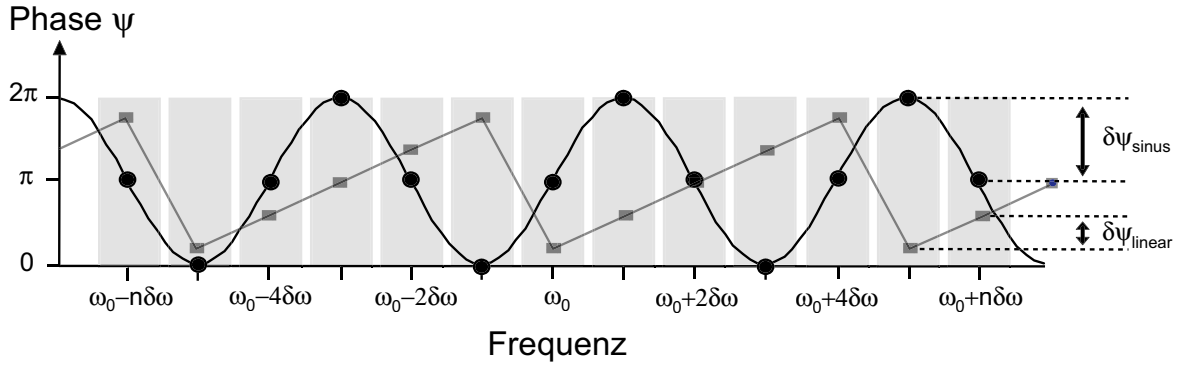


Abbildung 4.21: Erklärung der Nyquist-Grenze der Pulsformung. Die hellgrauen Kästchen symbolisieren die Modulatorstreifen. Eine sinusförmige Phasenmodulation maximaler Frequenz (Nyquist-Frequenz) ist eingezeichnet. Der Phasenhub zweier benachbarter Stützpunkte (Kreise) beträgt $\delta\psi_{\text{sinus}} = \pi$. Die Steigung der linearen Phasenmodulation (graue Kästchen) liegt deutlich unter der Nyquist-Grenze ($\delta\psi_{\text{linear}} < \pi$).

erfüllt.

- Eine **lineare Phasenmodulation** wird beschrieben durch

$$\psi(\omega) = b_1(\omega - \omega_0) \quad (4.63)$$

Die Größe hängt lediglich von der Frequenzdifferenz zur Zentralfrequenz ω_0 ab. Die diskretisierte Phasenfunktion lautet:

$$\psi_n = b_1 \delta\omega \left(n - \frac{N}{2}\right), \quad n \in 0, \dots, N = 128 \quad (4.64)$$

Auf der anderen Seite lässt sich die diskrete Phasenrampe auch ausdrücken als

$$\psi_n = \delta\psi \left(n - \frac{N}{2}\right), \quad n \in 0, \dots, N = 128 \quad (4.65)$$

Der Vergleich liefert $\delta\psi = b_1 \delta\omega$, womit

$$b_1 = \frac{\delta\psi}{\delta\omega} \quad (4.66)$$

Mit Nyquists Bedingung $\delta\psi < \pi$ (Gleichung 4.62) findet sich dann die maximal mögliche Verschiebung zu

$$b_1^{\text{max}} = \frac{\pi}{\delta\omega} = \frac{1}{2\delta\nu} \quad (4.67)$$

Damit ist $b_1^{\text{max}} = \frac{1}{2}\Delta t_{\text{Replika}}$ der halbe zeitliche Abstand der Replikapulse.

Für den vorliegenden Aufbau ergibt sich ($\delta\lambda = 0.342 \text{ nm}$)

$$b_1^{\text{max}} = 2.89 \text{ ps} \quad (4.68)$$

- Die **quadratische Phasenfunktion** wird beschrieben durch

$$\psi(\omega) = \frac{1}{2!} b_2 (\omega - \omega_0)^2 \quad (4.69)$$

Die Diskretisierung führt analog zur linearen Phase auf

$$\psi_n = \frac{1}{2!} b_2 \delta\omega^2 \left(n - \frac{N}{2}\right)^2 \quad (4.70)$$

und durch Vergleich mit $\psi_n = \delta\psi \left(n - \frac{N}{2}\right)^2$ auf

$$b_2 = \frac{2\delta\psi}{\delta\omega^2} \quad (4.71)$$

Um die maximal mögliche quadratische Phasenmodulation und damit linearen Chirp zu bestimmen, betrachtet man die größte Phasendifferenz zweier Streifen, die bei einer quadratischen Funktion an den Rändern liegt. Nyquists Grenze fordert dann

$$\Delta\psi_{N,N-1} \leq \pi \quad (4.72)$$

Einsetzen von Gleichung 4.70 liefert den maximal möglichen linearen Chirp

$$b_2^{max} = \frac{2\pi}{(N-1)\delta\omega^2} = 4.2 \cdot 10^4 \text{ fs}^2 \quad (4.73)$$

Die angegebene Zahl bezieht sich auf den vorliegenden Pulsformer.

- Die kubische Phasenmodulation

$$\psi(\omega) = \frac{1}{3!} b_3 (\omega - \omega_0)^3 \quad (4.74)$$

wird analog berechnet und führt auf

$$b_3^{max} = \frac{6\pi}{\left(\frac{4}{4}N^2 - \frac{3}{2}N - 1\right)\delta\omega^3} = 1.2 \cdot 10^6 \text{ fs}^3 \quad (4.75)$$

Die Maximalwerte der Taylorkoeffizienten spielen eine wichtige Rolle in der Phasenkompensation von fs-Pulsen. In Kapitel 5.4 wird die Rekompensation eines dispersionsverbreiterten Pulses vorgestellt und die Grenzen der Rekompensation benannt. Die hier gefundenen Maximalwerte hängen linear von der Anzahl der Modulatorstreifen N ab. Steigt die Anzahl der Streifen an, so können bei gleichem Spektrum größere Werte der Taylorkoeffizienten erzielt und damit größere Chirps kompensiert werden. Wird allerdings das verwendete Pulsspektrum bei gleichbleibender Streifenanzahl N erhöht, so verringern sich die maximal möglichen Parameterwerte. Gleichzeitig kann nur eine Vergrößerung des Spektrums zu einer Verbesserung der Zeitauflösung innerhalb der Pulsform führen.

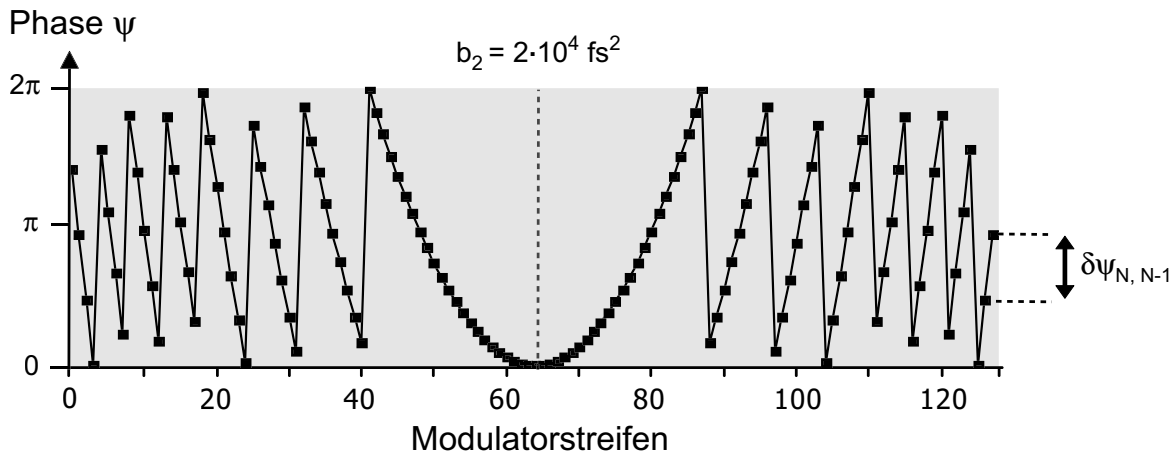


Abbildung 4.22: Quadratische Phasenmodulation am Modulator mit einer Steigung von $b_2 = 2 \cdot 10^4 \text{ fs}^2$. Der durch die Nyquist-Grenze gegebene maximale Phasenhub zweier benachbarter Stützpunkte an den Rändern der Modulationsfunktion beträgt $\delta\psi_{N, N-1} = \pi$.

4.3 Charakterisierung der Pulsform

Bevor einige ausgewählte Pulsformen vorgestellt und diskutiert werden (siehe Kapitel 4.4), muss erläutert werden, wie geformte fs-Pulse vermessen und charakterisiert werden können. Eine Charakterisierung des Pulses bedeutet die Bestimmung des Intensitäts- und Phasenverlaufs. Allgemein gilt, dass keine Messgeräte (Messelektronik, schnelle Photodioden etc.) schnell genug sind, um die fs-Zeitskala aufzulösen. Daher wird in den meisten Fällen der fs-Puls mit einem zweiten ebenfalls ultrakurzen Puls abgetastet. Es hat in den letzten Jahren eine Vielzahl von neuen und vielversprechenden Entwicklungen sowohl zur zeitlichen als auch zur spektralen fs-Puls-Charakterisierung gegeben (siehe zum Beispiel [136]). Besonders die Bestimmung des Phasenverlaufs spielt dabei eine zentrale Rolle. Die bedeutendste Entwicklung der letzten Jahre ist sicherlich der FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*) [137, 138]. Diese Methode wird in dieser Arbeit angewendet und in Abschnitt 4.3.3 erläutert. Andere Methoden bestimmen die Intensität und Phase des elektrischen Feldes mittels spektraler Interferometrie (SI). Das Verfahren des SPIDER (*Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction*) zum Beispiel nutzt aus, dass die spektrale Phase aus dem Interferenzmuster zweier frequenzverschobener Pulse analytisch berechnet werden kann [139]. Zwei identische zeitverschobene Testpulse werden in einem nichtlinearen Kristall mit einem stark gechirpten Puls überlagert, so dass durch Summenfrequenzerzeugung (SFG=*Sum Frequency Generation*) zwei spektral leicht verschobene Pulse entstehen, die über ein optisches Gitter laufen und zur Interferenz gebracht werden. Das Interferogramm wird mit einer CCD-Zeile ausgelesen und kann analytisch in das komplexe spektrale Feld des Testpulses umgerechnet werden. Der Vorteil der Methode ist, dass die Phasen- und Amplitudenfunktion des Testpulses online ausgelesen werden können. Der Nachteil liegt darin, dass der freie Zeitbereich und die Komplexität des Testpulses begrenzt sind. Damit eignet sich die Methode nicht zur Charakterisierung komplex geformter fs-Pulse.

Eine Kombination aus spektraler Interferometrie (SI) und FROG wird bei der TADPOLE-Methode (*Temporal Analysis by Dispersing a Pair Of Light E-fields*) verwendet [140]. Aus der

Pulsform	I(t)	$\frac{\Delta\tau}{\Delta t}$	$\Delta\nu\Delta t$
Gauß	$\exp(-\frac{4\ln 2 t^2}{\Delta t^2})$	$\sqrt{2}$	0.441
Secans hyperbolicus	$sech^2(\frac{1.76t}{\Delta t})$	1.55	0.315

Tabelle 4.2: Pulsprofile für Gauß- und Secans hyperbolicus-Funktion mit den Umrechnungsfaktoren der Autokorrelationsbreiten und den Bandbreiten-Pulsbreitenprodukten [105].

spektralen Interferometrie des Testpulses mit einem Referenzpuls kann die Phasendifferenz der beiden Pulse ermittelt werden. Wird die Phase des Referenzpulses mit der FROG-Methode bestimmt, kann anschließend die Phase des Testpulses berechnet werden [140].

4.3.1 Autokorrelation

Die Standard-Methode zur Bestimmung der Pulslänge ist die Messung der Autokorrelation. Zwei identische Pulse werden in einem nichtlinearen Medium zeitlich und räumlich überlagert und das Signal als Funktion der Zeitverzögerung τ aufgezeichnet. Werden die beiden Pulse unter einem Winkel in den nichtlinearen Kristall fokussiert, und das UV-Licht der zweiten Harmonischen (SHG) detektiert, kann eine untergrundfreie Autokorrelation aufgenommen werden. Die gemessene SHG-Intensität als Funktion der Verzögerungszeit τ ist die sogenannte **Intensitäts-Autokorrelation** zweiter Ordnung [102]:

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (4.76)$$

Da die Autokorrelation zweiter Ordnung immer symmetrisch bezüglich τ ist, kann nur begrenzt auf die Form des Pulses geschlossen werden. Um die Pulsdauer zu bestimmen, muss daher ein Pulsprofil vorgegeben werden. Für ungeformte und linear gechirpte Pulse können der quadrierte Secans hyperbolicus ($sech^2$) und die Gaußfunktion verwendet werden. Aus der gemessenen Halbwertsbreite der Autokorrelation $\Delta\tau$ kann man dann die Pulslänge Δt mit der Halbwertsbreite des zeitlichen Intensitätsverlaufs identifizieren. Tabelle 4.2 zeigt die Intensitätsprofile und die zugehörigen Umrechnungsfaktoren.

Werden die beiden Teilpulse kollinear überlagert und gegeneinander verfahren, kann die Interferometrische Autokorrelation aufgenommen werden. Das untergrundbehaftete Signal unterliegt der Interferenz und zeigt eine schnelloszillierende Struktur. Aus dem Interferenzmuster können qualitative Phasen-Informationen einfach geformter Pulse gewonnen werden [141]. Details zur Theorie der Autokorrelation und dem verwendeten Autokorrelator siehe [104].

4.3.2 Kreuzkorrelation

Da die Autokorrelation nur sehr bedingt Rückschlüsse auf die Pulsform zulässt, bedient man sich zur Vermessung des zeitlichen Intensitätsverlaufs von geformten fs-Pulsen der Intensitäts-Kreuzkorrelation. Der Testpuls durchläuft den Pulsformer und wird mit dem Referenzpuls nicht-kollinear zeitlich und räumlich in einem BBO-Kristall überlagert. Als Referenzpuls dient der Puls direkt vom Titan:Saphir-Laser. Um die zeitliche Überlagerung zu erreichen, kann der Referenzpuls mit einer Verzögerungsstrecke gegen den Testpuls verschoben werden. Als Verzögerungsstrecke dient ein computergesteuerter Linearverstärker (für Details siehe [100]).

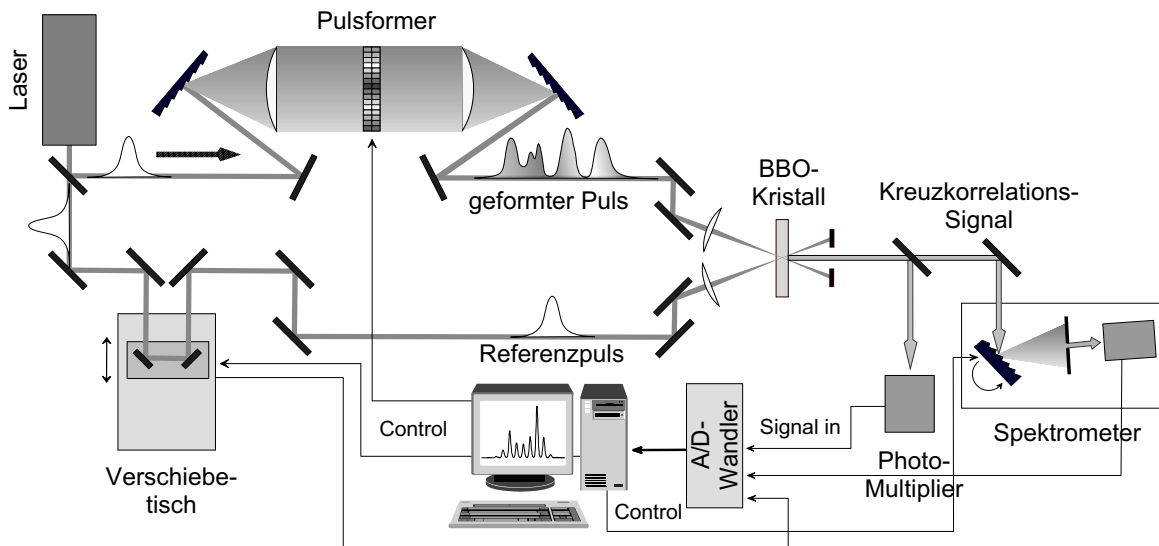


Abbildung 4.23: Schematische Darstellung des optischen Aufbaus zur Erzeugung einer Kreuzkorrelationsspur. Der Testpuls durchläuft den Pulserformer, wird moduliert und anschließend in einen BBO-Kristall fokussiert. Als Referenzpuls dient der Puls des Titan:Saphir-Lasers, der eine Verzögerungsstrecke durchläuft und anschließend in einem Verdoppler-Kristall (BBO) dem Testpuls räumlich und zeitlich überlagert wird. Das frequenzverdoppelte Kreuzkorrelationssignal wird von der Grundwelle getrennt und mit einem Photomultiplier gemessen. Damit ist eine untergrundfreie Kreuzkorrelationsmessung möglich. Um eine XFROG-Spur aufzunehmen (Kapitel 4.3.4), wird das Kreuzkorrelationssignal in einem Spektrometer spektral aufgelöst. Die Kreuzkorrelationsspuren in Abhängigkeit von der Wellenlänge ergeben die XFROG-Spur. Mit einem Phase-Retrieval Algorithmus kann die Amplitude und Phase des Pulses bestimmt werden.

Das frequenzverdoppelte Kreuzkorrelationssignal (UV) wird in Richtung der Winkelhalbierenden emittiert und ist somit räumlich von der Grundwellenlänge trennbar. Zudem können Frequenzfilter und dielektrische UV-Spiegel⁹ verwendet werden, um eine untergrundfreie Kreuzkorrelation zu gewährleisten. Die Intensität des Kreuzkorrelationssignals wird von einem Photo-Multiplier gemessen und als Funktion der zeitlichen Verzögerung τ zwischen den beiden Pulsen aufgenommen. Damit ergibt sich die Intensitäts-Kreuzkorrelationsspur [102]

$$A_{cc}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_s(t) I_r(t - \tau) dt \quad (4.77)$$

mit dem zeitlichen Intensitätsprofil $I_s(t)$ des geformten Pulses und dem Intensitätsprofil des Referenzpulses $I_r(t)$. Die Faltung mit der Intensität des Referenzpulses führt zu einer Verschmierung der Pulsstruktur. Die zeitlichen Abstände der Pulse innerhalb geformter Pulssequenzen bleiben jedoch unverändert. Für Testpulse, die deutlich länger sind als der Referenzpuls, entspricht die Kreuzkorrelation in erster Näherung dem zeitlichen Intensitätsprofil der Pulsform selbst. Die Intensitäts-Kreuzkorrelation allein enthält keine Informationen über den Phasenverlauf des Pulses. Dieser kann aus der XFROG-Spur bestimmt werden (siehe Abschnitt 4.3.4).

⁹Es handelt sich hierbei um dielektrisch beschichtete Spiegel, die lediglich in einem schmalen Frequenzband zwischen 370 und 420 nm reflektieren.

Die Ansteuerung des Linearverstellers wurde im Rahmen dieser Arbeit erweitert, um zeitlich hochaufgelöste Kreuzkorrelations-Spuren über viele ps sehr rasch vornehmen zu können. Dazu wird der Verschiebetisch mit konstanter Geschwindigkeit über die benötigte Strecke gefahren. Das Kreuzkorrelationssignal wird aufgezeichnet und zusammen mit der vom optomagnetischen Encoder des Linearverstellers erzeugte Ortsinformation im A/D-Wandler gespeichert. Im Anschluss an die Aufnahme kann das gesamte Spektrum ausgelesen werden. Somit können innerhalb von wenigen Sekunden untergrundfreie Kreuzkorrelationsspuren mit einer Auflösung von wenigen fs aufgenommen werden. Insbesondere wird dadurch die Aufnahme der XFROG-Spuren ermöglicht (siehe Abschnitt 4.3.4).

4.3.3 FROG

Der FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*) ist eine Methode zur Vermessung des Pulses in der gekoppelten Zeit-Frequenz-Domäne. Zunächst wird der zu vermessende Puls durch einen weiteren kurzen Puls (meist mit sich selbst) abgetastet (*to gate*). In den meisten Fällen wird das Autokorrelationssignal in einem nichtlinearen Kristall erzeugt und anschließend in einem Spektrometer spektral aufgelöst. Man erhält das Spektrogramm

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)g(t - \tau)e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (4.78)$$

wobei $g(t - \tau)$ die zeitabhängige Abtastfunktion ist. Im Falle eines SHG-Autokorrelators ist $g(t - \tau) = E(t - \tau)$, d.h. der Puls selbst. Das Spektrogramm enthält die Information zur Charakterisierung des Pulses. Da allerdings die Abtastfunktion der Puls selbst ist, kann ein gewöhnlicher Spektrogramm-Inversions-Algorithmus zur Bestimmung der Phase nicht verwendet werden. Die Lösung bietet ein *Phase-Retrieval*-Algorithmus [142]: Aus einem anfänglichen elektrischen Testfeld wird ein Spektrogramm berechnet und mit dem gemessenen Spektrogramm verglichen. Die Abweichung wird iterativ verringert, bis der Algorithmus konvergiert und aus elektrischen Testfeld die angenäherte Amplitude und Phase des Pulses entnommen werden kann. Gute Ergebnisse werden durch die Kombination mit „generalisierten Projektionen“ (*generalized projections*) [143] erreicht, die auch in dieser Arbeit verwendet werden [144]. Es können ebenso Genetische Algorithmen für die Rekonstruktion der Phase eingesetzt werden [145].

Einzelsschuss-SHG-FROG

Ein häufig eingesetzter FROG-Aufbau ist der Einzelsschuss-SHG-FROG (*single shot*) [146], der auch in dieser Arbeit verwendet wurde. Das Autokorrelationssignal wird entsprechend einem *single-shot*-Autokorrelator erzeugt. Der Puls wird mit einem Strahlteiler geteilt und beide Pulse unter einem Winkel von $\alpha = 25^\circ$ in einen BBO-Kristall fokussiert, wozu eine Zylinderlinse verwendet wird. Im Überlappungsgebiet entsteht das frequenzverdoppelte UV-Licht (SHG) und verlässt den Kristall aus Gründen der Impulserhaltung in Richtung der Winkelhalbierenden ($\frac{\alpha}{2}$). Gemäß dem Prinzip eines *single-shot*-Autokorrelators ist die zeitliche Intensitätsverteilung des Pulses nun in eine räumliche Intensitätsverteilung des SHG-Signals entlang der x-Richtung transformiert worden (siehe Abbildung 4.24). Mit einer CCD-Kamera kann diese Intensitätsverteilung gemessen werden. Abbildung 4.25 zeigt eine auf diese Weise erhaltene FROG-Spur. Gemessen wurde der ungeformte Puls des Oszillatorsystems, der als Referenzpuls für die Kreuzkorrelation dient.

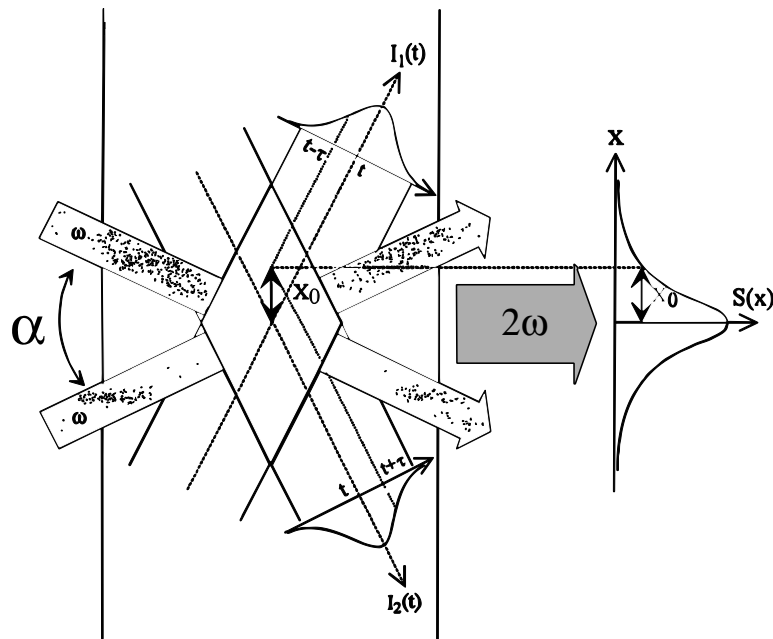


Abbildung 4.24: Prinzip eines Einzelschuss-Autokorrelators (single shot). Zwei Replika des zu vermessenden Pulses werden mit einer Zylinderlinse in einen nichtlinearen Kristall fokussiert. Aufgrund der Zylinderlinse ist die Ausdehnung des Strahlprofils deutlich breiter als die räumliche Ausdehnung des Pulses. Die Breite des Wechselwirkungsvolumens (schraffiert gezeichnet) in x -Richtung ist damit nur durch die zeitliche Struktur des Pulses bestimmt. Das frequenzverdoppelte Licht (UV) trägt die zeitliche Information des Pulses als räumliche Intensitätsverteilung in x -Richtung. Für einen Einzelschuss-SHG-FROG zerlegt ein nachgeschaltetes Gitter das UV-Licht in seine Frequenzkomponenten. Mit einer CCD-Kamera kann dann das Signal frequenz- und zeitaufgelöst aufgenommen werden (aus [106]).

Die Auswertung des Spektrogramms erfolgt mit dem kommerziell erhältlichen *phase-retrieval*-Algorithmus FROG 3.0 der Firma Femtosoftware. Um die Auswertung vornehmen zu können, müssen Zeit- und Wellenlängenachse der CCD-Kamera **kalibriert** werden. Für die Zeitachsen-Kalibrierung werden die Pulse stückweise gegeneinander verzögert. Dazu ist in dem einen Arm des FROG-Aufbaus eine Verschiebeeinheit mit Mikrometerschraube implementiert. Anhand der verschobenen FROG-Spur und der dazugehörigen Position der Verschiebeeinheit kann eine Zuordnung von zeitlicher Verschiebung der Pulse und räumlicher Verschiebung auf der CCD-Kamera hergestellt werden. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.26 (a) dargestellt. Aus der linearen Regression an die Stützpunkte ergibt sich ein zeitlicher Abstand pro CCD-Pixel von $\Delta t = 3.88 (\pm 0.18)$ fs.

Zur Kalibrierung der Wellenlängenachse wird die Wellenlänge des Titan:Saphir-Lasers verschoben und an einigen Stützpunkten FROG-Bilder aufgenommen. Das Ergebnis zeigt Abbildung 4.26 (b). Es ist jeweils der zentrale Pixel der FROG-Spur aufgetragen. Es ergibt sich für das frequenzverdoppelte UV-Licht ein spektraler Abstand zwischen zwei CCD-Pixeln von $\Delta \lambda = 0.041 (\pm 0.003)$ nm.

Eine Auswertung der SHG-FROG-Spur mit FROG 3.0 zeigt das rechte Bild in Abbildung 4.25. Im oberen Teilbild (b) ist die spektrale Intensität (durchgezogen) und die spektrale Phase (gestrichelt) eingezeichnet. Ein Polynom-Fit der Phase ergibt einen sehr schwachen linearen *down-chirp* von $b_2 \leq 900$ fs². Abbildung 4.25 (c) zeigt das zugehörige zeitliche Feld

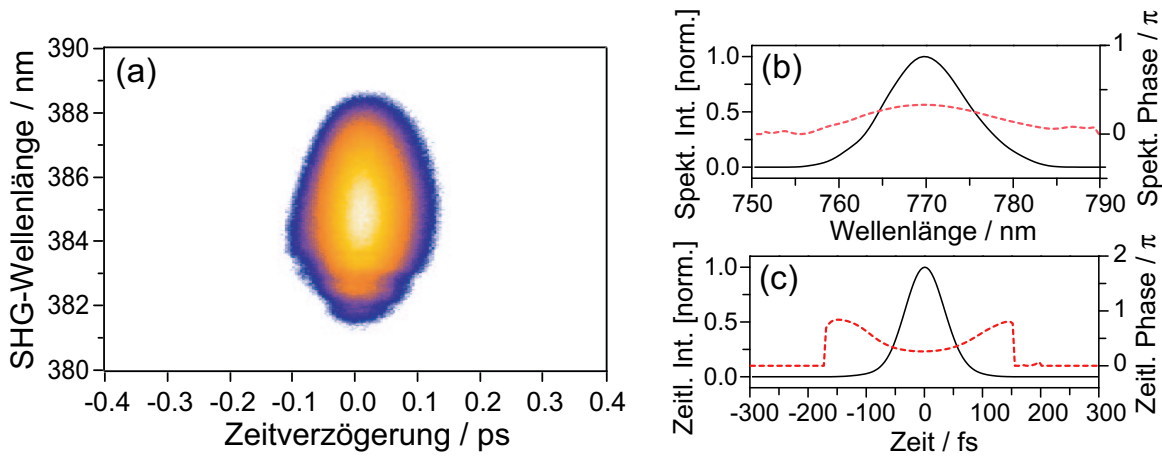


Abbildung 4.25: a: SHG-FROG-Spur des Referenzpulses direkt vom Oszillatorsystem. Im Einzelschuss-FROG wird die SHG-Intensität des Autokorrelationssignals (farblich kodiert) in Abhängigkeit von der Zeit (x-Achse) und der Wellenlänge (y-Achse) von der CCD-Kamera gemessen. Mit einem Phase-Retrieval-Algorithmus kann das elektrische Feld rekonstruiert werden. (b): Spektrale Intensität (durchgezogene Linie) und spektrale Phase (gestrichelt). (c): Zeitliche Intensität und zeitliche Phase. Der Puls ist nahezu ungechirpt ($b_2 \leq -900 \text{ fs}^2$).

ebenfalls in Intensität und Phase. Die Halbwertsbreite der Intensität ergibt eine Pulslänge von $\Delta t = 80 \text{ fs}$.

Neben dem SHG-FROG sind andere FROG-Geometrien entwickelt worden, die sich im wesentlichen durch die Abtastfunktion $g(t - \tau)$ unterscheiden. Insbesondere Signal-Nichtlinearitäten dritter Ordnung spielen aufgrund ihrer intuitiven FROG-Spur eine große Rolle, sind allerdings wegen der geringen Effizienz auf den Einsatz verstärkter Pulse im μJ - bis mJ -Bereich begrenzt. Einen Überblick über die verschiedenen FROG-Methoden gibt [147].

Der SHG-FROG ist ideal für die Charakterisierung von schwachen, d. h. unverstärkten fs-Pulsen, die keine komplexen Phasenmodulationen zeigen. Daher wird der SHG-FROG in dieser Arbeit zur Charakterisierung des Referenzpulses des Titan:Saphir-Lasers verwendet. Für die Charakterisierung komplex geformter Pulse ist diese Methode allerdings ungeeignet: Da die SHG einen nichtlinearen Prozess zweiter Ordnung darstellt, ist die FROG-Spur des SHG-FROG symmetrisch bezüglich des Zeitnullpunkts und beinhaltet damit eine Nichteindeutigkeit bezüglich der Zeitrichtung der Pulse. Zudem gewährt die SHG-FROG-Spur keinen direkten Einblick in das Zeitverhalten der Frequenzkomponenten des Pulses. Vielmehr können diese Informationen erst durch die algorithmische Bestimmung des Amplituden- und Phasenverlaufs (*phase retrieval*) erhalten werden. Aufgrund des begrenzten Zeitfensters des *single-shot*-FROG können geformte Pulse mit Pulslängen $\Delta t \geq 1 \text{ ps}$ nicht mehr vermessen werden. Für die Vermessung der in dieser Arbeit optimierten Pulsformen ist somit ein Scanverfahren notwendig (*multi shot*). Neben der frequenz aufgelösten Autokorrelation (*multi shot* SHG-FROG) bietet sich die frequenz aufgelöste Kreuzkorrelation (XFROG) an. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, dass das Spektrogramm direkt Aussagen über das zeitliche Frequenzverhalten der Pulsform zulässt und das elektrische Feld auch bei komplexen Pulsformen gut rekonstruiert werden kann. Letzteres gelingt insbesondere durch die Kombination mit dem SHG-FROG zur Charakterisierung des Referenzpulses.

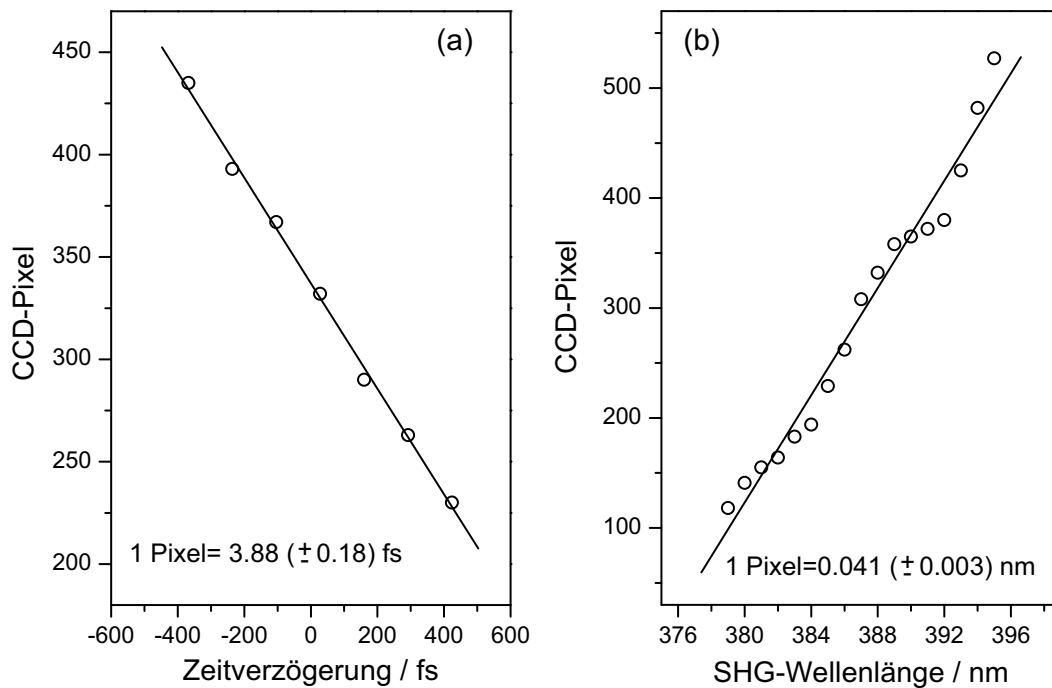


Abbildung 4.26: Kalibrierungskurven des SHG-FROG. (a): Kalibrierung der Zeitachse. Die Stützpunkte entsprechen den zeitlichen Verschiebungen der beiden Pulse im BBO-Kristall. Aus der linearen Regression ergibt sich $3.88 (\pm 0.18)$ fs pro Pixel. (b): Kalibrierung der Wellenlängenachse. Die Stützpunkte markieren den zentralen Pixel der FROG-Spur für die verschiedenen Zentralwellenlängen des TiSa-Lasers. Der Fit ergibt $0.041 (\pm 0.003)$ nm pro Pixel.

4.3.4 XFROG

Das frequenz aufgelöste Intensitäts-Kreuzkorrelationssignal wird XFROG-Spur¹⁰ genannt. Die XFROG-Methode eignet sich besonders gut zur Charakterisierung geformter fs-Pulse. Das Intensitäts-Kreuzkorrelationssignal (UV) wird wie in Abschnitt 4.3.2 beschrieben erzeugt und anschließend in einem Spektrometer spektral aufgelöst. In Abbildung 4.23 ist der experimentelle Aufbau zur Aufnahme der XFROG-Spur skizziert. Das Spektrometer wird in kleinen Wellenlängenintervallen $\Delta\lambda$ verfahren und für jedes $\Delta\lambda$ eine Kreuzkorrelationsspur aufgenommen. Aneinandergereiht ergibt sich die XFROG-Spur (Spektrogramm). Die Auflösung $\Delta\lambda = 0.02$ nm des Spektrometers (Wellenlängenscan) als auch $\Delta t < 0.5$ fs des Verschiebetisches (Zeitscan) erlauben eine der jeweiligen Pulsform angepasste Messung. Gute Ergebnisse lassen sich mit einer spektralen Auflösung von $\Delta\lambda = 0.1$ nm erzielen. Die gewählte zeitliche Auflösung der Kreuzkorrelationsscans variiert je nach Länge der Pulsstruktur zwischen $\Delta t = 5$ fs und $\Delta t = 30$ fs.

Ist der Testpuls zum Beispiel gechirpt, d.h. liegen die Frequenzen innerhalb der Pulsform zeitlich verschoben vor, so entspricht die spektrale Verteilung des Kreuzkorrelationssignals der Summenfrequenz der an jedem Zeitpunkt des gechirpten Pulses auftretenden Spektralkomponente mit dem gesamten Spektrum des nahezu transform-limitierten Refe-

¹⁰Eine ebenfalls gebräuchliche Bezeichnung für diese Methode ist STRUT (*Spectrally and Temporally Resolved Upconversion Technique*) [122].

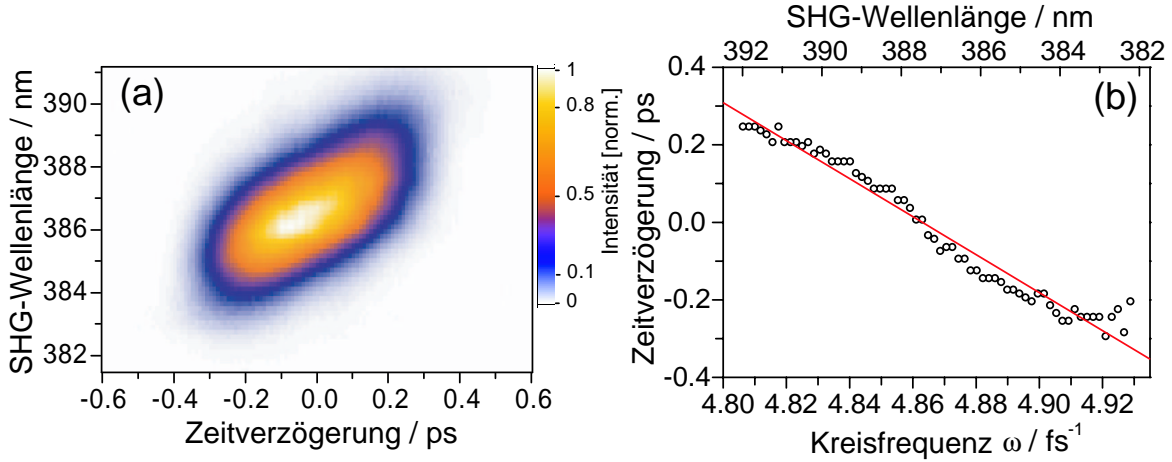


Abbildung 4.27: (a): XFROG-Spur eines negativ gechirpten Pulses. Der vom Pulsformer eingestellte lineare Chirp beträgt $b_2 = -10000 \text{ fs}^2$. (b): Abhängigkeit des zeitlichen Maximums der Kreuzkorrelationsspur von der Frequenz des Summenfrequenzsignals der Kreuzkorrelation. Aus der linearen Regression ergibt sich eine Steigung von $B = -4900 (\pm 114) \text{ fs}^2$. Nach Gleichung 4.82 kann somit ein linearer Chirp von $\frac{d^2\psi}{d\omega^2}|_{\omega_0} = -9800 (\pm 228) \text{ fs}^2$ angegeben werden. Der vom Pulsformer eingestellte lineare Chirp beträgt $b_2 = -10000 \text{ fs}^2$. Die Abweichung zwischen dem eingestellten und auf diese Weise ermittelten Chirp beträgt 2 %.

renzpulses (SFG=*Sum Frequency Generation*). Die zeitabhängige Abtastfunktion aus Gleichung 4.78 $g(t - \tau) = E_r(t - \tau)$ ist das elektrische Feld des Referenzpulses $E_r(t - \tau)$. Mit $E_{cc}(t, \tau) \propto E_s(t)E_r(t - \tau)$ ist das Spektrogramm des XFROG proportional zum Betragsquadrat des Spektrums der Kreuzkorrelation [148]:

$$I_{XFROG}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt E_{cc}(t, \tau) e^{-i\omega t} \right|^2 \quad (4.79)$$

Im Gegensatz zum SHG-FROG ist das Spektrogramm des XFROG eindeutig bezüglich der Zeitachse, da die korrelierten Pulse nicht identisch sind. Qualitativ können zum Beispiel sofort Vorzeichen und Ordnung des Chirps abgelesen werden. Abbildung 4.27 (a) zeigt die XFROG-Spur eines mit dem Pulsformer linear gechirpten Pulses ($b_2 = \frac{d^2\psi}{d\omega^2}|_{\omega_0} = -10000 \text{ fs}^2$). Das Maximum der Kreuzkorrelation wird mit zunehmender Wellenlänge in Richtung größerer Zeiten verschoben, d.h. es handelt sich um einen negativen Chirp (*down-chirp*). Neben der Richtung des Chirps ist ebenfalls zu erkennen, dass die Verschiebung linear erfolgt, d.h. der Puls ist linear gechirpt. Bestimmt man das zeitliche Maximum der Kreuzkorrelation für jede aufgenommene Wellenlänge, d.h. die Verzögerung $\tau_{max}(\omega)$, bei der die Kreuzkorrelation maximal wird, so lässt sich der Chirp näherungsweise berechnen. Aus den $\tau_{max}(\omega)$ erhält man die sogenannte Verzögerungskurve. Foing et al. haben gezeigt, dass sich die Verzögerungskurve für einen Referenzpuls mit Chirp $\frac{d^2\phi}{d\omega^2}$ und spektraler Breite $\partial\omega$ ausdrücken lässt als [149]:

$$\tau_{max}(\omega) = \omega \frac{\frac{d^2\psi}{d\omega^2}|_{\omega_0} \Delta\omega^2 - \frac{d^2\phi}{d\omega^2} \partial\omega^2}{\Delta\omega^2 + \partial\omega^2} \quad (4.80)$$

Da im vorliegenden Fall die spektrale Breite des Testpulses $\Delta\omega$ und die des Referenzpulses $\partial\omega$ identisch sind, und weiterhin der Referenzpulses als transform-limitiert angenähert werden

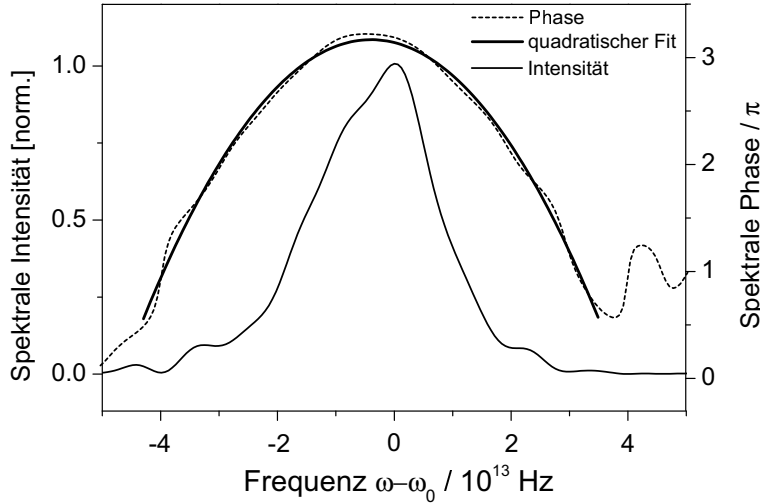


Abbildung 4.28: Auswertung der in Abbildung 4.27 dargestellten XFROG-Spur mit dem Phase-Retrieval Algorithmus. Spektrale Intensität (dünn) und Phase (gestrichelt) in Abhängigkeit von der relativen Frequenz ($\omega - \omega_0$). Durch einen quadratischen Fit an die Phase (dick) kann der lineare Frequenzraum-Chirp berechnet werden. Man findet $b_2^{retr} = -10510 \text{ fs}^2$ bei einem mittleren quadratischen Fitfehler von 0.035 rad. Die Abweichung zum am Modulator angelegten Chirp von $b_2^{Mod} = 10000 \text{ fs}^2$ beträgt 5%.

kann, folgt aus Gleichung 4.80

$$\tau_{max}(\omega) \approx \frac{1}{2} \omega \frac{d^2 \psi}{d\omega^2} \Big|_{\omega_0} \quad (4.81)$$

Für einen linearen Chirp lässt sich aus der Steigung der Verzögerungskurve B der Frequenzraum-Chirp des Testpulses näherungsweise angeben:

$$\frac{d^2 \psi}{d\omega^2} \Big|_{\omega_0} \approx 2 \cdot B \quad (4.82)$$

In Abbildung 4.27 (b) ist die aus der XFROG-Spur ermittelte Verzögerungskurve $\tau(\omega)$ gezeigt. Lineare Regression ergibt eine Steigung von $B = -4900 (\pm 114) \text{ fs}^2$, aus der sich nach Gleichung 4.82 ein linearer Chirp von $\frac{d^2 \psi}{d\omega^2} \Big|_{\omega_0} = -9800 (\pm 228) \text{ fs}^2$ errechnet. Der lineare Chirp ist durch eine quadratische Phasenfunktion mit $b_2 = -10000 \text{ fs}^2$ erzeugt worden. Die Abweichung zwischen der auf diese Weise ermittelten und der angelegten Phasenfunktion beträgt 2%.

Die Phasenanalyse komplexer XFROG-Spuren wird analog zum SHG-FROG mit einem Phase-Retrieval Algorithmus vorgenommen. Zunächst muss das elektrische Feld des Referenzpulses mit Hilfe des *phase-retrieval*-Algorithmus FROG 3.0 bestimmt werden. Im Anschluss kann mit demselben Algorithmus das Spektrogramm in Gleichung 4.79 iterativ rekonstruiert werden [148]. In Abbildung 4.28 ist die spektrale Amplitude und Phase des elektrischen Feldes der in Abbildung 4.27 dargestellten XFROG-Spur als Funktion der relativen Frequenz ($\omega - \omega_0$) gezeigt. Mit einem Polynom-Fit an den Phasenverlauf kann der lineare Chirp direkt bestimmt werden. Der Fit zweiter Ordnung ergibt einen quadrierten mittleren Fehler von 0.035 rad. Man erhält einen linearen Chirpparameter $b_2^{retr} = -10510 \text{ fs}^2$. Dieses Ergebnis stimmt sowohl mit dem aus der Verzögerungskurve ermittelten Chirp als auch mit der vom Modulator aufgeprägten Größe überein. Die Abweichung zum angelegtem Chirp beträgt 5%. Die gute Übereinstimmung der drei Werte zeigt, dass sowohl der Pulsformer verlässliche Phasenmodulationen erzeugt, als auch, dass die Auswertung der XFROG-Spur durch Rekonstruktion des elektrischen Feldes zu korrekten Werten führt.

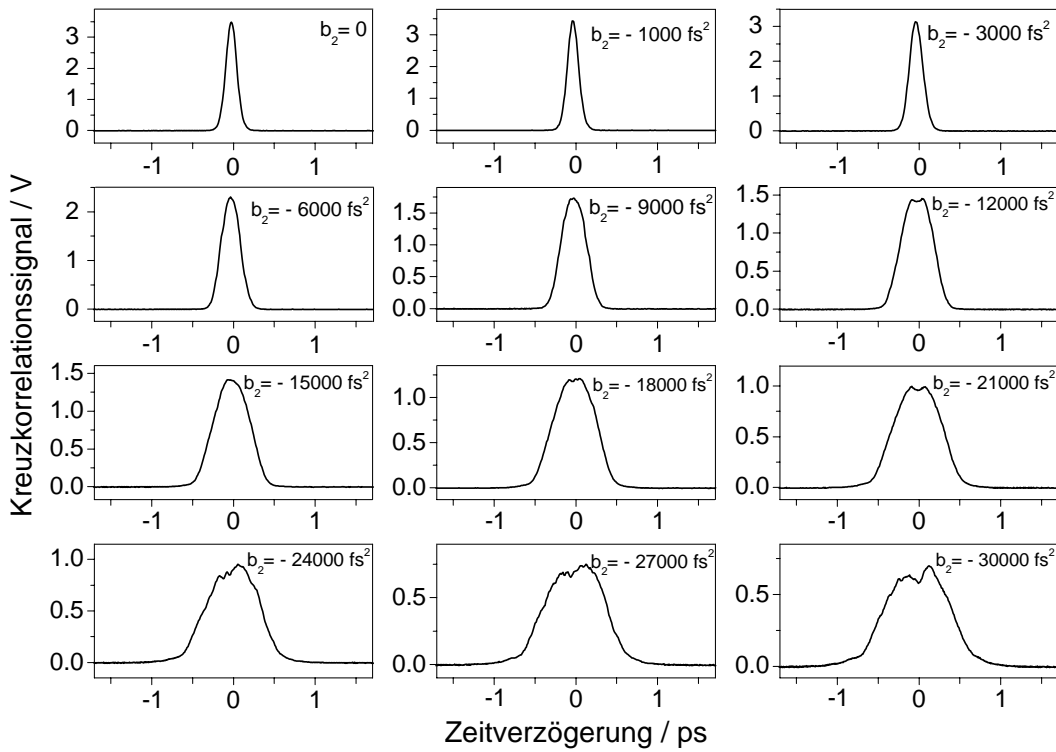


Abbildung 4.29: Kreuzkorrelationen negativ linear gechirpter Pulse. Die quadratische Phasenmodulation wird in Schritten von $\Delta b_2 = -3000 \text{ fs}^2$ von Null bis $b_{2,max} = -30000 \text{ fs}^2$ variiert. Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Intensitätsachse.

4.4 Erzeugung von komplexen Pulsformen

Die computergesteuerte Pulsformung basiert auf spektralen Amplituden- und Phasenmustern R_n bzw. ψ_n , die auf den Modulator geschrieben zu speziellen Pulsformen führen. In diesem Kapitel werden zunächst durch reine Phasenmodulation geformte Pulse vorgestellt und mit der Simulation verglichen. Im Anschluss soll gezeigt werden, dass die kombinierte Phasen- und Amplitudenmodulation gezielte zeitliche Intensitäts- und Phasenverläufe erreichen kann. Die Darstellung beschränkt sich auf Modulationsfunktionen $H(\omega)$, die für die Anwendung im Experiments von Bedeutung sind.

4.4.1 Simulation

Durch die numerische Simulation der Pulsformung kann der Effekt verschiedener spektraler Modulationsfunktionen im Vorfeld untersucht und im Anschluss der experimentell geformte Puls mit der berechneten Pulsform verglichen werden. Der Eingangspuls $E_{in}(t)$ wird Gaußförmig angenommen (siehe Gleichung 4.16) und gemäß Gleichung 4.25 in das spektrale Feld $\tilde{E}_{out}(\omega)$ fouriertransformiert. Mit der komplexen Modulationsfunktion (Gleichung 4.54) $\tilde{H}(\omega) = R(\omega) \cdot e^{-i\psi(\omega)}$ ergibt sich das spektrale Feld des geformten Pulses zu:

$$\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega) \cdot \tilde{H}(\omega) \quad (4.83)$$

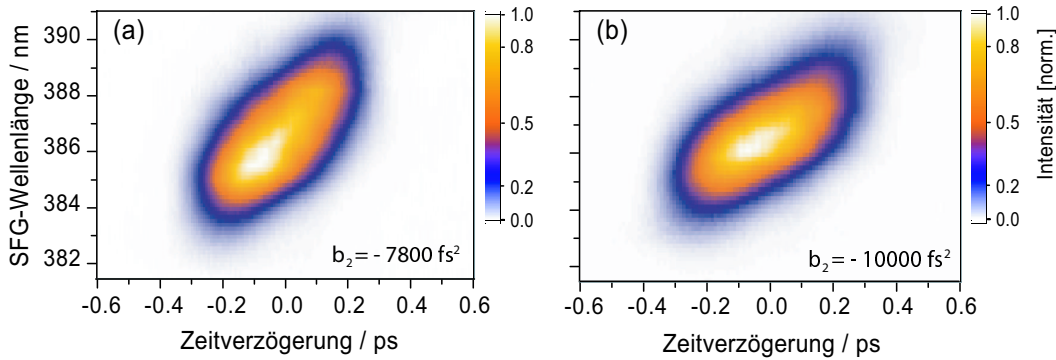


Abbildung 4.30: XFROG-Spuren negativ linear gechirpter Pulse. (a): Quadratische Phasenfunktion mit $b_2 = -7.8 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$. (b): Quadratische Phasenfunktion mit $b_2 = -1.0 \cdot 10^4 \text{ fs}^2$.

Für die Berechnung wird $H(\omega)$ durch $H(\frac{x}{\alpha})$ ersetzt, wobei α die in Gleichung 4.33 definierte räumliche Dispersion angibt und von der Geometrie und den verwendeten Optiken des Null-Dispersions-Kompressors abhängt. In erster Näherung kann die Dispersion als konstant angesehen werden (siehe Abschnitt 4.2.2). Die Amplitudenmodulation R_n und Phasenmodulation ψ_n sind dann diskrete Funktionen des n-ten Modulatorstreifens. Das spektral modulierte Feld wird anschließend über die inverse Fouriertransformation in das zeitlich geformte Feld rücktransformiert. Die Simulation wurde unter LABVIEW 5.1 durchgeführt. Unter anderem wurden Routinen des Simulationspakets LAB2 verwendet [150].

4.4.2 Quadratische spektrale Phasenmodulation

Wie in Abschnitt 4.1.2 beschrieben, kann die Modulationsfunktion der spektralen Phase durch eine Taylorreihe $\psi(\omega - \omega_0) = \sum \frac{1}{n!} b_n (\omega - \omega_0)^n$ approximiert werden. Die Taylorkoeffizienten $b_n = \frac{d^n \psi}{d\omega^n}$ der spektralen Phase führen getrennt betrachtet zu charakteristischen Pulsformen. Der lineare Phasenterm der Taylorentwicklung wurde bereits diskutiert (siehe Abschnitt 4.2.5). Hier wird die zeitliche Antwort der höheren Taylorterm b_2 , b_3 und b_4 betrachtet.

In Abschnitt 4.1.2 wurde am Beispiel von Gaußförmigen Pulsen gezeigt, dass eine quadratische spektrale Phasenmodulation (linearer Frequenzraum-Chirp) ebenfalls zu einem quadratischen Phasenverlauf in der Zeitdomäne (linearer Zeitraum-Chirp) führt. Diese Analogie ist eine Besonderheit der quadratischen Phase. Man kann daher erwarten, dass die Phasenmodulation

$$\psi(\omega - \omega_0) = \frac{1}{2} b_2 (\omega - \omega_0)^2 \quad (4.84)$$

zu einem quadratischen zeitlichen Phasenverlauf und damit zu einer linearen Verschiebung der instantanen Frequenz innerhalb der Pulsdauer (linearer Zeitraumchirp) führt (siehe Abschnitt 4.1.1). Der Parameter des linearen Frequenzraum-Chirps $b_2 = \frac{d^2 \psi}{d\omega^2} |_{\omega_0}$ wurde in Abschnitt 4.1.2 eingeführt und wird in Einheiten fs^2 angegeben.

In der Praxis wird üblicherweise mit Wellenlängen λ gearbeitet. Das Phasenmuster des linearen Chirps lässt sich schreiben als

$$\psi_n = \frac{1}{2} b_2 \left(2\pi c \left((\lambda_0 + \left(\frac{N}{2} - n\right) \delta\lambda)^{-1} - (\lambda_0)^{-1} \right) \right)^2. \quad (4.85)$$

Der Streifenindex n läuft von 1 bis N (Anzahl der Streifenelementen, hier $N=128$) und beginnt bei den kürzeren Wellenlängen (blaues Ende des Spektrums). Für $\lambda_0 = 770$ nm beträgt die Wellenlängendifferenz zweier benachbarter Pixel $\delta\lambda = 0.342$ nm.

In Abbildung 4.29 sind Kreuzkorrelationen negativ linear gechirpter Pulse gezeigt, die mit einer Modulationsfunktion gemäß Gleichung 4.85 erzeugt wurden. Der quadratische Phasenfaktor b_2 wird beginnend beim unmodulierten Puls (links oben) in Abständen von $\Delta b_2 = -3000$ fs² erhöht. Der hier dargestellte maximale Chirp (rechts unten) beträgt $b_{2,max} = -30000$ fs². Es ist zu erkennen, dass sich ab etwa $b_2 \approx 20000$ fs² aufgrund des Überschreitens der Nyquist-Grenze die zeitliche Struktur des Pulses langsam auflöst (siehe Abschnitt 4.2.6).

In Abbildung 4.30 sind zwei XFROG-Spuren (siehe Abschnitt 4.3.4) negativ linear gechirpter Pulse gezeigt. Die lineare Verschiebung der instantanen Frequenz mit dem zeitlichen Verlauf der Pulseinhüllenden ist zu erkennen. Ebenso kann das Vorzeichen des Chirp direkt abgelesen werden. Die Teilbilder zeigen zwei unterschiedlich stark negativ gechirpte Pulse, die durch $b_2^{(a)} = -7800$ fs² und $b_2^{(b)} = -10000$ fs² erzeugt werden. Negative Zeitverzögerungen (x-Achse) entsprechen früheren Zeiten. Mit zunehmender Zeit verschiebt sich das Maximum des Spektrums zu größeren Wellenlängen. Man beachte, dass sich die Bezeichnung "negativer Chirp" auf die Frequenzdarstellung bezieht, die XFROG-Spuren aber gegen die Wellenlänge aufgetragen sind. Daher ist die Steigung des negativen Chirps in dieser Darstellung positiv. Aus der Rekonstruktion der XFROG-Spur mit dem *phase-retrieval*-Algorithmus (siehe Abschnitt 4.3.4) erhält man die Werte $b_{2,rek}^{(a)} = -7280$ fs² und $b_{2,rek}^{(b)} = -10300$ fs². Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion von Pulsen, die durch ein dispersives Medium laufen, kann mit einer spektralen quadratischen Phasenmodulation kompensiert werden. In Kapitel 5.4 wird darauf näher eingegangen.

4.4.3 Kubische spektrale Phasenmodulation

Die kubische spektrale Phasenmodulation wird durch den spektralen Phasenterm dritter Ordnung b_3 beschrieben und als quadratischer Frequenzraum-Chirp bezeichnet. Entsprechend Abschnitt 4.4.2 lässt sich schreiben:

$$\psi_n = \frac{1}{6} b_3 \left(2\pi c \left((\lambda_0 + \left(\frac{N}{2} - n\right) \Delta\lambda)^{-1} - (\lambda_0)^{-1} \right) \right)^3 \quad (4.86)$$

Der kubische Phasenparameter b_3 wird üblicherweise in fs³ angegeben. Im Gegensatz zum linearen Chirp ergibt sich keine quadratische Abhängigkeit der instantanen Frequenz von der Zeit, d.h. kein quadratischer Zeitraum-Chirp. Aus den XFROG-Spuren in Abbildung 4.31 wird dieser Sachverhalt deutlich. Die kubische Phasenverschiebung führt zu einer quadratischen Zeitverschiebung der Frequenzkomponenten. Dabei beschreibt das Vorzeichen der Phasenmodulation die Öffnungsrichtung der Parabel. Als Konsequenz erscheinen die Frequenzkomponenten ober- und unterhalb der Zentralfrequenz zur selben Zeit und können interferieren. Die zeitliche Form eines Pulses mit quadratischem Frequenzraum-Chirp wird somit von einem oszillatorischen Schweif dominiert, der sich nach außen hin abnehmend zu beiden Seiten des hufeisenförmigen Zentralpulses erstreckt. Bei positivem Frequenzraum-Chirp führt der oszillatorische Schweif die Pulsform an, für negativen Frequenzraum-Chirp läuft der Schweif hinterher.

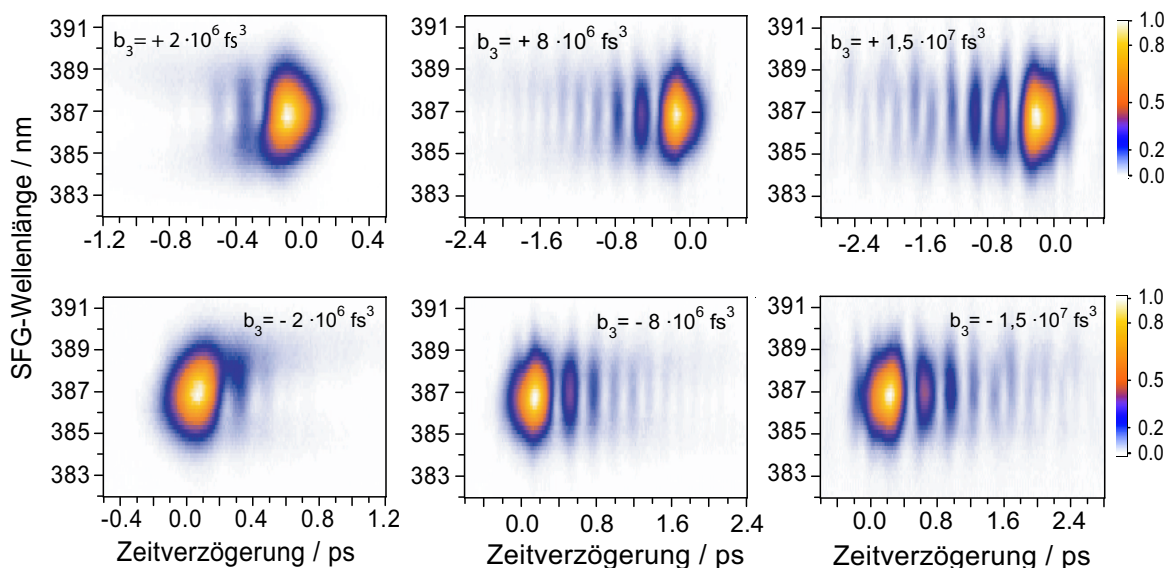


Abbildung 4.31: XFROG-Spuren verschiedener spektraler Phasenmodulationen dritter Ordnung. In der oberen Zeile sind Pulsformen mit positiven, in der unteren Zeile die entsprechenden negativen quadratischen Frequenzraum-Chirps gezeigt. Für positive Phasenmodulationen entstehen aufgrund von Interferenzen der spektralen Flügel Vorpulse abnehmender Intensität, für negative Phasenmodulationen laufen diese Satellitenpulse der Pulsform hinterher. Die XFROG-Spuren für $b_3 = \pm 2 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$ zeigen den in der Frequenz (Wellenlänge) quadratischen Verlauf der Pulsform. Größere kubische Phasenmodulationen ($b_3 = \pm 8 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$) führen zu ausgeprägten Vor- bzw. Nachpuls-Strukturen. Für deutlich größere Steigungen ($b_3 = \pm 1,5 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$) "zerläuft" die Pulsform aufgrund der Überschreitung der Nyquist-Grenze.

In Abbildung 4.33 sind Intensitäts-Kreuzkorrelationen für verschiedene b_3 zwischen $5 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$ und $4 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$ gezeigt. Als Vergleich sind gestrichelt die simulierten Kreuzkorrelationen eingezeichnet. Im Bereich bis etwa $b_3 = 1 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$ ist die Übereinstimmung sehr hoch (links oben). Für große Werte von b_3 weicht die Pulsform zunehmend vom vorgegebenen Verlauf ab und wird unregelmäßig. Diese Konsequenz der diskretisierten Phasenmodulation wurde in Abschnitt 4.2.6 als Überschreitung der Nyquist-Grenze beschrieben.

Um die Abweichung von der vorgegebenen Pulsform zu verstehen, wird in Abbildung 4.32 die Überschreitung der in Abschnitt 4.2.6 beschriebenen Nyquist-Grenze graphisch dargestellt. Für Steigungen der Modulationsfunktion zwischen $b_3 = 5 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$ und $b_3 = 3 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$ sind die Phasendifferenzen $\delta\psi$ zweier benachbarter Pixel aufgetragen. Die gestrichelten vertikalen Linien markieren den beleuchteten Bereich des Flüssigkristall-Displays. Bis etwa $b_3 = 5 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$ bleiben die Abstände $\delta\psi \leq \pi$. Die Phasendifferenz $\delta\psi = \pi$ stellt die durch das Nyquist-Theorem gegebene Grenze der Eindeutigkeit dar. Für $b_3 = 2 \cdot 10^7$ liegen nur noch etwa die zentralen 30 Pixel unterhalb der Grenze von π . Die Pulsform löst sich zunehmend auf. Die Phasendifferenz benachbarter Pixel steigt zu beiden Seiten der Zentralfrequenz quadratisch an. Die Nyquist-Grenze wird also von den Rändern beginnend verletzt und sorgt für eine zunehmende Auflösung der Pulsformen.

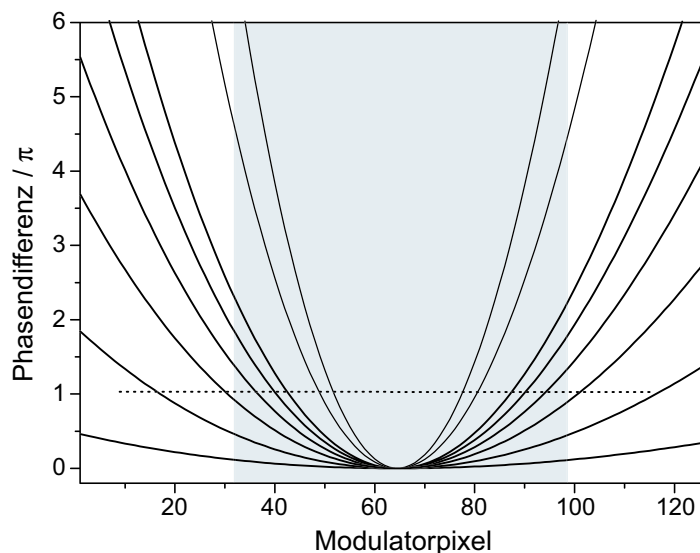


Abbildung 4.32: Erklärung für die zunehmend unstrukturierten Pulsverläufe bei großen Modulationssteigungen. Aufgetragen sind die Phasendifferenzen $\delta\psi$ zwischen jeweils zwei benachbarten Modulatorpixeln für kubische Phasenverläufe zwischen $b_3 = 5 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$ und $b_3 = 1 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$ (dicke Kurven) und $b_3 = 2 \cdot 10^7 \text{ fs}^3 - b_3 = 3 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$ (dünnere Kurven). Beleuchtet sind lediglich die Modulatorstreifen innerhalb des grauen Kastens. Ab etwa $b_3 = 5 \cdot 10^6$ überschreitet die Phasendifferenz den Wert π (horizontale gestrichelte Linie) und damit die Bedingung (4.62). Für größere Modulationssteigungen nimmt der Effekt zu.

4.4.4 Spektrale Phasenmodulation vierter Ordnung

In selteneren Fällen muss auch die Phasenmodulation vierter Ordnung zur Phasenkompensation berücksichtigt werden. In Abbildung 4.34 (a) wird die XFROG-Spur einer Phasenmodulation mit $b_4 = -5 \cdot 10^8 \text{ fs}^4$ mit der entsprechenden Simulation (b) verglichen. Wie aus der Abbildung zu entnehmen ist, bedeutet eine spektrale Phasenverschiebung vierter Ordnung sowohl eine kubische Abhängigkeit der Zeitverschiebung von der Frequenz (kubischer Frequenzraum-Chirp), als auch eine kubische Abhängigkeit der Frequenz von der Zeit (kubischer Zeitraum-Chirp).

4.4.5 Sinusförmige Phasenmodulation

Die sinusförmige Phasenmodulation stellt aufgrund der Eigenschaft, Pulszüge zu erzeugen, ein geeignetes Mittel für den Einsatz in der Spektroskopie und der Steuerung molekularer Dynamik dar. Im folgenden werden die wichtigsten Eigenschaften sinusförmig modulierter fs-Pulse vorgestellt.

Periodische Graustufenmodulationen¹¹ der spektralen Phase bieten die Möglichkeit, Puls-

¹¹Periodische Modulationsfunktionen der spektralen Phase spielen eine bedeutende Rolle in der Pulsformungstechnik. In den Anfängen der spektralen Pulsformung mit festen lithographisch geätzten Filtermasken konnten nur binäre Phasenmasken erzeugt werden [115]. Aus der Theorie der Signalübertragung waren periodische Funktionen mit sogenannten „pseudo-zufälligen Mustern“ (*pseudo-random pattern*) bekannt, die Replika des Eingangspulses mit bestimmten Pulsabständen und relativen Intensitäten erzeugen [151]. Ein prominentes von A. Wiener und Mitarbeitern erstmals auf die fs-Pulsformung übertragenes Muster ist die *M-Sequenz*. Die

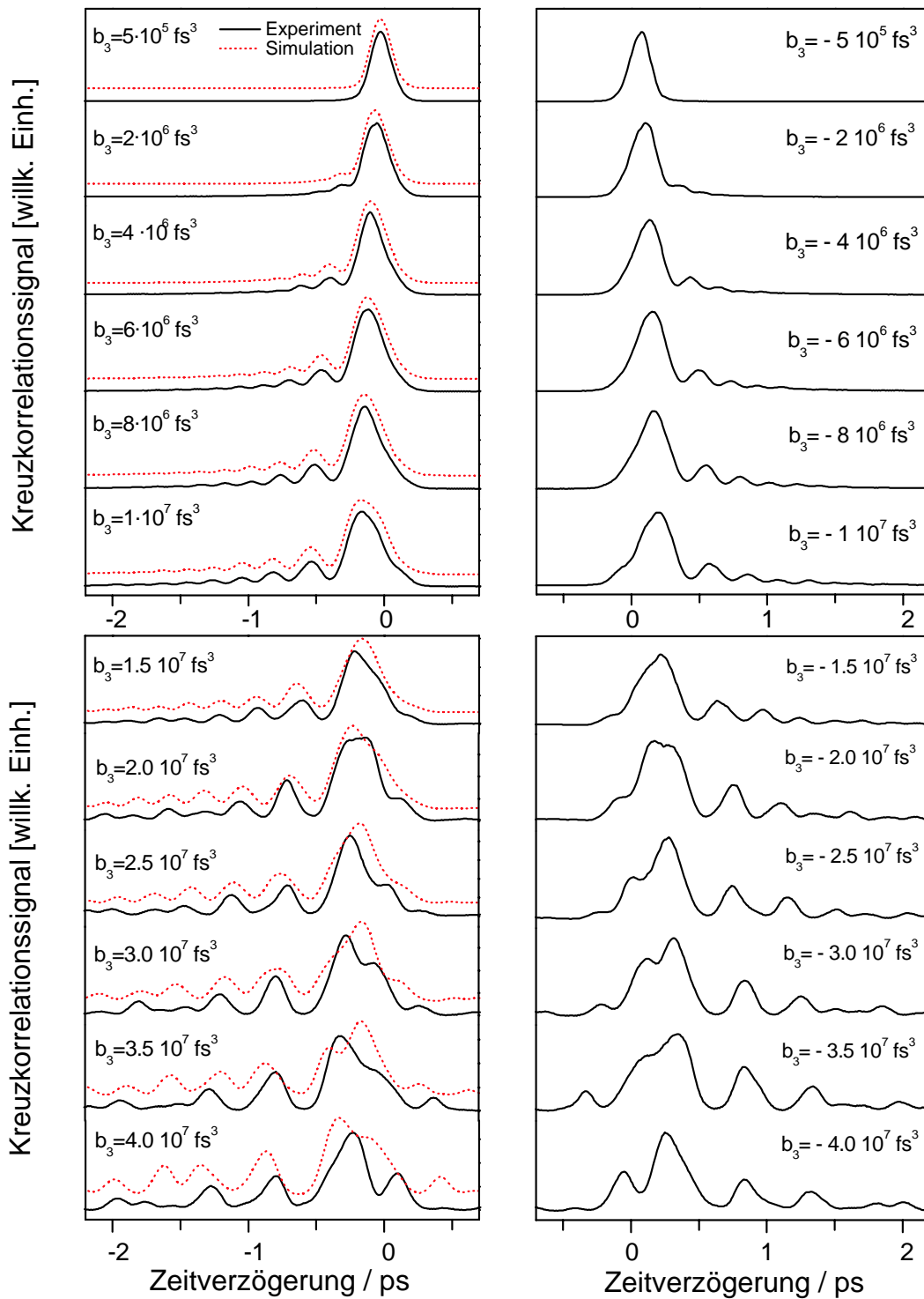


Abbildung 4.33: Intensitäts-Kreuzkorrelationen von Pulsformen mit quadratischem Frequenzraum-Chirp. Links oben: Die Phasenmodulation dritter Ordnung wird zwischen $b_3 = +5 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$ und $+1 \cdot 10^7 \text{ fs}^3$ variiert. Zum Vergleich sind gestrichelt die simulierten Kreuzkorrelationen eingezeichnet. Die Übereinstimmung von gemessenen und simulierten Kreuzkorrelationen sind gut. Rechts oben: Die entsprechenden negativen Modulationen. Unten: Für große Modulationssteigungen führt die Überschreitung der Nyquist-Grenze zur Abweichung von der Simulation.

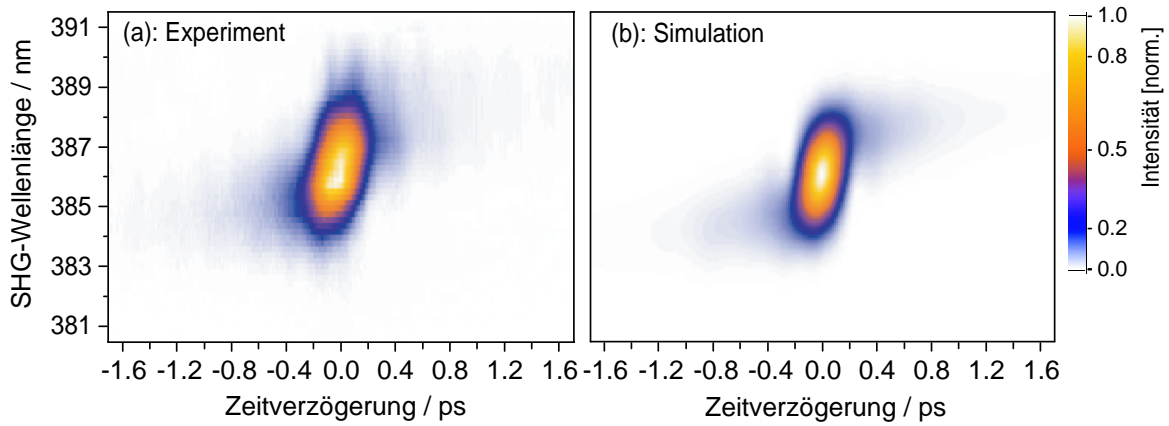


Abbildung 4.34: Experimentelle (a) und simulierte (b) XFROG-Spur eines fs-Pulses mit einer Phasenmodulation vierter Ordnung. Der Modulationsparameter beträgt $b_4 = -5 \cdot 10^8 \text{ fs}^4$.

sequenzen zu erzeugen. Ein Vertreter dieser Modulationsklasse ist die sinusförmige Phasenmodulation, die Pulszüge bestehend aus drei bis neun Pulsen erzeugt. In gewissen Grenzen lassen sich die Pulsabstände, die relativen Intensitäten, die relativen Phasen und der Chirp der Pulse kontrollieren.

Die sinusförmige Modulation der spektralen Phase wird beschrieben durch die Funktion

$$\varphi(\Omega) = a \cdot \sin(\Omega + c) \quad (4.87)$$

Das Argument Ω ist die relative Frequenz bezüglich der Zentralfrequenz ω_0 und wird durch eine Taylorreihe approximiert:

$$\Omega = \tau(\omega - \omega_0) + a_2(\omega - \omega_0)^2 + a_3(\omega - \omega_0)^3 \dots \quad (4.88)$$

Die höheren Ordnungen der Entwicklung führen zu einer größeren Flexibilität der angewendeten Modulationsfunktion. Jeder der fünf Parameter a , τ , c , a_2 und a_3 führt zu charakteristischen Eigenschaften des zeitabhängigen Phasen- und Intensitätsprofils des geformten Pulses.

Lineare sinusförmige Modulation

Die lineare sinusförmige Modulation der Form

$$\psi(\omega) = a \cdot \sin(\tau(\omega - \omega_0) + c) \quad (4.89)$$

führt zu einer Sequenz äquidistanter Pulse. Der zeitliche Abstand der Pulse τ wächst linear mit der Modulationsfrequenz. In der Definitionsgleichung der Modulation (4.89) bestimmt τ

Sequenz besteht aus einer zufällige Abfolge binärer Phasenwerte (binär in dem Sinne, dass lediglich Phasenwerte von 0 oder π zugelassen sind) mit einer festen Länge l , die m mal aneinander gereiht wird. Diese Phasenmuster erzeugen Pulszüge mit einer Puls-zu-Puls Wiederholrate im THz-Bereich [115]. Auch feste Graustufenfilter wurden zur Erzeugung von Pulssequenzen eingesetzt [152].

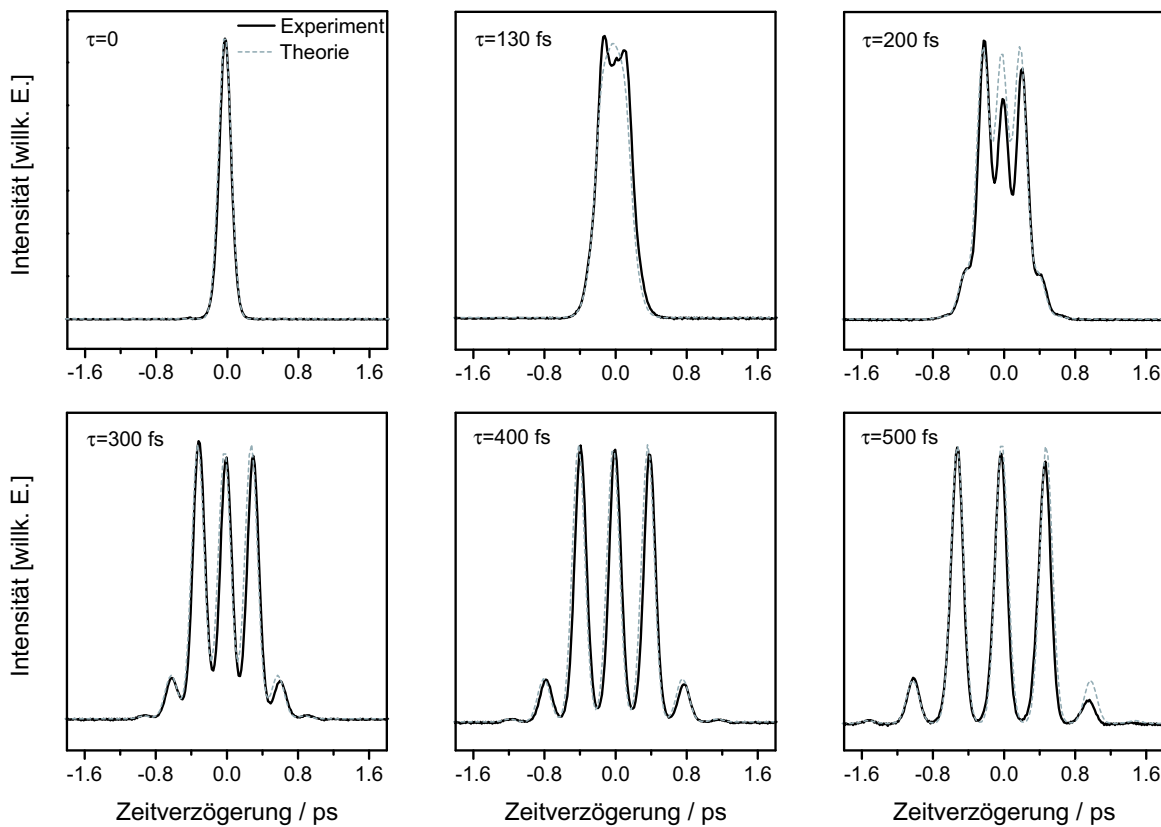


Abbildung 4.35: Experimentelle (durchgezogen) und simulierte (gestrichelt) Kreuzkorrelationsspektren von sinusförmig spektral phasenmodulierten Pulsen. Die Modulationsfrequenz τ wird bis $\tau = 500$ fs in Schritten von $\Delta\tau = 100$ fs erhöht. Die Modulationsamplitude beträgt $a = \pi$.

die Frequenz¹² und führt gleichzeitig zu Pulsabständen der Größe τ . In Abbildung 4.35 sind Kreuzkorrelationsspektren von sinusmodulierten Pulsen mit ansteigender Modulationsfrequenz zwischen $\tau = 0$ (Transformlimit) und $\tau = 500$ fs gezeigt. Die Modulationsamplitude wurde auf $a = \pi$ gesetzt und die Modulationsphase auf $c = \pi/2$ (Kosinus). Ab $\tau \approx 200$ fs können einzelne Pulse identifiziert werden, die aus einer breiteren Pulsstruktur "herauswachsen". Zum Vergleich sind die entsprechenden simulierten Kreuzkorrelationsspektren (gestrichelt) gezeigt.

In Abbildung 4.36 ist eine 3D-Darstellung einer Abfolge von Kreuzkorrelationen sinusförmig modulierter Pulse dargestellt. Deutlich ist der lineare Anstieg der Pulsabstände mit der Modulationsfrequenz τ und die Intensitätsumverteilung in die Seitenpulse zu erkennen. Ab etwa $\tau_0 \approx 180$ fs sind die einzelnen Pulse getrennt und die Intensität der Pulse bleibt konstant. Die Modulationsamplitude beträgt $a = 2\pi$.

Die **Modulationsamplitude** a verschiebt die relativen Intensitäten innerhalb der Pulssequenz, wobei die Pulsabstände nicht verändert werden. Abbildung 4.37 zeigt gemessene (durchgezogen) und simulierte (gestrichelt) Kreuzkorrelationen zwischen 0 und 2π . Der Vergleich zeigt eine gute Übereinstimmung. Für kleine Werte des Parameters a wird ein starker

¹²Die Breite des durch einen Modulatorpixel definierten Frequenzbündels beträgt ($\lambda_0 = 770$ nm und die räumlichen Dispersion α des Pulsformers vorausgesetzt) $\delta\omega = 1.087 \cdot 10^{12}$ Hz. Daraus ergibt sich das Verhältnis von Frequenz f der Modulation und Abstand der Pulse τ zu $\tau = f \cdot 45.5$ fs.

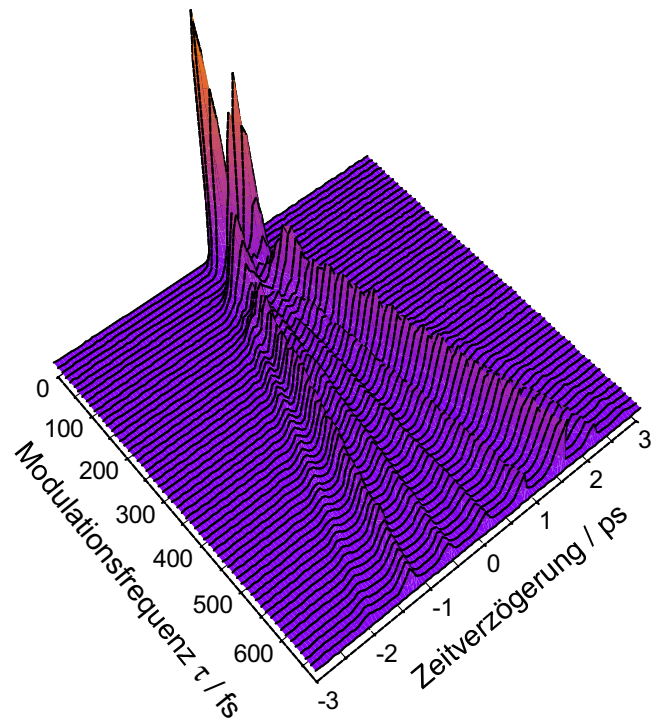


Abbildung 4.36: Abfolge von Kreuzkorrelationen sinusförmig modulierter Pulse. Die Modulationsamplitude beträgt $a = 2\pi$. Mit zunehmender Modulationsfrequenz sinkt die Intensität der Einzelpulse. Die Pulsabstände steigen linear mit der Frequenz.

Zentralpuls mit kleinen Seitenpulsen beobachtet. Größere Amplituden erzeugen neue Seitenpulse und erhöhen deren Intensität.

Die obere Reihe von Abbildung 4.38 zeigt das gekoppelte Zeit-Frequenz-Verhalten anhand der XFROG-Spuren für drei ausgewählte Modulationsamplituden $a = 0.84\pi$, $a = \pi$ und $a = 2\pi$. Die untere Reihe gibt die entsprechenden simulierten XFROG-Spuren wieder. Der leichte Chirp der äußeren Pulse in den experimentellen XFROG-Spuren ist auf die Nicht-Linearität der Gitterdispersion $\omega(x)$ zurückzuführen: Im Experiment wird in erster Näherung die Gitterdispersion als linear approximiert (siehe Gleichung 4.31). Diese Nicht-Linearität führt dazu, dass die größeren Wellenlängen eine etwas höhere Modulationsfrequenz beinhalten und damit der Pulsabstand erhöht wird. Als Folge werden die äußeren Pulse geschirpt. In der Simulation wird die Nicht-Linearität der Gitterdispersion berücksichtigt, so dass alle Pulse des Pulszugs ungechirpt sind.

Der konstante **Phasenfaktor** c erlaubt den Übergang von einer antisymmetrischen ($c = 0$, Sinus) zu einer symmetrischen ($c = \pi/2$, Kosinus) Modulationsfunktion. Verbunden mit der Variation von c treten zwei Effekte auf:

- Für kleine Modulationsfrequenzen $\tau_0 < 180$ fs ist der Intensitätsverlauf des Pulses abhängig von c . Anschaulich lässt sich das dadurch verstehen, dass für kleine Modulationsfrequenzen eine Sinusmodulation durch eine kubische, und eine Kosinusfunktion durch eine quadratische Phasenfunktion angenähert werden kann. Damit entwickelt sich die Pulssequenz des Sinus aus einem quadratischen Frequenzraum-Chirp (Phasenfunktion dritter Ordnung), während für einen Kosinus die Pulsform zunächst durch den linearen Chirp bestimmt ist. Abbildung 4.39 zeigt zur Verdeutlichung eine Reihe von XFROG-Spuren für eine Sinus- (oben) und eine Kosinusmodulation (unten) steigender Modulationsfrequenz bis $\tau = 210$ fs. In Abbildung 4.40 sind die vier XFROG-Spuren für positiven und negativen Sinus sowie positiven und negativen Kosinus bei $\tau = 180$ fs gezeigt. Die

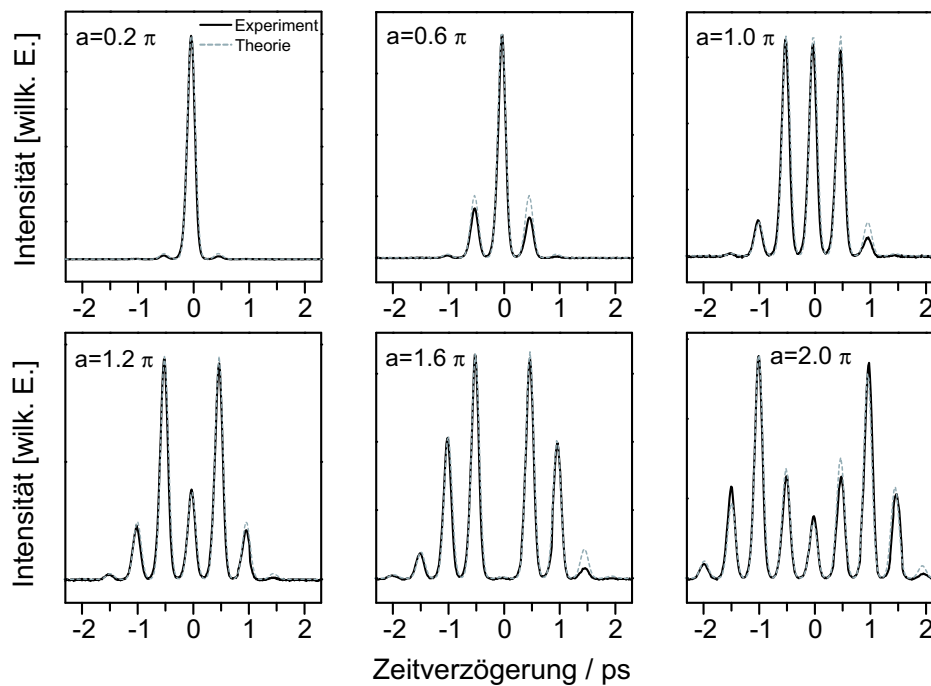


Abbildung 4.37: Experimentelle (durchgezogen) und simulierte (gestrichelt) Kreuzkorrelationen verschiedener Modulationsamplituden der sinusförmigen Phasenmodulation zwischen 0 und 2π . Der Pulsabstand beträgt $\tau = 500$ fs. Es entstehen Replikapulse des Eingangspulses, deren Intensität mit zunehmender Modulationsfrequenz zunehmen. Bei $a = \pi$ existieren drei gleich intensive Mittelpulse. Für $a = 2\pi$ sind insgesamt neun Pulse entstanden.

zu $\tau = 180$ fs gehörige Modulationsfrequenz beschreibt vier Schwingungen über den 128 Pixeln des Modulators. Da lediglich etwas mehr als die Hälfte der Pixel beleuchtet werden, findet bei dieser Frequenz der Übergang der durch eine quadratische bzw. kubische Funktion beschreibbaren Modulation zur periodischen einer Sinus bzw. Kosinusfunktion statt. Die XFROG-Spuren in Abbildung 4.40 zeigen für $c = 0$ und $c = \pi$ (Sinus) eine Überlagerung von einem quadratischen Frequenzraum-Chirp mit einem entstehenden Pulszug. Für $c = \pi/2$ und $c = 3/2 \pi$ (Kosinus) wird der Pulszug mit einem linearen Chirp überlagert. Die zugehörigen zeitlichen Phasenverläufe können in der linken Spalte von Abbildung 4.41 verglichen werden. Eine numerischen Simulation verdeutlicht, dass auch die zeitliche Phasenfunktion (gestrichelte Linie) aus der eines quadratischen (für $c = 0$) bzw. linearen (für $c = \pi/2$) Chirp erwächst.

- Für größere Modulationsfrequenzen $\tau > 200$ fs zeigt der Phasenfaktor c lediglich einen Einfluss auf die relative zeitliche Phase der einzelnen phasengekoppelten Pulse innerhalb der Pulssequenz. Abbildung 4.41 zeigt Ergebnisse einer numerischen Simulation. Aufgrund der guten Übereinstimmung der gemessenen mit den simulierten Kreuzkorrelationen bzw. XFROG-Spuren (Abbildungen 4.35 und 4.38) können die simulierten Amplituden- und Phasenverläufe als repräsentativ für die hier verwendeten Pulsformen angesehen werden. Aufgetragen sind zeitliche Amplitude (durchgezogen) und Phase (gestrichelt) des elektrischen Feldes der Pulsformen. In der linken Spalte ist die Entwicklung der Pulsformen für kleine Modulationsfrequenzen getrennt für einen Si-

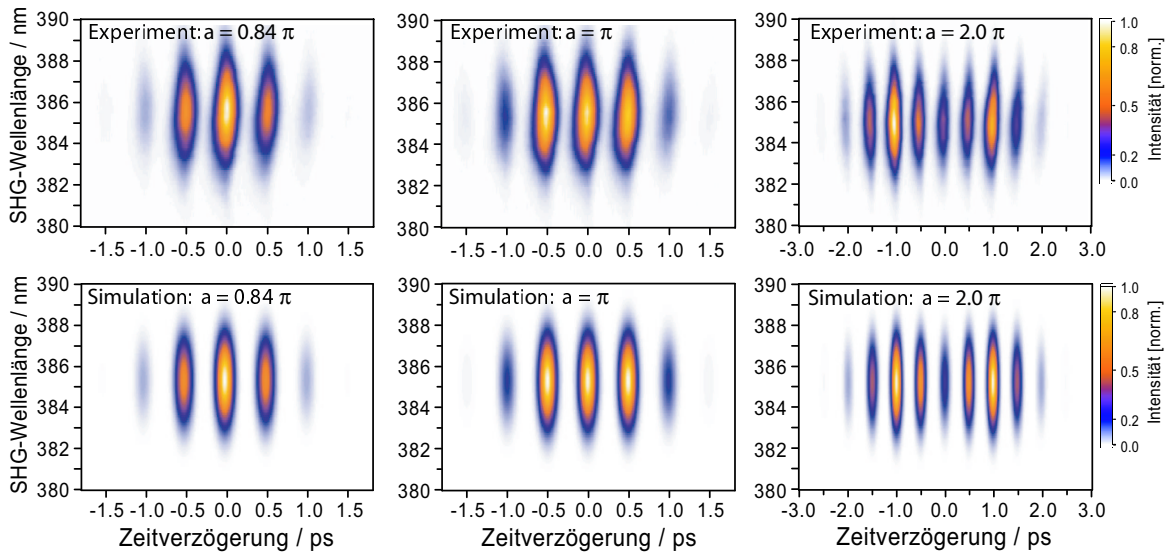


Abbildung 4.38: Gemessene (obere Reihe) und simulierte (untere Reihe) XFROG-Spuren einer Sinus-Modulation mit $\tau = 500$ fs für drei ausgewählte Modulationsamplituden $a = 0.84\pi$, $a = \pi$ und $a = 2\pi$. Der leichte Chirp der äußeren Pulse resultiert aus der Nicht-Linearität der Gitterdispersion, die in der Simulation bereits berücksichtigt wird (siehe Text).

nus (oben) und einen Kosinus (unten) gezeigt. Deutlich ist zu erkennen, dass sich der zeitliche Phasenverlauf der Pulssequenzen unterscheidet:

- Für die antisymmetrische Sinusmodulation bis zur Mitte der Pulsform ist die Phase konstant ($\Delta\phi = 0$), während für die Pulse der zweiten Hälfte der Pulsform die Phasenverschiebung zwischen den einzelnen Pulsen $\Delta\phi = \pi$ beträgt.
- Die symmetrische Kosinusmodulation dagegen erzeugt über der gesamten Pulsform eine Phasenverschiebung zwischen den Pulsen von $\Delta\phi = \pi/2$ und fällt mit der Pulsform ab. Die Phasenfunktion ist symmetrisch bezüglich des Zentralpulses.

Die Veränderung des zeitlichen Phasenverlaufs bei Variation der Modulationsphase c ist in der rechte Spalte von Abbildung 4.41 für Modulationen mit $\tau = 500$ fs und $a = \pi$ gezeigt. Die Phase c wird stückweise zwischen einer Sinusmodulation ($c = 0$) und einer Kosinusmodulation ($c = \pi/2$) in fünf Schritten erhöht (oben). Der stetige Übergang der oben beschriebenen Phasenverläufe für Sinus- und Kosinusmodulation wird deutlich. Für negative Sinusmodulationen (unten) dreht sich die Zeitrichtung der Phasenfunktion um. Bei negativen Kosinusmodulationen steigt die Phasenverschiebung jeweils um $\pi/2$ an. Eine kontinuierliche Variation des Phasenfaktors c zwischen 0 und 2π erlaubt also die Erzeugung von Pulszügen spezifischen Phasenverschiebungen $\Delta\phi_i$ zwischen den Pulsen. Für jedes Pulspar ist eine Phasenverschiebung zwischen 0 und 2π möglich, womit allerdings die Phasenverschiebungen der anderen Pulse bereits bestimmt sind.

Aufgrund des individuellen Einflusses auf die zeitliche Struktur der Pulse sind die drei Parameter a , b und c als Optimierungsparameter der sinusförmigen Phasenmodulation ge-

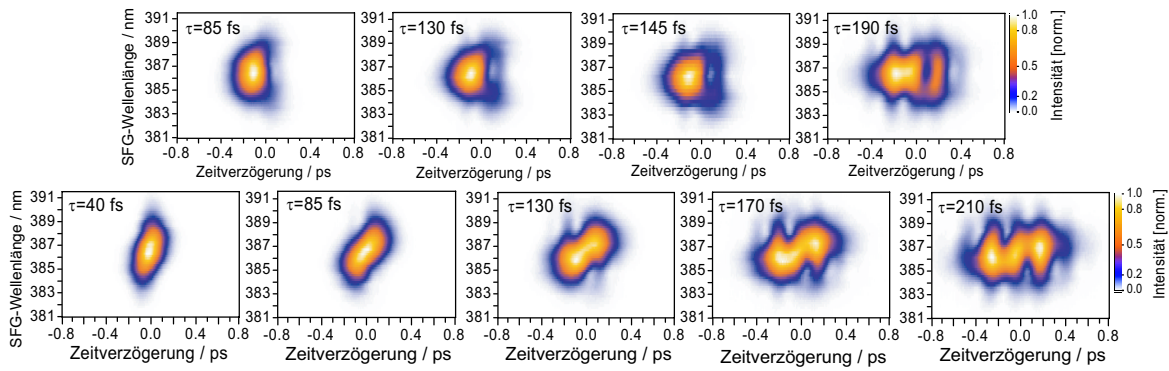


Abbildung 4.39: Die XFROG-Spuren zeigen die Entwicklung der Pulsformen für kleine Modulationsfrequenzen $\tau \leq 210$ fs einer sinusförmigen Phasenmodulation. Oben: Die Sinusmodulation ($c = 0$) wird für kleine Modulationsfrequenzen durch den quadratischen Frequenzraum-Chirp dominiert. Unten: Die Kosinusmodulation ($c = \frac{\pi}{2}$) wird für kleine Modulationsfrequenzen durch den linearen Chirp dominiert.

eignet. In den Kapiteln 6, 7 und 8 werden sinusförmig modulierte Pulse zur parametrischen Optimierung der fs-Pulse eingesetzt.

Quadratische und kubische sinusförmige Modulation

Die Taylorentwicklung des Sinusarguments bis zur dritten Ordnung $\Omega = \tau(\omega - \omega_0) + a_2(\omega - \omega_0)^2 + a_3(\omega - \omega_0)^3$ führt zu gechirpten Seitenpulsen. Der quadratische Koeffizient a_2 erlaubt die Erzeugung von linear positivem und negativem Chirp, während der kubische Koeffizient a_3 quadratischen Frequenzraum-Chirp erzeugt. Gechirpt werden nur die Seitenpulse, der Zentralpuls bleibt ungechirpt. Der Chirp nimmt für die Außenpulse zu und ist symmetrisch bezüglich des Zentralpulses orientiert. In Abbildung 4.42 zeigen die Ergebnisse einer numerischen Simulationsrechnung die Auswirkungen der quadratischen und kubischen Entwicklung. In der linken Spalte sind zeitabhängige Amplitude und Phase der elektrischen Felder, und in der rechten Spalte die simulierten XFROG-Spuren dargestellt. Die erste Spalte (a) zeigt einen linear modulierten Puls mit $a = \pi$, $\tau = 500$ fs und $c = 0$. Die quadratische Erweiterung mit $a_2^+ = +3000$ fs und $a_2^- = -3000$ fs (b und c) führt zu linear gechirpten Seitenpulsen. Der ent-

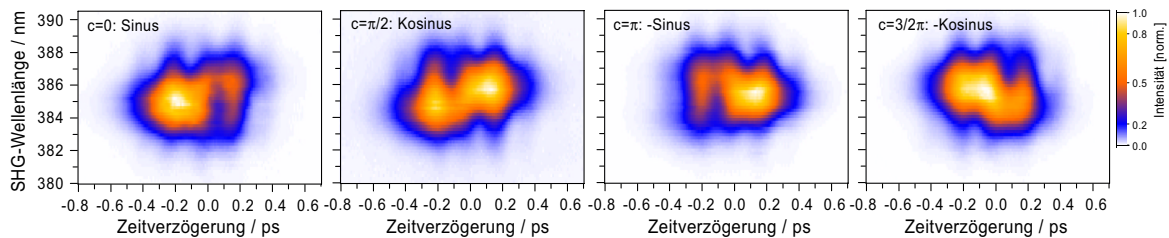


Abbildung 4.40: XFROG-Spuren für verschiedene Werte der Modulationsphase c . Der Frequenzparameter τ beträgt $\tau = 180$ fs, die Modulationsamplitude $a = \frac{\pi}{2}$. Positive sowie negative Sinusmodulationen sind durch $c = 0$ und $c = \pi$ gegeben, die entsprechenden Kosinusmodulationen durch $c = \frac{\pi}{2}$ und $c = \frac{3}{2}\pi$.

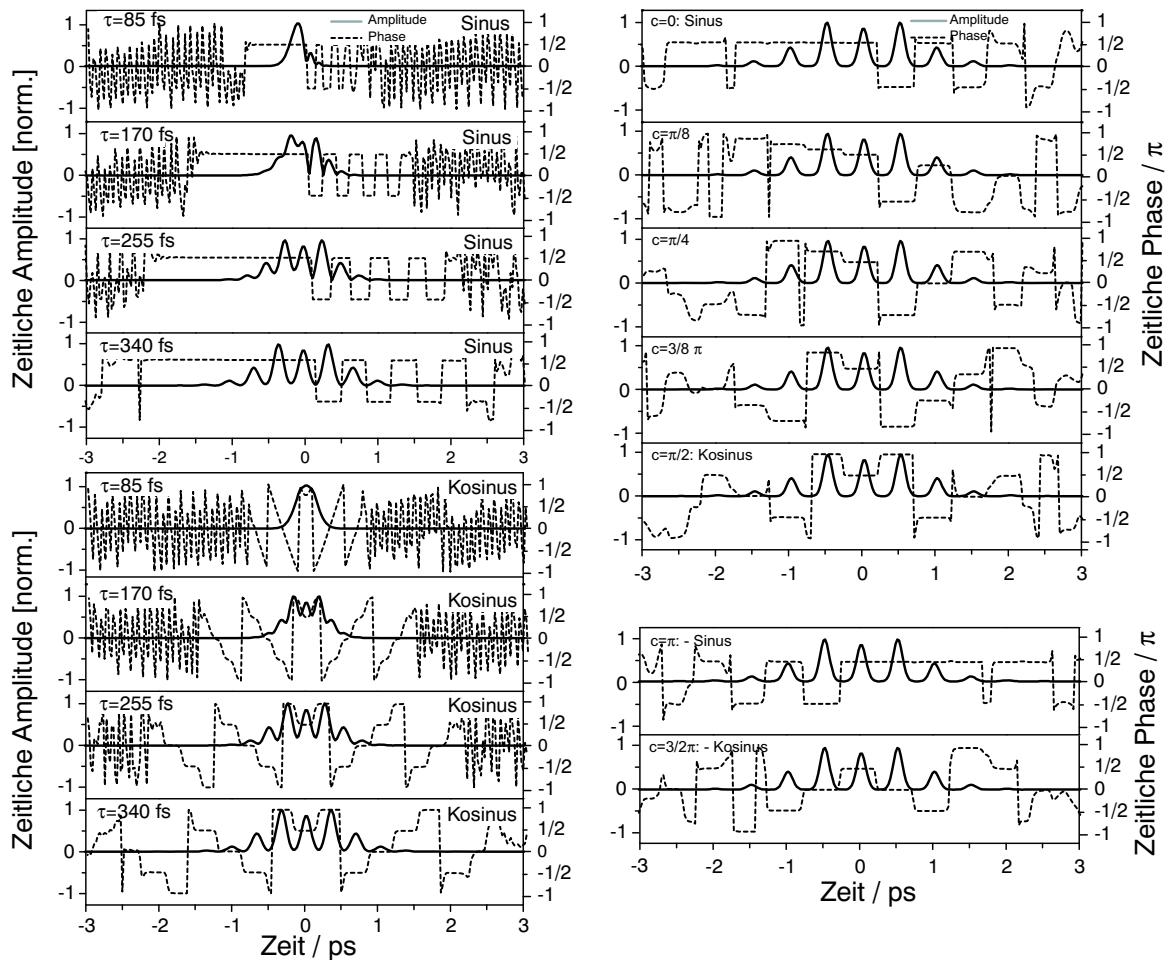


Abbildung 4.41: Vergleich numerischer Simulationsergebnisse spektraler Sinus- bzw. Kosinusmodulationen. Aufgetragen sind Amplitude (durchgezogen) und Phase (gestrichelt) des elektrischen Feldes der modulierten Pulse. Linke Spalte: Entwicklung der Modulationsfrequenz bis $\tau = 340$ fs in Schritten von $\Delta\tau = 85$ fs. Für $c = 0$ (Sinus, oben) entspricht die Phasenfunktion zunächst der eines quadratischen Frequenzraum-Chirps, während für $c = \pi/2$ (Kosinus, unten) der lineare Chirp die Grundlage bildet. Rechte Spalte: Verdeutlichung der zeitlichen Phase der sinusmodulierten Pulssequenzen. Stufenweise Vergrößerung der Modulationsphase von $c = 0$ bis $c = \pi/2$ für Pulse mit $\tau = 500$ fs und $a = \pi$. Für $c = 0$ weisen die einzelnen Pulse eine Phasenverschiebung von $\Delta\phi = 0$ bis zur ersten Hälfte und $\Delta\phi = \pi$ in der zweiten Hälfte der Pulssequenz auf. Die Phasenverschiebung für eine Kosinusmodulation beträgt $\Delta\phi = \pi/2$ für die gesamte Pulssequenz. Die Phasenfunktionen für negativen Sinus ($c = \pi$) und negativen Kosinus ($c = 3/2 \pi$) (unten) verdeutlichen die Verschiebung der zeitlichen Phase beim Durchgang eines Zyklus der spektralen Phase c zwischen 0 und 2π .

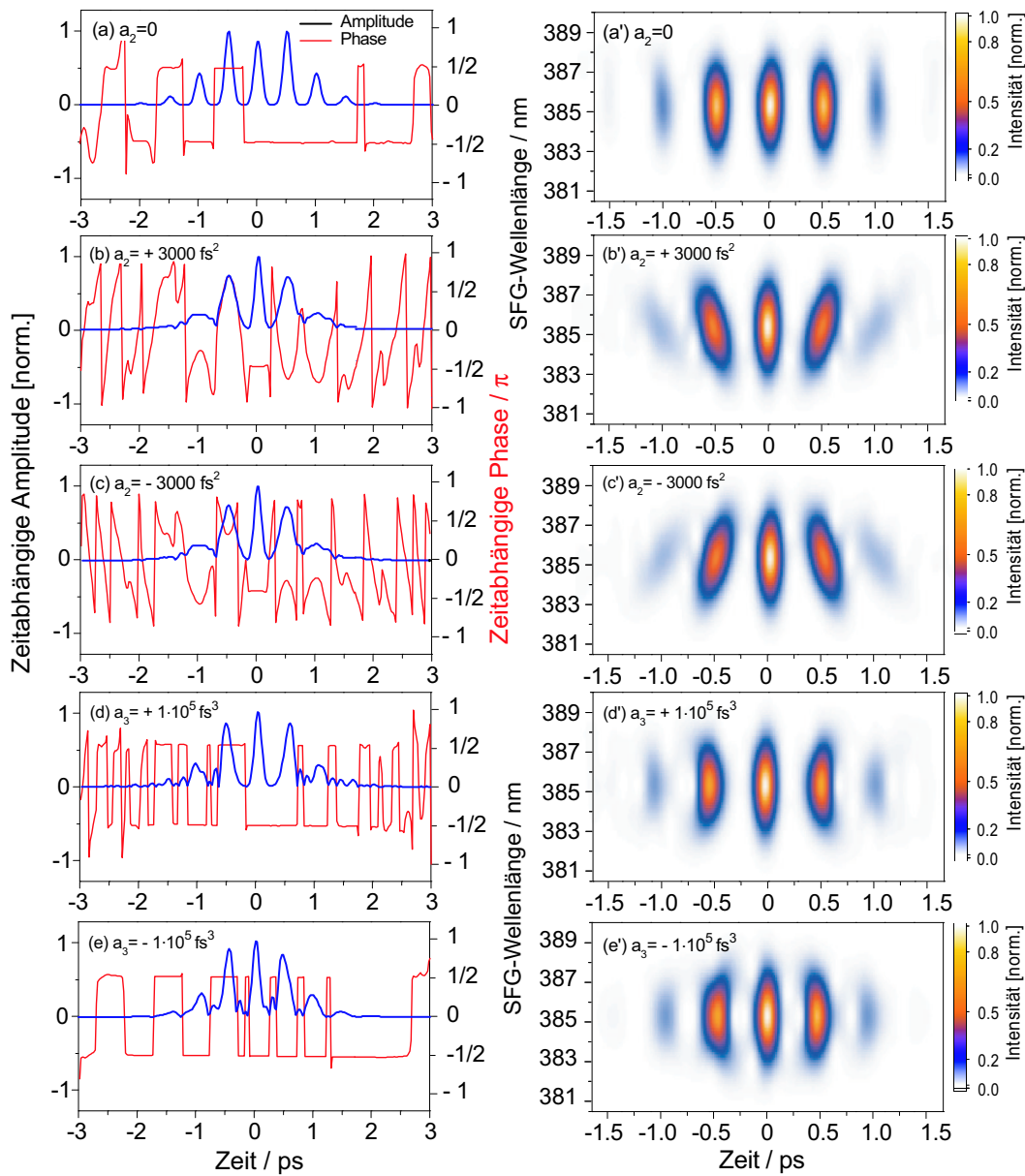


Abbildung 4.42: Simulation sinusförmig modulierter Pulse mit höheren Ordnungen im Modulationsargument Ω . In der linken Spalte sind zeitabhängige Amplitude und Phase, und in der rechten Spalte die simulierten XFROG-Spuren derselben Pulse gezeigt. (a): Pulsform mit $a = \pi$, $\tau = 500 \text{ fs}$ and $c = 0$. (b): Das Sinus-Argument wird durch einen zusätzlichen quadratischen Parameter $a_2 = +3000 \text{ fs}^2$ erweitert. Die Seitenpulse sind linear gechirpt. (c): Ist der quadratische Parameter negativ ($a_2 = -3000 \text{ fs}^2$) dreht die Richtung des linearen Chirps der Pulse. (d): Der Parameter der dritten Ordnung $a_3 = 1 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$ führt zu quadratisch gechirpten Seitenpulsen. (e): Der negative Parameter $a_3 = -1 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$ dreht die quadratische Chirprichtung um.

sprechende quadratische Phasenverlauf der einzelnen Pulse ist zu erkennen. Die XFROG-Spur zeigt, dass die Chirprichtungen der Pulse symmetrisch bezüglich des Zentralpulses angeordnet sind. Die Erweiterung des Sinusarguments mit der dritten Ordnung ($a_3^+ = 1 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$ und $a_3^- = -1 \cdot 10^6 \text{ fs}^3$) führt zu modulierten Pulsen mit quadratischem Frequenzraum-Chirp (XFROG-Spuren (d) und (e) in Abbildung 4.42). Der Phasenverlauf zeigt die für den quadratischen Chirp typischen π -Sprünge. Der Amplitudenverlauf weist zusätzliche Strukturen auf, die eine Folge der Interferenz mit den Seitenpulsen darstellen, die bei quadratischem Frequenzraum-Chirp entstehenden (siehe Abschnitt 4.4.3).

4.4.6 Phasen- und Amplitudenmodulation

Bisher wurde der Effekt verschiedener spektraler Phasenfunktionen $\psi(\omega)$ auf den zeitlichen Verlauf des erzeugten Pulses $E_{out}(t)$ untersucht. In diesem Unterabschnitt wird die Frage andersherum gestellt: Gesucht ist die spektrale Modulationsfunktion $\tilde{H}(\omega)$, die eine gewünschte zeitliche Pulsform erzeugt. Stehen sowohl Phasen- als auch Amplitudenmodulation zur Verfügung, kann theoretisch¹³ jeder Pulsverlauf geformt werden.

Die Modulationfunktion $\tilde{H}(\omega) = R(\omega) \cdot e^{-i\psi(\omega)}$ und damit die benötigten Phasen- und Amplitudenmuster $R_n(\omega)$ und $\psi_n(\omega)$ ($n \in (1, \dots, 128)$) lassen sich folgendermaßen analytisch¹⁴ berechnen:

Die gewünschte Pulsform sei $E_{out}(t)$. Die Fouriertransformierte ist das spektral modulierte Feld und lässt sich durch die Modulationsfunktion $\tilde{H}(\omega)$ ausdrücken: $\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega) \cdot \tilde{H}(\omega)$ (siehe Abschnitt 4.4). Daraus erhält man einen Ausdruck für $H(\omega)$:

$$\tilde{H}(\omega) = \frac{\tilde{E}_{out}(\omega)}{\tilde{E}_{in}(\omega)} \quad (4.90)$$

Ist die räumliche Dispersion α bekannt, kann die Maskenfunktion $M_n = R_n \cdot e^{-i\psi_n}$ und daraus die Amplituden- und Phasemuster R_n und ψ_n bestimmt werden.

Damit bietet sich die Möglichkeit, mit Hilfe der *Optimal Control*-Theorie theoretisch berechnete optimale Pulsformen experimentell zu erzeugen. Eine weitere Anwendungsmöglichkeit ist die kontinuierliche Variation einzelner oder mehrerer Pulseigenschaften, da die für jede Pulsform benötigten Phasen- und Amplitudenmuster instantan berechnet werden können. Solch eine spektroskopische Methode kann zum Beispiel eine gezielte Variation des Intensitätsverlaufs (etwa der Abstand einzelner Pulse innerhalb einer Pulssequenz), der relativen Phase (etwa die Phasendifferenz einzelner Pulsen einer Pulssequenz) oder des Chirps bedeuten. Letzteres kann jegliche Form der zeitlichen Verschiebung der Frequenzkomponenten beinhalten, also zum Beispiel eine Sequenz geschirpter Pulse oder ein komplexer Pulsverlauf mit Zeitraum-Chirps höherer Ordnung. In der vorliegenden Arbeit wird die Erzeugung gezielter Pulsformen dazu verwandt, Optimierungsexperimente einer Zeitraum-Parametrisierung (siehe Kapitel 5.3) vorzunehmen.

¹³Praktisch ist das Nyquist-Limit der diskreten Pulsformung zu beachten (siehe Abschnitt 4.2.6).

¹⁴Kann nur reine Phasenmodulation betrieben werden, ist die Erzeugung von gezielten Pulsformen nur eingeschränkt möglich. Dann müssen Optimierungsverfahren eingesetzt werden, um iterativ das benötigte spektrale Phasemuster zu bestimmen. A. Weiner und Mitarbeiter verwendeten *Simulated Annealing*-Algorithmen und konnten symmetrische Intensitätsverläufe durch binäre Phasemuster [153] und Graustufen-Phasemuster [154] erzeugen. In einigen Fällen konnten zusätzlich auch die relativen Phasen von Pulssequenzen eingestellt werden [155]. Der Vorteil der reinen Phasenmodulation, keine Intensität zu verlieren, wird damit erkauft, dass jede gewünschte Pulsform zunächst iterativ approximiert werden muss.

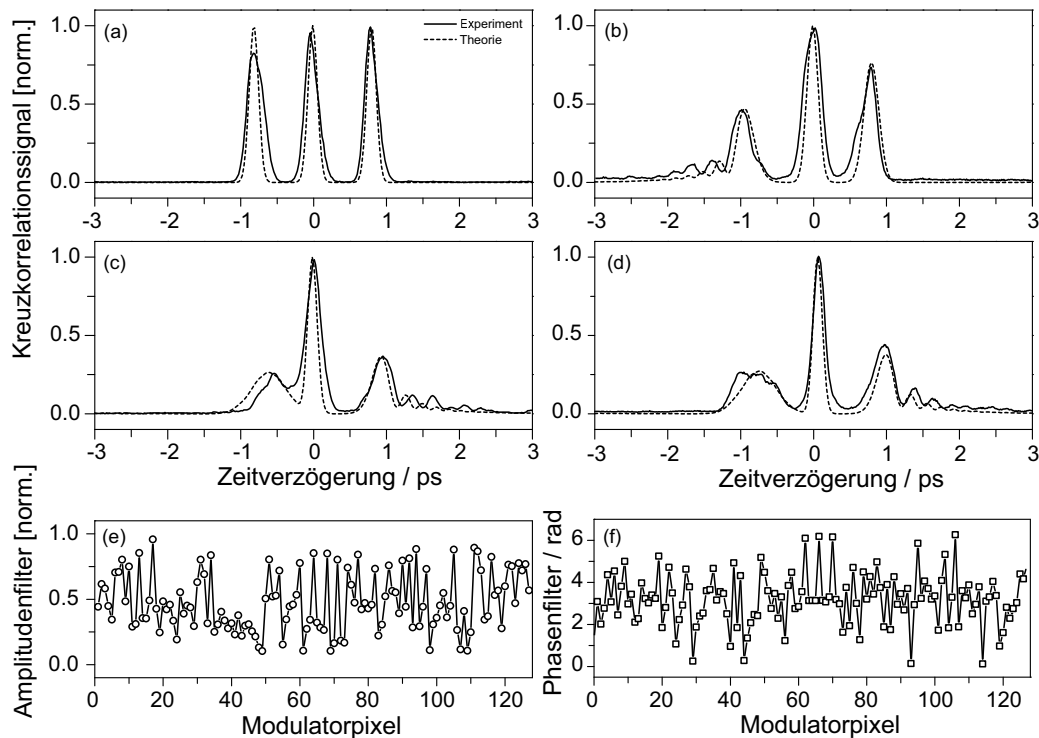


Abbildung 4.43: Kreuzkorrelationen ausgewählter Tripelpulse, die mit einer kombinierten Phasen- und Amplitudenmodulation erzeugt werden. Die durchgezogene Linie zeigt die gemessenen Kreuzkorrelationen, gestrichelt eingezeichnet sind theoretische Kreuzkorrelationen der gewünschten Pulsform, auf deren Grundlage die Amplituden- (e) und Phasenfilterfunktionen (f) ermittelt werden (unten). (a): Drei Pulse gleicher Intensität im Abstand $\Delta t = 800$ fs. (b): Dem ersten Puls wird ein quadratischer Frequenzraum-Chirp mit $b_3 = 2 \cdot 10^6$ fs³ und dem zweiten sowie dritten Puls jeweils ein leichter linearer Chirp von $b_2 = 3 \cdot 10^3$ fs² und $5 \cdot 10^3$ fs² aufgeprägt. (c): Der erste Puls ist linear gechirpt mit $b_2 = -2 \cdot 10^4$ fs² und der dritte quadratisch gechirpt mit $b_3 = -5 \cdot 10^6$ fs³. Der Abstand der ersten beiden Pulse beträgt 600 fs. (d): Entspricht (c), allerdings mit einem Abstand der Pulse von 800 fs. Der erste Puls ist positiv gechirpt mit $b_2 = +2 \cdot 10^4$ fs². Unten: Die Amplituden- (e) und Phasenfilterfunktionen (f) der Pulsform in (d) werden aus der gewünschten Pulsform (gestrichelt) berechnet.

Tripelpulse

Die gezielte Erzeugung von Dreierpuls-Sequenzen („Tripelpulse“) ist für die vorliegenden Untersuchungen an NaK interessant. Um Tripelpulse im Experiment einzusetzen, sollten folgende Parameter einstellbar sein:

1. Der zeitliche Abstand der drei Pulse.
2. Die Intensität jedes Pulses.
3. Die zeitliche Phase jedes Pulses.
4. Der lineare, quadratische und kubische Chirp jedes Pulses.

Maximal ergeben sich daraus 17 Parameter.

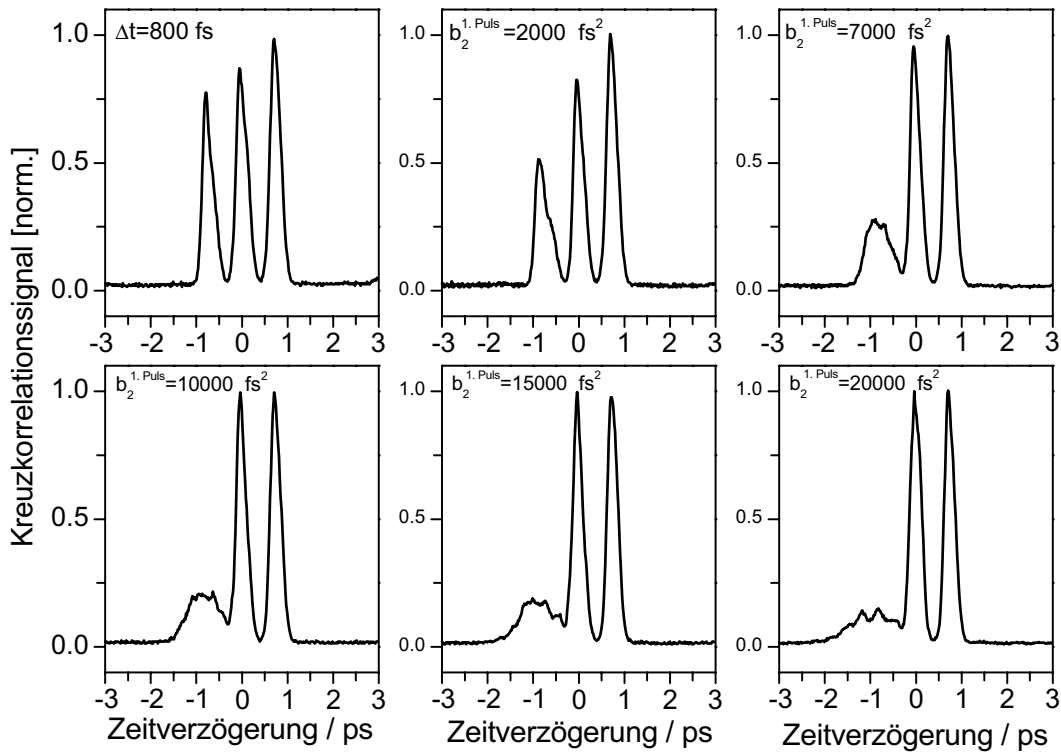


Abbildung 4.44: Variation des linearen Chirps eines einzelnen Pulses innerhalb einer Dreierpuls-Sequenz mit Abstand $\Delta t = 800$ fs. Die Pulsformen wurden mit einer kombinierten Phasen- und Amplitudenmodulation erzeugt.

Um den gewünschten Tripelpuls zu beschreiben, werden drei Gaußfunktionen überlagert, die gegeneinander verschoben werden können. Die spektrale Phase jedes Pulses wird einzeln moduliert. Mit Hilfe einer Taylorentwicklung kann somit jedem Puls ein Chirp zugeordnet werden. Die Phasenverschiebung zwischen den Pulsen wird durch den konstanten Phasenterm b_0 , der lineare Chirp durch den quadratischen Phasenterm b_2 , der quadratische Chirp durch den kubischen Phasenterm b_3 und der kubische Chirp durch den Phasenterm vierter Ordnung b_4 bestimmt. Die Intensität jedes einzelnen Pulses kann zwischen 0 und 1 variiert werden. Die Fouriertransformierte dieser Gaußpuls-Sequenz $\tilde{E}_{out}^{theo}(\omega)$ wird durch die Fouriertransformierte $\tilde{E}_{in}^{theo}(\omega)$ eines einzelnen Gaußpulses der selben spektralen Breite geteilt (Gleichung 4.90) und daraus die Filterfunktionen entnommen.

In Abbildung 4.43 werden Kreuzkorrelationen der auf diese Weise erzeugten Tripelpulszüge (durchgezogene Linien) mit verschiedenen Eigenschaften gezeigt. Zum Vergleich sind die gewünschten theoretisch berechneten Pulse (gestrichelt) $E_{out}^{theo}(t)$ dargestellt. Man erkennt neben der Verbreiterung der Pulse durch einen linearen Chirp auch den oszillatorischen Schweif des quadratischen Frequenzraum-Chirps. Die Limitierung möglicher Pulsformen durch das Nyquist-Limit ist erkennbar und für einzelne Parameter und einige Kombinationen eingezeichnet. Solange die errechneten Phasen- und Amplitudenmuster das Nyquist-Limit nicht überschreiten, ist die Übereinstimmung zwischen gewünschter und experimentell realisierter Pulsform gut. Die Entwicklung des linearen Chirps eines einzelnen Pulses der Dreierpuls-Sequenz zeigt Abbildung 4.44. Der Abstand der drei Pulse beträgt $\Delta t = 800$ fs. Der Chirp-

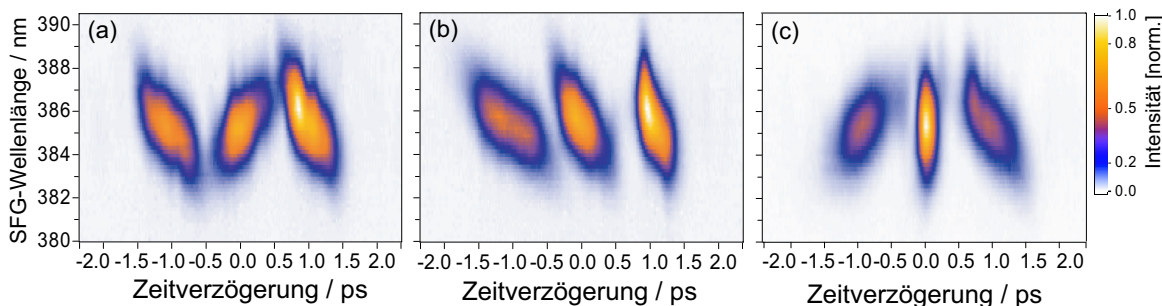


Abbildung 4.45: XFROG-Spuren von Tripelpuls-Sequenzen mit linearem Chirp, die mit der kombinierten Phasen- und Amplitudenmodulation erzeugt wurden. Die einzelnen Pulse im Abstand von $\Delta t = 1000$ fs sind mit linearen Chirps unterschiedlicher Richtung und Stärke versehen worden.

parameter b_2^1 des ersten Pulses wird zwischen 2000 fs^2 und 20000 fs^2 variiert.

In Abbildung 4.45 sind die XFROG-Spuren von drei ausgewählten Tripelpuls-Formen gezeigt. Die Pulse befinden sich in einem Abstand von $\Delta t = 1000$ fs und tragen linearen Chirp unterschiedlicher Richtung und Stärke. Die Pulsform in Abbildung 4.45 (a) zeigt eine Sequenz von up-chirp, down-chirp und wieder up-chirp. In Teilbild (b) sind alle drei Pulse positiv gechirpt, allerdings mit abnehmender Stärke. Teilbild (c) stellt eine zeitlich symmetrische Tripelpulsform dar, in der der erste Puls negativ und der dritte Puls positiv gechirpt sind, während der mittlere Puls ungechirpt bleibt. Insgesamt konnte gezeigt werden, dass die Qualität der mittels kombinierter Phasen- und Amplitudenmodulation gezielt erzeugten Pulsformen sehr hoch ist und die Pulsformung zu verlässlichen Resultaten führt, solange die Nyquist-Grenzen beachtet werden.

4.5 Zusammenfassung

Zu Beginn des Kapitels sind die Grundbegriffe der theoretischen Beschreibung geformter Femtosekundenpulse gegeben worden. Die Pulsformung basiert auf der Modulation der spektralen Phase und Amplitude des Eingangsfeldes. Experimentell wurde die Pulsformung mit einem Flüssigkristallmodulator vorgenommen, der in die Fourierebene eines Null-Dispersions-Kompressors gestellt wurde. Die geformten Pulse ergaben sich als Fouriertransformierte der spektral modulierten Felder. Dabei mussten aufgrund der Pixelierung der Flüssigkristallmaske Diskretisierungseffekte berücksichtigt werden. Auf die Kalibrierung des Modulators wurde ebenfalls eingegangen.

Die vollständige Charakterisierung der optimierten Pulsformen ist für die Interpretation der molekulardynamischen Steuerungsprozesse sehr wichtig. Zur Vermessung der zeitlichen Intensitätsverteilung der Pulse wurde eine verbesserte Kreuzkorrelationsaufnahme eingerichtet. Um die gekoppelten spektral-zeitlichen Eigenschaften der Pulse zu bestimmen, konnte die Aufnahme von XFROG-Spuren ermöglicht werden, die es gestatten, den zeitlichen Spektralverlauf innerhalb der Pulsform direkt abzulesen. Zudem enthält die XFROG-Spur die volle Phaseninformation des Pulses, die mit einem effizienten Phase-Retrieval-Algorithmus rekonstruiert werden kann. Die Ergebnisse stimmen mit den angelegten Phasenverläufen überein.

Unter den experimentell möglichen komplexen Pulsformen sind gechirpte Pulse linearer und höherer Ordnung sehr wichtig, die im letzten Abschnitt vorgestellt wurden. Pulssequen-

zen mit unterschiedlichen Eigenschaften lassen sich mit einer sinusförmigen Modulation der spektralen Phase erreichen. Die kombinierte Phasen- und Amplitudenmodulation gestattet die Erzeugung von willkürlich vorbestimmten Pulsformen. Am Beispiel von Tripelpuls-Sequenzen konnte gezeigt werden, dass Pulszüge mit definierten Eigenschaften der Einzelpulse erzeugt werden können.