

Kapitel 2

Femtosekunden-Laserpulse: Erzeugung, Charakterisierung und Modulation

Um kohärente Prozesse in Molekülen zu untersuchen, sind ultrakurze Laserpulse unabdinglich, da sie die in den Molekülen stattfindenden Reaktionen zeitlich auflösen können. Im Laufe meiner Doktorarbeit habe ich mit unterschiedlichen Lasersystemen und Pulsmodulatoren zur Formung von Femtosekunden (fs)-Pulsen gearbeitet. Ich möchte in diesem Kapitel die allgemein gültigen Grundlagen der fs-Pulserzeugung, deren Verstärkung und deren Formung durch Pulsmodulatoren darstellen. Außerdem zeige ich unterschiedliche Möglichkeiten zur Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen auf.

Die Zeitskala, auf der sich Reaktionen innerhalb von Molekülen abspielen, liegt im ps- bis ns-Bereich. Zur Auflösung dieser schnellen Prozesse sind fs-Laserpulse ideal.

2.1 Erzeugung von fs-Laserpulsen

Seit der Erfindung des Lasers vor über 40 Jahren sind Wissenschaftler interessiert daran, möglichst kurze Laserpulse herzustellen, um schnelle Reaktionen und Prozesse auflösen und somit genauer untersuchen zu können. Spektroskopische Ergebnisse in vielen Feldern der Wissenschaft zeigten in den letzten Jahren den Erfolg von ultrakurzen Laserpulsen, deren Entwicklung heutzutage bis zu Attosekunden-Pulsen [9] reicht.

Fs-Laserpulse können mit verschiedenen Arten von Lasern, Festkörperlasern, Fiber-Lasern oder Farbstofflasern erzeugt werden. Festkörperlaser bieten darunter eine sehr benutzerfreundliche Umsetzung der fs-Pulserzeugung. Die Experimente wurden mit Ti:Saphir-Lasern durchgeführt, deren Prinzip ich an dieser Stelle näher vorstellen möchte.

Die verwendeten kommerziellen Lasersysteme bestehen jeweils aus einem Pump-laser, einem Ti:Saphir-Oszillator und einem Verstärkersystem, wobei die verstärkten Pulse nur für die in Kapitel 5 gezeigten Experimente genutzt wurden.

2.1.1 Der Ti:Saphir-Oszillator

Ein Ti:Saphir-Laser ist ein Festkörperlaser, dessen Verstärkungsmedium ein kristallines Material - bestehend aus Al_2O_3 dotiert mit Ti_2O_3 -Molekülen - ist. Ein kleiner Prozentsatz der Al^{3+} -Ionen wird durch Ti^{3+} -Ionen ersetzt, die für den Laserübergang verantwortlich sind. Der Absorptions- und Emissionsbereich eines Ti:Saphir-Kristalls ($\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$) ist in Abb. 2.1 dargestellt. Das laseraktive Medium absorbiert in einem Wellenlängenbereich von 400-660 nm und emittiert in einem Bereich von 600 nm bis über 1000 nm, wobei der Absorptionsbereich teilweise mit dem Emissionsbereich überlappt, so dass eine Laseremission nur ab einer Wellenlänge von 660 nm möglich ist [10].

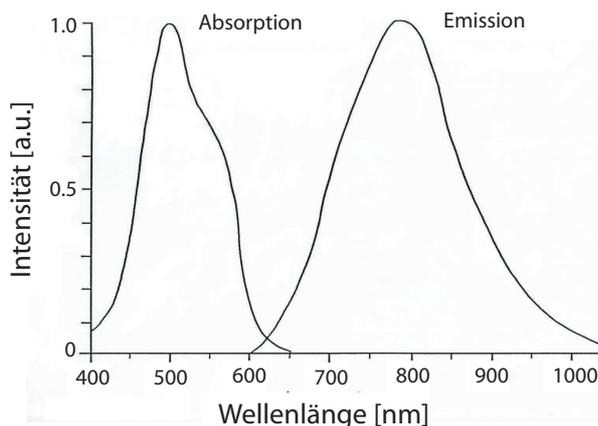


Abbildung 2.1: Der Absorptions- und Emissionsbereich eines Ti:Saphir-Kristalls. Eine Überlappung beider Bereiche bedingt eine Einschränkung des Laserbetriebs auf den Wellenlängenbereich über 660 nm.

Die Frequenzen der umlaufenden Resonatormoden eines Lasers sind abhängig von der optischen Länge L des Oszillators [11]

$$\omega_{n+1} - \omega_n = \frac{\pi c_0}{L} = 2\pi \nu \quad . \quad (2.1)$$

c_0 entspricht hierbei der Lichtgeschwindigkeit.

Eine Phasenkopplung der oszillierenden longitudinalen Moden ergibt als Laseroutput eine Serie diskreter Pulse mit dem Abstand eines Kavitätenumlaufs $T = 2L/c_0$. Die Repetitionsrate des Lasers ist gleich dem Inversen der Umlaufzeit, d.h. $\tau_{Rep} = 1/T$. Es gibt mehrere Möglichkeiten, die Phasen zu koppeln und

damit das sog. Mode-Locking zu erreichen. An dieser Stelle soll die aktive und passive Modenkopplung kurz dargestellt werden.

Die aktive Modenkopplung kann durch einen akusto-optischen Modulator (AOM) realisiert werden [12]. Die Frequenz des AOMs wird durch eine Regelschleife, die die momentane Repetitionsrate des Lasers aufnimmt, kontinuierlich nachgeregelt. Somit wird eine Kopplung der Resonatormoden erreicht. Weiterhin unterstützt ein AOM die Initialisierung der Modenkopplung.

Die passive Modenkopplung kann durch ein Absorbermaterial im Strahlengang realisiert werden. Ein Beispiel für die passive Modenkopplung ist die Funktionsweise des Ti:Saphir-Oszillators Mira (Coherent Laser Group; s. Kapitel 4.4.1.2), bei dem ein Material, das in den Strahlengang gestellt wird, und ein Schlitz die Modenkopplung übernehmen. Das Absorbermaterial nutzt den Kerr-Linsen-Effekt [13] aus und verringert den Strahldurchmesser für intensive Lichtpulse. Befindet sich nun der Schlitz im Fokus der Kerr-Linse, wird cw(continuous wave)-Licht blockiert und eine Modenkopplung durch das Zusammenspiel beider Komponenten erreicht [14].

Der Kerr-Linsen-Effekt ist eine Selbstfokussierung intensiver Laserfelder. Bei großen elektrischen Feldstärken \vec{E} wird der Brechungsindex n intensitätsabhängig. In einem Ti:Saphir-Oszillator findet folgendes statt: Der Pumplaserstrahl wird in den Ti:Saphir-Kristall fokussiert, wobei die Intensität des Laserstrahls in der Mitte größer ist als am Rand. Daraus folgt, dass die Intensität des emittierten Lichts im Zentrum größer ist, d.h. es herrscht ein Intensitätsgefälle vom Zentrum ausgehend zu den Rändern des Kristalls. Dieses Gefälle zieht eine Verbiegung der Wellenfronten und damit eine Selbstfokussierung des Laserstrahls nach sich [15]. Die Konfiguration des Resonators bewirkt, dass aus zufälligen Intensitätsschwankungen stabile Pulse herausgebildet werden¹ und das sog. Kerr-Linsen-Mode-Locking erreicht wird.

Wenn die longitudinalen Moden gekoppelt sind, ist ihr Phasenunterschied konstant ($\phi_j = konst.$), und die entstehenden Pulse heißen transform-limitiert. In einem Ti:Saphir-Oszillator werden ca. 10^6 Moden miteinander gekoppelt, wobei die Anzahl der Moden und die Länge der Pulse antiproportional zueinander sind. Je mehr Moden gekoppelt werden, desto kürzer ist der entstehende Laserpuls. Fs-Pulse benötigen eine große spektrale Bandbreite, die mit der Pulslänge über

$$\Delta\nu \Delta\tau \geq K \quad (2.2)$$

zusammenhängt [11]. Hierbei ist $\Delta\tau$ die Halbwertsbreite (FWHM; full width at half maximum) und $\Delta\nu$ die Frequenzbreite des Pulses bei FWHM. Die Konstante K hängt von der Form des Pulses ab und entspricht bei einem Gauß-förmigen Puls 0.441. Eine sech²-Pulsform entspricht einem K von 0.315 (s. Kapitel 2.1.3). Glg. (2.2) ist die Bedingung für einen transform-limitierten Puls, der auch kurzer bzw. ungechirpter Puls genannt wird.

¹Stärker fokussierte Anteile werden verstärkt.

Die Pulsdauer für ein Pulsspektrum mit einer FWHM von $\Delta\lambda$ ergibt sich zu

$$\Delta\tau \geq K \frac{\lambda_0^2}{\Delta\lambda c_0} \quad , \quad (2.3)$$

wobei λ_0 die Zentralwellenlänge des Laserpulses ist und c_0 die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Die minimale Pulsdauer ergibt sich, wenn Glg. (2.3) dem Gleichheitszeichen genügt.

Die immer durch die optischen Elemente auftretende Gruppengeschwindigkeitsdispersion² (GVD; Group Velocity Dispersion) wird im Ti:Saphir-Oszillator durch einen internen Prismenkompressor kompensiert.

2.1.2 Verstärkte fs-Laserpulse

Bei verstärkten Laserpulsen handelt es sich um Pulse, deren Intensität um ein Vielfaches größer ist, als die eines Ti:Saphir-Oszillators. Das Lasermedium eines Verstärkers ist ebenfalls ein Kristall, der durch einen externen Pumplaser eine hohe Besetzungsinversion erhält. Der Ti:Saphir-Oszillator wird als *Seed-Laser* für den Verstärkungsprozess verwendet. Diese Art der Verstärkung wird als CPA (Chirped Pulse Amplification) bezeichnet [16].

Um einer Beschädigung der optischen Elemente im Verstärkersystem vorzubeugen, werden die Pulse vor ihrer Verstärkung gestreckt und danach wieder zu fs-Pulsen komprimiert. Bei der Verstärkung von fs-Laserpulsen wird die vom Ti:Saphir-Oszillator gegebene Repetitionsrate verringert. Je niedriger die Repetitionsrate nach der Verstärkung ist, desto höhere Pulsintensitäten werden erreicht.

Übliche Verstärkertypen sind der Multipass-Verstärker und der regenerative Verstärker. Beide Verstärkertypen benötigen einen Stretcher zum Strecken der Pulse vor der Verstärkung und einen Kompressor zum Rekomprimieren der verstärkten Pulse zu fs-Laserpulsen. An dieser Stelle sollen die Funktionsweise eines regenerativen Verstärkers, Stretchers und Kompressors beschrieben werden.

In einem *regenerativen Verstärker* [12, 17] werden die Pulse innerhalb einer Kavität verstärkt. Als Verstärkermedien werden häufig Ti:Saphir-Kristalle genutzt, da die Verstärkerbandbreite für das zu verstärkende Pulsspektrum breit genug sein muss. Der Puls wird so lange durch Umläufe in der Kavität verstärkt, bis er die maximale Verstärkung durch den Kristall erfahren hat und die Verluste innerhalb der Kavität zum Tragen kommen. Der maximal verstärkte Puls wird durch einen Pulspicker oder eine Pockelszelle und einen Breitbandpolarisator aus der Kavität ausgekoppelt [11]. Eine Pockelszelle besteht aus einem doppelbrechenden KTP-Kristall (KTiOPO_4 ; Kaliumtitanylphosphat), der durch eine angelegte Hochspannung die Polarisation des durchtretenden Laserfeldes ändern kann, d.h.

²GVD tritt auf, wenn die 2.Ableitung des Brechungsindex von Null verschieden ist. Dann besitzt jede Vakuumwellenlänge eine unterschiedliche Gruppengeschwindigkeit und zwei zeitlich überlagerte Pulse laufen nach dem Durchgang durch eine Linse zeitlich hintereinander.

er verhält sich wie eine veränderbare λ -Platte. Tritt der Laserpuls auf, so wirkt die Pockelszelle zunächst wie eine $\frac{\lambda}{4}$ -Platte und schaltet auf die Funktionsweise einer $\frac{\lambda}{2}$ -Platte um, sobald sich der Puls im Resonator befindet. Der in der Kavität gefangene Puls wird nun bis zur Maximalintensität verstärkt. An diesem Punkt wird eine Spannung an die Pockelszelle angelegt und der verstärkte Puls kann den Resonator verlassen. Diese Methode wird regenerative Verstärkung genannt, da sich die Laserpulse selbst regenerieren. Ein Vorteil dieses Verstärkertyps ist die Vermeidung von Rückreflexion in die Verstärkerkavität.

Vor der Verstärkung durchläuft der fs-Puls einen *Pulsstrecke*r bzw. Stretcher. Die aus der zeitlichen Kürze des Pulses folgende große spektrale Breite erhält im Stretcher einen großen spektralen Chirp³. Die zeitliche Separation der einzelnen Pulsfrequenzen wird durch einen Aufbau mit dispersiven Elementen (Prismen oder Gitter) erreicht. Der Puls wird dabei um einen Faktor von ca. 10^4 auf eine Pulslänge von etwa 30-100 ps gestreckt und die Spitzenintensität des Pulses wird reduziert. Damit ist gewährleistet, dass die optischen Elemente des Verstärkers beim Verstärkungsprozess keinerlei Schaden nehmen.

Nach Verstärkung der Pulse durchlaufen diese einen *Kompressor* [16], der ein Dispersionsaufbau mit einer dem Stretcher entgegengesetzten Gruppengeschwindigkeitsdispersion ist. Hier werden die Laserpulse zu fs-Pulsen rückkomprimiert. Die Aufgabe des Kompressors ist nicht nur die Komprimierung der durch den Stretcher gestreckten Pulse, sondern auch die Kompensation der Dispersion im Verstärker.

Problematisch bei einem Verstärkersystem ist ASE (Amplified Spontaneous Emission) [18]. Als ASE werden spontan emittierte Photonen bezeichnet, die, wenn sie sich entlang der Hauptachse des Lasermediums ausbreiten, mitverstärkt werden. ASE hat keine guten Kohärenzeigenschaften, da sie aus vielen inkohärenten, spontan emittierten Photonen besteht. Im Verstärkersystem konkurriert ASE durch die auftretende Mitverstärkung mit dem brauchbaren Signal aus dem verstärkten *Seed*-Laser. Zur Unterdrückung der mitverstärkten spontan emittierten Photonen wird ein Verstärkerentkoppler genutzt, der für Pulse länger als 100 fs ein Faraday-Polarisator sein kann.

Einschränkungen von verstärkten fs-Laserpulsen sind die Verstärkungssättigung und die spektrale Einengung und Verschiebung durch die Verstärkung.

2.1.3 Pulscharakterisierung

Bei der Charakterisierung eines Laserpulses wird dessen Intensitäts- und Phasenverlauf bestimmt. Da kein Messgerät schnell genug ist, um Pulse auf der fs-Zeitskala aufzulösen, wurden Techniken entwickelt, die die fs-Pulse mit einem zweiten, ebenfalls ultrakurzen Puls abtasten. Im Folgenden werden mehrere Stan-

³Chirp kommt von *to chirp*, zwitschern, und bedeutet, dass die Frequenzkomponenten eines Pulses zeitlich verändert sind.

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

Tabelle 2.1: Umrechnungsfaktoren zur Bestimmung der Pulsdauern und der Bandbreiten-Pulsbreitenprodukte für Pulse, deren Form der Gauß- oder der $sech^2$ -Funktion genügen [11].

ardtechniken zur Vermessung von ultrakurzen Lichtfeldern beschrieben, die zur Vermessung der in dieser Arbeit experimentell gewonnenen Laserpulse genutzt wurden.

Autokorrelation

Bei einer Autokorrelation wird der zu messende Puls zunächst durch einen Strahlteiler in zwei identische Pulse aufgespaltet, die dann in einem nicht-linearen Medium zeitlich und räumlich überlagert werden. Das nicht-lineare Medium ist ein frequenzverdoppelnder Kristall, der ein SHG-Signal (Second Harmonic Generation) erzeugt, welches als Funktion der Zeitverzögerung aufgenommen wird. D.h. mit einem Teil des aufgesplitteten Strahls wird der zweite Teil abgetastet und die Intensität der resultierenden Frequenzverdopplung in Abhängigkeit der zeitlichen Verzögerung beider Pulse detektiert [19]. Um eine untergrundfreie Autokorrelation aufnehmen zu können, werden die überlagerten Pulse unter einem Winkel in den nicht-linearen Kristall fokussiert und das UV-Licht der zweiten Harmonischen aufgenommen. Die SHG-Intensität als Funktion der Verzögerungszeit τ ist die sog. Intensitäts-Autokorrelation zweiter Ordnung [11]:

$$A_{AK}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau) dt \quad . \quad (2.4)$$

Anhand Glg. (2.4) ist zu sehen, dass Autokorrelationen immer bezüglich τ symmetrisch sind. Aufgrund dieser Symmetrie ist nur eine begrenzte Schlussfolgerung auf die Pulsform möglich, da mehrere Pulsformen die gleiche Autokorrelation ergeben können.

Somit muss eine Form des Laserpulses angenommen werden, um die Dauer des Pulses aus seiner Autokorrelation bestimmen zu können. Für einen transformlimitierten oder linear gechirpten Puls kann z.B. eine Gauß- oder eine $sech^2$ -Form angenommen werden. Die Pulsdauer Δt kann dann durch das bekannte Verhältnis von gemessener Halbwertsbreite (FWHM) der Autokorrelation $\Delta\tau$ und der des Pulses bestimmt werden. In Tabelle 2.1 sind mögliche Intensitätsprofile mit den zugehörigen Umrechnungsfaktoren aufgelistet.

Kreuzkorrelation

Der Unterschied zwischen einer Kreuzkorrelation und einer Autokorrelation besteht darin, dass der zu messende Puls nicht mit sich selbst, sondern mit einem ungeformten Referenzpuls abgetastet wird. Beide Pulse werden nicht-kollinear zeitlich und räumlich in einem BBO-Kristall (β -BaB₂O₄; Bariumborat) überlagert und das entstehende frequenzverdoppelte Signal wird in Abhängigkeit der Verzögerungsstrecke detektiert. Bei diesem Aufbau wird der Referenzpuls gegenüber dem geformten Laserpuls zeitlich verschoben.

Das frequenzverdoppelte Kreuzkorrelationssignal liegt in Richtung der Winkelhalbierenden des Winkels, der von den einfallenden Strahlen gebildet wird, und ist räumlich von der Grundwellenlänge getrennt. Das vom Photomultiplier gemessene Signal ergibt sich zu [11, 15]

$$A_{KK}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_T(t) I_R(t - \tau) dt \quad , \quad (2.5)$$

wobei I_T der Intensität des geformten Testpulses und I_R der Intensität des ungeformten Referenzpulses entspricht.

Die Faltung des geformten Pulses mit dem Referenzpulses führt zu einer Verschmierung der Pulsstruktur. Jedoch bleiben die zeitlichen Abstände der Subpulse unverändert [20]. Für Testpulse, die zeitlich deutlich länger sind als der verwendete Referenzpuls, entspricht die Kreuzkorrelation in erster Näherung dem zeitlichen Intensitätsprofil der Pulsform selbst. Durch eine Aufnahme des XFROGs eines Laserpulses kann mehr Information über den Phasenverlauf des Pulses gewonnen werden als bei alleiniger Aufnahme der Kreuzkorrelation.

XFROG

XFROG ist die Abkürzung für Cross-Correlation Frequency Resolved Optical Gating, welches eine frequenz aufgelöste Intensitäts-Kreuzkorrelation ist. Die Methode wird auch STRUT (Spectrally and Temporally Resolved Up-conversion Technique) genannt [21, 22, 23].

Das Signal wird wie bei einer Kreuzkorrelation in einem BBO-Kristall erzeugt, aber zusätzlich anschließend in einem Spektrometer spektral aufgelöst. Das Spektrometer wird in kleinen Schritten $\Delta\lambda$ durchfahren und für jedes $\lambda = \lambda_0 \pm n \Delta\lambda$ eine Kreuzkorrelationsspur aufgenommen. Die Aneinanderreihung dieser Kreuzkorrelationen liefert ein zweidimensionales Array, das XFROG-Spektrogramm, bei dem die Wellenlänge über die Verzögerungsstrecke aufgetragen wird. Das XFROG-Spektrogramm ist proportional zum Betragsquadrat des Kreuzkorrelationspektrums [24]:

$$I_{XFROG}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{KK}(t, \tau) e^{i\omega t} dt \right|^2 \quad , \quad (2.6)$$

hierbei ist ω die Zentralwellenlänge und für $E_{KK}(t, \tau)$ gilt

$$E_{KK}(t, \tau) \propto E_T(t) \cdot E_R(t - \tau) \quad . \quad (2.7)$$

Phasenanalysen komplexer XFROG-Spektrogramme werden mit einem Phase-Retrieval-Algorithmus [24] vorgenommen.

2.2 Formung von fs-Pulsen

Die Formung von fs-Pulsen ist im Gebiet der kohärenten Kontrolle von großem Interesse, da mit Hilfe von genau auf den gewünschten Prozess hin optimal geformten Laserpulsen eine Steuerung von molekularen Prozessen erreicht werden kann. Dieses Unterkapitel gibt einen kurzen Abriß über die theoretische Beschreibung geformter Pulse und zeigt die Möglichkeiten der Laserpulsformung mit einem Pulsmodulator auf.

2.2.1 Beschreibung geformter fs-Pulse

Das elektrische Feld eines Pulses ist über ein Fourierintegral mit dem Frequenzspektrum - und damit mit den longitudinalen Moden - verknüpft. Die Gleichungen 2.8 stellen den Zusammenhang der komplexen Feldstärken des elektrischen Feldes in Abhängigkeit von der Zeit und Frequenz dar [11]

$$\begin{aligned} \tilde{E}(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt \\ E(t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad . \end{aligned} \quad (2.8)$$

Aus den statistischen Standardabweichungen der Dauer und der spektralen Breite eines Pulses [11]:

$$\langle t \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} t |E(t)|^2 dt}{\int_{-\infty}^{\infty} |E(t)|^2 dt} \quad ; \quad \langle \Delta\omega^2 \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \omega^2 |\tilde{E}(\omega)|^2 d\omega}{\int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{E}(\omega)|^2 d\omega} \quad (2.9)$$

folgt die Ungleichung

$$\Delta t \Delta\omega \geq \frac{1}{2} \quad . \quad (2.10)$$

Ist die Ungleichung für einen Laserpuls erfüllt, ist der Laserpuls transform-limitiert. Eine Gauß-Form im Zeit- und Frequenzraum kann nur erfüllt werden, wenn die oben genannte Ungleichung dem Gleichheitszeichen genügt. Für jedes gegebene Spektrum gibt es jeweils eine Pulsform mit der kürzesten Pulsdauer.

Eine Umformung der Ungleichung (2.10) in die Messgröße $\Delta\nu$, ergibt

$$\Delta\nu \Delta t \geq K \quad . \quad (2.11)$$

K ist eine Konstante und entspricht z.B. bei einem Gauß-förmigen Puls 0.441 (s. Tabelle 2.1).

Soll ein Laserpuls geformt werden, bedeutet dies die Formung des zeitlichen Intensitäts- und Phasenverlaufs, welches durch Modulation des Laserfeldes im Frequenzraum erreicht werden kann.

Wird beim Durchgang eines Pulses durch ein transparentes Medium der Brechungsindex zeitabhängig, so wird die zeitliche Phase moduliert [11, 15]. Das Spektrum wird ohne Veränderung der zeitlichen Form des Pulses geändert. Eine Modulation der spektralen Phase führt hingegen aufgrund von Dispersion zu einer Veränderung der Pulsform ohne Veränderung des Pulsspektrums. Eine unabhängige Modulation sowohl der zeitlichen Form als auch der zeitlichen Phase kann durch Manipulation der Phase und Amplitude im Frequenzraum und anschließender Transformation in den Zeitraum erreicht werden.

Hierfür schauen wir uns das elektrische Feld des Pulses, gegeben durch Glg. (2.8), genauer an. Da $\tilde{E}(\omega)$ komplex ist und für positive sowie negative Frequenzen Werte annimmt, wird das folgende komplexe Feld eingeführt:

$$E^+(t) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad . \quad (2.12)$$

Für das komplexe elektrische Feld $\tilde{E}(\omega)$ gilt hingegen [15]:

$$\tilde{E}^+(\omega) = |\tilde{E}(\omega)| e^{i\Phi(\omega)} = \begin{cases} \tilde{E}(\omega) & \text{für } \omega \geq 0 \\ 0 & \text{für } \omega < 0 \end{cases} \quad . \quad (2.13)$$

Mit den entsprechenden Größen $E^-(t)$ und $E^-(\omega)$ für negative Frequenzen folgt nun das reelle elektrische Feld $E(t) = E^+(t) + E^-(t)$ mit der komplexen Fouriertransformierten $\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}^+(\omega) + \tilde{E}^-(\omega)$, wobei $E^-(t)$ keine physikalische Meßgröße ist und daher keinerlei physikalischen Sinn besitzt.

Phasenmodulation im Zeitraum

Das zeitabhängige komplexe elektrische Feld $E^+(t)$ kann in eine Einhüllende und einen Phasenfaktor zu

$$E^+(t) = F(t) e^{i\Gamma(t)} \quad (2.14)$$

zerlegt werden [25]. Hierbei entspricht die Funktion $F(t)$ der Einhüllenden und $\Gamma(t)$ dem Phasenfaktor. Für Pulse, deren Halbwertsbreite $\Delta\omega$ sehr viel kleiner als

die Zentralwellenlänge ω_0 ist ($\Delta\omega \ll \omega_0$), gilt, dass $\Gamma(t)$ eine Funktion der Phase $\varphi(t)$ und der Trägerfrequenz ω_0 ist [15]. Daher folgt für Glg. (2.14)

$$E^+(t) = F(t) e^{i\omega_0 t} e^{i\varphi(t)} \quad . \quad (2.15)$$

Die zeitliche Ableitung des Phasenfaktors $\Gamma(t)$ ergibt eine zeitabhängige Frequenz [15]

$$\frac{d}{dt}\Gamma(t) = \omega(t) = \omega_0 + \frac{d}{dt}\varphi(t) \quad . \quad (2.16)$$

Eine genauere Analyse leistet die Taylorentwicklung der Phase im Zeitraum. Diese Entwicklung wird auch Chirpentwicklung genannt und gibt Aufschluss über den Phasenverlauf im Zeitraum. Die Taylorentwicklung um t_0 ergibt:

$$\varphi(t) = a_0 + a_1(t - t_0) + \frac{1}{2}a_2(t - t_0)^2 + \dots \quad (2.17)$$

mit den Koeffizienten $a_n = \frac{d^n \varphi(t)}{dt^n} \Big|_{t_0}$.

$a_0 = \varphi(t_0)$ entspricht der konstanten Phase des elektrischen Feldes und bestimmt die Position der Oszillation relativ zur Einhüllenden. Die erste Ableitung der Phase an der Stelle t_0 entspricht der Verschiebung der Trägerfrequenz ω_0 und die zweite Ableitung $a_2 = \frac{d^2 \varphi(t)}{dt^2} \Big|_{t_0}$ beschreibt einen linearen Chirp, wobei die Änderung der momentanen Frequenz $\omega(t) = \omega_0 + a_2(t - t_0)$ ist. Für einen Koeffizienten $a_2 > 0$ ist der Laserpuls positiv gechirpt, d.h. die Frequenz steigt mit der Zeit an. Ist der Koeffizient kleiner als Null nimmt die Frequenz mit der Zeit ab und man spricht von einem negativen Chirp. Die Koeffizienten a_n für $n > 2$ geben den Chirp ($n - 1$)-ter Ordnung an, deren Einheit fs^{-n} ist.

Phasenmodulation im Frequenzraum

Eine Phasenmodulation im Frequenzraum wird experimentell meist durch Dispersion in einem transparenten Medium realisiert, wobei das Pulsspektrum unverändert bleibt.

Eine lineare Phasenmodulation kann durch den zeitunabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ beschrieben werden. Beim Durchlaufen eines Pulses durch ein optisches Medium der Dicke d wird ein zusätzlicher Phasenterm [26] von

$$\Psi(\omega) = \frac{2\pi}{\lambda_0} n(\omega) d \quad , \quad (2.18)$$

erzeugt, welcher das elektrische Feld $\tilde{E}^+(\omega)$ moduliert. Bei diesem Prozeß dispergieren die einzelnen Frequenzkomponenten des Pulses und breiten sich mit unterschiedlicher Geschwindigkeit zueinander aus (GVD⁴). Eine Umformung des

⁴GVD = Group Velocity Dispersion; s. Kapitel 2.1.1.

Phasenterms in den Frequenzraum und eine anschließende Taylorentwicklung um die Zentralwellenlänge ω_0 ergibt [27]

$$\Psi(\omega) = b_0 + b_1(\omega - \omega_0) + b_2(\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (2.19)$$

mit den Koeffizienten $b_n = \frac{1}{n!} \frac{d^n \Psi(\omega)}{d\omega^n} \Big|_{\omega_0}$. Der erste Term des modulierten Phasenfaktors ist konstant und bestimmt die Position der Lichtschwingung zu ihrer Einhüllenden, d.h. b_0 ist die relative zeitliche Phase. Der zweite Koeffizient $b_1 = \frac{d\Psi(\omega)}{d\omega} \Big|_{\omega_0}$ ist nach einer Fouriertransformation in den Zeitraum die Verschiebung des Gesamtpulses in der Zeit, die sog. Gruppenverzögerung. Die Parameter b_n für $n \geq 2$ definieren die Chirpparameter im Frequenzraum, wobei b_2 dem linearen Chirp entspricht.

Im Frequenzraum kann ebenso wie im Zeitraum das elektrische Feld des einlaufenden Pulses durch eine Einhüllende und einen Phasenfaktor beschrieben werden:

$$\tilde{E}_{ein}^+(\omega) = S(\omega) e^{-i\varphi(\omega)} \quad . \quad (2.20)$$

Für einen ungechirpten Puls ergibt sich der Phasenfaktor zu $\varphi(\omega) = \varphi_0 + \omega_0 t$. Die Einhüllende $S(\omega)$ ist eine Funktion des experimentell bestimmten Frequenzspektrums $I(\omega)$:

$$S(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\epsilon_0}} \sqrt{I(\omega)} \quad . \quad (2.21)$$

Durchläuft nun der Puls, beschrieben durch Glg. (2.20), das modulierende optische Element, welches durch eine komplexe Funktion $H(\omega) = R(\omega) e^{-i\Psi(\omega)}$ beschrieben wird, so folgt für das auslaufende Laserfeld [15]

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{aus}^+(\omega) &= H(\omega) \tilde{E}_{ein}^+(\omega) \\ &= R(\omega) e^{-i\Psi(\omega)} \tilde{E}_{ein}^+(\omega) \quad . \end{aligned} \quad (2.22)$$

$R(\omega)$ ist hierbei der spektrale Amplitudenfilter und $\Psi(\omega)$ die spektrale Phasenverzögerung der jeweiligen Frequenzkomponente. An dieser Stelle kann angenommen werden, dass sich $R(\omega)$ über das gesamte Pulsspektrum nicht ändert und somit als konstant angesehen werden, d.h. $R(\omega) = R_0$. Das auslaufende elektrische Feld in Abhängigkeit von der Zeit ist dann durch

$$E_{aus}^+(t) = \frac{1}{2\pi} R_0 \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}_{ein}^+(\omega) e^{-i\Psi(\omega)} e^{i\omega t} d\omega \quad (2.23)$$

bestimmt.

Das Einsetzen der Glg. (2.19) für $\Psi(\omega)$ führt den Ausdruck in die Form des auslaufenden elektrischen Feldes nach dem modulierenden Medium über [15]:

$$E_{aus}^+(t) = \frac{1}{2\pi} R_0 e^{-ib_0} e^{i\omega_0 t} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}_{ein}^+(\omega) e^{-i\sum_2^{\infty} b_n(\omega-\omega_0)^n} e^{i(\omega-\omega_0)(t-b_1)} d\omega \quad . \quad (2.24)$$

2.2.2 Der Pulsformer

Diese theoretisch diskutierten Modulationen im Frequenz- und Zeitraum eines Laserpulses sollen nun in einen experimentell verwirklichteten Aufbau umgesetzt werden: Den Pulsformer. Der Pulsformer, basierend auf Flüssigkristallen, kann die Phase und Amplitude eines fs-Pulses simultan und unabhängig modulieren. Um dies zu erreichen, besteht er aus zwei Flüssigkristallmasken, die sich in der Fourierebene eines Null-Dispersions-Kompressors befinden. Der Aufbau des Kompressors wird vorgestellt, bevor ich mich mit den Flüssigkristallen im Allgemeinen und dem Pulsmodulator mit seiner Phasen- und Amplitudenmodulation im Näheren beschäftige.

Die Experimente dieser Arbeit wurden mit zwei Pulsformern durchgeführt, die sich in der Anzahl ihrer Pixel in den Flüssigkristallmasken des Pulsmodulators unterscheiden, jedoch nicht in ihrer prinzipiellen Funktionsweise. Auf die apparativen Details werde ich daher in den Ergebniskapiteln eingehen.

2.2.2.1 Null-Dispersions-Kompressor

Der Null-Dispersions-Kompressor ist ein symmetrischer Linsen- und Gitterkompressor, der die einzelnen Frequenzkomponenten eines fs-Pulses aufspaltet. In dem Kompressoraufbau (s. Abb. 2.2) befinden sich die Linsen und Gitter jeweils im Abstand der Linsenbrennweite f zueinander. Er wird deshalb auch 4f-Aufbau genannt.

Der große Vorteil dieses Aufbaus ist, dass er keinen Chirp erzeugt. Alle Frequenzkomponenten besitzen dieselbe optische Weglänge und es entsteht keine Phasenverschiebung des Pulsspektrums.

Der Abstand f des ersten Gitters zur ersten Linse gewährleistet, dass die divergenten Strahlen parallelisiert werden. Die parallelen Strahlen der einzelnen Spektralkomponenten werden dann in das Zentrum des 4f-Aufbaus fokussiert⁵, wo die Amplituden- und Phasenmodulation durch den Pulsmodulator stattfindet. In der Fourierebene (Zentrum des Null-Dispersions-Kompressors) sind die einzelnen Frequenzkomponenten nahezu räumlich getrennt, währenddessen sie ausserhalb aufgrund ihres Strahldurchmessers überlappen. Der Strahldurchmesser der einzelnen Spektralkomponenten ist abhängig von dem Strahldurchmesser vor dem ersten Gitter und der Brennweite der Linse.

⁵Die Brennebene liegt in der Fourierebene des Aufbaus.

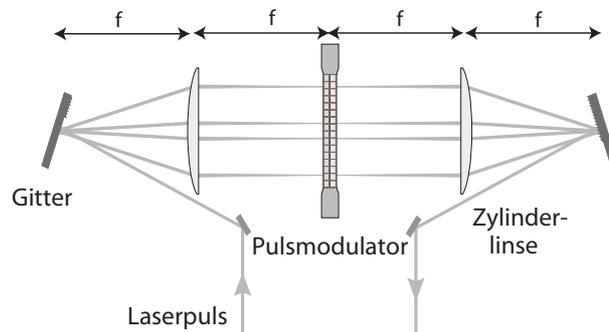


Abbildung 2.2: Der Null-Dispersions-Kompressor des Pulsformers besteht aus zwei Gittern, zwei Linsen und dem Pulsmodulator. In der $4f$ -Anordnung sind alle Komponenten in einem Abstand f , der Brennweite der Linsen, voneinander entfernt. Der Pulsmodulator befindet sich in der Fourierebene.

Da der Aufbau symmetrisch ist, kann ihn der Puls ohne Filtermaske ungechirpt verlassen. Eine ausführlichere Darstellung des Null-Dispersions-Kompressors findet sich in [28].

2.2.2.2 Flüssigkristalle

Flüssigkristalle bestehen aus langgestreckten Molekülen, die eine Ordnung in der Orientierung, aber nicht in der räumlichen Position, wie z.B. in einem Kristall, besitzen. Dieser Aggregatzustand wird flüssigkristallin genannt [29]. Ein großer Vorteil von Flüssigkristallen besteht darin, dass sie in einem großen Temperaturbereich zum Einsatz gebracht werden können, ohne dass eine Temperaturkontrolle notwendig ist.

Es wird zwischen verschiedenen Phasen der Flüssigkristalle unterschieden: Der nematischen, smektischen, cholesterischen und kolumnaren. Sie differieren in der Anordnung der Moleküle im Zellvolumen [29]. Die nematische Phase ist der einfachste Typ flüssigkristalliner Phasen und kann durch ein angelegtes elektrisches Feld reorientiert werden. Nematische Flüssigkristalle unterscheiden in ihrer Wirkungsweise nicht das Vorzeichen der angelegten Spannung.

Für Pulsmodulatoren werden nematische Flüssigkristalle verwendet, die zwischen zwei Glasplatten gehalten werden. Die Ausrichtung der Flüssigkristalle wird dadurch erreicht, dass die Innenseiten der Glasplatten gebürstet sind und die Kristalle sich entlang der entstandenen Furchen ausrichten. Eine Flüssigkristallzelle wirkt auf Licht wie ein doppelbrechender Kristall, wobei die optische Achse (sog. schnelle Achse) in Richtung der Molekülachse liegt.

2.2.2.3 Funktionsweise des Pulsmodulators

Senkrecht zur schnellen Achse polarisiertes Licht wird beim Eintritt in den Pulsmodulator gebrochen. Der wirkende Brechungsindex $n(\Theta)$ ist veränderbar durch die Drehung der Flüssigkristallmoleküle um den Winkel Θ . Dieser liegt zwischen der optischen Achse der Flüssigkristallmoleküle und der Senkrechten. Willkürlich polarisiertes Licht wird, wie in jedem doppelbrechenden Kristall, in einen Strahl mit senkrechter und einen mit paralleler Polarisation bzgl. der optischen Achse zerlegt. Diese Strahlen werden ordentlicher und außerordentlicher Strahl genannt. Die in diesem Absatz erklärten Aufspaltungen des Lichts, die Ausrichtung der Kristalle und der Winkel Θ werden in Abb. 2.3 veranschaulicht.

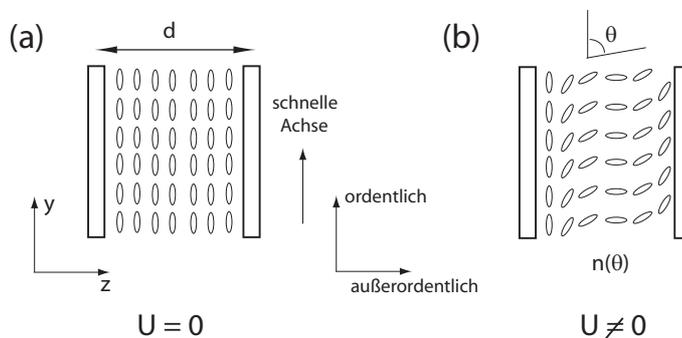


Abbildung 2.3: Diese Abbildung veranschaulicht das Prinzip einer Flüssigkristallmaske. Beim Anlegen einer Spannung drehen sich die Flüssigkristalle (b) und das einfallende Licht wird in zwei Strahlen aufgespaltet, deren Polarisation in die ordentliche und außerordentliche Richtung weisen.

Die Variation des Winkels Θ der Flüssigkristallmoleküle kann durch Anlegen einer Spannung an die Kristalle erreicht werden. Hierbei wird der außerordentliche Brechungsindex $n(\Theta)$ verändert, während der ordentliche Brechungsindex n_0 gleich bleibt. Es resultiert eine Phasenretardierung des außerordentlichen Strahls gegenüber dem ordentlichen von (s. Glg. (2.18)):

$$\Gamma = 2\pi [n(\Theta) - n_0] \frac{d}{\lambda} . \quad (2.25)$$

Hierbei ist d die Schichtdicke der Flüssigkristallzelle und λ die Wellenlänge des einfallenden Laserpulses.

Um eine Drehung der Flüssigkristalle zu erreichen, muss - wie bereits schon erwähnt - eine Spannung angelegt werden. Da diese in z-Richtung anliegt, müssen die verwendeten Elektroden transparent sein. Der Elektrodenfilm bei den verwendeten Pulsmodulatoren besteht aus Indium-Zinn-Oxyd (ITO; Indium Tin Oxide) und bedeckt die Innenseite einer Glasplatte. Der ITO-Film ist in n Pixel aufgeteilt, wobei alle Pixel unabhängig voneinander steuerbar sind (s. Abb. 2.4).

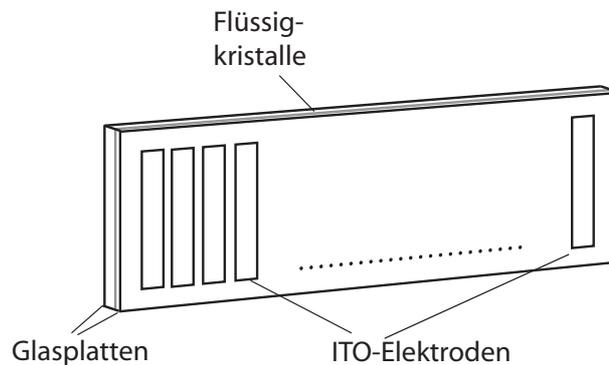


Abbildung 2.4: Eine Maske des Pulsmodulators besteht aus Flüssigkristallen, die zwischen zwei Glasplatten gehalten werden. Die Spannung wird durch einen ITO-Film an die Kristalle angelegt, wobei sich die k ITO-Elektroden an der Innenseite einer Glasplatte befinden.

Der Pulsmodulator besteht aus zwei Flüssigkristallmasken zur Modulation von Phase und Amplitude [30]. Beide Masken sind durch ITO-Filme unabhängig voneinander steuerbar. Des Weiteren befindet sich auf jeder Seite des Modulators ein Polarisator (s. Abb. 2.5 (a)).

Vor dem Eingang des Pulses in den Aufbau des Pulsformers befindet sich ggf. eine $\frac{\lambda}{2}$ -Platte zur Drehung der senkrechten Polarisation auf die Horizontale. Der erste Polarisator des Pulsformers selektiert nur das horizontal polarisierte Licht und die beiden Flüssigkristallmasken garantieren eine simultane und auch unabhängige Phasen- und Amplitudenmodulation des Lichtfeldes. Die Flüssigkristalle der beiden Masken sind hierzu orthogonal zueinander angeordnet und stehen in einem 45° -Winkel zur Polarisation des einfallenden Lichts (s. Abb. 2.5 (b)). Die Masken verhalten sich wie elektrisch variable λ -Platten.

Im Folgenden behandle ich die Phasen- und Amplitudenmodulation durch Flüssigkristallmasken theoretisch.

2.2.2.4 Phasen- und Amplitudenmodulation

Das einfallende Licht wird in zwei Polarisationskomponenten in Richtung der schnellen Achsen beider Flüssigkristallmasken aufgespaltet. Die Phasenverschiebung des Frequenzbündels, das durch den k -ten ITO-Streifen tritt, ist für eine Flüssigkristallmaske nach Glg. (2.25):

$$\Delta\Phi_k(V) = 2\pi \Delta n(V) \frac{d}{\lambda} \quad , \quad (2.26)$$

wobei V der angelegten Spannung entspricht.

In der ersten Maske kommt es also zu einer Phasenretardierung $\Delta\Phi^{(1)}$ in Richtung der außerordentlichen Achse. In der zweiten Flüssigkristallmaske findet

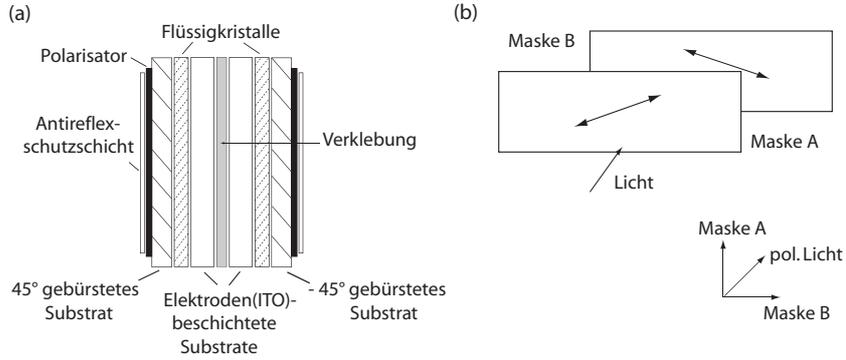


Abbildung 2.5: (a) zeigt den Aufbau des Flüssigkristallmodulators mit den beiden Flüssigkristallmasken, den ITO-Filmen und den Polarisatoren. Dabei befinden sich die schnellen Achsen der beiden Flüssigkristallmasken im rechten Winkel zueinander (b) und bilden mit der Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts einen 45° Winkel.

die Phasenretardierung $\Delta\Phi^{(2)}$ in Richtung der Kristallachse B statt. Dort kann die Phasenretardierung der ersten Maske ausgeglichen werden, indem die Polarisationsänderung und damit die Abschwächung rückgängig gemacht wird, wobei sich insgesamt eine Phasenverschiebung ergibt.

Die resultierende Phasenverschiebung ergibt sich durch den Mittelwert der beiden Phasenretardierungen $(\Delta\Phi^{(1)} + \Delta\Phi^{(2)})/2$, wohingegen die Modulation der Amplitude durch den Cosinus der Differenzretardierung $(\Delta\Phi^{(1)} - \Delta\Phi^{(2)})$ bestimmt wird. Nach dem hinteren Polarisator kann das austretende elektrische Feld des k-ten Pixels durch

$$\begin{aligned}
 E_k^{aus} &= E_k^{ein} \cdot \overbrace{e^{(\Delta\Phi^{(1)} + \Delta\Phi^{(2)})/2}}^{\text{Phasenmodulation}} \cdot \overbrace{\cos(\Delta\Phi^{(1)} - \Delta\Phi^{(2)})}^{\text{Amplitudenmodulation}} \\
 &= E_k^{ein} R_k
 \end{aligned} \tag{2.27}$$

mit $R_k = e^{i\Psi_k(\omega)} \cdot \sqrt{T_k(\omega)}$ beschrieben werden [27, 31]. $T_k(\omega)$ ist hierbei die Transmission des k-ten Pixels und $\Psi_k(\omega)$ der Phasenfilter. Für $T_k(\omega) = 1$ geschieht eine reine Phasenmodulation des Laserpulses. Dabei muss die Cos-Funktion in Glg. (2.27) $\cos(\Delta\Phi^{(1)} - \Delta\Phi^{(2)}) = 1$ entsprechen.

Hingegen unterliegt der Laserpuls einer reinen Amplitudenmodulation, wenn $\Psi_k(\omega) = 0$ gilt, wobei immer eine Phasenmodulation durch die erste Flüssigkristallmaske beinhaltet ist, die jedoch durch die zweite Maske kompensiert wird.

Im physikalischen Sinn bedeutet eine Phasenmodulation das Ändern der optischen Weglänge durch Anlegen einer Spannung an die Flüssigkristalle. Bei der Amplitudenmodulation wird die Polarisation des Lichts durch Anlegen einer

Spannung geändert. Diese Polarisationsänderung resultiert in einer Amplitudenmodulation aufgrund des Polarisators hinter den Flüssigkristallmasken.

Vor der exakten Modulation der Amplitude und Phase eines Laserpulses, muss eine Spannungs-Kalibration durchgeführt werden. D.h. jede Phasenverschiebung muss mit einer Spannung korreliert werden. Dies wird durch eine hochaufgelöste Graustufen-Phasenmodulation bei Variation der Spannung erreicht.

Eine Einschränkung des Flüssigkristallmodulators ist die sog. Nyquist-Grenze. Das von Nyquist aufgestellte Theorem [32] besagt, dass jede periodische Funktion mindestens durch zwei Stützpunkte pro Periode dargestellt werden muss, damit ihre Eindeutigkeit gewährleistet ist. Zwei Stützpunkte pro Periode, d. h. pro 2π , bedeuten bei unserem Pulsmodulator, dass ein Phasenhub von $\Delta\Psi = 2\pi$ über mindestens 2 Pixel verlaufen muss. Daraus folgt als Bedingung für die Phasendifferenz zweier benachbarter Pixel:

$$\delta\Psi < \pi \quad . \quad (2.28)$$

Die Einschränkung durch die Nyquist-Grenze ist nur aufgrund der Diskretisierung der Phasenfunktion durch die Einteilung in k Pixel vorhanden.