

# Kapitel 3

## Impulsverkürzung

### 3.1 Spektrale Verbreiterung

Für eine Reihe von zeitaufgelösten Experimenten ist die im vorhergehenden Kapitel mit der CPA-Technik erreichte Pulsdauer von 32 fs bei 800 nm bzw. 29 fs bei 400 nm nicht ausreichend oder nur grenzwertig anwendbar. Für die im späteren Kapitel behandelte impulsive Ramananregung der  $A_{1g}$ -Schwingungsmode von  $\text{SF}_6$  (43 fs) sind die bisher erzeugten Pulsdauern zu groß. Um kürzere Pulsdauern zu erreichen, die den experimentellen Bedingungen genügen, muss, mit Bezug auf Gleichung (2.15) (vgl. S. 24), die spektrale Bandbreite des Laserpulses vergrößert werden. Mit dieser Arbeit konnte erstmalig gezeigt werden, dass Pulsbreiten von 8 fs bei  $\lambda_0 = 400$  nm nach spektraler Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation in gasgefüllten Hohlfasern erzeugt werden können [DNK99]. Dabei steht die Phasenkontrolle höherer Ordnung im Zentrum der nachfolgenden Betrachtungen.

Der grundlegende Zusammenhang zur spektralen Verbreiterung eines Laserpulses ist in Gleichung (2.1) enthalten. Nach Umformung auf die langsame Amplituden-Näherung, die nur die Einhüllende der Feldamplitude berücksichtigt, schreibt sich die Gleichung mit der Polarisation dritter Ordnung als

$$i \frac{\partial A(z, \eta)}{\partial z} = \underbrace{-\frac{i}{2} \alpha \cdot A}_{\text{Absorption}} + \underbrace{\frac{k_2}{2} \cdot \frac{\partial^2 A}{\partial \eta^2}}_{\text{GVD}} - \underbrace{\gamma \cdot |A|^2 A}_{\text{SPM}} \quad (3.1)$$

$\eta = t - k_1 \cdot z$	:	mitgeführte Zeit
$k_2$	:	GVD-Parameter (Dispersion zweiter Ordnung)
$\gamma$	:	Nichtlinearitätskoeffizient $= \frac{n_2 \cdot \omega_0}{2c} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}}$
$\alpha$	:	Absorptionskoeffizient
SPM	:	Selbstphasenmodulation

Die Lösung der Wellengleichung ohne Berücksichtigung der Dispersion und Absorption führt zu einer Intensitätsabhängigkeit ( $|A^2|$ ) der Phase des Laserpulses:

$$A(z, \eta) = A(0, \eta) e^{-i\gamma |A(0, \eta)|^2 z} = A(0, \eta) e^{-i\phi}.$$

Diese Abhängigkeit begründet auch die Bezeichnung Selbstphasenmodulation. Mit der Beziehung für die Änderung der zentralen Frequenz des Laserpulses

$$\Delta\omega = \frac{d\phi}{dt}$$

ergibt sich für die neuen Frequenzkomponenten

$$\Delta\omega = -\gamma \frac{dI(t)}{dt} z. \quad (3.2)$$

Unter Berücksichtigung der Dispersion kann Gleichung (3.1) nur noch numerisch gelöst werden. Abbildung 3.1(oben) zeigt exemplarisch den Einfluß eines gaußförmigen Laserpulses auf die Änderung seines Spektrums. Im unteren Teil der Abbildung ist die Simulation der Verbreiterung eines gaußförmigen Laserpulses von 32 fs Dauer (1.2 mJ) und einer Fokusgröße von 220  $\mu\text{m}$  in 0.4 bar Argon dargestellt. Die Dispersion zweiter Ordnung des Mediums wird vernachlässigt. Die durch SPM erzeugte spektrale Phase zeigt über das verbreiterte Pulsspektrum im wesentlichen eine positive Phase zweiter Ordnung. Die niederfrequenten Frequenzkomponenten erscheinen also zeitlich vor den höherfrequenten („up chirp“).

Entscheidend für eine große spektrale Verbreiterung ist die Führung der Energie des Laserpulses durch das Medium, ohne dass Konkurrenzprozesse gleicher Ordnung wie Selbstfokussierung zur Zerstörung des Materials und der räumlichen Pulsstruktur führen. Geeignet sind vor allem Glasfasern, die durch Totalreflexion am Fasermantel den Puls über die gesamte Faserlänge und somit die Energie im definierten Raum

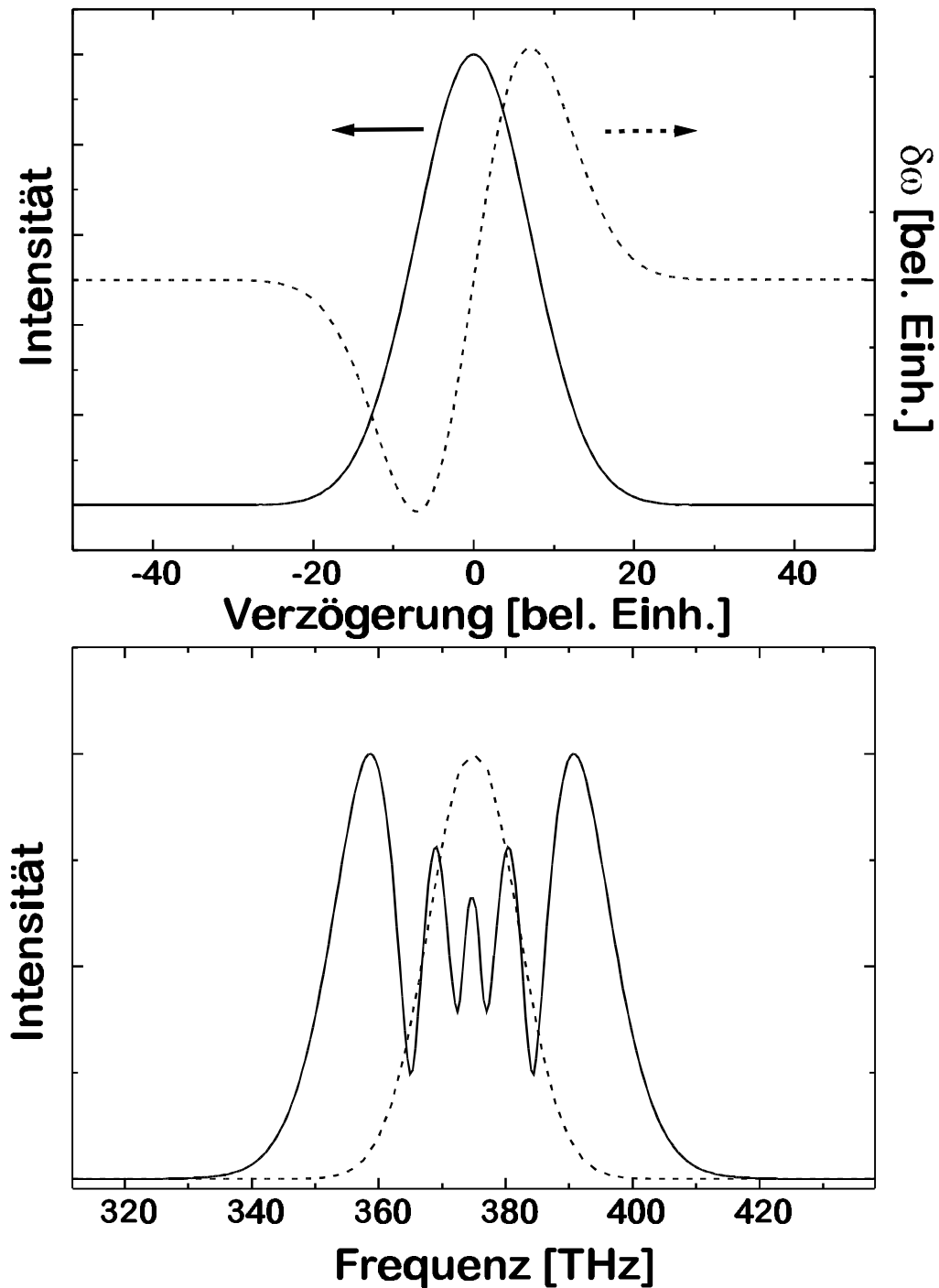


Abb. 3.1: **Oben:** Bei Änderung des Spektrums durch SPM erscheinen zu frühen Zeiten die niedrigfrequenten Frequenzkomponenten und später die hochfrequenten. Das Pulsspektrum verhält sich somit positiv-dispersiv. **Unten:** Simulation der spektralen Verbreiterung eines 32 fs-Pulses (1.2 mJ) bei 800 nm in 0.4 bar Argon. Das Frequenzspektrum vergrößert sich symmetrisch um einen Faktor 3 auf  $\Delta\nu=46$  THz ( $\Delta\lambda = 100$  nm) um die Zentralfrequenz. Die Simulation vernachlässigt Dispersion.

führen. Mit der spektralen Verbreiterung in kurzen Indexgradientenfasern wurden bereits 1985 Pulsverkürzungen von 5 ps auf 0.7 ps erreicht [DKN85]. Zwei Jahre später konnte die Kompression eines verstärkten Laserpulses bei  $\lambda=610$  nm auf 6 fs demonstriert werden [FBB87].

Ein-Moden-Fasern, also Fasern mit kleinem Durchmesser ( $\approx 4 \mu\text{m}$ ) und Quarzvollfüllung, begrenzen die geführte Energie jedoch auf unter 50 nJ. Höhere Energien führen zur Ionisation und damit Zerstörung des Mediums. Weiterhin senkt die große Dispersion schnell die Spitzenintensität und damit die  $\chi^{(3)}$ -Effekte. Deutlich höhere Energien können in Quarz-Hohlfasern (Kapillare) geführt werden, in denen Gas als Medium zur Selbstphasenmodulation eingesetzt wird. Aufgrund der sehr viel größeren Ionisationsschwelle von Edelgasen im Gegensatz zum Medium in Vollquarzfaser können Pulsenergien, abhängig vom Kapillardurchmesser, bis in den J-Bereich geführt werden. Erstmals wurde 1996 die spektrale Verbreiterung mit nachfolgender Pulskompression in gasgefüllten Quarz-Hohlfasern bei 800 nm zentraler Wellenlänge gezeigt [NSS96]. Die gleiche Technik wurde im Rahmen dieser Arbeit zur Kompression von Pulsen bei 400 nm auf 8 fs Dauer mit einer Pulsenergie von  $15 \mu\text{J}$  angewandt [DNK99].

Die bisher kürzesten erzeugten Pulse in gasgefüllten Hohlfasern erreichen 4.6 fs bei  $\lambda = 800$  nm [BWP97]. Dabei müssen die durch Selbstphasenmodulation, Material- und Modendispersion der Faser, aufgeprägten Phasen höherer Ordnung vollständig kompensiert werden. Das Zusammenwirken von Faserdispersion und Selbstphasenmodulation führt zu einem größeren linearen Bereich der Phase und damit zur besseren Komprimierbarkeit des verbreiterten Pulses (siehe Abbildung 3.1) [TSS84].

Die Einkopplung des Laserpulses in die Hohlleiter ist experimentell anspruchsvoller als in Quarzvollfasern, da beim Übergang vom optisch dünneren Medium (Gas) in den Fasermantel keine Totalreflexion auftritt. Die Energie kann auch in den Fasermantel eintreten und dort gestreut werden, sodass keine vollständige Energieführung im Gas stattfindet. Das einzukoppelnde Licht wird unter dem Grenzwinkel für totale Oberflächenreflexion am Fasermantel in die Hohlleiter geführt. Abbildung 3.2 demonstriert das Einkoppelverhalten.

In dielektrischen Hohlfasern, wie den in dieser Arbeit verwendeten Quarzmantelfasern, sind verschiedene Ausbreitungsmoden wie Transversal-Elektrische Moden ( $\text{TE}_{0m}$ ), Transversal-Magnetische Moden ( $\text{TM}_{0m}$ ) und sog. Hybrid-Moden ( $\text{EH}_{pm}$ ,  $|p| > 1$ ) möglich. Ist der Strahl linear polarisiert, werden nur noch EH-Moden bzw.

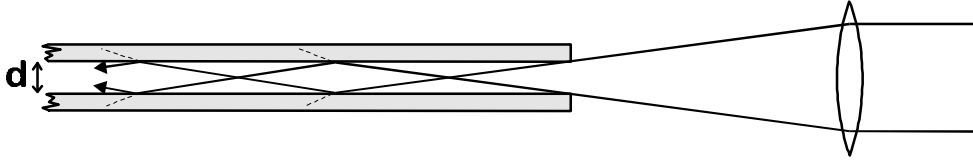


Abb. 3.2: Der Strahl wird unter Totalreflexionswinkel in die Hohlleiterfaser mit Durchmesser  $d$  eingekoppelt. Die Streuung in den Faserwänden führt zur Modendiskriminierung, aber auch zu Verlusten.

Kombinationen von EH- und TE-Moden effektiv angeregt. Die Mode mit der geringsten Dämpfung ist die  $TE_{01}$ , die jedoch ein nur schwer realisierbares Brechungsindexverhältnis von Faserkern zu Gas von 2.02 und größer erfordert [MSc64]. Für kleinere Verhältnisse führt die  $EH_{11}$ -Mode die Energie in der Faser effektivsten. Quarz als Faserkern mit einem Brechungsindex von etwa 1.54 für den sichtbaren Spektralbereich unterstützt damit  $EH_{11}$ -Moden am günstigsten.

Die Dämpfungskonstante  $\alpha_{nm}$  (Imaginärteil der Modengleichung) wird durch folgenden Zusammenhang berechnet [MSc64]:

$$\alpha_{nm} = \left( \frac{u_{nm}}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda^2}{a^3} \frac{\frac{1}{2}\nu^2 + 1}{\sqrt{\nu^2 - 1}}. \quad (3.3)$$

$u_{nm}$  ist die  $m$ -te Nullstelle der Besselfunktion  $J_{n-1}(u_{nm}) = 0$ ,  $a$  der Radius der Hohlleiterfaser,  $\lambda$  die zentrale Wellenlänge und  $\nu$  das Brechungsindexverhältnis von Faserkern zu Gas. Die für verschiedene Moden und Faserdurchmesser sowie Faserlängen errechneten Dämpfungen sind in Abbildung 3.3 aufgetragen. Daraus ist deutlich ersichtlich, dass die  $EH_{11}$ -Mode die geringste Dämpfung erfährt, die mit steigendem Faserdurchmesser weiter sinkt. Für Wellenlängen um  $\lambda = 400$  nm ist die Dämpfung ebenfalls geringer als für  $\lambda = 800$  nm.

Aufgrund der berechneten Dämpfungen in Abhängigkeit vom Faserdurchmesser, werden in dieser Arbeit Quarz-Hohlfasern mit einem Durchmesser von  $220 \mu\text{m}$  verwendet (fibertek GmbH, Berlin-Schöneweide) um ein großes Verhältnis von in die Faser aus- zu eingekoppelter Leistung zu erhalten. Die verwendete Faserlänge beträgt 70-80 cm, da die Diskriminierung aller Moden bis auf die  $EH_{11}$ -Mode sehr effektiv ist (siehe Abbildung 3.3 oben und Mitte). Dabei ist die Modenselektion im Bereich um 800 nm

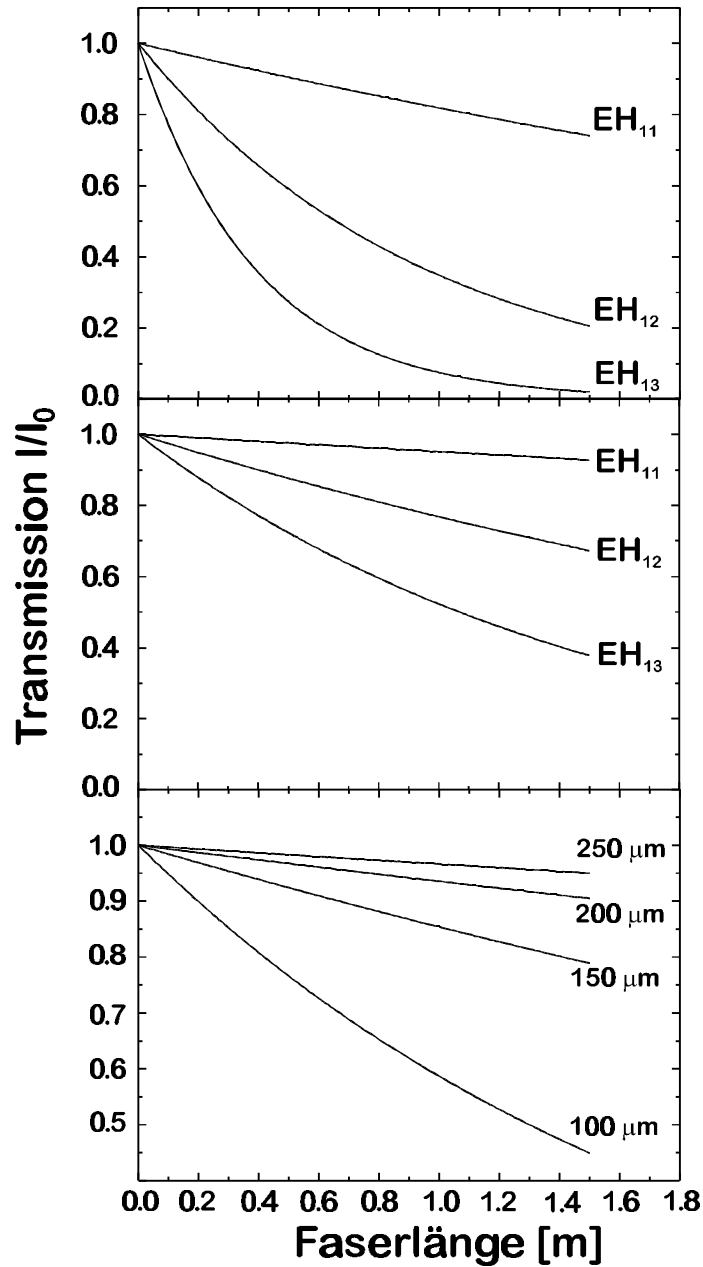


Abb. 3.3: **Oben:** Dämpfung der verschiedenen  $EH_{nm}$ -Hybrid-Moden in einer Hohlleiter mit  $220\ \mu\text{m}$  Durchmesser bei  $\lambda = 800\ \text{nm}$ . **Mitte:** Dämpfung bei  $400\ \text{nm}$ . **Unten:** Dämpfung der  $EH_{11}$ -Mode in Abhängigkeit vom Hohlleiterdurchmesser bei  $\lambda = 400\ \text{nm}$ .

deutlich besser als bei 400 nm, d.h. das Modenprofil nach der Faser ist bei kürzeren Wellenlängen komplexer. Wie aus der Wellenlängenabhängigkeit der Dämpfung ersichtlich ist (Gleichung (3.3)) werden die spektralen Anteile des verbreiterten Spektrums unterschiedlich stark gedämpft. Der Dämpfungsunterschied zwischen den kurzwelligen und langwelligen Komponenten am Rand eines 100 nm breiten Spektrums um  $\lambda = 800$  nm beträgt allerdings nur 13% und beeinflusst die Form des Spektrums am Ausgang der Faser damit nur gering.

Besonderes Gewicht erhält die Einkopplungseffizienz des Strahls in die Faser. Nur die Anpassung der unterstützten Fasermode an die Mode des Laserstrahls lässt eine effiziente Einkopplung zu. Der Zusammenhang zwischen gaußförmigem Strahlprofil des Laserpulses und angeregter Fasermode führt auf die Kopplungseffizienz  $\eta$  [NSS98]

$$\eta = \frac{4 \left[ \int J_0(u_{1m} \frac{r}{a}) \cdot e^{-r^2/w^2} r dr \right]^2}{w^2 \int J_0(u_{1m} \frac{r}{a}) r dr} \quad (3.4)$$

mit  $w$ =Strahlradius im Fokus,  $a$ =Faserradius und  $J_0$ =Besselfunktion. In Abbildung 3.4 sind die Kopplungseffizienten für drei EH-Moden errechnet. Daraus ist ersichtlich, dass nur die  $EH_{11}$ -Mode mit  $\eta = 0.98$  bei einem Verhältnis des Fokusbereichs zum Faserdurchmesser von  $w/a=0.644$  effizient in den Fasereingang gekoppelt wird. Der Fokusbereich muss etwas mehr als halb so groß sein wie der Faserdurchmesser, um den größten Teil der Energie in die Faser koppeln zu können.

Durch Separation des Realteils der Modengleichung [MSc64] wird die Phase  $k(\omega)$  bestimmt

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} \left[ 1 - \frac{1}{2} \left( \frac{u_{nm} \cdot c}{\omega \cdot a} \right)^2 \right] \quad (3.5)$$

und daraus die Dispersion zweiter Ordnung

$$\frac{d^2 k(\omega)}{d\omega^2} = -c \cdot \frac{u_{nm}^2}{\omega^3 \cdot a^2} \left[ \frac{fs^2}{m} \right] \quad (3.6)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$  [ $m/fs$ ] und Frequenz  $\omega$  [ $1/fs$ ] errechnet.  $u_{nm}$  für die verlustarme  $EH_{11}$ -Mode beträgt 2.405 und für  $EH_{12}$  5.520.

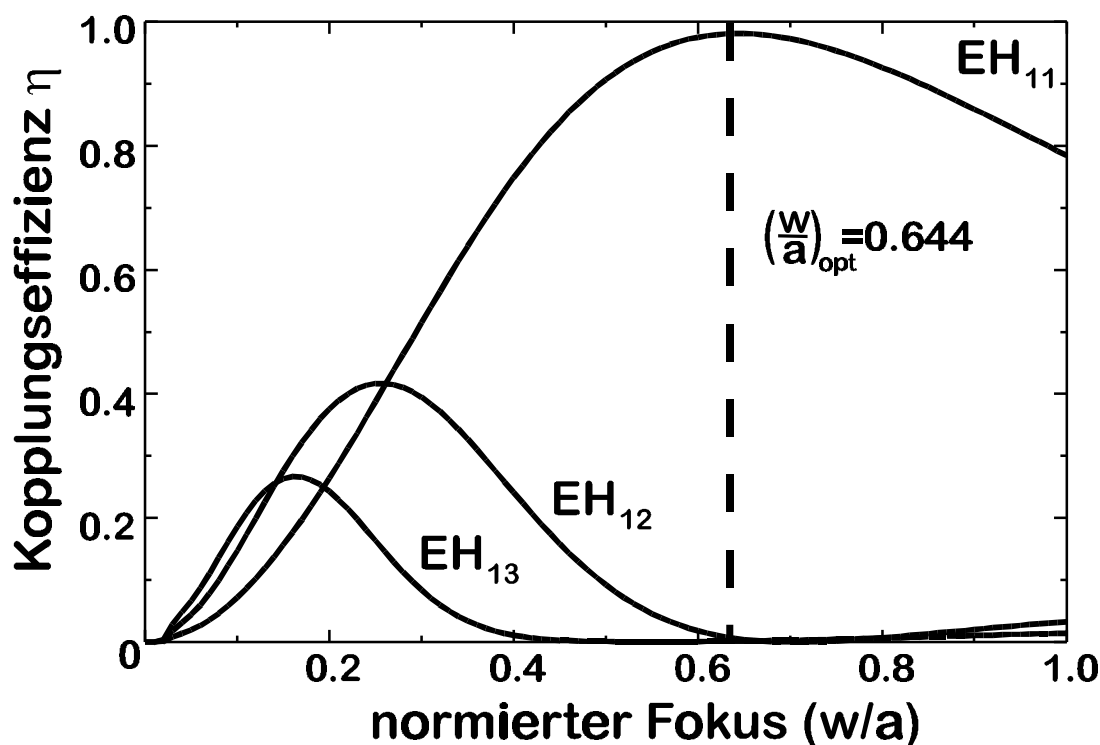


Abb. 3.4: Die Berechnung der Einkopplungseffizienz eines linear polarisierten gaußförmigen Laserprofils in die Hohlleiter in Abhängigkeit vom Fokussdurchmesser zeigt die alleinige Unterstützung der  $EH_{11}$ -Mode bei einem Verhältnis von Fokussdurchmesser zu Faserdurchmesser von  $w/a=0.644$ .

Die Faserdispersion zweiter Ordnung besitzt im Gegensatz zur positiven Dispersion des Gases, mit dem die Hohlleiter gefüllt ist, ein negatives Vorzeichen. Wird Argon als Wechselwirkungsmedium verwendet, so ergibt sich als Gesamtdispersion zweiter Ordnung

$$\frac{d^2k(\omega)}{d\omega^2} = -c \cdot \frac{u_{nm}^2}{\omega^3 \cdot a^2} + 7.880537 \cdot p \cdot \omega \left[ \frac{fs^2}{m} \right] \quad (3.7)$$

mit  $p$  als Gasdruck in bar.

Weitere wichtige Beziehungen, die für die Berechnung optimaler Faserparameter und Fokussierbedingungen notwendig sind, werden nur kurz angegeben [TSS84]. Besondere Bedeutung hat die optimale Faserlänge  $L_{opt} \approx \sqrt{6L_{nl}L_d}$ .  $L_{nl}$  und  $L_d$  sind die nichtlineare Länge bzw. die Dispersionslänge und geben die Längen an, ab denen die



Dispersion bzw. nichtlineare Effekte deutlichen Einfluss auf die Pulsparameter besitzen. Deutlich heißt hier, eine Verbreiterung des Spektrums auf das Doppelte bzw. im Fall von  $L_d$  eine Verbreiterung der Pulsdauer um den Faktor 2. Es ist dabei natürlich zu beachten, dass beide Größen über die Gleichung (3.1) gekoppelt sind. Die Dispersionslänge berechnet sich für Gaußpulse nach  $L_d = \Delta\tau^2/|k_2| \ln(2)$  und  $L_{nl} = 1/\gamma P_0$ .  $\gamma = n_2\omega_0/cA_{eff}$  ist der Nichtlinearitätskoeffizient und  $A_{eff}$  die effektive Modenfläche. Die Bestimmung von  $n_2$  ist im Einzelfall nur experimentell durchzuführen. Für einen ausgewählten Wellenlängenbereich sind die  $n_2$ -Werte von Argon und Krypton tabelliert [LLP85].

### 3.1.1 Kompression bei 800 nm

Das Ziel der Faserkompression bei 800 nm ist es, kurze Pulse mit maximal erreichbarer Energie zu erhalten. Die Berechnung der Faserdämpfung in Abbildung 3.3 unten zeigt, dass der Faserdurchmesser möglichst groß sein soll. Die fokussierte Leistung muss jedoch zum Einsetzen der Selbstphasenmodulation im Gas führen. Bei einem Faserdurchmesser von 220  $\mu m$ , einer eingekoppelten Pulsdauer von 32 fs (1 mJ) und einem Argondruck von 1 bar ergibt die Abschätzung für  $L_{nl}=2$  cm. Bei größerer Faserlänge, wie sie im experimentellen Aufbau verwendet wird, ist die Selbstphasenmodulation für den gewählten Faserdurchmesser also ausreichend. Die Dispersionslänge beträgt  $L_d = 194$  m für einen Argondruck von 1 bar bei 800 nm zentraler Wellenlänge. Die Ursache der Größe der Dispersionslänge ist in der hohen negativen Hohlfaserdispersion zu suchen, die die positive Dispersion des Gases abschwächt. Bereits hier wird deutlich, dass die Bedeutung der Dispersion gering ist. Als optimale Faserlänge berechnet sich  $L_{opt}=4.8$  m. Die Unsicherheit der Berechnung der optimalen Faserlänge ist hauptsächlich auf die Unsicherheit des nichtlinearen Parameters  $n_2$  zurückzuführen. Die geringe Bedeutung der Dispersion führt ebenso zu einer großen optimalen Länge. Aus experimentellen und praktischen Erwägungen (Begrenzung der Tischlänge) wird eine Faserlänge von 70 cm eingesetzt. Damit bleibt die in Abbildung 3.3 berechnete Transmission oberhalb 86%. Der Strahldurchmesser im Fokus beträgt etwa 50  $\mu m$ . Das Kopplungsverhältnis der  $EH_{11}$ -Mode liegt mit diesen Parametern bei 82%. Maximal sind damit 70% der eingekoppelten Leistung durch die Faser zu führen.

Die experimentell ermittelte Effizienz der Faserkompression um 800 nm liegt bei 55%, d.h. mit einer eingekoppelten Leistung von 1.1 W können 0.6 W durch die Fa-

ser geführt werden, im wesentlichen unabhängig von Gasdrücken bis zu einigen bar in der Faser. Wird die evakuierte Faser mit Gas befüllt, ändern sich im geringen Maße die Kopplungsbedingungen für die Moden am Fasereintritt und es muss zur optimalen Kopplung nachjustiert werden. Die Ursache für die geringere experimentelle Gesamteffizienz ist durch das nicht optimale Strahlprofil im Kopplungsbereich bedingt.

In Abbildung 3.5 ist die im Zusammenhang mit der Erstellung dieser Arbeit entwickelte Anordnung zur Kompression bei  $\lambda=800$  nm skizziert.

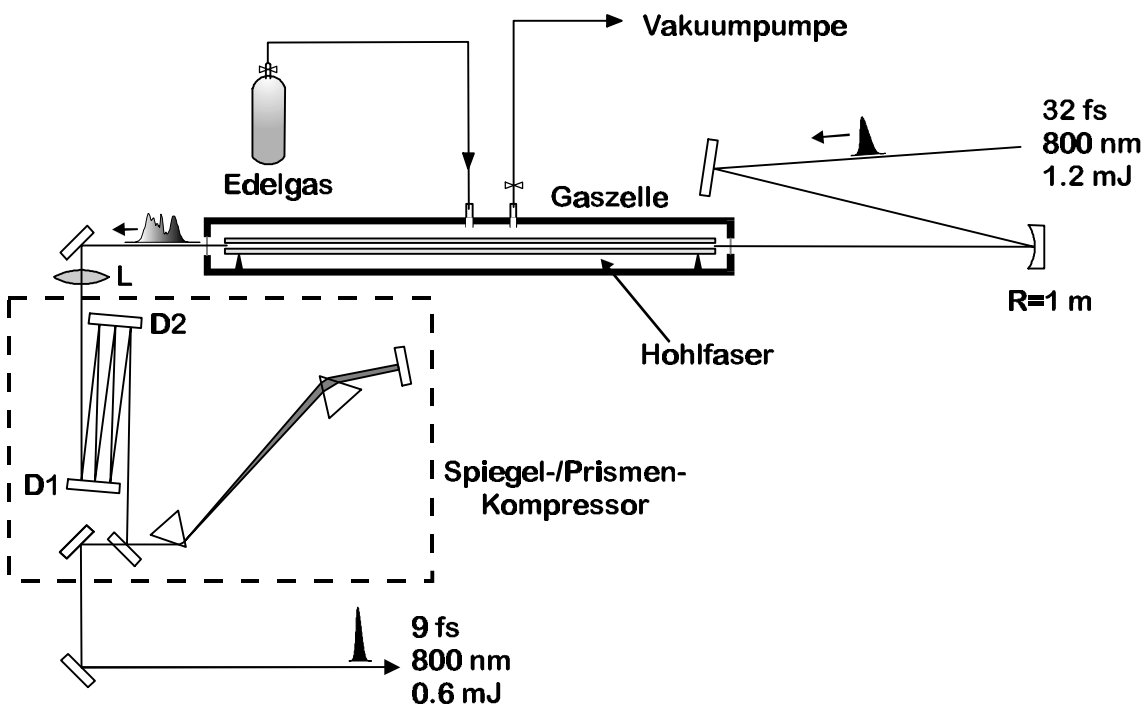


Abb. 3.5: Faserkompressor zur nichtlinearen Pulsverkürzung durch Selbstphasenmodulation in einer gasgefüllten Hohlfaser. Als Füllgas dient Argon. Die Ein- und Austrittsfenster der Gaszelle bestehen aus  $300 \mu\text{m}$  Quarz. D1 und D2: dispersive Spiegel. L: Quarzlinse mit  $f=30$  cm.

Das gemessene Strahlprofil des Verstärkers und des Faserkompressors mit 0.4 bar Argonfüllung zeigt Abbildung 3.6. Bei entsprechender Justage der Faser wird die Modenstruktur des Lasers im allgemeinen verbessert. Mit einer schlechten Einkopplungs-mode wird allerdings auch die Einkopplungseffizienz verringert. Im Bild unten ist die Anpassung des Modenquerschnitts nach der Faser an ein  $\text{EH}_{11}$ -Profil berechnet. Bei 800 nm und einem Faserdurchmesser von  $220 \mu\text{m}$  wird ausschließlich diese Mode unterstützt. Andere Moden verschwinden aufgrund geringer Einkopplungseffizienzen und

starker Dämpfung ab einer Faserlänge von 70 cm.

Zur Füllung der Hohlaser sind im wesentlichen alle Edelgase geeignet, deren Ionisationspotential (IP) ausreichend hoch liegt, um Multiphotonenanregung durch den eingekoppelten Laserpuls zu reduzieren oder zu vermeiden. In Tabelle 3.1 sind gängige Edelgase mit ihren IP's aufgeführt sowie die notwendige Ordnung des Multiphotonenprozesses, um Ionisation bei 800 nm zu erreichen. Die Intensitätsschwelle für Multiphotonenionisation in diesem Wellenlängenbereich beträgt für Argon  $2.5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> [ZPM96]. Die Intensitäten bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Faserkompressionen liegen etwa um einen Faktor 3 unterhalb der Schwelle. Multiphotonenionisation kann deshalb ausgeschlossen werden.

Edelgas	He	Ne	Ar	Kr	Xe
Ionisationspotential [eV]	24.58	21.56	15.76	14.00	12.13
Ordnung des Multiphotonenprozesses ( $\lambda = 800$ nm)	16	14	10	9	8
nichtlineare Polarisation ( $\chi^{(3)}/\chi_{He}^{(3)}$ , $\lambda = 1055$ nm)	1	1.8	23.5	64.0	188.2
nichtlineare Polarisation ( $\chi^{(3)}/\chi_{He}^{(3)}$ , $\lambda = 694$ nm)	1	2.23	31.5	96.5	245

Tabelle 3.1: Angegeben sind jeweils die Ionisationspotentiale für mögliche Edelgasfüllungen der Hohlaser und die Ordnung des Multiphotonenprozesses, der für eine Ionisierung bei 800 nm notwendig ist.  $\chi_{He}^{(3)} = 3.43 \cdot 10^{-28} \text{m}^2/\text{V}^2$  [LLP85].

Aus praktischen Erwägungen heraus bietet sich bei den hier durchgeführten Experimenten Argon als kostengünstiges Gas mit einem mittleren IP und nichtlinearer Polarisation an. Helium als Füllgas führt zwar wesentlich höhere Energien durch die Faser, bevor es ionisiert wird. Aber erst ab eingekoppelten Energien wesentlich über 1 mJ pro Puls ist Helium als Gas mit hohem IP einzusetzen, da die nichtlineare Polarisation klein ist. Geringe nichtlineare Polarisation erfordern höhere Intensitäten um vergleichbare Selbstphasenmodulation zu erreichen. Wie aus Tabelle 3.1 weiter zu er-

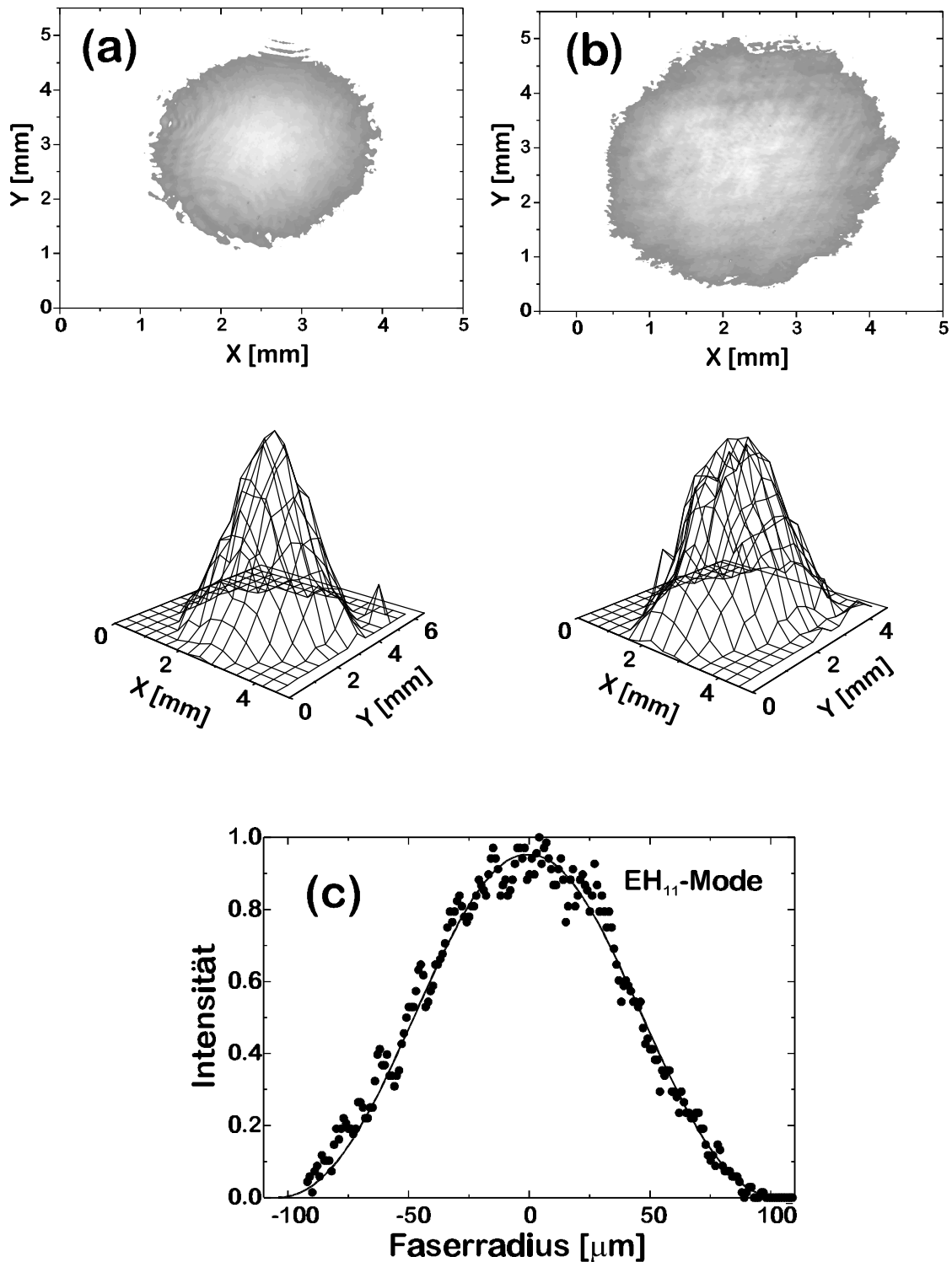


Abb. 3.6: (a)  $\text{EH}_{11}$ -Modenprofil nach der Faser (0.4 bar Argon). (b) Strahlprofil nach Verstärkung und Kompression. Darunter zur Verdeutlichung jeweils die 3-dimensionale Auftragung. (c) gemessenes Strahlprofil mit der Anpassung durch eine reine  $\text{EH}_{11}$ -Mode. Nur diese Mode wird bei  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ , einem Faserdurchmesser von  $220 \mu\text{m}$ , Fokussdurchmesser  $140 \mu\text{m}$  und einer Faserlänge von  $70 \text{ cm}$  unterstützt.

sehen ist, betragen die Differenzen zwischen  $\chi_{1055nm}^{(3)}$  und  $\chi_{694nm}^{(3)}$  etwa 30%. Dieser Unterschied schlägt sich als Unsicherheit in der Bestimmung von  $n_2$  nieder und damit in der Berechnung der Faserparameter, insbesondere bei Abweichung von den in der Tabelle angegebenen Wellenlängen.

Die spektrale Breite des Pulses kann im wesentlichen durch den Druck bestimmt werden. Hoher Druck führt zu erhöhter Dispersion, sowohl durch den linearen Brechungsindex, als auch durch den nichtlinearen. Dieser führt bei sehr hohem Druck zu einem komplexen Phasengang und damit zur Unkomprimierbarkeit des gesamten Spektrums. Abbildung 3.7 zeigt die Verbreiterung des Spektrums in Abhängigkeit vom Argondruck bei 800 nm. Der eingekoppelte Puls besitzt eine Energie von 1 mJ und eine Pulsdauer von etwa 38 fs. Die theoretische Anpassung erfolgt nach Gleichung (3.1). Dispersion und Absorption wurden dabei vernachlässigt.

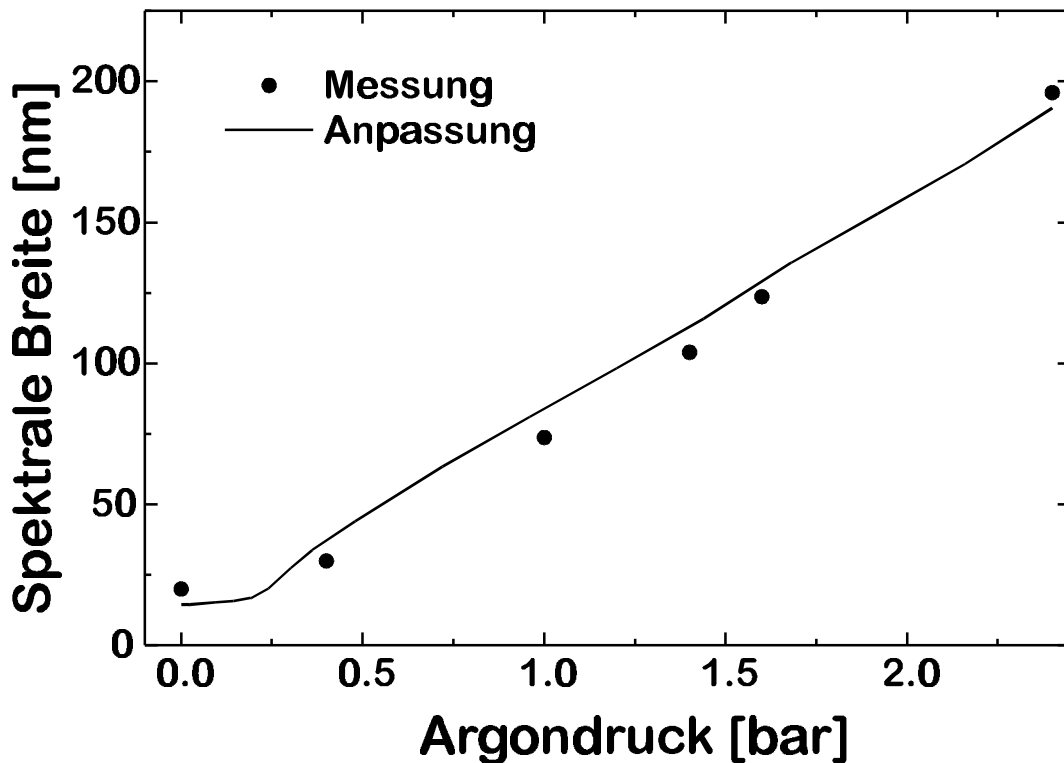


Abb. 3.7: Die spektrale Verbreiterung (Halbwertsbreite) in Argon bei 800 nm wurde in einer 220  $\mu\text{m}$ -Faser gemessen. Die theoretische Anpassung erfolgt mit Gleichung (3.1) unter Vernachlässigung der Dispersion und Absorption.

Wie aus Abbildung 3.7 zu ersehen ist, beginnt der relevante Bereich der spektralen Verbreiterung bei einem Gasdruck von 0.3 bar. Ab hier werden spektrale Halbwerts-

breiten von 40 nm und darüber erreicht. Der Anstieg ist im gezeigten Bereich von 0.3 bis 2.4 bar linear in Übereinstimmung mit der Anpassung. Damit kann die Dispersion in diesem Druckbereich als gering betrachtet werden.

Zur Kompression des spektral verbreiterten Pulses bei 800 nm wird eine Kombination aus einer Quarz-Prismensequenz und dispersiven Spiegeln gewählt. Die 60°-Prismen werden mit einem Apexabstand von 108 cm installiert. Die Dispersion zweiter Ordnung bzw. dritter Ordnung beträgt in dieser Konfiguration  $-602 \text{ fs}^2$  bzw.  $-295 \text{ fs}^3$  bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm. Die optimale Kompression wird zusätzlich mit 6 Reflexionen der dispersiven Spiegel (vgl. S.14) auf 9 fs entfaltete Pulsbreite erreicht. In Abbildung 3.8 ist die SD-Korrelation des Pulses in 100  $\mu\text{m}$  BBO zu sehen. Die Schwingungen auf der negativen Zeitachse deuten auf eine resultierende Phase dritter Ordnung hin. Der Argondruck ist mit 0.4 bar niedrig, sodass anteilige Gas- und Faserdispersion vernachlässigt werden können. Die eingekoppelte Energie beträgt 1.1 mJ, ausgekoppelt werden 0.58 mJ. Das entspricht einer Effizienz von 52%. Die Verluste am Kompressor betragen etwa 15%. Damit liegt die Gesamteffizienz bei ca. 45% nach Kompression. Die Impulsspitzenleistung erreicht 56 GW. Fokussierung des Strahls (10 mm Durchmesser) mit einem  $R=50$  mm Breitbandspiegel können somit zu Fokusintensitäten von nahezu  $10^{17} \text{ W/cm}^2$  führen.

Für die Durchführung der nachfolgenden Experimente werden jedoch ultrakurze Laserpulse mit zentralen Wellenlängen sowohl bei 800 nm als auch bei 400 nm benötigt. Es gibt zwei verschiedene Möglichkeiten, faserkomprimierte Pulse um 400 nm bereitzustellen. Das erste Szenario besteht in der Wandlung der roten komprimierten Faserpulse in nichtlinearen Kristallen (SHG). Das zweite Szenario wandelt im ersten Schritt die Verstärkerpulse von 800 nm zu 400 nm mit anschließender Faserkompression. Beide Möglichkeiten werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

### 3.1.2 Kompression bei 400 nm

Die einfachste Methode der Erzeugung ultrakurzer Laserpulse bei 400 nm bietet das erste Szenario. Zur Frequenzwandlung steht ein 100  $\mu\text{m}$  dicker BBO-Kristall mit einem Schnittwinkel von  $\Theta = 29^\circ$  zur Verfügung. Da jedoch nicht für alle spektralen Komponenten des breitbandigen Laserpulses bei 800 nm Phasenanpassung im verwendeten Kristall erreicht werden kann (d.h.  $\Delta k = 0$ ), kann nicht das gesamte Spektrum in die doppelte Frequenz gewandelt werden. Vielmehr fällt die Konversionseffizienz für Fre-

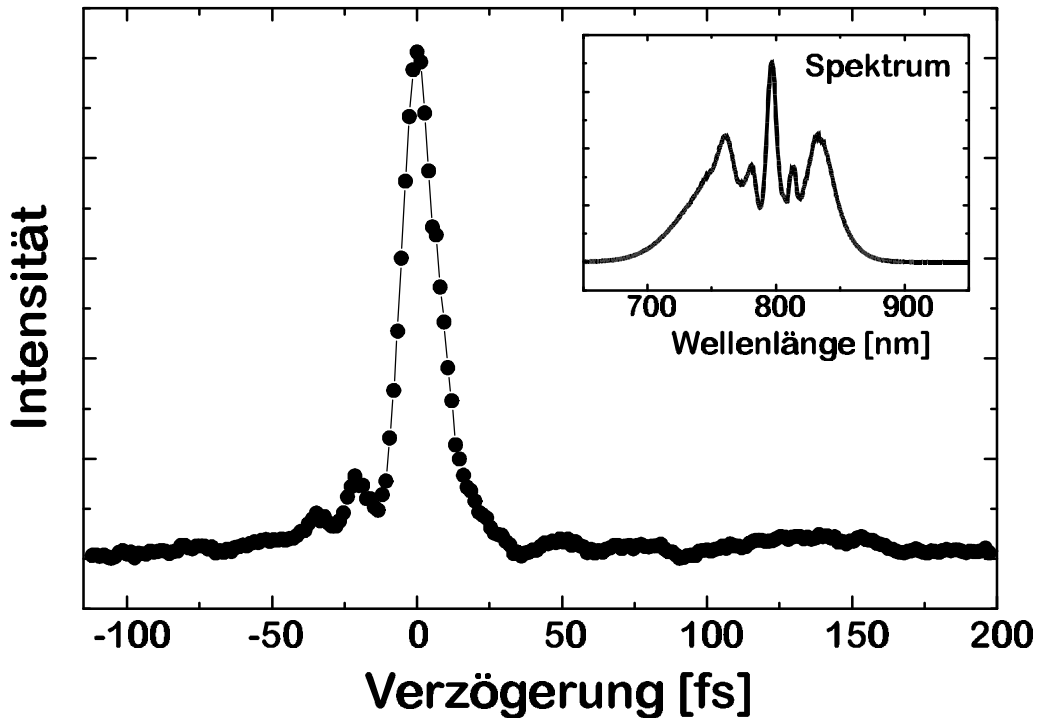


Abb. 3.8: Der kürzeste Puls im Faserkompressor bei 800 nm wird mit einem Prismenabstand von 108 cm und 6 Reflexionen dispersiver Spiegel erreicht. Entfaltung der 13 fs SD-Korrelation führt auf eine Halbwertsbreite der Pulsdauer von 9 fs. Die komprimierte Energie beträgt 0.58 mJ. Schwingungen auf der negativen Zeitachse am Pulsfuß deuten auf eine resultierende negative Phase dritter Ordnung hin.

quenzkomponenten mit  $\Delta k \neq 0$  stark ab [DIR96, S.131]. Das gewandelte Spektrum ist schmäler und damit die Pulslänge bei 400 nm länger. Der Zusammenhang wurde bereits in Abbildung 2.24 auf S. 49 verdeutlicht. Hinzu kommt die Gruppengeschwindigkeits-Verstimmung zwischen fundamentaler und gewandelter Wellenlänge, die zu weiterer Verlängerung des Pulses führt (vgl. S. 48).

Der 9 fs Puls bei 800 nm (0.6 mJ) wird mit einer  $f=50$  cm Linse in den Kristall fokussiert. Der Fokus liegt 2 cm hinter dem Kristall, um unterhalb der Zerstörschwelle zu bleiben. Die gewandelte Energie beträgt mit 0.035 mJ etwa 6 Prozent. Im Gegensatz zur direkten Wandlung des Verstärkerpulses (S.45), ist die Effizienz gering. Aufgrund des breiten Spektrums von 119 nm bei 800 nm besteht nur für ein Teilspektrum Phasenanpassung im Kristall, der übrige Teil wird nicht konvertiert. In Abbildung 3.9 sind die wichtigsten Parameter der Frequenzkonversion des ersten Szenarios dargestellt.

Der blaue Puls zeigt resultierende Phase zweiter und dritter Ordnung. Die phasenfreie Kompression des Spektrums würde auf eine Pulsdauer von 12.5 fs führen. Auf eine Nachkompression wird hier jedoch verzichtet, da die konvertierte Energie schwach ist und das übertragene Spektrum schmal.

Es werden weitere Möglichkeiten der Frequenzverdopplung breitbandiger Spektren vorgeschlagen. Mit der Positionierung eines nichtlinearen Kristalls in die Fokalebene eines 1:1-Gitterteleskops, lassen sich die verschiedenen Frequenzkomponenten des breitbandigen Laserpulses mit unterschiedlichen, phasenangepassten Winkeln in den Kristall fokussieren [SzB90],[OEM89]. Aufgrund der starken Fokussierung ist diese Methode jedoch auf geringe Pulsenergien beschränkt, die unterhalb der Zerstörschwelle des Wandlungsmediums liegen.

Mit der Anordnung des zweiten Szenarios werden im Rahmen dieser Arbeit erstmalig ultrakurze Laserpulse mit 8 fs Pulsdauer und  $15 \mu\text{J}$  bei 400 nm zentraler Wellenlänge erzeugt [DNK99]. Die Pulse werden im Gegensatz zur zuvor beschriebenen Anordnung der Frequenzwandlung jedoch nachkomprimiert, um kürzeste Pulse zu erhalten. Die Gesamtanordnung ist der vorhergehenden im wesentlichen ähnlich. Zusätzlich kommt die in Abbildung refshg1 gezeigte Frequenzverdopplung der Verstärkerstrahlung hinzu. Die Kompressorstufe besteht aus einer erstmalig für diesen Spektralbereich angewandten Kombination dispersiver Spiegel und Quarzprismen. Abbildung 3.10 stellt den gesamten Kompressoraufbau dar.

Die Abhängigkeit der spektralen Breite durch Selbstphasenmodulation in Argon ist in Abbildung 3.11 aufgetragen. Die theoretische Anpassung für 400 nm wird nach dem gleichen Modell durchgeführt, wie die Anpassung der spektralen Verbreiterung bei 800 nm (S. 65). Die Vernachlässigung der Faser- und Gasdispersion zeigt, dass diese ebenfalls nur untergeordnete Bedeutung besitzt.

Nach Gleichung (3.3) auf S.57 ist die Dämpfung bei 400 nm in der Faser geringer, d.h. das Verhältnis von ein- zu ausgekoppelter Leistung sollte größer sein. Mit einem  $R=1$  m Spiegel wird ein Fokusdurchmesser von etwa  $100 \mu\text{m}$  erreicht. Bei einem Faserdurchmesser von  $220 \mu\text{m}$  beträgt das Verhältnis der Durchmesser 0.46. Nach Gleichung (3.4) ergibt sich daraus ein Kopplungsverhältnis von 84%. Mit der verwendeten Faserlänge von 70 cm sollte die ausgekoppelte Leistung im Bereich um 80% liegen. Eine Erklärung für die gemessene Effizienz von 25% wird im folgenden erörtert. Das Strahlprofil der erzeugten zweiten Harmonischen ist in Abbildung 3.12 aufgetragen. Hier ist



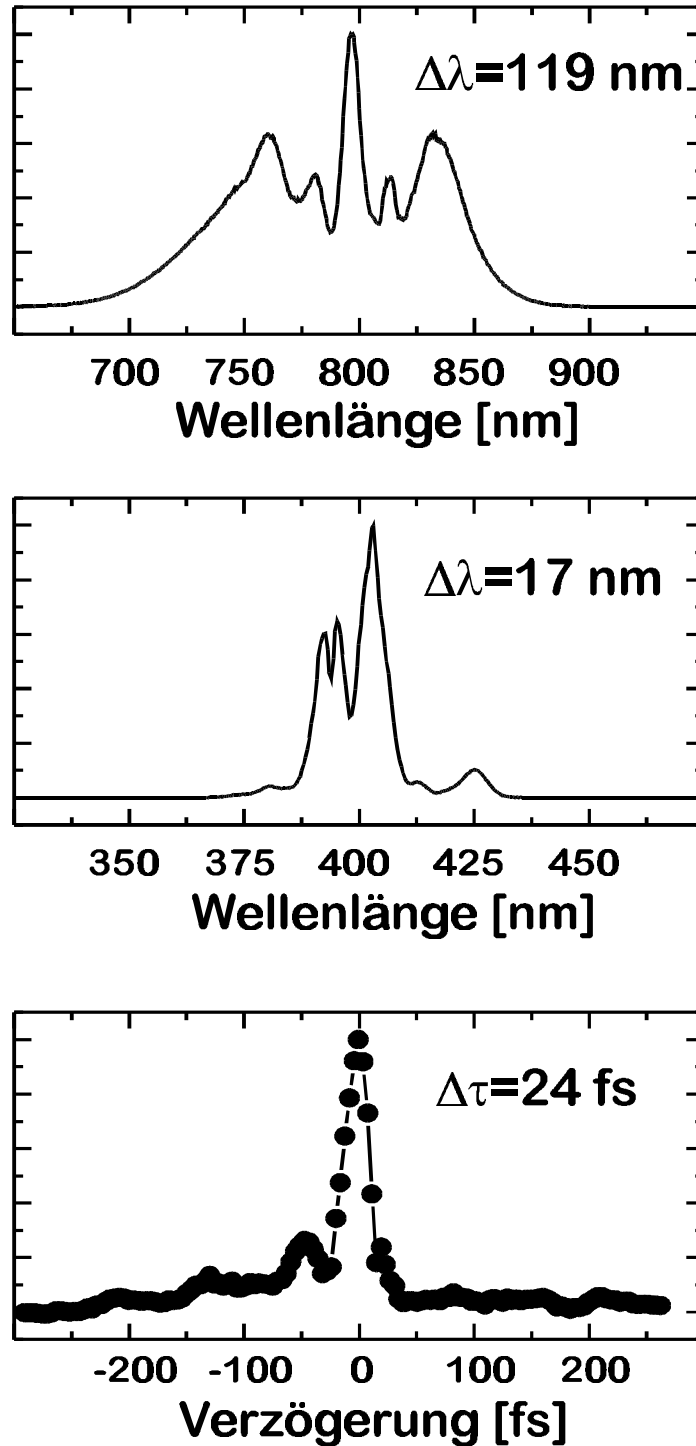


Abb. 3.9: **Oben:** In den Kristall eingekoppeltes hohlfaserverbreitertes Spektrum. **Mitte:** konvertiertes Spektrum bei 400 nm. Die Halbwertsbreite von 17 nm zeigt, dass nur ein Teil im Kristall gewandelt wird. **Unten:** SD-Korrelation des gewandelten Pulses. Die SD-Pulsbreite beträgt 24 fs. Auf eine Nachkompression wird verzichtet. Die resultierende Phase besteht aus zweiter und dritter Ordnung.

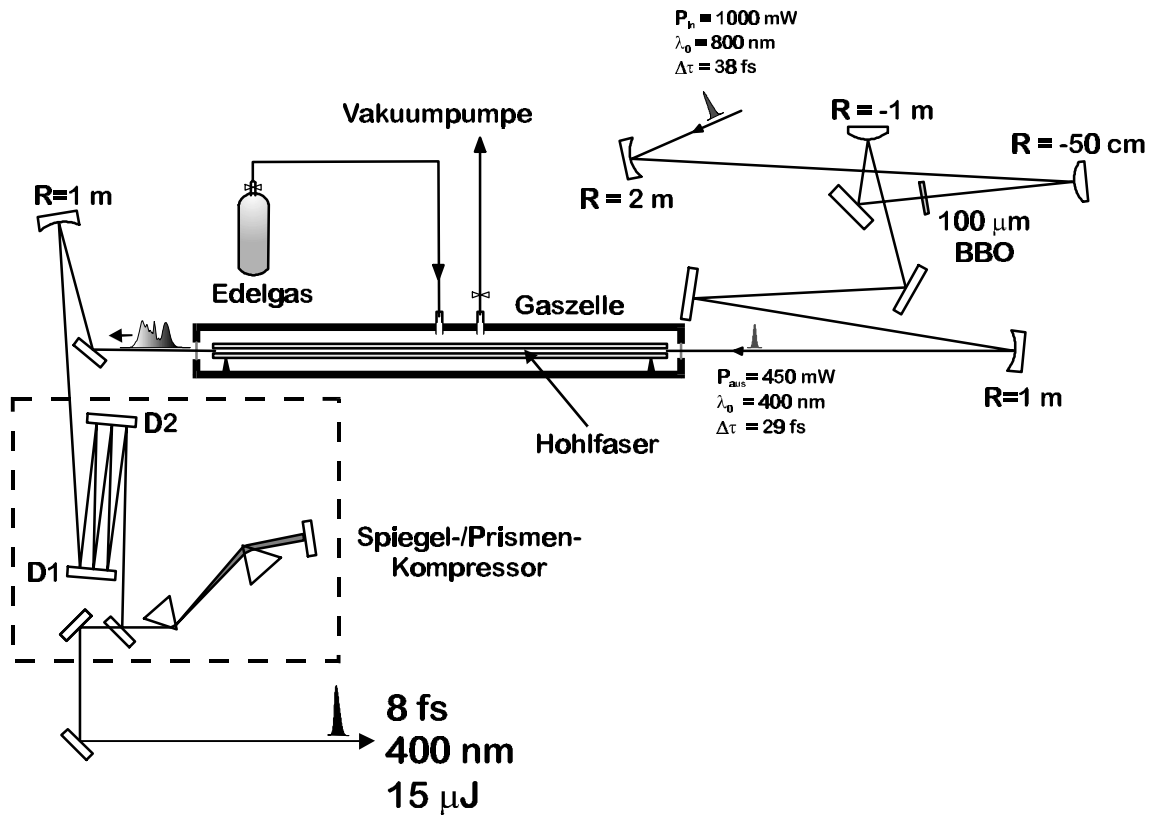


Abb. 3.10: Die Faserkompression bei 400 nm stimmt im wesentlichen mit der bei 800 nm überein. Hinzu kommt die Erzeugung der zweiten Harmonischen vor der Faser und der ausschließliche Einsatz nichtdispersiver abbildender Elemente danach. Der Faserdurchmesser beträgt  $220 \mu\text{m}$ .

zu erkennen, dass die Wandlung in horizontale und vertikale Richtung unterschiedlich ist. Die Einkopplungseffizienz für verschiedene Moden besitzt somit in den zwei Achsen unterschiedliche Werte. Eine Theoretische Anpassung an Strahlprofil mit zwei verschiedenen Moden ( $\text{EH}_{11}$  und  $\text{EH}_{13}$  in unterschiedlichen Intensitäten (siehe Abb. 3.13) zeigt deutlich, dass mehrere Moden in der Faser angeregt werden. Aufgrund der verschiedenen Dämpfungswerte und Kopplungseffizienzen bleibt die Gesamteffizienz unterhalb der maximal möglichen für ein reines gaußsches Strahlprofil des eingekoppelten Pulses.

In einer ersten Versuchsreihe werden die in der Hohlfaser verbreiterten Laserpulse jeweils mit einem Prismenkompressor bzw. einem Gitterkompressor auf eine Pulsdauer von 20 fs mit  $8 \mu\text{J}$  komprimiert [NDK97].

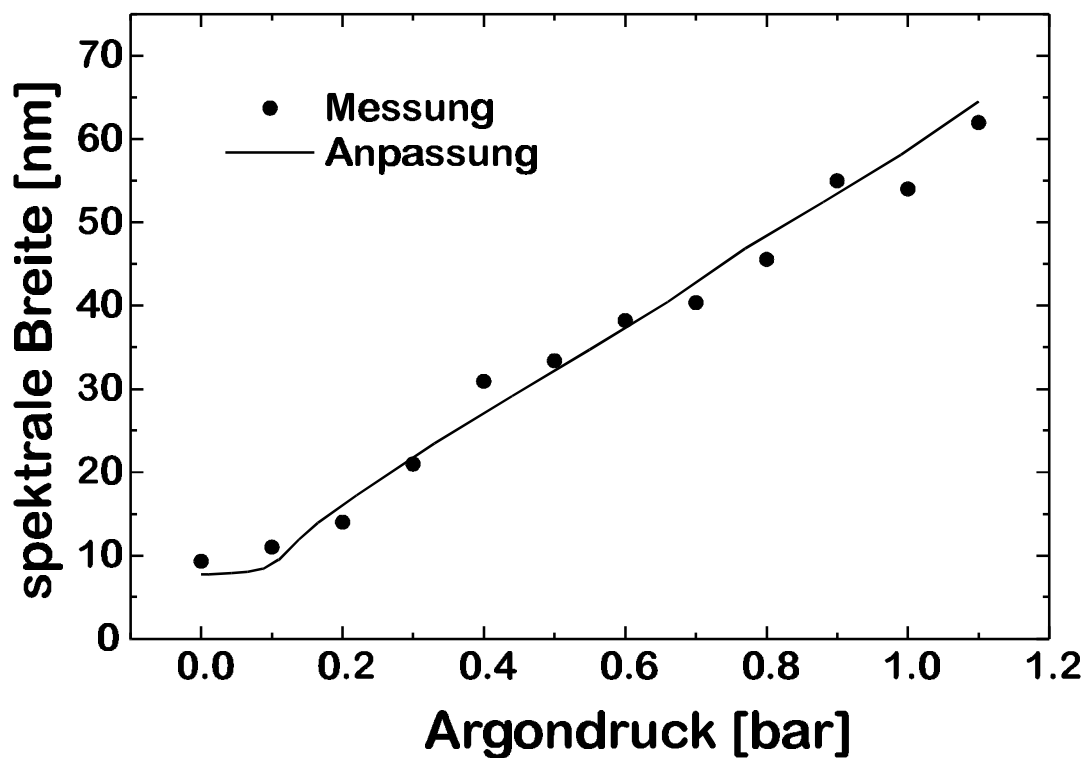


Abb. 3.11: Die theoretische Anpassung ohne Dispersion und Absorption nach Gleichung (3.1) zeigt, dass Faser- und Gasdispersion eine untergeordnete Bedeutung besitzen.

Um die Dispersion zweiter und dritter Ordnung unabhängig voneinander zu kontrollieren, werden für die nachfolgend beschriebene Kompression eine Prismensequenz und dispersive Spiegel eingesetzt. Dispersive Spiegel für 400 nm zentraler Wellenlänge wurden bisher noch nicht zur Kompression ultrakurzer Laserpulse genutzt. Sie wurden an der TU-Wien (Arbeitsgruppe Prof. F. Krausz) entwickelt.

Die Spiegel bestehen aus 42 alternierenden Schichten  $\text{SiO}_2$  und  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ . Hohe Reflektivität weisen sie im Bereich zwischen 330 und 460 nm auf. Ihre Dispersion zweiter Ordnung ist im Bereich von 350 nm bis 430 nm nahezu konstant  $-20 \text{ fs}^2$ . Die Dispersion dritter Ordnung bewegt sich in diesem Bereich um  $0 \text{ fs}^3$ . Die Verluste weisen allerdings hohe Werte für dielektrische Spiegel auf, deren Ursache noch nicht geklärt werden konnte. Sie liegen bei 10%-15%. Die theoretisch berechnete Dispersionkurve ist in Abbildung 3.14 aufgetragen.

Mit ersten Messungen wird der Phasenverlauf ermittelt, um die Phasenbestimmung

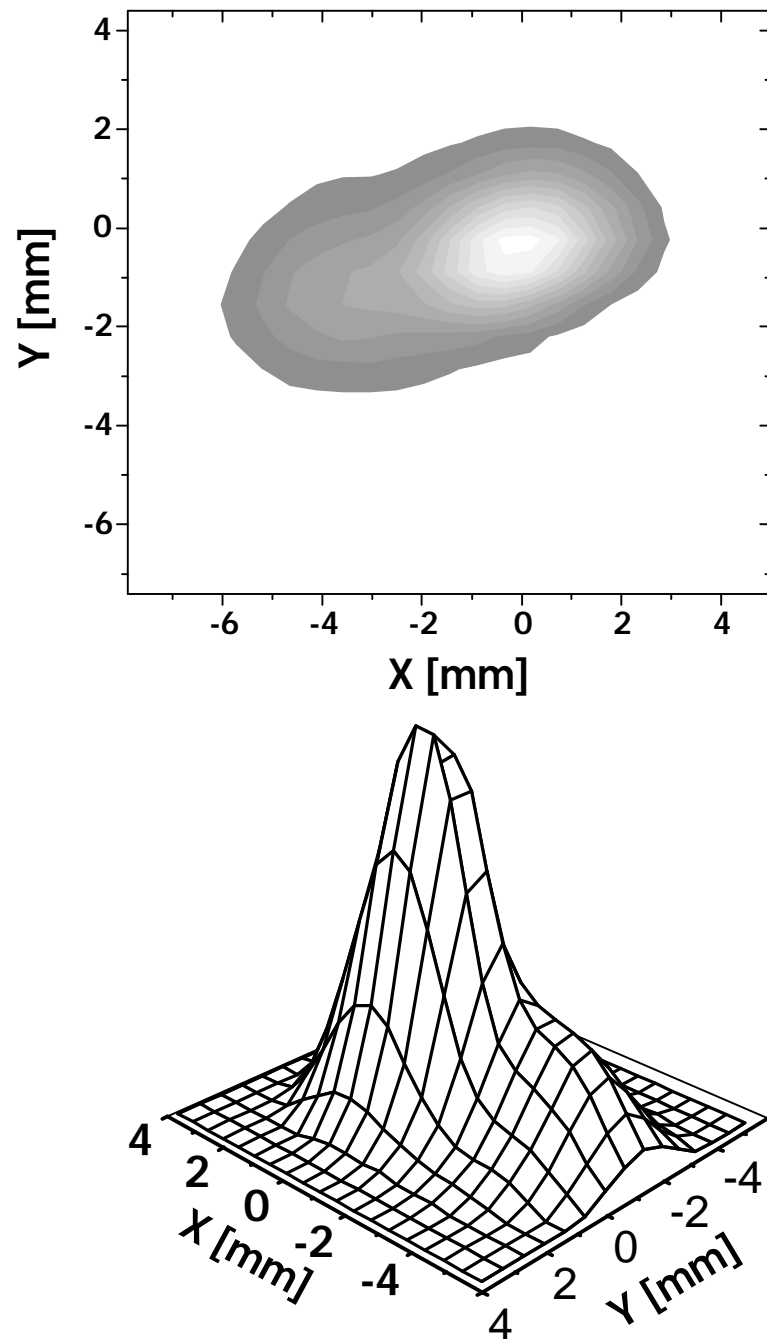


Abb. 3.12: **Oben und Unten:** Strahlprofil der zweiten Harmonischen des Verstärkerpulses. Wie die beiden Abbildungen zeigen, wird das symmetrische Profil des Verstärkers (vgl. Abb. 3.6b) nicht in ein symmetrisches Profil bei 400 nm gewandelt.

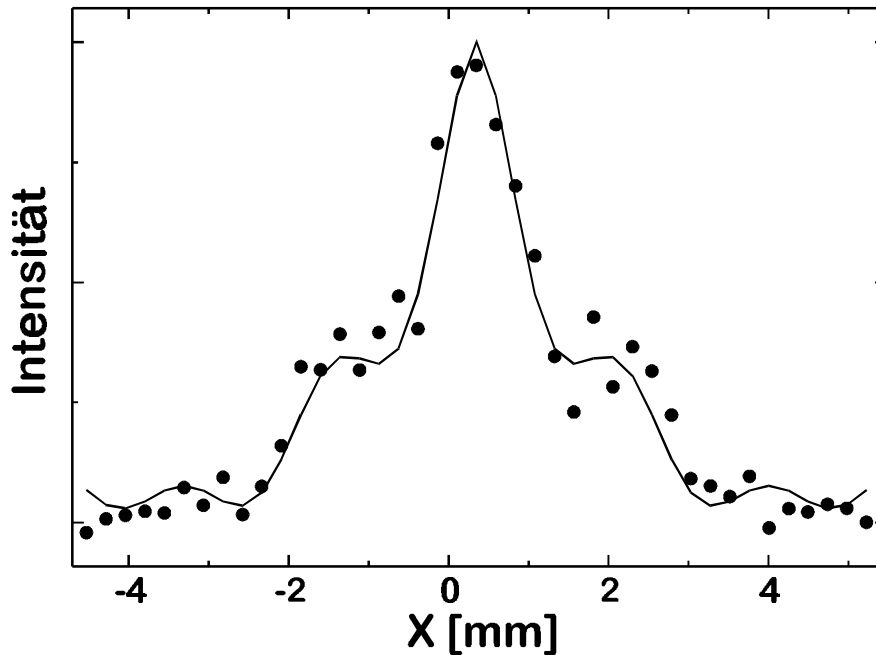


Abb. 3.13: Die theoretische Anpassung (—) an den Querschnitt des gemessenen Faserprofils bei 400 nm mit zwei Fasermoden ( $EH_{11}$  und  $EH_{13}$ ) zeigt die Unterstützung mehrerer Moden innerhalb der Faser.

des Pulses vorzunehmen und Optimierungen durchzuführen. Zur Kompression wird ein Prismenkompressor mit  $60^\circ$ -Quarzprismen und 48 cm Apexabstand gewählt sowie 4 Reflexionen der dispersiven Spiegel. Der Argondruck in der Faser beträgt 0.4 bar. Der in die Faser eingekoppelte Puls hat eine Energie von  $320 \mu\text{J}$ , der ausgehende  $70 \mu\text{J}$ . In Abbildung 3.15 ist der mit SD-Technik gemessene Pulsverlauf dargestellt (Korrelation und FROG) und daraus die Phase zurückberechnet.

Aus Abbildung 3.15(b) geht hervor, dass der spektrale Phasenverlauf noch negative Dispersion zweiter Ordnung aufweist. Diese wird durch Verminderung des Prismenabstandes kompensiert.

Durch Änderung des Prismenabstandes von 48 cm auf 45 cm, ändert sich  $\Phi^{(2)}$  von  $-1080 \text{ fs}^2$  auf  $-906 \text{ fs}^2$ , etwa entsprechend der sich aus der Phasenbestimmung im vorhergehenden Fall ergebenden Phasendifferenz zweiter Ordnung, um optimale Kompression zu erreichen.  $\Phi^{(3)}$  ändert sich dabei um  $+250 \text{ fs}^3$ . Die Anzahl der Spiegelreflexionen wird auf 6 erhöht. Aus den Größenordnungen der Phasen wird deutlich, dass eine alleinige Kompression mit Spiegeln etwa 45 Reflexionen erfordern würde. Da nur zwei Spiegel

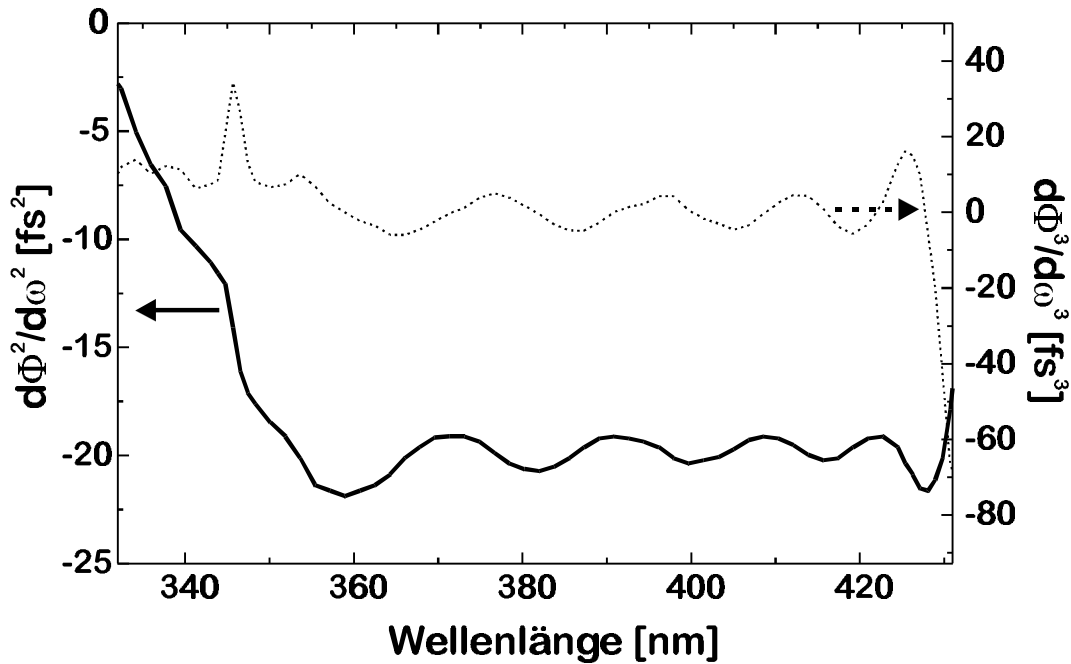


Abb. 3.14: Berechnete Dispersionskurve der dispersiven Spiegel für 400 nm. Es ist Dispersion zweiter Ordnung (—) und dritter Ordnung (- - -) aufgetragen.

mit einem Durchmesser von 2.5 cm zur Verfügung stehen, sind maximal 8 Reflexionen zu verwirklichen.

Der Vorteil der Spiegel liegt nun darin, dass mit Vorkompression der Prismensequenz nur noch die Dispersion zweiter Ordnung über die Anzahl der Reflexionen eingestellt werden muss, ohne gleichzeitig die Dispersion dritter Ordnung zu beeinflussen.

Abbildung 3.16 zeigt das Spektrum und die SD-Korrelation des Pulses am Eingang der Faser sowie das in 0.6 bar Argon verbreiterte Spektrum. In Abbildung 3.17a ist der durch Selbstdiffraktion in 100  $\mu\text{m}$  KDP charakterisierte Puls abgebildet. Da die nichtlineare Ordnung des gesamten Prozesses von der Erzeugung der zweiten Harmonischen bis zur Korrelation 8 beträgt, übertragen sich bereits kleine Schwankungen sehr stark auf das SD-Signal. Da aber Schwankungen des Eingangspulses in die Faser sowohl Schwankung in der spektralen Breite, als auch der Gesamtintensität des verbreiterten Pulses bedeuten, wird das Referenzsignal spektral zerlegt (Gitter, 300 Linien/mm) und nur der kurzwellige Randbereich des Spektrums mit einer Photodiode detektiert. Liegt die Signalhöhe innerhalb des vorher definierten Signalhöhenfensters von  $\pm 15\%$ , so wird

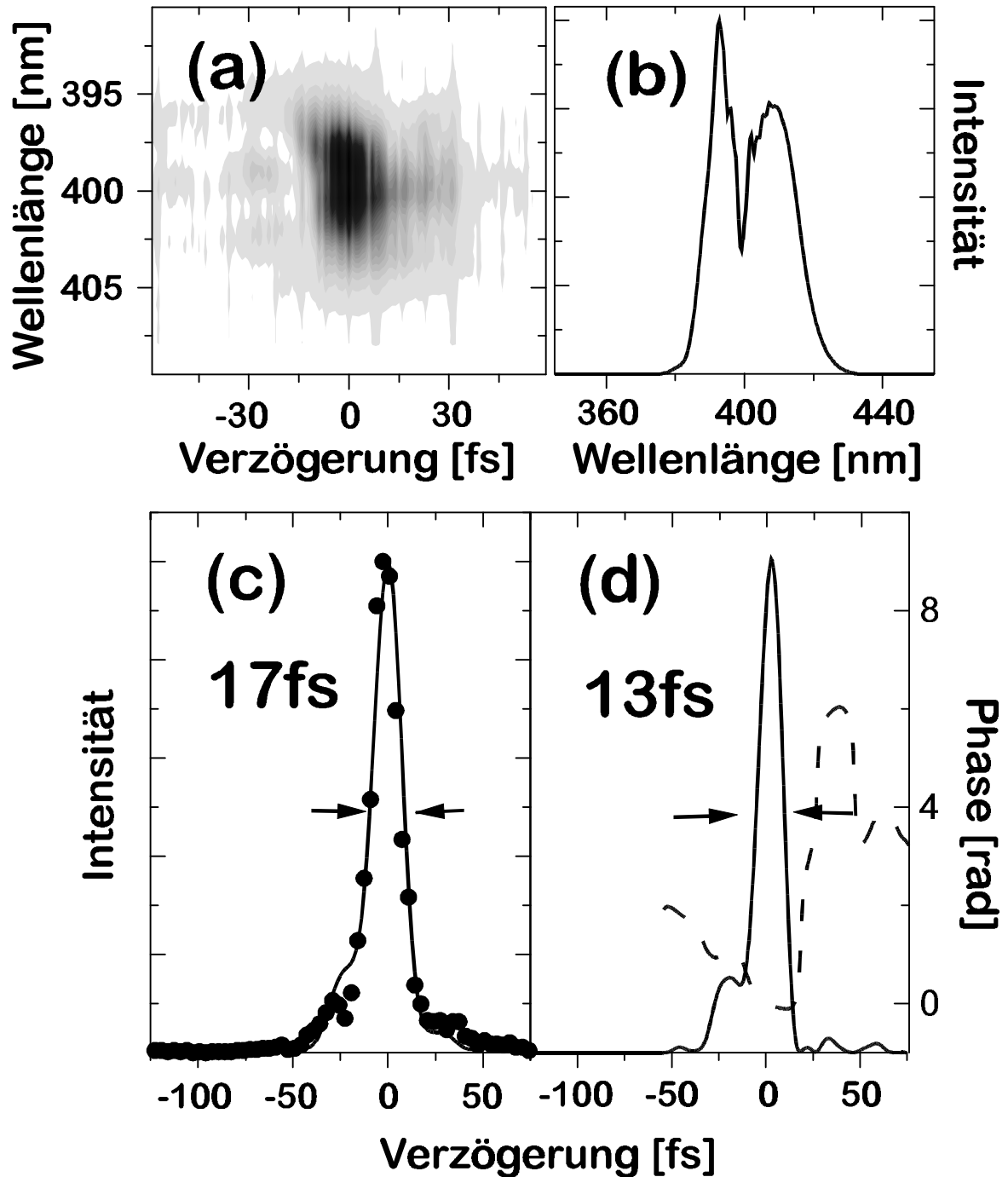


Abb. 3.15: (a): SD-FROG des Faserpulses. (b): gemessenes Spektrum. (c) gemessene (Punkte) und angepasste SD-Korrelation. (d): aus Spektrogramm (a) berechneter Puls- und Phasenverlauf.

der Puls von der Messdatenaufnahme verwertet, andernfalls verworfen. So ist sichergestellt, dass die gemessenen und gemittelten Pulse die gleiche spektrale Breite und damit gleiche Pulsdauer besitzen.

Mit diesem Charakterisierungsverfahren für kürzeste Pulse durch Faserkompressoren ist es nicht möglich einen FROG zu registrieren, da das in dieser Arbeit verwendete Spektrometer nur mittellange Aufnahmen unterstützt und keine selektiven Einzelschussaufnahmen. Die Schwankung des Spektrums führt somit zu einer Unschärfe, die die Präzision der FROG-Rückrechnung beeinträchtigt.

Das hier verwendete Modell zur Berechnung der resultierenden Phase beruht auf der Anpassung der Taylorentwicklung der Phase an die gemessene SD-Korrelation. Dabei wird die Anpassung mit Gliedern bis zur vierten Ordnung durchgeführt. Die Taylorreihe wird in der Form

$$\Phi(\omega) = \Phi_0 + \left. \frac{d\Phi}{d\omega} \right|_{\omega_0} \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\Phi}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \left. \frac{d^3\Phi}{d\omega^3} \right|_{\omega_0} \cdot (\omega - \omega_0)^3 + \dots$$

verwendet.

In Abbildung 3.17a ist der mit SD-Korrelation in 100  $\mu\text{m}$  KDP gemessene Puls dargestellt, wobei die durchgezogene Linie die berechnete Korrelation charakterisiert. In (b) ist der errechnete Pulsverlauf dargestellt. Die optimierte Anpassung wurde mit  $\Phi^{(2)} = 0 \text{ fs}^2$  und  $\Phi^{(3)} = -70 \text{ fs}^3$  durchgeführt.

Die gemessene Ausgangsenergie des komprimierten Pulses liegt bei 15  $\mu\text{J}$ . Die Fokussierung mit f/3-Optik führt somit zu Spitzenintensitäten von  $10^{16} \text{ W/cm}^2$ . Die geringe Effizienz der gesamten Kompressionsstufe wird durch die bereits oben beschriebenen hohen Einkopplungsverluste in die Faser aufgrund des elliptischen Strahlprofils des konvertierten Verstärkerpulses und der Verluste der Spiegel verursacht. Dies ist jedoch keine prinzipielle Einschränkung und lässt sich durch die Verbesserung des Strahlprofils der zweiten Harmonischen optimieren.

Um zu kürzeren Pulsen zu gelangen muss die verbleibende Materialdispersion verringert werden, z.B. durch Quarz-Keilprismen mit  $15^\circ$  Apexwinkel. Dadurch wird die negative Dispersion durch Vergrößerung des Apexabstandes erreicht und nicht durch Änderung der Materialmenge. Maßnahmen dieser Art könnten zukünftig zu bandbreitenbegrenzten Pulsdauern von weniger als 3 fs bei einer zentralen Wellenlänge von 400



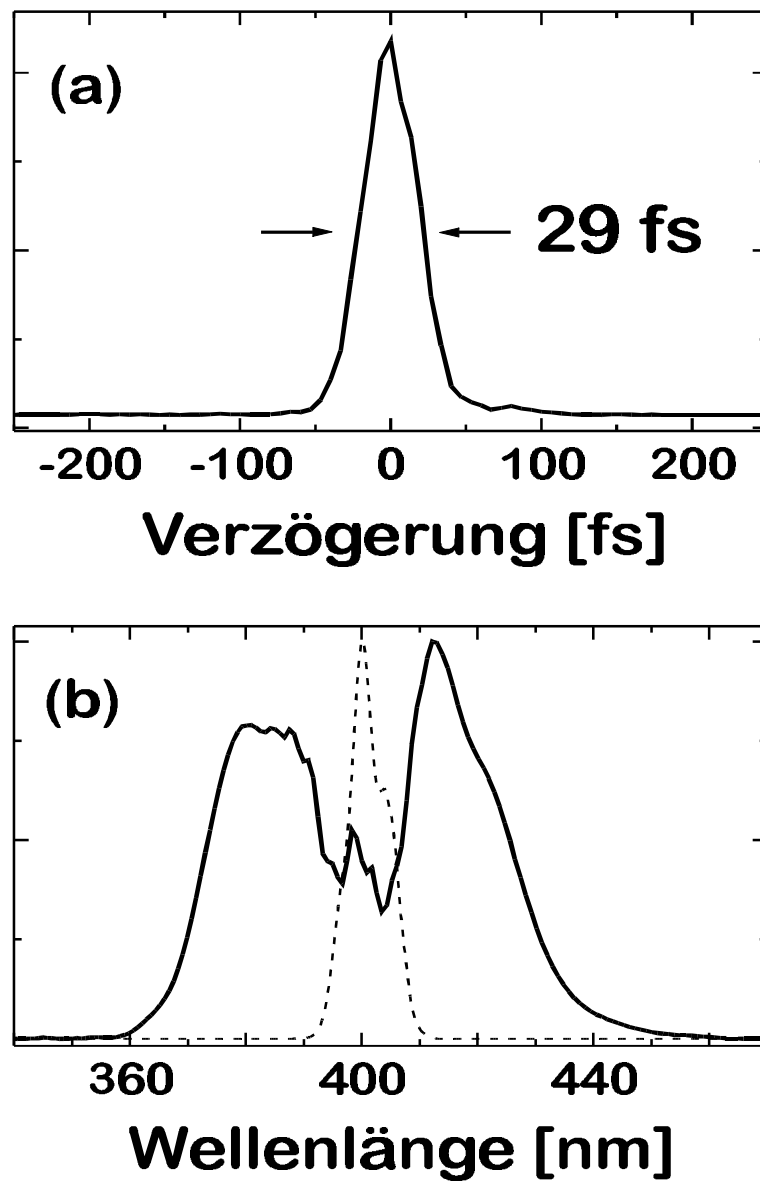


Abb. 3.16: (a) In die Faser eingekoppelter Puls ( $300 \mu\text{J}$ ). (b) Eingangsspektrum und verbreitertes Spektrum in 0.6 bar Argon.

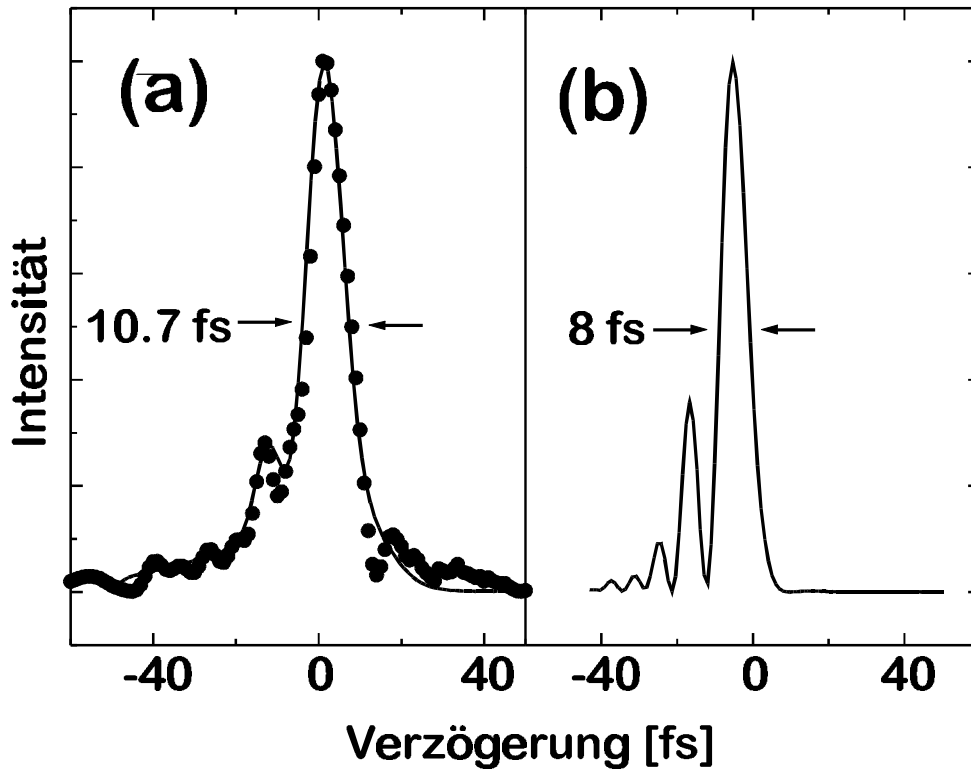


Abb. 3.17: (a) *SD-Korrelation des Pulses bei 400 nm (···) und mit der berechneten SD-Korrelation (—) des angenäherten Pulsverlaufs (b).*

nm führen. Die spektrale Breite solcher Pulse in diesem Wellenlängenbereich ist bereits in dieser Arbeit erreicht worden.

Abbildung 3.18a zeigt ein solches Spektrum, dass in 3.8 bar Argon auf  $\Delta\lambda = 90$  nm verbreitert wurde. Darunter ist die Fouriertransformation des Spektrums aufgetragen (b), die theoretisch phasenfrier Kompression entspricht. Das darf allerdings nicht über die enormen experimentellen Schwierigkeiten hinwegtäuschen, die zur Kompression eines extrem breiten Spektrums im Wellenlängenbereich um 400 nm führen.

Die Computersimulation der Phaseneinflüsse auf die Kompression demonstrieren diese Herausforderung: eine resultierende Phase von  $5 \text{ fs}^2$  verbreitert die Pulsdauer von 2.6 fs auf 11 fs. Eine ausschließliche Restphase dritter Ordnung von nur  $5 \text{ fs}^3$  verdoppelt die Pulsdauer nahezu. Der Puls muss also bis mindestens zur Phase vierter Ordnung kompensiert werden. Zum Vergleich: 1 mm Quarz bringt bei 400 nm  $\Phi^{(2)} = 119 \text{ fs}^2$  und  $\Phi^{(3)} = 33 \text{ fs}^3$ . Daraus sind bereits die enormen Anforderungen an die Kenntnis der

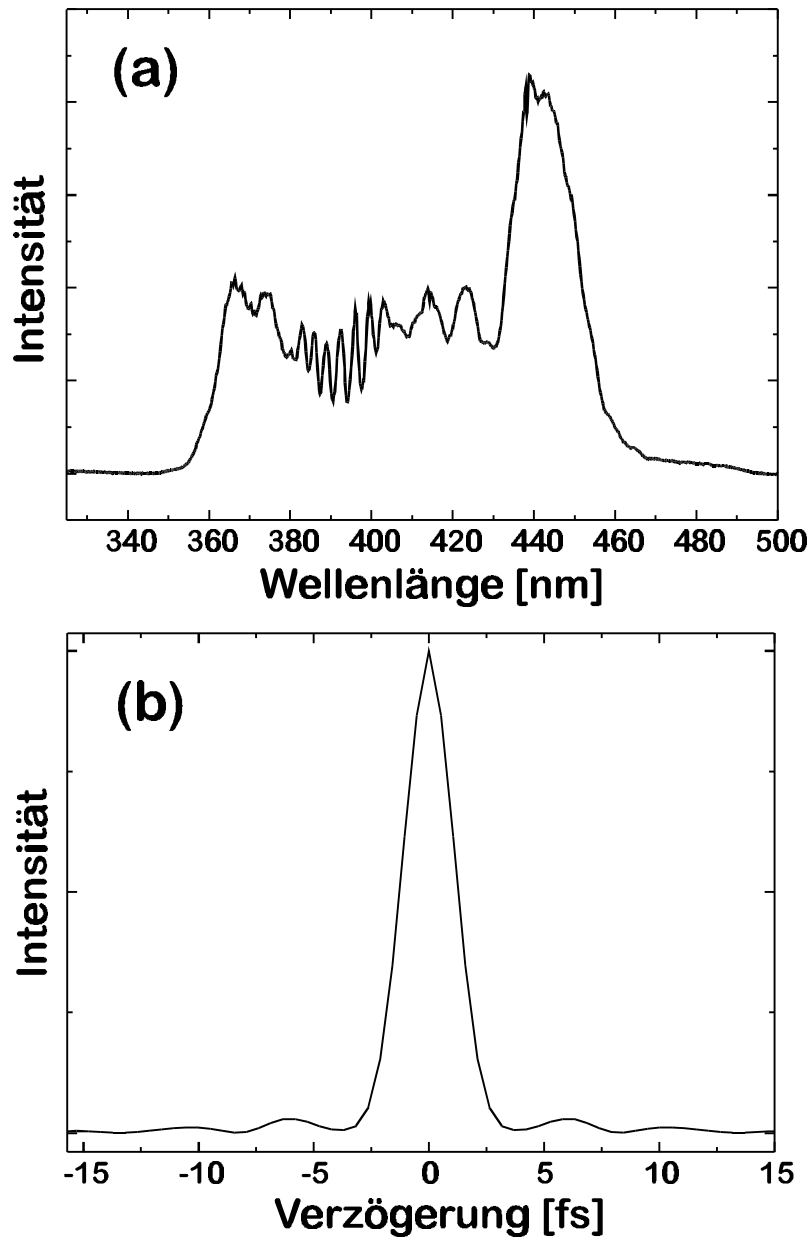


Abb. 3.18: **Oben:** In einer Faser mit  $220\ \mu\text{m}$  Durchmesser und 3.8 bar Argonfüllung erweitert sich das Spektrum auf 90 nm Halbwertsbreite. **Unten:** Fouriertransformation des Spektrums ergibt eine phasenfreie Pulsdauer von 2.6 fs.

Materialmenge ersichtlich.

### 3.1.3 Zwei-Farben-Verzögerungseinheit

Die Breite des durch Selbstphasenmodulation beeinflussten Spektrums bietet sich nicht nur zur Erzeugung kürzester Laserpulse an, die das gesamte Spektrum benötigen, sondern auch zur Bereitstellung abstimmbarer Wellenlängen im Bereich des verbreiterten Spektrums. Da hier jeweils nur ein Ausschnitt des Spektrums verwendet wird, verlängert sich die Pulsdauer moderat.

Auch hier sind verschiedene Realisierungen möglich, von denen aber nur die verwendete im folgenden beschrieben wird. Das prinzipielle Verfahren ist dem des ersten Szenarios der Kompression bei 400 nm angelehnt. Das in der Faser bei 800 nm verbreiterte Spektrum wird komprimiert und anschließend mit einem Strahlteiler in zwei Teilstrahlen aufgeteilt. Diese werden jeweils getrennt mit Hilfe zweier 100  $\mu\text{m}$  dicker BBO-Kristalle in Wellenlängen bei 400 nm gewandelt. Durch Änderung des Phasenanpassungswinkels des Kristalls kann jeder spektrale Bereich des roten Spektrums konvertiert werden. Aufgrund der Schmalbandigkeit des optimalen Phasenanpassungsbereichs ist der gewandelte Puls ebenfalls spektral eng. Was im beschriebenen ersten Szenario nachteilig war, führt hier zur Abstimbarkeit zweier spektral getrennter Pulse im Wellenlängenbereich von 360 nm bis 440 nm. Der damit erschließbare Wellenlängenbereich ist mit anderen abstimmbaren Ultrakurzpulsquellen auf Festkörperbasis wie z.B. optisch parametrischen Oszillatoren (OPO) die die Wellenlängen des Ti:Saphir-Lasers nutzen nur sehr schwierig oder nicht zu erfassen. Mit einem SHG-gepumpten (400 nm) OPO sind nur Wellenlängen oberhalb 400 nm zu erzeugen. Der Übergang zur dritten Harmonischen (267 nm) als Pumpwellenlänge würde zwar eine Überdeckung dieses Wellenlängenbereichs zulassen, allerdings durch weiteren Einsatz nichtlinearer Prozesse, die sich negativ auf die Stabilität und Energie der Pulse auswirken.

Experimentell aufwendig ist die Optimierung beider Arme der Zwei-Farben-Verzögerung, da bei Änderung der Materialmenge im Prismenkompressor immer die optische Weglänge geändert wird. Der zeitliche Überlapp der Pulse in den Teilarmen muss für jede Prismenstellung neu bestimmt werden. In Abbildung 3.19 ist der Aufbau der Zwei-Farben-Verzögerungseinheit dargestellt.

Abbildung 3.20 stellt exemplarisch die Abstimbarkeit für 3 verschiedene Wel-

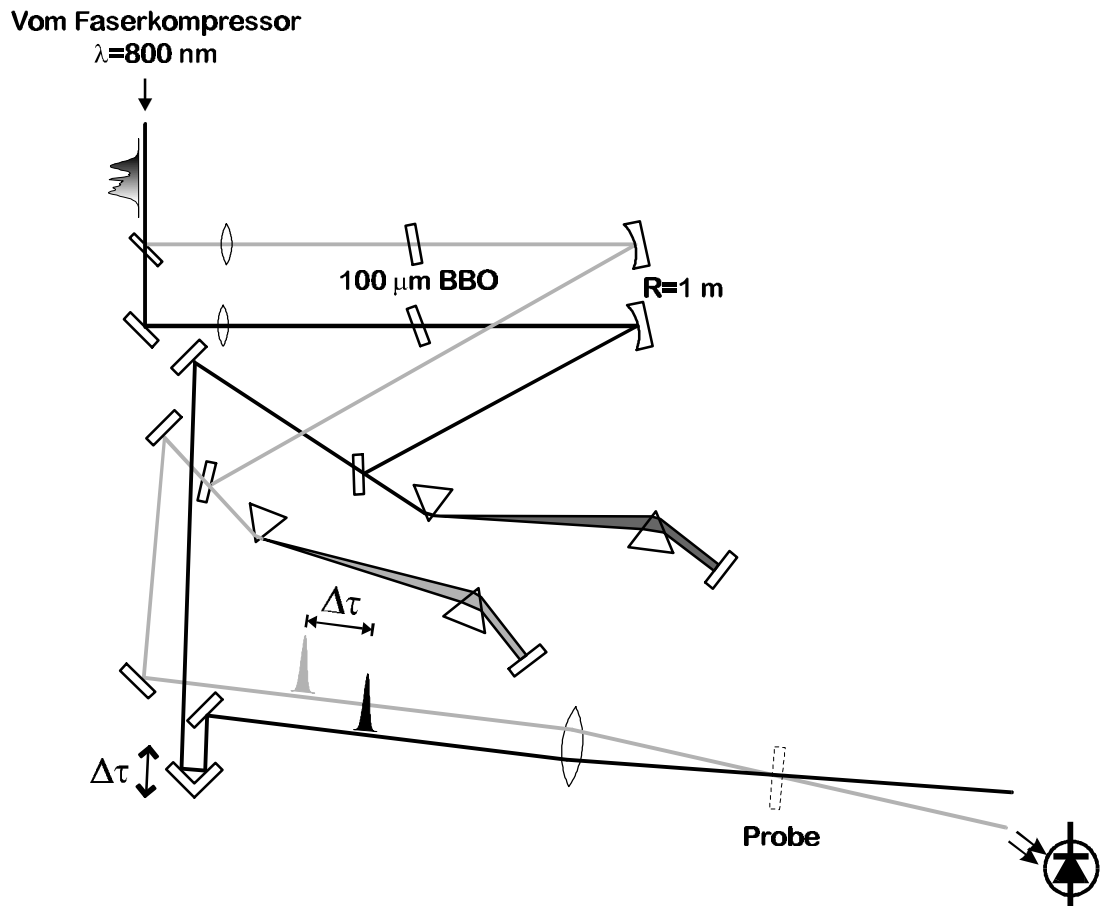


Abb. 3.19: Zwei-Farben-Verzögerungseinheit. Der vom Faserkompressor bei 800 nm kommende Puls wird in zwei Teilpulse aufgespalten und jeweils getrennt frequenzkonvertiert (zweite Harmonische in 100  $\mu\text{m}$  BBO). Zwei Prismenkompressoren optimieren beide Arme. Ein Arm ist verzögerbar gegen den zweiten.

lenlängen dar. Die Intensitäten sind jeweils auf eins normiert. Es können somit durch SHG Wellenlängen bei 400 nm erreicht werden, die innerhalb des Spektrums der Fundamentalen um 800 nm liegen und den Phasenanpassungsbedingungen im Kristall genügen. Bei der Messung im unteren Bildabschnitt handelt es sich um die exemplarische SD-Korrelation in einem 100  $\mu\text{m}$  dicken Chloroformstrahl der zwei äußeren blauen Wellenlängen. Es ist in diesem Fall schwierig, einen Entfaltungsfaktor anzugeben, da es sich um die Kreuzkorrelation zweier verschiedener Laserpulse handelt. Im günstigsten Fall beträgt der Entfaltungsfaktor 1.35 für SD-Korrelationen. Die Pulsdauer beträgt dann 43 fs für jeweils beide Farben.

Die Optimierung der Verzögerungseinheit wird am besten durch eine FROG-Messung der einzelnen Arme erreicht. Die folgende beispielhafte Messung in den Abbildungen 3.21 und 3.22 demonstriert, dass sich die Phasen der beiden Arme auf die Phase des Kreuzkorrelations-FROG im wesentlichen übertragen (Abb. 3.23). Für die FROG-Analyse der Kreuzkorrelation existiert bis heute allerdings kein mathematischer Algorithmus. Der Zwei-Farben-FROG bietet deshalb bisher nur eine qualitative Aussage über den Phasenverlauf. Die dabei zugrundeliegende Idee ist, aus der Korrelation der beiden verschiedenfarbigen Laserpulse die Phase beider Pulse simultan zu ermitteln. Dazu müssen die jeweils positiven und negativen ersten Beugungsordnungen gleichzeitig registriert und dem mathematischen Verfahren zugeführt werden. Die FROG-Messung der einzelnen Pulse entfällt damit, was in der experimentellen Anwendung der Zwei-Farben-Verzögerungseinheit eine enorme Beschleunigung der Pulscharakterisierung bedeutet.

Die Parameter der Faserkompression bei 800 nm und 400 nm sowie die Ergebnisse der abstimmbaren Zwei-Farben-Kompression fasst Tabelle 3.2 zusammen.

### 3.1.4 Spektroskopische Anwendung

Dieser kurze Unterabschnitt demonstriert die Anwendung der Zwei-Farben-Verzögerungseinheit auf die Spektroskopie der Protonentransferdynamik von 2-(2'-Hydroxy-5'-Methylphenyl)-Benzotriazol (TIN). Dabei handelt es sich um ein gut untersuchtes System [CRP97], das Aufschluss über die Zeitauflösung des Zwei-Farben-Spektrometers gibt. Elektronisch angeregt wird der Komplex in der enol-Konfiguration mit Wellenlängen von 360-370 nm. Eine Protonentransferreaktion in die keto-Konfiguration

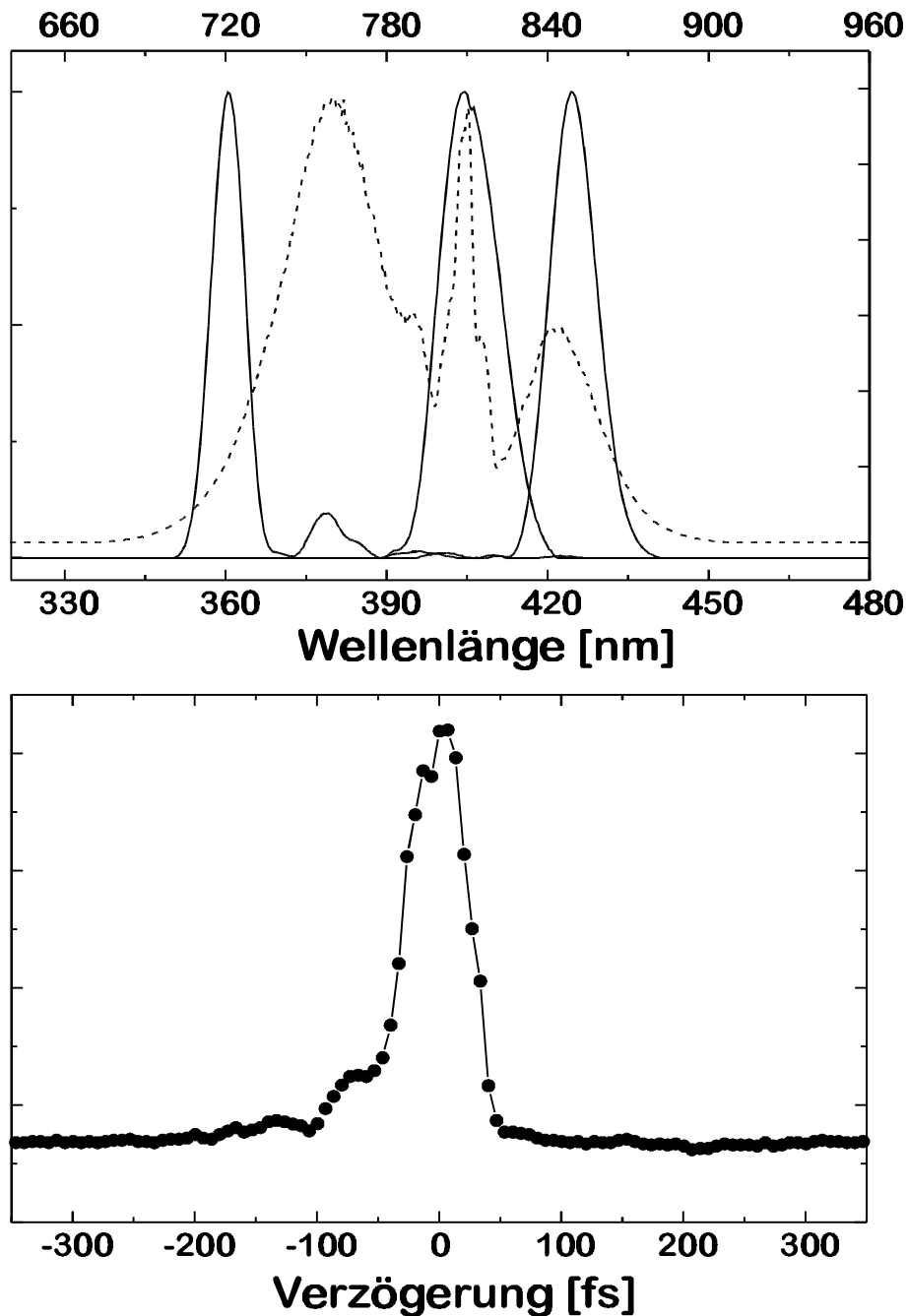


Abb. 3.20: Oben ist exemplarisch die Abstimmbarkeit der Wellenlängen bei 400 nm für 3 verschiedene Farben zu sehen (jeweils auf eins normiert). Gestrichelt dargestellt ist der in 0.6 bar Argon verbreiterte Puls aus dem Faserkompressor bei 800 nm. Die SD-Korrelation der Pulse der zwei marginalen Wellenlängen ergibt eine entfaltete Pulsbreite von 43 fs (unteres Bild).

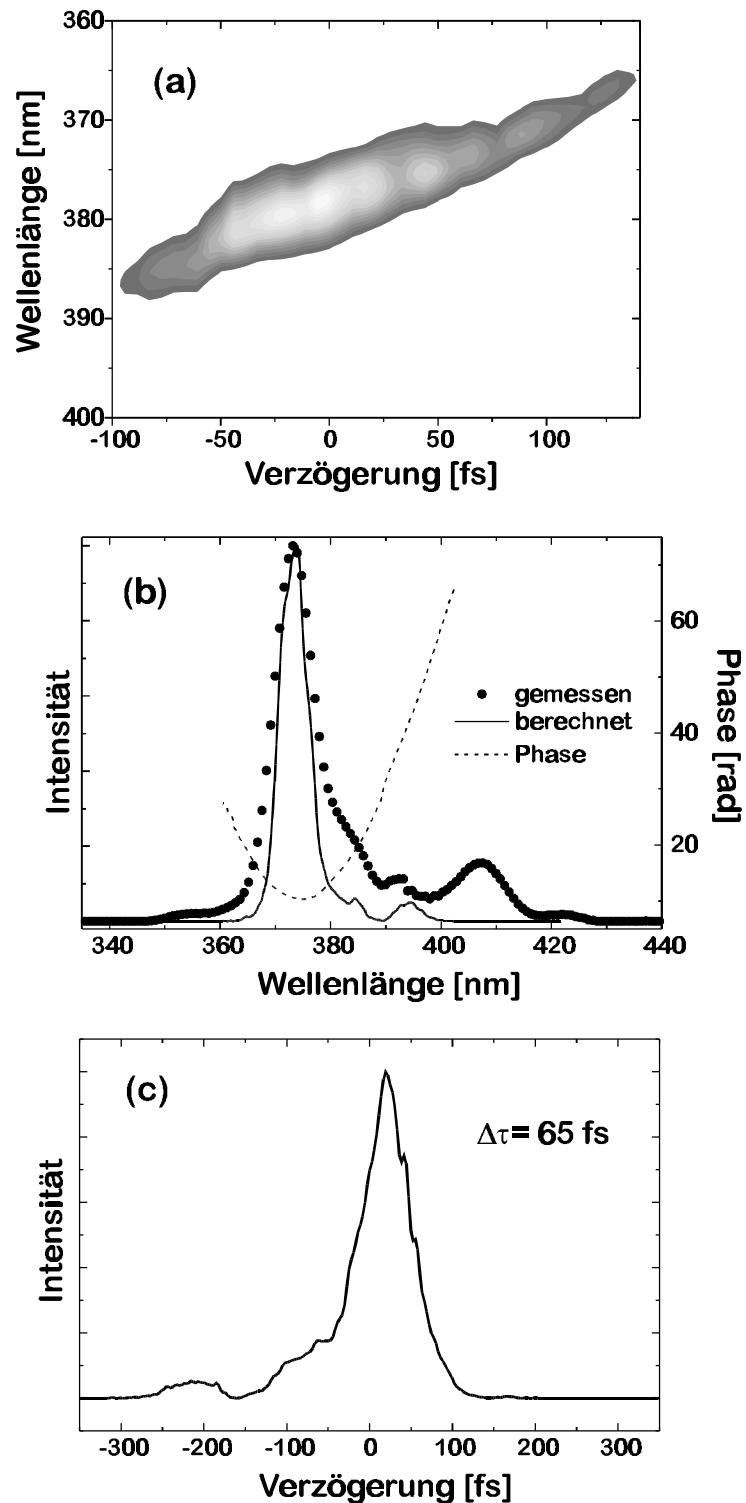


Abb. 3.21: (a) FROG-Messung des kurzwelligen Arms bei 375 nm. (b) gemessenes und berechnetes Spektrum mit spektralem Phasenverlauf. (c) SD-Korrelation in 100  $\mu\text{m}$  KDP. Die entfaltete Pulsdauer liegt bei 48 fs.



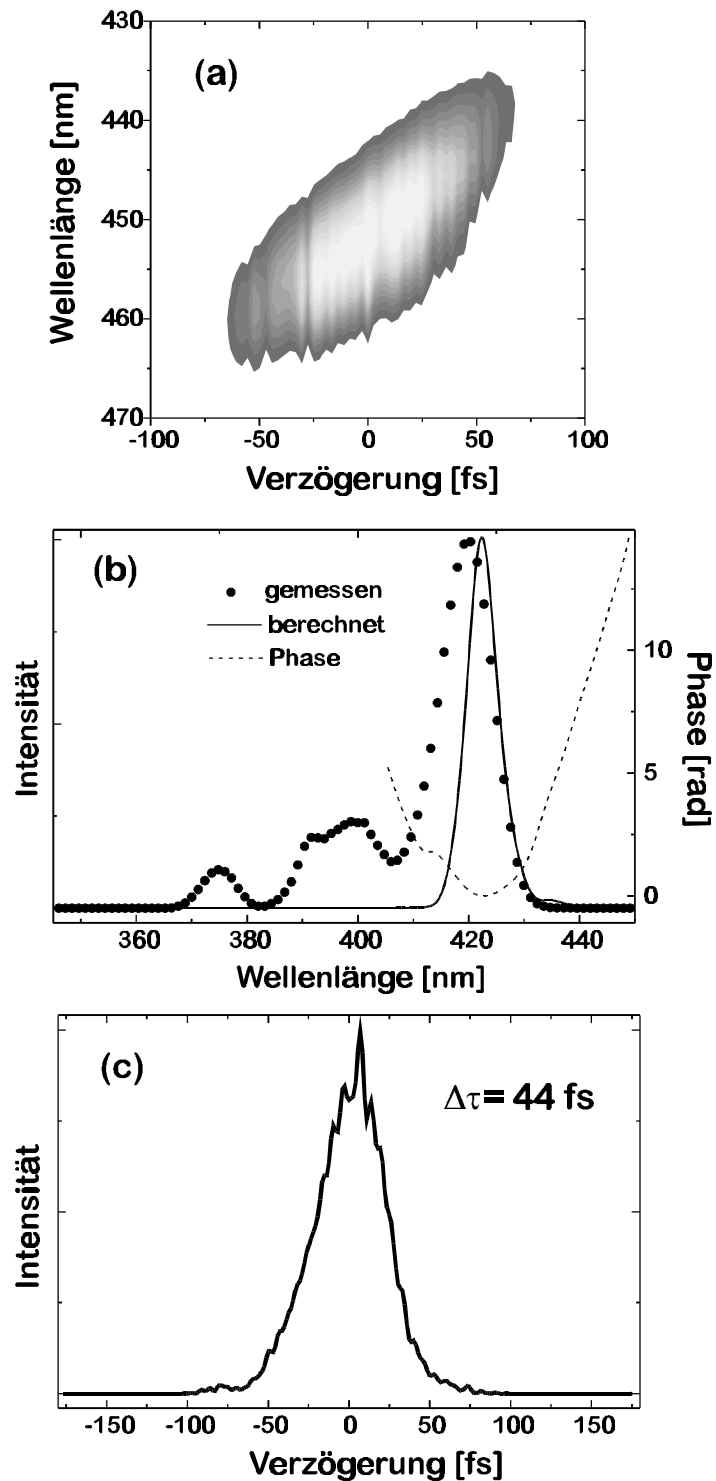


Abb. 3.22: (a) FROG-Messung des langwelligen Arms bei 423 nm. (b) gemessenes und berechnetes Spektrum mit spektralem Phasenverlauf. (c) SD-Korrelation in 100  $\mu\text{m}$  KDP mit 32 fs entfalteter Pulsdauer.

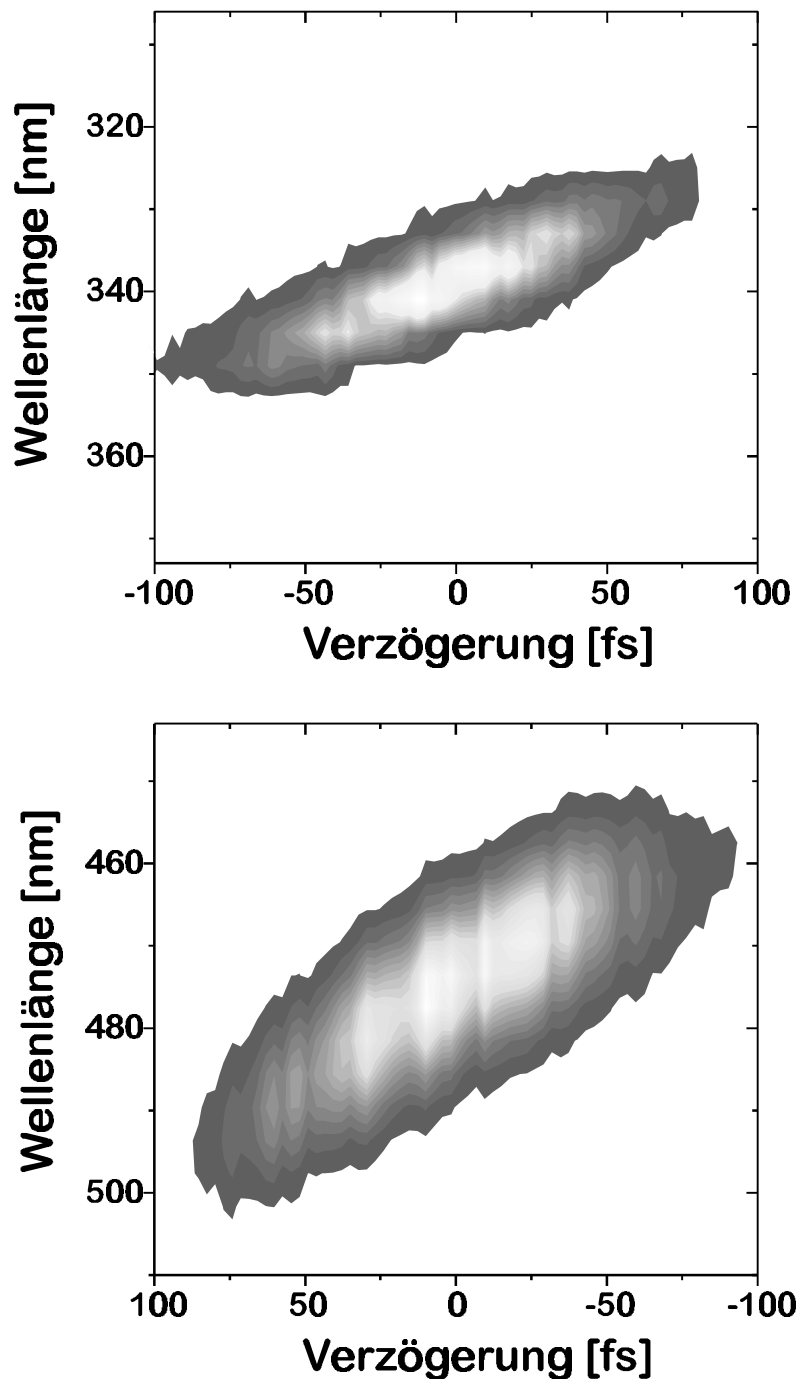


Abb. 3.23: Oben ist der Kreuzkorrelations-FROG des  $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ -Arms und darunter des  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ -Arms aufgetragen. Die Zeitrichtungen laufen jeweils in entgegengesetzte Richtungen. Der Phasenverlauf ist im wesentlichen von Dispersion zweiter Ordnung geprägt, entsprechend dem der einzelnen Arme.

Kompression bei...	$\Delta\tau$ [fs]	$\Delta\lambda$ [nm]	Druck [bar]	komprimierte Energie [ $\mu J$ ]	Abstimmbereich [nm]
800 nm	9	120	0.4	500	-
400 nm	8	54	0.6	15	-
Zwei-Farben-Anordnung (bei 400 nm)	40-50	7-14	0.6	10	350-450

Tabelle 3.2: Auflistung der wichtigsten Parameter der Faserkompression bei verschiedenen Wellenlängen. Die Parameter der Kompression bei 400 nm betrifft nur Szenario zwei. Als Füllgas wird in allen Fällen Argon verwendet.

geschieht innerhalb von 60-80 fs [CRP97]. Interne Konversion innerhalb von 120 fs führt das Molekül zurück in den keto-Grundzustand. Die Rückkehr in den enol-Grundzustand verläuft mit einer Zeitkonstanten von 600 fs. Mit der faserbasierten Zwei-Farben-Verzögerungseinheit kann diese Dynamik durch Abtastung der keto-Konfiguration in höhere elektronische Zustände mit Wellenlängen zwischen 430-450 nm aufgelöst werden.

Abbildung 3.24 zeigt die Absorptionsmessung in einem 100  $\mu m$  dicken Flüssigkeitsstrahl von in Cyclohexan gelöstem TIN. Die gemessene SD-Kreuzkorrelation der Pulse ergibt eine ausreichende Auflösung von 40 fs. Anpassung an die gemessene Dynamik von TIN mit einem Ratengleichungsmodell macht die Zuverlässigkeit des verwendeten Modells deutlich.

Damit wurde erstmalig demonstriert, dass dieses Zwei-Farben-Spektrometer einen wichtigen Baustein zur spektroskopischen Analyse ultraschneller Vorgänge in molekularen Aggregaten liefern kann.

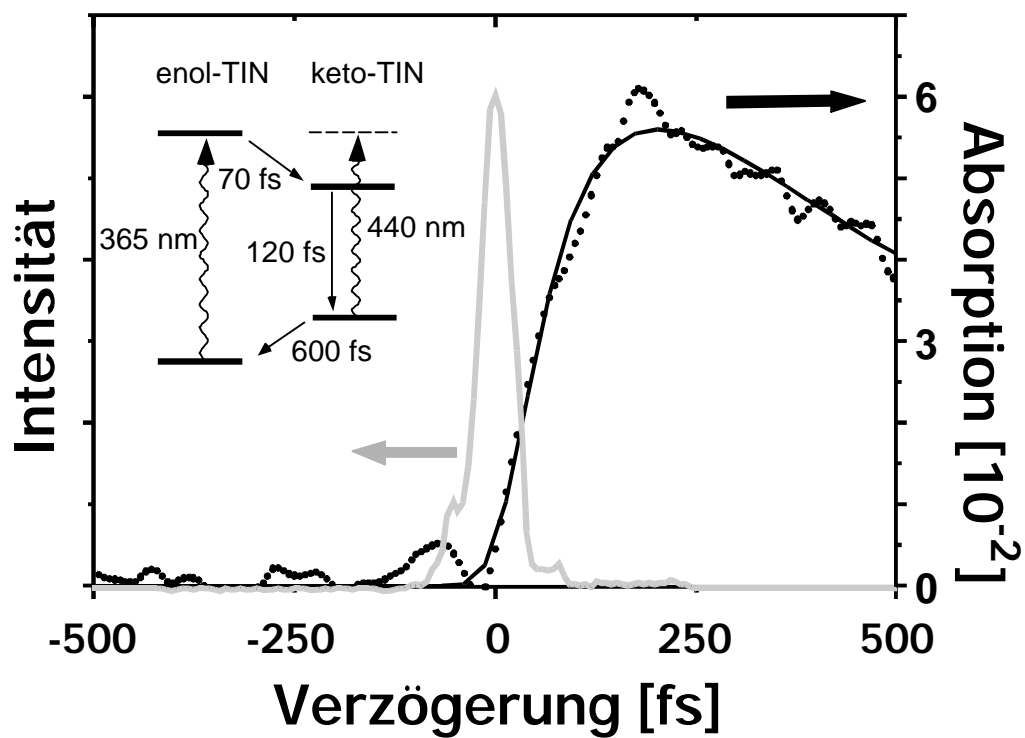


Abb. 3.24: Die Anrege-Abtast-Messung demonstriert die spektroskopische Analyse der Protonentransferreaktion von 2-(2'-Hydroxy-5'-Methylphenyl)-Benzotriazol (TIN) in Cyclohexan mit der Zwei-Farben-Verzögerungseinheit. Die zeitliche Auflösung liegt bei 40 fs.