

Fakultät für Physik und Astronomie
Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit
im Studiengang Physik

vorgelegt von
Alexander Sperl

aus Stuttgart
März 2009

Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Lichtimpulse für die Generation Hoher Harmonischer Strahlung

Die Diplomarbeit wurde von Alexander Georg Sperl ausgeführt am
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg
unter der Betreuung von
Herrn Dr. Konstantinos Simeonidis

Zusammenfassung

In Experimenten zur Atom- und Molekülphysik stellen ultrakurze Lichtimpulse im Femtosekundenbereich immer mehr ein unverzichtbares Werkzeug dar. Je kürzer die Impulse und größer die damit korrespondierenden spektralen Bandbreiten werden, desto wichtiger ist eine effiziente Kontrolle und Steuerung der Dispersion. In der vorliegenden Arbeit wird das Verfahren der sog. Filamentation zur spektralen Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation mit einer nachgeschalteten Impulskompression vorgestellt. Die Impulscharakterisierung erfolgt mittels eines speziell entwickelten, praktisch dispersionsfreien interferometrischen Autokorrelators.

Hierzu steht ein Lasersystem zur Verfügung, das 32 fs Impulse, mit einer Repetitionsrate von 8000 Hz und Einzelimpulsenergien von bis zu 1 mJ bereitstellt. Zunächst wird eine umfangreiche Untersuchung der auf den Prozess der Filamentation Einfluss nehmenden Größen, wie Druck, Fokussierparameter und Wechselwirkungslänge vorgenommen. Deren Optimierung führt zu einer Verbreiterung der Fundamentalspektren um einen Faktor 5, welche somit Lichtimpulse unterstützen, die eine fourierlimitierte Dauer von 4 fs und 1,5 optischen Zyklen aufweisen können. Diese Werte sowie das Auftreten von kleineren Vor- und Nachimpulsen konnten durch Autokorrelationsmessungen der Impulse bestätigt werden. Die Autokorrelation erlaubt zwar keine vollständige Rekonstruktion der zeitlichen Intensitätsverteilung, dennoch können quantitative Aussagen zur Dispersion der Impulse durch eine Simulation des Autokorrelationssignals unter der Berücksichtigung des Dispersionsparameters 2. Ordnung getroffen werden.

Abstract

In atomic and molecular physics experiments extremely short laser pulses, mostly in the sub ten-femtosecond range, are of strong interest. The shorter the pulses are and correspondingly, with growing bandwidth, the more important dispersion control and management becomes. In this diploma thesis a new setup for spectral broadening involving self phase modulation via filamentation and subsequent recompression is presented. Moreover pulse characterization through a dedicated interferometric autocorrelation setup with nearly zero dispersion has been achieved.

The initial pulses reveal a duration of 32 fs at a repetition rate of 8000 Hz and a single pulse energy of about 1 mJ. An extensive investigation of important quantities, influencing the filamentation process, like pressure, focussing parameters and the interaction length was performed. Their optimization yielded a broadening of the fundamental spectra of about a factor of 5 supporting lightpulses down to a fourierlimited duration of 4 fs with 1.5 optical cycles. These values, as well as the appearance of smaller pre- and postpulse structures were confirmed by autocorrelation measurements of the pulses. Even though the full reconstruction of the time dependent electric field of the pulses is impossible via autocorrelation, one can retrieve quantitative information about the pulse chirp by simulating the complete autocorrelation signal, including the second-order dispersion parameter.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Motivation	1
2. Grundlagen	5
2.1. Beschreibung von ultrakurzen Lichtimpulsen	5
2.1.1. Erzeugung von Lichtimpulsen	5
2.1.2. Beschreibung von Lichtimpulsen durch Wellenpakete	10
2.1.3. Impulsparameter	12
2.2. Impulsausbreitung in Materie	14
2.2.1. Lineare und Nichtlineare Impulsausbreitung	14
2.2.2. Einfluss der Dispersion auf Lichtimpulse	15
2.3. Spektrale Verbreiterung von Lichtimpulsen	17
2.3.1. Lineare und Nichtlineare optische Effekte	17
2.3.2. Verbreiterung mittels Filamentation	22
2.4. Charakterisierung von ultrakurzen Lichtimpulsen	24
2.4.1. Die Autokorrelation	24
2.4.2. FROG - Frequency Resolved Optical Gating	29
2.4.3. ZAP-SPIDER - Zero Additional Phase - Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction	30
3. Der experimentelle Aufbau	33
3.1. Das Lasersystem	33
3.2. Spektrale Verbreiterung und Impulsverkürzung mit Hilfe der Filamentation	35
3.2.1. Anordnung zur Filamentation	35
3.2.2. Der Impulskompressor	38
3.3. Der Autokorrelator	39
3.3.1. Der Autokorrelatoraufbau	40
3.3.2. Die Justage	42
3.3.3. Die akustische Isolierung	43
3.3.4. Software zur Datenanpassung der Autokorrelation	45
3.3.5. Stabilitätsmessungen zur Autokorrelation	48

4. Messungen und Experimente	51
4.1. Messungen zur Filamentation	51
4.1.1. Druckabhängigkeit der Filamentation	51
4.1.2. Einfluss der fokussierenden Optik auf die Filamentation	55
4.1.3. Filamentation mit unterschiedlichen Gassorten	58
4.1.4. Einfluss der Laserjustage auf die Filamentation	59
4.2. Messungen zur Autokorrelation	61
4.2.1. Autokorrelationsmessungen der Oszillatorimpulse	61
4.2.2. Autokorrelationsmessungen der Verstärkerimpulse	64
4.2.3. Autokorrelationsmessungen der Filamentationsimpulse	67
5. Zusammenfassung und Ausblick	73
A. Anhang	77
A.1. Instructions for the Autocorrelation Fit-program	77
A.1.1. Settings	77
A.1.2. Results	79

1. Einleitung und Motivation

Mit Albert Einsteins Überlegungen zur stimulierten Emission von Licht, ohne die er sich einige Phänomene zur Lichtentstehung nicht erklären konnte, wurde bereits 1917 auf theoretischer Seite der Weg zur Erfindung des Lasers, nämlich der „Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation“ geebnet. Die ersten wichtigen experimentellen Schritte hierzu gelangen Rudolph Ladenburg 1928 mit einem Nachweis dieses Effektes und Charles Townes 1954 [Tow54] mit der Implementierung eines Amoniakmasers, in der die stimulierte Emission erstmals zur Lichtverstärkung eingesetzt wurde. Anfang der Sechziger Jahre wurde durch Theodore Maiman ein Aufbau vorgestellt, der zwar nach gängiger Meinung den ersten optische Laser darstellte, nach der heutigen Definition aber nicht alle Kriterien eines Lasers erfüllte.

Die Entwicklung des Lasers hat seitdem rasante Fortschritte gemacht und sich in vielfältiger Art und Weise im alltäglichen Leben etabliert. Sei es zu Diagnosezwecken in der Medizin, zur Positionsbestimmung und Navigation in der Steuerungstechnik oder zur Fertigung von präzisen Bauteilen - es gibt nur wenige Industriezweige, in denen Laser keine Anwendung finden.

Auch in den Naturwissenschaften und insbesondere der Physik und Chemie ist der Laser zu einem unverzichtbaren Werkzeug geworden. Dies verdankt er einerseits einigen bemerkenswerten Eigenschaften im kontinuierlichen Betriebszustand, zu denen eine hohe zeitliche und räumliche Kohärenz sowie ein sehr enges Frequenzprofil zählen. Hier konnten z.B. in den letzten Jahren spektakuläre Werte in der Bestimmung absoluter Übergangswellenlängen λ in Atomen erzielt werden, mit einer Präzision von bis zu $\Delta\lambda/\lambda = 10^{-16}$ [Hän02] (Nobelpreis 2005 für Theodor Hänsch und John Hall).

Andererseits ergeben sich vollständig neue Möglichkeiten durch einen gepulsten Laserbetrieb. Dieser ist in den letzten Jahren durch nicht weniger Aufmerksamkeit erregende, bahnbrechende Entwicklungen in das Zentrum des wissenschaftlichen Interesses gerückt. Das liegt insbesondere daran, dass heutzutage kommerzielle Lasersysteme verfügbar sind, die Lichtimpulse im optischen Bereich von nur wenigen Femtosekunden (10^{-15} s) Dauer generieren. Mit derart kurzen Impulsen ist es möglich, physikalische und chemische Vorgänge auf kleinsten Zeitskalen zu untersuchen und zu neuen Erkenntnissen über die Dynamik atomarer und molekularer Systeme zu gelangen.

Für die Realisierung eines typischen Ultrakurzzeitexperimentes wird sehr häufig das sog. „Pump-Probe“-Prinzip verwendet, für dessen Anwendung in der Chemie

Ahmed Zewail 1990 [Zew00] den Nobelpreis für Chemie erhielt. Dabei handelt es sich um ein Verfahren, bei dem mit Hilfe zweier zeitversetzter Impulse die zeitliche Entwicklung eines physikalischen Systems manipuliert und gemessen werden kann. Mit Hilfe dieser Technik konnten spektakuläre Ergebnisse zur Vibrations-, Rotations- und Translationsbewegung von Molekülen oder auch zu Gitterschwingungen im Festkörper erzielt werden. Um allerdings auch die Dynamik elektronischer Zustände studieren zu können, muss die zeitliche Auflösung dieser Experimente weiter erhöht werden. Dies ist analog zu einem Film in Zeitlupe vorstellbar, für den eine große Menge Einzelbilder in sehr kurzer Zeit aufgenommen wird. Eine Voraussetzung hierzu ist jedoch eine Belichtungszeit bei der Bildaufnahme, die kürzer ist als die zu beobachtende Bewegung. Im Experiment wird die Zeitauflösung im Wesentlichen durch die Dauer der verwendeten Lichtimpulse festgelegt und kann somit nur durch deren Verkürzung erhöht werden.

Im optischen Bereich stößt man bei etwa 3 Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 1 \cdot 10^{-15} \text{ s}$), also einem Wellenzyklus innerhalb der Impulsenhüllenden, an die physikalischen Grenzen. Durch Verschiebung der Lichtimpulse zu kleineren Wellenlängen sind jedoch im Prinzip kürzere Impulse realisierbar. Ein solcher Ansatz wird mit der Technik der Hohen Harmonischen Erzeugung (HHG für high harmonic generation) verfolgt [Rie07]. Ausgehend von kurzen Lichtimpulsen im Sichtbaren von wenigen Femtosekunden Dauer, die in ein geeignetes Medium fokussiert werden, kann die elektrische Feldstärke des Lichtes so gesteigert werden, dass sie in etwa derjenigen entspricht, die innerhalb der Atome auftritt. Durch die hier eingeleitete, starke nichtlineare Wechselwirkung des Lichtfeldes mit den Atomen im Medium, kommt es zur Emission von Strahlung bis in die Bereiche von extrem ultraviolettem (XUV) Licht und weicher Röntgenstrahlung (soft x-ray). Werden Fundamentalimpulse mit mehreren Zyklen des elektrischen Feldes verwendet, also z.B. Impulse von 30 fs Dauer, so führt der Effekt der Hohen Harmonischen Erzeugung zu einer Aussendung von Lichtimpulsen, deren Einzelimpulse im Zeitbereich einiger 100 Attosekunden ($1 \text{ as} = 1 \cdot 10^{-18} \text{ s}$) liegen und mit jedem Zyklus der Fundamentalwellenlänge generiert werden.

Gegenstand moderner Forschung mit Attosekunden Zeitauflösung ist die Selektion einzelner Attosekundenimpulse [San06] sowie die Realisierung von Pump-Probe Experimenten zur Untersuchung der Dynamik elektronischer Zustandsänderungen oder chemischer Prozesse, die unterhalb der fs- Zeitskala stattfinden.

Die erfolgreiche Umsetzung der Erzeugung Hoher Harmonischer Strahlung und insbesondere die nachfolgende Generierung einzelner, kurzer Attosekundenimpulse ist jedoch stark abhängig von den Eigenschaften der Fundamentalimpulse. In diesem Zusammenhang ist die Bereitstellung einer Quelle intensiver und kurz gepulster elektromagnetischer Strahlung mit wenigen optischen Zyklen eine Grundvoraussetzung.

Vor diesem Hintergrund sollten im Rahmen dieser Diplomarbeit zwei Ziele erreicht werden, die einerseits eine Optimierung des bereits vorhandenen Aufbaus zur Impulskompression und andererseits die Konstruktion einer Anordnung zur Charak-

terisierung betreffen. Die erste der beiden Zielsetzungen bestand darin, mittels einer Technik, die als Filamentation bezeichnet wird, sehr kurze Lichtimpulse zu erzeugen. Hierzu wurden die Lichtimpulse eines kommerziellen Lasersystems mit einer Dauer von 32 fs und einer Repetitionsrate von 8000 Hz in eine gasgefüllte Zelle fokussiert. Durch die Verwendung einer sehr großen Brennweite entsteht ein langes und schwach leuchtendes Filament aus ionisiertem Gas (siehe Abbildung 1.1). Eine Vielzahl von hierbei auftretenden nichtlinearen Effekten vergrößert das spektrale Profil, wodurch eine Kompression der Lichtimpulse auf wenige fs prinzipiell möglich wird. Im Vordergrund stand eine systematische Untersuchung der kontrollierbaren Parameter, mit dem Ziel eine effiziente, stabile und möglichst große spektrale Verbreiterung zu gewährleisten.



Abbildung 1.1.: Foto der Filamentation. Die beiden Filamente, die durch Fokussierung des Laserstrahls in die Gaszelle sowohl auf dem Hin- als auch dem Rückweg entstehen, sind deutlich erkennbar. Der fokussierende Spiegel befindet sich auf der rechten Seite, hier außerhalb des Bildausschnittes.

Zur Kontrolle und Verbesserung des experimentellen Aufbaus und der Justage ist es notwendig, möglichst viel Information über die Impulse zu sammeln, wobei vor allem ihr zeitliches Intensitätsprofil von Interesse ist. Die Charakterisierung mit Hilfe elektronischer Verfahren ist jedoch nicht realisierbar, da selbst die schnellsten Bauteile noch um 5 Größenordnungen zu langsame Auslesezeiten aufweisen. Eine andere Herangehensweise zur zeitlichen Impulscharakterisierung besteht deshalb darin, die Impulse mit Kopien ihrer selbst „abzutasten“, sie also zu „autokorrelieren“, und aus dem resultierenden Signal Rückschlüsse auf die wesentlichen Impulsparameter zu ziehen.

Dieser Methode der Impulscharakterisierung liegt eine Apparatur zugrunde, die im Rahmen der zweiten Zielsetzung dieser Arbeit entwickelt, konstruiert und in Betrieb genommen wurde. Der, entsprechend als „Autokorrelator“ bezeichnete Aufbau zählt zu den ersten und einfachsten Umsetzungen dieses Prinzips [[Arm66](#)], weist aber gerade deswegen den Vorteil einer einfachen Bedienung auf. Darüber hinaus

vermittelt das Signal der Autokorrelation einen einfach zu interpretierenden und intuitiven Eindruck über die vermessene Impulsform. Um die Signale optimal auswerten zu können, wurde des Weiteren eine Software zur Datenanpassung entwickelt, die neben der Ermittlung der Impulsdauer und der Zentralwellenlänge auch Rückschlüsse auf eine mögliche Dispersion der Impulse erlaubt.

Entsprechend den zuvor genannten Zielen der Arbeit ist diese wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen zu ultrakurzen Lichtimpulsen, deren Erzeugung und die Verfahren der Impulscharakterisierung behandelt. Anschließend werden die am Prozess der Filamentation beteiligten nichtlinearen Effekte sowie die wichtigsten mathematischen Hintergründe zur Autokorrelation und einigen anderen Impulscharakterisierungsvarianten vorgestellt. Das Lasersystem und die experimentellen Anordnungen zur Filamentation und Autokorrelation werden in Kapitel 3 präsentiert. Zudem werden auf den Aufbau einer der Filamentationseinheit nachgeschaltete Kompressorstufe eingegangen und die wichtigsten Messungen zur Stabilisierung des Autokorrelators beschrieben. Kapitel 4 befasst sich detailliert mit den Ergebnissen, die mit der Filamentation erzielt werden konnten und zeigt Autokorrelationsmessungen der verschiedenen Laserimpulse, die im Rahmen des Experiments zur Verfügung stehen. Im Zentrum des Interesses steht dabei vor allem die Charakterisierung der Filamentationsimpulse. In Kapitel 5 werden die wichtigsten Resultate und Beobachtungen zusammengefasst und ein Ausblick auf zukünftige Experimente gegeben.

2. Grundlagen

2.1. Beschreibung von ultrakurzen Lichtimpulsen

2.1.1. Erzeugung von Lichtimpulsen

Verschiedenste technische Anwendungen des Lasers haben nicht nur die Entwicklung von kontinuierlicher, monochromatischer elektromagnetischer Strahlung vorangetrieben, sondern auch gepulste Laser mit hohen Intensitäten hervorgebracht. Dabei steht das Bestreben im Vordergrund, immer höhere Ausgangsleistungen bzw. Einzelimpulsenergien zu erreichen und gleichzeitig die Impulsdauer zu minimieren [Kne08]. In den folgenden Abschnitten werden repräsentativ zwei Verfahren beschrieben, nämlich die Methoden der Güteschaltung (engl: Q-switching) und der Modenkopplung (engl: Modelocking) zur Erzeugung kurzer bzw. ultrakurzer Lichtimpulse. Darüber hinaus existieren weitere Techniken, wie das „Gain-switching“ oder das „cavity dumping“, auf die hier nicht weiter eingegangen werden soll (siehe [Sal91]).

Güteschaltung

Die Methode der Güteschaltung zählt zu den ersten erfolgreichen Ansätzen, um kurze Lichtimpulse mit hoher Intensität zu erzeugen. Das Prinzip beruht darauf, eine maximale Besetzungsinversion im Lasermedium zu erreichen, also möglichst viel Energie darin zu speichern, um diese dann „schlagartig“ freizusetzen. Hierzu muss zunächst der Anschwingvorgang des Lasers unterdrückt werden, indem beispielsweise die Verluste vorübergehend durch Blockieren der Strahlungsrückkopplung künstlich hochgehalten werden. Dadurch wird einerseits eine sehr hohe Verstärkung ermöglicht und andererseits ein langsames Abbauen der Inversion während des Pumpvorganges durch die gleichmäßig ansteigende Photonendichte verhindert. Die Verluste werden durch einen optischen Schalter abrupt deaktiviert, wodurch der Laser sehr schnell an- und abschwingt. Die erreichbaren Impulsdauern können dabei im Bereich von Mikrosekunden bis hinab zu einigen Nanosekunden liegen. Da der Schalter in der Regel periodisch die Resonatorgüte beeinflusst, wurde diese Technik Güteschaltung bzw. Q-switching genannt, wobei Q für den Begriff „quality“ steht [Kel02].

Ob als Lasermedium Gase, Festkörper oder andere Materialien eingesetzt werden hängt davon ab, wie viel Energie im Medium während des Pumpvorganges deponiert werden soll und wie stark die Laserschwelle während einer Periode herauf bzw. herabgesetzt wird. Um beispielsweise hohe Einzelimpulsenergien zu erreichen, werden

häufig Festkörper verwendet, da ihr oberes Laserniveau meist relativ langlebig ist und effizient gepumpt werden kann [Nör07]. Allgemein gilt, je größer das Verhältnis aus Pump- und Schwellenleistung ist, umso mehr Energie kann in den Impulsen deponiert werden und umso kleiner sind die erzielbaren Impulsdauern.

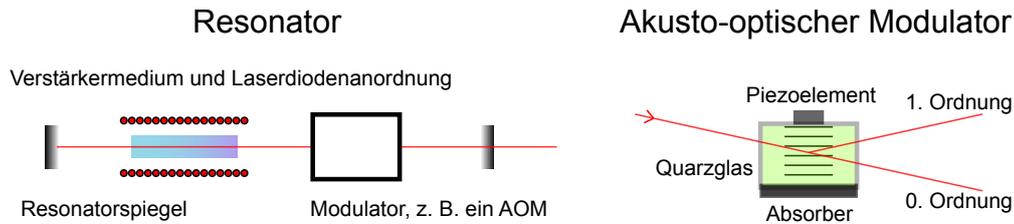


Abbildung 2.1.: Prinzip eines Resonators mit integriertem Modulator und Darstellung eines akusto-optischen Modulators (AOM).

Die Güteschaltung kann auf aktive und passive Art realisiert werden. Da im Rahmen des Experiments ein aktiv gütegeschalteter Pump Laser für eine Verstärkung von Impulsen im infraroten Bereich eingesetzt wird, soll hier dessen Funktionsprinzip schematisch erläutert werden. Wie in Abbildung 2.1 skizziert wird, besteht der Laser aus einem Resonatorspiegelpaar, in deren Zwischenraum das Verstärkungsmedium und ein akusto-optischer Modulator (AOM) untergebracht sind. Senkrecht zur Resonatorachse ist eine Laserdiodenanordnung positioniert, die dazu dient, das Verstärkungsmedium, in diesem Fall einen Nd:YAG Kristall, großflächig optisch zu pumpen und die Besetzungsinversion zu maximieren. Ohne eingebauten (bzw. mit inaktivem) Modulator wird die Laserschwelle durch das optische Pumpen zu jedem Zeitpunkt überschritten, wodurch der Laser im kontinuierlichen Betriebszustand läuft. Für den eigentlichen, hier periodischen Prozess der Güteschaltung ist der AOM zuständig. Dabei handelt es sich um einen transparentes optisches Bauelement (im vorliegenden Fall Quarzglas), an dessen Enden ein Piezoelement bzw. ein Absorber montiert sind. Eine am Piezoelement angelegte Hochspannung erzeugt eine Schallwelle, die durch das Element propagiert und vom Absorber aufgefangen wird. Die Schallwelle ihrerseits kann auch als Dichteschwankung und eine daraus resultierende Brechungsindexmodulation im Material aufgefasst werden und stellt für den Laser ein optisches Phasengitter dar. Trifft ein Strahl auf dieses Gitter, so wird durch Beugung die Leistung entlang der Resonatorachse minimiert. In dieser Einstellung ist der Resonator „schlecht“ und die stimulierte Emission im Medium unterdrückt. Währenddessen sammelt sich im Medium eine vergleichsweise hohe Energiemenge durch die ansteigende Besetzungsinversion an, die aufgrund der schlechten Resonatorgüte nicht abgebaut werden kann. Sobald sich eine maximale Besetzungsinversion eingestellt hat, kann die Hochspannung ausgeschaltet (dieser

Vorgang muss sehr schnell ablaufen) und die Strahlungsrückkopplung durch den Resonator wiederhergestellt werden. Der Laser kann dann in kurzer Zeit mit einer sehr hohen Kleinsignalverstärkung anschwngen und die Inversion zu einem Großteil abbauen mit dem Resultat der Erzeugung eines kurzen, intensiven Lichtimpulses. Die Schaltfrequenz des Modulators gibt dabei die Impulsrepetitionsrate vor.

Es existieren ähnliche Varianten der aktiven Güteschaltung, in denen statt akustooptische elektro-optische Modulatoren verwendet werden. Dazu zählt unter anderem die so genannte Pockelszelle in Kombination mit einem Polarisationsstrahlteiler. Die Polarisation des Lasers wird dabei für den Zeitbereich der schlechten Resonatorgüte so eingestellt, dass das Licht aus dem Resonator ausgekoppelt wird.

Modenkopplung

Ein anderer Ansatz, mit dem noch erheblich kürzere Lichtimpulse als durch die Güteschaltung erzeugt werden können, wird mit dem Prinzip der Modenkopplung (engl.: Modelocking) verfolgt. Charakteristisch bei dieser Technik sind neben den kurzen Impulsdauern, die bis zu wenigen Femtosekunden ($15 \cdot 10^{-15}$ fs) reichen, auch die dann entsprechend großen spektralen Bandbreiten. Im Folgenden soll die Methode der Modenkopplung mathematisch dargestellt werden:

In einem Resonator mit ebenen Spiegeln können sich stehende Lichtwellen mit der Frequenz ν_r ausbilden, wenn für die Resonatorlänge gilt: $L = n \cdot \frac{\lambda_r}{2} = n \cdot \frac{c}{2\nu_r}$. Für einen beliebigen Resonator bestimmen die Randbedingungen (zum Beispiel die Länge des Systems), welche longitudinalen Moden entstehen können. Im Allgemeinen oszillieren die Moden unabhängig voneinander und weisen eine willkürliche Intensitätsverteilung auf. Im zeitlichen Fourierbild äußert sich dies in ebenso willkürlichen Amplituden- und Phasenfluktuationen. Wenn es gelingt, den longitudinalen Moden mit einem Modenabstand von $\Delta\omega_r = \frac{\pi c}{2L}$ eine feste Intensitätsverteilung $\tilde{I}(\omega)$ und Phasenbeziehung $\tilde{\phi}(\omega)$ zuzuordnen, so erhält man über die Fouriertransformation im Zeitbild einen Impulszug.

In den folgenden Rechenschritten soll nachvollzogen werden, welche Bedingungen an die Überlagerung der einzelnen Moden geknüpft sein müssen, um kurze Lichtimpulse zu erzeugen. Dazu wird die Gesamtwellenfunktion im Resonator entlang dessen Achse (z-Richtung) betrachtet, die sich aus der kohärenten Summe über $2n + 1$ Moden zusammensetzt, welche ihrerseits in erster Näherung durch ebene Wellen der Frequenz ν_q , bzw. ω_q repräsentiert sein sollen.

$$E(z, t) = \sum_{q=-n}^n \mathcal{A}_q e^{i\omega_q(t - \frac{z}{c})} \quad (2.1)$$

Dabei ist \mathcal{A}_q die komplexe Amplitude, deren Betrag $|\mathcal{A}_q|$ durch das Verstärkungsprofil im Lasermedium und dem spektralen Verlustprofil im Resonator gegeben ist. Die Frequenz jeder beteiligten Welle kann als Summe einer zentralen Frequenz ω_0

und eines ganzzahligen Vielfachen der Resonatorfrequenz (auch bekannt als Freier Spektralbereich) dargestellt werden.

$$\omega_q = \omega_0 + q\omega_r \quad \text{mit} \quad q = -n, -n+1, \dots, n-1, n. \quad (2.2)$$

Wird Gleichung (2.2) in (2.1) eingesetzt, erhält man:

$$\begin{aligned} E(z, t) &= \sum_{q=-n}^n \mathcal{A}_q e^{[iq\omega_r(t-\frac{z}{c})]} \cdot e^{[i\omega_0(t-\frac{z}{c})]} \\ &= A(t - \frac{z}{c}) \cdot e^{[i\omega_0(t-\frac{z}{c})]} \end{aligned} \quad (2.3)$$

Die Einhüllende $A(t - \frac{z}{c})$ bzw. $A(t)$ für ein am Ort festgehaltenes Wellenpaket ist eine mit $T_r = \frac{2\pi}{\omega_r}$ periodische Funktion. Damit $A(t)$ die Form eines Impulszuges mit vielen engen Spitzen annehmen kann, müssen die komplexen Koeffizienten \mathcal{A}_q in Bezug auf Betrag und Phase entsprechend gewählt werden.

Um zu einem analytischen Ausdruck zu gelangen, sollen der Einfachheit halber exakt m Moden betrachtet werden, für die die Zusammenhänge $m = 2n + 1$ und $q = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm n$ gelten. Darüber hinaus soll die Zentralfrequenz $\omega_{q=0}$ mit der atomaren Linie im aktiven Medium übereinstimmen und alle verstärkten Frequenzen die gleiche Amplitude aufweisen, also $\mathcal{A}_q = \mathcal{A}$. Mit diesen vereinfachenden Annahmen kann $A(t)$ wie folgt geschrieben werden:

$$\begin{aligned} A(t) &= \sum_{q=-n}^n \mathcal{A} e^{[iq\omega_r t]} = \mathcal{A} \sum_{q=-n}^n e^{[iq\omega_r t]} = \mathcal{A} \sum_{q=-n}^n x^q \\ &= \mathcal{A} \frac{x^{n+1} - x^{-n}}{x - 1} = \mathcal{A} \frac{x^{n+\frac{1}{2}} - x^{-n-\frac{1}{2}}}{x^{\frac{1}{2}} - x^{-\frac{1}{2}}} \\ &= \mathcal{A} \frac{\sin(\frac{1}{2}m\omega_r t)}{\sin(\frac{1}{2}\omega_r t)} \end{aligned} \quad (2.4)$$

Zur Vereinfachung wurde $x = e^{i\omega_r t}$ gesetzt. Der letzte Schritt kann in [Sal91] nachvollzogen werden. Für die Intensität gilt $I(t, z) = |A(t)|^2$, also:

$$I(t, z) = |\mathcal{A}|^2 \frac{\sin^2(\frac{1}{2}m\omega_r t)}{\sin^2(\frac{1}{2}\omega_r t)} \quad (2.5)$$

In Abbildung 2.2 ist die Impulserzeugung mit Hilfe der „Modelocking-“ Technik schematisch dargestellt. Die beteiligten Resonatormoden (3 bzw. 15) werden im Spektral- wie auch im Zeitraum gezeigt. In der unteren Bildreihe erkennt man die Überlagerung der Moden in Form eines sich bildenden Impulszuges. Die einzelnen Impulse werden umso kürzer, je mehr Moden phasengleich gekoppelt sind. Dies wiederum ist durch die Bandbreite des aktiven Mediums limitiert.

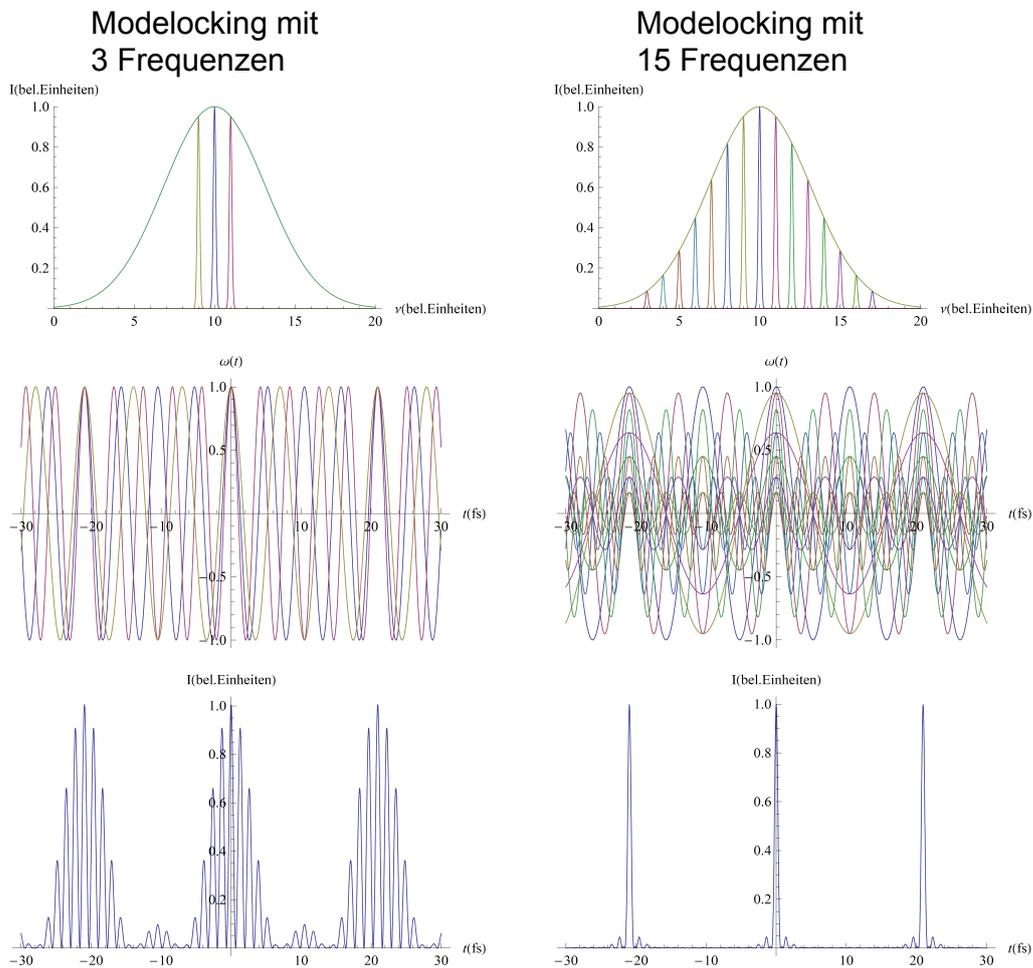


Abbildung 2.2.: Modenkopplung mit 3 bzw. 15 teilnehmenden Moden. Obere Bildreihe: Die im Resonator ausgebildeten Moden mit ihrer durch das Verstärkungsmedium bedingten Gewichtung (hier gegeben durch eine Gaußkurve). Mittlere Bildreihe: Die phasengekoppelte Überlagerung der Frequenzen. An jeweils drei Stellen erkennt man den konstruktiven Überlapp der Wellen. Untere Bildreihe: Intensitätsbild aus der Interferenz der beteiligten Wellen. Hier wird vor allem deutlich, dass eine höhere Anzahl beteiligter Moden zu kürzeren Intensitätsspitzen bzw. Impulsen führt.

Vergleich zwischen Güteschaltung und Modenkopplung

Der Hauptunterschied zwischen beiden Techniken liegt in den erreichbaren Impulsdauern, die im Falle der Modenkopplung um bis zu 6 Größenordnungen kürzer als bei der Güteschaltung sein können. Aufgrund der verschiedenen Herangehensweisen weichen auch die zeitlichen Impulsprofile voneinander ab. So bestimmen bei der Güteschaltung neben dem aktiven Medium die Ein- und Ausschaltprozesse des Modulators den zeitlichen Verlauf. Bei der Modenkopplung hingegen ist die Impulsform weitgehend unabhängig von passiven oder aktiven Schaltvorgängen.

Ein weiterer Unterschied betrifft die Repetitionsrate der Impulse, die zum Beispiel bei der Güteschaltung durch die Schaltfrequenz vorgegeben ist. Dabei darf die Frequenz nicht höher als die Resonatorumlauffrequenz $\nu_r = \frac{c}{2L}$ sein, mit dem Resultat, dass die Impulsdauer stets länger als die Resonatorumlaufzeit $T_r = \frac{2L}{c}$ ist.

Die Technik der Modenkopplung hingegen basiert darauf, dass viele axiale Moden im Spektrum phasengekoppelt werden. Die Impulsrepetitionsrate wird durch die Resonatorfrequenz und damit über die Resonatorlänge eingestellt. Im Gegensatz zur Güteschaltung sind die Impulse grundsätzlich kürzer als die Resonatorumlaufzeit T_r .

Mit Hilfe von sättigbaren Absorbern können beide Techniken sogar gleichzeitig realisiert werden. In der Praxis bedeutet letzteres, dass die Resonatorumlaufzeit und die Schaltfrequenz des Modulators aufeinander abgestimmt werden.

2.1.2. Beschreibung von Lichtimpulsen durch Wellenpakete

Die einfachste mathematische Darstellung eines Lichtimpulses wird durch eine Überlagerung von ebenen Wellen unterschiedlicher Frequenzen mit Phasen erreicht, siehe Abschnitt zur Modenkopplung. Für die meisten Fälle mit praktischer Relevanz ist jedoch eine andere Betrachtungsweise sinnvoll. Dabei wird das Wellenpaket als Produkt einer Einhüllenden und eines spezifischen Phasenfaktors entwickelt.

$$E(t) = A(t) e^{i\phi(t)} \quad (2.6)$$

$$\tilde{E}(\omega) = s(\omega) e^{-i\varphi(\omega)} \quad (2.7)$$

$$I(t) = |E(t)|^2 = |A(t)|^2 \quad (2.8)$$

$$S(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|^2 = |s(\omega)|^2 \quad (2.9)$$

Hierbei sind $A(t)$ die Amplitude und $s(\omega)$ die spektrale Dichte, aus denen jeweils die zeitabhängige Intensität $I(t)$ und das spektrale Profil $S(\omega)$ berechnet werden kann. $\varphi(t)$ und $\phi(\omega)$ repräsentieren die zeitliche bzw. frequenzabhängige Phase. Letztere legt fest, welche der im Impuls enthaltenen „Farben“ an welchen Positionen entlang der Zeitachse anzutreffen sind und welche Beziehung sie während der Impulspropagation zueinander aufweisen.

Der Zusammenhang der Impulsdarstellungen (2.6) und (2.7) folgt für einen am Ort festgehaltenen Impuls aus der Fouriertransformation. Daraus lässt sich erkennen, dass die spektrale Verteilung die Lichtimpulsform im Zeitraum festlegt.

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (2.10)$$

Durch eine Substitution der Frequenz ω durch $\omega_0 + \Delta\omega$ kann der Impuls in eine Trägerwelle mit der zentralen Kreisfrequenz ω_0 und eine Einhüllende $A(t)$ zerlegt werden. Das spektrale Profil ist charakterisiert durch die Breite $\Delta\omega$ und die mittlere Kreisfrequenz ω_0 .

$$\begin{aligned} E(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int \tilde{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i(\omega_0 + \Delta\omega)t} d\Delta\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{i\omega_0 t} \int \tilde{E}(\Delta\omega) e^{i(\Delta\omega)t} d\Delta\omega \\ &= e^{i\omega_0 t} A(t) \end{aligned} \quad (2.11)$$

Die Amplitude $A(t)$ ist hierbei die Impulsenhüllende und enthält die Information über die beteiligten Frequenzkomponenten bzw. Moden. Eine interessante Überlegung resultiert aus der Frage, welche Frequenzen bei der Impulsformung beteiligt sind. Handelt es sich um ein kontinuierliches spektrales Profil, so entsteht ein einzelner Impuls. Die kohärente Überlagerung diskreter Frequenzen hingegen produziert einen Impulszug (siehe Abschnitt zur Modenkopplung [2.1.1]).

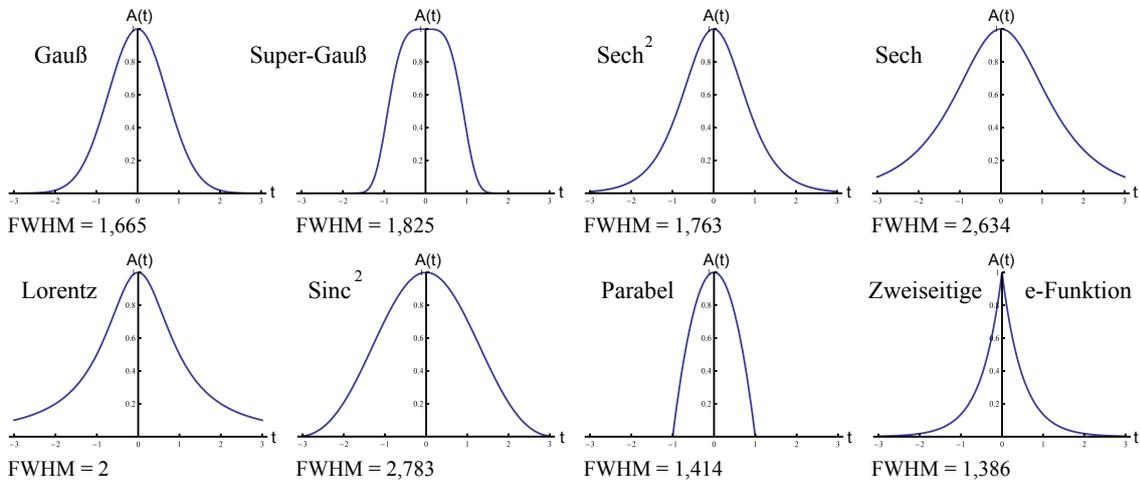


Abbildung 2.3.: Analytische Impulsformen für $A(t)$

Um Lichtimpulse analytisch zu behandeln, kann man $A(t)$ durch verschiedene Impulsformen annähern. Zu den bekanntesten zählen der Gauß-, der Lorentz- und der Hyperbelsekansimpuls. Weitere Beispiele, einschließlich der entsprechenden Werte für die volle Halbwertsbreite (engl.: Full Width Half Maximum: FWHM) können aus Abbildung 2.3 entnommen werden.

2.1.3. Impulsparameter

Einige zeit- und frequenzabhängige Impulsparameter, wie beispielsweise die zeitliche Amplitude, Intensität, Phase sowie spektrale Dichte, Profil und Phase wurden bereits im vorangehenden Kapitel angesprochen. Darüber hinaus existieren weitere Impulsparameter, die im Hinblick auf die Charakterisierung besonders relevant sind. Dazu gehören in erster Linie die Impulsdauer, die Frequenzbandbreite und die Dispersion, sprich das zeitliche Auseinanderlaufen der Frequenzen, welches üblicherweise auch als „chirp“ (engl: für zwitschern) bezeichnet wird. Ein weiterer wichtiger Parameter, vor allem bei Impulsen mit nur wenigen Schwingungszyklen des elektrischen Feldes, ist die „carrier envelope offset“ Phase, die eine zeitliche Absolutposition der Trägerwelle innerhalb der Impulsenhüllenden repräsentiert.

Die Dauer eines beliebigen Impulses ist durch die Standardabweichung τ definiert und wird für die gängigen Impulsformen oftmals auch mit der vollen Halbwertsbreite (FWHM) angegeben. Für ein allgemeines zeitliches Impulsprofil gilt [Agr01]:

$$\tau = [\langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2]^{\frac{1}{2}} \quad (2.12)$$

$$\langle t^n \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} t^n |A(z, t)|^2 dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} |A(z, t)|^2 dt} \quad (2.13)$$

Die spektrale Bandbreite eines Impulses wird im Fourierraum, hier also im Frequenzraum, analog zur Impulsdauer berechnet. Ein besonderes Charakteristikum verschiedener Impulsformen ist das sog. Zeit-Bandbreiteprodukt $\Delta\nu \cdot \tau$, dessen formspezifischer, niedrigst möglicher Wert eine Impulskompressionsgrenze darstellt. Ein Impuls, dessen Zeit-Bandbreiteprodukt diesen Wert annimmt, wird als bandbreitenlimitiert bezeichnet und kann ohne Einfluss von nichtlinearen Effekten nicht weiter verkürzt werden.

Für einen bandbreitenlimitierten Impuls liegen alle Frequenzen zeitlich gesehen übereinander. Ein „gechirptes“ Wellenpaket hingegen weist unterschiedliche Frequenzen zu verschiedenen Zeitpunkten auf. Die Entstehung eines solchen, nicht optimal komprimierten Impulses hängt eng mit der Ausbreitung in dispersiven Medien zusammen, worauf im nächsten Kapitel noch näher eingegangen wird.

Der chirp kann sowohl lineare als auch nichtlineare Anteile besitzen und mitunter zu einer starken Verzerrung des Impulses führen. Sein linearer Anteil wird häufig auch als „Gruppen-Verzögerungs-Dispersion“, kurz „GDD“ (engl. für group delay dispersion), als „linearer chirp“ oder auch als „Dispersionsparameter 2. Ordnung“ bezeichnet. Im Folgenden soll der lineare chirp anhand eines Gaußimpulses beschrieben werden, vgl. [Kel02] und [Agr01]. Vorfaktoren sowie der Orts- und Wellenzahlanteil $ik_n^{(0)}z$ im Phasenfaktor können der Einfachheit halber weggelassen werden. Dies ist

zulässig, da sie durch die folgenden Umformungen keinerlei Veränderungen erfahren und jederzeit wieder in die Gleichungen eingefügt werden können. Die Einhüllende $A(t)$ des elektrischen Feldes soll nun durch eine Gaußfunktion gegeben sein, die mit einer komplexen Trägerwelle ω_0 moduliert ist.

$$E(t) = A(t) e^{i\omega_0 t} = e^{-\Gamma t^2} e^{i\omega_0 t} \quad (2.14)$$

Die Breite dieser Funktion besteht aus einem komplexen Faktor $\Gamma = \Gamma_1 - i\Gamma_2$, der sich aus einer Impulslänge Γ_1 und einem chirp-Parameter Γ_2 zusammensetzt. Für „gechirpte“ Impulse wird die Einhüllende komplex, da $\Gamma_2 \neq 0$ gilt. Obwohl diese Darstellung häufig in der Literatur verwendet wird, ist sie für einige Zwecke unzureichend. So kann aus ihr keine inhärente Abhängigkeit der Impulsdauer von der GDD hergestellt werden. In anderen Worten bedeutet das, dass sich anhand der Definition von Γ weder die „ursprüngliche“ Impulsdauer, noch der Dispersionsparameter 2. Ordnung $\frac{d^2\Phi}{dt^2}$ rekonstruieren lassen, siehe hierzu auch Kapitel [2.2.2]. Vielmehr müssen hierzu Γ_1 und Γ_2 durch einige Betrachtungen im Spektralraum erweitert werden.

Die Ausgangssituation stellen dabei eine gaußförmige spektrale Verteilung, also ein Wellenpaket im Spektralraum und ein komplexer Impulsparameter $\gamma = \gamma_1 + i\gamma_2$ dar, auf dessen Bedeutung und Zusammenhang mit Γ im Laufe der Rechnung noch hingewiesen wird. Trotzdem sei hier hervorgehoben, dass Γ und γ unterschiedliche Größen mit unterschiedlichen Einheiten repräsentieren, trotz der zunächst recht ähnlichen Definitionen. Mithilfe dieser Darstellung erkennt man, dass das spektrale Profil $S(\omega)$ nur von γ_1 abhängt und damit eine konstante Bandbreite ($\Delta\omega_{FWHM} = \sqrt{8 \ln 2 / \gamma_1}$) aufweist.

$$\tilde{E}(\omega) = \sqrt{\pi\gamma} e^{-\gamma \frac{(\omega - \omega_0)^2}{4}} = \sqrt{\pi(\gamma_1 + i\gamma_2)} e^{-(\gamma_1 + i\gamma_2) \frac{(\omega - \omega_0)^2}{4}} \quad (2.15)$$

$$S(\omega) = \left| \tilde{E}(\omega) \right|^2 \propto e^{-\gamma_1 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{2}} \quad (2.16)$$

Die Fouriertransformation der spektralen Dichte $s(\omega)$ multipliziert mit der Trägerwelle führt zum zeitabhängigen elektrischen Feld $E(t)$.

$$\begin{aligned} E(t) &= \mathcal{F}^{-1}[s(\omega)] e^{i\omega_0 t} = e^{-\frac{t^2}{\gamma}} e^{i\omega_0 t} = e^{-\frac{t^2}{\gamma_1 + i\gamma_2}} e^{i\omega_0 t} \\ &= e^{-\frac{\gamma_1}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} t^2} e^{i \frac{\gamma_2}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} t^2} e^{i\omega_0 t} \end{aligned} \quad (2.17)$$

Aus dem Vergleich zwischen den Gleichungen (2.14) und (2.17) kann der Zusammenhang zwischen Γ und γ hergestellt werden.

$$\Gamma_1 = \frac{\gamma_1}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} \quad \text{und} \quad \Gamma_2 = \frac{-\gamma_2}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} \quad (2.18)$$

Welche Informationen aus diesen Parametern gewonnen werden können, macht eine nähere Betrachtung der Phase deutlich.

$$\varphi(t) = \omega_0 t + \frac{\gamma_2}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} t^2 \quad (2.19)$$

$$\omega(t) \equiv \frac{d\varphi(t)}{dt} = \omega_0 + 2 \frac{\gamma_2}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} t \quad (2.20)$$

In diesem Beispiel eines gec chirpten Impulses hängt die momentane Frequenz linear von der Zeit ab und ist nur konstant, wenn der chirp-Parameter γ_2 den Wert null annimmt. Die Impulsdauer erhält man über die Berechnung der Intensität.

$$I(t) = |E(t)|^2 = e^{-2 \frac{\gamma_1}{\gamma_1^2 + \gamma_2^2} t^2} \quad (2.21)$$

$$\tau_{FWHM} = \sqrt{\frac{2 \ln 2}{\Gamma_1}} = \sqrt{2 \ln 2} \sqrt{\frac{\gamma_1^2 + \gamma_2^2}{\gamma_1}} = \sqrt{2 \ln 2} \sqrt{\gamma_1} \sqrt{1 + \frac{\gamma_2^2}{\gamma_1^2}} \quad (2.22)$$

$$\tau_{FWHM} \cdot \omega_{FWHM} = 4 \ln 2 \sqrt{1 + \frac{\gamma_2^2}{\gamma_1^2}} \quad (2.23)$$

Anhand der Formel (2.22) lässt sich leicht erkennen, wie γ_2 die Impulsdauer beeinflusst. An dieser Stelle soll noch hervorgehoben werden, dass $\tau_{FWHM} \cdot \omega_{FWHM}$ für $\gamma_2 = 0$ tatsächlich einen minimalen Wert aufweist und damit ein bandbreitenlimitierter Impuls vorliegt.

Zusammenfassend ist festzustellen, dass Γ_1 und γ_1 die Impulsdauer mit bzw. ohne chirp repräsentieren. Wäre dieser Impuls ungechirpt oder bandbreitenlimitiert, würde $\Gamma_1 = 1/\gamma_1$ gelten und beide Parameter enthielten die gleiche Information. Dieser Fall tritt ein, wenn der chirp γ_2 den Wert 0 annimmt. Im nächsten Abschnitt wird erläutert, wie γ_2 mit der GDD zusammenhängt.

Der letzte Parameter, der in diesem Unterkapitel noch angesprochen werden soll, ist die sog. „carrier envelope offset“ Phase, ϕ_{CEO} , die als Differenz zwischen den Phasenpositionen des maximal möglichen und des gegenwärtig größten elektrischen Feldes innerhalb des Impulses definiert ist. Das entspricht der relativen Phase zwischen dem Träger (carrier) und der Einhüllenden (envelope) [Tel99].

2.2. Impulsausbreitung in Materie

2.2.1. Lineare und Nichtlineare Impulsausbreitung

Die Linearität und Nichtlinearität der Impulsausbreitung bezieht sich auf die Materialeigenschaften und die Art und Weise, wie diese den Impuls beeinflussen. Lineare

Effekte, wie Dispersion und Absorption, können bereits durch die frequenzabhängige Wellenzahl $k_n(\omega)$ und den Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$ vollständig beschrieben werden. Nichtlineare Effekte sind unter anderem intensitätsabhängig und können zum Beispiel das Frequenzspektrum eines Wellenpaketes verändern [Mes08].

2.2.2. Einfluss der Dispersion auf Lichtimpulse

Bei der Dispersion geht es um den Einfluss des transparenten Materials auf das zeitliche Profil des Wellenpaketes. Der Effekt drückt sich in der Frequenzabhängigkeit einiger Materialparameter aus, wie beispielsweise der Suszeptibilität, dem Brechungsindex und damit der Lichtgeschwindigkeit im Medium [Kne08]. Er kann ohne entsprechende Kontrollmaßnahmen verheerende Auswirkungen auf die zeitliche Impulsform haben. Optische Komponenten wie Linsen und Prismen, aber auch Luft, weisen den unterschiedlichen Frequenzanteilen im elektromagnetischen Feld verschiedene Lichtgeschwindigkeiten zu, mit dem Resultat, dass der Impuls unter Umständen auseinander läuft oder verzerrt wird.

In einem linearen System ist die Impulsantwort stets unabhängig von der Stärke des Eingangssignals. Da ein dispersives Medium ein solches lineares System darstellt, kann die Berechnung der zeitlichen Entwicklung eines Impulses im Spektralraum gelöst und über die Fouriertransformation in den Zeitraum wieder abgebildet werden. Die Impulseinhüllende verändert sich nur gering innerhalb eines Zeitraumes von $\frac{2\pi}{\omega_0}$, so dass mit Hilfe der „Näherung der sich langsam veränderlichen Einhüllenden (svea)“ die Berechnung der Lichtwelle auf die Impulseinhüllende reduziert werden kann. Diese Näherung ist sogar für Impulse mit wenigen Wellenzyklen noch gut erfüllt. Die verschiedenen Teilaspekte der Dispersion lassen sich nun über eine Taylorentwicklung der spektralen Phase $\phi(\omega)$ oder der frequenzabhängigen Wellenzahl $k_n(\omega)$ näher untersuchen. Letztere Darstellung ermöglicht die Berechnung des Impulses in Abhängigkeit der Länge z des dispersiven Mediums.

$$\begin{aligned}\phi(\omega) &= \phi(\omega_0) + \phi^{(1)}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\phi^{(2)}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\phi^{(3)}(\omega - \omega_0)^3 + \dots = \\ k_n(\omega)z &= k_n(\omega_0)z + k_n^{(1)}z(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k_n^{(2)}z(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}k_n^{(3)}z(\omega - \omega_0)^3 + \dots\end{aligned}\tag{2.24}$$

$$\text{mit } \phi^{(i)} = \left. \frac{d^i \phi}{d\omega^i} \right|_{\omega=\omega_0} \quad \text{und} \quad k_n^{(i)} = \left. \frac{d^i k_n}{d\omega^i} \right|_{\omega=\omega_0}\tag{2.25}$$

Je größer die spektrale Bandbreite eines Impulses ist, umso wichtiger werden die Dispersionsparameter $\phi^{(i)}$ höherer Ordnung. So muss der Einfluss von $\phi^{(3)}$ bei Impulsdauern von wenigen fs unbedingt mitberücksichtigt werden.

Ausgangslage zur näheren Betrachtung der Dispersion sei die Impulseinhüllende $A(z, t)$ eines ungechirpten, bandbreitenlimitierten Gaußimpulses (2.15), mit $\gamma_2 = 0$

und damit $\gamma = \gamma_1$. Die Fouriertransformation von $A(t)$ ergibt $s(\omega)$, siehe Gleichung (2.11). Der Lichtimpuls soll nun ein dispersives Material der Länge z durchlaufen:

$$\begin{aligned}
s(z, \omega) &= s(0, \omega) e^{-i[k_n(\omega) - k_n^{(0)}(\omega_0)]z} & (2.26) \\
&= \sqrt{\pi\gamma_1} e^{-\gamma_1 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{4}} e^{-i[k_n(\omega) - k_n^{(0)}(\omega_0)]z} \\
&= \sqrt{\pi\gamma_1} e^{-\gamma_1 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{4}} e^{-i[k_n^{(0)}(\omega_0) + k_n^{(1)}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k_n^{(2)}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}k_n^{(3)}(\omega - \omega_0)^3 - k_n^{(0)}(\omega_0)]z} \\
&= \sqrt{\pi\gamma_1} e^{-\gamma_1 \frac{(\omega - \omega_0)^2}{4}} e^{-i[k_n^{(1)}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k_n^{(2)}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}k_n^{(3)}(\omega - \omega_0)^3]z} \\
&= \sqrt{\pi\gamma_1} e^{-i[k_n^{(1)}z](\omega - \omega_0)} e^{-[\frac{\gamma_1}{4} + i\frac{1}{2}k_n^{(2)}z](\omega - \omega_0)^2} e^{-i[\frac{1}{6}k_n^{(3)}z](\omega - \omega_0)^3}
\end{aligned}$$

Wird der Dispersions-Term dritter Ordnung vernachlässigt, so lässt sich aus (2.26) auf analytischem Weg die Feldverteilung $E(z, t)$ berechnen.

$$\begin{aligned}
E(z, t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} s(z, \omega) d(\omega - \omega_0) \cdot e^{i(\omega_0 t - k_n^{(0)} z)} & (2.27) \\
&= \sqrt{\frac{\gamma_1}{\gamma}} e^{i(\omega_0 t - k_n^{(0)} z)} e^{\frac{1}{\gamma}(k_n^{(1)} z - t)^2}
\end{aligned}$$

$$\text{mit } \gamma = \gamma_1 + i\gamma_2 = \gamma_1 + 2ik_n^{(2)} \quad (2.28)$$

Damit wird deutlich, dass der chirp-Faktor γ_2 aus dem vorangehenden Abschnitt direkt proportional zum Dispersionsparameter 2. Ordnung, also $k_n^{(2)}$ ist. An dieser Stelle sollen nun noch die einzelnen Dispersionsparameter und ihr Einfluss auf das elektromagnetische Feld genauer untersucht werden. $k_n^{(0)}$ und $k_n^{(1)}$ in Gleichung (2.27) bestimmen die Phasen- bzw. die Gruppengeschwindigkeit. Beide Werte können unterschiedliche Beträge aufweisen, was ein periodisches Durchlaufen der Phasenfront innerhalb der Einhüllenden zur Folge hat. Der dritte Term $k_n^{(2)}$ verursacht den bereits besprochenen chirp, dh. das lineare Auseinanderlaufen der spektralen Wellenanteile. Blaue Frequenzen sind bei sog. normaler Dispersion langsamer als rote, was die Impulsdauer erhöht und somit die Spitzenintensität kleiner werden lässt. Mit Hilfe numerischer Methoden können auch höhere Dispersionsordnungen untersucht werden. So verursachen unter anderem alle ungeraden Terme, wie beispielsweise $k_n^{(3)}$ ein asymmetrisches Auseinanderlaufen der Frequenzen, wodurch kleinere „Vor- oder Nachimpulse“ entstehen. Der Einfluss der Dispersionsparameter auf die zeitliche Impulsform wird in Abbildung 2.4 verdeutlicht. Die obere Bildreihe zeigt sehr kurze 3,7 fs Impulse, die in (b) durch $k_n^{(0)}$ und in (c) durch $k_n^{(1)}$ modifiziert wurden. Dabei wird lediglich ein Unterschied zwischen Phasen- und Gruppengeschwindigkeit hervorgerufen, das zeitliche Profil der Einhüllenden bleibt jedoch unverändert.

In der unteren Bildreihe zu 2.4 sind drei 11,8 fs Impulse gezeigt. In (e) ist der Einfluss von $k_n^{(2)}$ (also der Dispersion 2. Ordnung bzw. der GDD) dargestellt. Dieser Impuls weist im Vergleich zum unmodifizierten Impuls 2.4 (d) eine breitere spektrale Verteilung auf und könnte demnach weiter komprimiert werden. In 2.4 (f) ist die Wirkung von $k_n^{(3)}$ (also der Dispersion 3. Ordnung bzw. der „TOD“, engl.:third order dispersion) und die damit verbundene Erzeugung von Vor- bzw. Nachimpulsen visualisiert.

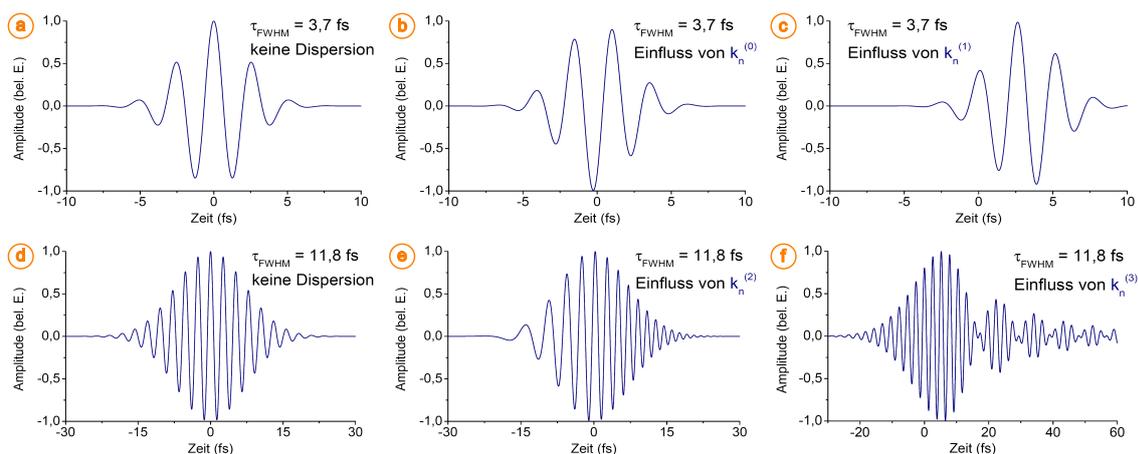


Abbildung 2.4.: Darstellung von Impulsen unter der Beeinflussung der verschiedenen Dispersionsparameter $k_n^{(i)}$. Die einzelnen Bilder werden im Text beschrieben.

2.3. Spektrale Verbreiterung von Lichtimpulsen

In diesem Abschnitt werden zunächst einige nichtlineare optische Prozesse vorgestellt, die im Hinblick auf die Impulsverkürzung eine wichtige Rolle spielen. Im Anschluss daran wird die Technik der sog. Filamentation beschrieben, in der das komplexe Zusammenspiel dieser Effekte ausgenutzt wird.

2.3.1. Lineare und Nichtlineare optische Effekte

Ein ultrakurzer Laserimpuls ist wegen seiner in der Regel hohen Intensitäten selbst in einem gasförmigen Medium einer Vielzahl von nichtlinearen Effekten ausgesetzt, die Einfluss auf sein Profil, seine Intensität, seine Frequenzverteilung und viele weitere Impulseigenschaften nehmen. Die wichtigsten sind hierbei die zeitliche Selbstphasenmodulation, der optische Kerrlinseneffekt und die Plasmadefokussierung.

Selbstphasenmodulation

Moderne Verstärkersysteme erzeugen fourierlimitierte Laserimpulse im Bereich von 25 fs. Um die Impulsdauern weiter verkürzen zu können, ist eine spektrale Verbreiterung der Lichtimpulse erforderlich, die mittels der sog. Selbstphasenmodulation (SPM) realisiert werden kann.

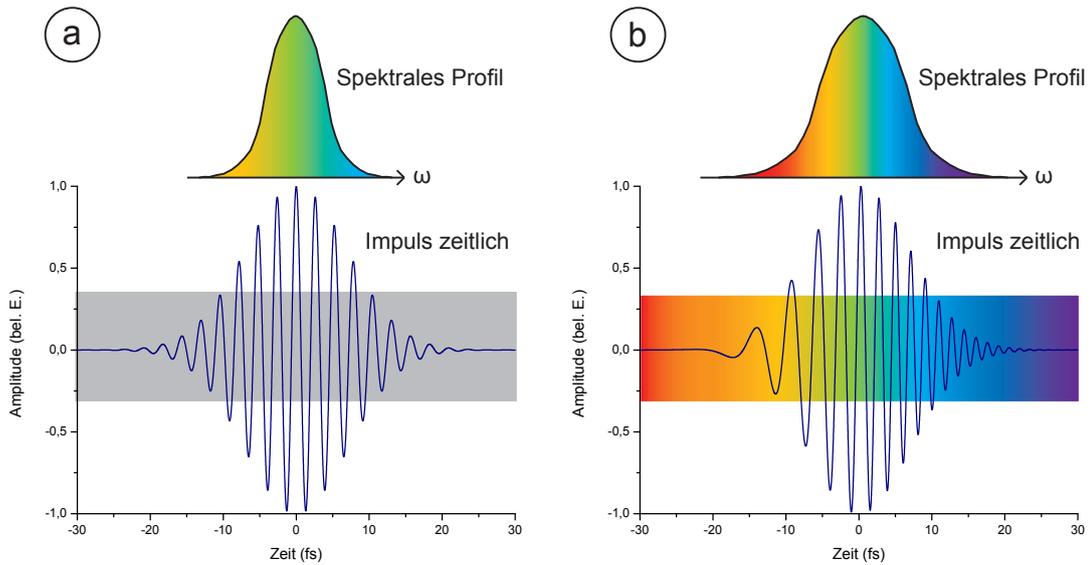


Abbildung 2.5.: Dargestellt wird ein 11,8 fs Impuls vor (a) und nach (b) der spektralen Verbreiterung durch die Selbstphasenmodulation. Oberhalb der Impulse ist die jeweilige spektrale Verteilung skizziert, die in (b) durch SPM verbreitert worden ist. Die Farbbalken hinter den Impulsen sollen verdeutlichen, dass die Frequenzen in (a) zu jedem Zeitpunkt übereinander liegen, während sie in (b) zeitlich versetzt sind. Der Lichtimpuls in (b) kann durch Kompression weiter verkürzt werden

Die Beschreibung der SPM erfolgt zum einen über den intensitätsabhängigen Brechungsindex des Mediums und zum anderen über das zeitliche Intensitätsprofil des Impulses. Exemplarisch soll dies an einem Gaußimpuls demonstriert werden, der wie in Gleichung (2.21), jedoch ohne chirp ($\gamma_2 = 0$) definiert sein soll. Es seien der intensitätsabhängige Brechungsindex sowie die Intensität gegeben durch:

$$n(\omega, t) = n_0(\omega) + n_2 \cdot I(t) \quad (2.29)$$

$$I(t) = |E(t)|^2 \propto e^{-2\frac{t^2}{\tau_1}} \quad (2.30)$$

Um zu sehen, wie durch (2.29) weitere Frequenzen im Spektrum erzeugt werden, muss man die Phase des elektrischen Feldes näher untersuchen.

$$\varphi(t) = \omega_0 t - k_n(t) \cdot z = \omega_0 t - \frac{\omega_0}{c} n(t) z \quad (2.31)$$

Die momentane Frequenz ist analog zu (2.20) definiert. Aus der Gleichung lässt sich die Frequenz zu verschiedenen Zeitpunkten ablesen und man erhält nach einigen Umformungen:

$$\begin{aligned}\omega(t) &= \frac{d\varphi(t)}{dt} = \omega_0 + \frac{8\omega_0 n_2 z}{c\gamma_1} \cdot t e^{-2\frac{t^2}{\tau}} \\ &\propto \omega_0 + t e^{-k \cdot t^2}\end{aligned}\quad (2.32)$$

$$\text{denn} \quad \frac{dn(t)}{dt} = n_2 \frac{dI(t)}{dt} \quad (2.33)$$

In Gleichung (2.32) ist $\omega(t)$ direkt vom Zeitpunkt t abhängig und stimmt bei $t = 0$ mit der Zentralfrequenz ω_0 überein. Daraus lässt sich leicht erkennen, dass an der vorderen und hinteren Impulsflanke kleinere bzw. größere Frequenzen um die Zentralfrequenz ω_0 erzeugt werden. Das Resultat der SPM ist in Abbildung 2.5 anhand eines 11,8 fs Impulses dargestellt.

Eine andere, anschauliche Erklärung der SPM resultiert aus der Betrachtung der zeitlichen Evolution des Impulses. Unter der Annahme, dass das Medium keine „anormale“ Dispersion aufweist, nimmt n_2 stets einen positiven Wert an. Dann propagiert das Impulszentrum mit einer geringeren Geschwindigkeit als die Impulsflanken, da die höhere Intensität des Zentrums einen höheren momentanen Brechungsindex im Medium induziert. Das hat zur Folge, dass die Vorder- und Hinterflanke dem Zentrum des Impulses jeweils „davoneilen“ bzw. auf diesen „auflaufen“. So wird die Trägerwellenlänge auf der einen Seite gestreckt und auf der anderen gestaucht. Der dadurch entstandene Impuls ist somit spektral verbreitert, weist allerdings auch einen chirp auf, der in der Regel kompensiert werden muss.

Optischer Kerrlinsen Effekt

Im Gegensatz zur Selbstphasenmodulation ist der optische Kerrlinsen Effekt nicht auf die zeitliche, sondern auf die räumliche (radiale) Verteilung der Intensität zurückzuführen. Auch hier erfolgt eine anschauliche Beschreibung über die Betrachtung des Brechungsindex. Im Zentrum des Lichtbündels sorgt das Maximum der Intensität für maximale Werte von n_2 und damit auch von n . Beide Werte sinken allerdings mit zunehmendem radialem Abstand vom Zentrum bzw. der Strahlachse, so dass das Medium lokal zu einer Art induzierten bikonvexen Linse wird. Weitere defokussierende Effekte, wie Plasmabildung und Beugung sorgen dafür, dass das Lichtbündel nicht kollapsartig fokussiert wird. Die quantitative Beschreibung des optischen Kerrlinsen Effekts kann durch die Betrachtung eines kontinuierlichen Laserbündels vereinfacht werden, so dass die Intensität des Lasers nur noch ortsabhängig ist. In diesem Zusammenhang sind unter anderem die kritische Leistung P_{cr}

und die Wechselwirkungslänge L_c wichtige Parameter [Cou07].

$$P_{cr} \equiv \frac{3,72\lambda^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (2.34)$$

$$L_c = \frac{0,367L_{DF}}{\sqrt{[(P_{in}/P_{cr})^{1/2} - 0,852]^2 - 0,0219}} \quad (2.35)$$

Die kritische Leistung stellt einen Grenzwert dar, oberhalb dessen die Selbstfokussierung stärker als die Beugung wird, was eine kontinuierliche Fokussierung hervorruft, die ohne weitere defokussierende Effekte zum Kollaps des Bündels führen würde. Bemerkenswerterweise wird dies nicht durch die Bündelintensität oder Flächenleistungsdichte (Leistung pro Einheitsfläche), sondern durch die Gesamtleistung bestimmt. Anhand der semi-empirischen Formel für die Wechselwirkungslänge L_c kann die Distanz bis zum so eintretenden Kollaps des Strahls ermittelt werden. Dabei stellen L_{DF} die Rayleighlänge und P_{in} die Eingangsleistung dar. Aus Gleichung (2.35) geht hervor, dass die Wechselwirkungslänge umso größer wird, je „weicher“ ein Laserstrahl ins Kerrmedium fokussiert wird. Das ist unter anderem bei der Erzeugung langer Filamente wichtig.

Beugung und Fokussierung gaußförmiger Strahlen

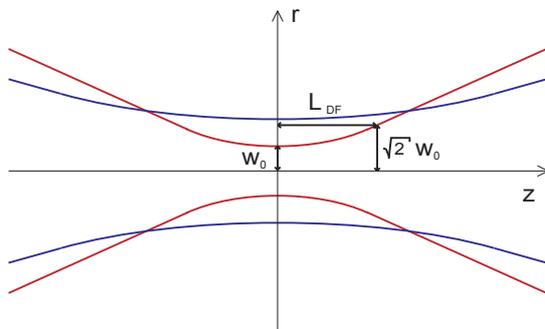


Abbildung 2.6.: Zwei Gaußstrahlen, die unterschiedlich stark fokussiert werden. Exemplarisch wird für den kurzbrennweitigen Strahl (rot) die minimale Strahlweite w_0 und die Rayleighlänge L_{DF} dargestellt.

Die Ablenkung oder Beugung einer elektromagnetischen Welle tritt nicht nur an Hindernissen, sondern auch bei der Propagation im Vakuum auf. Die Ausbreitung und Form der Wellenfront kann mit Hilfe der Wellenoptik beschrieben werden. Die Beugung spielt zwar im Hinblick auf die Filamentation eine untergeordnete Rolle, für die vorangehende Fokussierung des Lasers sind einige geometrische Betrachtungen jedoch sinnvoll. So kann unter anderem für einen Laserstrahl mit transversaler gaußförmiger Intensitätsverteilung ein Zusammenhang zwischen der engsten Taille des Gaußstrahles w_0 (das entspricht der Querschnittsfläche) und einer charakteristischen

Länge, entlang derer sich die Fläche in Bezug auf die Strahlweite verdoppelt hat, der so genannten Rayleighlänge L_{DF} , gefunden werden. Je langbrennweitiger solch ein Lichtbündel fokussiert wird, umso größer werden seine minimale Strahlweite und die Rayleighlänge, gemäß dem Zusammenhang:

$$L_{DF} = \frac{\pi n_0}{\lambda_0} w_0^2 \quad (2.36)$$

Plasmaerzeugung und Defokussierung

Die Fokussierung intensiver Laserimpulse in einem Gas bewirkt wegen der extrem hohen Photonendichten Multiphotonen-Ionisation der Atome (MPI), wobei die Ionisationsrate mit zunehmender Intensität stark nichtlinear ansteigt. In aktuellen numerischen Simulationen werden weitere Effekte berücksichtigt, die Einfluss auf die Gesamtionisationsrate nehmen. Darunter fallen unter anderem Elektron-Elektron Kollisionen, die die Ionisationsrate verstärken und Rekombinationsprozesse, die sie wiederum abschwächen, [Sku09]. Hauptsächlich führt aber die MPI zur Bildung eines filamentförmigen Plasmas, jedoch nur, solange das Ionisationspotential der Gasatome oder -moleküle deutlich höher als die Photonenenergie ist.

Das Plasma seinerseits nimmt Einfluss auf den Brechungsindex des Gases und verkleinert diesen lokal. Anschaulich gesprochen erzeugt der Lichtimpuls durch die Bildung des Plasmas senkrecht zur Propagationsachse eine Streulinse, die den vollständigen Kollaps des Lichtbündels im Wesentlichen verhindert. Allerdings ionisiert vor allem der vordere Teil des Laserimpulses das Gas, wodurch besonders sein Zentrum und die hintere Flanke durch die induzierte Streulinse defokussiert werden. Das Resultat ist eine sowohl räumliche als auch zeitliche Verzerrung des Laserimpulses. Der Grad dieser Verzerrung hängt insbesondere von der Wechselwirkungslänge der Impulse ab und kann zum Beispiel zu einer Mehrfachaufspaltung des Filaments führen. Das Plasma verändert darüber hinaus auch die dispersiven Eigenschaften des Gases. Für die Filamentbildung in Luft von fs- Impulsen mit einer Zentralwellenlänge bei ca. 800 nm kann beispielsweise die Dispersion 2. Ordnung auf nahezu Null sinken, [Kop04]. Eine weitere Eigenschaft des erzeugten Plasmas ist eine partielle Beugung der verschiedenen Wellenanteile im Laserimpuls, mit einer konischen Emission von Licht deren Winkel wellenlängenabhängig ist [Nib96]. Dieser Effekt tritt allerdings erst bei einer langen Wechselwirkungslänge des Laserlichts im Filament auf und spielt für das Experiment, in dessen Rahmen diese Arbeit stattfand, keine Rolle. Die Plasmaerzeugung bewirkt auch Intensitätsverluste der elektromagnetischen Strahlung. Dies geschieht einerseits durch den Energieverlust an Elektronen durch den Prozess der inversen Bremsstrahlung und andererseits natürlich durch die Multiphotonenabsorption.

Self-steepening

Beim self-steepening handelt es sich um einen Effekt, der wie die Selbstphasenmodulation und die Plasma-defokussierung mit dem zeitlichen Profil des Brechungsindex zusammenhängt. Das Intensitätsmaximum breitet sich mit einer kleineren Lichtgeschwindigkeit als die abfallende Flanke aus, die dadurch auf das Zentrum des

Impulses „aufläuft“ und die hintere Flanke steiler werden lässt, siehe Abbildung 2.7. Die vordere Flanke hingegen läuft dem Impuls leicht davon und verursacht gleichermaßen eine Verzerrung des zeitlichen Profils.

Eine weitere Konsequenz des self-steepening im Zusammenspiel mit den vorher beschriebenen Effekten ist eine schneller ablaufende Selbstfokussierung der hinteren Impulsflanke im Vergleich zur vorderen. Zusammen mit dem Effekt der Plasmadefokussierung bedeutet das, dass blaue Frequenzen in diesem Teil bevorzugt generiert werden. Die daraus resultierende asymmetrische Verbreiterung führt zu einem spektralen Profil, dessen Ausdehnung vom nahen UV bis zum IR reicht. Eine derart breite spektrale Verteilung wird gelegentlich auch als Supercontinuum bezeichnet [Weiß07]. Die Laserimpulse werden dadurch zu geschirpten Weißlichtwellenpaketen.

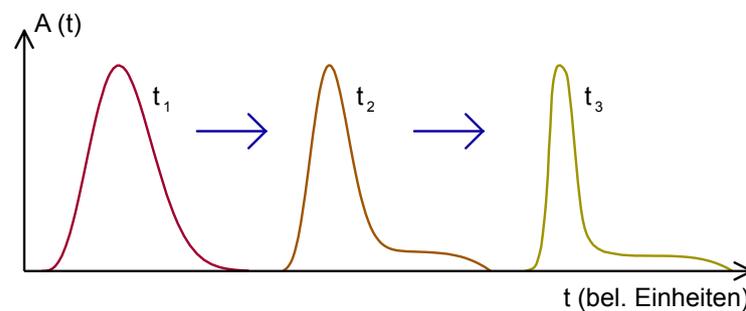


Abbildung 2.7.: Zeitliche Entwicklung des Impulses durch den Effekt des self-steepening zu verschiedenen Zeiten in der Propagation.

2.3.2. Verbreiterung mittels Filamentation

Bei der sog. Femtosekunden - Filamentation geht es darum, eine möglichst homogene Verbreiterung der spektralen Verteilung zu erreichen, bei einer simultanen Verkürzung oder zumindest Erhaltung der zeitlichen Profile der Impulse, um so mittels einer nachgeschalteten Kompression kurze, intensive Lichtimpulse erzeugen zu können. Dabei wird der Laser langbrennweitig in ein gasförmiges Medium fokussiert, wobei ein langes und schwach leuchtendes Filament entsteht. Die große Brennweite sorgt dafür, dass die hochgradig nichtlineare Wechselwirkung zwischen dem Licht und den Atomen über eine möglichst lange Distanz ohne externe Führung aufrecht erhalten werden kann. Damit die nichtlinearen Effekte überhaupt einsetzen können, darf ein Laserbündel allerdings nicht mit einer zu langen Brennweite in das Medium fokussiert werden. Sonst kann die Intensität den spezifischen Schwellenwert nicht überschreiten, bei dem die oben diskutierten Effekte eintreten. Die Entstehung, die Propagation und das Aufbrechen des Filaments wird durch das komplexe Zusammenspiel dieser Effekte bestimmt. In diesem Zusammenhang gibt es einige Modelle und numerische Simulationen, die die Dynamik und charakteristischen Eigenschaften

ten der Filamentation beschreiben ([Mle99] und [Cou03]). Im Folgenden sollen einige dieser Eigenschaften genauer erläutert werden.

Eigenschaften des Filaments

- **Self-cleaning:** Das Self-cleaning Phänomen der räumlichen Moden findet bereits vor dem Einsetzen der Plasmaerzeugung statt. Dabei wirkt die Selbstfokussierung als räumlicher Filter, der hauptsächlich die fundamentale Mode in den induzierten Fokus führt und somit ein sehr "sauberes" Bündelprofil im Filamentkern erzeugt. Die Moden höherer Ordnung hingegen werden aufgrund ihrer stärker ausgeprägten Beugung nicht so effektiv in den Fokus geleitet und divergieren. Im Filamentkern bleibt eine sog. Townesmode übrig [Wei07], [Pra06]. Dabei handelt es sich definitionsgemäß um diejenige Mode, die aus dem Gleichgewicht zwischen den konkurrierenden Effekten der Selbstfokussierung und der Beugung resultiert, [Chi64].
- **Vielseitigkeit:** Die Filamentation kann mit einer Vielzahl an Medien durchgeführt werden, vorausgesetzt, dass die Photonenenergie deutlich geringer als die Ionisationsenergie der Atome ist. Dazu zählen viele gasförmige, flüssige und feste Materialien, siehe z. B. [Alf70]. Darüber hinaus ist es bereits mehrfach gelungen, Filamente über Distanzen von einigen Kilometern in Luft aufrecht zu erhalten [Cou07]. Hinsichtlich der hier durchgeführten Experimente ist zusätzlich die weitgehende Unempfindlichkeit gegenüber den Justageanforderungen zu nennen.
- **Spektrale Verbreiterung:** Zu den Effekten, die zu einer spektralen Verbreiterung führen, zählen in erster Linie die Selbstphasenmodulation, das self-steepening und die Plasmabildung als integraler Bestandteil des Filamentationsvorganges. Begleitet werden diese Prozesse von einer Energieumverteilung im zeitlichen Profil der Impulse. Das self-steepening sorgt maßgeblich dafür, dass das Spektralprofil asymmetrisch in Richtung der blauen Frequenzen verschoben wird.
- **Festhalten der Intensität:** Erreicht die Intensität des Lichts aufgrund der Fokussierung einen bestimmten Grenzwert, so setzt relativ schlagartig eine Ionisierung des Gases ein, wodurch ein defokussierendes Plasma erzeugt wird. Das Plasma verhindert dann ein weiteres Ansteigen der Intensität.
- **Selbst-Kompression der Impulse:** Die Energieumverteilung in der Zeitdomäne bewirkt bereits eine Impulsverkürzung unter Erhaltung der CEO Phase [Cou06]. Dabei führen die bereits angesprochenen nichtlinearen Effekte zu einer Restrukturierung des zeitlichen Impulsprofils. Instantane Prozesse, wie die

Selbstfokussierung, die SPM und das self-steepening sorgen für eine Energieumverteilung in den aufsteigenden Teil des Impulses. Die im Vergleich dazu zeitverzögerte Plasmabildung verringert hingegen die Energie im Impulsrücken. Diese Kombination führt schließlich zu einer kürzeren Impulsstruktur, [Hau04].

2.4. Charakterisierung von ultrakurzen Lichtimpulsen

Um eine vollständige Charakterisierung von kurzen Lichtimpulsen durchführen zu können, müssen stets zweierlei Informationen gewonnen werden. Dazu gehören die Amplitude und die Phase bzw. die spektrale Dichte und die spektrale Phase des elektrischen Feldes. Die folgenden Charakterisierungsmethoden ermöglichen den Zugang zu einigen der relevantesten Parameter.

2.4.1. Die Autokorrelation

Die Autokorrelation ist die älteste und bekanntermaßen die einfachste Methode, um kurze und ultrakurze Lichtimpulse zu charakterisieren und die gesuchte Information zumindest teilweise zu ermitteln. In diesem Abschnitt werden vor allem die mathematischen Hintergründe und die wichtigsten Eigenschaften des Autokorrelationssignals vorgestellt.

In der allgemeinsten Form einer „Korrelation“ werden „n“ Kopien eines Lichtimpulses kohärent miteinander gemischt. Grundsätzlich werden Korrelationsfunktionen in 3 Kategorien [Sal80] aufgeteilt:

- Zunächst wird zwischen Kreuz- und Autokorrelationen unterschieden, je nachdem, ob verschiedene oder gleichartige Impulse überlagert werden (gleichbedeutend mit $E_1 = E_2 = \dots = E_n$ für die Autokorrelation).
- Eine weitere Unterscheidung betrifft untergrundbehaftete und untergrundfreie Korrelationsfunktionen. „Untergrundfrei“ bedeutet in diesem Zusammenhang, dass nur der zentrale Interferenzterm aus der kohärenten Summe der elektrischen Felder berücksichtigt wird. Dieser Unterschied lässt sich auch anhand eines Vergleichs der Funktionen (2.37) und (2.38) nachvollziehen.
- Darüber hinaus werden Korrelationsfunktionen in „schnelle“ und „langsame“ unterteilt. Der Unterschied manifestiert sich darin, dass schnelle Korrelationsfunktionen schnell variierende Phasenterme $\propto \cos(\omega_j \Delta_{j-1})$ enthalten. Diese verschwinden in der langsamen Korrelationsfunktion durch eine Mittelung über die Verzögerungsdauer (Δ bzw. $\Delta\tau$). Mit dieser Vereinfachung geht allerdings auch stets ein Informationsverlust einher. Sehr häufig werden statt

„schnelle“ und „langsame“ Korrelationsfunktion auch die Begriffe „interferometrische Korrelation“ bzw. „Intensitätskorrelation“ verwendet.

Sämtliche Korrelationsfunktionen der letzten beiden Kategorien können anhand der Gleichungen (2.37) bis (2.40) nachvollzogen werden. Der letzte zu diskutierende Parameter in den Funktionen ist die Ordnung „ n “, bei der es um die Anzahl der mathematischen Feldeinheiten geht, die miteinander korreliert werden. Physikalisch betrachtet entspricht die Ordnung der Anzahl an Photonen, die bei der Überlagerung elektromagnetischer Felder simultan zum Signal beitragen, sei es durch Mehrphotonenabsorption oder Summenfrequenzbildung.

Im Folgenden sind zur Übersicht alle Korrelationsfunktionen in ihrer allgemeinsten Form aufgelistet (vgl. [Sal80]):

Schnelle Kreuzkorrelation mit Untergrund

$$I_{fast,B}^n(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_{n-1}) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \{E_1(t) + E_2(t + \Delta_1) + \dots + E_n(t + \Delta_{n-1})\}^{2n} dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} \{E_1^{2n}(t) + E_2^{2n}(t) + \dots + E_n^{2n}(t)\} dt} \quad (2.37)$$

Schnelle Kreuzkorrelation ohne Untergrund

$$I_{fast,0}^n(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_{n-1}) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \{E_1(t) \cdot E_2(t + \Delta_1) \cdot \dots \cdot E_n(t + \Delta_{n-1})\}^2 dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} \{E_1(t) E_2(t) \cdot \dots \cdot E_n(t)\}^2 dt} \quad (2.38)$$

Langsame Kreuzkorrelation mit Untergrund

$$I_{slow,B}^n(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_{n-1}) = \langle I_{fast,B}^n(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_{n-1}) \rangle_{\Delta,n} \quad (2.39)$$

Langsame Kreuzkorrelation ohne Untergrund

$$I_{slow,0}^n(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_{n-1}) = \langle I_{fast,0}^n(\Delta_1, \Delta_2, \dots, \Delta_{n-1}) \rangle_{\Delta,n} \quad (2.40)$$

In Abbildung 2.8 sind die „klassischen“ Verfahren einer interferometrischen und Intensitäts- Autokorrelation dargestellt. Der entscheidende Unterschied ist die Nicht-kollinearität in der Anordnung (b). Da das nicht-frequenzverdoppelte Licht in beiden Fällen abgeblockt bzw. gefiltert wird, handelt es sich um untergrundfreie Korrelationssignale.

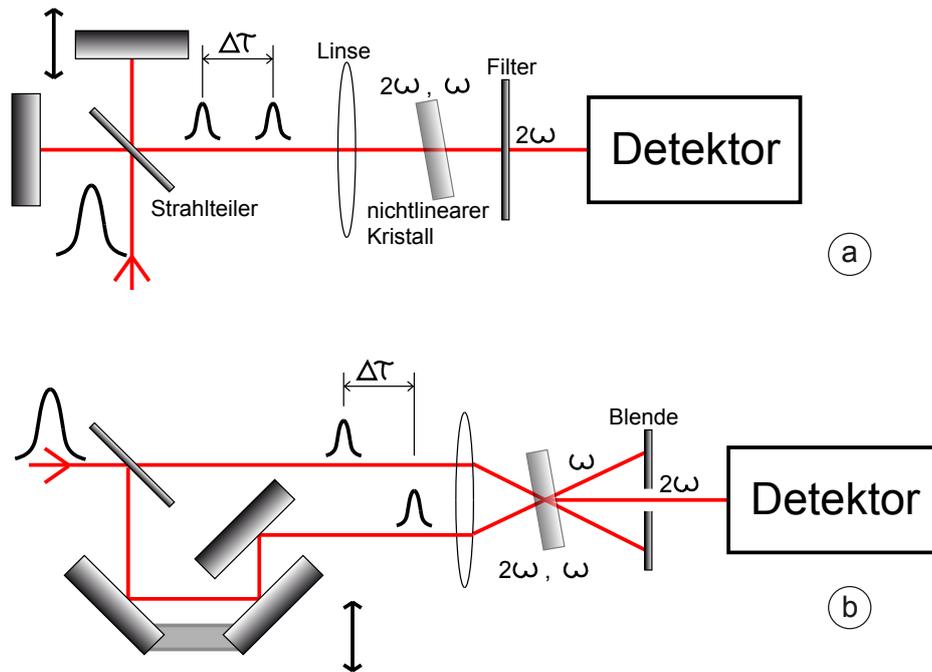


Abbildung 2.8.: Bild (a) zeigt das Prinzip einer interferometrischen Autokorrelation und (b) das einer Intensitäts-Autokorrelation. Die Laufzeitverzögerung $\Delta\tau$ wird durch die Verschiebung eines Spiegels in (a) bzw. eines Spiegelpaares in (b) verursacht (Kennzeichnung durch Doppelpfeil).

Kreuzkorrelationen werden in der Regel verwendet, um unbekannte, zu charakterisierende Impulse mit bekannten Lichtimpulsen „abzutasten“ und zu vermessen. Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden interferometrische Autokorrelationen 2. Ordnung durchgeführt, deren Signaleigenschaften im Folgenden behandelt werden sollen:

- Von den vier Funktionen (2.37) - (2.40) enthält die untergrundbehaftete, interferometrische Korrelation (2.37) die meiste Information über den Lichtimpuls und das größte Kontrastverhältnis. Sie wird durch $n = 2$ und $E_1 = E_2$ zur interferometrischen Autokorrelation 2. Ordnung.
- Das Kontrastverhältnis des zeitlichen Signalzentrums zu den Signal- Außenpositionen $\frac{I_{fast,B}^n(\Delta=0)}{I_{fast,B}^n(\Delta=\pm\infty)}$ ist bei der schnellen und der langsamen Autokorrelation

(jeweils mit Untergrund) $\frac{8}{1}$ bzw. $\frac{3}{1}$.

- Eine Autokorrelation ist stets symmetrisch, dh. $I_{fast,B}^n(\Delta) = I_{fast,B}^n(-\Delta)$. Ein asymmetrisches Signal lässt sich auf eine mangelhafte Justage oder bzgl. der Symmetrie der optischen Wege nicht hinreichend identische optische Bauteile zurückführen.
- Die interferometrische Autokorrelationsfunktion weist ein Interferenzmuster mit der Schwingungsperiode $\frac{2\pi}{\omega_0}$ auf. Der Kontrast des Signals nimmt mit zunehmender Verzögerung Δ ab. Das Signalzentrum entspricht der Situation, bei der die Impulse perfekt zeitlich übereinander liegen. Mit zunehmender Verzögerung werden immer kleinere Anteile der beiden Impulsreplika superponiert.
- Ein auffälliges Merkmal für den linearen chirp ist eine positive Krümmung der Signalflanken (vgl. Abbildung 2.9 (a) und (b)) sowie ein geringfügig höheres FWHM im Vergleich zu einem dispersionsfreien Signal.
- Durch Dispersion höherer Ordnungen können Knoten und Flügel im Signal auftreten (z.B. Dispersion 3. Ordnung).
- Nur die interferometrische Autokorrelation enthält die vollständige Phaseninformation und erlaubt Rückschlüsse auf den chirp des Impulses.
- Eine vollständige und eindeutige Rekonstruktion des zeitlichen Impulsprofils ist mit Hilfe der Autokorrelation nicht möglich. Asymmetrische, zueinander zeitlich invertierte Impulse gleicher Impulsdauer können unter Umständen zum gleichen Signal führen.
- Die Autokorrelation besteht aus einer Vielzahl von Einzelsignalen, wobei jedes Einzelsignal durch die Superposition zweier Impulsreplika mit identischer Phase erzeugt wird. Aufgrund der gleichen Phase erzeugen die Teilimpulse stets ein unverschobenes Interferenzsignal. Daraus folgt, dass die Summe der Einzelsignale ebenfalls keine Phasenverschiebung aufweist. Aus diesem Grund ermöglicht eine Autokorrelation keinen Zugang zur „CEO“ Phase. Somit spielt es keine Rolle, ob ein Autokorrelationssignal mit oder ohne Phasenstabilisierung detektiert wird.

Um einige der angesprochenen Signaleigenschaften zu verdeutlichen, sind in Abbildung 2.9 einige simulierte Autokorrelationen dargestellt.

An dieser Stelle soll auf einen für die Impulscharakterisierung wichtigen Aspekt hingewiesen werden: Eine Messung der Impulslänge kann nur über eine nichtlineare und damit intensitätsabhängige Wechselwirkung mindestens 2. Ordnung der beiden Strahlen durchgeführt werden. Das entspricht in der experimentellen Umsetzung einer 2-Photonenabsorption bzw. einer Summenfrequenzbildung. Andernfalls enthält

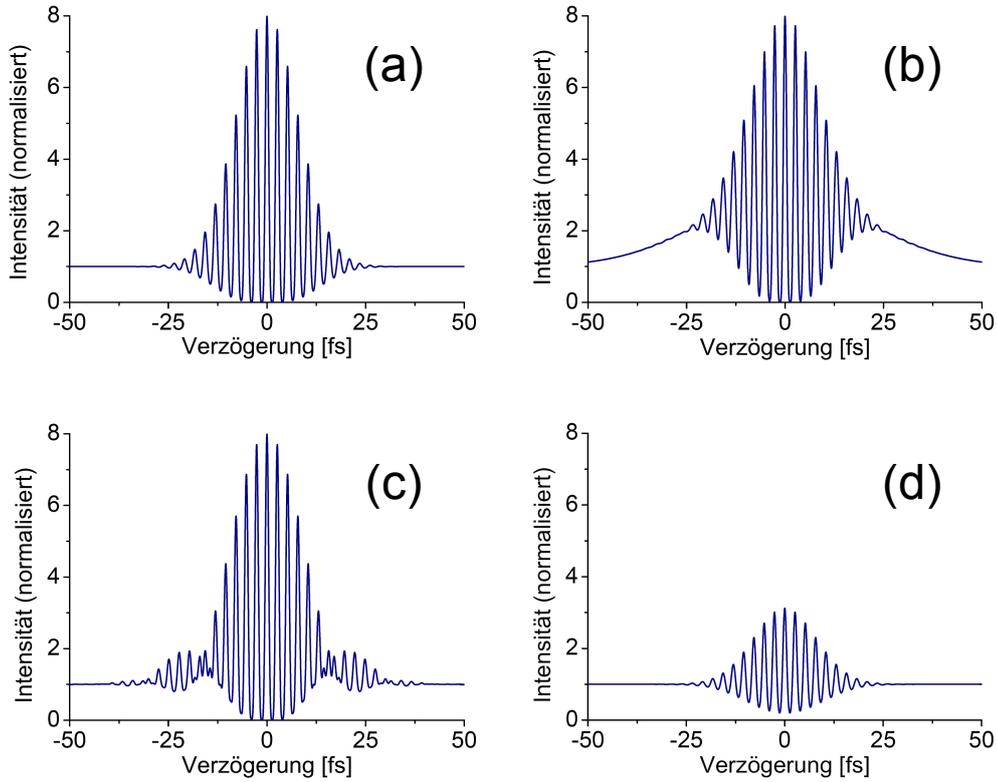


Abbildung 2.9.: Darstellung einiger Autokorrelationssimulationen. (a) Autokorrelation eines 10 fs Impulses. (b) Autokorrelation eines durch Dispersion 2. Ordnung gechirpten 10 fs Impulses. Die GDD beträgt 100 fs^2 (c) Autokorrelation eines durch Dispersion 3. Ordnung gechirpten 10 fs Impulses. (d) Autokorrelation eines 10 fs Impulses mit unterschiedlichen Intensitäten der Teilstrahlen. Der Kontrast sinkt, es lassen sich dennoch alle Parameter ablesen.

das Interferogramm nur Informationen über das Intensitätsspektrum, wie die folgende mathematische Überlegung zeigt. Der Ausgangspunkt ist dabei eine lineare Autokorrelation, d.h. es finden keine nichtlinearen Prozesse statt.

$$\begin{aligned}
 I(\Delta) &= \int_{-\infty}^{\infty} |E(t) + E(t - \Delta)|^2 dt \\
 &= \text{const} + \int_{-\infty}^{\infty} [E(t)E^*(t - \Delta) + E^*(t)E(t - \Delta)] dt \quad (2.41)
 \end{aligned}$$

Nach dem Faltungssatz der Fouriertransformation gilt:

$$\begin{aligned}
\mathcal{F}[I(\Delta)] &= \mathcal{F}[\text{const}] + [\tilde{E}(-\omega)\tilde{E}^*(-\omega) + \tilde{E}^*(\omega)\tilde{E}(\omega)] \\
&= \mathcal{F}[\text{const}] + I(-\omega) + I(\omega)
\end{aligned}
\tag{2.42}$$

Der letzte Ausdruck zeigt, dass die Information über das zeitliche Profil nicht mehr enthalten ist.

2.4.2. FROG - Frequency Resolved Optical Gating

Die Autokorrelation ist eine relativ einfach zu implementierende und schnell durchzuführende Messmethode, die darüber hinaus einen leicht zu interpretierenden Eindruck über das gemessene Signal vermittelt. Allerdings kann die Impulsform nicht eindeutig aus dem gemessenen Signal rekonstruiert werden. So erzeugen symmetrische Impulse und solche mit z. B. einseitig steiler Anstiegsflanke das gleiche Autokorrelationssignal, bei sonst gleicher Phase und Impulslänge. Die Methode des „Frequency Resolved Optical Gating“ (FROG) basiert auf einer Autokorrelation, bei der für jeden Verzögerungsschritt Δ die spektrale Intensitätsverteilung des Signals gemessen wird. Das in seine Fourierkomponenten aufgespaltete Autokorrelationssignal besteht damit aus einem zweidimensionalen Datenfeld mit der Verzögerung und der Frequenz als unabhängige Variablen. Die Messung ermöglicht eine bis auf das Vorzeichen der Zeit eindeutige Rekonstruktion des elektrischen Feldes, wobei genau darin die Hauptschwierigkeit bei der Impulscharakterisierung mit Hilfe der Methode des FROG liegt. Dennoch lassen sich bereits aus dem aufgenommenen Bild (der sog. FROG-trace) wesentliche Charakteristika der Impulse ablesen. Dazu gehören unter anderem die Frequenzverteilung, das Auftreten von Vor- und Nachimpulsen sowie das Profil der spektralen Phase.

Eine erfolgreiche Variante des Rekonstruktionsalgorithmus beruht darauf, zwei Bedingungen an das aufgenommene Signal (siehe Abbildung 2.10) zu stellen, so dass eine wechselseitige Anpassung an beide Bedingungen zu $E(t)$ führt. Zunächst wird eine Funktion $f(t, \tau)$ gesucht, die die FROG-trace wiedergibt. Anschließend wird versucht, mit einem Ausdruck für $E(t)$ und dem daraus resultierenden $E(t-\tau)$ die Funktion $f(t, \tau)$ zusammenzusetzen. Weicht diese Funktion von dem gemessenen Signal stark ab, so beginnt der Algorithmus von Neuem.

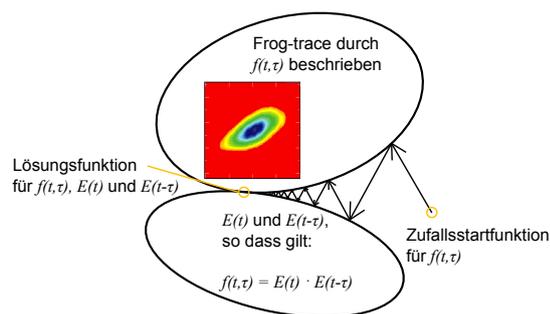


Abbildung 2.10.: Schematische Darstellung des Rekonstruktionsalgorithmus aus der Frog-trace, [Tre], [Kel02].

2.4.3. ZAP-SPIDER - Zero Additional Phase - Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction

Eine andere Herangehensweise an die Impulscharakterisierung wird mit dem Verfahren des ZAP-SPIDER (Zero Additional Phase - Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction) verfolgt. Das Ziel hierbei ist die Rekonstruktion der spektralen Phase des Impulses und der zeitabhängigen Intensitätsverteilung. Dazu wird die Interferenz zwischen einem Paar zueinander spektral verschobener Lichtimpulsreplika gemessen. Die Verschiebung entspricht in der Regel 5 - 10 % der Halbwertsbreite der spektralen Verteilung. Das resultierende Interferenzsignal wird von einem Spektrometer aufgelöst und über eine CCD-Zeile digitalisiert.

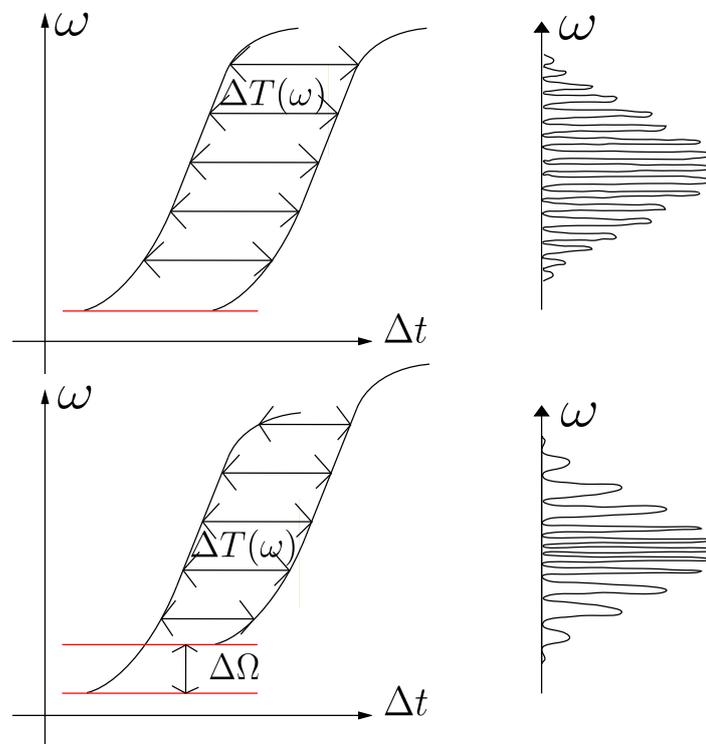


Abbildung 2.11.: Dargestellt sind die Phasenfronten und zugehörigen Interferenzsignale zweier überlagerter Impulsreplika bei der Technik des ZAP-SPIDER. Die Impulse weisen im oberen Bild eine spektrale Verschiebung von 0 zueinander auf, im unteren Bild um $\Delta\Omega$. Das erste Interferenzmuster dient als Referenz, aus dem zweiten kann die spektrale Phase rekonstruiert werden.

Allgemein beruht das Prinzip auf der Überlagerung des unbekanntes Impulses mit zwei sog. Hilfsimpulsen, die auf einige Pikosekunden gestreckt sind und eine zeitliche Verzögerung $\Delta\tau$ zueinander aufweisen. Die aus unterschiedlichen Richtungen kommenden Hilfsimpulse werden zeitlich und räumlich mit dem zu charakterisierenden

Impuls in einem frequenzverdoppelnden BBO (Beta Barium Borat) Kristall superponiert. Dabei kommt es zur Summenfrequenzbildung des unbekanntes Impulses mit einem quasi-monochromatischen Teil aus jeweils einem der beiden Hilfsimpulse. Durch die zeitliche Verzögerung der Hilfsimpulse zueinander, handelt es sich bei den quasi-monochromatischen Teilen jeweils um zwei unterschiedliche spektrale Komponenten. Dieser, aus der Verzögerung resultierende Frequenzunterschied wird auch als „spectral shear“ ($\Delta\Omega$) bezeichnet [Tar06].

Durch die Frequenzkonversion im BBO Kristall werden zwei Impulse erzeugt, die ihrerseits wieder in einem Spektrometer überlagert werden und ein Interferenzmuster bilden. Die Äquidistanz in ω im Interferenzmuster wird durch $\Delta\Omega \neq 0$ aufgehoben, wodurch das Signal eine direkte Bestimmung der spektralen Phase und des elektrischen Feldes ermöglicht, siehe Abb. 2.11. Durch eine mathematische Fouriertransformation des Interferenzsignals in die Zeitdomäne kann eine charakteristische Phaseninformation extrahiert werden, aus der wiederum die Rekonstruktion der spektralen Phase folgt. Genauere Angaben zum verwendeten Rekonstruktionsalgorithmus befinden sich in [Tar06] und [Tak82].

Ein Vergleich zwischen den zuletzt beschriebenen Impulscharakterisierungsmethoden zeigt, dass quantitative Aussagen über die spektrale Phase zuverlässiger mit der ZAP-SPIDER-Verfahren erzielt werden. Dennoch vermittelt die FROG-trace einen guten qualitativen Eindruck über das sowohl zeitliche als auch spektrale Impulsprofil.

3. Der experimentelle Aufbau

In diesem Kapitel wird das Experiment vorgestellt, in dessen Rahmen diese Diplomarbeit stattfand. Insbesondere werden die Filamentationseinheit mit Kompressorstufe und der Autokorrelator präsentiert. Die Filamentation dient dazu, intensive Lichtimpulse mit einer Impulsdauer von ca. 30 fs durch ein komplexes Wechselspiel nichtlinearer Effekte spektral so zu verbreitern, dass sie nachfolgend in den Bereich weniger optischer Zyklen komprimiert werden können. Mit dem Aufbau des interferometrischen Autokorrelators ist es möglich, Impulse schnell und auf intuitive Weise abzutasten und somit die Impulsdauer zu bestimmen.

3.1. Das Lasersystem

Das Experiment ist mit einem kommerziellen Lasersystem von „Kapteyn-Murnane Laboratories“ ausgestattet, das Impulse mit einer Energie über 1 mJ, einer Durchschnittsleistung bis zu 9 W und einer einstellbaren Repetitionsrate zwischen 3 und 10 kHz, erzeugt. Der Ausgangspunkt ist ein modengekoppelter Titan-Saphir Laseroszillator, Modell MTS-I, der mit einer Repetitionsrate von 80 MHz und einer Durchschnittsleistung von 650 mW Lichtimpulse einer Dauer von etwa 18 fs generiert. Diese weisen eine Zentralwellenlänge von 785 nm und eine spektrale Bandbreite von ca. 65 nm auf. Der Oszillator wird seinerseits von einem frequenzverdoppelten Nd:YVO - Dauerstrichlaser, Modell „Verdi“ der Firma „Coherent“ bei einer Wellenlänge von 532 nm gepumpt. Es handelt sich dabei um einen DPSS (Diode-Pumped-Solid-State) - Laser.

Die Einzelimpulsenergien des Oszillators liegen im Bereich von 8 nJ und müssen im Hinblick auf die Experimente verstärkt werden. Dies wird mit dem „Dragon“-Verstärkersystem von „KM Labs“ realisiert, das nach dem Prinzip des CPA (chirped pulse amplification) funktioniert. Hierbei werden die ultrakurzen Lichtimpulse des Oszillators zunächst künstlich um bis zu 5 Größenordnungen gedehnt, anschließend in einem Ti:Sa-Kristall verstärkt und wieder komprimiert. Ohne die Dehnung der Impulse, würde die Spitzenintensität während des Verstärkungsprozesses auf enorme Werte anwachsen und dabei gravierende Schäden im Verstärkerkristall verursachen.

Das Ziel, Einzelimpulsenergien von 1 mJ zu erzeugen, setzt voraus, die Repetitionsrate drastisch zu verringern. Anderenfalls müsste bei einer Rate von 80 MHz und einer Konversionseffizienz von 10% die Pumpleistung bei 800 kW liegen, was technisch nicht realisierbar ist. In unserem Experiment wird für den Verstärkungs-

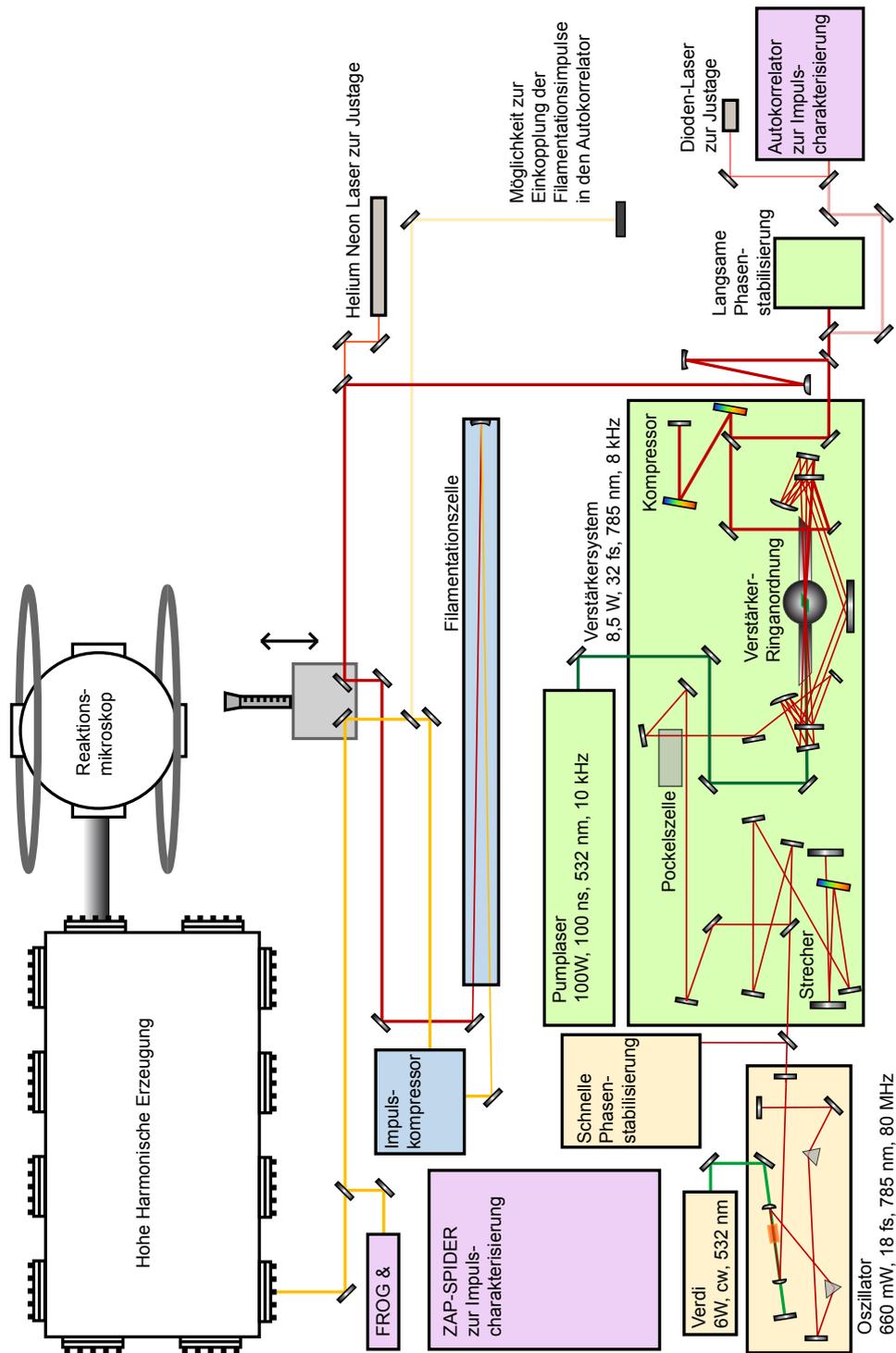


Abbildung 3.1.: Experimenteller Aufbau. Der Oszillator und das Verstärkersystem sind etwas detaillierter dargestellt.

prozess ein kommerzieller diodengepumpter 100 W Nd:YAG-Laser der Firma „Lee Lasers Inc.“ verwendet. Dieser erzeugt mit Hilfe von Güteschaltung 100 ns- Impulse mit einer zwischen 3 und 20 kHz einstellbaren Repetitionsrate. Der Zeitpunkt der Güteschaltung wird dabei synchron von der Repetitionsfrequenz des Oszillators abgeleitet, so dass die Lichtimpulse aus dem Oszillator und dem Pump laser stets zusammentreffen. Die zu verstärkenden Oszillatorimpulse selbst werden zuvor elektro-optisch aus dem Impulszug (80 MHz) selektiert, so dass für die Verstärkung eine Repetitionsrate von bis zu 10 kHz resultiert.

Im eigentlichen Verstärkungsprozess werden die Oszillatorimpulse in einer aus fünf planen und zwei fokussierenden Spiegeln bestehenden ringförmigen Anordnung insgesamt 13 mal durch eine definierte Stelle im Verstärkerkristall geführt und mit den Pumpimpulsen zeitlich und räumlich überlagert. Der Verstärkerkristall wird in einer Vakuumkammer bei 10^{-8} mbar auf eine Temperatur von -217 °C gekühlt. Dadurch befindet sich der Kristall einerseits in einem Zustand hoher Wärmeleitfähigkeit, so dass keine thermische Linse induziert wird. Zum anderem werden bei solch niedrigen Temperaturen phononinduzierte Strahlungsübergänge und Multiphononenzerfälle unterdrückt, die die Lebensdauer des oberen Laserniveaus verringern und damit zu einer kleineren Verstärkung führen würden.

Ein weiterer wichtiger Aspekt im Hinblick auf die Experimente ist die Phasenstabilisierung. Die CEO-Phase der Oszillator- und Verstärkerimpulse werden hierzu unabhängig voneinander durch jeweils einen „Closed loop-“ Aufbau stabilisiert.

3.2. Spektrale Verbreiterung und Impulsverkürzung mit Hilfe der Filamentation

Wie in Kapitel 1 bereits ausgeführt, dient die Filamentationseinheit dazu, das spektrale Profil der Impulse signifikant zu verbreitern. Dazu muss sichergestellt werden, dass die Wechselwirkungslänge, in dem die zur Verbreiterung notwendigen nichtlinearen Effekte ablaufen, möglichst groß ist. Dies stellt unter anderem Anforderungen an die Einzelimpulsenergie und damit die Durchschnittsleistung des Verstärkers sowie die Länge des Filamentationsrohres, den Druck des Gases und die Brennweite des fokussierenden Spiegels.

3.2.1. Anordnung zur Filamentation

In Abbildung [3.2] ist der Aufbau zur Filamentation detailliert dargestellt. Die wichtigsten Komponenten sind die Einkoppelspiegel, das Filamentationsrohr, in dem der Prozess der Filamentation stattfindet und der Impulskompressor.

Die verstärkten Impulse können zunächst über einen speziellen Spiegelaufbau, der auf einem Verschiebetisch montiert ist, wahlweise zum Filamentationsrohr oder direkt in den Bereich der Hohen Harmonischen Erzeugung weitergeleitet werden. Der

mit (a) exemplarisch gekennzeichnete Spiegel stellt einen dielektrisch beschichteten HR- Spiegel (high reflective) dar, der eine Reflektivität von 99,9% im Infraroten aufweist. Durch einen konkaven HR-Spiegel (b) mit der Brennweite 2,5 m werden die Lichtimpulse in den zentralen Bereich des Rohres fokussiert. Die Position dieses Spiegels bestimmt die absolute (und zueinander relative) Lage beider generierten Filamente. Dabei ist die Zielsetzung eine zentrale und vor allem versatzlose Position der Filamente. Nur so kann die Gefahr einer Beschädigung des im Rohr montierten Spiegels sowie der Ein- und Austrittsfenster (c) minimiert werden. Die Fenster sind 2 mm dick und dielektrisch beschichtet, wodurch sie über eine niedrige Reflektivität im Wellenlängenbereich zwischen 600 und 1000 nm verfügen. Am Ende des Rohres befindet sich ein konkaver Spiegel (d) (Krümmungsradius von 1 m), der den Laserstrahl unter der Bildung eines zweiten Filaments zurückreflektiert. Da sowohl Ein- und Austrittsfenster sowie Refokussierspiegel zentral getroffen werden sollen, muss letzterer justierbar bleiben. Dazu wird er mit einer speziellen Spiegelhalterung befestigt, die wiederum an einen flexiblen Membranbalg montiert ist. Durch eine Dreiachsenhalterung bleibt die Anordnung im Betrieb jedoch steif, so dass Druckdifferenzen zu keinerlei Dejustagen führen.

Der Aufbau des Rohres basiert im Prinzip auf den Experimenten von Biegert et al. [Hau04], [OSA06], mit dem wichtigen Unterschied, dass beide Filamente ohne zwischengeschaltete Kompressionsstufe im gleichen Rohr erzeugt werden. Durch diese Modifizierung ist der gesamte Aufbau Platz sparender und wesentlich einfacher in der Justage. Noch viel wichtiger ist jedoch die geringere Anzahl an benötigten Fenstern und fokussierenden Optiken, die Dispersion, Astigmatismen und Leistungsverluste verursachen könnten. Der Verzicht auf eine zwischengeschaltete Kompressionsstufe nach dem ersten Filament kann durch Beobachtungen begründet werden, wonach sich die Lichtimpulse im gasförmigen Medium selbst komprimieren. Dieser Effekt der „self-compression“ der Filamentationsimpulse in Luft wird unter anderem in [Sku06], [Cou05] und [Ber08] beschrieben. Allerdings können die Filamente durch diese Vereinfachung nicht unter verschiedenen Druckverhältnissen gebildet werden, wodurch andernfalls die Möglichkeit einer feineren Optimierung der spektralen Verbreiterung gegeben wäre [Hau05]. In einer Arbeit von [Gua06] wird beispielsweise ein Experiment beschrieben, bei dem beide Argon-gaszellen mit einem Druckunterschied von 50 mbar gefüllt wurden.

Im Zentrum der Gaszelle sind zwei Glasrohre eingebaut, damit die Filamente beobachtet, und auf Länge und Position untersucht werden können. Um potenzielle mechanische Spannungen an den Glasrohrflanschen zu verringern, sind an deren Enden flexible Membranbälge angeschlossen.

Nach dem Prozess der Filamentbildung ist das spektrale Profil derart verbreitert, dass silber- statt dielektrisch beschichtete Spiegel verwendet werden müssen, da diese (z.B. (e)) in einem größeren Wellenlängenbereich weitgehend phasenneutral reflektieren. Durch eine allgemein geringere Reflektivität von 96% bis 99%, ist jedoch

die Verwendung einer vorzugsweise geringen Anzahl von Silberspiegel ⑤ notwendig.

Der Laserstrahl divergiert nach dem Ende des zweiten Filaments und muss im Hinblick auf einen kleinen Strahldurchmesser direkt nach dem Austrittsfenster durch einen konkaven Spiegel (die Brennweite beträgt 2 m) ⑥ kollimiert werden. Ein kleiner Strahlquerschnitt ist in Bezug auf die endliche Fläche des Impulskompressors ⑦ wichtig, um einen möglichst geringen Energieverlust zu gewährleisten. Der Impulskompressor besteht aus einem fest montierten und einem verschiebbaren dispersiven Spiegel. Diese Konfiguration erlaubt die Einstellung von 3 bis 5 Reflektionen an jedem Element des Spiegelpaares (also 3-5 Reflektionspaare, engl.: „Bounce Pairs“), ohne den weiteren Strahlenverlauf zu verändern. Um Beschädigungen an nachfolgenden optischen Komponenten zu verhindern, wird ein Teleskop zur 2,5 fachen Strahlaufweitung eingesetzt ⑧. Der Strahl wird anschließend über ein Ausgangsperiskop ⑨ in den ursprünglichen Strahlengang zurückgeführt. Um die Impulse aus der Filamentation zu charakterisieren, wurde ein geringer Anteil (4%) entkoppelt und in die Autokorrelationseinheit weitergeleitet.

3.2.2. Der Impulskompressor

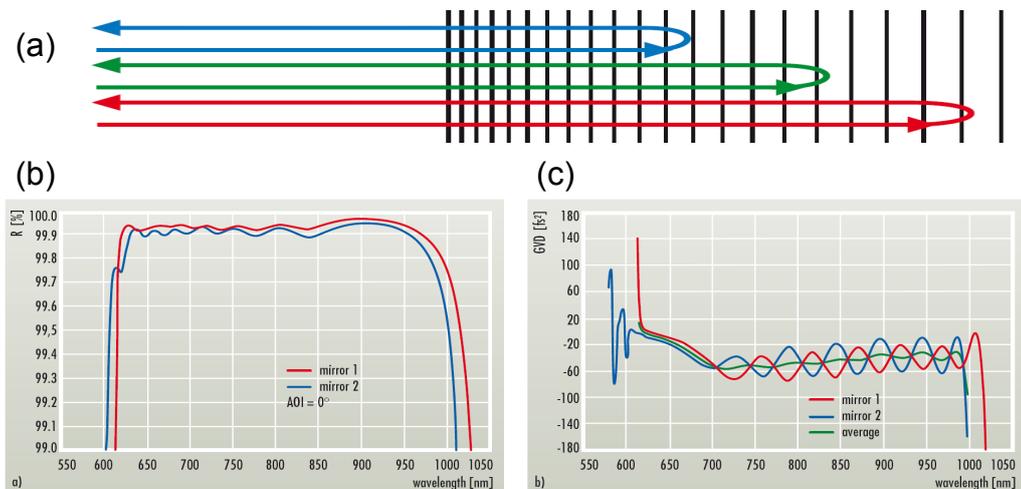


Abbildung 3.3.: (a) Schematische Darstellung der optischen Weglängen von blauem, grünem und rotem Licht in einem negativ dispersiven Spiegel. Die Diagramme zeigen die Reflektivität (b) und die GDD (c) der dispersiven Spiegel in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Erkennbar ist auch die kombinierte GDD-Kurve beider Spiegel. Sie zeigt einen fast konstanten Verlauf, [Lay07].

Um die lineare Dispersion des Ausgangsfensters in der Filamentationseinheit und der in Luft zurückgelegten Strecke zu kompensieren bzw. vorzukompensieren, wurde

ein Impulskompressor, bestehend aus zwei rechteckigen dispersiven Spiegeln aufgebaut.

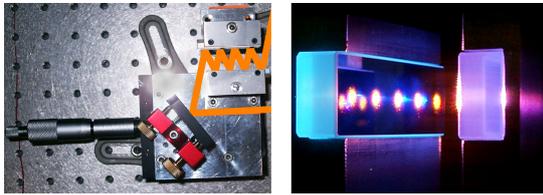


Abbildung 3.4.: Der Impulskompressor

Diese Spiegel bewirken zusammen eine Gruppen-Verzögerungs-Dispersion (GDD) von ca. -50 fs^2 . Es ist anzunehmen, dass aufgrund der Selbstkompressionseigenschaften des Filamentationsvorganges keine vorangehende Dispersion vor dem Austrittsfenster kompensiert werden muss. In Abbildung 3.3 ist der

GDD-Verlauf der einzelnen Spiegel in Abhängigkeit von der Wellenlänge veranschaulicht. Die Oszillationen neutralisieren sich näherungsweise und ergeben eine nahezu konstante GDD in einem Wellenlängenbereich, der ca. 480 nm umfasst. Der spezielle Aufbau des Kompressors, an dem zwischen 3 bis 5 Reflexionspaare eingestellt werden können, ohne dass eine Neujustage der nachfolgenden Optiken erforderlich wird, ist in Abbildung 3.4 gezeigt. Um die Wirkung von 1, 3 und 4 Bounce Pairs auf die Dauer von gaußähnlichen, zunächst ungechirpten Impulsen zu verdeutlichen, werden in Grafik 3.5 einige Beispiele gezeigt.

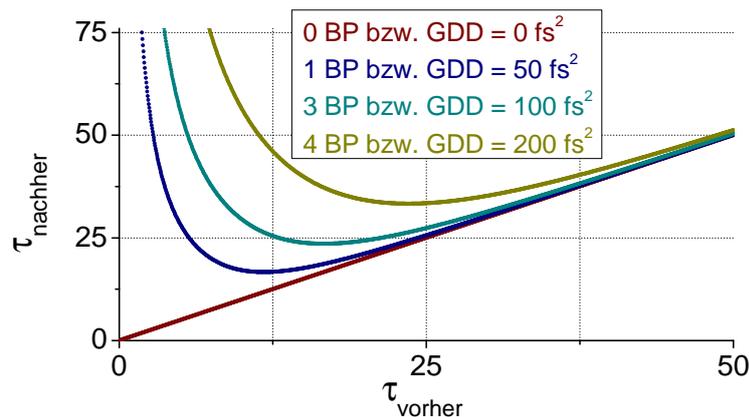


Abbildung 3.5.: Der Graph beschreibt die Vergrößerung der Impulsdauer für verschiedene Dispersionswerte 2. Ordnung.

3.3. Der Autokorrelator

Ein weiterer Bestandteil dieser Diplomarbeit lag in der Entwicklung, dem Aufbau sowie der Inbetriebnahme eines dispersionsfreien, interferometrischen Autokorrelators, mit dessen Hilfe kurze und ultrakurze Lichtimpulse charakterisiert werden können. Darüber hinaus wurde eine flexible Software zur Datenanpassung in LabView geschrieben, mit der in Zukunft Auswertungen direkt am Experiment möglich werden.

3.3.1. Der Autokorrekturaufbau

In Abbildung 3.6 ist der Aufbau des Autokorrektors schematisch dargestellt. Die generelle Funktionsweise orientiert sich dabei an einem Michelson Interferometer. Die Lichtimpulse werden zunächst über einen Strahlteiler in zwei Replika mit fast gleicher Intensität aufgespaltet und propagieren entlang unterschiedlicher Wegstrecken gleicher Länge, bevor sie schließlich mit Hilfe eines zweiten Strahlteilers wieder überlagert werden. Dabei wird eine der beiden Wegstrecken periodisch verändert, was in einer gegeneinander (mehr oder weniger) verzögerten Laufzeit der Impulse resultiert. Zur Detektion wird das Licht auf einen LED Halbleiter fokussiert.

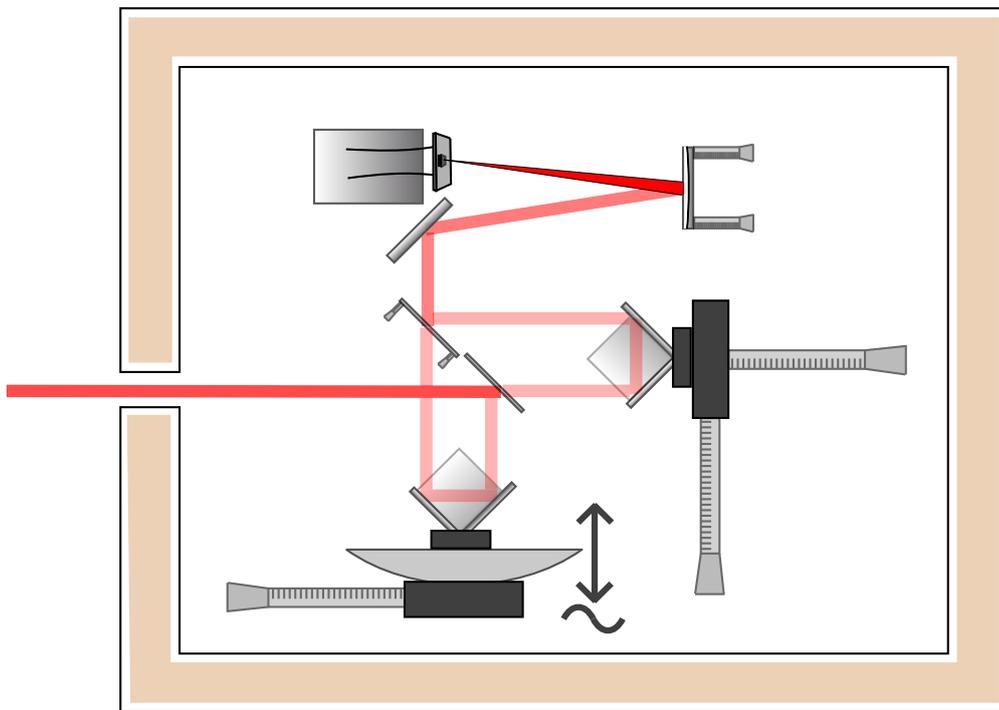


Abbildung 3.6.: Darstellung des interferometrischen Autokorrektors.

Ein wichtiges Justagekriterium ist eine bestmögliche Kollinearität entlang der gesamten Propagationsstrecke nach der erneuten Überlagerung der Teilstrahlen. Aus diesem Grund müssen die Aufspaltung und die Zusammenführung der Lichtimpulse an zwei unterschiedlichen Strahlteilern erfolgen. Der zweite Strahlteiler muss dabei justierbar bleiben. Durch den Einsatz von Retroreflektoren bzw. Tripelspiegeln werden die Strahlen um einige mm bis cm versetzt in die exakte Gegenrichtung zurückreflektiert. Die Spiegel können darüber hinaus auch von 90° abweichenden Winkeln getroffen werden, ohne dass dadurch Richtungsänderungen verursacht werden. Das bedeutet andererseits, dass eine Verkippung des Retroreflektors während

der Auf- und Abbewegung ebenfalls praktisch keinen Einfluss auf die Qualität der Überlagerung hat.

Die angesprochene Laufzeitverzögerung wird mit Hilfe eines handelsüblichen Lautsprechers realisiert, auf dem einer der Retroreflektoren montiert ist. Eine von außen angelegte Sinusspannung sorgt für die notwendige Weglängendifferenz, die oberhalb von $25 \mu\text{m}$ liegt.

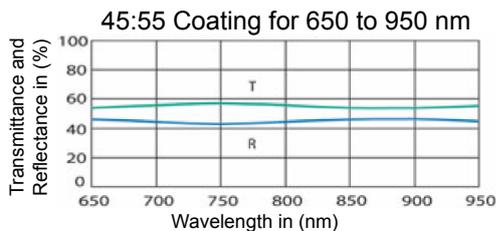


Abbildung 3.7.: Die Transmittivität und Reflektivität der Pellicles sind über einen großen Wellenlängenbereich konstant, [Tho].

Eine Besonderheit der hier realisierten Autokorrelationsanordnung liegt in der Verwendung von sog. Pellicle-Strahlteilern. Hierbei handelt es sich um dünne ($2 \mu\text{m}$) Nitrocellulosefolien, die durch eine entsprechende Beschichtung etwa 45 % des Lichts reflektieren und 55% transmittieren. Aufgrund der geringen Dicke dieser Strahlteiler, ist die durch sie eingeführte Dispersion 2. Ordnung verschwindend klein ($\text{GDD} \sim 0,073 \text{ fs}^2$).

Ein weiteres besonderes Merkmal ist in der Detektion des Signals zu finden. Da für die Autokorrelation stets ein Signal 2. Ordnung

des Interferenzmusters erzeugt werden muss, werden in gängigen Autokorrelatoren üblicherweise BBO Kristalle zur Summenfrequenzbildung verwendet [Jai82], siehe Kapitel [2.4.1] zu den mathematischen Hintergründen zur Autokorrelation. In dieser Ausführung des Autokorrelators kann jedoch auf das korrespondierende frequenzverdoppelnde Element verzichtet werden. Zum Einsatz kommt stattdessen eine blaue LED, die wegen ihrer entsprechend großen Bandlücke nur Photonenenergien ab $\sim 3 \text{ eV}$ (blauer Wellenlängenbereich) detektieren kann, bei kleineren Photonenenergien jedoch kein Signal liefert. Allerdings wird bei höheren Photonendichten ein nichtlinearer Prozess relevant, der als 2-Photonenabsorption bezeichnet wird, [Bal97], [Bar96] und [Loc00]. Hierbei werden simultan 2 Photonen gleicher Energie absorbiert, wobei sich die Energien addieren, so dass eine Elektron-Loch-Paarerzeugung auch dann möglich wird, wenn die Energien der einzelnen Photonen kleiner sind, die Summe der Energien zweier Photonen aber größer ist, als die Bandlücke des Halbleiters. Durch diesen Effekt, der nur bei sehr hohen Photonendichten auftritt, wird die zur Autokorrelationsmessung notwendige Nichtlinearität (siehe Kapitel [2.4.1]) eingeführt. Im Übrigen wird die Zeitauflösung der Autokorrelationsmessung durch die Dauer des Zweiphotonenüberganges festgelegt [Tak92], wobei dieser Prozess für den vorliegenden Fall so schnell abläuft, dass dies irrelevant für die Messung ist.

Um die Dispersion minimal zu halten, muss der Halbleiter direkt vom Licht getroffen werden. Deshalb wird hier eine LED ohne Verguss verwendet. Elektrisch wird die blaue LED als Spannungsquelle betrieben und ihr Signal verstärkt.

Abbildung 3.8 zeigt die zur Detektion eingesetzte Verstärkerschaltung zusammen

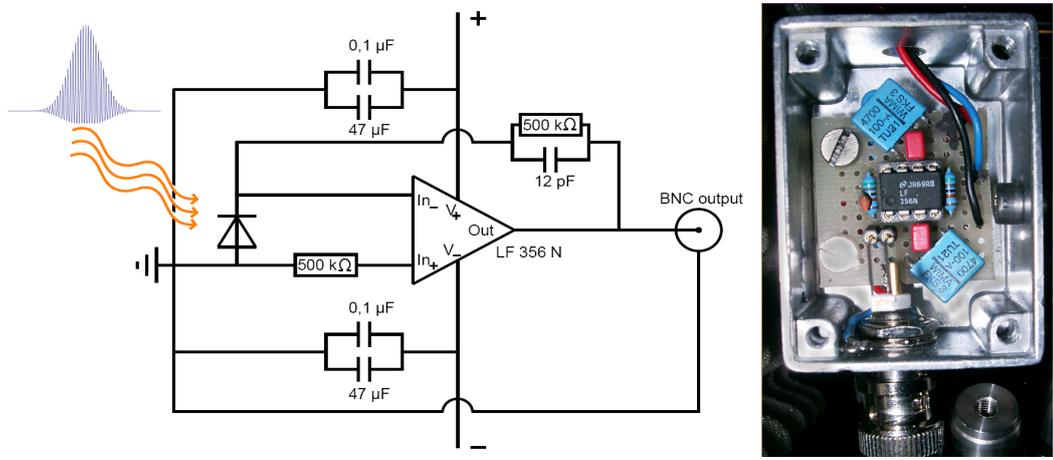


Abbildung 3.8.: Schaltbild und Foto der elektronischen Verstärkung.

mit der integrierten LED. Das Signal wird über einen HandyScope 3/50 Analog-Digital-Wandler der Firma „TiePie“ mit einer maximalen Auflösung von 14 bit bei einer Abtastrate von 3 MHz aufgenommen. Die weitere Auswertung erfolgt anschließend über eine mit LabView entwickelte Software zur Datenanpassung und Berechnung der Impulsparameter.

3.3.2. Die Justage



Abbildung 3.9.: Abbildung eines Pellicles und der zugehörigen Halterung.

Die Zielsetzung bei der Justage des Autokorrelators liegt in einer optimalen Überlagerung der Strahlen nach dem zweiten Strahlteiler. Dabei werden das erste Pellicle und die beiden Retroreflektoren so eingestellt, dass die Teilstrahlen direkt auf dem zweiten Pellicle übereinander liegen. Die Ausrichtung des zweiten Pellicles bestimmt dann den Überlapp an einem weit entfernten Punkt. In der Regel reichen hierbei wenige Iterationsschritte aus. Um den Autokorrelator

möglichst genau einzustellen, wurden ein Helium-Neon- und ein Diodenlaser im Wellenlängenbereich um 632 nm verwendet. Mit Hilfe des Diodenlasers konnte darüber hinaus im Vorfeld der zeitliche Überlapp der Teilstrahlen gefunden werden, da das Interferenzsignal eine höhere Modulationstiefe an der Stelle gleicher Weglänge auf-

wies, siehe Abbildung 3.10. Diese Eigenschaft lässt sich auf eine deutlich geringere nutzbare Kohärenzlänge des Diodenlasers zurückführen.

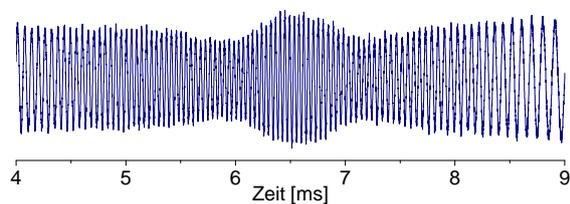


Abbildung 3.10.: Diodenlasersignal beim zeitlichen Überlapp der Teilstrahlen.

In Kapitel [2.4.1] wurde bereits darauf hingewiesen, dass eine schlechte Justage und nicht perfekte optische Bauteile zu einem asymmetrischen Autokorrelationssignal führen. Dies trifft insbesondere auf die Pellicles zu, die nicht notwendigerweise aus der selben Beschichtungsschicht stammen und auch im Allgemeinen vereinzelt leichte Inhomogenitäten an verschiedenen Stellen aufweisen können.

Der kombinierte Einsatz zweier Pellicles führt dann zur Korrelation zweier geringfügig unterschiedlicher Impulse, was in einem asymmetrischen Signal resultieren kann. Um dieses Problem zu beheben, wurden Halterungen entworfen, die eine Drehung der Strahlteiler ermöglichen, siehe Abb. 3.9. Auf diese Weise ließ sich eine Konfiguration finden, in der die Beschichtungen an den vom Laser getroffenen Stellen nahezu gleich zu sein schienen. Dies lässt sich anhand der Symmetrie eines Autokorrelationssignals überprüfen.

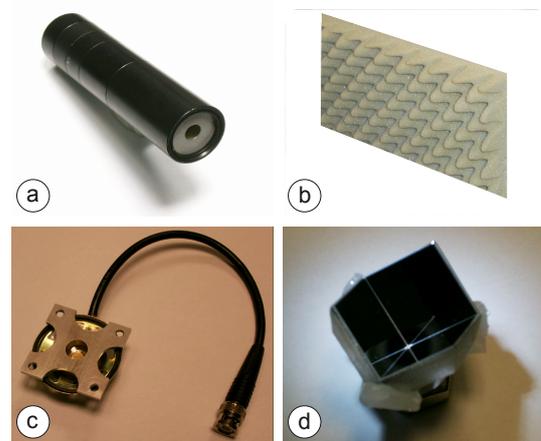
Des Weiteren sind für die Einkopplung eines beliebigen Laserfeldes zwei Blenden im Autokorrelator eingebaut, die den exakten Strahlengang definieren. Durch ein wechselseitiges, iteratives Justieren auf beide Blenden, ein Verfahren, das oftmals auch als „beamwalk“ bezeichnet wird, können sowohl die transversale Position wie auch die Ausrichtung des Lasers optimal an den Autokorrelator angepasst werden.

3.3.3. Die akustische Isolierung

Ein Nachteil der Bauart des hier realisierten Autokorrelators ist die Notwendigkeit einer akustischen Isolierung. Durch die Verwendung der dünnen Pellicles und des Lautsprechers sind die Anforderungen an die Stabilität des Systems gewachsen. So zeigen sowohl die Pellicles als auch der Lautsprecher deutliche Reaktionen gegenüber äußeren akustischen Störungen. Es hat sich unter anderem herausgestellt, dass die Pellicles eher empfindlich gegenüber hohen und der Lautsprecher gegenüber niedrigen Frequenzen sind.

In Abbildung 3.11 werden weitere Maßnahmen gezeigt, die in ihrer Summe für eine größere Stabilität gesorgt haben. Unter anderem wurden zwei selbstgebaute Schalldämpfer (a) mit verschiedenen Öffnungsdurchmessern eingesetzt. Diese bestehen aus kleiner werdenden Hohlräumen, die durch einfache Lochblenden voneinander getrennt sind. Eine Schallwelle wird an der kleinen Öffnung gebeugt und von der mit Schaumstoff ausgelegten Wand größtenteils absorbiert. Nur ein kleiner Anteil der akustischen Welle erreicht die nächste Kammer, in der sich der Prozess wiederholt. Der Laserstrahl hingegen kann ungehindert und ohne Verluste durch die

Abbildung 3.11: Bilder verschiedener Maßnahmen zur Verringerung der akustischen Störungen. (a) Schalldämpfer, (b) Noppenschaumstoff als Dämmmaterial, (c) Halterung für den am Lautsprecher montierten Retroreflektor und (d) Retroreflektor ohne Gehäuse.



zentralen Öffnungen im Schalldämpfer propagieren. Eine weitere Maßnahme besteht in der Auskleidung der Innenwände und des Deckels mit Dämmmaterial 3.11 (b), wodurch akustische Resonanzen innerhalb der Autokorrelationsbox abgeschwächt werden können.

Im Laufe der Arbeit hat sich herausgestellt, dass das hohe Gewicht der Gehäuse der Tripelspiegel für ein hohes Maß an Instabilität verantwortlich gewesen ist. Aus diesem Grund wurde ein spezielles Verbindungsstück 3.11 (c) konstruiert, das für eine zentrale Position des Retroreflektors und für einen niedrigeren Schwerpunkt sorgt. Noch bessere Ergebnisse konnten allerdings durch Entfernen des Gehäuses der Retroreflektoren und der damit verbundenen Gewichtsverringering erzielt werden, siehe Abbildung 3.11 (d). Ein weiterer Vorteil des verringerten Gewichts ist eine deutliche Erweiterung der Verfahrstrecke des Lautsprechers bei einer zur vorherigen Konfiguration vergleichbaren Spannung. Eine weitere Maßnahme bestand darin, alle festen optischen Komponenten durch Versteifungen zu verbinden, so dass relative Bewegungen zwischen ihnen unterbunden werden.

In Abbildung 3.12 wird die Wandkonstruktion zur akustischen Isolierung der Autokorrelatoroptik präsentiert. Dabei soll vor allem auf die Doppelwand und den zugehörigen Zwischenraum hingewiesen werden. Dieser wird mit feinem Kieselsand gefüllt, um neben den leicht abzuschirmenden, hochfrequenten akustischen Wellen auch die niederfrequenten effizient abzublocken. Versuche mit anderen Wandkonstruktionen haben gezeigt, dass sowohl dünnere wie auch dickere mit Schaumstoff ausgekleidete Einzelwände zur Isolierung des gesamten Spektrums akustischer Wellen unzureichend sind.

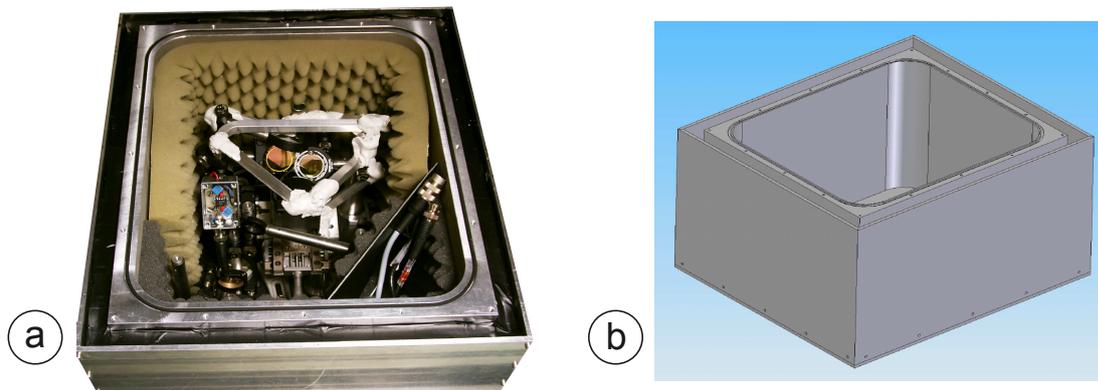


Abbildung 3.12.: Darstellung der Doppelwandkonstruktion. In Teilbild (b) ist der Zwischenraum, der mit Sand gefüllt wird, deutlich zu erkennen.

3.3.4. Software zur Datenanpassung der Autokorrelation

Für die Auswertung wurde mit „LabView“ eine Software zur Anpassung gerechneter Autokorrelationsfunktionen an gemessene Daten entwickelt, die in naher Zukunft eine Analyse direkt am Experiment ermöglichen soll. Das Programm erlaubt die Auswahl zwischen verschiedenen Funktionen unter Verwendung von bis zu 7 Parametern, deren Bedeutung noch genauer erläutert wird. Darüber hinaus kann die Anzahl der Datenpunkte über dynamische Interpolations-, Symmetrisierungs- und Abschneidefunktionen reduziert werden, wodurch sich die Gesamtrechendauer minimieren lässt.

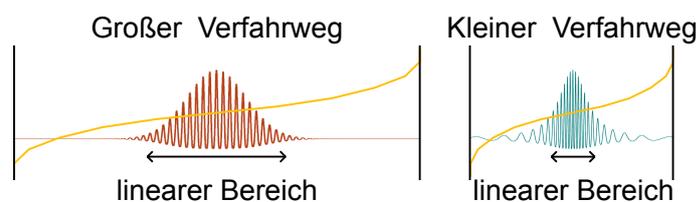


Abbildung 3.13.: Je größer der Verfahrweg des Lautsprechers, umso größer wird der näherungsweise lineare Teil der sinusförmigen Bewegung.

Zur Kalibrierung (und Zentrierung, damit das Maximum der Autokorrelation im Zentrum des Verfahrweges steht) der Zeit-Achse stehen ebenfalls mehrere Optionen zur Verfügung. Die Auswahl orientiert sich an der eingestellten sinusförmigen Spannung, die am Lautsprecher anliegt und proportional zu dessen Verfahrweg ist. Bei einer hohen Spannung ist der dynamische Überlagerungsbereich, in dem die Interferenz der Impulse stattfindet, relativ schmal im Vergleich zur Gesamtstrecke. Damit entsteht der „interessante“ Teil des Signals in der Nähe des Nulldurchganges

der Sinusfunktion und somit innerhalb der näherungsweise linearen Bewegung der Lautsprechermembran. Für diesen Fall reicht die „lineare“ Kalibrierungseinstellung.

In vielen Situationen wird das Autokorrelationssignal jedoch über einen Zeitraum von 30 sec bis zu mehreren Minuten aufgenommen. Dabei ist es gelegentlich hilfreich, den Verfahrensweg des Lautsprechers so klein wie möglich zu halten, um die Stabilität des Systems zu erhöhen. Das Interferenzsignal wird sich folglich über die gesamte Zeitachse und somit über den gesamten Verfahrensweg bis zu den Extremalpositionen des Lautsprechers erstrecken. Das Signal ist in diesem Fall nicht mehr im näherungsweise linearen Bereich der sinusförmigen Bewegung. In der sog. „Sinus-“ Kalibrierungseinstellung kann dieser Aspekt mitberücksichtigt werden. Vergleichsmessungen haben gezeigt, dass beide Kalibrierungsmethoden zu identischen Ergebnissen führen.

Im folgenden Abschnitt wird eine der zwei Funktionen vorgestellt, mit deren Hilfe Rückschlüsse auf einen möglichen linearen chirp des Impulses gezogen werden können. Das Autokorrelationssignal in Abhängigkeit der Verzögerungsdauer Δ wird von $I(\Delta)$ repräsentiert. In der Funktion $I(\Delta)$ sind die Parameter a_1 , a_2 , φ_1 , φ_2 , ω_0 , Γ_1 und Γ_2 enthalten, die allesamt in den Vorgang der Datenanpassung eingebunden werden können.

$$I(\Delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \left(|A_1(t) + A_2(t - \Delta)|^2 \right)^2 dt \quad (3.1)$$

$$\begin{aligned} &= \int_{-\infty}^{\infty} \left(\left| a_1 e^{-(\Gamma_1 - i\Gamma_2)t^2} e^{i(\omega_0 t + \varphi_1)} + a_2 e^{-(\Gamma_1 - i\Gamma_2)(t - \Delta)^2} e^{i(\omega_0(t - \Delta) + \varphi_2)} \right|^2 \right)^2 dt \\ &= \left[\frac{1}{2} [a_1^4 + a_2^4] + 2 e^{-\frac{\Gamma_1}{4}(3 + (\frac{\Gamma_2}{\Gamma_1})^2)} [a_1^3 a_2 \cos(\frac{1}{2}\Gamma_2 \Delta^2 - \omega_0 \Delta - \varphi_1 + \varphi_2) + \right. \\ &\quad \left. + a_1 a_2^3 \cos(\frac{1}{2}\Gamma_2 \Delta^2 + \omega_0 \Delta + \varphi_1 - \varphi_2)] + \right. \\ &\quad \left. + a_1^2 a_2^2 e^{\Gamma_1 \Delta^2} [2 + e^{-\frac{\Gamma_2}{4}\Delta^2} \cos(2\omega_0 \Delta + 2\varphi_1 - 2\varphi_2)] \right] \quad (3.2) \end{aligned}$$

Hierbei sind a_1 und a_2 die Amplituden der korrelierten Impulse nach Propagation durch beide Strahlteiler im Autokorrelator. Dadurch findet eine mögliche Disparität der Strahlaufteilung der Pellicles Berücksichtigung. Die konstanten Phasen φ_1 und φ_2 repräsentieren die CEO-Phase der Impulse. Da es sich in der Regel jedoch um identische Impulse handelt, heben sich die Phasenterme in der Funktion (3.2) stets gegenseitig auf. Allerdings kann sich eine geringfügige Diskrepanz zwischen φ_1 und φ_2 ausbilden (beispielsweise durch eine unterschiedliche Oberflächenbeschaffenheit der Pellicles), weshalb es gelegentlich sinnvoll ist, diese Parameter in den Anpassungsvorgang einzubinden. Aus physikalischer Perspektive sind die Werte jedoch irrelevant und in diesem Fall lediglich als mathematisches Hilfsmittel zur Verbesserung

der Datenanpassung anzusehen. Der Parameter ω_0 stellt die Zentralfrequenz der zu charakterisierenden Impulse dar. Größere Abweichungen des errechneten Wertes für ω_0 von $2,35 \cdot 10^{15}$ Hz (das entspricht einer Zentralwellenlänge von 800 nm) deuten auf eine schlechte Datenanpassung oder eine fehlerhafte Kalibrierung der Zeitachse hin. Dies trifft zumindest auf die Analyse der Oszillator- und der verstärkten Impulse zu. Die im Hinblick auf die Auswertung wichtigsten Werte sind Γ_1 und Γ_2 , aus denen die Impulsdauer τ_{FWHM} und der lineare chirp „GDD“ rekonstruiert werden können (siehe Kapitel [2.1.3], bzw. Gleichung 2.18). Hierbei gelten die folgenden Zusammenhänge:

$$\Gamma_1 = \frac{\sqrt{2 \ln 2} \tau_{FWHM}}{(\sqrt{2 \ln 2} \tau_{FWHM})^2 + (2 \cdot \text{GDD})^2} \quad (3.3)$$

$$\Gamma_2 = \frac{-2 \cdot \text{GDD}}{(\sqrt{2 \ln 2} \tau_{FWHM})^2 + (2 \cdot \text{GDD})^2} \quad (3.4)$$

Das Programm zur Datenanpassung enthält noch eine weitere Besonderheit. Wie bereits in Abschnitt [3.3.2] zur Autokorrelatorjustage beschrieben wurde, weisen die Pellicles unterschiedliche Charakteristika in ihrer Oberflächenbeschaffenheit auf. Dies resultiert in einem Intensitätsunterschied der Teilimpulse. Darüber hinaus kann das gemessene Signal eine von Null verschiedene Grundlinie (Offset) enthalten.

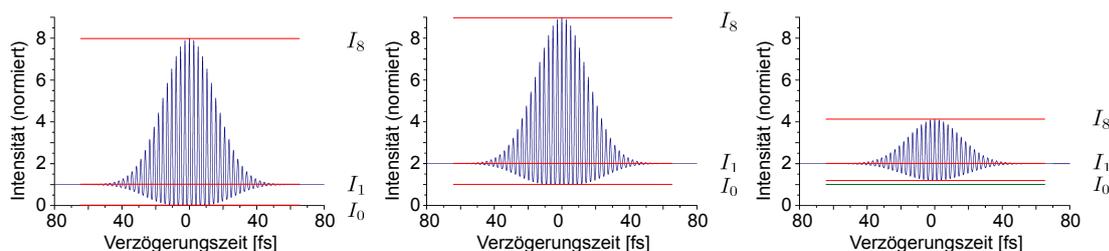


Abbildung 3.14.: Die rot gekennzeichneten Linien geben die Werte für I_8 , I_1 und I_0 an, aus denen folglich a_1 , a_2 und a_o (der Offset) berechnet werden können. Im ersten Bild ist eine Autokorrelation mit gleichen Teilintensitäten und ohne Offset dargestellt. Das zweite Bild ist bis auf einen zusätzlichen Offset identisch zum ersten. Im dritten Bild enthält die Autokorrelation ebenfalls einen Offset und weist ein Amplitudenverhältnis von 1 : 3 auf. In diesem Fall stimmen der Offset (grüne Linie) und die I_0 -Linie nicht mehr überein.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine simple Methode gefunden, um die Parameter a_1 , a_2 und a_o (= Offset) unabhängig vom eigentlichen Simulationsvorgang der Daten zu ermitteln.

$$I_8 = (a_1^4 + a_2^4) + a_o \quad (3.5)$$

$$I_1 = (a_1 + a_2)^4 + a_o \quad (3.6)$$

$$I_0 = (a_1^4 - a_2^4) + a_o \quad (3.7)$$

Dazu müssen die Werte des Autokorrelations-Maximum (I_8), des -Minimum (I_0) und der sog. „1-Linie“ (I_1), die den Bereich außerhalb der Interferenz darstellt, gemessen werden (siehe Abbildung 3.14). Mit Hilfe der Formeln (3.5), (3.6) und (3.7) können die gesuchten Parameter berechnet werden.

3.3.5. Stabilitätsmessungen zur Autokorrelation

Um einen optimalen und vor allem stabilen Betrieb des Autokorrelators zu ermöglichen, wurden während der Entwicklungs- und der Aufbauphase wiederholt Testmessungen durchgeführt. Dabei kamen neben den Oszillator- und Verstärkerimpulsen vor allem Laser im kontinuierlichen Betrieb zum Einsatz. In diesem Abschnitt wird das wichtigste Verfahren hierzu beschrieben.

Eine Methode, mit deren Hilfe die beste Kombination aus Lautsprecherfrequenz und angelegter Spannung ermittelt werden kann, beruht auf dem Interferenzsignal eines Dioden-, oder Helium-Neon-Lasers. Hierzu wird statt der blauen eine rote LED in die Detektorschaltung eingebaut, so dass einzelne Photonen zum Signal beitragen können. Auf diese Weise wird ein kontinuierliches und lineares Interferenzsignal detektiert, wie es beispielsweise in Abbildung 3.15 gezeigt ist.

Eine Erhöhung der Spannung am Lautsprecher und die Verschiebung der Frequenz in Richtung der Resonanz erhöhen gleichermaßen die Anzahl der „Interferenzstreifen“. Die Messmethode besteht nun darin, diese Anzahl auf einem konstanten Wert (hier 42) zu halten, während die Spannung und die Frequenz variiert werden. In dieser Messreihe wurde die Frequenz zwischen 40 und 135 Hz in 5 Hz Schritten verändert und die Spannung am Lautsprecher entsprechend angepasst. Um ein Maß für die Stabilität des Systems zu erhalten, wurde ein Mittelwertsignal (rot) über einen Zeitraum von 30 Sekunden aus dem Interferenzmuster (blau) gebildet. Das Verhältnis aus dem Mittelwert und der instantan gemessenen Linie ist im zugehörigen Diagramm dargestellt und zeigt eindrucksvoll, welche Einstellungen keinen stabilen Autokorrelationsbetrieb ermöglichen. Dies trifft insbesondere auf den Frequenzbereich nahe der Resonanz (98 Hz) zu. Da der Lautsprecher nicht mit beliebig hohen Spannungen betrieben werden sollte, muss folglich die eingestellte Frequenz

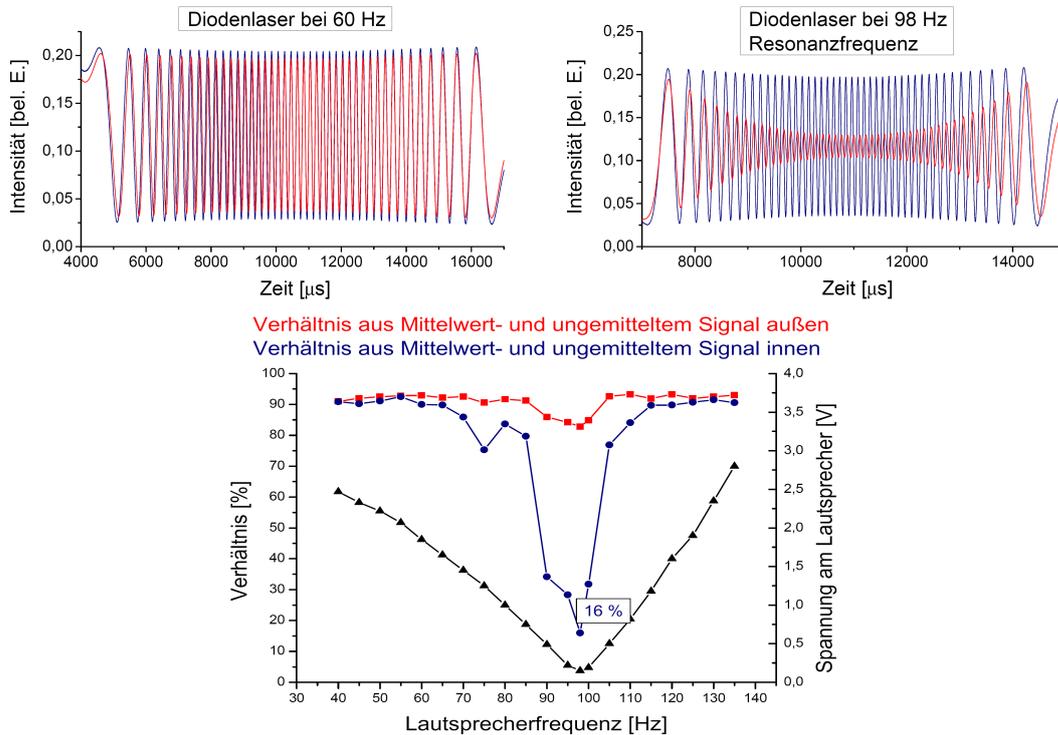


Abbildung 3.15.: Bestimmung der Lautsprecherfrequenz mit einem cw - Diodenlaser ($\lambda = 632 \text{ nm}$). Ein wichtiges Kriterium hierbei ist das Verhältnis des Mittelwertsignals (rot) zum instantanen Signal (blau). Dieses Verhältnis ist jeweils für die Mitte und für den Rand des gesamten Signals ausgewertet. Die schwarze Linie repräsentiert die am Lautsprecher angelegte Spannung, die mit der korrespondierenden Frequenz für eine konstante Anzahl an Interferenzstreifen sorgte.

innerhalb eines 50 Hz Intervalls um die Resonanz liegen. Basierend auf diesem Test und den Versuchen mit den Verstärkerimpulsen, konnte die optimale Stabilität auf einen Bereich zwischen 70 und 85 Hz eingegrenzt werden.

Um stabilitätsfördernde Maßnahmen zu überprüfen, wurde teilweise auch das Interferenzsignal bei ruhendem Lautsprecher detektiert. Große Fluktuationen des Signals weisen dabei auf Schwankungen des Lautsprechers bzw. des auf ihm montierten Retroreflektors hin. In Abbildung 3.16 ist hierzu ein Beispiel gezeigt. Die rote und blaue Linie wurden jeweils bei einer Messung mit bzw. ohne Ummantelung des Retroreflektors aufgenommen. Der Vergleich macht deutlich, dass ein höheres Gewicht auf dem Lautsprecher zu deutlich stärker ausgeprägten Oszillationen um die Ruheposition führt.

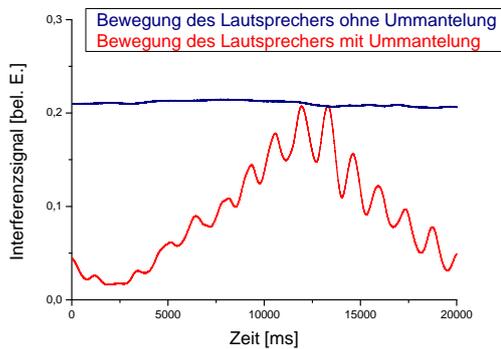


Abbildung 3.16.: Bedeutung der Lautsprecherummantelung.

Eine sehr direkte, aber eher qualitative Methode, um den Stabilitätsbereich zu ermitteln, ist die Messung der Autokorrelation der verstärkten Impulse. Im Gegensatz zum Oszillator, der Impulse mit einer 10000 fach höheren Repetitionsrate erzeugt, reicht die Statistik aus den verstärkten Impulsen nicht aus, um ein instantanes Signal zu erhalten. Vielmehr müssen die Impulse über einen Zeitraum von 30 s bis mehreren Minuten aufgenommen und gemittelt werden. In dieser Zeit muss der Autokorrelator sta-

bilisiert und von äußeren akustischen Einflüssen weitestgehend abgeschirmt sein. Mit Hilfe dieser Messungen konnte auch die Wirkung einiger der in Kapitel [3.3.3] vorgestellten Maßnahmen zur akustischen Isolierung überprüft werden.

4. Messungen und Experimente

4.1. Messungen zur Filamentation

Im nachfolgenden Kapitel wird ein Überblick über die mit der Technik der Filamentation durchgeführten Experimente und die so erzielten Ergebnisse gegeben. Im Vordergrund der Messungen stand eine Untersuchung der Abhängigkeit der Filamentation von regelbaren Größen, wie dem Gasdruck und der Brennweite des fokussierenden Spiegels. Die Zielsetzung war dabei die Herstellung eines möglichst stabilen und effizienten Betriebszustandes der Filamentation.

4.1.1. Druckabhängigkeit der Filamentation

Der Druck des verwendeten Gases stellt einen signifikanten kontrollierbaren Parameter in dem Prozess der Filamentation dar. Im Hinblick auf die geplanten Experimente wurde daher eine systematische Untersuchung des Einflusses des Gasdruckes auf die wichtigsten Größen vorgenommen. Besonderes Interesse galten dabei neben der Breite des Spektralprofils und der damit korrespondierenden Impulsdauer auch der erreichbaren Ausgangsleistung, der Stabilität der zentralen Mode und der Divergenz des Laserstrahls.

In Abbildung 4.1 sind die gemessenen Spektren bei drei verschiedenen Druckwerten aufgezeichnet. Für jede Messung wurde zusätzlich eine Blende eingebaut, um eine Option einer räumlichen Filterung zu schaffen. Auf diese Weise konnte das spektrale Profil der zentralen Mode genauer untersucht und mit der Konfiguration ohne Blende verglichen werden. Dabei ist festzustellen, dass durch den Einbau einer Blende die Leistung zwar auf einen Wert zwischen 50% bis 60% absinkt, das spektrale Profil der zentralen Mode jedoch einen verhältnismäßig großen Anteil an hochfrequenten spektralen Komponenten besitzt, (beachtenswert sind die spektralen Profile bei 750 mbar in Abbildung 4.1).

Für die Messung bei 950 mbar trifft dies nicht im vollen Umfang zu, was darauf zurückzuführen ist, dass die zentrale Mode bei diesem Druck bereits stark divergiert. Die Blende muss daher vergleichsweise weit geöffnet werden, wodurch nun größere Anteile des zuvor ausgeblendeten Lichts mit gemessen werden.

Die zwei Schwerpunkte bei der Analyse der Filamentation sind das Spektralprofil und die daraus resultierenden Impulsdauern. Um ein aussagekräftiges Maß über die spektrale Verbreiterung zu erhalten, reicht eine einfache Abschätzung des FWHM

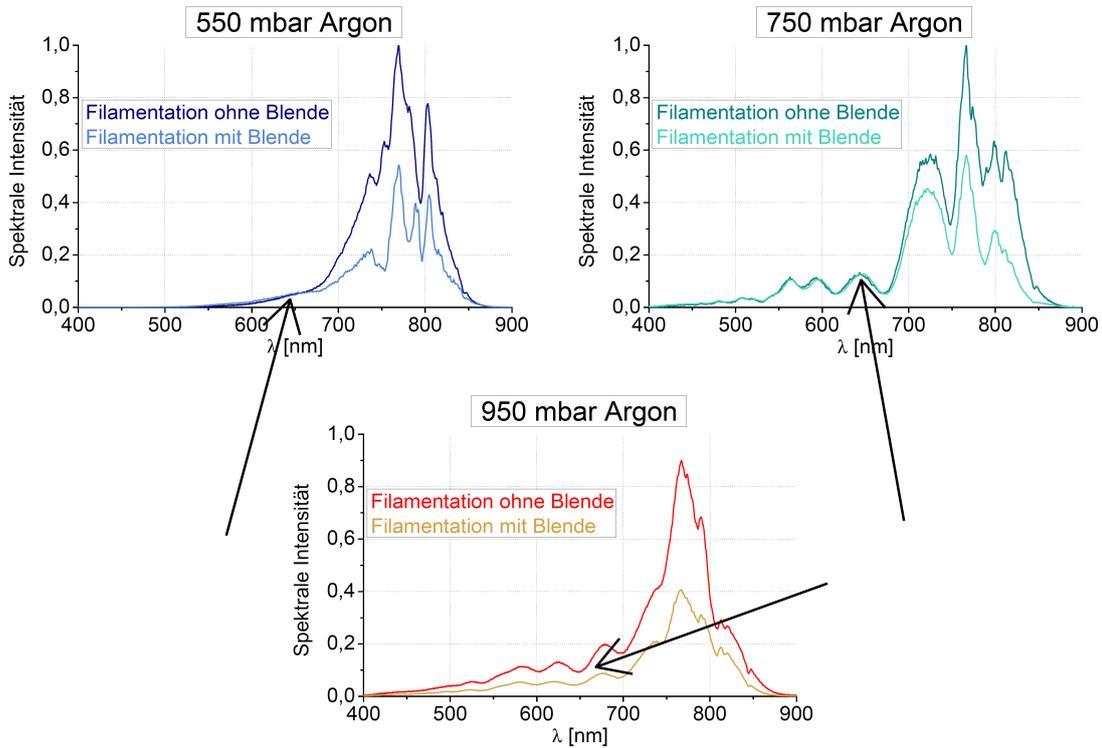


Abbildung 4.1.: Abhängigkeit des spektralen Profils vom Gasdruck und der Vergleich zwischen 2 Konfigurationen mit und ohne Blende zur räumlichen Filterung. Die Pfeile kennzeichnen die spektralen Ausläufer, die trotz eingesetzter Blende die gleiche Intensität aufweisen (bei niedrigeren Drücken). Das bedeutet, dass sich die hohen Frequenzanteile in der zentralen Mode befinden.

nicht aus. Vielmehr müssen alle spektralen Komponenten innerhalb der Intensitätsverteilung mit der korrekten Gewichtung berücksichtigt werden. Ein solches Maß ist beispielsweise durch die Standardabweichung σ gegeben, deren Formel analog zu (2.12) in Kapitel [2.1.3] definiert wird:

$$\sigma = [\langle \lambda^2 \rangle - \langle \lambda \rangle^2]^{\frac{1}{2}} \quad \text{und} \quad \langle \lambda^m \rangle = \sum_n \lambda^m I(\lambda) / \sum_n I(\lambda) \quad (4.1)$$

Dadurch wird der Einfluss der spektralen, kurzwelligen Ausläufer mit einbezogen. Vergleicht man beispielsweise die Werte für die Standardabweichung bei 950 mbar und 750 mbar (jeweils ohne Blende), so zeigt sich ein breiteres Profil bei 950 mbar, obwohl der scheinbare optische Eindruck der Verteilungen in Abbildung 4.1 das Gegenteil vermitteln.

Mit Hilfe der Gleichung (4.1) können nun die spektralen Profile und die dabei zu erwartenden Impulsdauern ermittelt werden. Hierbei wird die betrachtete spektrale Verteilung auf den Bereich zwischen 520 und 1000 nm eingeschränkt, da die

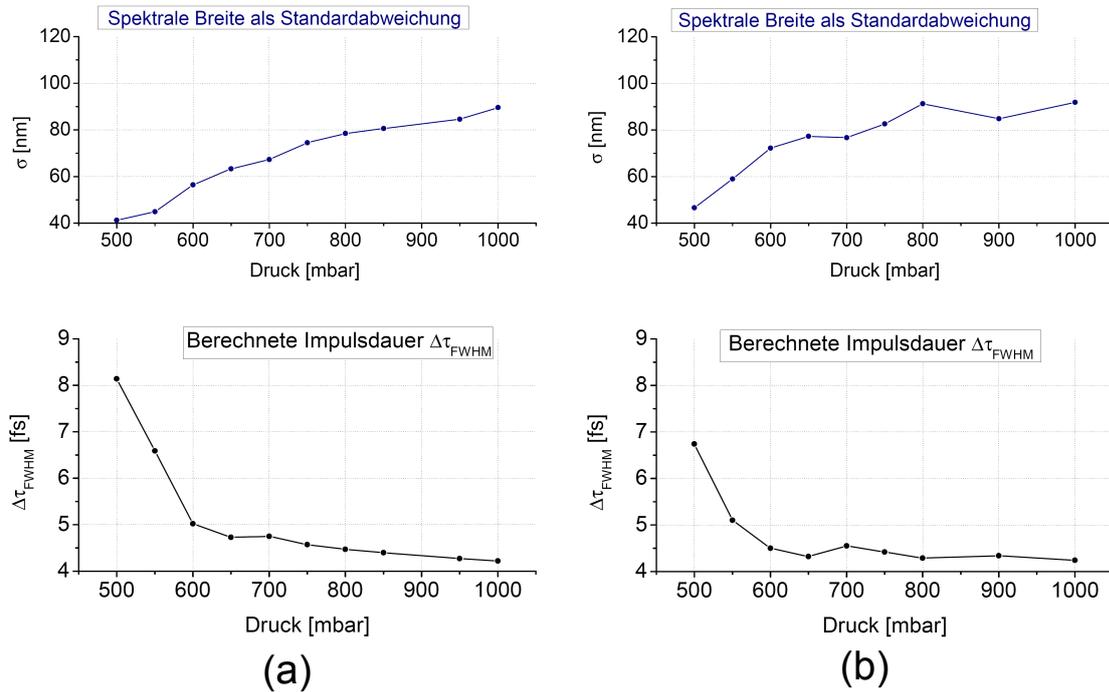


Abbildung 4.2.: Darstellung der aus den Spektren berechneten spektralen Breiten und Impulsdauern. In (a) wurde die gesamte spektrale Verteilung aufgenommen, in (b) nur das der zentralen Mode.

dispersiven Spiegel für dieses Wellenlängenintervall ausgelegt sind (siehe Abbildung 3.3 zum Impulskompressor). Die zugehörigen Graphen sind in Abbildung 4.2 gezeigt. Nennenswert ist die geringe Abhängigkeit der Impulsdauer vom Druck unter der Verwendung einer Blende. Daraus lässt sich schließen, dass bereits bei niedrigen Drücken eine zufrieden stellende Verbreiterung im zentralen Teil des Laserstrahls stattfindet. In anderen Worten bedeutet das auch, dass der Druck im Hinblick auf die erreichbare Impulsdauer keine allzu kritische Größe darstellt.

Unter der Annahme einer über den gesamten Wellenlängenbereich linearen Phase ergeben die Spektren die in Abbildung 4.3 gezeigten zeitlichen Impulsformen. Die Impulse weisen bei 550 mbar einen etwas breiteren Untergrund auf, der tendenziell mit zunehmenden Druck kleiner und schmaler wird.

Zwei wichtige und bereits angesprochene Kriterien, die im Rahmen dieser Messungen untersucht wurden, sind die Stabilität und die Divergenz der zentralen Mode. Es konnte festgestellt werden, dass beide Größen korreliert sind und mit zunehmenden Druck „schlechter“ werden. Von ähnliche Ergebnissen wird auch in [Gal07] und [Bra95] berichtet. Mit Stabilität ist in dieser Messung das Verhalten des spektralen Profils und das der transversalen Laserstrahlposition gemeint. Bei einsetzender Instabilität weisen diese Faktoren gewisse Fluktuationen auf. In dieser Messreihe

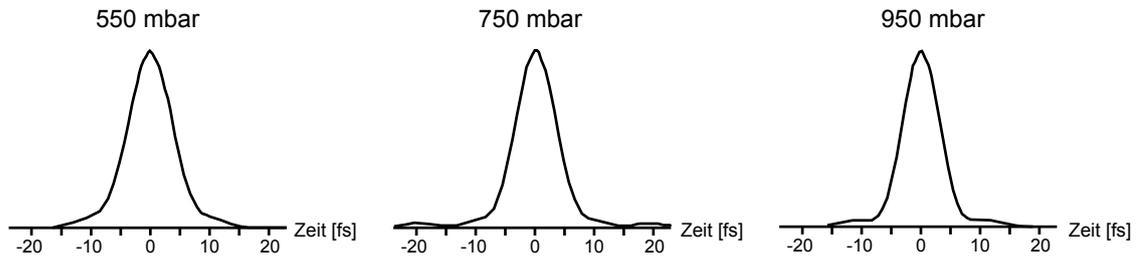


Abbildung 4.3.: Die berechneten Impulsformen für verschiedene Drücke.

reichte der „stabile Bereich“ bis zu einem Druck von 800 mbar.

Durch eine Neujustage des Verstärkersystems und der damit verbundenen Veränderung der Eingangsleistung können andere Rahmenbedingungen für die Filamentationsmessungen entstehen. Veränderungen an der Wechselwirkungslänge zwischen den Laserimpulsen und den Gasatomen, was unter anderem durch die Filamentationsrohrlänge und der Brennweite des fokussierenden Spiegels determiniert wird, wirken sich sogar noch deutlicher aus. Die wichtigsten hieraus resultierenden Konsequenzen sind eine Veränderung der Lage des Druckwertes, bei dem die Filamentation einsetzt und der Umfang des Druckbereichs, in der die Filamentation als stabil bezeichnet werden kann.

Dieser Sachverhalt konnte beispielsweise nach einer Verkürzung des Filamentationsrohres um ca. 20 cm beobachtet werden. Die entsprechenden Druckwerte wurden durch den Umbau um ca. 200 mbar erhöht. Schlussendlich führt eine Optimierung der angesprochenen Parameter zu insgesamt kleinen Druckwerten.

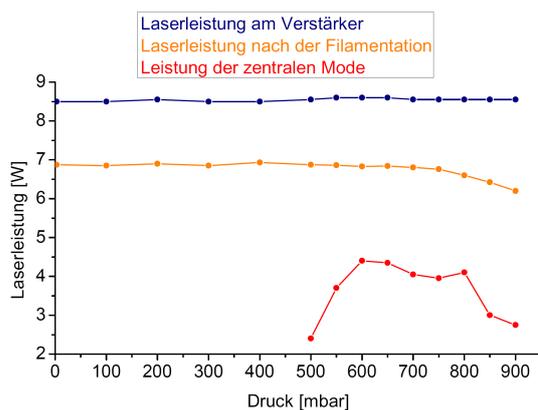


Abbildung 4.4.: Leistung vor und nach der Filamentation.

Für die Divergenz gelten die gleichen Zusammenhänge. So konnte beobachtet werden, dass die zentrale Mode ab einem Druck von ca. 750 mbar zu divergieren beginnt. Allerdings wird die Divergenz erst ab 900 mbar zu einem Problem. Der Kollimierspiegel muss dann sehr nahe an den Eintrittsbereich des Filamentationsrohres herangeschoben werden, um noch die gesamte Strahlung einfangen zu können. Da der Spiegel nahezu senkrecht zur Strahlenachse ausgerichtet sein muss, entsteht ein Platzmangel, durch den die Positionierung eines weiteren Umlenkspiegels im Strahlengang unmöglich ist.

Eine weitere zu berücksichtigende Größe ist die Leistung, die nach der Filamen-

tation gemessen wird. Hierzu sind in Abbildung 4.4 die am Verstärker und nach der Argon Gaszelle gemessenen Leistungen gezeigt. Bemerkenswert ist sicherlich die Tatsache, dass durch den Filamentationsvorgang nur wenig Energieverlust stattfindet. So liegt ein Wert um 7 W im Rahmen dessen, was zu erwarten ist (beispielsweise durch die Reflektivität der Spiegel). Die zentrale Mode enthält allerdings einen überraschend kleinen Energieanteil.

Aus sämtlichen Betrachtungen zur Stabilität, zur Divergenz und zur Ausgangsleistung, lassen sich jeweils ein optimaler Druckbereich feststellen, der zwischen 700 mbar und 800 mbar liegt.

4.1.2. Einfluss der fokussierenden Optik auf die Filamentation

In diesem Abschnitt wird der Einfluss des fokussierenden Spiegels vor der Gaszelle diskutiert. In den durchgeführten Experimenten wurden 3 konkave Spiegel mit den Brennweiten 2 m, 2,5 m und 3 m in einem Druckbereich zwischen 500 mbar und 1000 mbar getestet, siehe Abbildung 4.5.

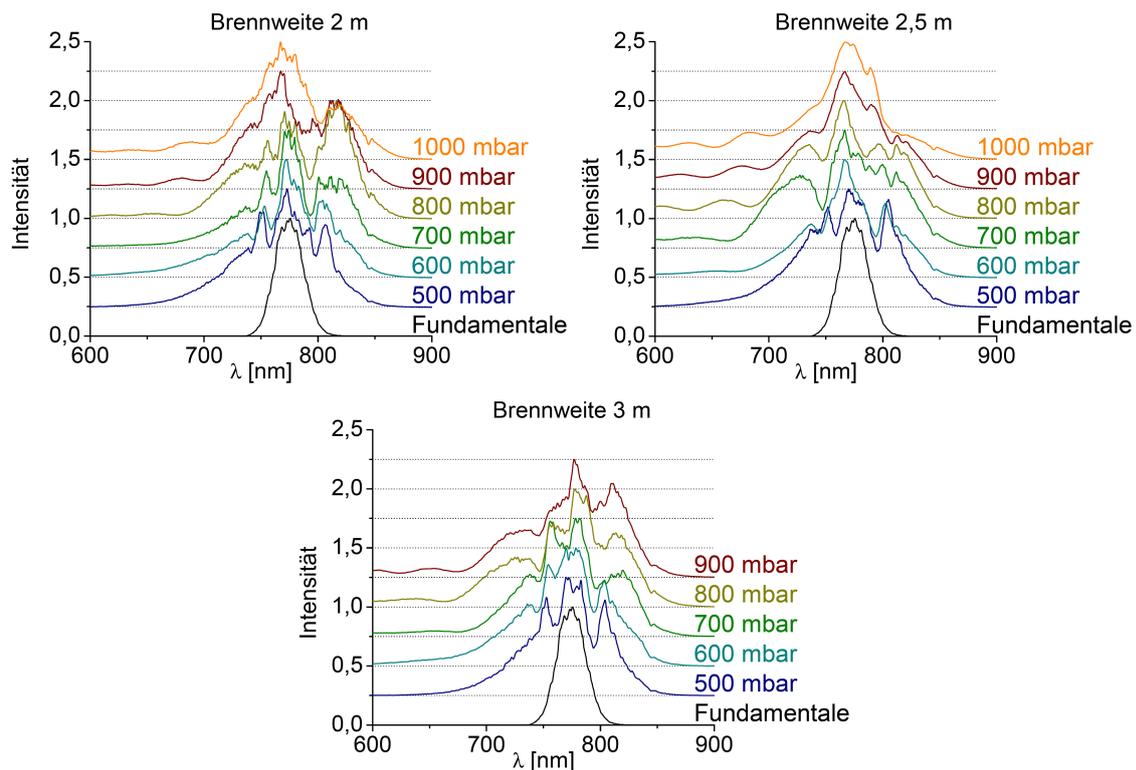


Abbildung 4.5.: Gemessene Spektren bei verschiedenen Drücken und unter der Verwendung von fokussierenden Spiegeln mit den Brennweiten 2 m, 2,5 m und 3 m.

Die Wahl der fokussierenden Optik ist signifikant im Hinblick auf die Verbreiterung des Spektralprofils, da sie entscheidend für das Gleichgewicht der konkurrierenden Effekte ist. Insbesondere gilt dies für den Kerrlinseneffekt und die Plasmabildung. So kann eine kurzbrennweitige Fokussierung zu einer übermäßigen Plasmabildung und einer stärkeren Defokussierung führen, mit dem Ergebnis, dass der Filamentationsvorgang vorzeitig abbricht. Demgegenüber kann eine zu lange Brennweite die Plasmabildung hemmen, die jedoch als integraler Bestandteil des gesamten Prozesses für eine lange Aufrechterhaltung des Filamentationszustandes verantwortlich ist (siehe [Gad06]). Im Unterkapitel zur Beugung und Fokussierung gaußförmiger Strahlen [2.3.1] wurde der Zusammenhang zwischen der Brennweite und dem kleinsten erreichbaren Strahldurchmesser diskutiert. Dieser Strahldurchmesser limitiert die Intensität und damit die Plasmabildung.

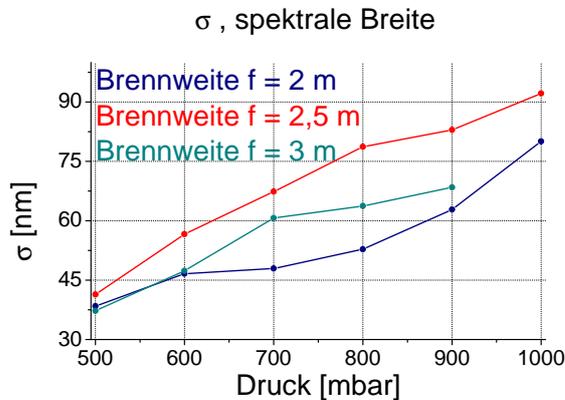


Abbildung 4.6.: Breite der spektralen Verteilung, berechnet für drei Messreihen mit unterschiedlichen fokussierenden Spiegeln.

In den Abbildungen 4.6 und 4.7 werden die aus 4.5 gemessenen Profile hinsichtlich der spektralen Standardabweichung σ bzw. der erreichbaren Impulsdauern $\Delta\tau$ analysiert. Aus den berechneten Werten für σ geht hervor, dass die Verwendung eines 2,5 m Spiegels eindeutig zu favorisieren ist, da bereits unter kleineren Drücken hohe spektrale Bandbreiten generiert werden. Dieses Ergebnis deutet auf ein hohes Gleichgewicht zwischen der Plasmadefokussierung und dem dazu konkurrierenden Kerrlinseneffekt hin.

Für die Berechnung der Impulsdauern wurden verschiedene Möglichkeiten zur

Modifizierung der Impulsphasenlage in Betracht gezogen. Das erste Teilbild 4.7 (a) zeigt zunächst das Fourierlimit der Spektren und damit die niedrigste erzielbare Impulsdauer. Hier wird wiederum deutlich, dass der 2,5 m Spiegel die besten Ergebnisse liefert. Für die Impulse mit der modifizierten spektralen Phase 4.7 (b) wurde das 2 mm dicke Austrittsfenster der Gaszelle und ein fast 7 m langer Luftweg berücksichtigt. Der Luftweg entspricht ungefähr der Strecke des Austrittsfensters bis zum Autokorrelator. Diese zusätzliche Dispersion sorgt für eine starke zeitliche Verbreiterung, die einen Faktor von nahezu 15 annehmen kann.

Die lineare Dispersion kann unter Zuhilfenahme von dispersiven Spiegeln (engl.: chirped mirrors) kompensiert werden. Um den Einfluss dieser Maßnahme auf die Impulse zu untersuchen, wurden in 4.7 (c) drei und in 4.7 (d) vier paarweise Reflektionen an den Spiegeln in die Phasenlage mit einbezogen. Die daraus berechneten Impulsdauern lassen darauf schließen, dass 3 Reflektionen an jedem Spiegel optimal

sind. Darüber hinaus zeigen beide Graphen, dass die Impulse, die mit dem 2,5 m Spiegel gemessen wurden, am stärksten komprimiert werden.

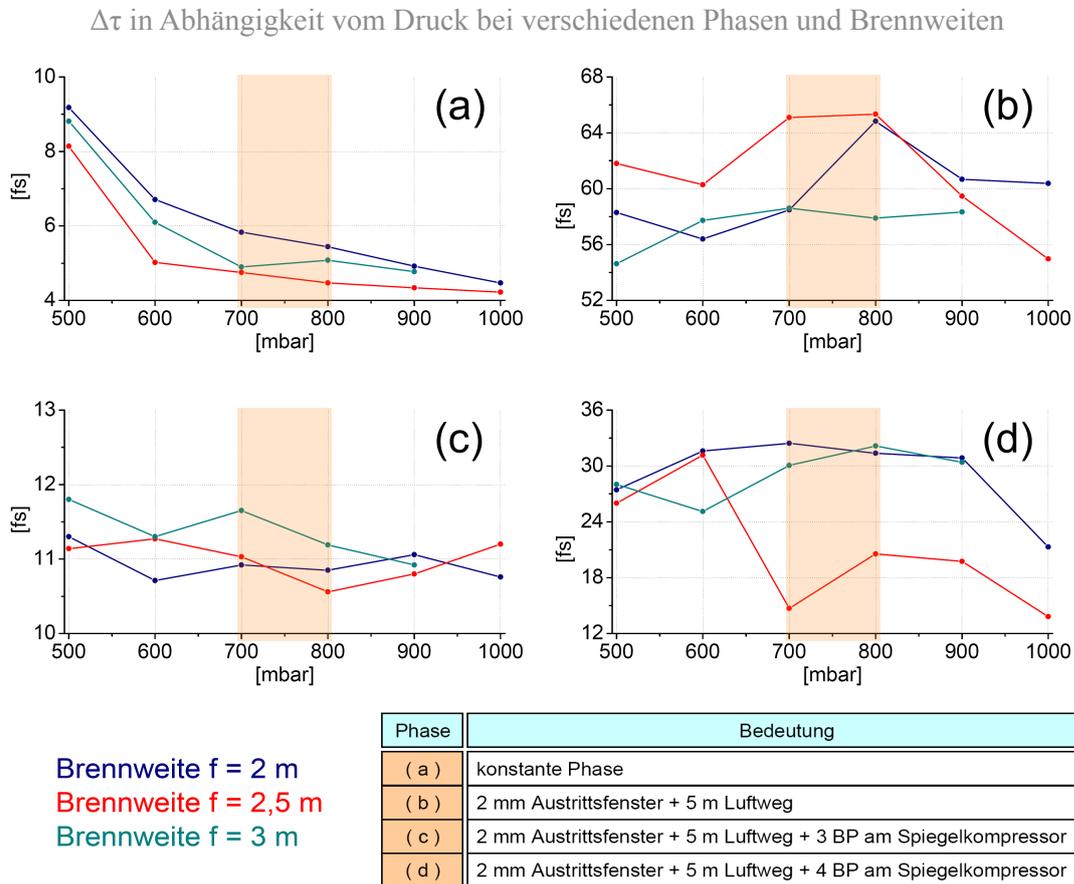


Abbildung 4.7.: Berechnete Impulsdauern aus den Spektren, die mit den Brennweiten 2 m, 2,5 m und 3 m aufgenommen wurden. Dabei wurden verschiedene Impulsphasen (a),(b),(c) und (d) analysiert, siehe Text.

Aufgrund der Messungen zur Druckabhängigkeit, die im vorangehenden Abschnitt diskutiert wurden, ist die Druckspanne zwischen 700 und 800 mbar durch einen gelben Balken besonders hervorgehoben. Zusätzlich wurde das zu berücksichtigende Spektralprofil der Impulse auf den Bereich zwischen 520 nm und 1000 nm eingeschränkt, für den die Impulskompression der dispersiven Spiegel ausgelegt ist. Um die Effekte der spektralen Phasen in Abbildung 4.7 (a), (b), (c) und (d) auf das zeitliche Profil der Impulse zu verdeutlichen, werden in Bild 4.8 repräsentative Einhüllenden gezeigt. Trotz der wirkungsvollen Impulskompression mit Hilfe der dispersiven Spiegel, entstehen kleinere Vorimpulse, die als Ergebnis von Dispersion höherer Ordnung identifiziert werden können.

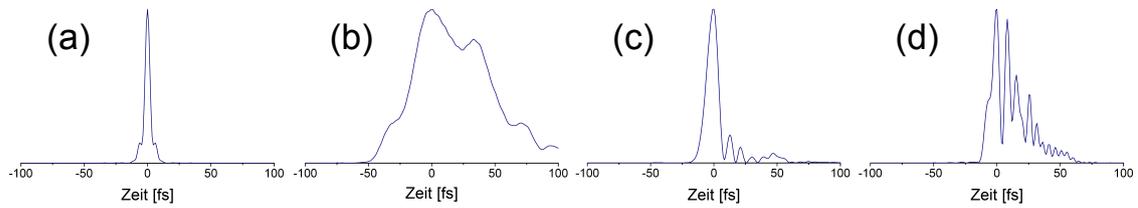


Abbildung 4.8.: Berechnete Impulsprofile eines bei 800 mbar mit dem 2,5 m fokussierenden Spiegel aufgenommenen Spektralprofils unter dem Einfluss der 4 verschiedenen spektralen Phasen (a), (b), (c) und (d) aus Abbildung 4.7.

4.1.3. Filamentation mit unterschiedlichen Gassorten

Filamentationsmessungen mit verschiedenen Gasen wurden bereits 2007 vorgenommen [Gad06], wobei damals die mit Abstand besten Resultate mit Argon erzielt wurden.

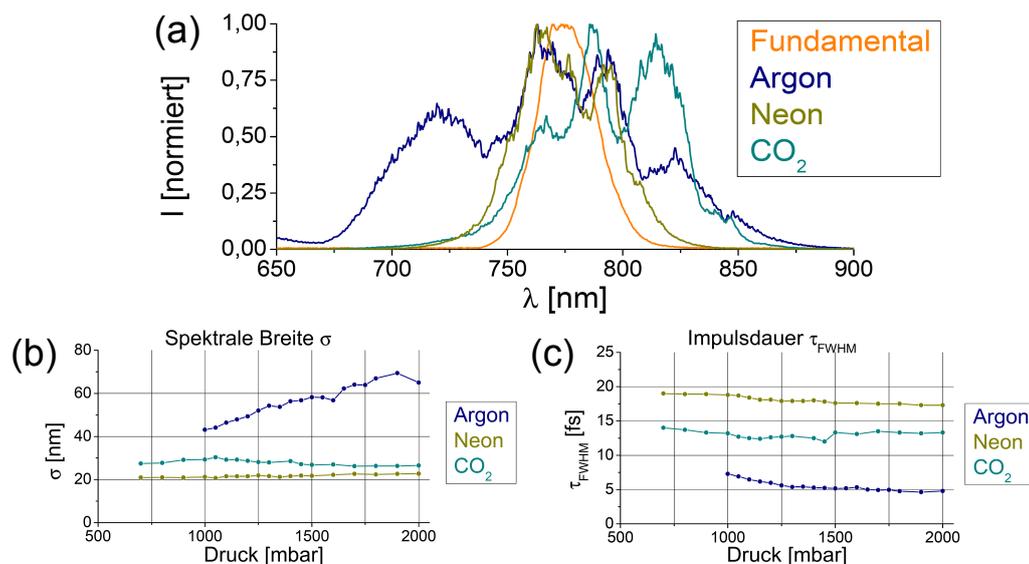


Abbildung 4.9.: (a) Spektren mit Argon, Neon und CO_2 . Dazu sind die spektrale Verbreiterung (b) in Form der Standardabweichung und die theoretisch erreichbare Impulsdauer (c) für einen weiten Gasdruckbereich angegeben. Zum Vergleich: Für das Fundamentalspektrum gilt: $\sigma = 9,3$ nm und $\tau_{FWHM} = 31,9$ fs.

Aufgrund der Verbesserungen an der Justage des Laserverstärkers wurden diese Messungen nun mit Neon und CO_2 wiederholt. Die Ergebnisse der Filamentation mit diesen beiden Gasen weisen im Vergleich zu Argon eine deutlich geringere spektrale Verbreiterung und eine höhere Impulsdauer auf. Das liegt daran, dass die dafür ver-

antwortliche „Selbstführung“ des Lasers in diesen Medien nicht optimal funktioniert. Die Selbstführung beruht auf dem Gleichgewicht der verschiedenen konkurrierenden Effekte, welche wiederum durch die Eigenschaften des Gases determiniert sind. Beispielsweise hängt die Selbstfokussierung vom Brechungsindex des Mediums und die Plasmabildung von der Ionisationsenergie der Gasteilchen ab. Ein Grund für die schlechten Resultate mit Neon und CO_2 liegt darin, dass diese Gase andere Werte für den Brechungsindex und die Ionisationsenergie aufweisen. Die im Experiment aktuell eingestellten Laserparameter, wie beispielsweise der Bündeldurchmesser und die Brennweite, könnten aus diesem Grund für die spektrale Verbreiterung mittels Filamentation in Neon und CO_2 ungeeignet sein. Systematische Untersuchungen und Verbesserungsversuche hierzu konnten im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr durchgeführt werden.

In Abbildung 4.9 sind die Ergebnisse noch einmal zusammengefasst. Während Neon sich für eine Filamentation in jeglicher Hinsicht als ungeeignet erweist, scheint für CO_2 zumindest die Verbreiterung in den infraroten Bereich des Spektrums sehr effektiv zu sein. Interessant ist auch die Tatsache, dass für beide Gase eine nur geringe Druckabhängigkeit vorliegt.

4.1.4. Einfluss der Laserjustage auf die Filamentation

Im Laufe der experimentellen Arbeit hat sich gezeigt, dass die Qualität der Justage der Laserverstärkung entscheidend für den Betrieb des Filamentationssystems ist. In diesem Zusammenhang konnten unter anderem Fehler, die zu einem Astigmatismus und einer räumlichen Dispersion (engl.: spatial chirp) führten, korrigiert werden.

In Abbildung 4.10 sind einige spektrale Profile dargestellt, die den Status der Filamentation repräsentativ wiedergeben und den Einfluss der Korrekturmaßnahmen verdeutlichen. So zeigt ein Vergleich der spektralen Profile in blau und in grün zwar keine fundamentalen Unterschiede, jedoch treten ausgeprägtere spektrale Ausläufer zu sowohl niedrigeren wie auch höheren Wellenlängen in der astigmatismusfreien Kurve (grün) hervor. Das durch den Astigmatismus verursachte Auftreten zweier Fokalfunkte führt dazu, dass unterschiedliche räumliche Anteile des Impulses an verschiedenen axialen Positionen an dem Filamentationsvorgang teilnehmen. Die nichtlinearen Prozesse werden somit nicht von der gesamten Impulsfront hervorgerufen und treten daher geschwächt auf. Dies kann unter Umständen zu einer multiplen Filamentbildung [Mec04] oder zu einem großen Restanteil an infraroter Strahlung führen.

Ein großer Fortschritt im Hinblick auf die spektrale Verbreiterung konnte durch die Beseitigung des räumlichen chirps erreicht werden (rote Kurve). In einem solchen Strahl propagieren die Frequenzanteile räumlich in einer zur Propagationsrichtung senkrechten Achse leicht getrennt [Gu04]. Durch Optimierung der Parallelität der im Verstärker eingebauten Kompressorgitter, konnte dieser Fehler behoben werden. Ein Vergleich der Spektralprofile zeigt sofort die enorme Wirkung dieser Korrek-

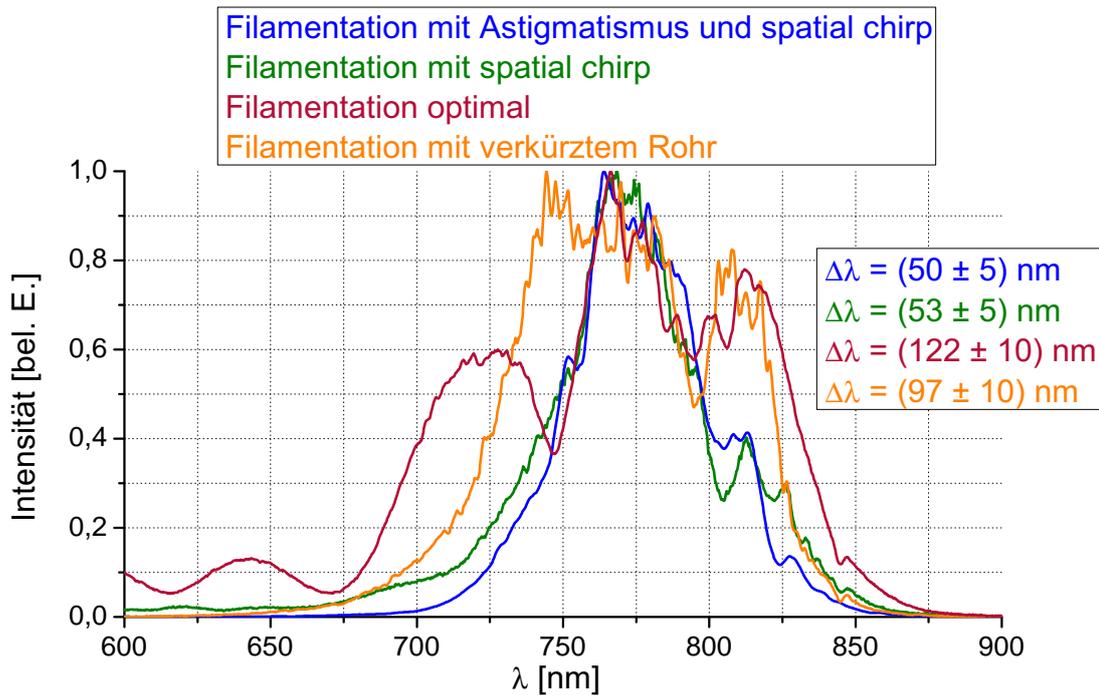


Abbildung 4.10.: Dargestellt sind 4 Filamentationsspektren nach Justage- und Umbauveränderungen.

tur. Einerseits konnte der Druckbereich, unter dem die Filamentation stabil lief, um mehr als 1000 mbar gesenkt werden. Zum anderen ist die Energieumverteilung auf höhere und niedrigere Frequenzen deutlich effektiver mit dem Ergebnis einer breiteren spektralen Verteilung. Die orangefarbene Kurve in Abbildung 4.10 zeigt das spektrale Profil, das nach einer Umbaumaßnahme am Filamentationsrohr aufgenommen wurde. Das Rohr wurde dabei um 20 cm verkürzt, wodurch sich eine geringere spektrale Breite ausbilden konnte. Dies lässt sich am wahrscheinlichsten auf die geringere Wechselwirkungslänge zwischen den Laserimpulsen und dem Gas zurückführen.

In Tabelle 4.11 sind neben den Drücken und den spektralen Breiten der jeweiligen Messungen auch die zu erwartenden Impulsdauern angegeben. Dabei wurde in der ersten Spalte das Fourierlimit in Bezug auf die gesamte Frequenzverteilung berechnet. Die hinteren beiden Spalten berücksichtigen nur das spektrale Verteilungsprofil innerhalb eines spezifischen Wellenlängenintervalls. Das erste Wellenlängenintervall wurde im Hinblick auf die dispersiven Spiegel im Kompressoraufbau gewählt, deren relevanter Wellenlängenbereich zwischen 520 nm und 1000 nm liegt. Für das zweite Intervall wurde der Wellenlängenbereich noch weiter eingegrenzt (680 - 880 nm), um die Profile ohne ihre spektralen Ausläufer untersuchen zu können. Ein Vergleich der 3 Spalten zu τ_{FWHM} zeigt eindeutig, wie wichtig diese spektralen Aus-

Experiment	Druck [mbar]	$\Delta\lambda$ [nm]	τ_{FWHM} [fs] (0 - 1200) nm	τ_{FWHM} [fs] (520 - 1000) nm	τ_{FWHM} [fs] (680 - 880) nm
Filamentation mit Astigmatismus und spatial chirp	1990	50 ± 5	13,9	13,9	13,9
Filamentation mit spatial chirp	1822	53 ± 5	5,8	6,2	12
Filamentation optimal	750	122 ± 10	3,3	4,6	10,5
Filamentation mit verkürztem Rohr	950	97 ± 10	9,6	9,7	11,8

Abbildung 4.11.: Ergebnistabelle zu Abbildung 4.10. Berechnet sind die Impulsdauern als Fourierlimit unter der Berücksichtigung verschiedener Wellenlängenbereiche.

läufer für die Erzeugung ultrakurzer Lichtimpulse sind. So weisen die berechneten Impulsdauern Werte auf, die um mehr als einen Faktor 2 voneinander abweichen können.

4.2. Messungen zur Autokorrelation

Dieser Abschnitt befasst sich mit den Autokorrelationsmessungen der Impulse aus dem Oszillator- und dem Verstärkersystem sowie aus der Filamentation. Neben der Untersuchung der Eigenschaften des Autokorrelators, geht es vor allem um die erstmalige Charakterisierung der Filamentationsimpulse.

4.2.1. Autokorrelationsmessungen der Oszillatorimpulse

Der Oszillator dient der Generierung kurzer, phasenstabiler Lichtimpulse im Bereich von 18 fs, die in einem nachgeschalteten Verstärkersystem auf hohe Einzelimpulsenergien im mJ Bereich gebracht werden. Aufgrund ihrer hohen Repetitionsrate (80 MHz) können hier einfache und schnelle Autokorrelationsmessungen durchgeführt werden. Daher sind die folgenden Messungen in erster Linie als Tests der Autokorrelation zu betrachten.

Messungen zur Kompression der Oszillatorimpulse

Angesichts der im Oszillator eingebauten dispersiven, optischen Bauteile und insbesondere des Prismenpaares sind die emittierten Impulse nicht notwendigerweise vollständig komprimiert, [Inc05]. Diese Verbreiterung, die der Dispersion 2. Ordnung zugrunde liegt, kann durch einen nachgeschalteten Impulskompressor, der ähnlich wie der Filamentationskompressor aufgebaut ist, kompensiert werden. Allerdings lassen sich infolge des kleineren Durchmessers des Laserstrahls aus dem Oszillator

bis zu 7 Reflektionspaare (bzw. Bounce Pairs oder BP) an den beiden Spiegeln einstellen.

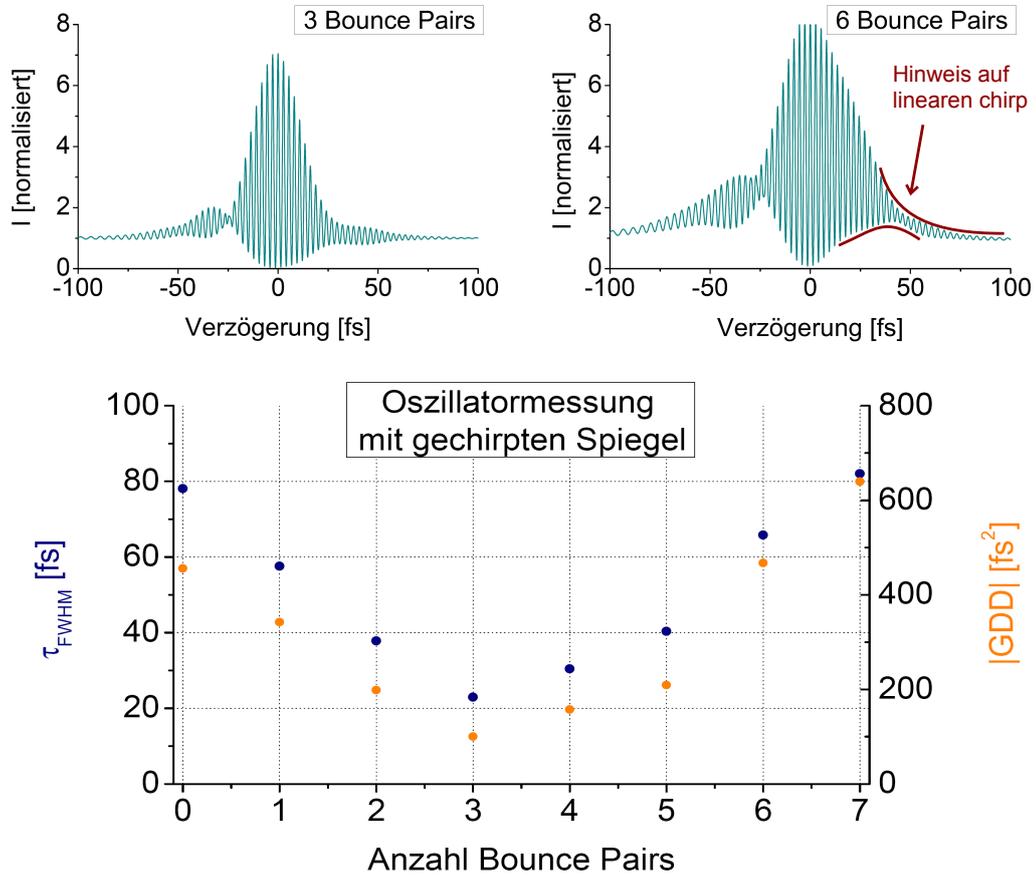


Abbildung 4.12.: Oben: Darstellung der Autokorrelation bei 3 und 6 BP. Unten: Verteilungen der aus den Signalen berechneten Impulsdauern sowie der GDD-Beträge in Abhängigkeit der eingestellten BP. Die angepassten Daten weisen bei 3 BP den kleinsten chirp auf.

In dem folgenden Experiment wurde für jede Reflektionspaaranzahl zwischen 0 und 7 ein Autokorrelationssignal aufgenommen und analysiert. Obwohl sich der Autokorrelator zum Zeitpunkt der Messungen noch im Aufbau befand und das Signal ein gewisses Maß an Asymmetrie aufwies, konnten qualitative Aussagen bezüglich der optimalen Anzahl an Reflektionen getroffen werden. In Abbildung 4.12 sind zwei repräsentative Messungen bei 3 und 6 Bounce Pairs dargestellt. Die Asymmetrie im Signal, die sich auf die Verwendung eines einzigen Strahlteilers zurückführen lässt, tritt dabei deutlich hervor. Prinzipiell kann das Interferometer im Autokorrelator zwar mit nur einem Strahlteiler umgesetzt werden, die optimale und kollineare Überlagerung der Teilstrahlen ist jedoch wesentlich schwieriger. Trotz der schlechten

Justage ist die zeitliche Verbreiterung der Impulse durch die „Überkompensation“ bei 6 Reflektionen gut erkennbar.

Die ermittelten Werte für die Impulsdauer und der Beträge der GDD enthalten wegen der Messschwierigkeiten ein gewisses Maß an Unsicherheit, was sich beispielsweise in einer nicht vollständig symmetrischen Anordnung der Messpunkte und geringfügig zu hohen GDD-Werten widerspiegelt. Dennoch zeigt die Verteilung der Meßpunkte, dass die Einstellung von 3 BP zu den kürzesten Impulsen und den kleinsten Dispersionswerten führt. Um allerdings die Messung bestmöglich zu verifizieren, wurden die Daten symmetrisiert und erneut analysiert. Die symmetrisierte Messreihe wich zwar etwas von der asymmetrischen ab, gab allerdings den selben qualitativen Verlauf wieder.

Charakterisierung der Oszillatorimpulse

In diesem Abschnitt werden einige konkrete Messungen und Analysen zu den Oszillatorimpulsen vorgestellt. Die hohe Repetitionsrate von 80 MHz sorgt für ein instantanes und von der Interferometerstabilität weitgehend unabhängiges Signal, welches daher hervorragend dazu verwendet werden kann, die Justage des Autokorrelators zu überprüfen oder die Auswertungssoftware auf Fehler zu testen.

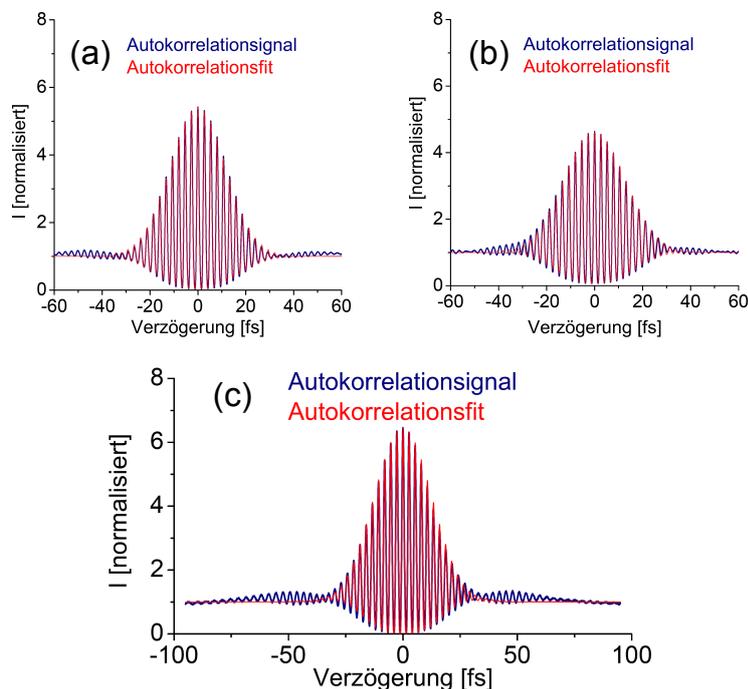


Abbildung 4.13.: Drei Autokorrelationssignale der Oszillatorimpulse. Die Ergebnisse zu (a), (b) und (c) sind in Abbildung 4.14 tabelliert und werden im Text beschrieben.

Abbildung 4.13 zeigt hierzu stellvertretend drei Autokorrelationssignale. Anhand des symmetrischen Verlaufs der Graphen kann man erkennen, dass die Justage nun keinerlei Fehler mehr aufweist. Anhand der Messkurven soll untersucht werden, ob aus der Analyse nachvollziehbare Werte für τ_{FWHM} resultieren. In der zugehörigen Tabelle 4.14 sind die Ergebnisse aus der Datenanpassung mit (1. Spalte) und ohne (2. bis 4. Spalte) Berücksichtigung des chirp-Parameters aufgelistet. Die Impulse in 4.13 (a) und (b) wurden mit der selben spektralen Breite, die zwischen 62 und 65 nm lag, generiert. Für die Messung in Abbildung 4.13 (b) wurde darüber hinaus eine 2,5 mm dünne Glasplatte senkrecht in den Strahlengang gestellt, um eine künstliche Dispersion zu erzeugen. Ein Vergleich der beiden Graphen vermittelt auch sofort den Eindruck einer zeitlichen Verbreiterung. Für Graph (a) konnte eine Impulsdauer von 17,7 fs errechnet werden. In Anbetracht der spektralen Breite von ca. 62 nm, mit der ein bandbreitenbegrenzter Gaußimpuls über eine Dauer von ca. 16,5 fs verfügt, spiegelt dieser Wert ein sehr realistisches Ergebnis wieder. Das 2,5 mm dicke Glas sorgt immerhin für einen GDD-Wert von 90 fs² und würde somit einen ursprünglich 16 fs Impuls auf 23 fs verbreitern. Insofern konnten auch in diesem Beispiel (Tabelle 4.14 (b)) nachvollziehbare Resultate erzielt werden.

	Autokorrelation mit einer ...	Autokorrelation ohne chirp	Autokorrelation mit chirp		
		τ_{FWHM} [fs]	$\tau_{nach\ chirp}$ [fs]	$\tau_{vor\ chirp}$ [fs]	GDD [fs ²]
(a)	spektralen Breite zwischen 62 - 65 nm	17,7	17,8	17,7	- 12
(b)	spektralen Breite zwischen 62 - 65 nm und 2,5 mm Glas	19,5	22,9	16,2	94
(c)	spektralen Breite zwischen 59 - 62 nm	19,0	20,2	16,8	68

Abbildung 4.14.: Ergebnistabelle zu Abbildung 4.13. Die Datenanpassung wurde jeweils ohne und mit Berücksichtigung des linearen chirp-Parameters vorgenommen.

Abbildung 4.13 (c) stellt das Ergebnis einer sehr frühen, erfolgreichen Messung dar, bei der allerdings mit einer geringeren spektralen Bandbreite gearbeitet wurde. Dementsprechend besitzt die Impulsdauer (20,2 fs) einen höheren Wert als in (a). Die größere Breite könnte allerdings auch auf eine zu geringe Dispersions- Kompensation zurückgeführt werden, wie aus dem ermittelten Wert der GDD hervor geht.

4.2.2. Autokorrelationsmessungen der Verstärkerimpulse

Nach den zuvor beschriebenen, ausführlichen Testmessungen des Autokorrelators mit Hilfe des Oszillators wurden dann die eigentlich interessanten, verstärkten Impulse charakterisiert. Diese werden, wie bereits beschrieben, mit einer Einzelimpulsenergie von über 1 mJ und einer Repetitionsrate von 8000 Hz erzeugt.

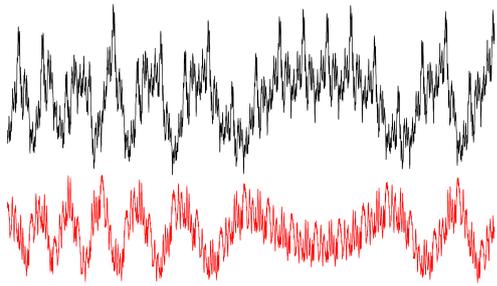


Abbildung 4.15.: Das schwarze und das rote Signal repräsentieren jeweils eine Messung ohne und mit Schalldämpfer.

Wie ebenfalls dargelegt wurde, muss für ein auswertbares Autokorrelationssignal eine Mittelung über mehrere Sekunden bis Minuten vorgenommen werden (siehe Kapitel 3.3.3 zur akustischen Isolierung). Die Stabilität der Optik, insbesondere des Lautsprechers und der Pellicles über diese Zeitspanne hinweg ist eine wichtige Bedingung. Daher wird in diesem Abschnitt vor der eigentlichen Impulscharakterisierung auf die Signalunterschiede mit und ohne eingebautem Schalldämpfer am Eingang des Autokorrelators eingegangen. Ein kleiner Teil des jeweiligen Au-

tokorrelationssignals ist in Abbildung 4.15 gezeigt. Zwar enthalten beide Linien einen gewissen Rauschanteil, dennoch lässt sich eindeutig erkennen, dass dieser unter Verwendung des Schalldämpfers kleiner ist. Insgesamt wurden 4 Signale untersucht:

- Ohne Schalldämpfer
- Mit Schalldämpfer und großem Öffnungsdurchmesser
- Mit Schalldämpfer und kleinem Öffnungsdurchmesser
- Mit einem 2 mm dicken Fenster.

Um das Signal-Rausch-Verhältnis angeben zu können, ist die Kenntnis einer für alle vier Messungen gültigen Referenzkurve erforderlich. Da es aufgrund jeweils unterschiedlicher Messbedingungen eine solche Kurve nicht gibt, ist ein quantitativer Vergleich nicht möglich. Der optische Eindruck hingegen zeigt, dass die Verwendung des Schalldämpfers mit einer kleinen Öffnung beinahe so gut gegen äußere akustische Störungen isoliert, wie ein 2 mm dickes Fenster.

Für die Impulscharakterisierung durch den Autokorrelator reicht im Fall des Verstärkers wegen der wesentlich höheren Einzelimpulsenergien eine geringe Lichtleistung im Bereich von ca. 10 - 80 mW aus. Um einen entsprechenden Beitrag aus dem Verstärker zu entkoppeln, wird ein HR Spiegel verwendet. Dieser ist transmissiv für etwa 0,4 % der Laserleistung, die direkt für die Analyse per Autokorrelation genutzt wird. Nachteil dieser Methode ist die zusätzliche Dispersion, die wegen der Transmission durch den Spiegel hervorgerufen wird. Da dieser ca. 9 mm dick ist und in einem 45° Winkel steht, müssen die Impulse eine Strecke von 13 mm im Glassubstrat des Spiegels zurücklegen. Rechnungen zufolge resultiert daraus für den Dispersionsparameter 2. Ordnung ein extrem hoher Wert von 568 fs^2 , der durch eine Vorkompensation nur zur Hälfte ausgeglichen werden kann.

Dem Fundamentalspektrum zufolge liegt das zeitliche Fourierlimit der Impulse aus dem Verstärker bei $31,9 \text{ fs}$. Die Messung dieser Impulse ergibt allerdings einen

deutlich niedrigeren Wert von ca. 22 fs. Die Ursache für diese Diskrepanz ist gegenwärtig noch nicht vollständig geklärt, liegt aber vermutlich an der Dispersion 3. Ordnung, die durch die Transmission durch den Auskoppelspiegel ebenfalls hervorgerufen wird. Darauf lassen auch die Vorimpulsstrukturen schließen, die in der Autokorrelation in Abbildung 4.17 zu erkennen sind.

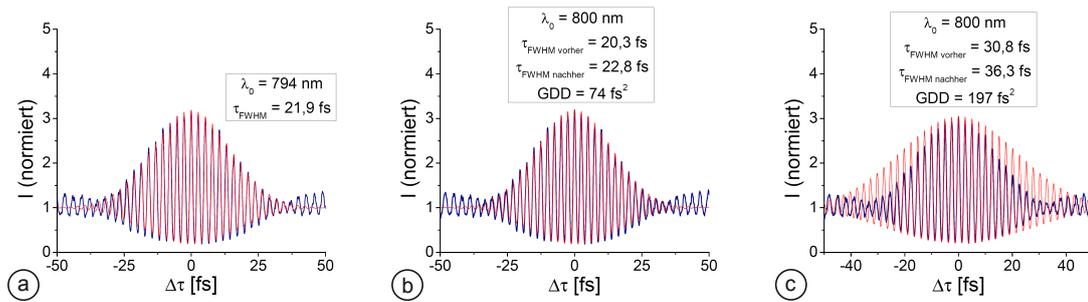


Abbildung 4.16.: Darstellung von 3 unterschiedlichen Versuchen, ein bestimmtes Signal optimal anzufitten. Die rote Linie stellt dabei den Fit dar, während die blaue Linie das gemessene Signal zeigt.

Die Ergebnisse zur Datenanalyse sind in Abbildung 4.16 zusammengefasst. Die oberen beiden Teilbilder (a) und (b) zeigen die jeweils besten Anpassungen an die Daten ohne bzw. mit Berücksichtigung des linearen chirps. Auffällig hierbei ist die bereits angesprochene kleine Impulsdauer. In Teilbild 4.16 (c) wurden die Daten mit konstanten und realistischeren Werten für die Impulsdauer und den chirp simuliert, doch man erkennt sofort, dass die Abweichungen relativ groß sind.

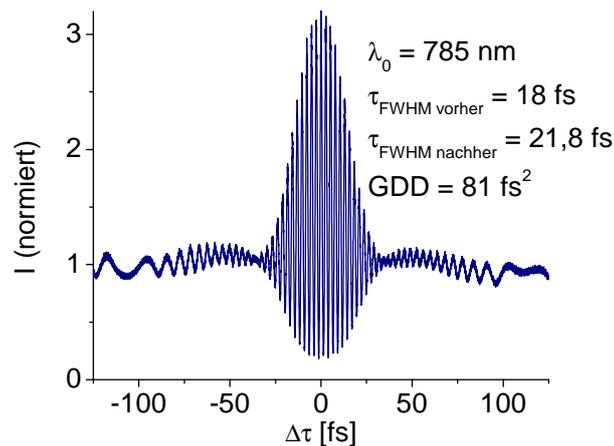


Abbildung 4.17.: Darstellung eines Verstärkerimpulssignals ohne die rote Datenanpassungslinie. Die „Flügelstrukturen“ treten deutlich hervor und weisen auf eine Dispersion 3. Ordnung hin.

Um sicherzustellen, dass die in der Auswertung verwendeten Formeln sowie die Zeitachsenkalibrierung korrekt eingesetzt und durchgeführt wurden, kann ein qualitatives Verfahren herangezogen werden. Dabei erhält man die Impulsdauer näherungsweise durch die Multiplikation der Anzahl der Maxima oberhalb der Signalthalbierten der Autokorrelation mit der Periodendauer ($T = 2\pi/\omega_0$) und einem Entfaltungsfaktor $1/\sqrt{2}$. Dieser auf Abschätzung beruhende Wert der Impulsdauer stimmt jedoch qualitativ mit den Resultaten aus der Datenanpassung überein, was somit als Indiz für eine fehlerfreie Analyse betrachtet werden kann.

4.2.3. Autokorrelationsmessungen der Filamentationsimpulse

Eine Schwierigkeit bei der Charakterisierung der Impulse aus der Filamentationseinheit folgt aus dem relativ großen Abstand zwischen dem Impulskompressor und dem Autokorrelator. Die lineare Dispersion durch Luft ist zwar relativ gering, kann auf ultrakurze Lichtimpulse jedoch bereits verheerende Wirkungen haben. In den folgenden Messreihen geht es vor allem darum, qualitative Aussagen über das zeitliche Impulsprofil zu treffen und die Impulsdauer in Abhängigkeit verschiedener Parameter zu ermitteln.

Abhängigkeit der Autokorrelation von der Anzahl der Reflektionspaare

In dieser Messreihe wurde der Druck in der Filamentationseinheit auf einen Wert von 1050 mbar eingestellt, wodurch eine bestmögliche spektrale Verbreiterung und eine optimale Stabilität des Laserstrahls gewährleistet werden konnte. Unter diesen Voraussetzungen wurden sowohl das Autokorrelationssignal wie auch das gemessene spektrale Profil in Abhängigkeit der am Kompressor eingerichteten Bounce Pair-Anzahl untersucht. Die Abbildung 4.18 zeigt den Autokorrelationsverlauf und die spektrale Verteilung zu 3, 4 und 5 Reflektionspaaren. Auffällig sind die relativ geringen Unterschiede im zeitlichen Verlauf der Autokorrelation. Vor allem der zentrale Teil des Signals demonstriert eine gewisse Robustheit gegenüber der Dispersionskompensation.

In allen drei betrachteten Fällen treten zwei bis drei Vorimpulse auf, die durch die „Knoten“ und „Flügel“ im Signal identifiziert werden können. Dennoch zeigt sich, dass für 3 Bounce Pairs das Intensitätsverhältnis aus dem zentralen Teil des Signals und den Flügeln am größten ist.

Eine berechnete Datenanpassung belegt zudem, dass die Impulsdauer des zentralen Signalanteils im Bereich zwischen 5 und 7 fs liegt. Trotzdem sollten aus diesen Angaben keine voreiligen Schlüsse gezogen werden. Bindet man beispielsweise einen größeren Signalanteil in den Analysevorgang ein, so kann wegen der Krümmung der Untergrundlinie ein linearer chirp identifiziert werden, der bis zu 30 fs² aufweisen kann. Mit einer solchen Dispersion geht eine zeitliche Impulsverbreiterung um 10 fs einher. Die Spektralprofile erfahren durch Variation der Bounce Pairs erwartungs-

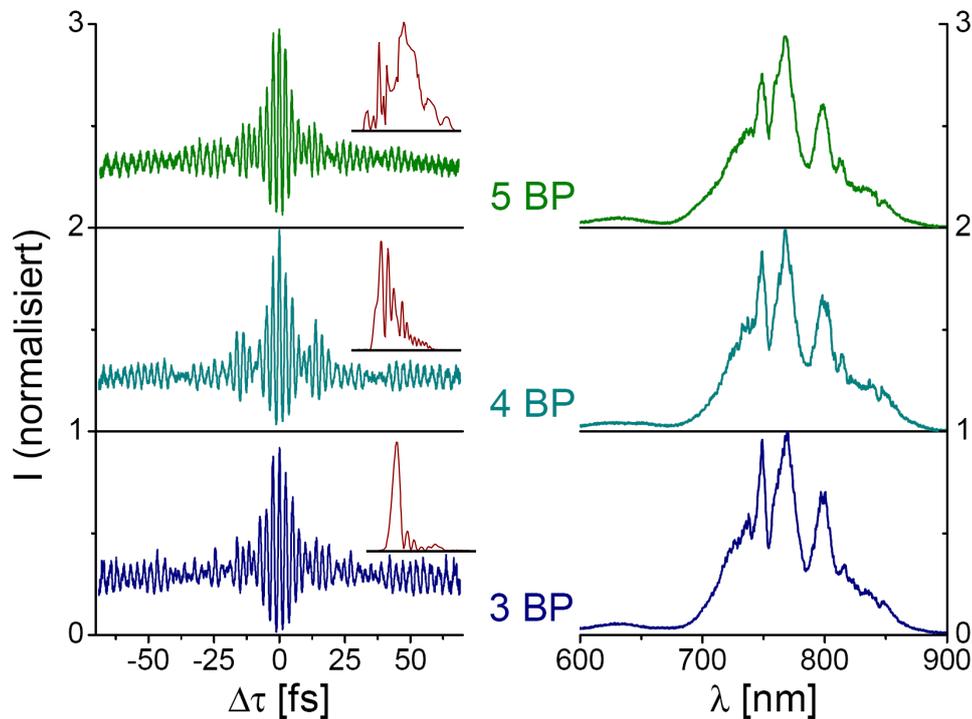


Abbildung 4.18.: Autokorrelation (links) und Spektralprofil (rechts) für 3,4 und 5 Bounce Pairs. In roter Farbe sind die berechneten Impulsformen skizziert.

gemäß nur geringfügige Veränderungen. Insgesamt zeigen die Messungen eindeutig, dass durch die Technik der Filamentation ultrakurze Impulse erzeugt werden können. Um mehr Information über die Phasenlage der Impulse zu erhalten, sollten jedoch weitere Charakterisierungstechniken hinzugezogen werden.

Druckabhängigkeit der Filamentation und Einfluss auf die Autokorrelation

Einige interessante Konsequenzen für die Autokorrelation resultieren auch aus der Druckabhängigkeit des Filamentationsspektrums. In Abbildung 4.19 sind hierzu normierte Autokorrelationen und Spektren für Druckwerte zwischen 700 und 1300 mbar in der Filamentationszelle dargestellt. Für die abgebildeten Daten wurde der Impulskompressor so eingestellt, dass der Strahl jeweils drei Reflektionen pro Spiegel durchlief. Zu einem bemerkenswerten Befund kommt man bei der Analyse der ausgebildeten Vor- und Nachimpulsstrukturen. So sind diese bei einem Druck von 700 mbar noch deutlich zu erkennen, bilden sich jedoch mit zunehmenden Druck zurück. Gleichzeitig kommt es zu einer Abnahme der Dauer des zentralen Impulses mit einem Minimum bei einem Druckwert von 1000 mbar.

Für die Einstellung von 4 und 5 Bounce Pairs ergeben sich etwas veränderte Zu-

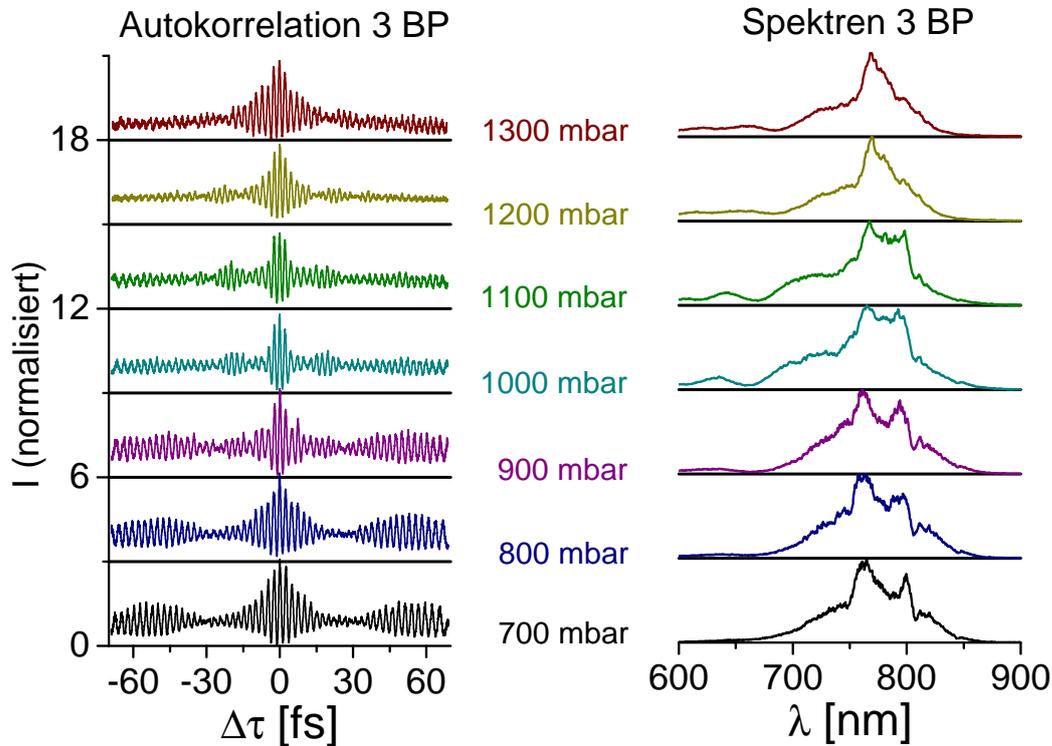


Abbildung 4.19.: Exemplarisch ist für 3 Bounce Pairs die Entwicklung des Autokorrelationsignals in Abhängigkeit vom Druck in der Filamentationszelle dargestellt. Die zugehörige spektrale Verteilung befindet sich auf der rechten Seite.

sammenhänge. Da die Vor- bzw. Nachimpulse nicht mehr vollständig verschwinden, kann die theoretische Vorhersage, dass das Optimum mit 3 Bounce Pairs erzielt wird, bestätigt werden. Erstaunlich ist auch die Tatsache, dass die Auswertung des zentralen Bereichs der Autokorrelation in allen 3 Einstellungen und innerhalb eines großen Druckbereiches zu einer sehr kleinen Impulsdauer führt. Dies steht ein wenig im Widerspruch zu den theoretischen Berechnungen, die sich aus der Betrachtung der Filamentationsspektren und der Phasen ergeben. Allerdings wurden die verwendeten Phasenkurven der dispersiven Spiegel vom Hersteller berechnet und nicht vermessen, wodurch sich diese Diskrepanz teilweise erklären lässt. Dennoch stimmen die experimentellen und theoretischen Impulsprofile zumindest qualitativ überein (siehe auch Abbildung 4.8 (c) und (d), für 3 BP bzw. 4 BP). In den Diagrammen 4.20 sind die Ergebnisse nochmals zusammengefasst. Im linken Teilbild sind die aus der Autokorrelation und der Theorie ermittelten Impulsdauern dargestellt. Allerdings konzentriert sich die Berechnung wiederum hauptsächlich auf den zentralen Anteil des Signals. Der Vollständigkeit halber sind im rechten Graphen die Verbrei-

terung des Spektralprofils in Abhängigkeit vom Druck und der eingestellten BP Zahl veranschaulicht. Dabei fällt auf, dass $\sigma(\lambda)$ mit zunehmender BP Anzahl abnimmt.

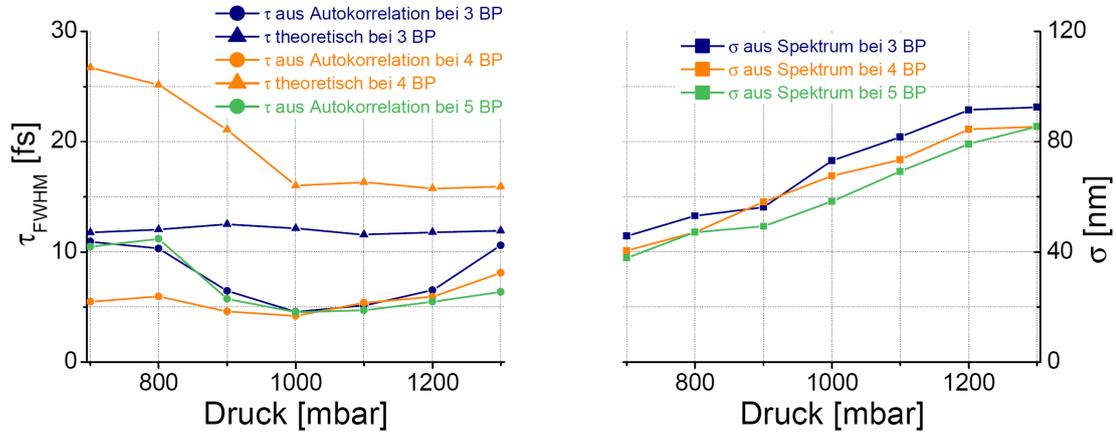


Abbildung 4.20.: Links: Darstellung der Impulsdauern für 3, 4 und 5 BP in Abhängigkeit vom Druck in der Filamentationszelle. Rechts: Abbildung der Standardabweichung der zugehörigen spektralen Verteilung.

Autokorrelationsfit der Filamentationsimpulse

In dieser abschließenden Analyse sollen noch einzelne Autokorrelationsdaten aus den Filamentationsexperimenten auf die Impulsdauern untersucht werden. In den zugehörigen Messungen wurde die Spannung am Lautsprecher auf 1 V herabgesetzt, wodurch die Entstehung eines sehr stabilen Signals vom zentralen Bereich der Autokorrelation gewährleistet werden konnte. Dieses Signal wurde für 3, 4 und 5 paarweise Reflektionen an den dispersiven Spiegeln aufgenommen und durch Simulationen angepasst. Zusätzlich wurde über die Einstellung des Druckes in der Filamentationszelle auf ein möglichst kurzes Autokorrelationssignal hin optimiert. Die gefitteten Daten hierzu sind in Abbildung 4.21 dargestellt.

Ein Vergleich der gemessenen Daten zeigt darüber hinaus, dass alle 3 Kompressor-einstellungen zu Impulsen mit sehr kurzen zeitlichen Strukturen im Signalzentrum führen können. Vor- und Nachimpulse haben bei der Generierung einzelner Attosekundenimpulse mittels der Methode des „Polarisation Gating“ geringe Auswirkungen und sind folglich nicht allzu kritisch hinsichtlich der geplanten Experimente. Allerdings gilt dies nur, solange das Intensitätsverhältnis zwischen den Haupt- und Nebenimpulsen groß genug ist.

Eine besonders auffällige Autokorrelationsmessung mit einer Impulsdauer von 4,1 fs wurde bei 3 Bounce Pairs aufgenommen. Dennoch sollte auch an dieser Stelle betont werden, dass bei der Analyse nur der zentrale Teil des Signals berücksichtigt und die Tatsache außer Acht gelassen wurde, dass es sich um komplizierte zeitliche

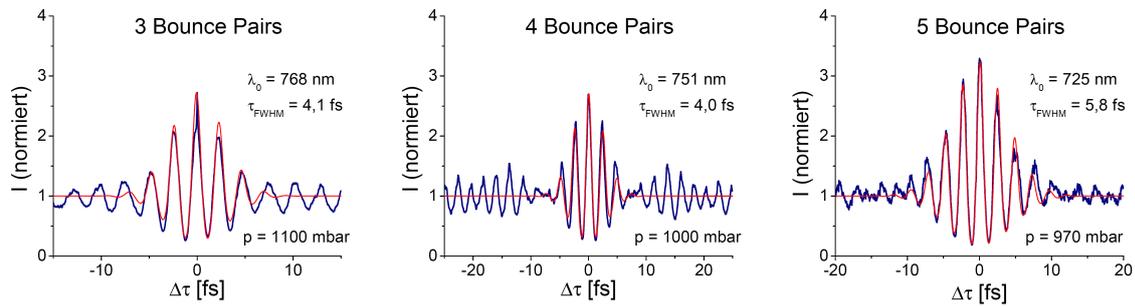


Abbildung 4.21.: Auswertung des zentralen Signalanteils bei 3, 4 und 5 Bounce Pairs. Die blaue Linie zeigt die gemessenen Daten, die rote den Fit.

Intensitätsverteilungen handelt. Zudem hat die Dispersion 3. Ordnung für ultrakurze Lichtimpulse im Bereich unterhalb von 10 fs eine hohe Relevanz. Diese kann zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht in die Simulation integriert werden.

Für zukünftige Experimente wird es wichtig sein, ein möglichst großes Intensitätsverhältnis zwischen den Haupt- und Nebenimpulsen unter Beibehaltung des zeitlichen Profils einzustellen.

5. Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschreibt Messungen zur Erzeugung und Charakterisierung von ultrakurzen Lichtimpulsen im Bereich weniger Femtosekunden. Sie findet im Rahmen eines Projektes statt, bei dem solch kurze Lichtimpulse zur Generierung Hoher Harmonischer Strahlung eingesetzt werden. Ein wesentliches Merkmal dieser Strahlung betrifft deren Emission in Form von Attosekundenimpulszügen. Durch die Kombination dieser Technik mit einem sog. Reaktionsmikroskop, können pump-probe Experimente zur Untersuchung schneller mikroskopischer Prozesse realisiert werden. Ein Vorteil der Reaktionsmikroskope liegt in der vollständigen Erfassung der Energien und Flugzeiten aller beteiligten Teilchen, so dass die betrachteten Reaktionsprozesse rekonstruiert werden können. Dabei geht es vor allem um die Erforschung der Wechselwirkung von starken elektromagnetischen Feldern mit Atomen und Molekülen. Insbesondere sollen der Entstehungsprozess und das Aufbrechen chemischer Bindungen untersucht werden mit speziellen Augenmerk auf die in Rechnungen meist vernachlässigte Kopplung zwischen elektrostatischer Dynamik und der Bewegung der Kerne. Da sich die Elektrodynamik auf einer typischen Zeitskala von weniger als einer Femtosekunde abspielt, sind die Anforderungen an das Lichtfeld entsprechend hoch.

Um Attosekundenimpulse effektiv zu erzeugen, muss vorab sichergestellt werden, dass die Fundamentalimpulse nur wenige optische Wellenzyklen, hohe Einzelimpulsenergien sowie eine Phasenstabilität aufweisen. Ein Ansatz, mit dem die ersten beiden genannten Aspekte erfüllt werden können, ist die Methode der sog. Filamentation. Durch die Wechselwirkung fokussierter Laserstrahlung mit Argongas wird ein komplexes Zusammenspiel vieler nichtlinearer Effekte hervorgerufen, welches letztlich zur Verbreiterung des spektralen Profils der Lichtimpulse führt. Ausgehend vom Fourierlimit ist die entscheidende Konsequenz der spektralen Verbreiterung eine Komprimierbarkeit der Impulsdauer zu entsprechend kleineren Werten.

Diese noch sehr junge und bisher wenig erprobte Methode der Filamentation offenbart einige Vorteile gegenüber dem eher geläufigen Prinzip der Impulsverkürzung mittels einer gasgefüllten Glaskapillare. So ist man wegen der Zerstörungsschwelle der Kapillare darauf bedacht, die Einzelimpulsenergien klein zu halten. Ein weiterer Nachteil ist mit dem recht kritischen Aufbau und der schwierigen Justage verbunden, die sich unter anderem in einem sehr kleinen Akzeptanzwinkel bei der Lasereinkopplung in die Kapillare zeigt. Darüber hinaus muss die Kapillare exakt

auf einer geraden Linie ausgerichtet sein, damit der Laser optimal durch sie hindurchgeführt werden kann. Während des Betriebes eines Lasersystems können sich außerdem leichte Abweichungen der voreingestellten Justage entwickeln. Obwohl solche Drifts in der Regel sehr klein sind, müssen sie im Hinblick auf die Einkopplung in die Kapillare dynamisch ausgeglichen bzw. korrigiert werden. Die Filamentation ist im Gegensatz dazu auf keine bestimmten Leistungswerte begrenzt und stellt sich wesentlich unkritischer hinsichtlich der Justage dar. Größere Nachteile ergeben sich erst beim Verlassen des stabilen Druckbereichs durch die einsetzende Multifilamentbildung. Diese hat negative Auswirkungen auf die Richtungsstabilität des Lasers und damit vor allem auf nachgeschaltete justagekritische optische Elemente.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher intensiv nach einem stabilen und effektiven Betriebszustand der Filamentationsanordnung gesucht und dessen Abhängigkeit von allen wichtigen Parametern systematisch analysiert. Ein besonderes Interesse galt hierbei dem Druck und der Brennweite des der Filamentation vorgeschalteten fokussierenden Spiegels. Die Resultate zeigen, dass mit einem 2,5 m konkaven Spiegel die größten spektralen Verbreiterungen erzielt werden und der Druck eine gut zu kontrollierende, über einen relativ weiten Bereich hinweg eher unkritische Größe darstellt. Er muss lediglich auf einen Wert oberhalb der Weißlichterzeugung und unterhalb der einsetzenden Instabilität eingestellt werden. Die Messungen zeigen, dass spektrale Profile der Impulse erreicht werden können, deren Fourierlimit eine Dauer von nur 4 fs unterstützen. Das entspricht hinsichtlich der Zentralwellenlänge gerade dem 1,5 fachen des Wellenzyklus'. Die spektralen Profile können bezüglich der Standardabweichung gegenüber der Fundamentalen um einen Faktor 5 vergrößert werden. Auftretende Probleme durch Instabilität und Divergenz der zentralen Mode werden durch eine entsprechende Parameterkontrolle beseitigt. Die Methode der Filamentation kann die hohen Anforderungen der geplanten Experimente zur Erzeugung einzelner Attosekunden daher hervorragend erfüllen.

Um die generierten Impulse charakterisieren zu können betraf ein weiteres Projekt im Rahmen dieser Arbeit die Entwicklung, den Aufbau und die Inbetriebnahme eines dispersionsfreien interferometrischen Autokorrelators.

Zur Messung der zeitlichen Intensitätsverteilung von ultrakurzen Lichtimpulsen kann nicht auf rein elektronische Messtechniken zurückgegriffen werden, da beispielsweise die Anstiegs- und Abfallzeiten schneller Photodioden heutzutage oberhalb von 30 ps (10^{-12} s) liegen. In Verbindung mit der Auslesezeit, die ungefähr 100 ps entspricht, wird deutlich, dass die Zeitauflösung für eine Impulscharakterisierung im fs-Bereich um einen Faktor 10000 zu schlecht ist.

Durch das Bestreben, eine dispersionsfreie Autokorrelation zu entwickeln, müssen unter anderem akustisch empfindliche Bauteile eingesetzt werden. Dies führt zu der Notwendigkeit einer umfassenden Schallisolierung des Systems. In diesem Zusammenhang wurden umfangreiche Verbesserungen vorgenommen, die in ihrer Gesamtheit zu einer stabilen Messung kurzer fs-Impulse führten. Darüber hinaus wurde eine Software in LabView entwickelt, die eine Aufbereitung und Analyse der

Autokorrelationsdaten ermöglicht. Neben der Dauer und der Zentralwellenlänge der Impulse, kann auch eine unerwünschte zeitliche Verbreiterung durch Dispersion 2. Ordnung identifiziert werden. Insgesamt wurden so Impulse aus dem Oszillator, dem Verstärker und der Filamentationseinheit charakterisiert. Bei der Messung der Oszillatorimpulse kann die zu erwartende ungechirpte Impulsdauer von ca. 18 fs bestätigt werden. Auch die Charakterisierung der Filamentationsimpulse liefert Ergebnisse, die weitgehend im Einklang mit den theoretisch erwarteten Impulsformen waren und zeigt darüber hinaus, dass die zentralen Bereiche der abgetasteten Impulse sehr kurze Dauern von 5 fs besitzen. Dies sind mit die kürzesten intensiven Laserimpulse im sichtbaren Bereich, die je erzeugt wurden. In Zukunft wird es dennoch wichtig sein, genauere Impulscharakterisierungsmethoden, wie den ZAP-SPIDER und den FROG einzusetzen, um ein möglichst detailliertes Bild über die zeitliche und phasenspezifische Verteilung der Impulse zu erhalten. Dennoch beweisen diese Messungen eindrucksvoll die Möglichkeiten und die Flexibilität von Autokorrelationstechniken.

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, dass beide Zielsetzungen, die Impulskompression auf ultrakurze Impulszeiten mittels der Filamentation und die Inbetriebnahme des Autokorrelators zu deren Charakterisierung erfolgreich erfüllt werden konnten, mit Spezifikationen, die teilweise sogar über den Erwartungen lagen.

A. Anhang

A.1. Instructions for the Autocorrelation Fit-program

A.1.1. Settings

1. Selection of the fit algorithm (Ⓐ): You can perform a fit with or without including the linear chirp parameter. Of course both algorithms lead to the same results, if the chirp parameter is set to 0.
2. Selection of the file (.dat, .txt, .csv, etc...) (Ⓑ): The TiePie program produces a header, when you export a csv-file. Therefore you can automatically separate the header or an defined number of lines by using box Ⓒ.
3. Calibration: Box Ⓓ allows 4 different possibilities for calibrating the x axis. When you use the functions linear or sinus calibration, you need to measure the interference of the diode laser signal with the same TiePie settings as in the experiment (like Amlitude and frequency on the loudspeaker, such as sampling and bit rate). Therefor you have to determine some specific positions of this additional calibration data (A.1). In the case of linear calibration you have to mark two seperated maximum fringes somewhere in linear part of the signal and count the number of fringes between them. In the case of sinus calibration you have to put the marks at the end position of your data and count also the fringes between them.
 - No calibration: For files that have been prepared in advance.
 - Manual calibration: Here you can devide your x data points by a defined number. Therefore please insert thise number in the field „quotient“.
 - Linear calibration: You can use this function, when the interesting part of your data lies in the linear area of your plot. Relevant are all values except of the „quotient“. For the fields „time left“ and „time right“ you have to insert the time values of the left and the right marks, respectively. Then you need to enter the time width of the whole axis, but be careful, because you might have zoomed into your calibration data plot. This can lead to a wrong estimated value. In the field „number of wavelength“ you can put the counted number of fringes.

- Sinus calibration: This function incorporates the sinus like movement of the loudspeaker. Therefore one needs the whole information within one loudspeaker movement. All in all you have to insert the same values as in the linear calibration but the marks are at different positions and the fringe number is of course larger.

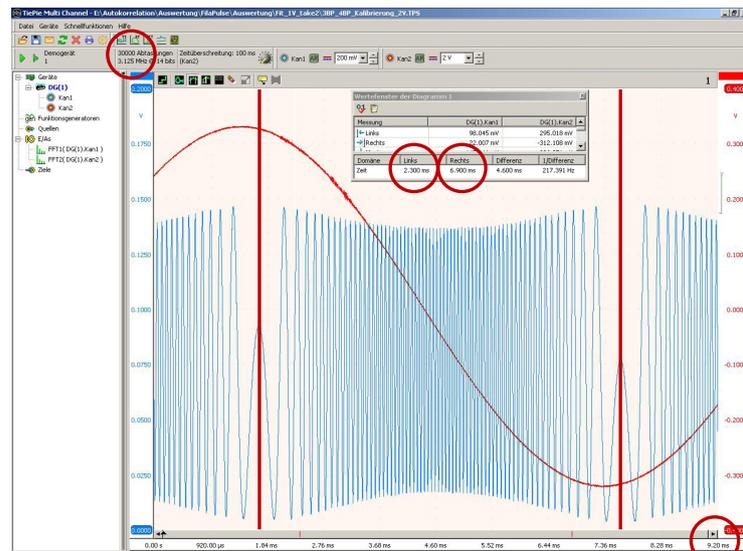


Abbildung A.1.: Measurement for sinus calibration. The important values are marked.

4. Offset control: In this window (e) you have the options to subtract a specific offset value or not. Another possibility is to subtract the minimum value of your data, by using „automatic offset“.
5. Data reduction: If the calculation takes too long, you can accelerate it by the data reducing function (f). You can reduce your data to a defined number and additionally zoom into your plot. This can be necessary, if the interesting part of your data lies in a very small area of your plot. The new number of data points is given in box (g). The small diagram on the left side shows the modified (h) data.
6. Parameters: In the area (j) you can select the values, that you want to include to the fit process. Therefore you have to activate them and insert a number in the according initial value field. The remaining parameters are constants and have to be registered in the field constant values.
7. Equation: You can choose between 2 equations in box (k). The according function appears on the windows (l). The upper and lower windows show the equation with the parameters and the constant values respectively.

8. a_1, a_2 fit: The fit algorithm allows an additional calculation of the amplitude values a_1 and a_2 (Ⓜ). If you do not wish to use this, just set it to normal „ a_1, a_2 fit“. Then the a_1 and a_2 fit procedure is included to the main algorithm. The function „Special a_1, a_2 fit“ can be helpful, when you want that the fitted function has his 1-Line at a specific position. You just have to insert this value in the opening window. The diagram in (h) can help you with your choice. Unfortunately you cannot scroll on top of the window. The function „Turbo a_1, a_2 fit“ is useful, when you would like to adjust the a_1 and a_2 values perfectly to your data points. You have to insert a value for the maximum, the minimum and the 1-Line in the appearing window. This additional program can calculate besides a_1 and a_2 also the correct offset. For that reason the offset subtraction in (e) is suppressed.
9. The number of iterations can be set in (n)
10. The calibrated and the fitted data can be saved in an ASCII file by pressing button (o)

A.1.2. Results

1. The fit procedure can take between a few seconds to several minutes, depending on the number of data points and the equation you have chosen. Moreover it depends on the number of parameters that are included to the fit and the number of iterations.
2. The calculated results appear at the small windows (p) and (q). Only the fitted values are shown in (p). In (q) you get the values for the FWHM before the chirp broadened the pulses in the temporal domain, the FWHM after the chirp and the chirp itself in form of the GDD parameter.
3. Diagram (r) includes your data and the calculated function.
4. If the option „write data“ is on, you can choose a directory for your fitted and calibrated data.
5. There is one error that can occur in the case of Turbo a_1, a_2 fit. It happens when the ratio between the Maximum and the 1-line is larger than the ratio between the 1- and the Minimum-Line times 8.

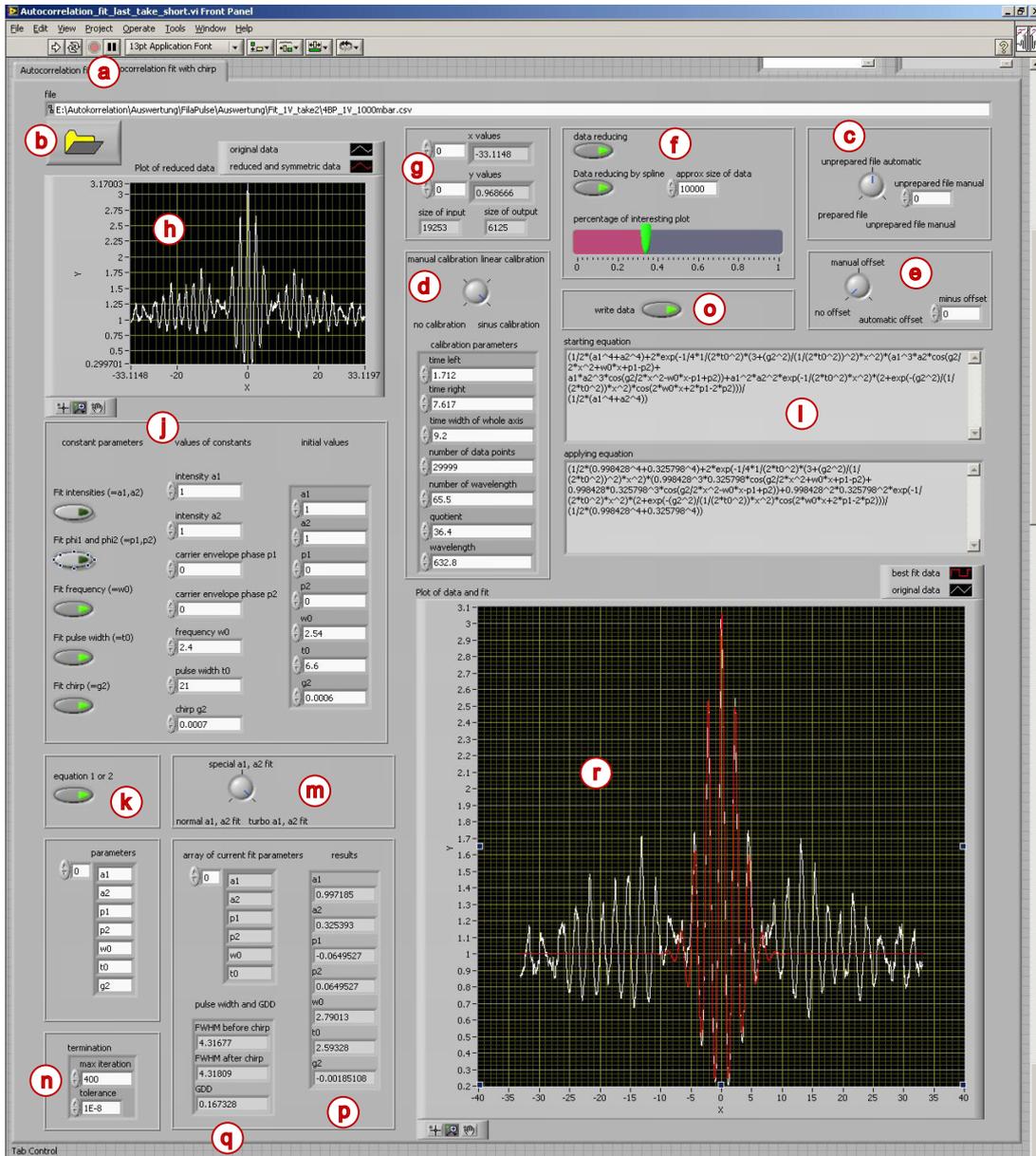


Abbildung A.2.: The fitprogram for the autocorrelation. The various functions of each box is explained in the text.

Literaturverzeichnis

- [Agr01] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, 2001), 3rd Edn.
- [Alf70] R. R. Alfano, S. L. Shapiro, *Observation of Self-Phase Modulation and small-scale filaments in crystals and glasses*, Physical Review Letters **24**(11) (1970).
- [Arm66] J. A. Armstrong, *Measurements of Picosecond Laser Pulse Widths*, Applied Physics Letters **10**(1) (1966).
- [Bal97] A. Baltuska, M. S. Pshenichnikov, D. A. Wiersma, *Autocorrelation measurement of 6-fs pulses based on the two-photon-induced photocurrent in a GaAsP photodiode*, Optics Letters **22**(17) (1997).
- [Bar96] L. P. Barry, P. G. Bollond, J. M. Dudley, J. D. Harvey, R. Leonhardt, *Autocorrelation of ultrashort pulses at 1.5 μm based on nonlinear response of silicon photodiodes*, Electronics Letters **32**(20) (1996).
- [Ber08] L. Bergé, S. Skupin, G. Steinmeyer, *Temporal Self-Restoration of Compressed Optical Filaments*, Physical Review Letters **101** (2008).
- [Bra95] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, G. Mourou, *Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*, Opt. Lett. **20**(1), 73–75 (1995).
- [Chi64] R. Y. Chiao, E. Garmire, C. H. Townes, *Self-Trapping of Optical Beams*, Phys. Rev. Lett. **13**(15), 479–482 (1964).
- [Chi04] S. L. Chin, *From multiphoton to tunnel ionization*, 23 (World Scientific, 2004).
- [Cou03] A. Couairon, *Light bullets from femtosecond filamentation*, The European Physical Journal D **27** (2003).
- [Cou05] A. Couairon, J. Biegert, C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, U. Keller, A. Mysyrowicz, *Self-compression of ultra-short laser pulses down to one optical cycle by filamentation*, Journal of Modern Optics **53**(1-2) (2005).

- [Cou06] A. Couairon, J. Biegert, C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, U. Keller, A. Mysyrowicz, *Self-compression of ultra-short laser pulses down to one optical cycle by filamentation*, Journal of Modern Optics **53**(1-2) (2006).
- [Cou07] A. Couairon, A. Mysyrowicz, *Femtosecond filamentation in transparent media*, Physics Reports **441** (2007).
- [Dem05] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3: Atome Moleküle und Festkörper* (Springer-Verlag, 2005), 3rd Edn.
- [Gad06] G. Gademann, *Komprimierung ultrakurzer Lichtimpulse mit Hilfe der Filamentation und eines adaptiven* (2006).
- [Gal07] L. Gallmann, T. Pfeiffer, P. M. Nagel, M. J. Abel, D. M. Neumark, S. R. Leone, *Comparison of the filamentation and the hollow-core fiber characteristics for pulse compression into the few-cycle*, Applied Physics B: Lasers and Optics **86**(4), 561566 (2007).
- [Gu04] X. Gu, S. Akturk, R. Trebino, *Spatial chirp in ultrafast optics*, Optics Communications **242**, 599604 (2004).
- [Gua06] A. Guandalini, P. Eckle, M. Anscombe, P. Schlup, J. Biegert, U. Keller, *5.1 fs pulses generated by filamentation and carrier envelope phase stability analysis*, Journal of Physics B **39** (2006).
- [Hau04] C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert, U. Keller, *Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation*, Applied Physics B.: Lasers and Optics **79** (2004).
- [Hau05] C. P. Hauri, A. Guandalini, P. Eckle, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, *Generation of intense, few-cycle laser pulses through filamentation - parameter dependence*, Optics Express **13**(19) (2005).
- [Hän02] T. W. Hänsch, R. Holzwarth, T. Udem, *Optical frequency metrology*, Nature **416**, 233–237 (2002).
- [Inc05] K.-M.-L. Inc., *Model MTS- Instruction Manual* (2005).
- [Jai82] R. K. Jain, J. E. Brown, W. P. Robinson, *Simple distortion-free real-time optical pulse correlator*, Applied Optics **21**(22) (1982).
- [Kel02] U. Keller, G. Steinmeyer, R. Paschotta, *Ultrakurzzeit-Laserphysik Wahl-fachvorlesung Quantenelektronik* (2002).
- [Kne08] F. K. Kneubühl, *Laser* (Vieweg + Teubner, 2008), 7th Edn.

- [Kop04] I. G. Koprnikov, *Ionization variation of the group velocity dispersion by high-intensity optical pulses*, Applied Physics B **79**(3) (2004).
- [Lad28] R. Ladenburg, A. Carst, *Untersuchungen über die anomale Dispersion angeregter Gase*, Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei **48**(3-4), 192–204 (1928).
- [Lay07] Layertec, *catalog 2007*, www.layertec.de (2007).
- [Loc00] S. Lochbrunner, P. Huppmann, E. Riedle, *Crosscorrelation measurements of ultrashort visible pulses: comparison between nonlinear crystals and SiC photodiodes*, Optics Communications **184** (2000).
- [Mec04] G. Mechain, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, *Organizing Multiple Femtosecond Filaments in Air*, Phys. Rev. Lett. **93**(3), 035003 (Jul 2004).
- [Mes08] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser* (Vieweg+Teubner, 2008), 3rd Edn.
- [Mle99] M. Mlejnek, E. W. Wright, J. V. Moloney, *Moving Focus Model Versus Self-Waveguiding Model for Long-Distance Propagation of Femtosecond Pulses in Air*, Journal of Quantum Electronics **35**(12) (1999).
- [Nib96] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. P. M. A. Franco, F. Salin, A. Mysyrowicz, *Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air*, Optics Letters **21**(1) (1996).
- [Nör07] W. Nörtershäuser, T. Kühl, *Vorlesung: Physik des Lasers* (2007).
- [OSA06] OSA (Ed.), *Intense 5.1-fs phase-locked carrier-envelope-phase controlled pulse generation through filamentation* (2006).
- [Pra06] B. Prade, M. Franco, A. Mysyrowicz, A. Couairon, H. Buersing, B. Eberle, M. Krenz, D. Seiffer, O. Vasseur, *Spatial mode cleaning by femtosecond filamentation*, in *2006 Quantum Electronics and Laser Science Conference* (2006).
- [Rie07] H. Rietz, *Aufbau und Inbetriebnahme einer Apparatur zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung und deren Charakterisierung* (2007).
- [Sal80] K. L. Sala, G. A. Kenney-Wallace, G. E. Hall, *CW Autocorrelation Measurements of Picosecond Laser Pulses*, Journal of Quantum Electronics **16**(9) (1980).
- [Sal91] B. E. A. Saleh, M. V. Teich, *Fundamentals of Photonics* (Wiley- Interscience, 1991), 3rd Edn.

- [San06] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. D. Silvestri, M. Nisoli, *Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses*, *Science* **314**(5798) (2006).
- [Sku06] S. Skupin, G. Stibenz, L. Bergé, F. Lederer, T. Sokollik, M. Schnürer, N. Zhavoronkov, G. Steinmeyer, *Self-compression by femtosecond pulse filamentation: Experiments versus numerical simulations*, *Physical Review E* **74** (2006).
- [Sku09] S. Skupin, L. Bergé, *Modeling Ultrashort Filaments of Light*, *Discrete and Continuous Dynamical Systems -A* **23**(4) (2009).
- [Suy06] B. R. Suydam, *The Supercontinuum Laser Source*, 22 (Springer New York, 2006).
- [Tak82] M. Takeda, H. Ina, S. Kobayashi, *Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry*, *Optics InfoBase* **72** (1982).
- [Tak92] Y. Takagi, T. Kobayashi, K. Yoshihara, S. Imamura, *Multiple- and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors*, *Optics Letters* **17**(9) (1992).
- [Tar06] P. Tarantilis, *Aufbau und Inbetriebnahme einer Apparatur zur Charakterisierung der spektralen Phase und des zeitlichen Profils von ultrakurzen Lichtimpulsen*, *ZAP-SPIDER* (2006).
- [Tel99] H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. Sutter, U. Keller, *Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation*, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **69**(4), 327333 (1999).
- [Tho] Thorlabs, <http://www.thorlabs.com/thorProduct.cfm?partNumber=BP145B2>.
- [Tow54] C. H. Townes, J. P. Gordon, H. J. Zeiger, *Molecular Microwave Oscillator and New Hyperfine Structure in the Microwave Spectrum of NH₃*, *Phys. Rev.* **95**(1), 282–284 (Jul 1954).
- [Tre] R. Trebino, Presentation auf: www.physics.gatech.edu/gcuo/subIndex.html.
- [Wei07] L. WeiWei, S. L. Chin, *Understanding the beam self-cleaning behavior of ultrashort laser pulse filamentation*, *Science in China Press* **50** (2007).
- [Zew00] A. H. Zewail, *Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond*, *The Journal of Physical Chemistry A* **104**, 5660–5694 (2000).

Danksagung

Abschließend möchte ich all denjenigen ein Dankeschön aussprechen, die durch ihre Unterstützung zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

In erster Linie gilt dieser Dank meinem Betreuer Dr. Konstantin Simeonidis, der mir in jeder Situation mit sehr vielen guten Ratschlägen und Hilfestellungen zur Seite stand und mich für das Forschungsgebiet der Atomphysik und insbesondere der „Laserei“ begeistern konnte. Darüber hinaus möchte ich mich auch bei Prof. Joachim Ullrich und dem Gruppenleiter Prof. Robert Moshhammer für die freundliche Aufnahme in ihre Arbeitsgruppe und die Möglichkeit an sehr aktuellen und faszinierenden Forschungsgebieten arbeiten zu können bedanken. Ebenso möchte ich den Mitgliedern der Gruppe Ullrich und insbesondere meiner Laborkollegin Helga Rietz für ihre fachliche und moralische Unterstützung und die stets mir zu Teil werdende Hilfsbereitschaft danken.

Ganz besonders möchte ich auch meiner Familie danken, die mir das Studium der Physik und eine sehr schöne Zeit in Heidelberg ermöglicht hat. Auch meine Freunde, die mich in der Studienzeit begleitet haben, möchte ich an dieser Stelle erwähnen. Zu guter Letzt möchte ich auch meiner Freundin Johanna danken, die mich jederzeit motiviert und tatkräftig unterstützt hat.

Erklärung:

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den _____

Unterschrift