

Kapitel 3

Erzeugung und Vermessung ultrakurzer Lichtimpulse

Im folgenden Abschnitt soll auf die verwendeten Laserquellen eingegangen werden. Einer allgemeinen Darstellung der Erzeugung ultrakurzer Laserimpulse auf der Femtosekunden-Zeitskala und der Methoden zur Frequenzkonversion folgt eine kurze Beschreibung der Aufbauten zur Vermessung der Laserparameter. Danach werden spezielle in den Messungen verwendete Frequenzkonversionstechniken vorgestellt. Im Anschluss erfolgt eine detaillierte Darstellung der optischen Aufbauten, wobei das Augenmerk weniger auf den kommerziell erhältlichen Bestandteilen, vielmehr auf den spezifischen Erweiterungen der Systeme liegt.

3.1 Erzeugung ultrakurzer Lichtimpulse

In den letzten Jahren haben sich Oszillatoren basierend auf Ti:Saphir (mit Ti^{3+} Ionen dotiertes Al_2O_3) als aktives Medium zur Erzeugung von Femtosekunden-Laserimpulsen durchgesetzt [Koe96, DR96]. Dabei zeichnen das sehr breite vibronische Fluoreszenzband (670 nm – 1070 nm), welches das simultane Anschwingen sehr vieler longitudinaler Moden erlaubt, sowie die hervorragenden Materialeigenschaften von Saphir (hohe thermische Leitfähigkeit und mechanische Festigkeit) dieses Material aus. Die Verkoppelung dieser longitudinalen Moden erfolgt passiv durch “Kerr Lens Mode-locking” (KLM) innerhalb des Ti:Saphir Kristalls, sowie durch eine geeigne-

te Kontrolle der optischen Eigenschaften (GVD: Gruppengeschwindigkeitsdispersion, Astigmatismus) des Resonators. Den einfachsten geometrischen Aufbau stellt hier das Z-Design dar: während sich das laseraktive Material zwischen zwei stark gekrümmten Faltungsspiegeln befindet, erfolgt die Dispersionskontrolle mit Hilfe einer speziellen Prismenanordnung, welche negative GVD generiert und damit die positive GVD – verursacht durch den Kristall und die optischen Elemente im Resonator – kompensiert. Auch die durch den Kerr-Effekt selbst erzeugte Dispersion höherer Ordnung (TOD: Dispersion dritter Ordnung) lässt sich damit ausgleichen. Aufgrund seiner Robustheit findet ein derartiger Aufbau zur Zeit in sehr vielen Systemen Anwendung, wobei im kommerziellen Bereich zur Initialisierung und weiteren Stabilisierung des Impulsbetriebes akustooptische Modulatoren (AOM) verwendet werden. Mit derartigen Systemen werden Laserimpulse mit Pulsdauern um 50 fs erreicht, wobei die Ausgangsleistungen um 1 W bei Repetitionsraten von 80 MHz liegen. Zur Erzeugung kürzerer Laserimpulse reicht die so erreichte Dispersionskontrolle bis zur dritten Ordnung nicht mehr aus, hier finden speziell beschichtete dielektrische Laserspiegel, sogenannte “Chirped Mirrors” Anwendung, welche einerseits keine zusätzliche GVD in das System einbringen und andererseits eine Kompensation höherer Ordnungen der Dispersion erlauben. Durch die Kombination von Prismen und “Chirped Mirrors” zur Dispersionskontrolle sind Impulsdauern um 5 fs erzeugt worden [MKC99]. In Kombination mit einer Resonatorgeometrie (X-Design), welche zusätzlich sphärische Aberrationen (Koma) minimiert, lassen sich Impulsdauern von unter 10 fs ohne die Verwendung von Prismen verwirklichen [SLS95]. Sind Impulsdauern um 150 fs ausreichend, so werden in jüngster Zeit auch sehr kompakte frequenzverdoppelte Er:Faserlaser eingesetzt, welche allerdings nicht abstimmbare sind.

Zur weiteren Verstärkung der Laserimpulse bedient man sich der Technik der “Chirped Pulse Amplification” (CPA)[SM85]. Dabei werden Impulse mit hoher Spitzenleistung zunächst mit Hilfe optischer Gitter zeitlich gestreckt und danach verstärkt. Dadurch können Beschädigungen im Verstärkermaterial und an optischen Komponenten durch zu hohe Spitzenintensitäten vermieden werden. Allgemein existieren zwei Varianten der CPA-Technik: In regenerativen Verstärkern überträgt der zeitlich verlängerte breitbandige Impuls seine spektralen Eigenschaften an einen weiteren Laserre-

sonator (“seeding”), welchen er mehrere Male bis zum Abbau der Inversion im Verstärkermedium durchläuft. In Vielfachdurchlauf- oder Multipass-Verstärkern durchläuft ein Einzelimpuls das Verstärkermedium mehrfach auf leicht unterschiedlichen Wegen. Da die erreichbare Ausgangsenergie bei regenerativen Verstärkern mit einer einfachen linearen Resonatorgeometrie auf etwa 1 mJ begrenzt ist, findet bei Lasersystemen, die höhere Energien liefern sollen, eine Kombination aus beiden Varianten Anwendung. Abbildung 3.1 verdeutlicht schematisch den Aufbau eines derartigen Systems.

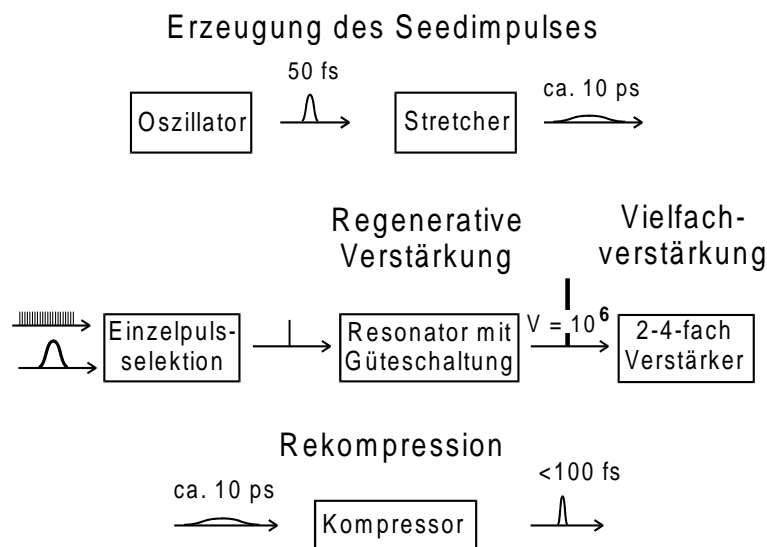


Abb. 3.1: Schematischer Aufbau eines Lasersystems mit regenerativem Verstärker

Zur Ein- bzw. Auskopplung in einen regenerativen Verstärker findet eine Kombination aus einer Pockelszelle und einem Polarisator Verwendung. Da diese Elemente allerdings ein komplexes Dispersionsverhalten aufweisen und bei jedem Resonatorumlauf zweifach durchlaufen werden, verursachen sie Phasenstörungen höherer Ordnung, welche nicht ohne Weiteres kompensiert werden können. Daher wird diese Technik nur für Impulsdauern bis etwa 50 fs eingesetzt. Sind kürzere Impulsdauern erwünscht, finden reine Multipass-Verstärker Verwendung. Da bei einer derartigen Verstärker-Konfiguration (siehe Abbildung 3.2) die optischen Schaltelemente nur ein Mal durchlaufen werden, können nach der Kompression durch optische Gitter oder Prismen Impulsdauern unter 25 fs erreicht werden.

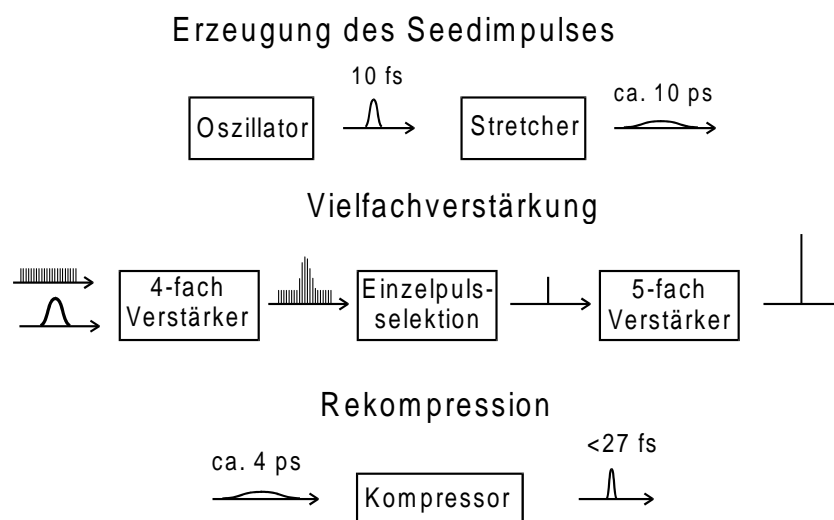


Abb. 3.2: Schematischer Aufbau eines Lasersystems mit Multipass-Verstärker

3.2 Methoden der Frequenzkonversion

Die im Abschnitt 3.1 beschriebenen Techniken liefern Laserimpulse bei einer Wellenlänge um 800 nm mit Bandbreiten bis zu 40 nm. Da die in dieser Arbeit genutzte Strahlung aber einen weiten Spektralbereich, angefangen vom Mittleren Infrarot (MIR) bis zum Vakuum Ultraviolett (VUV) umfasst, war die Konversion dieser Wellenlänge mit der Hilfe nichtlinearer optischer Methoden [Sut96, Boy92] notwendig. Da die Grundlagen ausführlich in anderen Arbeiten erläutert wurden [Kit97, Rot00], soll dieser Abschnitt hauptsächlich zur Einführung der verwendeten Terminologie dienen.

Betrachtet man die Wechselwirkung zwischen Licht und einem elektrisch neutralen dielektrischen Medium, so besteht bei kleinen Feldstärken ein linearer Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feld \vec{E} und der im Medium induzierten Polarisation \vec{P} :

$$\vec{P}^{(1)} = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(1)} \cdot \vec{E} \quad (3.1)$$

mit der elektrischen Konstante ε_0 und der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$. Im Allgemeinen ist die Suszeptibilität eine komplexe Größe, deren Realteil die Dispersion (und damit den Brechungsindex) und deren Imaginärteil die Absorption des Mediums widerspiegelt. Im folgenden soll davon ausgegangen

werden, dass die optischen Felder nicht mit Resonanzen zusammenfallen und die Antwort des Mediums instantan dem elektrischen Feld folgt.

Bei hohen Feldstärken, wie sie in einem Ultrakurzpulslaser auftreten, kann die Polarisation dem elektrischen Feld nicht mehr linear folgen. Üblicherweise wird dann die Polarisation als Taylor-Entwicklung nach dem elektrischen Feld dargestellt:

$$\vec{P} = \sum_{i=1}^{\infty} \vec{P}^i \quad (3.2)$$

mit

$$\vec{P}^{(2)} = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(2)} : \vec{E} \vec{E} \quad (3.3)$$

$$\vec{P}^{(3)} = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(3)} : \vec{E} \vec{E} \vec{E} \quad (3.4)$$

⋮

Dabei stellen die (nichtlinearen) Suszeptibilitäten i -ter Ordnung $\chi^{(i)}$ Tensoren $(i+1)$ -ten Ranges dar und verknüpfen die Vektorkomponenten des elektrischen Feldes und der Polarisation.

Häufig wird in der nichtlinearen Optik das elektrische Feld als eine Überlagerung quasi-monochromatischer, quasi-ebener Wellen dargestellt:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{E}_n(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{\mathcal{E}}_n(\vec{r}, t) \exp[i(\vec{k}_n \vec{r} - \omega_n t)] + c.c. \quad (3.5)$$

mit den im Vergleich zur Trägerfrequenz ω_n langsam veränderlichen Amplituden $\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t)$ und den Wellenvektoren:

$$k_n = n(\omega_n) \cdot \omega_n / c. \quad (3.6)$$

c ist hier die Vakuumlichtgeschwindigkeit, $c.c.$ das Komplex-Konjugierte.

Da die Ausbreitung der elektromagnetischen Welle in einem nicht leitenden und nicht magnetischen Medium mit Hilfe der Wellengleichung

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} + \frac{1}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \cdot \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (3.7)$$

beschrieben werden kann, gilt für die induzierte Polarisation dementsprechend:

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}_n(\vec{r}, t) \exp[i(\vec{k}_n \vec{r} - \omega_n t)] + c.c. \quad (3.8)$$

Da die Polarisation einerseits nichtlineare Anteile enthält (3.2) und andererseits mit dem elektrischen Feld durch die Wellengleichung 3.7 verknüpft ist, entstehen auch beim elektrischen Feld neue Frequenzkomponenten.

Bei der Wechselwirkung von Laserstrahlung mit optischen Medien ohne Inversionszentrum treten $\chi^{(2)}$ als Prozesse niedrigster Ordnung auf. Besteht das gesamte elektrische Feld (3.5) aus zwei (monochromatischen) Wellen mit den Frequenzen ω_i und ω_j , so verfügt die nichtlineare Polarisation zweiter Ordnung (3.3) über Komponenten, die mit $2\omega_i$, $2\omega_j$, $\omega_i \pm \omega_j$ und gar nicht oszillieren (optische Gleichrichtung). Unter der im Allgemeinen eingehaltenen Konvention $\omega_1 \leq \omega_2 \leq \omega_3$ sind folgende Prozesse möglich:

- Summenfrequenzerzeugung (SFG) $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ unter Einstrahlung von ω_1 und ω_2 . Die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) $\omega_3 = 2\omega_1$ stellt einen Spezialfall für $\omega_2 = \omega_1$ dar.
- Differenzfrequenzerzeugung (DFG) $\omega_{1,2} = \omega_3 - \omega_{2,1}$ unter Einstrahlung von ω_3 und $\omega_{2,1}$.
- Tritt bei der Differenzfrequenzerzeugung zusätzlich eine Verstärkung von $\omega_{2,1}$ auf so spricht man von optisch-parametrischer Verstärkung (OPA). In diesem Falle wird die Welle bei ω_2 unverstärkt als Seedwelle, verstärkt als Signalwelle und die bei ω_1 als Idlerwelle bezeichnet. Wird nur ω_3 eingestrahlt und der Prozess startet aus dem Rauschen, so liegt optisch-parametrische Erzeugung (OPG) vor.

Während bei OPA im ungesättigten Fall sehr hohe Verstärkungen von mehreren Größenordnungen vorliegen können, stellt DFG einen Sonderfall mit einer Verstärkung von 1 dar. Für OPG sind sehr hohe Pumpintensitäten und/oder eine Resonatorkonfiguration notwendig. Der letzte Fall wird als optisch-parametrischer Oszillator (OPO) bezeichnet.

Das so erzeugte elektrische Feld ist seinerseits der Dispersionsrelation 3.6 unterworfen. Dies führt dazu, dass sich die die Polarisation treibende Welle und die erzeugte Welle mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten im Medium ausbreiten. Die Größe

$$\Delta \vec{k} = \sum_{n=1}^3 \vec{k}_n \quad (3.9)$$

beschreibt die Phasenbeziehung zwischen den Partialwellen. Dabei steht bei $\Delta \vec{k} = 0$ die erzeugte Welle in einer festen Phasenbeziehung zur nichtlinearen Polarisation und wird zunehmend verstärkt. Diese Bedingung ist allerdings in isotropen Medien aufgrund der normalen Dispersion nicht erfüllbar. Statt dessen steigt die Energie der erzeugten Welle bis zum Erreichen der Kohärenzlänge $L_c = \pi/\Delta k$ auf einen maximalen Wert und fällt bei $2L_c$ wieder auf Null.

Eine optimale Phasenanpassung kann allerdings durch die Verwendung anisotroper Medien und unterschiedlicher Polarisationen (siehe Anhang A.1) oder von Mischprozessen höherer Ordnung (3.4) realisiert werden. Die im Abschnitt 3.4.1 beschriebene Vierwellen-Differenzfrequenz-Mischung sowie die spektrale Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation stellen derartige $\chi^{(3)}$ -Prozesse dar.

Bei der Frequenzkonversion ultrakurzer Lichtimpulse muss insbesondere beachtet werden, dass derartige Strahlung eine große spektrale Bandbreite besitzt, das heißt, jeder kurze Impuls ist über die Fouriertransformation mit einem Kontinuum monochromatischer Wellen verbunden, welche ihrerseits der Dispersionsrelation gehorchen. Da die lineare Polarisation hauptsächlich für die Dispersion verantwortlich ist und die nichtlinearen Anteile nur als eine Störung zur gesamten induzierten Polarisation beitragen, werden im Allgemeinen die nichtlinearen Suszeptibilitäten höherer Ordnung bei der Betrachtung der Ausbreitung breitbandiger Impulse vernachlässigt. Entwickelt man den Wellenvektor k in eine Taylorreihe um die Trägerfrequenz ω_n

$$k(\omega) = k_n + \left(\frac{\partial k}{\partial \omega} \right)_{\omega_n} (\omega - \omega_n) + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_n} (\omega - \omega_n)^2 + \dots \quad (3.10)$$

und beachtet nur den linearen Anteil der Dispersion (3.6), so liefert die erste Ableitung das Inverse der Gruppengeschwindigkeit $(v_n)^{-1}$, mit der sich ein Impuls im Medium ausbreitet:

$$(v_n)^{-1} = \left(\frac{\partial k}{\partial \omega} \right)_{\omega_n} = \frac{1}{c} \left(\frac{\partial [n(\omega) \cdot \omega]}{\partial \omega} \right)_{\omega_n} = \frac{n(\omega_n)}{c} + \frac{\omega_n}{c} \left(\frac{\partial n}{\partial \omega} \right)_{\omega_n}. \quad (3.11)$$

Die zweite Ableitung wird Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) bezeichnet und beschreibt das Auseinanderlaufen eines Wellenpakets:

$$\left(\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_n} = \frac{1}{c} \left(\frac{\partial n}{\partial \omega} \right)_{\omega_n} + \frac{\omega_n}{c} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_n}. \quad (3.12)$$

Die Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung (GVM) $\Delta_{nm} = 1/v_n - 1/v_m$ beschreibt den Laufzeitunterschied (pro Längeneinheit) zwischen zwei Impulsen der Trägerfrequenzen ω_n und ω_m und dient als wichtige Größe für die Auswahl nichtlineare Kristalle bei der Konversion ultrakurzer Impulse. Sie definiert über $L_{GVM} = \Delta t / |\Delta_{nm}|$ die (quasi-statische) Wechselwirkungslänge zwischen den beiden Impulsen, wobei Δt die Impulsdauer des längeren Impulses bezeichnet. Im einfachsten Fall der SHG (Typ I, siehe Anhang A.1) lässt sich damit die Auswirkung der Länge des Kristalls ableiten: Bei einer Kristalllänge L unterhalb von $L_{GVM} = \Delta t_1 / |\Delta_{13}|$ besitzt der erzeugte Impuls (Index: 3) eine ähnliche Impulsdauer wie der eingestrahlte Laserimpuls (Index: 1). Kristalllängen $L > L_{GVM}$ können die Konversionseffizienz nur geringfügig erhöhen und führen darüber hinaus zu einer Verlängerung von Δt_3 . Bei OPA ist aufgrund der auftretenden Verstärkung die Wechselwirkung komplexer, so dass bei kleiner GVM enorme Bandbreiten auftreten können, welche eine Impulsverkürzung ermöglichen.

3.3 Vermessung der Laserparameter

Eine wichtige Voraussetzung für die Interpretation transientser Signale stellt Kenntnis der Laserstrahlparameter dar. Neben der Energie E , der Impulsdauer Δt und der Spitzenintensität I_0 müssen dabei auch die spektralen Eigenschaften der Laserstrahlung bestimmt werden. Während sich die Energie der Laserimpulse relativ einfach mit Hilfe geeichter Photodioden und pyroelektrischer Detektoren erfassen lässt, können Impulsdauern im Sub-Pikosekunden-Bereich nicht mehr direkt unter Verwendung herkömmlicher elektronischer Bauelemente gemessen werden. In den letzten Jahren sind zahlreiche Techniken entwickelt worden (siehe zum Beispiel [DR96]), die es erlauben, sowohl die Amplitude als auch den Phasenverlauf von Laserimpulsen im Femtosekunden-Bereich zu rekonstruieren. Für den Großteil der in dieser Arbeit verwendeten Laserimpulse war allerdings die Bestimmung der Intensitäts-Kreuzkorrelation A_c mit einem wohlbekannten Impuls $I_r(t)$, zum Beispiel bei 800 nm, zur Bestimmung des zeitlichen Intensitätsprofils $I_s(t)$ ausreichend:

$$A_c(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_s(t) I_r(t - \tau) dt \quad (3.13)$$

Hierbei fanden Summen- und Differenzfrequenzerzeugung in nichtlinearen Kristallen Verwendung. Während die Kreuzkorrelation im sichtbaren Spektralbereich mit Hilfe von Beta-Barium Borat (BBO) bewerkstelligt werden kann, reicht die Transmission dieses Kristalls im Infraroten nicht mehr aus (siehe Abbildung 3.11), um Impulse bis $4 \mu\text{m}$ zu vermessen. In diesem Spektralbereich wurde Lithium-Jodat (LiIO_3) mit einem Transparenzbereich von $0.3 \mu\text{m}$ bis $6 \mu\text{m}$ eingesetzt. Da besonders im kurzwelligen Spektralbereich sehr grosse GVM (siehe Abschnitt 3.2) auftritt, wurde dabei stets darauf geachtet, möglichst dünne Kristalle zu verwenden (BBO: $50 \mu\text{m} - 0.1 \text{ mm}$; LiIO_3 : 0.3 mm). Im vakuum-ultravioletten Spektralbereich ist die Bestimmung der Korrelationsfunktion mit Hilfe von Kristallen aufgrund fehlender Phasenanpassung allerdings nahezu unmöglich. Hier werden erstmals molekulare Systeme mit sehr kurzer Reaktionszeit, sowohl die interne Konversion in Toluol als auch die Dissoziation von Wasser über den \tilde{A} -Zustand selbst, zur Bestimmung der Impulsdauer verwendet (siehe Kapitel 5.1.1).

Bei sehr kurzen und damit auch sehr breitbandigen Laserimpulsen (siehe Abbildung 3.7) reicht die spektrale Akzeptanz der Phasenanpassung selbst dünner Kristalle nicht mehr aus, um die Auto- beziehungsweise Kreuzkorrelation naturgetreu darzustellen. 1994 stellten Heist et al. [HK94] eine Korrelationsmethode vor, welche auf Strahlenablenkung mittels des optischen Kerr-Effekts basiert und in einem großen spektralen Bereich anwendbar ist. Da es sich dabei um einen $\chi^{(3)}$ -Prozess handelt, der mit der Korrelationsfunktion dritter Ordnung

$$A_{sd}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) I^2(t - \tau) dt \quad (3.14)$$

verknüpft ist, kann mit dieser Methode auch die Asymmetrie der Laserimpulse wiedergegeben werden. Abbildung 3.3 zeigt den verwendeten Messaufbau. Um die Impulse nicht durch die Dispersion optischer Elemente zu verlängern, wurde der Selbst-Diffraktions-Korrelator nur mit reflektiver Optik aufgebaut. Als Kerr-Medium diente ein 0.1 mm dickes BBO-Plättchen.

Ein Nachteil der Intensitätskorrelation niedriger Ordnung besteht darin, dass diese immer eine Faltung zwischen $I_r(t)$ und $I_s(t)$ wiedergeben. Ist die genaue Impulsform $I_r(t)$ nicht bekannt, so kann eine Impulsdauer nur unter Annahme eines zeitlichen Profils angegeben werden. Bei den in dieser Arbeit angegebenen Impulsdauern wurde immer ein $\text{sech}^2(t)$ -förmiges Profil zu

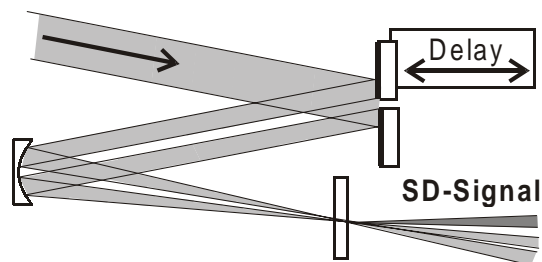


Abb. 3.3: Autokorrelationsmessung durch Selbst-Diffraktion

Grunde gelegt.

Da die Beziehung $\lim_{n \rightarrow \infty} I^n(t) \propto \delta(t)$ gilt, gibt die Intensitätskorrelation der Ordnung $(n + 1)$,

$$A_n(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_s(t) I_r^n(t - \tau) dt, \quad (3.15)$$

für grosse n direkt das Intensitätsprofil $I_s(t)$ wieder. Intensitätskorrelationen höherer Ordnung können durch die nichtresonante Multiphotonen-Ionisation von Edelgasen bewerkstelligt werden. Aufgrund der hohen Ordnung der Prozesse sind für derartige Messungen zumindest bei leichten Edelgasen sehr hohe Intensitäten notwendig. Bei den in den Abschnitten 3.4.2 und 5.1.2 beschriebenen Experimenten erlaubten die Intensitäten die Multiphotonen-Ionisation von Krypton (I.P. 14 eV). Dabei wurde in einem Prozess fünfter Ordnung die Autokorrelation von Impulsen bei 400 nm und die Kreuzkorrelation mit Impulsen bei 800 nm bestimmt. Ein weiterer Vorteil dieser Messmethode liegt darin, dass die Laserimpulse direkt in der Wechselwirkungszone von Molekularstrahlapparaturen vermessen werden können.

Da die erreichbare Spitzenintensität I_0 der Impulse,

$$I_0 = \frac{2 P_0}{\pi w_0^2} = \begin{cases} 0.74 \cdot E / (\Delta t \cdot w_0^2) & \text{für Gauß-Pulse} \\ 1.12 \cdot E / (\Delta t \cdot w_0^2) & \text{für } \textit{sech}^2\text{-Pulse} \end{cases}, \quad (3.16)$$

von der Energie E , der Pulsdauer (FWHM) Δt und dem Fokalradius w_0 abhängt, ist auch die Vermessung der räumlichen Strahlparameter unerlässlich. Bei kollimierter Laserstrahlung, welche eine nahezu gaußförmige radiale Intensitätsverteilung

$$I(r, z) = I_0 \exp(-2 r^2 / w(z)^2) \quad (3.17)$$

besitzt, kann mit Hilfe einer „scharfen Kante“ nach Suzaki und Tachibana [ST75] oder Apertur [Mar71] der $1/e^2$ -Radius $w(z)$ an mehreren Stellen in axialer Richtung z ermittelt werden. Durch Anpassen dieser Messdaten an die axiale Verteilung eines Gauß-Bündels

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2} \quad (3.18)$$

kann dann sowohl die Position z_0 als auch der Radius $w_0 = w(z_0)$ des Fokus bestimmt werden.

Die spektrale Charakterisierung der Laserimpulse erfolgt im Allgemeinen mit einer Kombination aus Gitterspektrometer und Zeilendetektor. Während reflektive optische Gitter in einem Wellenlängenbereich von $0.1 \mu\text{m}$ bis über $10 \mu\text{m}$ ohne weiteres erhältlich sind, beschränken Zeilensensoren aus Silizium oder InGaAs den beobachtbaren Spektralbereich auf Wellenlängen zwischen $0.2 \mu\text{m}$ bis $2.6 \mu\text{m}$. Daher wurde bei kürzeren Wellenlängen auf spezielle Phosphorbeschichtungen (Metachrome II, Roper Scientific) zurückgegriffen, welche Laserstrahlung unterhalb von 450 nm in den Wellenlängenbereich $540 \text{ nm} - 580 \text{ nm}$ konvertieren und bei Wellenlängen bis zu etwa 60 nm einsetzbar sind. Bei Wellenlängen über 2.6 nm kann die Detektion durch pyroelektrische Zeilensensoren erfolgen (siehe Abschnitt 3.5).

3.4 Spezielle Erzeugungs- und Konversionstechniken

In diesem Abschnitt sollen einige spezielle Erzeugungs- und Konversionstechniken beschrieben werden, welche zwar seit einiger Zeit bekannt sind, aber eher selten in der Molekülspektroskopie Anwendung finden. Neben der Erzeugung von kurzwelligen Laserimpulsen im Wellenlängenbereich zwischen 100 nm und 200 nm (Übersicht in [Kit97]) wird auf die Bereitstellung extrem kurzer Pulse (Übersicht in [NSD98]) eingegangen. Der letzte Teilabschnitt befasst sich mit der Erzeugung intensiver kurzer Pulse im infraroten Spektralbereich (siehe auch [PRN98a], [RPN00]).

3.4.1 VUV-Erzeugung durch Vierwellen-Differenzfrequenz-Mischung

Die hohe energetische Lage des ersten angeregten Zustands von Wasser macht die Verwendung von Laserstrahlung im vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich zwingend erforderlich, wenn dieser mit Hilfe von nur einem Photon angeregt werden soll. Kurze Laserimpulse bis zu einer Wellenlänge von 166 nm sind bereits durch Summenfrequenz-Mischung in nichtlinearen Kristallen erzeugt worden [PRN98b]. Aufgrund der limitierten Transparenz der Kristalle in diesem Spektralbereich und Einschränkungen in Bezug auf die Phasenanpassbarkeit sind diese zur Zeit für eine Verwendung in der Spektroskopie (noch) nicht geeignet.

Vierwellen-Mischprozesse in Edelgasen [HLW87] bieten eine Alternative, mit relativ moderaten Pumpenergien hohe Umwandlungseffizienzen (im Prozentbereich, siehe [TMW92]) zu erreichen. Im letzten Jahrzehnt sind damit auch Pulsdauern im Femtosekunden-Zeitbereich erzielt worden [NKK97, LQS95]. Abbildung 3.4 skizziert das in der vorliegenden Arbeit verwendete optische Mischungsschema in Argon.

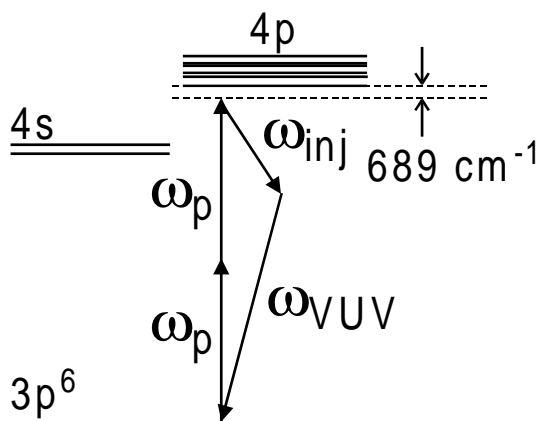


Abb. 3.4: Schema der nahe-resonanten Vierwellen-Differenzfrequenz-Mischung in Argon. ω_p : Intensive Pumppulse bei 193.5 nm; ω_{inj} : (abstimmbarer) Injektionsimpuls; ω_{VUV} : erzeugter VUV - Laserimpuls

Hierbei erfolgt die Anregung nahe eines bei Einphotonen-Anregung verbotenen Übergangs ($3p-4p[1/2, 1]$) durch zwei intensive Photonen bei einer

Wellenlänge von 193.5 nm (ω_p). Durch Wechselwirkung eines gleichzeitig eingestrahlten weiteren Laserimpulses im sichtbaren oder ultravioletten Spektralbereich (ω_{inj}) mit der induzierten Polarisation bei $2\omega_p$ wird ein Photon im VUV-Spektralbereich (ω_{VUV}) gemäß des Energie-Erhaltungssatzes erzeugt:

$$\omega_{VUV} = 2 \cdot (\omega_p) - \omega_{inj}. \quad (3.19)$$

Ist die Verstimmung zur Resonanz größer als die spektrale Bandbreite der anregenden Impulse, so erfolgt die Antwort des Mediums instantan und kohärente durch das Gas verursachte Effekte (wie Rabi-Oszillationen [KRN96]) werden vermieden. Der beschriebene Aufbau erfüllt diese Bedingung, da die Bandbreite der Anregungsimpulse mit $\omega_p/2\pi \approx 55 \text{ cm}^{-1}$ deutlich weniger als der Abstand zur atomaren Zweiphotonen-Resonanz $\Delta\omega/2\pi = 689 \text{ cm}^{-1}$ beträgt. Die Nähe zur Resonanz bietet den Vorteil, dass in diesem Bereich eine größere nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ vorliegt. Als Injektionsstrahlung dienen Laserimpulse bei einer Wellenlänge von $\lambda_{inj} = 258 \text{ nm}$, was in VUV-Impulsen bei einer Wellenlänge von $\lambda_{VUV} = 155 \text{ nm}$ resultiert.

Unter Zuhilfenahme der Dispersionsformel für Argon im Wellenlängenbereich von 0.14 μm bis 2.1 μm [Nik97]

$$n = 1 + 0.012055 \cdot \left[\frac{0.2075 \cdot \lambda^2}{91.012 \cdot \lambda^2 - 1} + \frac{0.0415 \cdot \lambda^2}{87.892 \cdot \lambda^2 - 1} + \frac{4.3330 \cdot \lambda^2}{214.02 \cdot \lambda^2 - 1} \right] \quad (3.20)$$

(λ in μm , $T = 273 \text{ K}$, $P = 1 \text{ bar}$) lassen sich die Beträge der Wellenzahlenvektoren $k = \omega \cdot n_\omega / c$ mit den Wellenlängen - abhängigen Brechungsindizes n_ω und der Vakuumlichtgeschwindigkeit c bestimmen. Da in diesem Fall die Phasenfehlانpassung

$$\Delta k = 2 \cdot k_p - k_{inj} - k_{VUV} \quad (3.21)$$

einen negativen Wert besitzt, kann in normal dispersiven Medien, wie es das molekulare Gas darstellt, durch eine nichtkollineare Geometrie Phasen Anpassung erreicht werden. Der Phasen Anpassungswinkel Θ_{in} , der geometrische Winkel zwischen Pump- und Injektionsstrahlung berechnet sich nach dem Kosinussatz:

$$\Theta_{in} = \arccos \left(\frac{4 \cdot k_p^2 + k_{inj}^2 - k_{VUV}^2}{4 \cdot k_p \cdot k_{inj}} \right). \quad (3.22)$$

Der Phasenanpassungswinkel zur Erzeugung von VUV-Strahlung bei 155 nm beträgt 0.4° , ist also leicht durch Überlappung der Laserimpulse mit einem dichroitischen Spiegel zu bewerkstelligen.

Abbildung 3.5 stellt die erreichten Pulsdauern und Energien bei einer Wellenlänge von 155 nm dar. Die zeitliche Charakterisierung erfolgte dabei durch Kreuzkorrelation mit bekannten Laserimpulsen bei einer Wellenlänge von 774 nm in einem Ionisationsexperiment an Toluol (siehe Abschnitt 5.1.1). Zur Energiemessung fand ein vakuumtauglicher pyroelektrischer Detektor Verwendung.

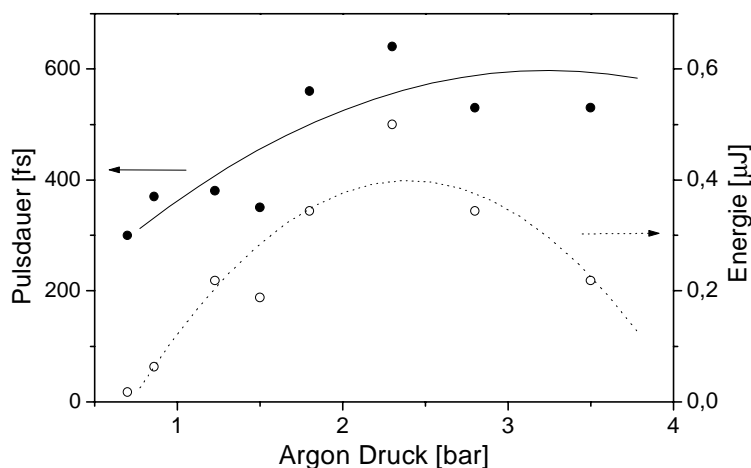


Abb. 3.5: Pulsdauer (○) und Energie (●) der erzeugten Pulse bei 155 nm in Abhängigkeit vom Argon - Druck in der Gaszelle

Eine maximale Energie von etwa 400 nJ wird bei einem Gasdruck von 2,5 bar erreicht. Die Pulsdauer liegt in diesem Bereich um 500 fs und verringert sich mit abnehmendem Druck. Eine untere Grenze sollte die Impulsdauer des Injektionspulses darstellen (150 fs), jedoch waren die Pulsenergien bei Drücken unter 600 mbar nicht mehr für eine zuverlässige Messung ausreichend. Aus diesem Grund wurde in den Messungen ein Gasdruck um 1 bar verwendet. Die entsprechende Impulsdauer liegt bei etwa 350 fs. Mit der spektralen Bandbreite von 0,4 nm in diesem Bereich ergibt sich für das Impulsdauer-Bandbreite-Produkt ein Wert von $\Delta\nu \cdot \Delta t = 1,8$, welcher erwartungsgemäß deutlich über dem Fourier-Limit (0,441 bei Gauß'scher beziehungsweise 0,316 bei $sech^2$ - Impulsform) liegt.

Die Druckabhängigkeit des Spektrums der VUV-Impulse zeigt Abbildung 3.6. Die spektrale Charakterisierung erfolgte mit einem für den Wellenlängenbereich zwischen 100 nm und 200 nm intensivierten Spektrometer, wobei die Messung in der zweiten Beugungsordnung erfolgte, um die spektrale Auflösung zu erhöhen. Dargestellt sind die Gasdrücke 2 bar, 3 bar und 4 bar.

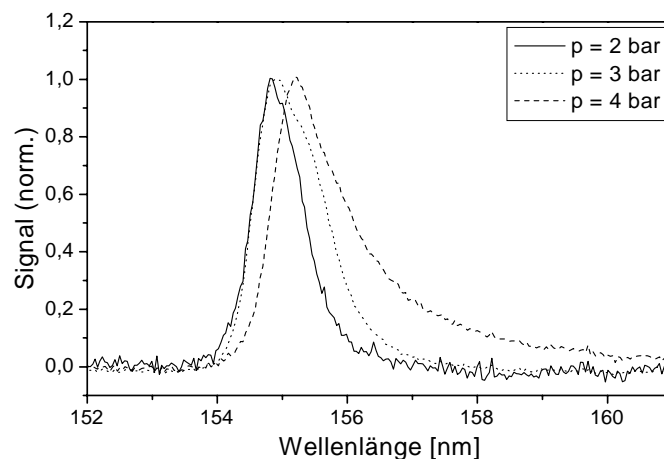


Abb. 3.6: Druckabhängigkeit des Spektrums der VUV-Impulse
Argon-Druck: 2 bar (durchgezogene Linie), 3 bar (Punkte) und 4 bar (Striche)

Bei Drücken unter 3 bar stellt Vierwellenmischung den dominanten parametrischen Prozess dar. Beim Vergleich der Spektren von 2 bar und 3 bar wird deutlich, dass allerdings mit zunehmenden Druck Phasenmodulation (siehe nächsten Abschnitt) auftritt. Die zunehmende spektrale Bandbreite ist für das in Abbildung 3.5 sichtbare Verhalten der Impulsdauer verantwortlich, da die Gruppengeschwindigkeitsdispersion in den optischen Elementen von der spektralen Breite abhängt und somit zu längeren Impulsdauern führt. Bei hohen Drücken verlagert sich das Spektrum in den langwelligen Bereich. Ein derartiges Verhalten wurde zuerst von Tünnermann et al. [TMW92] bei der nahe-resonanten Zwei-Photonen-Wechselwirkung von Femtosekunden-Impulsen bei 248.5 nm mit Xenon beobachtet und spontanen parametrischen Prozessen zuerkannt, welche aus dem Quantenrauschen starten. Dieser Konkurrenzprozess zur geseedeten Vierwellenmischung führt zu einem breiten spektralen Anteil um 160 nm und wird bei Drücken um 6

bar zum dominierenden Prozess. Diese um 160 nm zentrierte Strahlung ist nahezu unabhängig von der Verzögerung zwischen Pump- und Injektionspuls und – weil ungerichtet – für die Abnahme der Pulsenergie bei hohen Drücken verantwortlich.

3.4.2 Spektrale Verbreiterung und Impulsverkürzung mit Hohlfasern

Allgemein besteht ein grundlegender Zusammenhang zwischen der Impulsdauer Δt (FWHM) und der spektralen Breite $\Delta\nu$ (FWHM). Es gilt:

$$\Delta\nu \cdot \Delta t \geq c \quad (3.23)$$

mit: $c = 0.441$ bei Gauß'scher und $c = 0.316$ bei *sech*²- Impulsform.

Zur Verkürzung der Laserimpulse müssen daher zusätzliche Frequenzkomponenten erzeugt werden. Da diese spektralen Komponenten allerdings nicht mit beliebiger Phase schwingen, sondern phasenstarr gekoppelt sein müssen, sind spezielle Techniken zur spektralen Verbreiterung notwendig.

Bereits 1964 [MA64] wurden metallische und dielektrische Hohlfasern zur Übertragung von Laserlicht über lange Entfernungen vorgeschlagen. Im vorletzten Jahrzehnt wurde die Technik der Selbstphasenmodulation (SPM) in Monomodenhohlfasern etabliert [FBB87, DNK99]. Dabei induziert der Intensitätsverlauf $I(t)$ der Laserimpulses eine zeitliche Variation des Brechungsindex $n(t)$ in einem nichtlinearen Medium, in diesem Fall im Füllgas der Faser:

$$n(t) = n_0 + n_I \cdot I(t). \quad (3.24)$$

n_0 ist der lineare Brechungsindex, der Kerr-Koeffizient n_I bedingt eine Phasenverschiebung $\Delta\varphi(t)$ beim Durchgang eines Impulses mit der Trägerfrequenz ω_0 durch ein Kerrmedium der Länge L :

$$\Delta\varphi(t) = \frac{\omega_0}{c} \cdot n_I \cdot I(t) \cdot L. \quad (3.25)$$

Da mit Hohlfasern der Modendurchmesser und damit die Intensität der Laserstrahlung über weite Strecken konstant gehalten werden kann, lassen sich so große Wechselwirkungslängen L und damit große Phasenverschiebungen

realisieren. Durch zeitliches Ableiten der Phasenverschiebung kann die entsprechende Frequenzverschiebung $\Delta\omega(t)$ bestimmt werden:

$$\Delta\omega(t) = -\frac{\omega_0}{c} \cdot n_I \cdot \frac{dI(t)}{dt} \cdot L. \quad (3.26)$$

Bei $n_I > 0$ (was für Edelgase erfüllt ist) führt die Rotverschiebung ($dI(t)/dt > 0$) auf der ansteigenden Flanke beziehungsweise die Blauverschiebung ($dI(t)/dt < 0$) auf der fallenden Flanke des Laserimpulses zu einer Frequenzverschiebung (Chirp) um ω_0 und damit letztendlich zu einer spektralen Verbreiterung des Laserimpulses. Abbildung 3.7 stellt exemplarisch ein im Rahmen dieser Arbeit gemessenes Spektrum eines Laserimpulses bei 400 nm dar, welcher mit Hilfe einer mit Krypton gefüllten Hohlleiter verbreitert wurde. Dabei lag die Bandbreite des Impulses (FWHM) vor der Verbreiterung unter 10 nm.

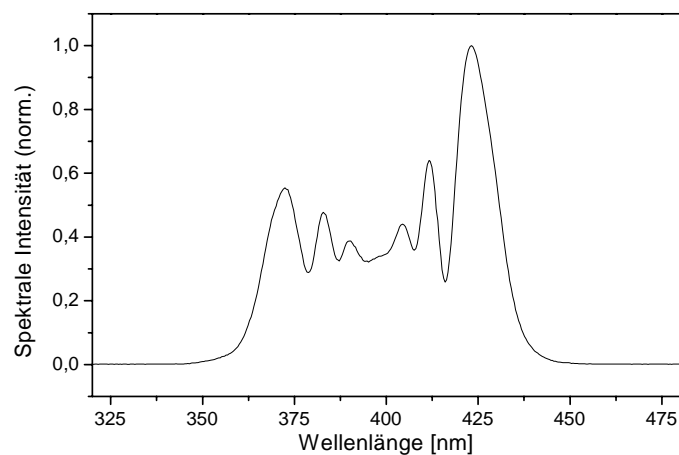


Abb. 3.7: Spektral verbreiteter Laserimpuls bei 400 nm; Füllgas: Krypton; Gasdruck: 500 mbar; Faserdurchmesser: 130 μm

Bei Experimenten mit gasgefüllten Hohlfasern müssen zwei (geometrische) Parameter besonders beachtet werden: Einerseits die Führung der Energie in der Faser und damit verbunden die Einkoppelung des Laserlichtes in die Faser. Die Ausbreitung beliebiger elektromagnetischer Wellen in einer zylindrischen Struktur, deren Durchmesser deutlich größer als die Wellenlänge ist, wurde von Marcatili und Schmelzter [MA64] untersucht: Bei linearer Polarisation treten in Hohlfasern aus Quarzglas (Brechzahl $n \approx 1.5$) hauptsächlich

die sogenannten transversalen Hybrid-Moden EH_{1m} auf. Diese weisen ein radialsymmetrisches Intensitätsprofil auf:

$$I(r) = I_0 \cdot J_0^2(u_{1m} \cdot r/a). \quad (3.27)$$

Dabei ist J_0 die Besselfunktion nullter Ordnung und u_{1m} deren m -te Nullstelle $J_0(u_{1m}) = 0$. r/a ist die auf den Innenradius a der Hohlfaser normierte Radialkoordinate. Die verschiedenen Moden werden beim Durchgang durch die Hohlfaser unterschiedlich stark gedämpft [MA64]:

$$\alpha_{1m} = \left(\frac{u_{1m}}{2\pi}\right)^2 \cdot \frac{\lambda^2}{2a^3} \cdot \frac{\nu^2 + 1}{\sqrt{\nu^2 - 1}}. \quad (3.28)$$

Die Dämpfungskonstante α_{1m} ist der imaginäre Anteil der Ausbreitungskonstante in axialer Richtung k_z . λ ist die Zentralwellenlänge und ν das Verhältnis der Brechungsindizes von Faser und Gas. α_{1m} beschreibt damit die Dämpfung der Feldamplitude in Abhängigkeit von dem in der Faser zurückgelegten Weg.

Gleichung 3.28 zeigt, dass einerseits die EH_{11} - Mode am wenigsten gedämpft wird, andererseits die Dämpfung auch mit steigendem Faserradius und fallender Wellenlänge sinkt. Damit bietet sich die Möglichkeit, durch Anpassung des Faserradius höhere Moden, welche die Strahlqualität verschlechtern würden, zu diskriminieren und gleichzeitig die Dämpfung der EH_{11} - Mode zu minimieren. Allerdings werden die verwendeten Hohlfasern nur in diskreten Größen produziert. In der vorliegenden Arbeit erwiesen sich die Faserdurchmesser von $260 \mu\text{m}$ bei einer Wellenlänge von 800 nm und $130 \mu\text{m}$ bei einer Wellenlänge von 400 nm als am geeignetsten. Bei 800 nm trägt dabei die Dämpfung der EH_{11} - Mode nur $\alpha_{11} = 0.06/m$, während die höheren Moden mit $\alpha_{12} = 0.33/m$ und $\alpha_{13} = 0.76/m$ bereits sehr deutlich diskriminiert werden.

Die Einkopplungseffizienz $\eta_m(w/a)$, das Verhältnis von eingekoppelter zu einfallender Laserleistung, ist bei Annahme eines Gauss-förmigen Strahlprofils bei linearer Polarisation vor der Faser und Ausbreitung von EH_{1m} - Moden in der Faser in [NSD98] bestimmt worden:

$$\eta_m(w/a) = \frac{4 \left[\int r J_0(u_{1m} \cdot r/a) \exp(-r^2/w^2) dr \right]^2}{w^2 \cdot \int r J_0^2(u_{1m} \cdot r/a) dr}. \quad (3.29)$$

Hierbei stellt w den Strahlradius im Fokus, a den Innenradius der Hohlfaser dar. Die effizienteste Einkopplung wird dabei bei einem Verhältnis w/a von

0.65 erreicht. Bei diesem Fokusradius wird die Laserstrahlung mit einer Effizienz von $\eta = 0.98$ in die EH_{11} - Mode eingekoppelt. Ein kleinerer Fokus würde zu vermehrter Einkopplung in höhere Moden und damit zu Verlusten führen. Abbildung 3.8 zeigt das Ergebnis ihrer Rechnung für unterschiedliche transversale Hybrid-Moden EH_{1m} .

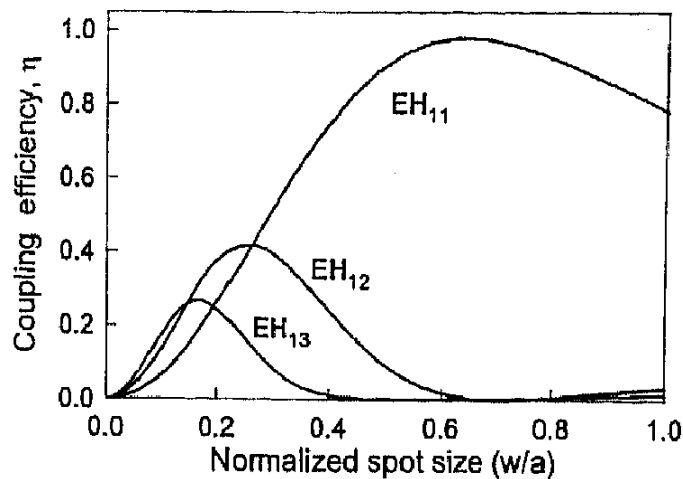


Abb. 3.8: Einkopplungseffizienz $\eta_m(w/a)$ als Funktion des normierten Fokusradius w/a . Entnommen aus: [NSD98]

Der positive Chirp, welchen der Laserimpuls beim Durchgang durch die Hohlleiter erhält, muss im Anschluss durch negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) kompensiert werden, um eine Impulsverkürzung zu erhalten. Dies wird entweder durch eine Prismensequenz oder, wie in dieser Arbeit, mit Hilfe speziell gefertigter dielektrischer Spiegel (Chirped mirrors, GVD ca. -20 fs^2 bis -100 fs^2) realisiert.

Im durchgeführten Experiment waren bei einer Wellenlänge von 800 nm vier Reflexionen an Chirped Mirrors (Gesamt-GVD: -240 fs^2), bei einer Wellenlänge von 400 nm sogar neun Reflexionen (Gesamt-GVD: -180 fs^2) notwendig, um die Laserimpulse optimal zu komprimieren. Aufgrund der bei diesen Reflexionen auftretenden Verluste und der Fresnel-Verluste an Eintrittsfenstern sinkt die Impulsenergie auf etwa 20% der eingekoppelten Strahlung ($70 \mu\text{J}$) bei 800 nm und auf 10% ($4 \mu\text{J}$) bei 400 nm. Die Modendiskriminierung in der Hohlleiter führt dabei zu einer deutlichen Verbesserung des Strahlprofils und damit sehr guten Fokussierbarkeit der Strahlung,

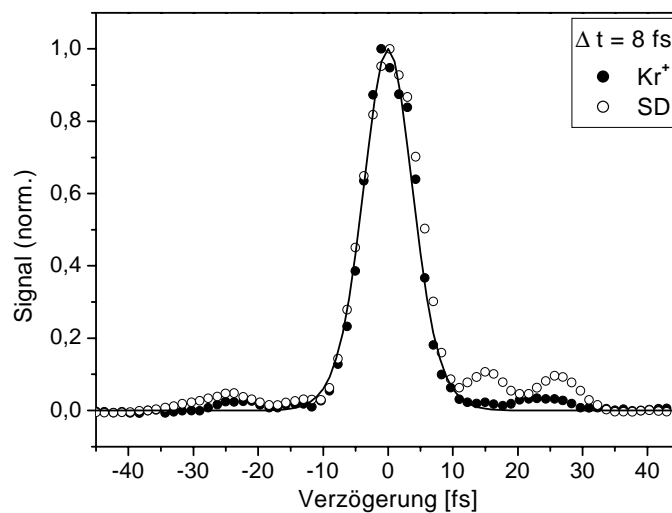


Abb. 3.9: Autokorrelation zur Bestimmung der Impulsdauer der komprimierten Laserimpulse bei 400 nm, gemessen durch Selbst-Diffraktion (\circ) und Multiphotonen-Ionisation von Krypton (\bullet). In beiden Fällen ergibt sich eine Impulsdauer von 8 fs.

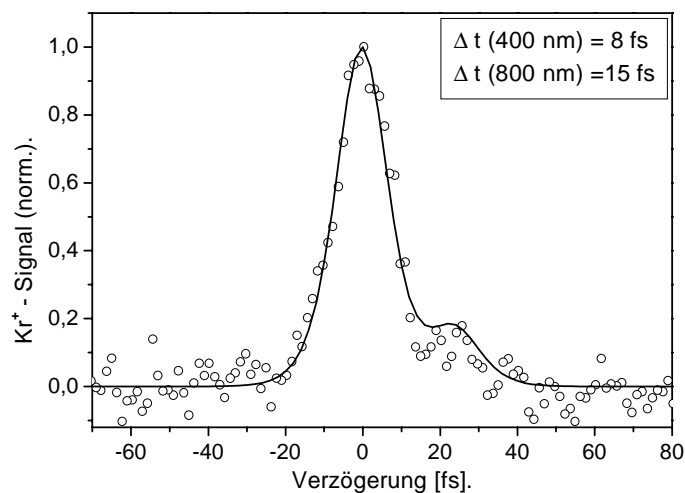


Abb. 3.10: Kreuzkorrelation der komprimierten Laserimpulse bei 800 nm und 400 nm, gemessen durch Multiphotonen-Ionisation von Krypton. Abszisse: Verzögerung der Impulse bei 800 nm gegenüber Impulsen bei 400 nm. Mit der oben bestimmten Impulsdauer von 8 fs bei 400 nm ergibt sich eine Impulsdauer von 15 fs bei 800 nm.

so dass sich Intensitäten von 10^{14} W/cm² erreichen ließen. Diese Intensität liegt über der Schwellenintensität zur Multiphotonen-Ionisation von Krypton [NDS96], weshalb dieser Prozess – neben der Selbst-Diffraktion – in den Korrelationsmessungen zur Bestimmung der Impulsdauer Verwendung fand. Die Abbildungen 3.9 und 3.10 zeigen die Auto- beziehungsweise Kreuzkorrelationssignale. Nach der Entfaltung der Selbst-Diffraktion (Korrelation dritter Ordnung) beziehungsweise des Multiphotonen-Ionisationssignals (Korrelation vierter Ordnung) ergeben sich Impulsdauern von 8 fs bei 400 nm und 15 fs bei 800 nm.

3.4.3 MIR-Erzeugung in BBO und MLN

Beta-Barium Borat (β -BaB₂O₄ oder kurz BBO), ein negativ einachsig doppelbrechender Kristall, gehört aufgrund seines großen Transparenzbereichs (190 nm bis etwa 3 μ m), seiner hohen Zerstörschwelle, seiner hohen effektiven Nichtlinearität und der Tatsache, dass theoretisch über einen sogar noch größeren Bereich (185 nm bis 3.5 μ m) Phasenanpassung erzielt werden kann, zu den am weitesten verbreiteten nichtlinearen Kristallen. Abbildung 3.11 zeigt die Transmission durch einem 1 cm dicken BBO Kristall.

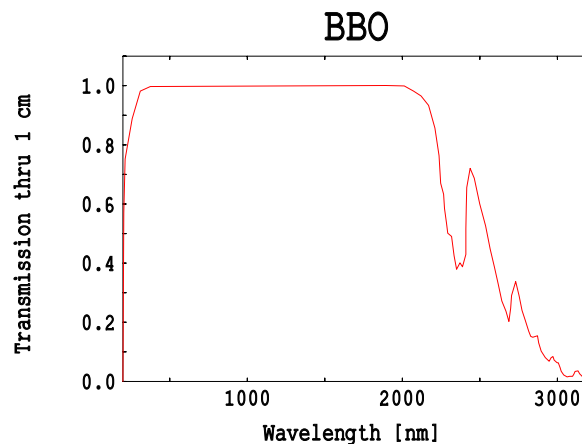


Abb. 3.11: Transmission durch 1 cm Beta-Barium Borat (BBO). Die Abbildung ist dem Programm "SNLO v28" von A. V. Smith, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1423 entnommen

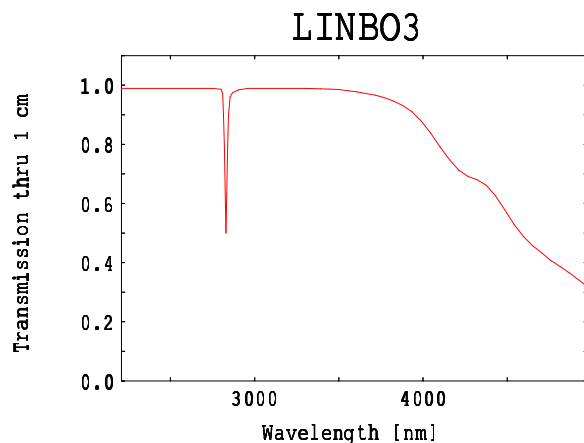


Abb. 3.12: Transmission durch 1 cm Lithium-Niobat (LNB). Die Abbildung ist dem Programm "SNLO v28" von A. V. Smith, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1423 entnommen

Aufgrund dieser Eigenschaften werden auch (kommerzielle) OPA, mit welchen Wellenlängen bis zu $2.6 \mu\text{m}$ im Infraroten erreicht werden können, mit diesen Kristallen aufgebaut. Wie die Abbildung 3.11 zeigt, bleibt dabei die Absorption im Infraroten bis zu einer Wellenlänge von $2.1 \mu\text{m}$ sehr niedrig, um $2.4 \mu\text{m}$ tritt dann eine deutliche Absorptionsbande auf. Bedauerlicherweise liegt eine der in dieser Arbeit verwendeten Wellenlängen genau in diesem Bereich. Dies führte im Experiment zu einem Ansteigen der Impulsdauer auf 160 fs. Da die Energie der erzeugten Impulse aber mit $30 \mu\text{J}$ relativ hoch war, fand ein auf BBO basierender Aufbau bei Experimenten mit Laserstrahlung um $2.4 \mu\text{m}$ Verwendung (siehe Abschnitt 3.5).

Für die Erzeugung von Laserstrahlung um $3.6 \mu\text{m}$ ist BBO allerdings nicht mehr geeignet. In diesem Fall wurde auf Lithium Niobat Kristalle (LiNbO_3 oder LNB), welche zur Reduktion photorefraktiver Effekte mit 7% MgO dotiert waren, umgestellt. Abbildung 3.12 gibt das Transmissionsverhalten von LNB wieder.

Die effiziente Erzeugung von kurzen Laserimpulsen im MIR mit Hilfe eines MLN ($\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$) OPA unter Zuhilfenahme von schmalbandigen Seedquellen ist bereits demonstriert worden [PRN98a, RPN00]. Da derartige Seedquellen über eine feststehende Wellenlänge verfügen, wurde dort die

Abstimmung im MIR durch Verstimmung der Pumpwellenlänge um 800 nm realisiert. Ein derartiges Vorgehen war in den hier vorzustellenden Experimenten allerdings nicht möglich, da unabhängig von der MIR-Erzeugung weitere abstimmbare Strahlung zur Verfügung stehen sollte, was eine Fixierung der Pumpwellenlänge erfordert. Die entsprechenden um 1 μm abstimmbaren Seedimpulse wurden mit einem auf BBO basierenden kommerziellen OPA (TOPAS Model 4/800/f der Firma Light Conversion) erzeugt, wobei dessen Idlerstrahlung um 2 μm intern zunächst durch einen 0.3 mm dicken BBO Kristall (Typ I, 30°) verdoppelt wurde. Die so erzeugten Laserimpulse weisen – entsprechend ihrer Pulsdauer von ca. 50 fs – eine Bandbreite von 45 nm auf. Diese an sich sehr guten und wünschenswerten Eigenschaften führen jedoch zu größeren Problemen bei der weiteren MIR-Erzeugung:

Ein entscheidender Vorteil von MLN liegt darin, dass eine geringe Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung (GVM) zwischen Pump- und Seedwelle die Verwendung langer Kristalle mit hohen Konversionseffizienzen in den Spektralbereich zwischen 3 μm und 4 μm erlaubt. Die damit verbundene große spektrale Bandbreite führt allerdings auch zu nahezu wellenlängenunabhängiger Phasenanpassung. Dem Vorteil, die gesamte Bandbreite des Pumpimpulses nutzen zu können, steht damit der Nachteil gegenüber, dass die Wellenlängen-Selektion nun hauptsächlich über die spektralen Eigenschaften des Seedimpulses zu erfolgen hat, dieser also schmalbandig sein muss. Zu große Bandbreite der Seedimpulse bedingt somit nur unzureichende spektrale Eigenschaften im mittleren Infrarot. Von der spektralen Einengung mit Hilfe von Interferenzfiltern sollte allerdings abgesehen werden, da diese aufgrund ihrer Dicke zu einem nicht unerheblichen Chirp der Seedimpulse führen. Um die Erzeugung nahezu bandbreitebegrenzter MIR Impulse dennoch gewährleisten zu können, wurde der interne Verdopplungskristall des TOPAS extern durch einen 4 mm dicken BBO (Typ I, 30°) ersetzt, was durch die geringere spektrale Akzeptanz zu schmalbandigeren Seedimpulsen führt (Bandbreite 10 nm) und zusätzlich den Vorteil einer größeren Seedenergie aufgrund besserer Konversion mit sich bringt.

Pump- (800 nm, 50 fs, 0.5 mJ) und Seedstrahl (1 μm , 50 fs, 20 μJ) wurden durch einen dichroitischen Spiegel kollinear überlappt und mit Hilfe einer Verzögerungseinheit auch zeitlich im Kristall zu Deckung gebracht. Dabei musste sowohl die Geometrie und damit die Intensität des Pumpstrahls, als

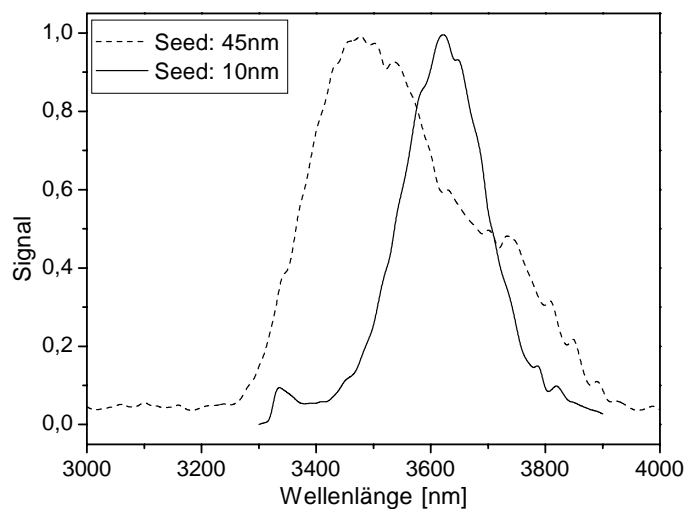


Abb. 3.13: Spektrum der erzeugten MIR-Strahlung: • breitbandiger Seed: HWB 300 nm
• spektral eingeschränkter Seed: HWB 160 nm

auch die Dicke des MLN Kristalls derart variiert werden, so dass einerseits die Konversion maximiert, andererseits parasitäre Prozesse wie ungeseedete parametrische Fluoreszenz, Weisslichterzeugung oder Selbstfokussierung unterdrückt bleiben. Das beste Ergebnis konnte mit einem 2 mm langen MLN-Kristall und einer Pumpintensität von 200 GW/cm^2 erreicht werden: Im Mittel lag die Pulsdauer bei 80 fs – 100 fs, wobei die Bandbreite 150 nm (110 cm^{-1}) – 180 nm (140 cm^{-1}), die Energie $20 \mu\text{J}$ – $25 \mu\text{J}$ betrug.

Des Weiteren spielt die Strahlqualität im MIR eine nicht unwesentliche Rolle, da durch sie die Fokussierbarkeit und damit die erreichbare Anregungsintensität beeinflusst wird. Die im vorliegenden Experiment verwendete Laserstrahlung um $3.6 \mu\text{m}$ war nahezu beugungsbegrenzt ($M^2 < 1.3$), was Spitzenintensitäten von $1 - 2 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (bei einer Brennweite von 120 mm) ermöglichte.

3.5 Beschreibung der Lasersysteme

3.5.1 VUV-Lasersystem

Das im folgenden als „VUV-System“ bezeichnete Lasersystem dient zur Erzeugung von Laserimpulsen im Vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich bei Wellenlängen zwischen 100 nm und 200 nm. Da eine detaillierte Beschreibung des Systems und seiner Möglichkeiten bereits an mehreren Stellen [NKK97, WWS00] erfolgte, beschränkt sich diese Darstellung auf einen Aufbau, der für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente relevant ist. Desweiteren sollen dort nicht genannte Umbauten an diesem System dokumentiert werden. Die verwendete Laserstrahlung im VUV liegt bei einer Wellenlänge von 155 nm. Eine Beschreibung der Erzeugung dieser Strahlung durch Vierwellen-Differenzfrequenz-Mischung und deren Charakterisierung befindet sich im Abschnitt 3.4.1. Abbildung 3.14 stellt den Versuchsaufbau schematisch dar.

Das auf Ti:Saphir basierende Lasersystem wird bei einer Zentralwellenlänge von 774 nm betrieben. Diese Wellenlänge ist notwendig, da die vierte Harmonische, welche bei einer Wellenlänge von 193.5 nm liegt, mit Hilfe eines ArF-Excimerlasers weiter verstärkt werden kann. Ein durch Prismen dispersionskompensierter Femtosekundenoszillator im Z-Design liefert die Ausgangsimpulse mit einer Pulsdauer von 50 fs und einer Einzelpulsenergie von 4 nJ bei einer Repetitionsrate von 75 MHz. Der zunächst als Pumpquelle eingesetzte Argon-Ionenlaser (Coherent Innova 900) wurde im Laufe der Experimente durch einen frequenzverdoppelten Nd:YVO₄ (Spectra-Physics Millennia) Festkörperlaser ersetzt.

Zur weiteren Verstärkung nach dem CPA-Schema (siehe Abschnitt 3.1) werden die Impulse mit Hilfe von Gittern (1200 Linien/mm) auf 170 ps verlängert und in einem gefalteten regenerativen Verstärker (RGA) [RKK93] auf eine Energie von 1 mJ verstärkt. Dabei reduziert sich die Repetitionsrate auf 10 Hz. Im RGA befindet sich ein Lyot-Filter, um den langwelligen Anteil des vorverstärkten Spektrums zu unterdrücken und so die Zentralwellenlänge bei 774 nm zu fixieren. Andernfalls würde in den nachfolgenden beiden Nachverstärkern der Anteil im spektralen Verstärkungsmaximum von Ti:Saphir um 785 nm überproportional verstärkt und damit die Zentralwellenlänge an sich in diese Richtung verschoben. Zu Beginn dieser Ar-

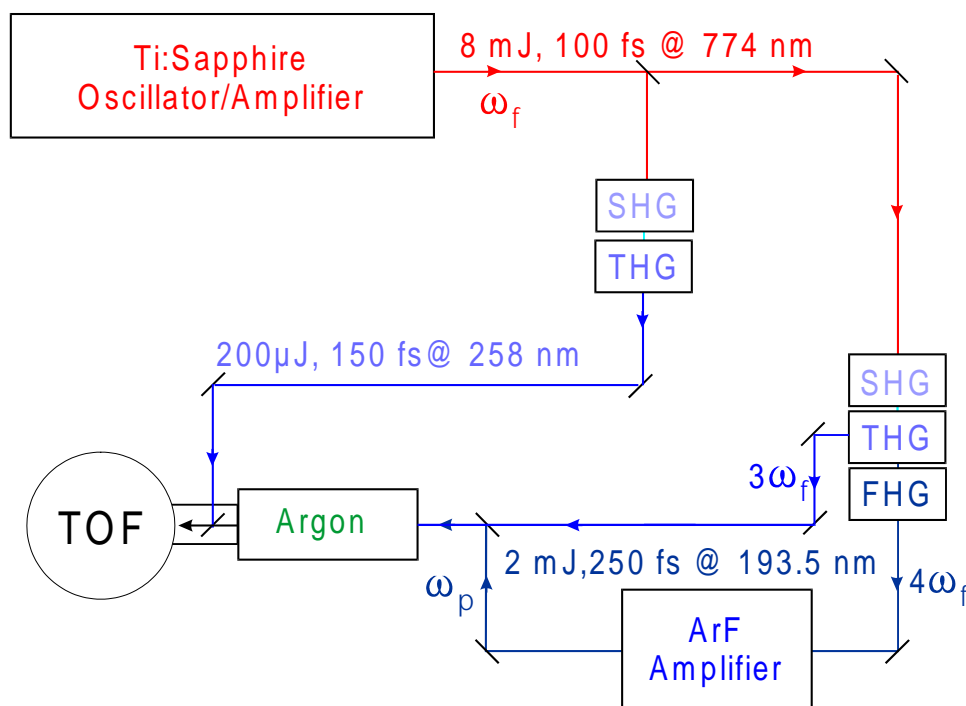


Abb. 3.14: Schematischer Aufbau am VUV-Lasersystem bei Ionisationsexperimenten mit Laserimpulsen im VUV. Nicht dargestellt: Spektrale Diagnostik und Verzögerungseinheit für den Abtastimpuls

beit fand folgende Pumpanordnung Verwendung: Ein frequenzverdoppelter gütegeschalteter Nd:YAG Laser (Quantel, Model YG780) wurde in zwei Teilstrahlen aufgeteilt. Der kleinere Teil (5 mJ) pumpte den regenerativen Verstärker, der größere (40 mJ) den ersten Nachverstärker. Das Pumpen des zweiten Nachverstärkers bewerkstelligte ein weiterer Nd:YAG Laser (Spectra Physics, Quanta Ray GCR170) mit etwa 150 mJ Impulsleistung bei 532 nm. Im Zuge dieser Arbeit erfolgte eine Umstellung der Pumpgeometrie: Der erste Nd:YAG Laser wurde durch einen stabileren Nd:YAG Laser mit kleinerer Impulsleistung ersetzt (Continuum, Minilite I), welcher nur noch den RGA pumpt. Dadurch reduzieren sich die Puls-zu-Puls-Fluktuationen in der gesamten Verstärkerkette. Der zweite Nd:YAG Laser versorgt nun zeitversetzt beide Nachverstärker mit Pumplicht (insgesamt bis zu 300 mJ). Das zeitversetzte Pumpen beider Nachverstärker führt zu einer deutlichen Verringerung der verstärkten Spontanemission (Amplified Spontaneous Emission, ASE). Mit dieser Konfiguration lassen sich nach der Kompression mit einem Git-

terkompressor Pulse mit einer Energie von 15 mJ bei einer Pulsdauer von 80 fs erreichen. Für die beschriebenen Messungen war jedoch 8 mJ Ausgangsenergie (bewerkstelligt durch Reduktion der Pumpenergie) ausreichend.

Diese Strahlung wird mit Hilfe zweier Strahlteiler in drei Anteile getrennt. Ein Anteil dient zur Erzeugung der Abtastimpulse und liefert alternativ die Grundwelle (1.5 mJ, 100 fs), nach Frequenzverdoppelung in einem 0.5 mm langen BBO-Kristall (Typ I, $\theta = 30^\circ$) die zweite Harmonische (SHG, 387 nm, 600 μJ , 120 fs) oder nach Mischung der verbleibenden Grundwelle mit der SHG in einem 0.3 mm langen BBO-Kristall (Typ II, $\theta = 58.5^\circ$, $\phi = 30^\circ$) die dritte Harmonische (THG, 258 nm, 200 μJ , 150 fs).

Die Frequenz des zweiten Anteils wird in gleicher Weise verdreifacht und weiterhin in einem 100 μm dicken BBO Kristall (Typ I, $\theta = 71^\circ$) durch Frequenz-Mischung mit der Fundamentalen vervierfacht. Am Ende dieser kaskadierten Summenfrequenzmischung stehen Laserimpulse bei einer Wellenlänge von 193.5 nm mit einer Energie von 10 μJ und einer Impulsdauer von 180 fs zur Verfügung. Der dritte Anteil wird in diesem Experiment nicht genutzt. Da die Energie dieser Impulse nicht für das Pumpen des in Abschnitt 3.4.1 beschriebenen Vierwellen-Mischprozesses ausreicht, müssen sie durch zwei Durchläufe in einen ArF-Excimerlaser-Verstärker (Lambda Physik, LPX200) auf etwa 2 mJ bei einer Pulsdauer von 250 fs verstärkt werden [RKN94]. Die Verlängerung der Impulsdauer ist nicht durch das Verstärkungsprofil des Excimer-Lasers bedingt; die Bandbreite der Laserpulse bleibt erhalten. Vielmehr bedingt die Dispersion der MgF_2 -Endfenster diese Impulsverlängerung.

Zur Erzeugung der VUV-Impulse werden diese Impulse und die dritte Harmonische mit einem dichroitischen Spiegel überlappt und mit einer MgF_2 -Linse (Brennweite: 60 cm) in mit Argon gefüllte Gaszelle fokussiert. Da der Phasenanpassungswinkel für die Erzeugung von 155 nm nur 0.4° beträgt, erfolgt die Einstrahlung nahezu kollinear. Die Gaszelle verfügt über MgF_2 -Endfenster und lässt sich bei Gasdrücken bis zu 6 bar betreiben. In einer nachfolgenden Vakuumkammer erfolgt die Rekollimierung der VUV-Strahlung mit einer MgF_2 -Linse (Brennweite: 30 cm) und die Abtrennung der Pump- und Injektionsstrahlung durch vier dichroitische Spiegel. Diese Kammer dient als Bindeglied sowohl zur spektralen Diagnostik (Monochromator 0.2 m, McPherson Model 234/302) als auch zur Molekularstrahlapparatur (siehe Abschnitt 4.1.1). Tabelle 3.1 fasst die Laserparameter zusammen.

Wellenlänge	Energie	Impulsdauer
774 nm	1.5 mJ	100 fs
387 nm	600 μ J	120 fs
259 nm	200 μ J	150 fs
193.5 nm	10 μ J	180 fs
(verstärkt)	2 mJ	250 fs
155 nm	150 nJ	350 fs

Tab. 3.1: Am VUV-Lasersystem verfügbare Laserparameter

3.5.2 Multipass-Lasersystem

Das sogenannte „Multipass-System“ basiert auf einem kommerziellen Ti:Saphir Oszillator/Verstärkersystem der Firma FemtoLasers Produktions GmbH. Zur weiteren Impulsverkürzung findet die Technik der spektralen Impulsverbreiterung in mit Edelgasen gefüllten Hohlfasern mit nachfolgender zeitlicher Kompression durch „Chirped mirrors“ Anwendung (siehe 3.4.2). Dadurch lassen sich Zeitaufösungen unterhalb von zehn Femtosekunden erreichen. Abbildung 3.15 verdeutlicht schematisch den Aufbau des Systems.

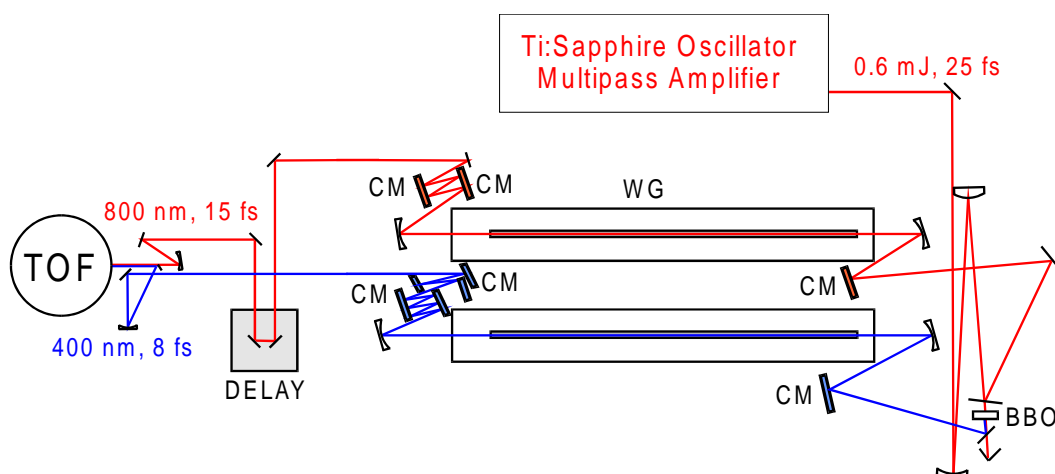


Abb. 3.15: Schematischer Aufbau am Multipass-Lasersystem bei Ionisationsexperimenten mit Laserimpulsen um 10 fs

Das Oszillator/Verstärkersystem besteht aus dem Femtosekunden-Oszillator FEMTOSOURCE PRO mit nachgeschaltetem Multipass-

Verstärker OMEGA PRO.

FEMTOSOURCE PRO ist ein prismenfreier Oszillator im X-Design, bei welchem die Dispersionskontrolle mit Hilfe von "Chirped mirrors" erfolgt. Das durch einen frequenzverdoppelten Nd:YVO₄ (Spectra-Physics Millennia) bei 532 nm gepumpte System liefert Laserimpulse bei einer Wellenlänge von 800 nm mit einer Energie von ca. 4 nJ und einer Impulsdauer von 12 fs, wobei die Repetitionsrate 75 MHz beträgt.

Die Laserimpulse werden in dem durch einen frequenzverdoppelten Nd:YLF-Laser (BMI 621 D/2) mit einer Repetitionsrate von 1 kHz bei 527 nm gepumpten Laserverstärker OMEGA PRO zunächst durch einige Reflexionen an "Chirped mirrors" (Vorkompensation der Dispersion dritter Ordnung) und anschließendem Durchgang durch einen Glasblock (SF 57) auf ca. 10 ps verlängert. Nach viermaligem Durchlaufen des Ti:Sapphir Verstärkerkristalls wird mit Hilfe einer Pockelszelle ein Einzelimpuls selektiert, welcher den Kristall weitere fünf Mal durchläuft. Durch die Selektion des Einzelimpulses nach viermaliger Verstärkung des gesamten Impulzuges wird eine deutliche Verringerung der verstärkten spontanen Emission (ASE) erreicht.

Die Rekompensation der Impulse erfolgt durch ein Prismenpaar. Der Laserverstärker liefert eine Einzelimpulsenergie von 0.6 mJ und Impulsdauern unter 30 fs bei einer Wellenlänge von 800 nm \pm 10 nm, wobei die spektrale Halbwertsbreite (FWHM) 40 nm übersteigt.

Im Anschluss wird diese Laserstrahlung mit Hilfe einer Teleskopanordnung kollimiert (Faktor 1 : 3) und durch einen dielektrischen Strahlteiler im Verhältnis 7 : 3 aufgeteilt. Die Frequenzverdoppelung des Teilstrahls höherer Energie in einem 100 μ m dicken BBO Kristall (Typ I, $\theta = 30^\circ$) resultiert in Laserimpulsen bei 400 nm mit einer Energie von 40 μ J und einer Pulsdauer von 30 fs. Eine Reflexion an einem "Chirped Mirror", zentriert bei 400 nm, liefert genügend negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion (-20 fs²), um die Dispersion des Eintrittsfensters einer Gaszelle zu kompensieren, in welcher sich eine Hohlzelle (Länge: 1 m, Durchmesser: 130 μ m) in einer Krypton-Atmosphäre bei einem Druck von 500 mbar befindet. Die Laserimpulse werden mit Hilfe eines gekrümmten dielektrischen Spiegels ($f = 75$ cm) auf das Ende der Hohlzelle fokussiert und durch Selbstphasenmodulation beim Durchgang durch die Faser spektral verbreitert (spektrale Halbwerts-

breite (FWHM): 50 nm). Nach der Rekollimierung mit einem Spiegel gleicher Brennweite erfolgt die zeitliche Kompression durch weitere neun Reflexionen an “Chirped Mirrors”. Die Impulslängenbestimmung mit einem nahezu dispersionsfreien Autokorrelator unter Verwendung der Selbst-Diffraktion liefert Pulslängen von 8.3 fs bei einer Energie von 4 μJ .

Für den schwächeren Teilstrahl stehen “Chirped Mirrors”, zentriert bei 800 nm mit einer Gruppengeschwindigkeitsdispersion von -60 fs^2 zur Verfügung. Nach einer Reflexion an einem derartigen Spiegel und der Fokussierung mit einem gekrümmten Spiegel ($f = 50 \text{ cm}$) durchlaufen diese Impulse eine weitere Hohlleiter bei gleicher Gasart und Druck wie oben beschrieben. Dabei muss der größeren Wellenlänge durch die Vergrößerung des Durchmessers auf 260 μm Rechnung getragen werden (siehe auch Kapitel 3.4.2). Zur Rekollimation findet wieder ein gekrümmter Spiegel mit einer Brennweite von 50 cm Verwendung. Wegen des größeren Betrags der Gruppengeschwindigkeitsdispersion der “Chirped Mirrors” für 800 nm sind danach allerdings nur vier Reflexionen für eine maximale Impulsverkürzung notwendig. Die erzeugten Laserimpulse um 800 nm besitzen dann eine Impulslänge von 15 fs bei einer Energie von 70 μJ .

Da die mit Hilfe der Reflexion an “Chirped Mirrors” erzeugte negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion nur in diskreten Schritten zur Verfügung steht, erfolgt die Minimierung der Impulsdauer in jedem der hier beschriebenen Fälle über einer sehr feine Variation des Gasdrucks in der Hohlleiter.

Zur Überlagerung der Impulse bei 800 nm mit denen bei 400 nm dient eine motorgesteuerte Verschiebeeinheit. Beide Impulse werden danach nahezu kollinear mit Hilfe eines Spiegels ($f = 25 \text{ cm}$) in den Wechselwirkungsbereich eines Flugzeit-Massenspektrometers (TOF, siehe Abschnitt 4.1.1) fokussiert und räumlich überlappt. Tabelle 3.2 zeigt die Parameter des Lasersystems.

Wellenlänge	Energie	Impulsdauer
800 nm (nach Verstärker)	0.6 mJ	< 30 fs
800 nm (Hohlleiter 80 mbar)	70 μJ	30 fs
800 nm (Hohlleiter 0.5 bar)	70 μJ	15 fs
400 nm (Hohlleiter 0.5 bar)	4 μJ	8 fs

Tab. 3.2: Am Multipass-Lasersystem verfügbare Laserparameter

3.5.3 Multicolor-Lasersystem

Bei dem im folgenden als „Multicolor-System“ bezeichneten Lasersystem handelt es sich um ein kommerzielles Ti:Saphir Oszillator/Verstärkersystem der Firma Spectra Physics GmbH, welches durch zwei OPA (TOPAS Model 4/800/f) von Light Conversion (Litauen) ergänzt wurde. Abbildung 3.16 skizziert den verwendeten Messaufbau.

Die Laserquelle setzt sich aus dem Kurzpulsoszillator TSUNAMI und dem Laserverstärker SPITFIRE, einer Kombination aus regenerativem und Mehrfachdurchgangs-Verstärker zusammen.

TSUNAMI ist ein durch Prismen dispersionskompensierter mehrfach gefalteter Femtosekundenoszillator im Z-Design, wobei als Pumpquelle wieder ein Nd:YVO₄-Festkörperlaser (Millennia) dient. Start und Stabilisierung des Pulsbetriebes erfolgt mit Hilfe eines akustooptischen Modulators. Bei einer Impulsdauer unter 40 fs und einer Repetitionsrate von 80 MHz liegt die Ausgangsleistung bei einigen 100 mW.

Die Laserpulse werden in einem Gitter-Stretcher auf einige Pikosekunden verlängert und im SPITFIRE Verstärkersystem auf 2.7 W bei einer Repetitionsrate von 1 kHz verstärkt. Als Pumpquelle des Verstärkers dient ein diodengepumpter, gütegeschalteter und im Resonator frequenzverdoppelter Nd:YLF-Laser (Spectra Physics Evolution-30) mit einer Impulsenergie von 20 mJ (1 kHz). Nach der Kompression in einem Gitter-Kompressor stehen Einzelimpulsenergien von über 2 mJ bei einer Impulsdauer von 45 fs und einer Wellenlänge von 800 nm zur Verfügung.

Durch eine Kombination von dielektrischen Teilspiegeln mit drei unterschiedlichen Reflexionen (0.75, 0.66, 0.5) wird diese Laserstrahlung in vier energetisch gleiche Teile aufgeteilt. Hierbei achtet man darauf, möglichst gleichmäßig dispersives Material in die einzelnen Teilstrahlen einzubringen, was eine nicht (vor-) kompensierbare Verlängerung einzelner Strahlen vermeidet.

Zwei dieser Teilstrahlen dienen als Pumpstrahlen für die beiden OPA. Bei einem wird die Summenfrequenz zwischen Signal und Fundamentaler erzeugt, was zu einem Abstimmbereich von 480 nm bis 530 nm bei einer Energie von 50 μ J und einer Pulsdauer von ca. 60 fs führt. Diese Strahlung wird in einem 100 μ m dicken BBO Kristall (Typ I, $\theta = 65^\circ$) frequenzverdoppelt. Aufgrund des sehr großen GVM in diesem Bereich (≈ 600 fs/mm) steigt die Pulsdauer auf 80 fs – 90 fs bei Energien von ca. 7 μ J.

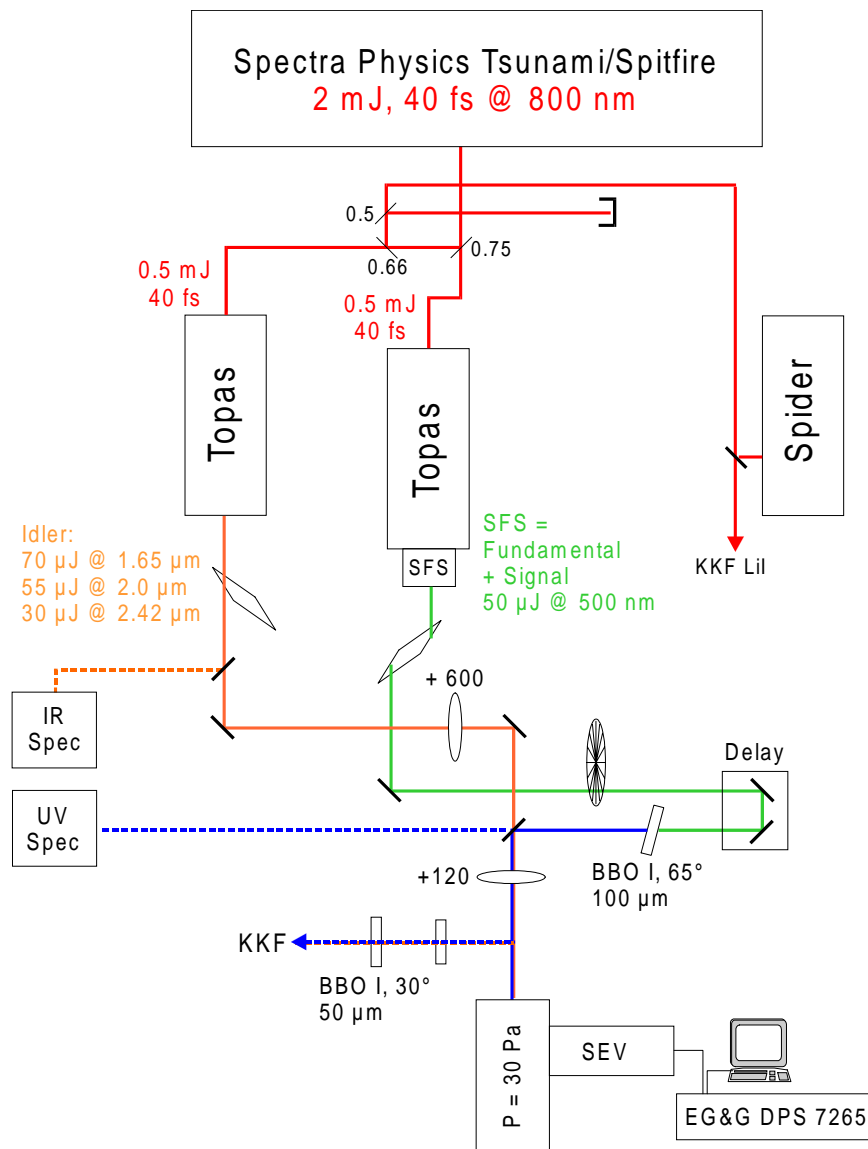


Abb. 3.16: Aufbau am Multicolor-Lasersystem bei Erzeugung von $1.6 \mu\text{m}$ bis $2.4 \mu\text{m}$

Der andere liefert Idler-Wellenlängen zwischen $1.65 \mu\text{m}$ und $2.42 \mu\text{m}$ (Energie: $70 \mu\text{J}$ – $30 \mu\text{J}$, Pulsdauer: 80 fs – 200 fs). Hierbei bleibt die Idlerwellenlänge über weite Bereiche bei einer Impulsdauer von ca. 80 fs , lediglich im äußersten Langwelligen steigt die Pulsdauer an. Dies kann mit der eingeschränkten Transmission von BBO begründet werden (siehe Abschnitt

3.4.3), welche auch ein Abstimmen auf über 2418 nm verhindert. Die weiterhin erzeugten und im Experiment nicht benötigten Pump-, Signal- und Idler-Impulse werden durch dielektrische Spiegel abgetrennt.

Während die infrarote Strahlung nach Rekollimierung durch eine Linse (MgF_2 , $f = 600$ mm bei 155 nm) ohne weitere Strahlumlenkung in eine Fluoreszenzzelle (siehe auch Abschnitt 4.1.2) eingestrahlt wird, kann die sichtbare Strahlung mit einer computergesteuerten Verschiebeeinheit verzögert werden. Nach der Verdoppelung in dem BBO-Kristall wird dieser Anteil mit Hilfe eines im IR transparenten dielektrischen Spiegels (hochreflektierend um 258 nm) kollinear mit dem infraroten Anteil überlappt und durch eine MgF_2 -Linse ($f = 120$ mm bei 155 nm) vor den SEV in die Fluoreszenzzelle fokussiert. Zur Bestimmung des zeitlichen und räumlichen Überlapps dient Summenfrequenz Erzeugung in BBO (Typ I, 30° , $50 \mu\text{m}$), wobei auch dem Zellenfenster durch Einbringen einer entsprechend dicken Quarzplatte Rechnung getragen wird. Die Strahlquerschnitte im Fokus können mit Hilfe einer Rasierklinge bestimmt werden und liegen bei $150 \mu\text{m}$ (248 nm) bzw. $175 \mu\text{m}$ (2418 nm). Die spektrale Charakterisierung erfolgt im IR durch einen 150 mm Spektrographen (Acton Research SpectraPro 150) mit angeschlossener Wärmebildkamera (DIAS lineares Pyroarray mit 128 Pixeln). Die UV-Strahlung wird durch mehrere dielektrische Spiegel (hochreflektierend um 258 nm) vom Sichtbaren getrennt und mit einem 1/8 m Spektrographen (Oriel 77400, Diodenzeile Hamamatsu S3923-1024Q) vermessen.

Alternativ dienen die Idler-Impulse des zweiten TOPAS nach Verdoppelung in einem 4 mm dicken BBO Kristall als Seedimpulse für einen auf $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ basierenden OPA (siehe Unterabschnitt 3.4.3). Abbildung 3.17 verdeutlicht die am Messaufbau vorgenommenen Modifikationen.

Hierbei stehen nach Abtrennung der Signalstrahlung, Umlenkung, Kollimation, Überlappung mit Hilfe eines dielektrischen Laserspiegels auf CaF_2 Substrat und Fokussierung in der Fluoreszenzzelle Laserimpulse bei $3.6 \mu\text{m}$ und $3.9 \mu\text{m}$ mit Energien von $8 \mu\text{J}$ zur Verfügung. Leider kann die starke Pumpstrahlung des OPA nicht vollständig ausgefiltert werden: Mit einer Verzögerung von etwa einer Pikosekunde tritt ein nachfolgender Laserimpuls mit einer Wellenlänge von 800 nm auf (Energie $3 \mu\text{J}$ bzw. 0.5% der Pumpenergie). Tabelle 3.3 fasst die Parameter der in den Experimenten verwendeten Laserstrahlung zusammen.

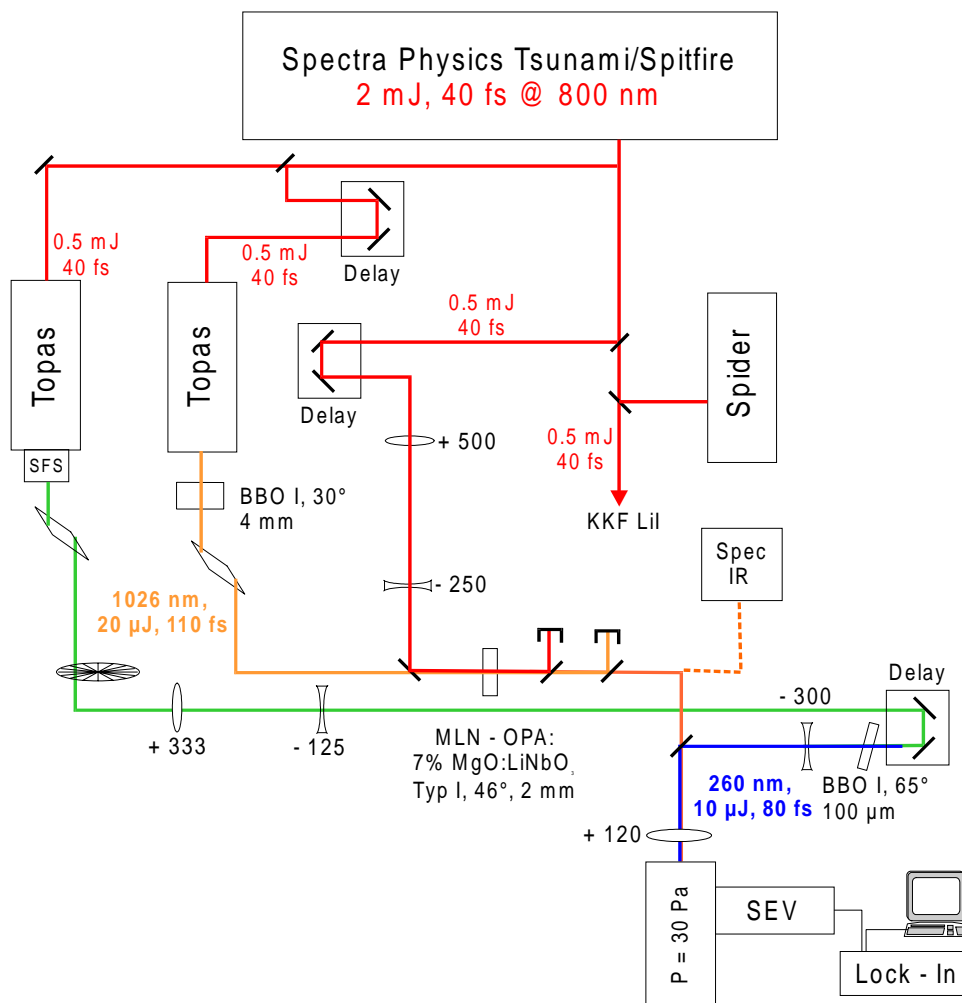


Abb. 3.17: Aufbau am Multicolor-Lasersystem bei Erzeugung von $3.6 \mu\text{m}$ und $3.9 \mu\text{m}$

Wellenlänge	Energie	Impulsdauer
244 nm – 264 nm	$7 \mu\text{J} - 10 \mu\text{J}$	70 fs – 80 fs
$1.03 \mu\text{m}$ (Seed MLN-OPA)	$20 \mu\text{J}$	110 fs
$1.65 \mu\text{m}$	$70 \mu\text{J}$	70 fs
$2.0 \mu\text{m}$	$50 \mu\text{J}$	85 fs
$2.42 \mu\text{m}$	$30 \mu\text{J}$	160 fs – 200 fs
$3.63 \mu\text{m} - 3.9 \mu\text{m}$ (MLN-OPA)	$8 \mu\text{J}$	100 fs

Tab. 3.3: Am Multicolor-Lasersystem verwendete Laserstrahlung