

Kapitel 2

Erzeugung kurzer Laserpulse

2.1 Eigenschaften kurzer Laserpulse

Dieser kurze Überblick führt im wesentlichen auf den Begriff der Dispersion ultrakurzer Laserpulse in Materie und letztlich auf die gezielte Beeinflussung der Phasen der Frequenzanteile im Laserpuls zur Optimierung der Pulsdauer. Die einführenden Betrachtungen zu den grundlegenden Gleichungen sind für die gesamte Physik von und mit ultrakurzen Laserimpulsen unterhalb 50 fs von fundamentaler Bedeutung.

Elektromagnetische Wellen werden durch das zeit- und raumabhängige elektrische Feld $\mathbf{E}(x, y, z, t)$ vollständig beschrieben. Sie sind Lösungen der Maxwellschen Gleichungen sowohl im Vakuum, als auch in Materie mit der makroskopischen Polarisation $\mathbf{P}(x, y, z, t)$, die im wesentlichen die Materialeigenschaften beschreibt, gemäß derer die sich die elektromagnetische Welle ausbreitet.

Besitzt eine elektromagnetische Welle nur eine ausgezeichnete Polarisationskomponente, so schreibt sich die reduzierte Wellengleichung mit skalarem E-Feld als

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z, t). \quad (2.1)$$

Bei der Entwicklung der Polarisation nach den E-Feldern lässt sich der lineare Anteil von den nichtlinearen trennen

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \left(\vec{P}_0 + \sum_{\beta} \frac{\partial \vec{P}}{\partial E_{\beta}} E_{\beta} + \frac{1}{2} \sum_{\beta\gamma} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial E_{\beta} \partial E_{\gamma}} E_{\beta} E_{\gamma} + \frac{1}{6} \sum_{\beta\gamma\delta} \frac{\partial^3 \vec{P}}{\partial E_{\beta} \partial E_{\gamma} \partial E_{\delta}} E_{\beta} E_{\gamma} E_{\delta} + \dots \right),$$

mit den Ableitungen der Polarisation nach den Feldern als Suszeptibilitäten $\chi^{(n)}$.

In übersichtlicher Darstellung lautet diese Entwicklung

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \left(\underbrace{\frac{\vec{P}_0}{\varepsilon_0} + \chi^{(1)} \cdot \vec{E}}_{\text{lineare Polarisation}} + \underbrace{\chi^{(2)} : \vec{E} \cdot \vec{E} + \chi^{(3)} : \vec{E} \cdot \vec{E} \cdot \vec{E} + \dots}_{\text{nichtlineare Polarisation}} \right) \quad (2.2)$$

oder in Indexschreibweise

$$P_i = \varepsilon_0 \cdot \left(\frac{P_0}{\varepsilon_0} + \chi_{ij}^{(1)} \cdot E_j + \chi_{ijk}^{(2)} \cdot E_j \cdot E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} \cdot E_j \cdot E_k \cdot E_l + \dots \right)$$

bzw.

$$\Rightarrow \vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL}.$$

In vielen Fällen können die Suszeptibilitäten als konstant betrachtet werden, insbesondere wenn sich der Frequenzbereich der Welle auf einen kleinen Bereich erstreckt und nicht mit einer Resonanz des Mediums zusammenfällt sowie die zeitliche Entwicklung des Mediums instantan dem Verlauf der Welle folgt. In allen anderen Fällen wird eine integrale Form der Suszeptibilität gewählt. Für die nachfolgenden Betrachtungen soll die Medienantwort unter dem Einfluss ultrakurzer Lichtimpulse als instantan angesehen werden.

Für die Dispersion von Licht in Materie, d.h. der unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeit der Frequenzanteile der Lichtwelle, ist in erster Näherung kleiner Intensitäten der lineare Anteil der Polarisation verantwortlich. Im Fall hoher Intensitäten tragen auch die nichtlinearen Anteile zur Dispersion bei und der resultierende Phasenverlauf ist dann wesentlich komplexer als im linearen Fall. Die Intensität des Lichtes im Strahlengang eines Lasers bzw. eines Laserverstärkers sollte unter anderem aus diesem Grund immer deutlich unterhalb der Schwelle von messbaren Nichtlinearitäten in Materie liegen. Die weiteren Ausführungen beziehen sich deshalb nur noch auf den linearen Anteil der Polarisation für Licht mit einer ausgezeichneten Polarisationsrichtung.

Im Frequenzraum ist die Form der linearen Polarisation derjenigen im Zeitraum ähnlich

$$P_L(\omega, z) = \varepsilon_0 \cdot \chi(\omega) \tilde{E}(\omega, z).$$

Eingesetzt in (2.1) schreibt sich die reduzierte Wellengleichung im Frequenzraum als

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\omega) \right] \tilde{E}(\omega, z) = 0, \quad (2.3)$$

mit der dielektrischen Konstanten $\epsilon(\omega) = [1 + \chi(\omega)]$, wobei $\epsilon(\omega)$ eine komplexe Größe mit Real- und Imaginärteil ist.

Die resultierende Vereinfachung von Gleichung (2.1) im Frequenzraum ist evident, da Gleichung (2.3) nun eine gewöhnliche Differentialgleichung ohne Zeitableitung ist. Die allgemeine Lösung der Differentialgleichung (2.3) ergibt sich mit der Ausbreitungskonstanten $k(\omega)$:

$$\tilde{E}(\omega, z) = \tilde{E}(\omega, 0) e^{-ik(\omega) \cdot z},$$

wobei k durch die Dispersionsrelation der linearen Optik definiert ist

$$k^2(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2} n^2(\omega). \quad (2.4)$$

Im weiteren wird die Betrachtung auf die Ausbreitungskonstante k beschränkt, die ein zentrales Element der Dispersionskontrolle darstellt. k kann auch als spezifische Phase betrachtet werden, da ihr Zahlenwert in Materie nicht vom durchlaufenen Weg abhängt. Da k im allgemeinen keine lineare oder sogar konstante Funktion der Frequenz ω ist, wird k zur einfacheren Handhabung in eine Taylorreihe um die Frequenz ω_l , der zentralen Laserfrequenz, entwickelt. In den meisten Fällen haben nur die ersten vier Entwicklungskoeffizienten wesentlichen Einfluss auf den Verlauf von k :

$$k(\omega) = k_l + \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_l} \cdot (\omega - \omega_l) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} \cdot (\omega - \omega_l)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{d^3k}{d\omega^3} \right|_{\omega_l} \cdot (\omega - \omega_l)^3 + \dots \quad (2.5)$$

Die Dispersionsrelation (2.4) beschreibt die Abhängigkeit von k vom Verlauf des Brechindex des Materials, in dem sich die Welle bzw. der Lichtimpuls ausbreitet. Ist der Verlauf von $n(\omega)$ bekannt, so kann k über (2.4) bzw. über die Entwicklung (2.5) bestimmt werden. Die Vorzeichen der Koeffizienten geben auch Aufschluss darüber, ob die roten Frequenzkomponenten vor den blauen kommen (+) oder umgekehrt (-).

In diesem Zusammenhang lassen sich die fundamentalen Gleichungen der Dispersionskontrolle aus den Entwicklungskoeffizienten, d.h. den Ableitungen der Beziehung (2.4), in Gleichung (2.5) angeben:

$$\frac{dk(\omega)}{d\omega} = \frac{n(\omega)}{c} + \frac{\omega}{c} \frac{dn(\omega)}{d\omega} = \frac{1}{c} \left(n(\lambda) - \lambda \frac{dn(\lambda)}{d\lambda} \right) \quad (2.6)$$

$$\frac{dk^2(\omega)}{d\omega^2} = \frac{2}{c} \frac{dn(\omega)}{d\omega} + \frac{\omega}{c} \frac{dn^2(\omega)}{d\omega^2} = \frac{\lambda}{2\pi c^2} \left(\lambda^2 \frac{dn^2(\lambda)}{d\lambda^2} \right) \quad (2.7)$$

$$\frac{dk^3(\omega)}{d\omega^3} = \frac{3}{c} \frac{dn^2(\omega)}{d\omega^2} + \frac{\omega}{c} \frac{dn^3(\omega)}{d\omega^3} = - \left(\frac{\lambda^2}{4\pi^2 c^3} \right) \left(3\lambda^2 \frac{dn^2(\lambda)}{d\lambda^2} + \lambda^3 \frac{d^3n(\lambda)}{d\lambda^3} \right) \quad (2.8)$$

Die Formeln (2.6...2.8) haben dabei folgende physikalische Bedeutung: die erste Ableitung entspricht der Gruppenverzögerung (GV), die angibt, mit welcher zeitlichen Verzögerung die Gruppengeschwindigkeit des Lichts bzw. des Wellenpaketes in Materie derjenigen im Vakuum nachläuft. Die zweite Ableitung beschreibt das Auseinanderfließen des Wellenpaketes und wird im weiteren Verlauf dieser Arbeit mit Dispersion zweiter Ordnung bezeichnet, und mit der dritten Ableitung wird die Änderung der Dispersion zweiter Ordnung im Medium beschrieben. Sie erhält die Bezeichnung Dispersion dritter Ordnung. Das Beispiel in Abb. (2.1) für einen 10 fs Laserpuls bei 400 nm und 800 nm macht die Relevanz der Kenntnis aller Materialgrößen deutlich, die im gesamten Strahlführungssystem des Lasers bis zu dem Punkt notwendig ist, an dem der Laserpuls in Wechselwirkung mit dem gewünschten Objekt tritt. Wenige Millimeter Material können bereits zu erheblichen Verlängerungen der Dauer ultrakurzer Laserpulse führen. Dies gilt im besonderen für den nahen UV-Bereich. Selbst die dispersiven Eigenschaften der Umgebungsluft müssen bei der Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse berücksichtigt werden, da in Messvorrichtungen häufig Wege von mehreren Metern zurückgelegt werden.

2.2 Dispersionskontrolle

Zur Kompensation der verschiedenen Ordnungen der Dispersion in einem Lasersystem gibt es verschiedene Möglichkeiten, die in diesem Unterabschnitt kurz umrissen werden. Zur tiefergehenden Betrachtung wird auf die Monographie von Diehls und Rudolph verwiesen [DIR96].

Um die Dispersion im Lasersystem gezielt steuern zu können, wie es bei der im späteren Abschnitt beschriebenen Laserpulsverstärkung grundlegend notwendig ist, müssen die Bedingungen für die Vorzeichen der Entwicklungskoeffizienten in Gleichung

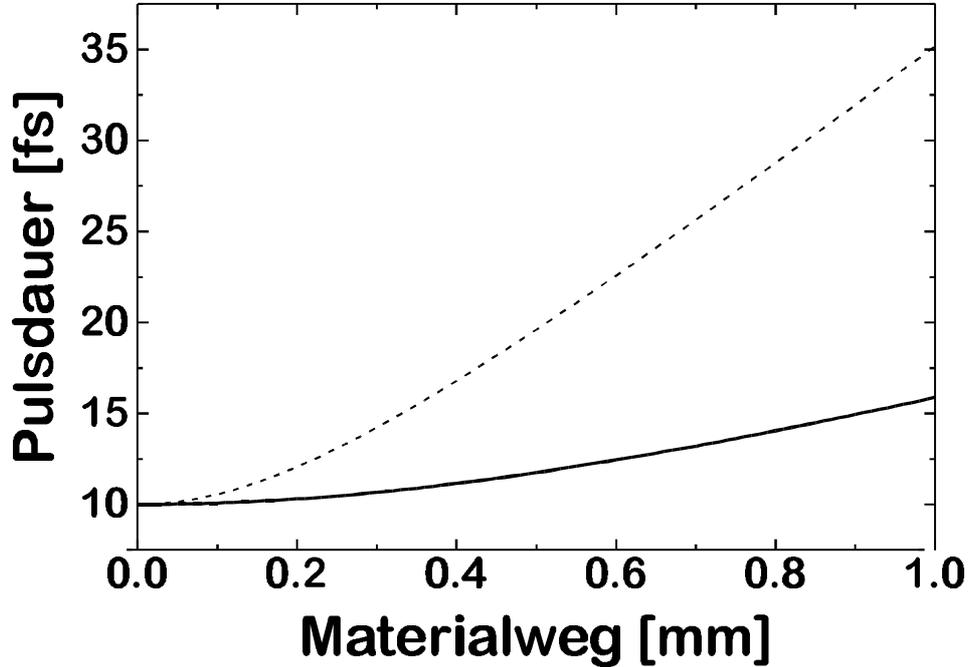


Abb. 2.1: Die Größe der zeitlichen Verbreiterung eines 10 fs Laserpulses beträgt bei Anwesenheit von ausschließlich Dispersion zweiter Ordnung in BK7 bei $\lambda_{\text{Laser}} = 800$ nm bereits über 60% nach einem Millimeter Materialweg. Für kürzere Wellenlängen ist die Verbreiterung durch Dispersion deutlich größer, wie die gestrichelte Kurve mit über 350% Verbreiterung zeigt.

(2.5) bekannt sein. Die zu kompensierende Phase ist die Summe aller Phasen, die dem Laserpuls beim Durchlaufen des gesamten Systems aufgeprägt werden:

$$\sum_i \Phi_i + \Phi_{\text{komp}} = 0. \quad (2.9)$$

Die Kontrolle der Dispersion des Systems erfolgt auf verschiedenen Wegen. Die einfachste Art dispersive Eigenschaften gezielt zu nutzen, ist die Einbringung von Materie in den Strahlengang. Die Entwicklungskoeffizienten, d.h. die Phasen zweiter und dritter Ordnung für verschiedene Medien bei 800 nm und 400 nm sind Tabelle 2.1 zu entnehmen. ($k^{(i)} = d^{(i)}k/d\omega^{(i)}$)

Die Vorzeichen für die Phasen zweiter und dritter Ordnung verdeutlichen, dass Materie, wie sie typisch für den optischen Weg in einem Lasersystem ist, ausschließlich

Medium	$\lambda[nm]$	$n(\lambda)$	$k''[fs^2/mm]$	$k'''[fs^3/mm]$
BK7	400 nm	1.531	121.670	0.041
	800 nm	1.511	44.486	0.032
Quarz	400 nm	1.557	118.543	0.033
	800 nm	1.538	52.595	0.024
Ti:Saphir	400 nm	1.787	153.459	0.047
	800 nm	1.760	57.959	0.042
Luft (1bar)	400 nm	1.000	0.049	$1.5 \cdot 10^{-5}$
	800 nm	1.000	0.021	$1 \cdot 10^{-5}$
KDP	400 nm	1.519	113.238	0.042
	800 nm	1.499	28.982	0.044

Tabelle 2.1: Die Werte für $n(\lambda)$, k'' und k''' wurden über die entsprechenden Sellmeier-Formeln gewonnen (siehe Anhang). Die Dispersion zweiter und dritter Ordnung ist im gewählten Wellenlängenbereich ausschließlich positiv.

einen Phasenverlauf mit positivem Vorzeichen bewirken kann. Auf diesem Weg kann die Kompensation einer positiven Phase des Laserpulses nicht erreicht werden. Um die geforderte Bedingung (2.9) für die Kompensation zu erreichen, müssen andere Wege als die der ausschließlichen Materialdispersion gewählt werden. Der physikalische Leitgedanke dabei ist, die positive Dispersion, also das Vorseilen der roten Frequenzanteile des Laserpulses umzukehren und den optischen Weg für die kurzwelligeren Frequenzen zu verkleinern.

Bereits 1969 wurde von E. Treacy [EBT69] Laserpulscompression mittels eines parallelen Gitterpaares vorgeschlagen. Da die Herleitung der Formeln keine tiefere Einsicht in die physikalischen Zusammenhänge gibt, werden hier nur die Ergebnisse aufgezeigt.

Die in Abbildung 2.2 verwendeten Symbole entsprechen denen der Dispersionsformeln für den Gitterkompressor.

Die Phasenterme für das parallele Gitterpaar lauten

$$\left. \frac{d^2\Phi}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} = -\frac{\lambda_l}{2\pi c^2} \left(\frac{\lambda_l}{d} \right)^2 r \frac{1}{e} \quad (2.10)$$

und

$$\left. \frac{d^3\Phi}{d\omega^3} \right|_{\omega_l} = -\frac{3\lambda_l}{2\pi c \cdot e} \cdot \left[e + \frac{\lambda_l}{d} \left(\frac{\lambda_l}{d} - \sin \beta \right) \right] \cdot \left. \frac{d^2\Phi}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} \quad (2.11)$$

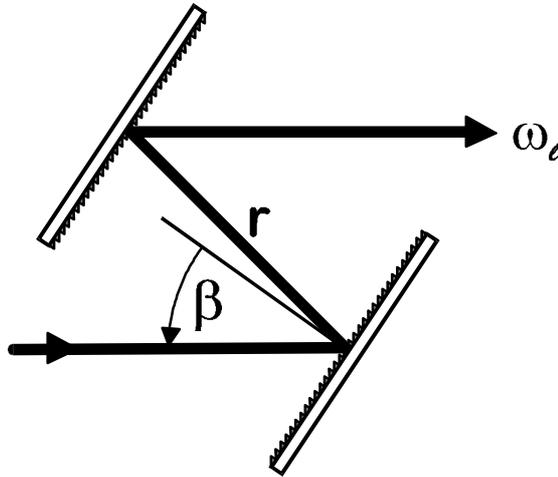


Abb. 2.2: Zwei parallele Gitter erzeugen negative Dispersion zweiter und dritter Ordnung. Um ein paralleles Strahlbündel zu erhalten, wird das Gitterpaar ein weiteres mal durchlaufen. Die Bezeichnungen beziehen sich auf die Formeln im Text.

mit $e = 1 - \left[\frac{\lambda_l}{d} - \sin \beta \right]^2$ und d =Gitterkonstante in μm . r ist der Abstand zwischen den Gittern entlang der zentralen gebeugten Laserwellenlänge λ_l [μm]. Dabei ist zu beachten, dass ein weiterer Durchlauf durch das Gitterpaar notwendig ist, um eine resultierende Winkeldispersion zu kompensieren. Der Strahl verlässt den Kompressor damit als paralleles Bündel.

Aus dem Zusammenhang in Gleichung (2.11) wird deutlich, dass es nicht möglich ist, die Phasen zweiter **und** dritter Ordnung beim parallelen Gitterpaar getrennt zu beeinflussen. Die Kenntnis dieser Kopplung ist entscheidend, wenn die Phase so kompensiert werden soll, dass die Gesamtphase des Systems für extrem kurze Laserpulse Null wird. Dazu müssen Elemente oder Kombinationen von optischen Elementen eingefügt werden, die einen davon abweichenden Verlauf für die Phasen höherer Ordnung besitzen.

Die Kombination zweier Prismen hat ebenfalls die Eigenschaft, gezielte Dispersion höherer Ordnung ohne resultierende Winkeldispersion zu erzeugen. Auch hier bleibt der Ausgangsstrahl wie beim Gitterpaar parallel. Um jedoch die räumliche Trennung der Wellenlängen aufzuheben, ist ein weiterer Durchgang durch ein Prismenpaar notwendig. Die Dispersion setzt sich so aus Winkel- und Materialdispersion zusammen. Da die Materialdispersion im Bereich normaler Dispersion jedoch stets positiv ist, wie oben

gezeigt wurde, wirkt sie der negativen Dispersion entgegen. Ebenso kann das Material Absorption für bestimmte Wellenlängenbereiche, z.B. im UV aufweisen. Abbildung 2.3 skizziert die Anordnung einer Prismensequenz mit doppeltem Durchlauf. Die Formeln beziehen sich auf einen Prismenapexwinkel von 60° für den Brewsterwinkel bei 800 nm zentraler Wellenlänge.

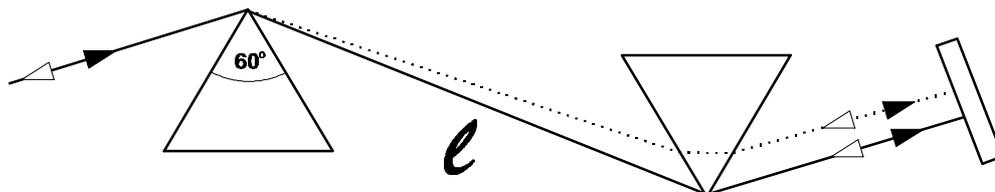


Abb. 2.3: Der Prismenkompressor wird ein weiteres mal durchlaufen, um die räumliche Trennung der Wellenlängenkomponenten aufzuheben. Der Apexwinkel von 60° ist für minimale Stirnflächenreflexion um $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ bei symmetrischem Strahldurchgang durchs Prisma ausgelegt (Brewsterwinkel).

Die folgenden Formeln beschreiben wieder die Dispersion zweiter bzw. dritter Ordnung:

$$\left. \frac{d^2 \Phi}{d\omega^2} \right|_{\omega_l} = \frac{\lambda_l^3}{2\pi c^2} \left[L \frac{d^2 n}{d\lambda^2} - 4l \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \right] \quad (2.12)$$

und

$$\left. \frac{d^3 \Phi}{d\omega^3} \right|_{\omega_l} = \frac{\lambda_l^4}{(2\pi c)^2 c} \left[12l \left(\frac{dn}{d\lambda} \left[1 - \lambda_l \frac{dn}{d\lambda} (n^{-3} - 2n) \right] + \lambda_l \frac{dn}{d\lambda} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right) - L \left(3 \frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \lambda_l \frac{d^3 n}{d\lambda^3} \right) \right]. \quad (2.13)$$

Auch mit der Prismensequenz lassen sich Φ'' und Φ''' nicht unabhängig voneinander beeinflussen. Die Kombination von Gitter- und Prismenanordnung kann jedoch zu einer (fast) unabhängigen Optimierung des Phasenverlaufs führen. Bereits 1987 wurde mit einer solchen Anordnung Laserpulse bei $\lambda_l = 620 \text{ nm}$ auf 6 fs komprimiert [FBB87].

Tabelle 2.2 gibt einen Überblick über die Größen der Dispersion zweiter und dritter Ordnung für verschiedene dispersive Elemente.

Element	$\Phi''[fs^2]$	$\Phi'''[fs^3]$
BK7 (40 cm)	$1.373 \cdot 10^4$	$6.282 \cdot 10^3$
Ti:Sa (100 cm)	$5.259 \cdot 10^4$	$2.407 \cdot 10^4$
Prismenkompressor 1 m Apexabstand	-843.3	$-4.07 \cdot 10^3$
Gitterkompressor 10 cm Gitterabstand Einfallswinkel 60°	$-6.548 \cdot 10^4$	$7.183 \cdot 10^4$
$\sum_n \Phi_n^{(i)}, i = 2, 3$	0	$9.811 \cdot 10^3$

Tabelle 2.2: BK7 und Ti:Saphir strecken den Puls zeitlich, während die Kombination aus Prismen- und Gitterkompressor die Phase zweiter Ordnung vollständig kompensieren. Die Dispersion dritter Ordnung hingegen bleibt in dieser Kombination der Parameter positiv.

Bis hierhin sind die Möglichkeiten der Dispersionskontrolle grob umrissen worden. Die grundlegenden formalen Zusammenhänge sind unter optimierten Randbedingungen, wie der Parallelität des Strahlbündels mit sehr geringem Durchmesser und homogen verteilter spektraler Zusammensetzung, abgeleitet worden. Jede Abweichung von den optimalen Bedingungen führt zu sehr komplexen Gleichungen, die zwar alle Parameter berücksichtigen, aber praktisch kaum eine Anwendung in der Praxis finden können.

Für Laserpulse um 100 fs und darüber führen diese Formeln ohne wesentliche Einschränkungen zu sehr guten Vorhersagen. Bei kürzeren Pulsen mit wesentlich größerer spektraler Breite und damit größerer Empfindlichkeit bei Abweichungen vom Optimum muss ein anderer, nicht-analytischer, Weg beschritten werden, um die Dispersion des Systems zu berechnen und zu kontrollieren. Das angewandte Verfahren der Strahlverfolgung („ray tracing“) berechnet den optischen Weg für jede einzelne Wellenlängenkomponekte durch das gesamte System und macht am Ende Aussagen über die Phase des Laserpulses, d.h. über die Differenz der optischen Wege der spektralen Komponenten. Diese Methode benötigt für komplexe Systeme leistungsfähige Rechner, wie sie heute im allgemeinen verfügbar sind. Das in dieser Arbeit verwendete Programm zur Optimierung basiert auf einem in C++ erstellten Quelltext [CRP95]. Die Grenzen des Verfahrens liegen in der Kenntnis des Systems. Das im Strahlengang des Laserpulses befindliche Material muss in Menge und optischer Eigenschaft genau bekannt sein, um gute Vorhersagen zu treffen. Abbildung 2.1 hat diesen Zusammenhang bereits verdeutlicht. Ein Laserpuls von 10 fs Dauer bei $\lambda_0=400$ nm verlängert sich in einem Millimeter

BK7 auf 35 fs.

Laserpulse mit einer Dauer von 10 fs besitzen bei 800 nm zentraler Wellenlänge bereits eine spektrale Breite von 85 nm. Die extremen spektralen Komponenten durchlaufen das zweite Prisma in Abbildung 2.3 mit unterschiedlichen Materialmengen und erfahren somit unterschiedliche positive Dispersion. Die Formeln gelten also nur für einen schmalen spektralen Bereich um die entwickelte Laserwellenlänge.

Aber nicht nur die bisher beschriebenen Komponenten wie Material, Prismen und Gitter haben Einfluss auf die Phase des Pulses. Häufig werden die Spiegel in einem Lasersystem nur durch ihre spektralen Reflexionseigenschaften charakterisiert. Die in einem Lasersystem verwendeten dielektrischen Spiegel, die sich aus einem Schichtensystem mit Materialien aus verschiedenen Brechungsindizes zusammensetzen, verändern durch die Frequenzabhängigkeit der Interferenzbedingungen an den Schichtengrenzen ebenfalls den Phasenverlauf des Pulses. Aus diesem Grund müssen dielektrische Spiegel mit in die Berechnungen der Strahlverfolgung einbezogen werden. Auch metallische Spiegel ändern den Phasenverlauf des Laserpulses, da die Frequenzkomponenten unterschiedlich tief in das Metall eindringen und damit unterschiedliche Weglängen durchlaufen. Die Pulsdauer ändert sich nach der Reflexion. Die große Anzahl der verwendeten Spiegel hat dann einen merklichen Einfluss auf die Pulsdauer. Andererseits kann durch gezieltes Steuern der Schichtanordnung im Spiegel die Phase des Pulses so verändert werden, dass eine Pulsverkürzung oder -formung erreicht wird. Diese Methode wird im nun folgenden Abschnitt näher erläutert.

2.2.1 Dispersive Spiegel

Klassische Elemente zur Dispersionskontrolle weisen relativ hohe Verluste auf, die entweder bei Gittern durch höhere Beugungsordnungen oder am Prisma durch Abweichungen vom Brewsterwinkel für die verschiedenen Frequenzkomponenten zustande kommen. Die Effizienz dieser Anordnungen liegt damit in der Größenordnung von 50%-70%. Mit der bereits erläuterten Steuerung der Dispersion durch Vielfachschichtspiegel, wie sie in dieser Arbeit zur Kompression ultrakurzer Pulse unter 10 fs verwendet werden, können Reflexionen von $> 99\%$ über einen Frequenzbereich von $150 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$ erreicht werden [TKS98]. Das entspricht bei $\lambda = 800 \text{ nm}$ einer Breite von $\Delta\lambda = 320 \text{ nm}$.

Die Spiegel bestehen aus 50 Schichten zweier sich abwechselnder dielektrischer

Schichten mit unterschiedlichem Brechungsindex. Angeordnet sind hochbrechende TiO_2 -Schichten ($n \approx 2.35$) und niedrigbrechende Schichten SiO_2 ($n \approx 1.45$). Computersimulationen berechnen die Schichtdicke der einzelnen Materialien um die gewünschte Dispersion zu erzeugen. Die in dieser Arbeit verwendeten Spiegel bei 800 nm weisen eine negative Dispersion zweiter Ordnung von etwa $\Phi'' = -40 \text{ fs}^2$ auf. Die Dispersion dritter Ordnung ist nahezu Null. Damit kann über die Gitter oder Prismen die Dispersion zweiter und dritter Ordnung beeinflusst werden, während die Spiegel nur die Dispersion zweiter Ordnung ändern. So ist eine unabhängige Kontrolle bis einschließlich Dispersion dritter Ordnung möglich.

2.3 Messmethoden der Ultrakurzzeitphysik

2.3.1 Pulscharakterisierung

Im letzten Jahrzehnt hat die Entwicklung von Lasern, die ultrakurze Laserpulse erzeugen und die Anwendung auf untersuchte dynamische Prozesse in Materie einen erheblichen Fortschritt erfahren. Lichtpulse erreichen die Grenze der Dauer weniger Zyklen der Schwingung des elektrischen Feldes [BWP97]. Die exakte Messung der Pulsdauer ist für die Interpretation der gewonnenen Ergebnisse und dem Vergleich mit theoretischen Modellen von fundamentaler Bedeutung. Um die Effekte zu ermitteln, die einer weiteren Pulsverkürzung entgegenwirken, ist es notwendig, den genauen Pulsverlauf und dessen spektrale Phase zu kennen, um eine weitere Verkürzung der Laserpulse zu erreichen.

Die Femtosekunden-Zeitskala ist mit elektronischen Nachweismethoden nicht mehr zu erfassen. Ein Halbleiterelement als Detektor kann aufgrund der Rekombinationsdauer der erzeugten Elektron-Loch-Paare bestenfalls zeitliche Ereignisse mit einer Dauer von 30 ps und darüber auflösen. Die Standardmethoden für den Bereich unterhalb dieser elektronisch erreichbaren Zeitauflösung nutzen die nichtlinearen Eigenschaften von Materie unter Einwirkung eines ultrakurzen Laserpulses. Liegt die Pulsdauer unter 50 fs, sind weitere Eigenschaften des Mediums wie Dispersion zu berücksichtigen.

Das zeitliche Profil eines Laserpulses lässt sich mathematisch als Faltung zweier zeitlicher Signale darstellen. Die allgemeine Intensitäts-Korrelation der Ordnung n ist

definiert als

$$A_n(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) \cdot I^{n-1}(t - \tau) dt. \quad (2.14)$$

Die Ordnung entspricht dem Grad der nichtlinearen Polarisation in Gleichung (2.2).

Die Multiplikation der Intensitäten im Medium ergibt sich bei der Korrelation n-ter Ordnung ($n > 1$) über das Produkt der E-Felder in Gleichung (2.1). Die Integration übernimmt eine langsame Photodiode, die das entstehende Signal aufnimmt. Bei der Pulscharakterisierung mit einem Prozess zweiter Ordnung, wie mit der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) in Medien ohne Inversionszentrum, entsteht das Faltungssignal in der Winkelhalbierenden der eingestrahlt Laserpulse. Der geometrisch verlängerte Weg des Abtastpulses ($x = c \cdot \tau$) lässt sich in die zeitliche Verzögerung τ übersetzen. Sind die beiden gefalteten Pulse identisch, spricht man von Intensitäts-Autokorrelation. Abbildung 2.4 zeigt die Skizze eines solchen Aufbaus und Abbildung 2.6a die Richtung der entstehenden Signale. Bei kollinearer Einstrahlung in das Medium erhält man zusätzliche Information über die Phase, da die Laserpulse miteinander interferieren. Die Korrelation heißt dann interferometrisch. In diesem Fall ist die Messung des Signals allerdings hintergrundbehaftet, da alle drei Strahlen in einer Richtung liegen und räumlich nicht getrennt werden können. Bei optimal justiertem Korrelator mit identischen Pulsen beträgt das Verhältnis von Signal zu Hintergrund 1:8 [DIR96]. Das Besondere des abgebildeten Korrelators ist die Dispersionskompensation. Hier durchlaufen beide Teilstrahlen die gleiche Materialmenge der Teilerplatte T und besitzen im Überlagerungsbereich damit die gleiche Pulsdauer.

Anstelle der Intensitätskorrelation kann im gezeigten Aufbau auch die interferometrische Korrelation bestimmt werden, also die Überlagerung der elektrischen Felder. Dazu ist der Strahlversatz des beweglichen Teilarms in Abbildung 2.4 gegenüber dem festen Arm aufzuheben, indem der Winkelspiegel durch einen ebenen Spiegel ersetzt wird. Hat der Puls nun einen nicht konstanten Phasenverlauf, so ist er in der interferometrischen Korrelation sofort zu erkennen. Im Experiment muss jedoch sehr genau sichergestellt sein, ob die „Phase“ sich nicht aus der Verkippung der beiden Strahlen gegeneinander ergibt. Insbesondere der letzte Punkt macht die interferometrische Erfassung der Pulsdauer schwierig. Die Simulation in Abbildung 2.5 demonstriert den Einfluss der Gruppengeschwindigkeitsdispersion eines gaußförmigen Pulses auf die Korrelationskurve. Größere Dispersion zweiter Ordnung lässt die Korrelation schmaler erscheinen, obwohl der Puls zeitlich verbreitert ist. Eine genaue Betrachtung der Pulsflan-

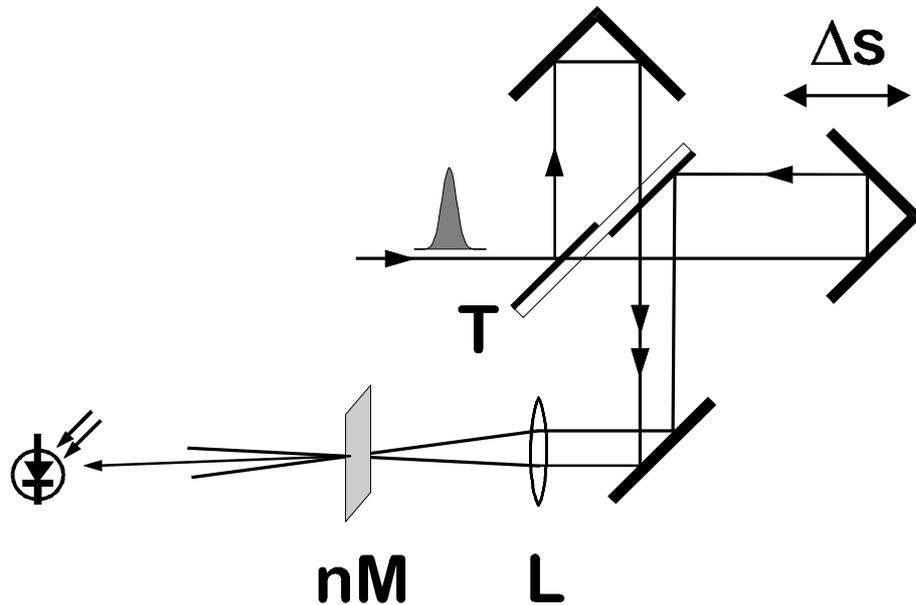


Abb. 2.4: Die Verzögerungseinheit stellt die einfachste Anordnung zur Messung der Laserpulskorrelation dar. Mit dem gezeigten Aufbau kann die Intensitätskorrelation ermittelt werden. T: 50%-Teiler, nM: nichtlineares Medium bzw. zu untersuchende Probe, L: Linse oder fokussierender Spiegel, Δs : Verzögerung. Die Besonderheit des Aufbaus ist die Dispersionskompensation des Strahlteilers T, da beide Arme die gleiche Materialmenge durchlaufen.

ken zeigt diesen Einfluss jedoch deutlich. Die physikalische Ursache dafür ist evident, denn die nicht zeitgleich auftretenden Frequenzen des Laserpulses können nicht mehr miteinander interferieren und täuschen zumindest für geringe Dispersion einen kürzeren Puls vor. Bei großen Dispersionsparametern ist der Einfluss aus der Kurvenform ersichtlich. Aus diesem Grund ist es experimentell sinnvoll, die Intensitätskorrelation als Standardmessverfahren zu verwenden.

Die Autokorrelation, also die Korrelation zweiter Ordnung mit identischen Signalen $I(t)$, gibt keine direkte Auskunft über die Pulsform, da der zeitliche Verlauf nach Definition (2.14) symmetrisch zum Nullpunkt ist. Soll die Form des Pulses ermittelt werden, muss eine Korrelation ungerader Ordnung gewählt werden.

Eine in dieser Arbeit verwendete Charakterisierungsmethode ist die Korrelation dritter Ordnung mit einem sog. $\chi^{(3)}$ -Prozess, der in allen Medien realisierbar ist, die für den entsprechenden Wellenlängenbereich transparent sind. Die Suszeptibilität dritter

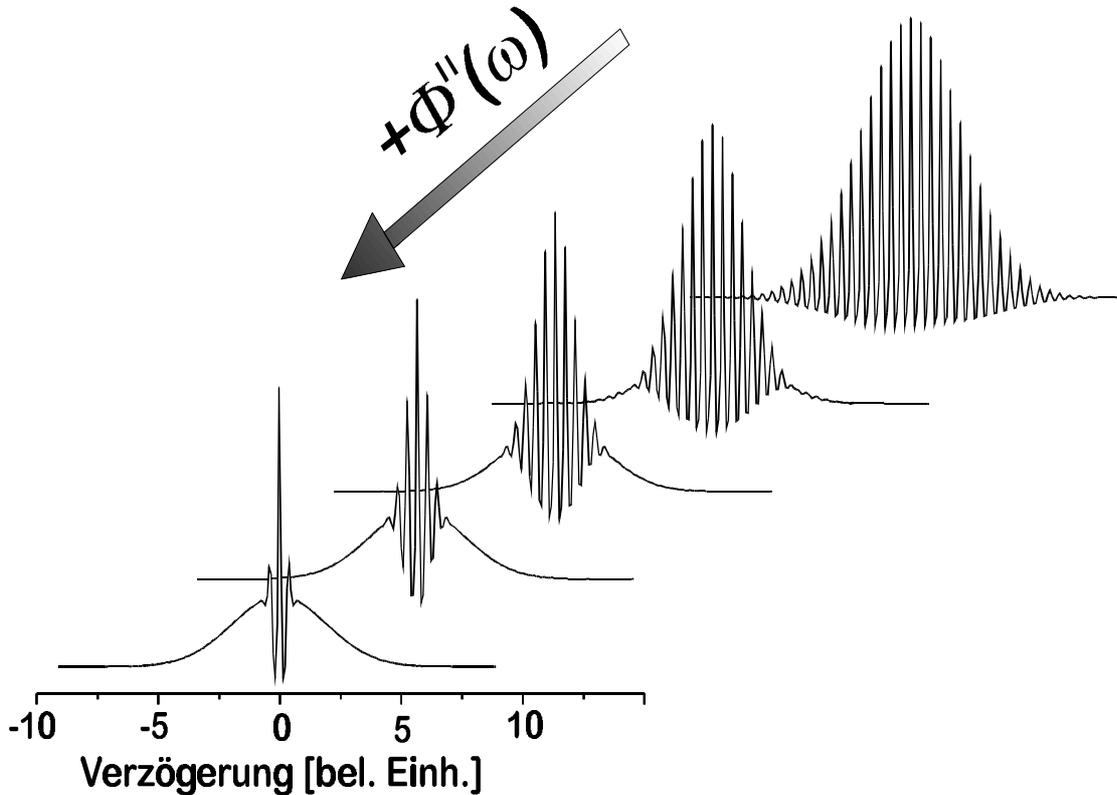


Abb. 2.5: Die Simulation der interferometrischen Autokorrelation ist für verschiedene Dispersionsparameter $a (= \Phi'')$ eines Gaußpulses aufgetragen. Ein zeitlich verbreiteter Puls erscheint in der Korrelation schmaler. Nur die genaue Analyse der Kurvenform gibt Aufschluss über die Phase und damit die wirkliche Pulsdauer.

Ordnung ist jedoch um etwa drei Größenordnungen kleiner als die zweite Ordnung, vorausgesetzt beide Ordnungen sind im Medium realisierbar.

$\chi^{(3)}$ -Prozesse sind immer Wechselwirkungen von vier Photonen bzw. Wellen, d.h. es wirken drei Wellen miteinander und es entsteht eine neue, die vierte, wobei die bekannteste Wechselwirkung die Erzeugung der dritten Harmonischen ist ($\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = 3\omega_1$). Weitere Wechselwirkungen sind z.B.

- Vierwellenmischung $(-\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$
- degenerierte Vierwellenmischung $(-\omega_4; 2\omega_1, -\omega_2)$
- stimulierte Ramanstreuung $(-\omega_S; \omega_P, -\omega_P, \omega_S)$

- Kerr-Effekt $(-\omega; \omega, -\omega, \omega)$

Degenerierte Vierwellenmischung wird auch unter der Bezeichnung „Selbstdiffraktion“ (SD) verwendet und besitzt für die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse in dieser Arbeit hohe Bedeutung.

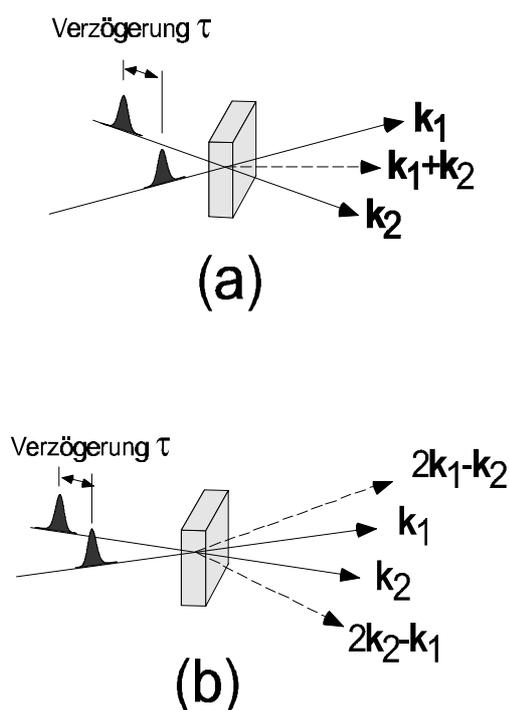


Abb. 2.6: (a): Definition der Wellenvektoren für die Messung des Signalverlaufs mit der zweiten Harmonischen. (b): Definition für Selbstdiffraktion.

Die beiden auf das Medium einfallenden Pulse bilden dabei im zeitlichen und räumlichen Überlappbereich ein Brechindexgitter. An diesem Gitter beugen sich die Pulse selbst, denn es gilt $n(I) = n_0 + n_2 I$, mit n_0 =linearer Brechungsindex und n_2 =nichtlinearer Index. Die Messung des Signalverlaufs erfolgt hintergrundfrei, da die Signale wie beim Gitter räumlich getrennt werden. Der Zeitverlauf für die beiden Seiten der Beugung besitzt umgekehrtes Vorzeichen, wie aus der Kennzeichnung in Abbildung 2.6 ersichtlich ist. Diese Eigenschaft muss bei der Analyse des Pulses berücksichtigt werden. Ist der Phasenverlauf des Pulses nicht verschieden nicht von Null, erzeugen die Frequenzanteile des Laserpulses jeweils Gitter mit unterschiedlicher Gitterkonstanten, deren Beugungsordnungen in unterschiedlicher Richtung liegen. Das Signal bewegt sich räumlich auf der aufnehmenden Photodiode und kann beim Verlassen der Detektor-

fläche einen fehlerhaften Signalverlauf vortäuschen. Die Abbildung mit einer Linse des im Medium erzeugten Signals auf die Detektorfläche ist daher unerlässlich.

Könnte bei den bisher beschriebenen Verfahren nur die Einhüllende des Pulsverlaufs ermittelt werden, so ist es für Optimierung und Formung des Pulses entscheidend zu wissen, wie die spektrale Phase des Pulses verläuft. Die interferometrische Korrelation beinhaltet zwar Informationen über die Pulsform und die Phase (wenn gleichzeitig das Spektrum aufgenommen wird), aber die beschriebenen Ungenauigkeiten der Justierung sind nicht ausreichend genug, um robuste Aussagen über den Phasenverlauf zu machen.

Eine vollständige Charakterisierung des Laserpulses wird mit einem Spektrogramm n -ter Ordnung, also der gleichzeitigen Messung der Korrelation n -ter Ordnung **und** des Spektrums, erreicht. Das Spektrogramm enthält den Phasenverlauf und die Pulsform [INY84]. Die mathematische Beschreibung ist der Korrelation sehr ähnlich [TDF97]

$$S^{(n)}(\omega, \tau) = \left[\int_{-\infty}^{\infty} E(t)^{(n-1)} \cdot g(t - \tau) \cdot e^{-i\omega t} dt \right]^2,$$

$g(t - \tau)$ ist ein variabel verzögerbares Tor, in den meisten Fällen der Puls selbst, also $g(t - \tau) = E(t - \tau)$, woraus folgt

$$I^{(n)}(\omega, \tau) = \left[\int_{-\infty}^{\infty} E(t)^{(n-1)} \cdot E(t - \tau) \cdot e^{-i\omega t} dt \right]^2.$$

Dieses Verfahren wird auch als „frequenz aufgelöste Korrelation“ bzw. „Frequency Resolved Optical Gating“ (FROG) bezeichnet. Der experimentelle Aufbau in Abbildung 2.7 entspricht dem eines Korrelators, wobei das Spektrometer die Photodiode ersetzt. Für jeden Verzögerungspunkt τ wird das Spektrum aufgezeichnet. Der nicht-lineare Prozess zur Charakterisierung entspricht dem der bereits beschriebenen Korrelatoren. Prozesse dritter Ordnung eignen sich dabei besonders gut, da aus ihnen der Zeitverlauf der Phase eindeutig hervorgeht, im Gegensatz zu den Prozessen zweiter Ordnung, die einen symmetrischen Verlauf um den Zeitnullpunkt besitzen.

Abbildung 2.8 stellt das berechnete Spektrogramm für einen bandbreitebegrenzten Puls sowie Pulse mit jeweils negativen und positiven Phasen zweiter Ordnung dar. Wie die rechte Bildspalte zeigt, ändert sich die spektrale Zusammensetzung des Pulses

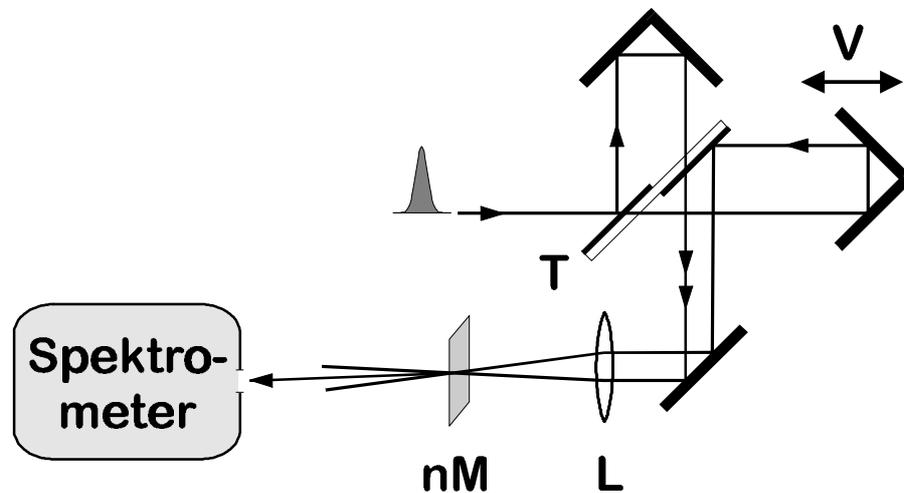


Abb. 2.7: Mit der frequenz aufgelösten Korrelation kann der Laserpuls vollständig in Phasenverlauf und Pulsform charakterisiert werden. Im gezeigten Beispiel wird die Korrelation zweiter Ordnung durch Erzeugung der zweiten Harmonischen ermittelt. T: 50%-Teiler, nM: nichtlineares Medium, L: Linse oder fokussierender Spiegel, V: Verzögerung.

nicht, im Gegensatz zum zeitlichen Bezug der spektralen Komponenten untereinander. Die gezeigten Spektrogramme vermitteln bereits ein intuitives Bild des Phasenverlaufs, abhängig von der Ordnung des zur Charakterisierung angewandten nichtlinearen Prozesses. Ziel der Aufnahme eines Spektrogramms ist die Extraktion des elektrischen Feldverlaufs und der spektralen Phase.

Die Vorteile des SD-FROG sind in erster Linie seine Verwendbarkeit für Wellenlängen bis zur Transparenzgrenze des Mediums und sein eindeutiger Zeitverlauf. Da die Selbstdiffraktion als $\chi^{(3)}$ -Prozess jedoch um mindestens drei Größenordnungen kleiner ist als die Charakterisierung mit einem Prozess zweiter Ordnung, ist dieses Verfahren jedoch auf sub-ps-Pulse hoher Energie beschränkt.

2.3.2 Anrege-Abtast-Experimente

Femtosekunden-Laserpulse sind ein ideales Werkzeug, um ultraschnelle Prozesse in verschiedenen Medien, wie z.B. Gasphasen, kondensierten Phasen oder Oberflächen zu verfolgen. Die zeitaufgelösten Messungen geben Aufschluss über dynamische Vorgänge

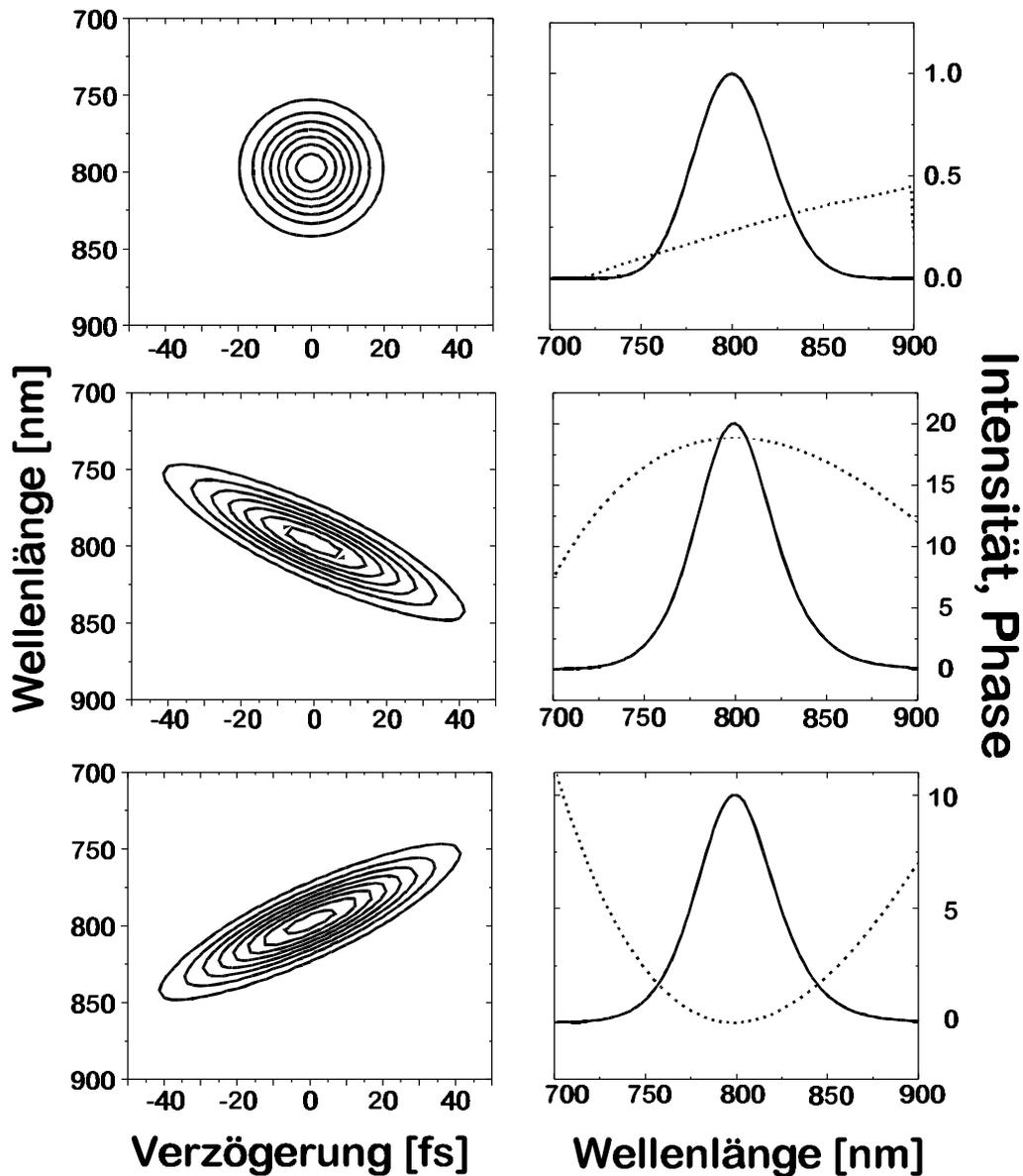


Abb. 2.8: In der linken Bildspalte sind Spektrogramme für Selbstdiffraktion aufgetragen, die ohne Phasengang, mit negativer Phase zweiter Ordnung sowie positiver Phase zweiter Ordnung berechnet wurden. Die rechte Bildspalte zeigt die zurückgerechneten Phasengänge $\Phi(\lambda)(\dots)$ und die dazugehörigen Spektren (—).

der zu untersuchenden Atome oder atomaren Verbände. Um diesen Prozess charakterisieren zu können, muss der genaue Anfangszustand des Systems bekannt oder beeinflussbar sein. Ein intensiver Laserpuls - üblicherweise als Anregungspuls bezeichnet - tritt mit dem zu untersuchenden Medium in Wechselwirkung und regt es in einen Nicht-Gleichgewichtszustand an. Dieser Puls versetzt das System in den zeitlich und energetisch bekannten Anfangszustand. Das Medium relaxiert anschließend in einen neuen Gleichgewichtszustand. Dieser Zustand wird durch das Abtasten mit einem zweiten Laserpuls an der räumlich gleichen Stelle der Anregung abgefragt. Die detektierten Änderungen des Abtastpulses können z.B. die optischen Eigenschaften des Mediums wie Transparenz oder Reflexion sein, oder die Anzahl der erzeugten Ionen oder Elektronen in der Gasphase. Die Änderung dieser Eigenschaften sind mit den Parametern des Mediums, wie Besetzungszahlen der angeregten Niveaus, Ladungsträgerdichte oder molekularer Orientierung verknüpft.

Bei vielen Experimenten sind die Pulsdauern vergleichbar mit der Zeitskala, auf der die zu untersuchenden Prozesse ablaufen. Essentielle Parameter der Untersuchungsanordnung sind deshalb z.B. die Wechselwirkungslänge des Lichts mit dem Medium. Die Dispersion des Laserpulses beeinflusst die zeitliche Auflösung des Experiments. Die limitierenden Größen der zeitlichen Auflösung sind jedoch die minimale Dauer des Anrege- bzw. Abtastpulses und die Puls-zu-Puls-Stabilität. Das aufgezeichnete Signal $S(\tau)$ in Abhängigkeit von der Verzögerung τ ist wie bei der Korrelation zur Charakterisierung des Laserpulses selbst eine Faltung aus zu messender physikalischer Größe $f(t)$ und Abtastpuls I_g

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_g(t - \tau) f(t) dt.$$

Eine Entfaltung des Signals bei bekanntem I_g liefert den Verlauf $f(t)$. Das Faltungstheorem gibt die Fouriertransformierte von $f(t)$ wieder

$$f(\omega) = \frac{S(\omega)}{I_g(\omega)}.$$

Nach Rücktransformation erhält man im Idealfall den Verlauf der interessierenden physikalischen Größe $f(t)$.

2.4 Ultrakurzpulsquellen

Eine der grundlegendsten Zusammenhänge der Ultrakurzpulserzeugung ist der zwischen Pulsdauer und verstärkter spektraler Bandbreite

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau \approx 1 \quad (2.15)$$

d.h., das Produkt aus spektraler Breite $\Delta\nu$ und Pulsdauer $\Delta\tau$ liegt in der Größenordnung Eins. Die verschiedenen möglichen longitudinalen Resonatormoden eines Lasers dürfen dabei nicht mit beliebiger Phase über die Verstärkungsbandbreite des Lasermediums schwingen, sondern müssen phasenstarr gekoppelt sein, damit sich durch das Zusammenspiel von konstruktiver und destruktiver Interferenz ein zeitlich kurzer Laserpuls im Resonator entwickeln kann. Die allgemeine Bezeichnung dafür lautet Modenkopplung, der aber unterschiedliche physikalische Mechanismen zugrunde liegen können.

Jeder Femtosekunden-Laser besitzt jedoch einige grundlegende Elemente, die für die Ausbildung ultrakurzer Laserpulse notwendig sind:

- ein breitbandiges Verstärkungsmedium
- einen Resonator
- dispersive Elemente
- einen Mechanismus zur Phasenkopplung

Der in dieser Arbeit verwendete Aufbau der einzelnen Verstärkerstufen beruht ausschließlich auf der Basis von Titan-Saphir als Lasermedium (Ti:Saphir, $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$). Die weiteren Ausführungen beschränken sich aus diesem Grund nur auf dieses Medium. Eine zusammenhängende Darstellung der unterschiedlichen Festkörper-Lasertypen ist z.B. in der Monographie von W. Koechner gegeben [WaK96].

Die Technologie des fs-Lasers änderte sich dramatisch 1991 mit der Demonstration von passiv modengekoppelten Ti:Saphir-Lasern [SKS91], mit denen stabile Pulse von 60-100 fs bei einer zentralen Wellenlänge von 800 nm erreicht wurden.

Titan-dotierter Saphir bietet sich als Lasermedium mit besten Eigenschaften für ultrakurze Pulse an [PFM86],[PFM92]

- Verstärkungsbandbreiten von 700-1100 nm
- hohe thermische Leitfähigkeit
- Energiesättigungsflussdichte von nahezu $1 \frac{J}{cm^2}$.

Insbesondere die letzte Eigenschaft macht Ti:Saphir bzw. Festkörpermateriale zu idealen Medien für die Verstärkung von Laserpulsen auf ein hohes Energieniveau. Aber gerade auch diese Eigenschaft war es, die vermuten ließ, dass die Modenkopplung nicht realisierbar sein könnte. Die bis dahin ausschließlich verwendeten modengekoppelten fs-Farbstofflaser basierten gerade auf der geringen Energiespeicherfähigkeit (sättigbarer Absorber) [VRF86].

Der Mechanismus der Modenkopplung in Ti:Saphir nutzt die Kerr-Nichtlinearität des Laserkristalls aus, die als $\chi^{(3)}$ -Effekt nur von der Eigenschaft des Mediums abhängt. Der Kerrlinsen-Modenkopplung liegt die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex zugrunde: $n(I) = n_0 + n_2 I$, wobei n_2 mit der Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ verknüpft ist. Je mehr Moden im Resonator phasenstarr koppeln, desto höher ist die Intensität und die Selbstfokussierung des Strahlprofils im Medium, der durch eine Blende im Resonator von den nicht gekoppelten Anteilen getrennt werden kann.

Der Aufbau eines solchen Oszillators oder Lasers ist einfach und in Abbildung 2.9 dargestellt. Das Lasermedium liegt zwischen zwei fokussierenden Spiegeln, um die Intensität sowohl des Pumplasers als auch des im Kristall verstärkten Lichts zu erhöhen. Die zwei Endspiegel S1 und S2, von denen S2 gleichzeitig als Auskoppelspiegel dient (Reflektivität $\approx 85\% - 97\%$), vervollständigen den Resonator.

Hinreichend ist die Dispersionskontrolle im Resonator, um die dispersiven Elemente, wie Kristall und Spiegel, zu kompensieren. Aus diesem Grund ist es günstig, die Kristalle kurz zu halten und mit möglichst hoher Titandotierung zu versehen, um hohe Verstärkung zu erreichen.

In prismenkompensierten Oszillatoren werden die kürzesten Pulse mit Kristalllängen um 2 mm erreicht [RDC97]. Die Verkürzung der Länge des Kristalls ist mit Reduzierung der Dispersion dritter Ordnung verbunden, die bei sehr kurzen Pulsen

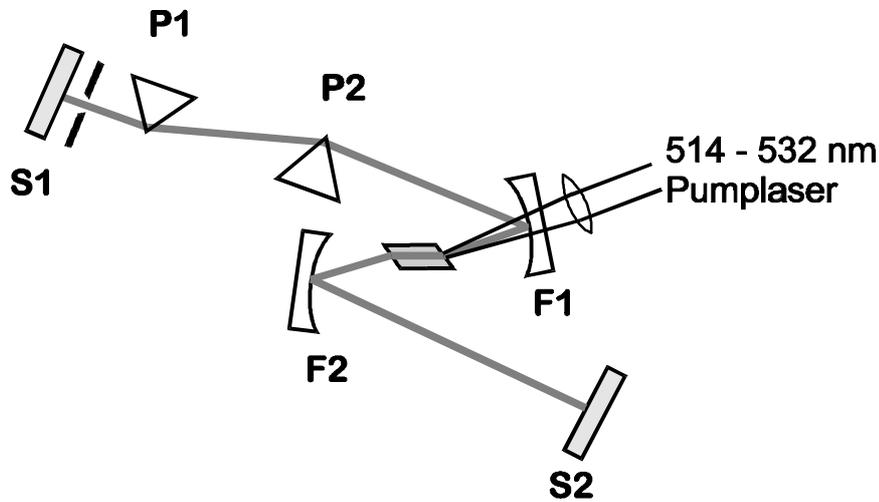


Abb. 2.9: Die einfachste Variante des fs-Ti:Saphir-Oszillators ist die 4-Spiegel-Anordnung mit resonatorinterner Prismenkompression (P1 und P2). Zwischen den beiden fokussierenden Spiegeln F1 und F2 liegt das Lasermedium, die ebenen Spiegel S1 und S2 begrenzen den Resonator, wobei S2 als Auskoppelspiegel dient. Gepumpt wird das Medium mit Wellenlängen zwischen 514 nm und 532 nm, dem Absorptionsmaximum von Ti:Saphir. Der Spalt vor S1 dient der Ausblendung nichtgekoppelter Anteile des Strahls

um 10 fs zum limitierenden Faktor wird. Zur Erzeugung von Pulsen unter 10 fs in prismenkompensierten Ti:Saphir-Lasern muss der zentrale Wellenlängenbereich der Verstärkung um 850 nm liegen, da hier mit Quarz-Prismen eine gleichzeitige Kompensation der Dispersion zweiter und dritter Ordnung erreicht werden kann [RDC97]. Die Modellierung der dispersiven Eigenschaften wird mit kürzerer Pulsdauer wesentlich komplexer, wobei im letzten Schritt die Dispersion der resonanten Laserübergänge mit berücksichtigt werden muss.

Als Quelle ultrakurzer Pulse des in dieser Arbeit weiterentwickelten und installierten Laserverstärkers dient ein spiegelkompensierter Ti:Saphir-Oszillator [SSK94]. Das aktive Medium wird mit einem Argonionen-Laser *Coherent Innova 400* bei einer Betriebsausgangsleistung von 6.1 W im Multilinenbetrieb gepumpt. Die gemessene Leistung des Pumplasers bei 514 nm liegt bei 5.5 W. Ein vereinfachtes Aufbauschema des fs-Lasers ist Abbildung 2.10 zu entnehmen.

Die Anordnung der Elemente unterscheidet sich nicht wesentlich von dem des prismenkompensierten Lasers in Abb. (2.9), nur wird hier die Dispersionskontrolle von Spie-

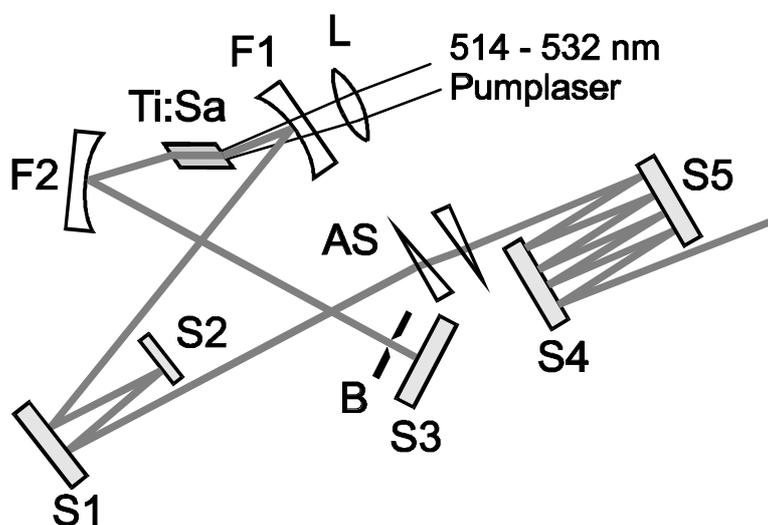


Abb. 2.10: Der in der vorliegenden Arbeit verwendete Laser nutzt zur Dispersionkompensation speziell gefertigte Spiegel mit definiertem Phasengang (S1, S2, S4 und S5). Resonatorintern sind 3 Reflexionen ausreichend (S1, S2), und extern zur optimalen Kompression auf 15 fs weitere 8 Reflexionen (S4, S5). AS ist der gewinkelte Auskopplungsspiegel zur Verhinderung einer Rückkopplung des Reflexes von der hinteren Spiegelfläche. Die zweite Platte direkt dahinter dient der Kompensation der resultierenden Winkeldispersion durch AS.

geln übernommen, deren bestimmte Anordnung von Vielschichten die gewünschten dispersiven Eigenschaften besitzt [SKK97] (vgl. Abschnitt 2.2.1). Der Vorteil gegenüber der Prismenkomprimierung ist, dass im Verstärkungsmaximum des Lasermediums gearbeitet werden kann, bei gleichzeitiger Minimierung der Dispersion zweiter und dritter Ordnung. In der hier verwendeten Anordnung besitzen die Spiegel eine negative Dispersion von -85 fs^2 , was bei vier Reflexionen im Resonator zu einer gesamten Dispersion von -340 fs^2 führt. Diese kompensiert gerade den Kristall von 2.2 mm Länge und die Luft im Resonator (siehe Tabelle 2.1 auf S.10).

Stabiler modengekoppelter Laserbetrieb ist nur für einen bestimmten Bereich der Spiegelabstände S1 und S2 möglich. Die schematische Resonatordarstellung in Abb.(2.11) listet die verwendeten Symbole auf.

Damit der 4-Elemente-Resonator eine stabile TEM_{00} -Gaußmode erzeugt, muss der Abstand der abbildenden Elemente etwas größer sein als $f_1 + f_2$, d.h. $d_f = f_1 + f_2 + \delta$ [HKo65] mit δ als sog. Stabilitätsparameter. Laseroperation ist in den Bereichen $0 <$

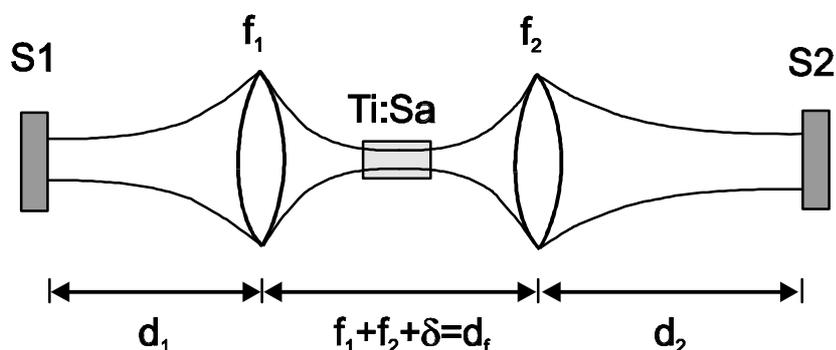


Abb. 2.11: Die schematische Anordnung eines Resonators für fs-Laser erläutert die im Text benutzten Symbole zur Erzeugung einer stabilen Gaußmode. Die Linsen f_1 und f_2 sind im reellen Resonator sphärische Spiegel mit äquivalenten Brennweiten. δ kennzeichnet den Stabilitätsparameter (Abb. nach [XTP97]).

$\delta < \delta_1$ und $\delta_2 < \delta < \delta_{max}$ möglich, mit

$$\delta_1 = \frac{f_2^2}{d_2 - f_2}, \delta_2 = \frac{f_1^2}{d_1 - f_1}, \delta_{max} = \delta_1 + \delta_2.$$

Zwischen δ_1 und δ_2 liegt eine Stabilitätslücke, innerhalb derer Laserbetrieb ausgeschlossen ist. Der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Stabilitätsparameter liegt am Rande des Bereichs von δ_2 , mit $\delta_2 = 0.95$ mm. Dabei ist $f_1 = f_2 = 25$ mm, $d_1 = 68$ cm und $d_2 = 118$ cm.

Zur Erzeugung kürzester Pulse am Ausgang des Lasers muss die über den Auskoppelspiegel (AS) eingeführte Dispersion durch 8 Reflexionen auf dispersiven Spiegeln ausserhalb des Resonators kompensiert werden. Die gemessene Schwankung der ausgekoppelten Leistung liegt bei ca. 1% nachdem der Laser mit einer Abkapselung gegenüber Luftschwankungen versehen wurde.

Da die Modenkopplung in der verwendeten Anordnung nicht selbststartend ist, wird durch kurzes Bewegen des auf einen Schlitten montierten Spiegel S3 eine Störung bzw. Intensitätsfluktuation hervorgerufen, die zum Start des modengekoppelten Betriebs führt. Der Laser läuft nach Erreichen eines stabilen thermischen Gleichgewichts des mit einem Peltierelement gekühlten Ti:Saphir-Kristalls mehr als 20 Stunden im modengekoppelten Betrieb.

Abb.(2.12) zeigt das in dieser Anordnung gemessene Spektrum und die dazugehörige

ge interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung (SHG). Die Pumpleistung des kontinuierlich arbeitenden Argonionen-Lasers beträgt 6.1 W, die ausgekoppelte Leistung des fs-Oszillators bei $\lambda_0 = 795 \text{ nm}$ 250 mW (8%-Auskoppelspiegel). Bei einer Repetitionsrate von 80 MHz entspricht das einer mittleren Pulsenergie von 3 nJ bzw. mit der gemessenen Pulsdauer von 15 fs einer Impulsspitzenleistung von 200 kW außerhalb des Resonators.

2.5 Verstärkung von fs-Laserpulsen

Für viele Experimente in der nichtlinearen Optik und Spektroskopie ist die vom Laser-Oszillator erreichte Spitzenintensität von 10^5 W bis 10^6 W nicht ausreichend und erfordert weitere Verstärkung. Die Technologie zur Erzeugung von Laserpulsen mit hohen Spitzenintensitäten bis in den Terawatt-Bereich ($1 \text{ TW} = 10^{12} \text{ W}$) oder darüber hat eine ähnlich schnelle Entwicklung innerhalb des letzten Jahrzehnts erlebt, wie die bereits vorher beschriebene Erzeugung ultrakurzer Pulse. Abbildung 2.13 zeigt die Entwicklung der Impulsspitzenleistung seit Beginn der Nutzung von Lasern Anfang 1960 bis heute.

Da die Lasergröße und damit deren Kosten hauptsächlich mit der Pulsenergie skaliert, werden extrem hohe Spitzenleistungen mit kleinen Anlagen (sog. „Tischgeräten“) durch Reduktion der Impulsdauer erreicht, im einfachsten Fall ist $P_{max} = E_{puls} / \Delta\tau_{puls}$.

Um die extrahierten Energien aus dem Lasermedium auf einem möglichst hohen Niveau zu erhalten, muss das Medium eine hohe Sättigungsflussdichte besitzen. In Farbstoffen liegen die Sättigungsdichten bei etwa 1 mJ/cm^2 , eine Verstärkung über den mJ Bereich hinaus kann nur durch Vergrößerung der Verstärkungsfläche erreicht werden. Mit einer aktiven Fläche von 1 m^2 ließen sich so 10 J Pulsenergie extrahieren. Die experimentellen Probleme sind jedoch kaum zu bewältigen bzw. nur mit sehr hohem apparativen Aufwand zu bewerkstelligen (vielstufige Verstärkerkette).

Mit der Definition der Sättigungsdichte [WaK96] für Pulse mit kürzerer Dauer als derjenigen des angeregten Zustandes im Lasermedium gilt

$$E_s = \frac{h \cdot \nu}{\sigma}. \quad (2.16)$$

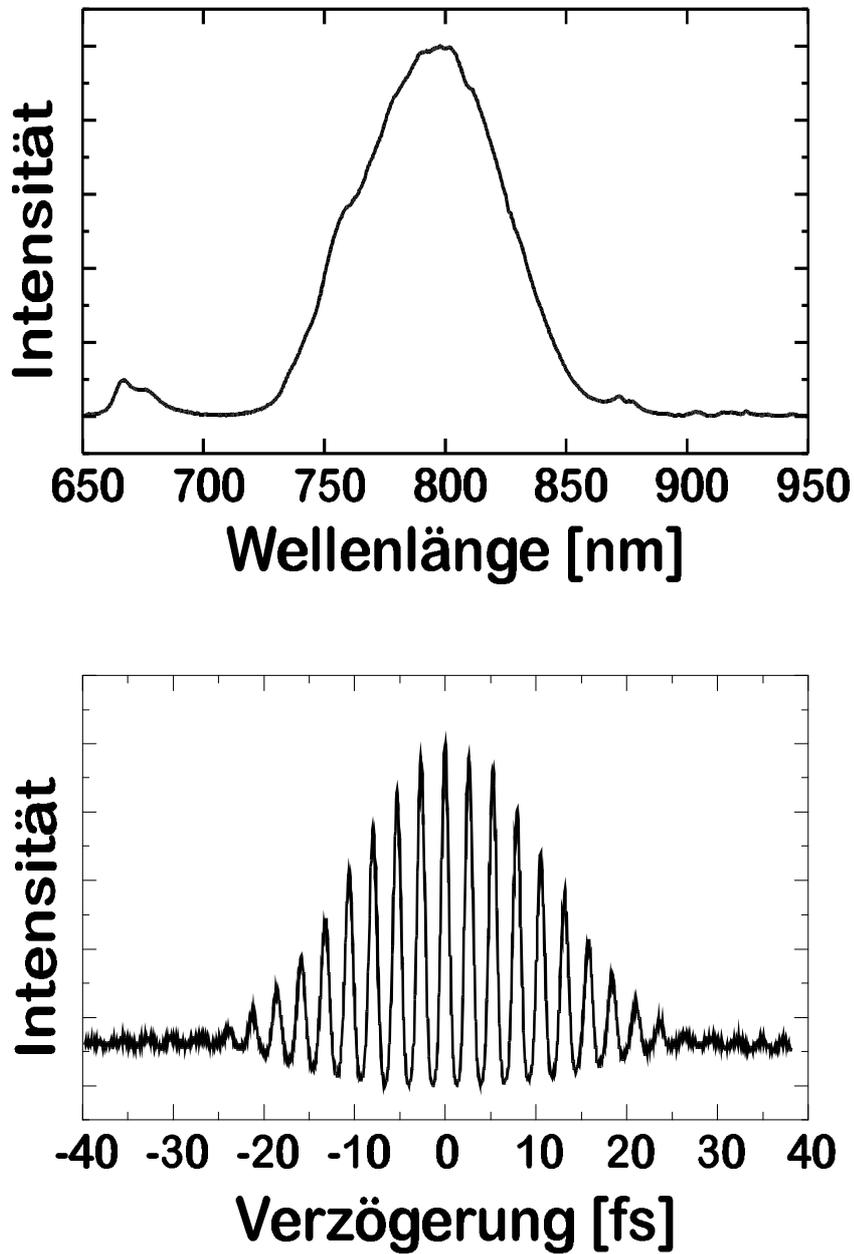


Abb. 2.12: Im oberen Teilbild ist das Spektrum des fs-Ti:Saphir-Oszillators mit einer Halbwertsbreite von 70 nm abgebildet, darunter die interferometrische Autokorrelation des ausgekoppelten Pulses. Die mittlere Ausgangsleistung beträgt 250 mW. Entfaltung der Autokorrelation führt auf eine Laserpulsbreite von 15 fs. Der Abstand zwischen den Interferenzringen beträgt bei $\lambda_0 = 795$ nm 2.65 fs.

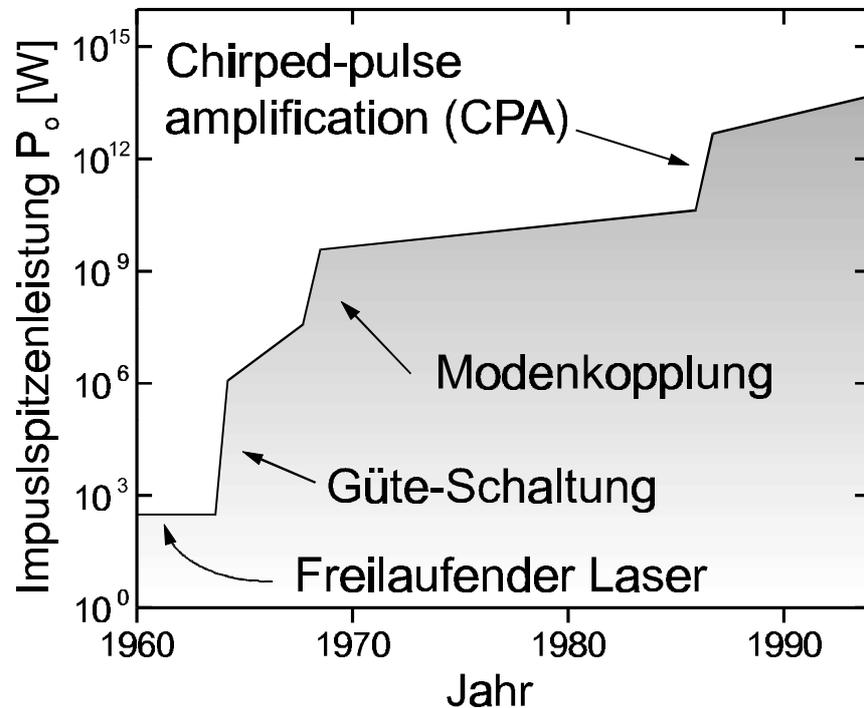


Abb. 2.13: Die Impulsspitzenleistung entwickelte sich diskontinuierlich durch Einführung jeweils neuer Techniken zur Verkürzung und Verstärkung von Laserpulsen. Der letzte Schritt, der Verstärkungen mit fokussierbaren Intensitäten von 10^{20} W/cm^2 erreicht, ist erst durch die Einführung der im Text beschriebenen CPA möglich geworden.

Es ist daher günstig, Material mit niedrigem Wirkungsquerschnitt σ für stimulierte Emission zu wählen. Ti:Saphir erreicht mit $\sigma = 2.8 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ einen Sättigungswert von fast 0.9 J/cm^2 und damit Verstärkungsmöglichkeiten der Laserpulse bis in den J-Bereich bei kleinen gepumpten Flächen.

Hohe Spitzenintensitäten im Lasermedium und den optischen Komponenten führen durch die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex (vgl. S. 25) zur Selbstfokussierung des Strahls bei positivem n_2 , und damit zur Zerstörung des Materials durch Ionisation aufgrund der sehr hohen Intensitäten. Ein wichtiger Parameter für diese Grenze ist das sog. „B-Integral“ [MSB88]

$$B = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 \int_0^L I(z) dz. \quad (2.17)$$

Das B-Integral beschreibt den nichtlinearen Phasenbeitrag über den optischen Weg L des Laserpulses im Verstärker. Der kritische Wert liegt bei $B=5$ [BDM98].

Die Spitzenintensität muss also vor dem eigentlichen Verstärkungsprozess soweit reduziert werden, dass die Schwelle zur Selbstfokussierung nicht erreicht wird, ohne aber die Bandbreite einzuschränken, welche die Information über die minimale Pulsdauer enthält (nach der Beziehung $\Delta\nu \cdot \Delta\tau = \text{const}$). Das Verfahren zur Reduktion der Spitzenintensität ist als „Chirped Pulse Amplification“ (CPA) bekannt und es wird im folgenden nur noch diese Bezeichnung verwendet.

Ursprünglich für Radarsysteme entwickelt, wurde es für den Bereich optischer Frequenzen adaptiert [DSM85]. Das Prinzip ist Abb.(2.14) zu entnehmen. Ein kurzer Laserpuls wird im Pulsexpander mit Hilfe dispersiver Elemente um ein Vielfaches seiner ursprünglichen Dauer verlängert und, da die Energie bei diesem Prozeß erhalten bleibt, in seiner Spitzenintensität verringert. Der oder die nachfolgenden Verstärker erhöhen die Energie der Pulse um mehrere Größenordnungen, typischerweise bis zu einem Faktor von 10^{10} . Die letzte Stufe komprimiert den verlängerten Puls wieder und am Ausgang entsteht ein Laserpuls, der vergleichbar mit der Dauer des Eingangspulses, jedoch um einen Faktor 10^{10} energiereicher ist. Die Verluste innerhalb der Verstärkerkette müssen mit berücksichtigt werden.

Wird die Spitzenintensität, die vorher im Verstärkungsprozeß zum Einsetzen der Selbstfokussierung führte, um den Faktor 10000 gesenkt, kann der Puls nach der Expansion im Prinzip bis auf diesen Faktor verstärkt werden, bevor die Zerstörungsgrenze wieder erreicht wird.

Tabelle (2.2) auf S. 13 gibt einen Überblick sowohl über die Phasen zweiter und dritter Ordnung, die BK7 und Ti:Saphir als Beispielm Medien für ein Verstärkersystem verursachen, als auch die Phasen für eine Kombination aus Prismen- und Gitterkompressor. Die Dispersion zweiter Ordnung, hauptsächlich durch das Material hervorgerufen, lässt sich mit den angegebenen Parametern kompensieren, nicht jedoch die Dispersion dritter Ordnung. Pulsexpansion mit Material ist wegen des notwendigen großen Weges darin zur Erreichung großer Expansionsfaktoren ungeeignet, da Phasen höherer Ordnung, die sich mit Gitter- und Prismenkompressor nur ungenügend kompensieren lassen, ein größeres Gewicht bekommen.

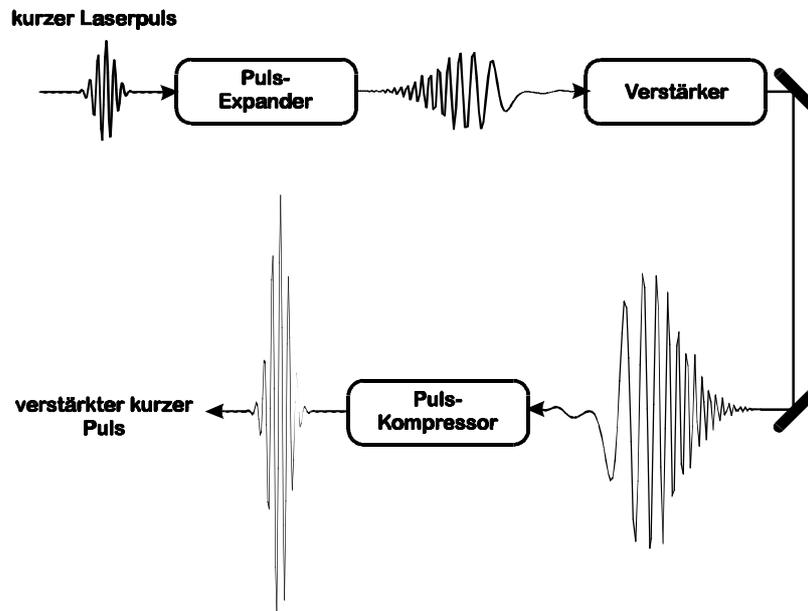


Abb. 2.14: Schematischer Ablauf der CPA. Ein kurzer Laserpuls im nJ-Bereich wird im Pulsexpander auf ein Vielfaches seiner Länge gestreckt und damit in seiner Spitzenintensität gesenkt. Die nachfolgende Verstärkerstufe erhöht die Pulsenergie bis in den mJ oder J-Bereich, der Kompressor reduziert die Pulsdauer im Idealfall auf seine ursprüngliche Länge.

2.5.1 Reflektive Pulsexpansion

Traditionelle Pulsexpander [OEM87] bestehen aus zwei antiparallelen Gittern, getrennt durch ein 1:1-Teleskop. Je nach Stellung der Gitter innerhalb oder ausserhalb der Brennweite der Linsen ist sowohl positive wie auch negative Dispersion zweiter Ordnung einstellbar. Die positive Phase wird durch ein einfaches paralleles Gitterpaar kompensiert. Der Vorteil des Pulsexpanders mit Teleskop ist der hohe Expansionsfaktor trotz geringer Abstände der Gitter. Nachteilig wirken sich die abbildenden Linsen des Teleskops aus, da hier Material durchlaufen wird, das Dispersion höherer Ordnung erzeugt. Besonders problematisch sind aber die chromatische und sphärische Abberation der Linsen, die sich mit einem Gitterkompressor nicht kompensieren lassen. Bei Pulsen über 100 fs mit geringer Bandbreite sind diese Effekte noch vernachlässigbar, aber bei 20-fs-Pulsen liegen die Störungen in der Größenordnung der Pulsdauer selbst [LBa93]. Indem die Linsen durch reflektive Optik ersetzt werden, ist Expansion und Kompression bis auf eine resultierende Phase fünfter Ordnung möglich [LBa93]. Die

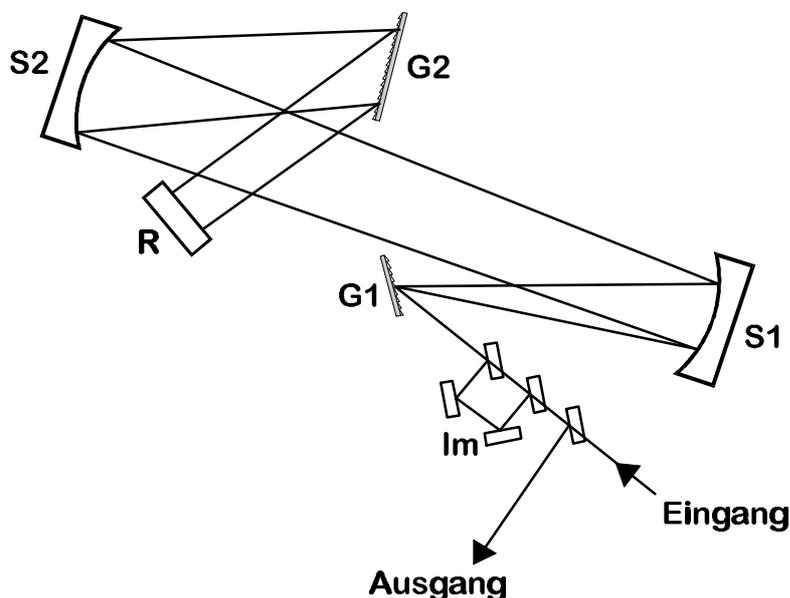


Abb. 2.15: Der Pulsexpander mit reflektiver abbildender Optik [LBa93] mit den zylindrischen Spiegeln $S1$ und $S2$ expandiert einen 25-fs-Puls um das etwa 12000-fache. Die theoretische Kompression mit einem Gitterpaar ist bis auf eine resultierende Phase fünfter Ordnung möglich.

$S1$ und $S2$: Spiegel mit $R=1$ m, $G1$ und $G2$: Gitter mit $d=1200/\text{mm}$, R : Retroreflektor, Im : Bildinverter.

dort verwendete Anordnung wird in dieser Arbeit als Pulsexpander verwendet. Abbildung 2.15 stellt den Aufbau schematisch dar. Weitere Möglichkeiten zum Design reflektiver Pulsexpander bietet z.B. die von A. Öffner [AÖf71] entwickelte Anordnung. Diese ist mit nur einem Gitter sowie je einem gekrümmten Spiegel mit negativem und positivem Krümmungsradius realisiert. Mit einer solchen Expanderanordnung und einem zugehörigen Kompressorgitterpaar konnten 45 fs Pulse mit 75 mJ Pulsenergie bei einer zentralen Wellenlänge von 800 nm verstärkt werden [DSK95]. Die Verstärkung und Kompression bis auf Pulsdauern um 33 fs ist mit dieser Anordnung möglich [CRS96].

Der zugehörige Kompressorabstand zum reflektiven Pulsexpander in Abbildung 2.15 beträgt $2f - s_1 - s_2$ wobei f die Brennweite der Spiegel ist und s_1 und s_2 die Abstände der Gitter von den jeweiligen Spiegeln $S1$ bzw. $S2$.

Da eine analytische Berechnung mit den mathematischen Zusammenhängen aus Kapitel 2.2 aufgrund des fehlenden Einflusses des räumlichen Strahlprofils nicht über

die Kompensation der Phase dritter Ordnung hinaus möglich ist, muss eine numerische Strahlrechnung für jedes Element und jeden räumlichen Punkt durchgeführt werden [LBa93]. Die Analyse ergibt die beste Kompensation für parallel angeordnete Spiegel. Weitere Analysen erbrachten, dass die Größe $2f - s_1 - s_2$ linear mit dem räumlichen Strahlprofil variiert. Um eine einheitliche Expansion über den Strahlquerschnitt zu erreichen, wird die Anordnung über den Bildinverter „Im“ in Abbildung 2.15 ein weiteres mal durchlaufen. Damit vergrößert sich die Expansion um den Faktor 2, ebenso der Abstand der Kompressionsgitter. Als weiteres günstiges Ergebnis der Bildinversion ist die Verringerung der resultierenden spektralen Divergenz um etwa einen Faktor 6 zu nennen. Da zylindrische Spiegel verwendet werden, können die Strahlen außerhalb der Spiegelachse verlaufen, ohne weitere vertikale Divergenz zu erzeugen.

Als problematisch in unserer Anordnung erweist sich die Gittereffizienz der geritzten Gitter (Milton & Roy, 1200 Linien/mm). In Abbildung 2.16 ist das gemessene Verhältnis von einfallender zu ausfallender Leistung des Lasers bei $\lambda_0 = 795$ nm und $\Delta\lambda \approx 1$ nm aufgetragen.

Mit einem Strahldurchrechnungsprogramm [CRP95] wurde das System für maximale Ausgangsenergie, d.h. höchste Effizienz des Kompressors optimiert. Der günstigste Einfallswinkel des zu komprimierenden Strahls auf die Gitter liegt damit bei 60° . Der Einfallswinkel auf das erste Expandergitter (G1) beträgt 45° und liegt nicht im Optimum der Gittereffizienz. Bei 8 Gitterumläufen sinkt die Ausgangsleistung auf 23% der eingehenden Leistung. Weitere Verluste durch breitbandige Silberspiegel ($R \approx 98\%$) und andere optische Komponenten wie nicht entspiegelte Linsen senken die Leistung von etwa 250 mW direkt am Eingang des Expanders auf 15-20 mW am Eingang der ersten Verstärkerstufe. Um diese Leistung auf etwa 50 mW zu erhöhen, wird der Aufbau ohne zweiten Expanderdurchlauf realisiert. Die Nachteile durch Variation der spektralen Inhomogenität über den Strahlquerschnitt und die spektrale Divergenz liegen deutlich unterhalb der theoretisch erwarteten. Abbildung 2.17 zeigt sowohl den nicht expandierten Laserpuls von 20 fs Dauer, wie er aus dem Ti:Saphir-Oszillator kommt, charakterisiert durch eine Korrelation zweiter Ordnung, als auch den Laserpuls nach einmaligem und zweimaligem Durchlauf durch den in Abbildung 2.15 dargestellten Expander mit ca. 150 ps Dauer. Das entspricht einem Expansionsverhältnis von 1:7500. Das Spektrum des Pulses nach einem sowie zwei Durchläufen durch den Expander zeigt eine Einengung der langwelligen Seite. Die Ursache für dieses Verhalten liegt in der spektralen Effizienz des Gitters, die für kürzere Wellenlängen günstiger ist.

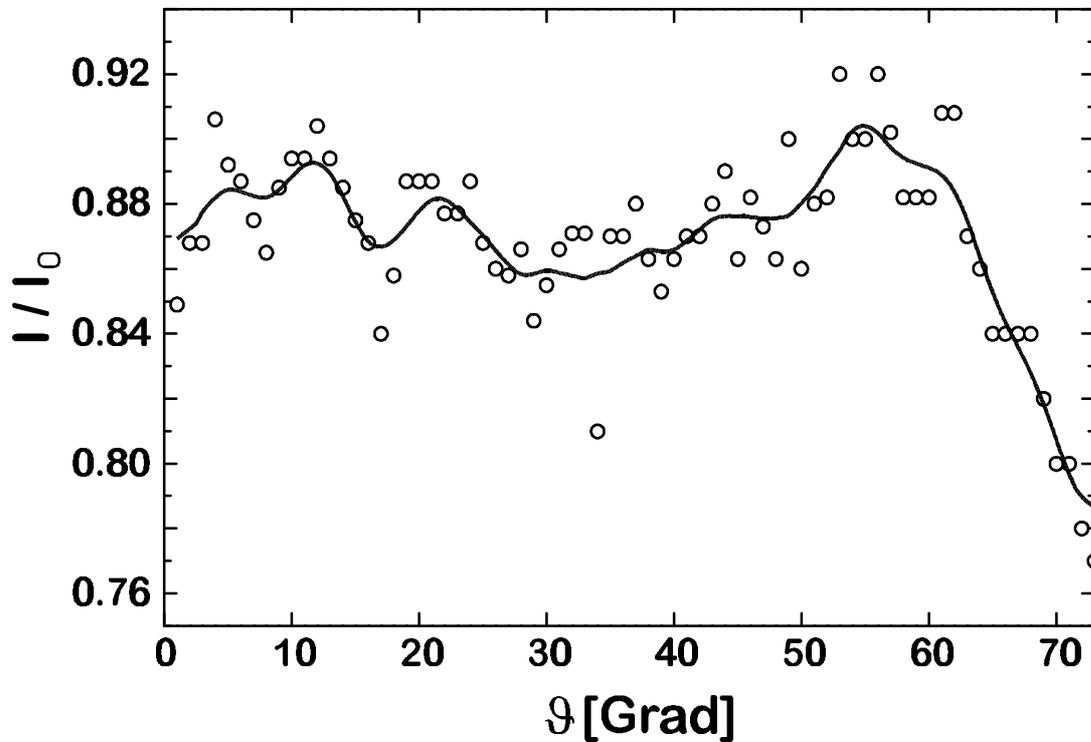


Abb. 2.16: Die Effizienz der Expander- und Kompressorgritter als Verhältnis von aus- zu einfallender Leistung des Ti:Saphir-Lasers bei $\lambda_0 = 795 \text{ nm}$ und $\Delta\lambda \approx 1 \text{ nm}$ in Abhängigkeit vom Einfallswinkel des Strahls gegen die Gitternormale.

Der Bildinverter „Im“ in Abbildung 2.15 wird für den einmaligen Durchlauf entfernt, um höhere Leistung und größere spektrale Breite zu erhalten. Die nachfolgende direkte Kompression unter Umgehung der Verstärkerstufen zeigt einen Puls von ca. 25 fs Dauer. Ein Spektrogramm zur Analyse der resultierenden Phasen wurde aus apparativen Gründen nicht aufgenommen, da im späteren Betrieb mit den Verstärkerstufen weitere Phasen durch Material- und Spiegeldispersion hinzukommen die in die Messung mit einer Repetitionsrate von 80 MHz (Ti:Saphir-Oszillator) nicht mit einbezogen werden können. Die Kompression auf etwa einen Faktor zwei der Ausgangspulsdauer bei nur einem Durchgang durch den Expander zeigt dennoch eine ausreichend korrekte Simulation der Systemparameter wie Gitterabstände, Spiegelabstände und Einfallswinkel.

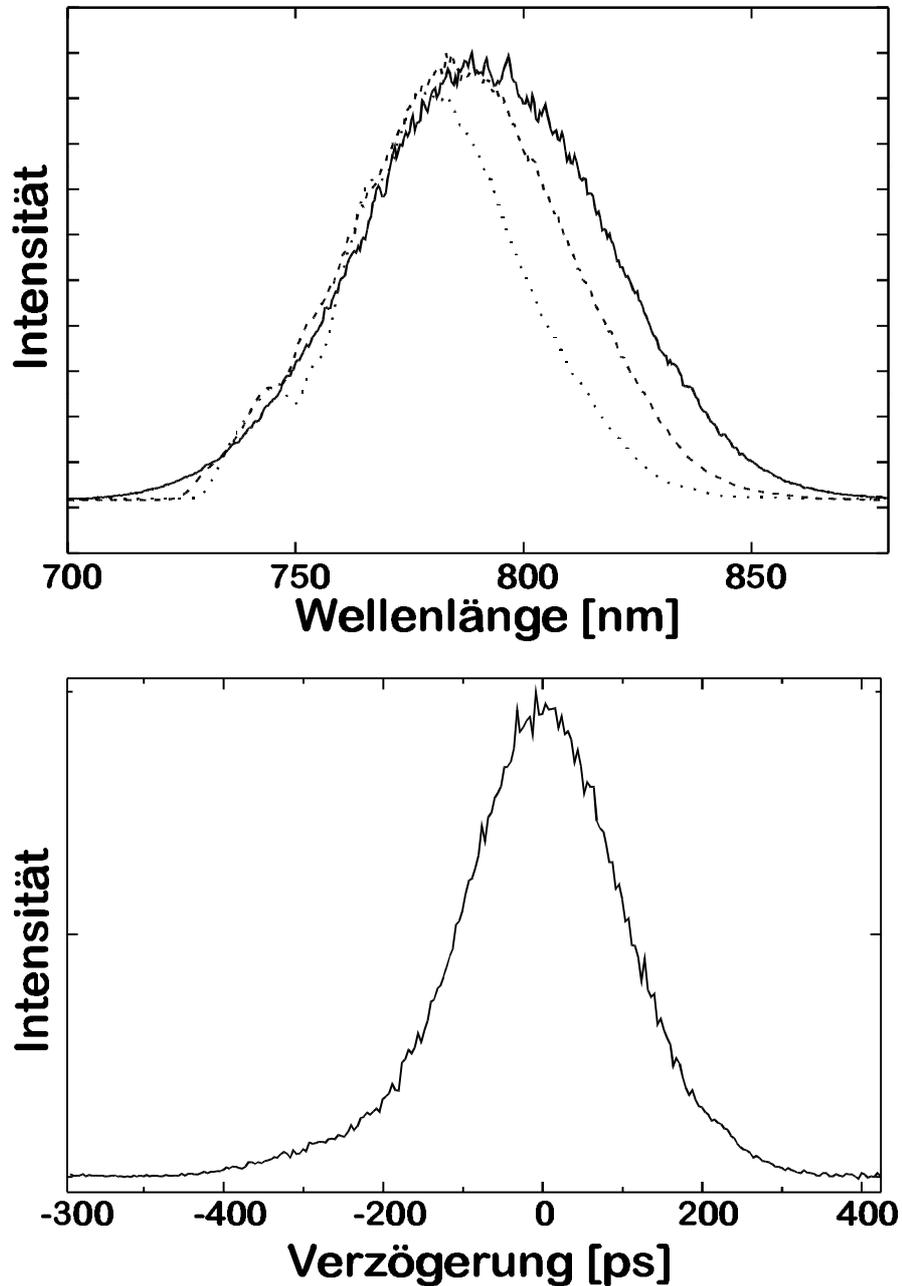


Abb. 2.17: Im oberen Bildteil ist das Spektrum des Pulses vor (durchgezogene Linie), sowie nach einem und zwei Umläufen durch den Pulsexpander zu sehen. Die Einengung des Spektrums ist auf die geringere Effizienz des Gitters im entsprechenden Spektralbereich zurückzuführen. Die untere Messung zeigt den expandierten Oszillator-Puls mit einer Dauer von 200 ps.

2.5.2 Regenerative Verstärkung

Große Verstärkungsbandbreite und hohe Sättigungsenergien bieten eine optimale Basis zur Verstärkung von fs-Laserpulsen auf ein hohes Energieniveau. Bei der regenerativen Verstärkung läuft ein einzelner zu verstärkender Laserpuls so lange in einem Resonator mit aktiven Medium um, bis er maximale Verstärkung erreicht hat, um dann aus dem Resonator ausgekoppelt zu werden. Die Fähigkeit, große Energien zu speichern, ist generell mit geringem Wirkungsquerschnitt σ für stimulierte Emission verbunden (vgl. Gleichung (2.16)). Die regenerative Verstärkung ist daher die effizienteste Methode, Energie aus einem Medium mit langer Speicherzeit zu extrahieren. Ursprünglich wurden regenerative Verstärker zur Erhöhung der Ausgangsenergie von modengekoppelten Festkörperlasern, wie z.B. Nd:YAG- und Nd:YLF-basierter Laser, entwickelt [BBC87], mit denen nachfolgend Farbstoffverstärker gepumpt wurden. Regenerative Verstärkung in Nd:Glas führte zu Pikosekundenpulsen mit einer Energie von 2 mJ bei 5 Hz Repetitionsrate [MSB88]. Mit der regenerativen Verstärkung in Ti:Saphir konnten Salin et. al. [SSM91] fs-Pulse in den mJ-Bereich verstärken.

Die unterschiedlichen Repetitionsraten in Festkörpersystemen sind meist ein Kompromiss aus hoher Impulsenergie bei niedrig repetierenden Systemen ($\ll 1000$ Hz) und Systemen mit hoher Wiederholfrequenz (1 kHz und darüber) und geringeren Energien. Letztere besitzen jedoch den Vorzug größerer Puls-zu-Puls Stabilität und sind bequemer in der Durchführung physikalischer Experimente, da die Mittelwertbildung um den Faktor der höheren Repetitionsrate gesteigert ist. Der im Rahmen dieser Arbeit realisierte regenerative Verstärker auf Ti:Saphir-Basis ist ein hochrepetierendes System mit 1 kHz Wiederholfrequenz. Abbildung 2.18 stellt den schematischen Aufbau dar.

Das System wird von einem frequenzverdoppelten Nd:YLF-Laser (Quantronix, max. 24 W bei 1 kHz und $\lambda_0 = 532$ nm, $\Delta\tau = 100$ ns) optisch gepumpt. Die variable Aufteilung des Strahls am Ausgang des Nd:YLF-Lasers mit einer $\lambda/4$ -Platte und einem polarisierenden Strahlteiler nutzt die gesamte Energie des Pumplasers sowohl für den mit 6 W gepumpten regenerativen Verstärker, als auch für den nachfolgenden Vielfachverstärker. Eine $f=20$ cm Linse fokussiert den Strahl durch den ersten Resonatorspiegel mit $R=20$ cm in das wassergekühlte Verstärkermedium. Der 20 mm lange Ti:Saphir-Kristall (Eksma) ist im Brewster-Winkel geschnitten, um minimale Stirnflächenreflexion bei 800 nm zu gewährleisten. Möglich ist auch ein Kristall mit Stirnflächen senkrecht zur optischen Achse, die jedoch zerstörfest entspiegelt werden

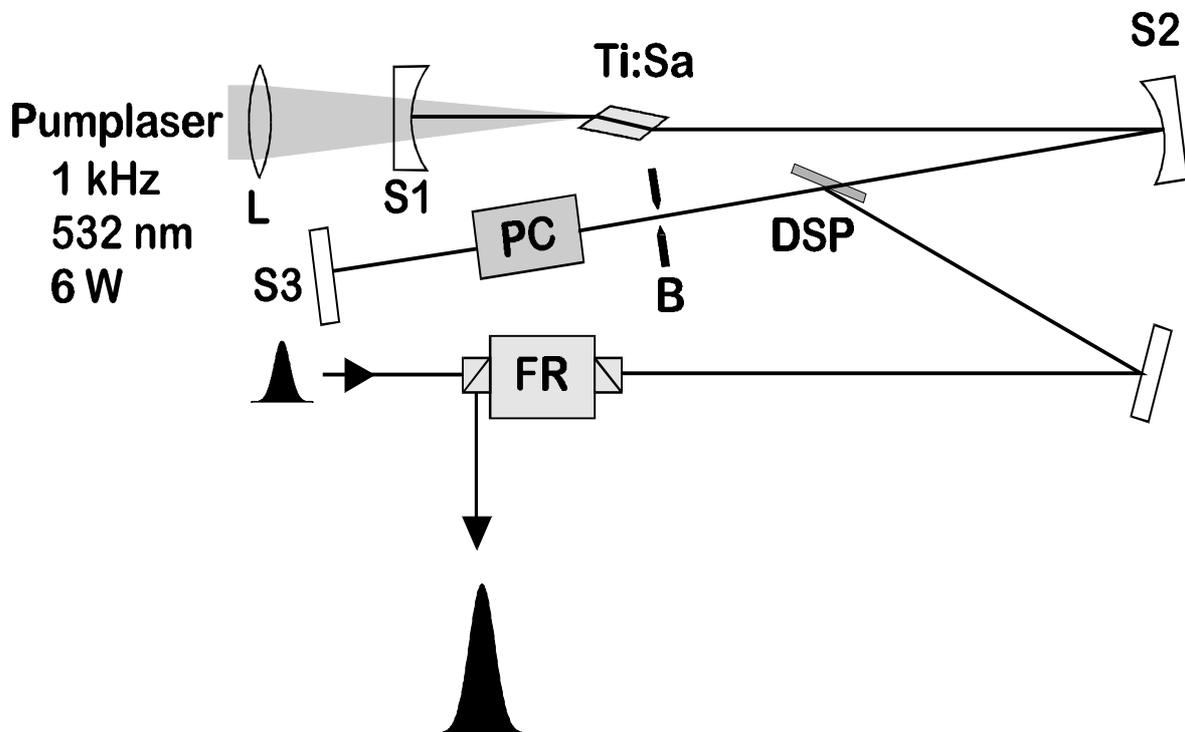


Abb. 2.18: Schematischer Aufbau des verwendeten regenerativen Verstärkers:
 L: Linse für Pumplaser $f=20$ cm, S1: Spiegel für $\lambda_0 = 795$ nm mit $R=0.5$ m, S2:
 $R=1$ m, PC: Pockelszelle (2 cm KD^*P), FR: Faraday-Rotator, B: Modenblende, Ti:Sa:
 Verstärkerkristall 2 cm Ti:Saphir, Resonatorlänge = 1.33 m.

müssen, um Reflexionsverluste niedrig zu halten. Der Vorteil wäre eine lineare Resonatoranordnung ohne astigmatisches Verhalten. Um den durch den im Brewster-Winkel geschnittenen Kristall erzeugten Astigmatismus zu kompensieren, wird ein außerhalb der optischen Achse fokussierender Spiegel (S2) mit $R=1$ m eingesetzt [WaK96, S.225]. Der berechnete Kompensationswinkel beträgt in dieser Anordnung $\Theta = 11.5^\circ$.

Der vom Expander kommende Oszillator-Puls wird im breitbandigen optischen Isolator (Faraday-Rotator, Gsänger-Optik) um 90° gedreht und ist damit senkrecht zur Tischebene polarisiert (s-Polarisation). Der für s-Polarisation hochreflektierende Dünnschichtpolarisator (DSP) koppelt den zu verstärkenden Puls in den Resonator des regenerativen Verstärkers ein. Nach zweimaligem Durchlaufen der mit $U_{\lambda/4}$ vorgespannten Pockelszelle PC (*Medox Inc.*) über den Spiegel S3 ist der Puls horizontal polarisiert (p-Polarisation) und damit für den DSP innerhalb des Resonators durchlässig. Innerhalb weniger Nanosekunden wird eine weitere $U_{\lambda/4}$ Spannung auf die Pockelszelle geschaltet,

deren $\lambda/2$ -Funktion den Puls nach zweimaligem Durchlaufen der Pockelszelle effektiv nicht weiter dreht und somit im Resonator behält. Nach maximaler Energieextraktion, die in der gezeigten Konfiguration nach 10-12 Resonatorumläufen erreicht ist, wird die Pockelszelle in den $\lambda/4$ Zustand gebracht und der verstärkte Puls über den DSP ausgekoppelt. Über den Faradayrotator (FR) wird der verstärkte Puls vom unverstärkten getrennt. Der Strahl des Pulses besitzt nun s-Polarisation (senkrecht zur Tischebene). Die Blende B im Resonator wird zur Unterdrückung höherer transversaler Resonatormoden verwendet, sodass die resultierende Mode ein TEM_{00} -Profil zeigt. Das ist für die Nachverstärkung von großer Bedeutung, da dieses Modenprofil die besten Fokussierungseigenschaften besitzt. Bei einer ausgekoppelten Pulsenergie zwischen 0.5 mJ und 0.6 mJ liegt die Wandlungseffizienz bei etwa 10% mit einem resultierenden Gesamtverstärkungsfaktor von $2 \cdot 10^6$. Darin enthalten sind die resonatorinternen Verluste durch Reflexion an den Stirnflächen des Kristalls sowie Absorption und Verluste der Spiegel.

In Abbildung 2.19 sind die über die Photodiode P detektierte dynamische Verstärkung und der herausgeschaltete verstärkte Puls im Maximum der Verstärkung sowie das Spektrum des unverstärkten und verstärkten Impulses zu sehen.

Das Verhältnis von herausgeschaltetem Signal zu nicht geschaltetem Resonator beträgt im günstigsten Fall 600 mW zu 5 mW, also 120:1. Der Grund für dieses nicht optimale Schaltverhalten liegt u.a. in thermisch erzeugter Doppelbrechung im KD^*P -Kristall der Pockelszelle. Eine bereits vorhandene vertikale Polarisationskomponente des Pulses wird über den DSP bei jedem Umlauf ausgekoppelt. Durch eine nachgeschaltete zweite Pockelszelle außerhalb des Resonators, die erst nach dem Herausschalten des verstärkten Pulses aus dem Resonator in Kombination mit einem Polarisator durchlässig wird, konnte das Verhältnis auf mehr als 3000:1 verbessert werden. Da die zweite Pockelszelle jedoch nicht für einen dauerhaften Verbleib im Laser vorgesehen war, diente diese Vorgehensweise der Verbesserung des Signal-Hintergrund-Verhältnisses nur der Demonstration.

Eine besondere Eigenart bei der Verstärkung sehr breitbandiger Laserpulse ist im unteren Teil der Abbildung 2.19 zu sehen. Die spektrale Halbwertsbreite des unverstärkten Pulses ist doppelt so groß wie die des verstärkten Pulses. Dieses als „Verstärkungseinschnürung“ bezeichnete Verhalten des Verstärkers hat seine Ursache in der überproportionalen Verstärkung des intensiven spektralen Zentrums, wie aus dem Zusammenhang [BDM98]

$$n(z, \omega) = n_0(0, \omega) e^{\sigma(\omega) \Delta N \cdot z}$$

für den Verstärkungsfaktor n zu erkennen ist. Da die Anzahl der im Lasermedium angeregten Zustände ΔN , sowie der Wirkungsquerschnitt der Verstärkung $\sigma(\omega)$ im Exponenten stehen, ist die Verstärkung des Zentrums am größten, während die schwächeren Anteile der spektralen Seiten kaum noch verstärkt werden, da ein Großteil der Inversion bereits abgebaut ist. Ebenfalls zur Verstärkungseinschnürung und Verschiebung des verstärkten Spektrums führt das frühere Eintreffen der langwelligen Komponenten vor den kurzwelligen, die dann ebenfalls ein kaum noch angeregtes Medium vorfinden. Der spektrale Schwerpunkt des Oszillators ist als Linie bei 795 nm eingezeichnet.

Zur Unterdrückung der bevorzugten Verstärkung des spektralen Maximums wird eine dünne Glas- oder Plastikfolie mit einer Dicke von ca. $2 \mu\text{m}$ in den Resonator des regenerativen Verstärkers eingesetzt [BKR96]. Die als Fabry-Perot-Resonator dienende Folie mit Finesse F vermindert die Transmission bestimmter Wellenlängenbereiche in Abhängigkeit vom Einfallswinkel des Strahls auf die Folie. In gewünschter Stellung kann die Verstärkung des spektralen Maximums soweit unterdrückt werden, dass das verstärkte Spektrum deutlich breiter wird als ohne Folie. Die Messungen in Abbildung 2.20 zeigt das Verhalten für verschiedenen Einfallswinkel des Strahls auf die Folie. Damit lässt sich das Spektrum (a) mit 20 nm Breite zu bestenfalls 42 fs bandbreitebegrenzt komprimieren, während das Spektrum (c) mit seinen 45 nm Bandbreite eine Kompression auf bis zu 18 fs zulässt.

Durch Reflexionsverluste an der Folie sinkt allerdings die verstärkte Leistung. Eine weitere Möglichkeit zur Minderung der Verstärkungseinschnürung ist die Formung des in den Verstärker eingekoppelten Spektrums. Nach einmaligem Expanderdurchlauf zeigt der Puls am Ausgang eine resultierende spektrale Divergenz, d.h. die spektralen Komponenten sind nicht homogen über den Strahlquerschnitt verteilt (vgl. S. 35). Der zu verstärkende Puls kann nun durch räumliche Variation der Einkopplung in den regenerativen Verstärker so optimiert werden, dass das Verhältnis der langwelligen zu kurzwelligen Frequenzkomponenten abnimmt. Die auf diesem Weg erreichte verstärkte Bandbreite beträgt etwa 35 nm um $\lambda_0 = 795 \text{ nm}$ und unterstützt bei *sech*²-förmigen Laserpulsen eine Pulsdauer von 20 fs. Die zuletzt beschriebene Methode wird in dieser Arbeit angewendet.

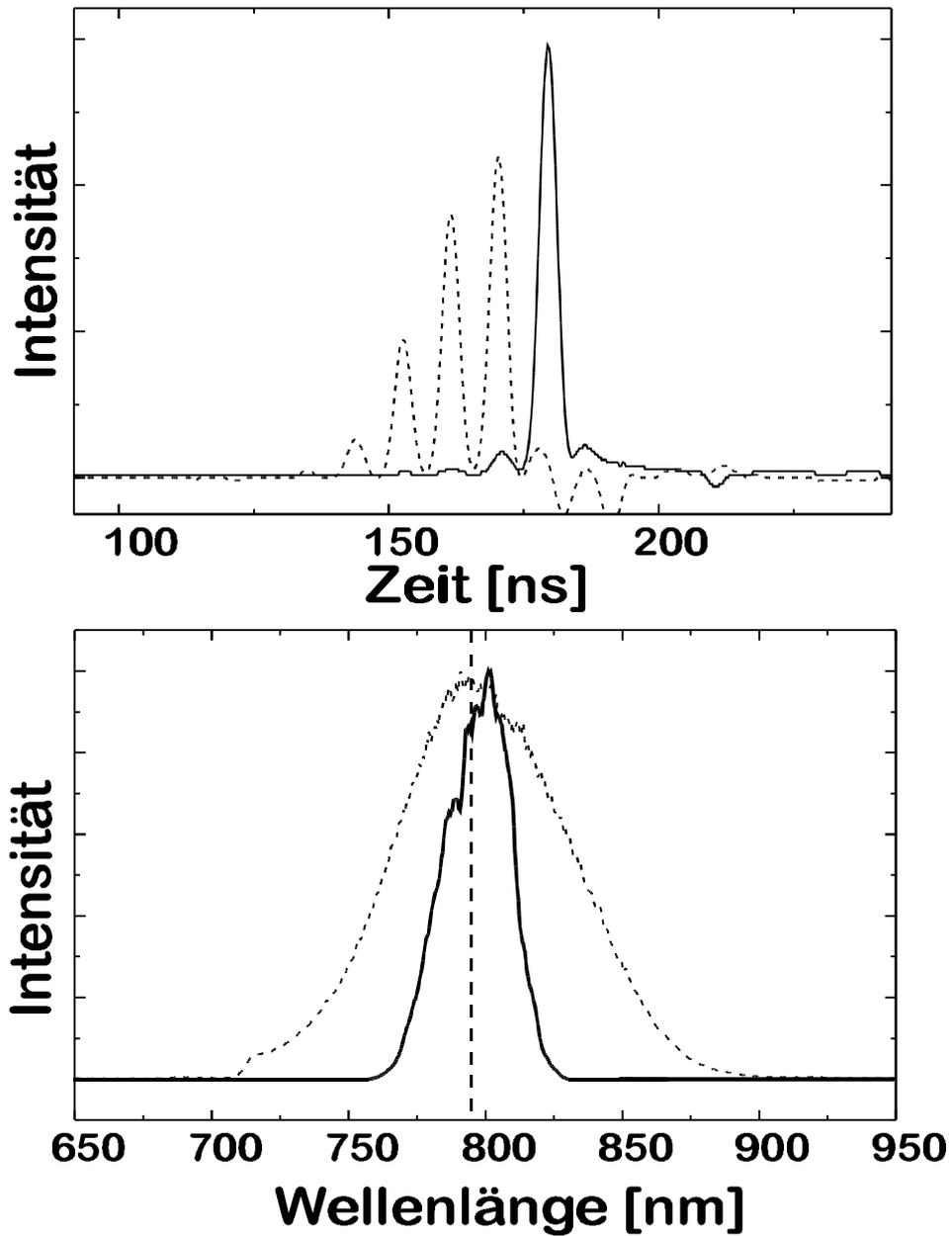


Abb. 2.19: Oben ist das Schaltverhalten der Pockelszelle zu sehen, die im Maximum der Verstärkung den Puls nach 12 Umläufen aus dem Resonator auskoppelt. Die untere Messung zeigt die spektrale Einengung nach der regenerativen Verstärkung (—) und das Spektrum vor der Verstärkung (···).

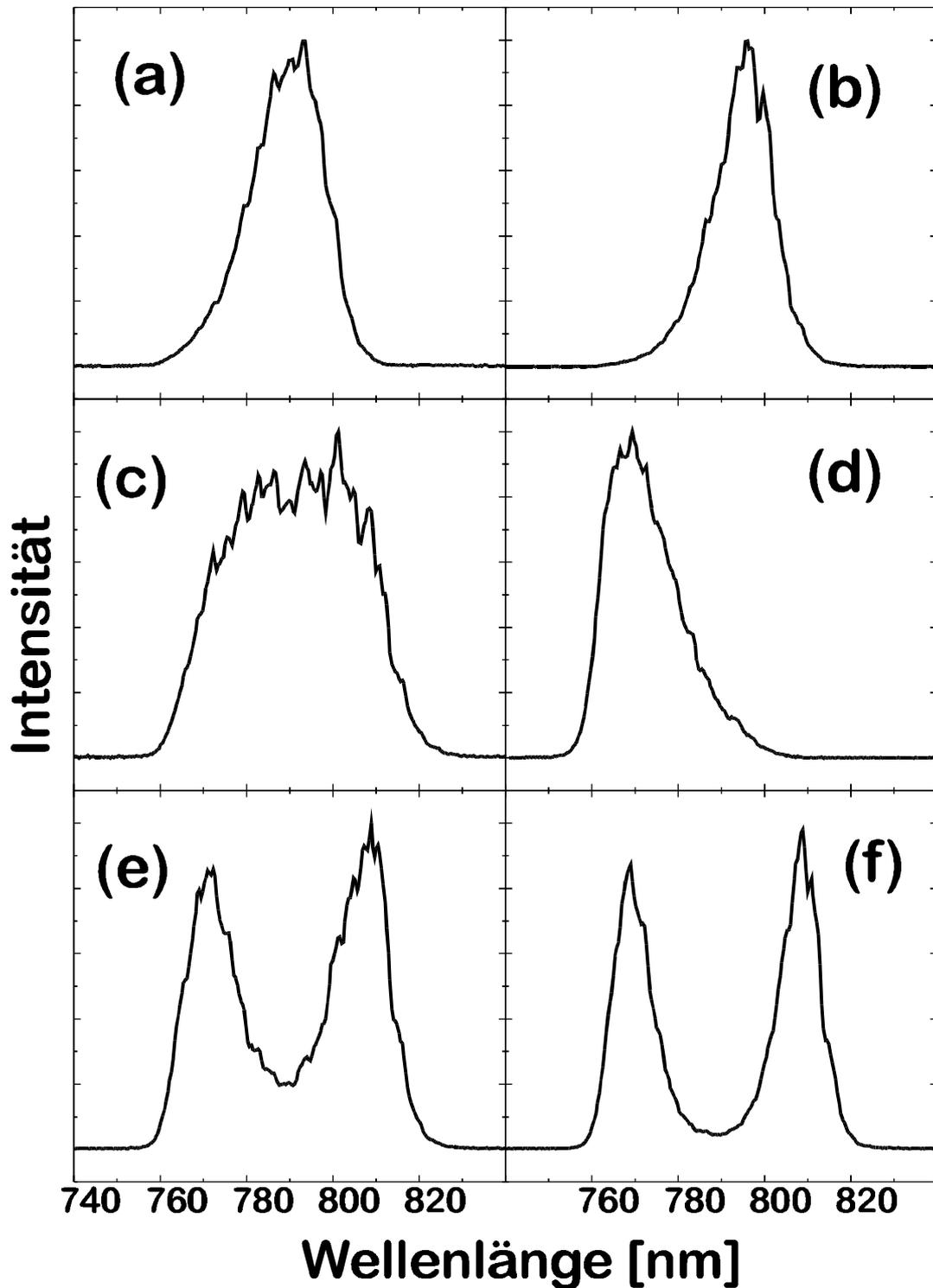


Abb. 2.20: Beeinflussung des Spektrums mit Fabry-Perot-Interferometer im Resonator des regenerativen Verstärkers. (a): ursprüngliches Spektrum, (b)-(f): spektrale Verbreiterung durch Unterdrückung der Verstärkungseinschnürung. Deutlich ist die Verbreiterung und die spektrale Abstimmung in Abhängigkeit des Interferometerwinkels zu erkennen.

fokussierenden $R=1$ m Spiegel im Abstand von etwa 60 cm vom Ti:Saphir-Kristall mit anschließender Kollimierung verstärkt den Puls auf 2.6 mJ mit einer resultierenden Gesamtverstärkung von 5.2 und einer Extraktionseffizienz von 19%. Unter Berücksichtigung der Verluste durch Reflexion und Absorption liegt die Effizienz im 20%-Bereich. Um die vom Laserkristall nicht absorbierte Pumpleistung (35%) zu nutzen, wird dieser Strahl mit einem Aluminiumspiegel durch eine 15 cm-Linse zurück in den Kristall gekoppelt. Die Gesamtverstärkungsleistung erhöht sich dadurch um etwa 12%.

Der Vorteil der Vielfachverstärkung gegenüber regenerativen Verstärkern liegt in der geringeren Materialmenge, die durchlaufen werden muss, um hohe Verstärkungsfaktoren zu erreichen. Die aufgeprägte Dispersion, besonders Phasen dritter und höherer Ordnung bleiben damit im Gegensatz zum regenerativen Verstärker gering, bei dem sich nach 10 Umläufen bereits 44 cm Ti:Saphir und ebensoviel Material der Pockelszelle akkumulieren. Allerdings ist die Extraktionseffizienz in der gezeigten Anordnung des Vielfachverstärkers durch den räumlichen Versatz zwischen Pumpstrahl und zu verstärkendem Puls auf Werte um 20% begrenzt [BDM98]. Nachteilig ist auch die fehlende Resonatorconfiguration, d.h. es ist mit wenigen Durchläufen kaum spektrale Beeinflussung durch interne Fabry-Perot-Folien möglich. Ebenso übernimmt der Verstärker die Mode des eingekoppelten Strahls, die nach der Expansion räumliche und spektrale Inhomogenitäten aufweist.

Die gewählte Kette mit vorgeschalteter regenerativer und anschließender Vielfachverstärkung zur Erhöhung der Leistung in den 3 W-Bereich erweist sich deshalb als optimal.

In der letzten Stufe wird der Puls in einer parallele Gitteranordnung (mit einem Einfallswinkel von 60° auf das erste Gitter und einem Gitterabstand von 60 cm) auf 32 fs und 1.4 mJ komprimiert. Die Abbildungen 2.22 und 2.23 geben einen Überblick über die wichtigsten Parameter wie Spektrum, Pulsdauer und Strahlprofil sowie den gesamten Aufbau.

2.5.4 Frequenzkonversion

Die im Ti:Saphir-Verstärker erzeugten Wellenlängen sind als alleiniger spektroskopischer Frequenzbereich, insbesondere für resonante Anregung molekularer Übergänge in den durchgeführten Experimenten nicht ausreichend. Höhere Photo-

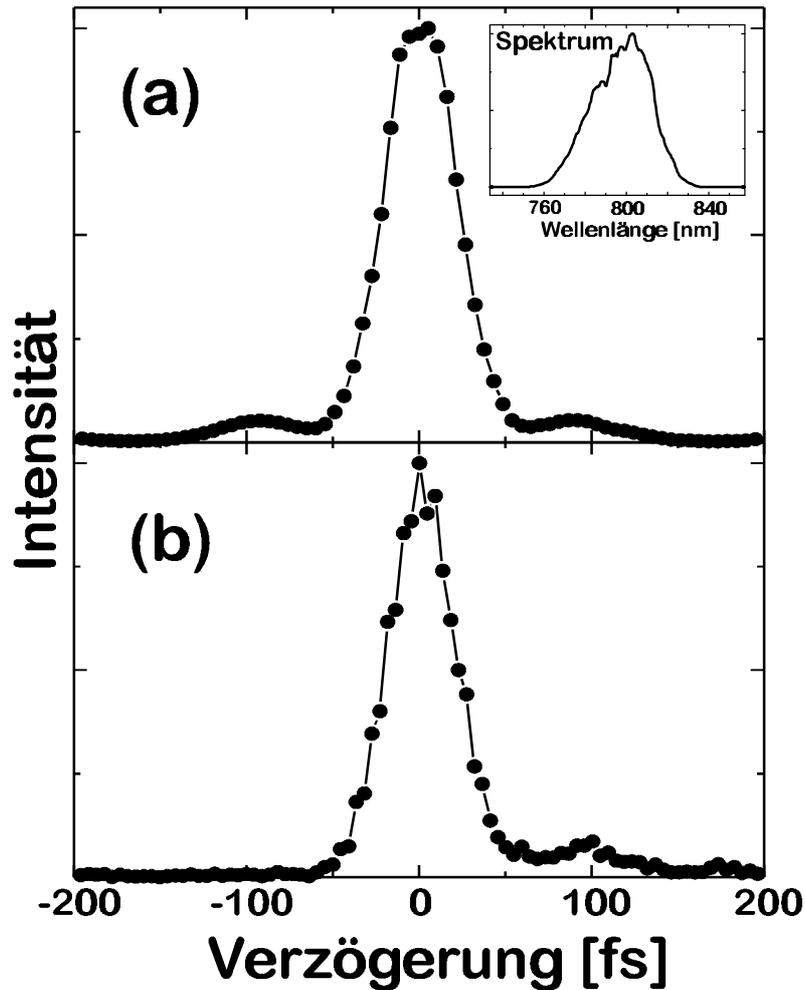


Abb. 2.22: Charakterisierung des verstärkten Pulses mit (a) SHG-Autokorrelation und (b) mit SD-Korrelation. Die Entfaltung mit den entsprechenden Faktoren ergibt jeweils Pulsbreiten von 32 fs. In (b) ist deutlich die resultierende Phase dritter Ordnung in positive Zeitrichtung zu erkennen (Nachläufer bei 100 und 170 fs).

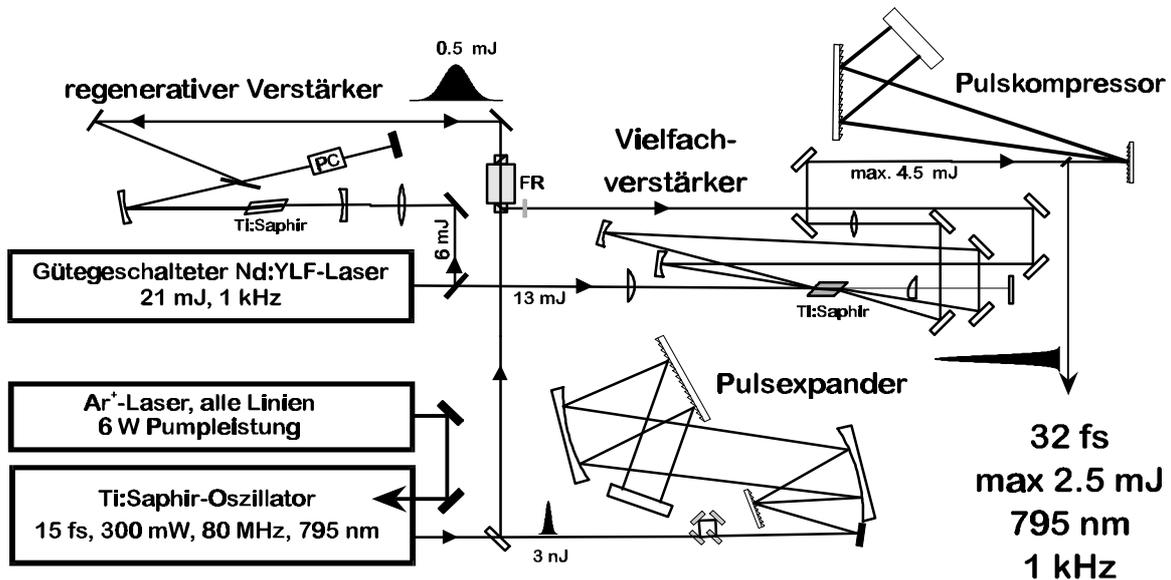


Abb. 2.23: Gesamtes CPA-System im Überblick.

nenenergien lassen sich z.B. durch nichtlineare Frequenzverdopplung in Kristallen ohne Inversionssymmetrie erreichen. Physikalischer Hintergrund ist wieder die Nutzung der nichtlinearen Polarisation zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ in Gleichung (2.2). Mathematisch müssen für die Wandlung von zwei Photonen der fundamentalen Frequenz ($\lambda=800$ nm) in ein Photon der doppelten Frequenz ($\lambda=400$ nm) gekoppelte Wellengleichungen für die Ausbreitung in Materie gelöst werden. Hier werden jedoch nur die wesentlichen Ergebnisse der Frequenzwandlung ultrakurzer Laserpulse dargestellt.

Je höher die nichtlineare Polarisation, umso höher ist im allgemeinen die Effizienz oder Ausbeute der Frequenzwandlung. Für die bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten benötigten hohen Energien um 400 nm bietet sich als Wandlungskristall β -BaB₂O₄ (BBO) an, der von allen Kristallen die günstigsten hier benötigten Eigenschaften besitzt: hohe Nichtlinearität, hohe Zerstörschwelle und geringe Absorption im erwünschten Frequenzbereich um 400 und 800 nm.

Als problematisch erweist sich die Phasenanpassung bei der Konversion ultrakurzer, breitbandiger Laserpulse, d.h. die Angleichung der Brechungsindizes für die fundamentale und verdoppelte Frequenz zur effektiven Wandlung. Die resultierende Gruppengeschwindigkeits-Fehlanpassung zwischen beiden Frequenzen beträgt für Typ-I-BBO bei 800 nm etwa 200 fs/mm, d.h. die zeitliche Verzögerung zwischen beiden Pulsen

unterschiedlicher Frequenz beträgt nach 1 mm Materialweg bereits 200 fs. Da die fundamentale Wellenlänge jedoch weiter gewandelt wird, ändert sich das zeitliche Profil der zweiten Harmonischen derart, dass ein anfangs kurzer Puls einen Ausläufer von 200 fs Länge erhält. Wichtigste Randbedingung in der Wandlung ultrakurzer Laserpulse sind aus diesem Grund dünne Wandlungsmedien. Die verwendeten Kristalle sind ausschließlich 100 μm oder dünner. Die BBO-Kristalle sind mit einem Schnittwinkel von 29° für die Erzeugung der zweiten Harmonischen bei Typ-I-Phasenanpassung (ooe) optimiert. Typ-I bedeutet, dass die beiden einfallenden Wellen parallel polarisiert sind, während die entstehende zweite Harmonische senkrecht dazu polarisiert ist.

Verbreiterungen durch Gruppengeschwindigkeits-Fehlanpassung liegen damit maximal in der Größenordnung von 10 bis 20 fs. Erreichen die Laserpulse große Bandbreiten von 30 nm und mehr, sind nur noch sehr kurze Kristalle mit einer Länge von 100 μm und darunter in der Lage die Phasenanpassungsbedingungen für alle spektralen Komponenten des Laserpulses zu gewährleisten. Die Berechnung der Wandlungseffizienz für verschiedene Kristalllängen in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei einem für 800 nm-Fundamentalpuls optimierten Phasenanpassungswinkel (29° in BBO) illustriert Abbildung 2.24. Deutlich ist die Einschnürung der zu 400 nm gewandelten Wellenlängen zu sehen, die bei Kristalllängen über 1 mm erheblich sind und damit nicht zur Wandlung spektral breiter Laserpulse geeignet sind. Die Wandlungsbreiten geben nur die Größenordnung der Effizienz wieder, da zur Simulation Literaturwerte verwendet werden und die Gruppengeschwindigkeits-Fehlanpassung unberücksichtigt bleibt. Erkennbar bleibt aber, dass die Kristalle bei zu wandelnden Pulsdauern von unter 30 fs (d.h. $\Delta\lambda=28$ nm) nur noch Längen deutlich unterhalb 100 μm besitzen dürfen.

In Abbildung 2.25 ist der experimentelle Aufbau zur Frequenzverdopplung dargestellt. Um unterhalb der Zerstörschwelle des Kristalls zu bleiben und Nichtlinearitäten höherer Ordnung zu vermeiden, wird keine fokussierende Anordnung in den Kristall gewählt, sondern ein kollimierter Strahl mit 1 mm Durchmesser zur Wandlung eingesetzt. Im unteren Teil der Abbildung ist die gemessene Wandlung in Abhängigkeit von der Pumpintensität aufgetragen.

Abbildung 2.26 zeigt die wichtigsten Parameter der Frequenzkonversion. Die Pulsdauer bei $\lambda = 400$ nm beträgt 29 fs bei einer Eingangspulsdauer von 38 fs ($\lambda=800$ nm). Die Wandlungseffizienz beträgt max. 45%, d.h. es wird eine Pulsenergie von 0.45 mJ erreicht. Die Verkürzung des Pulses wird im wesentlichen nicht durch Wandlung in die zweite Harmonische verursacht, die mit einem Faktor $1/\sqrt{2}$ skaliert und nur

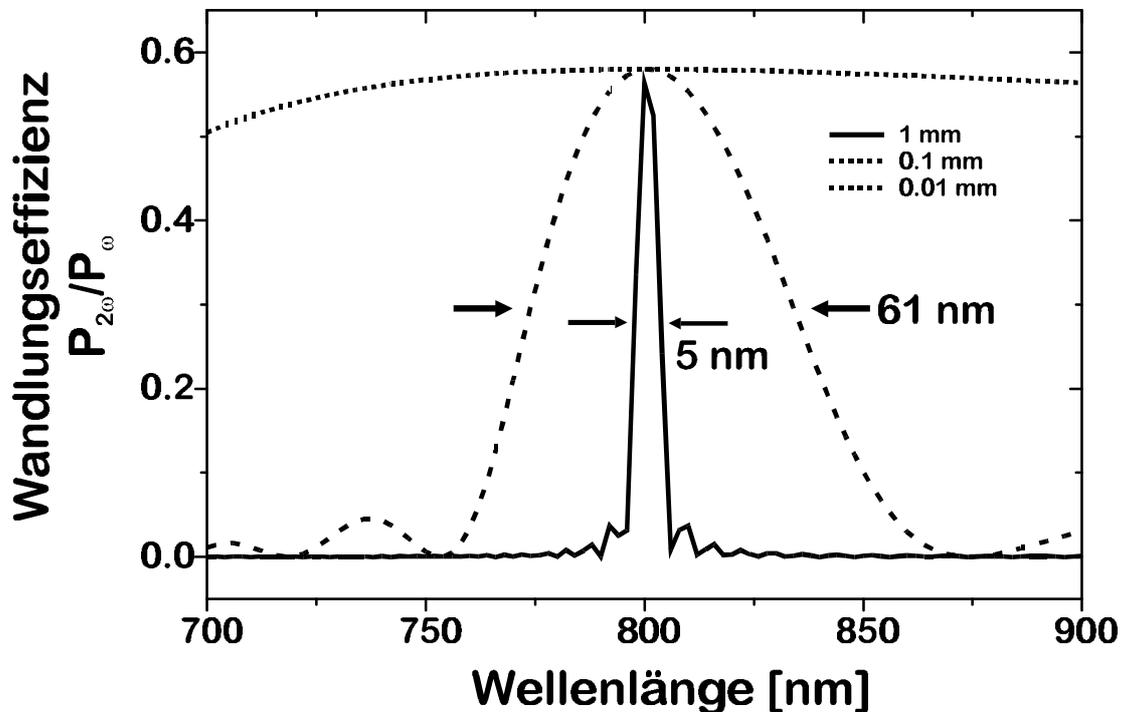


Abb. 2.24: Die Berechnung zeigt die spektrale SHG-Wandlungseffizienz in BBO für 800 nm Fundamentalwellenlänge für drei verschiedene Kristalldicken (10 μm , 100 μm und 1 mm). Dabei beträgt der optimale Phasenanpassungswinkel bei 800 nm in allen drei Fällen 29° . Deutlich zu erkennen ist die starke Einschnürung des effizient gewandelten Wellenlängenbereichs bei Kristallen um 1 mm Länge und darüber.

im Bereich geringer Konversionseffizienzen gültig ist. Im vorliegenden Fall führen eine Vorkompensation über die Kompressionsgitter und spektrale Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation im Kristall zur Verkürzung der Pulsdauer bei 400 nm. Das Strahlprofil bei 400 nm weist eine größere Ausdehnung in horizontale als in vertikale Richtung auf, da bei Wandlung mit großer spektraler Breite die unterschiedlichen Phasenanpassungen in diesen Achsen von Bedeutung sind. Eine Kompensation der Profilverzerrung ist mit einem zylindrischen Spiegel zu erreichen.

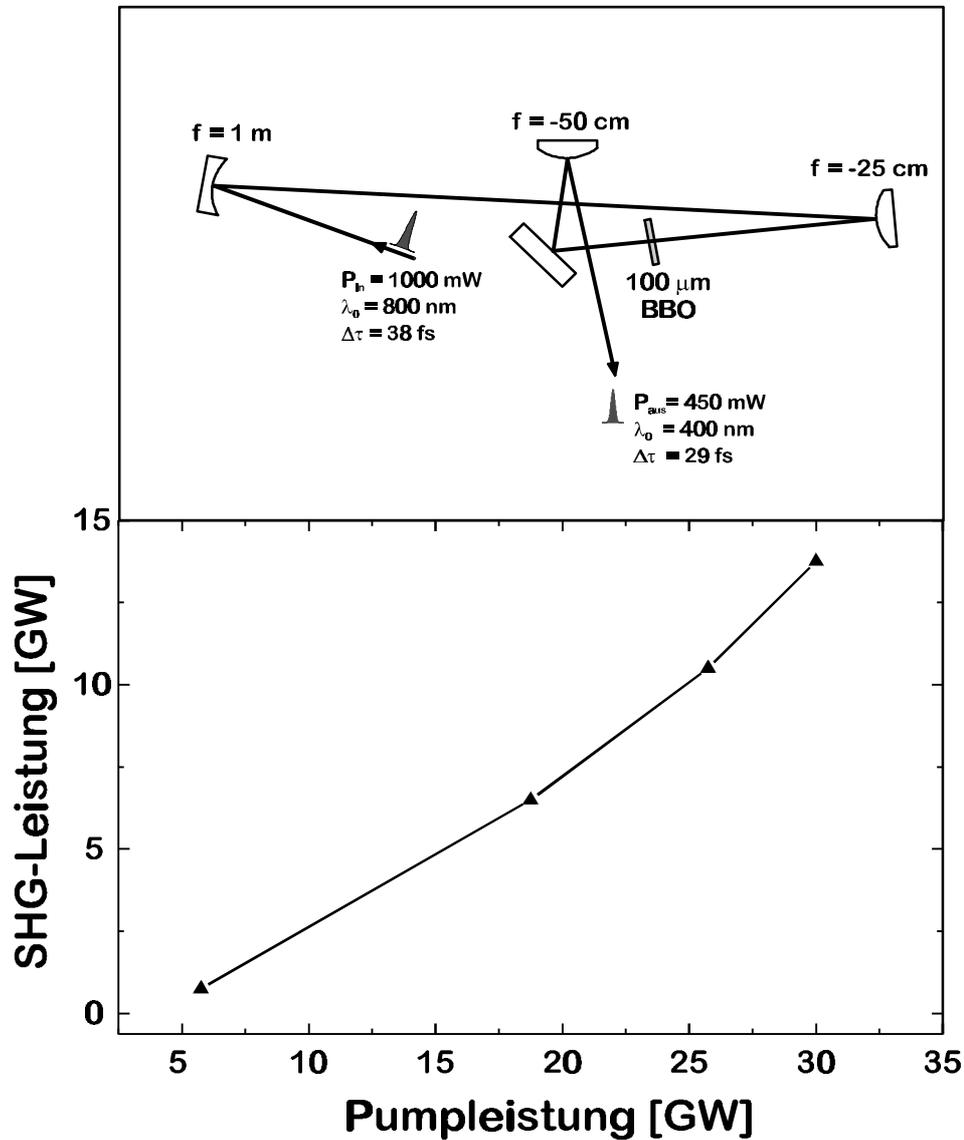


Abb. 2.25: **Oben:** Frequenzverdopplung in $100 \mu\text{m}$ BBO. Das Teleskop erhöht die Leistungsdichte im Kristall, ohne die Zerstörschwelle zu erreichen oder Luft im Fokus zu ionisieren. Der Abstand zwischen den beiden Teleskopspiegeln beträgt 82 cm . **Unten:** gemessene SHG-Leistung bei $\lambda=400 \text{ nm}$ in Abhängigkeit der eingestrahnten Grundwellenleistung.

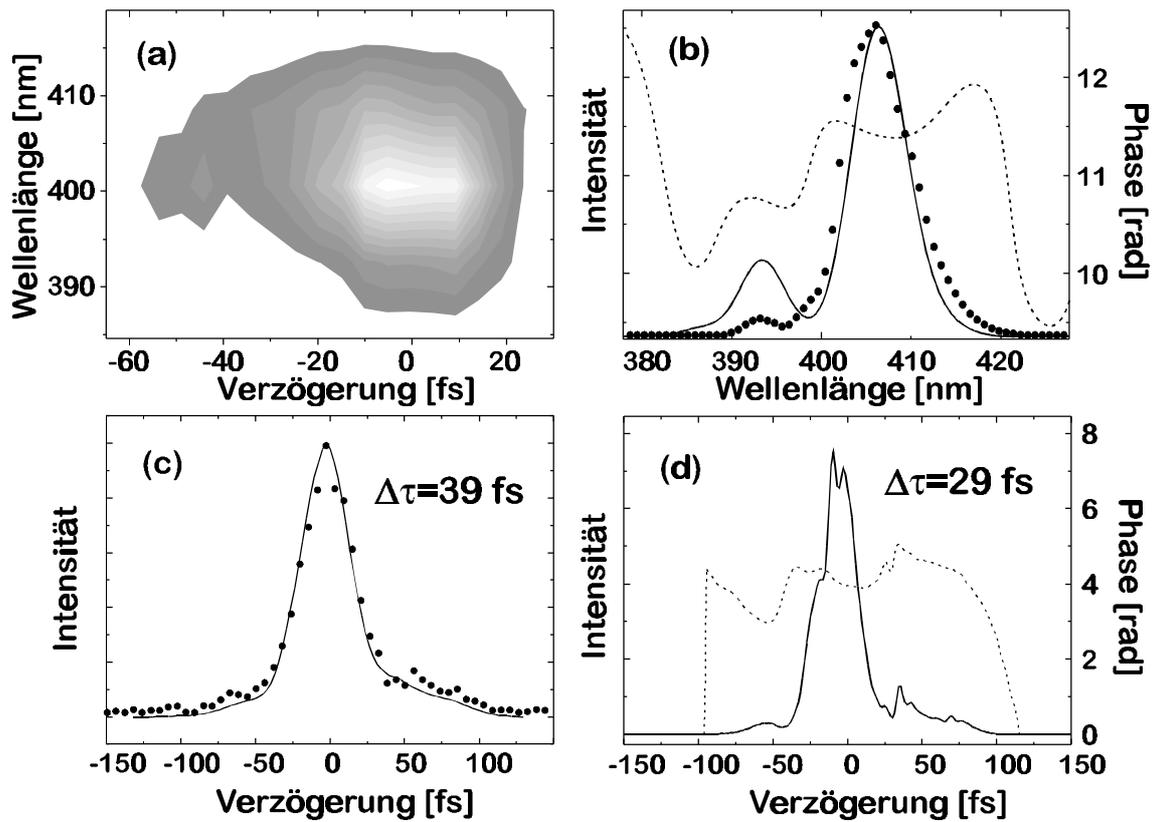


Abb. 2.26: (a) SD-FROG des frequenzverdoppelten Pulses in $100 \mu\text{m}$ BBO. (b) gemessenes (Punkte) und nach (a) berechnetes Spektrum (durchgezogen). Die spektrale Phase zeigt einen resultierenden kubischen Verlauf. (c) gemessene und nach (d) berechnete SD-Korrelation. (d) zeigt den berechneten Pulsverlauf mit geringer nichtkonstanter Phase, hauptsächlich zweiter Ordnung.

