

# Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich-Mathematischen

Gesamtfakultät

der Ruprecht-Karls-Universität

Heidelberg

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Thomas Binhammer

aus Möckmühl

Tag der mündlichen Prüfung: 5. Juli 2006



# Erzeugung und Anwendung geformter Laserpulse mit oktavbreitem Spektrum

Gutachter: Prof. Dr. Uwe Morgner  
Prof. Dr. Markus Oberthaler

## **Zusammenfassung:**

Der Traum der „kohärenten Quantenkontrolle“, mit Hilfe von Laserlicht chemische Reaktionen zu steuern bzw. quantenmechanische Systeme gezielt in einen gewünschten Endzustand zu überführen, ist durch die rasche Entwicklung im Bereich der Erzeugung ultrakurzer Laserpulse und der Kontrolle ihrer spektralen Phase in vielen Bereichen bereits verwirklicht worden. In dieser Arbeit gelang durch die Kombination eines Laseroszillators mit einem oktavbreiten Spektrum und einem eigens dafür entworfenen hocheffizienten Pulsformer ein entscheidender Schritt zur Kontrolle des zeitlichen Intensitätsverlaufs von Laserpulsen auf einer Skala von wenigen Femtosekunden. Durch den Einsatz des Pulsformers als flexible Dispersionskompensation konnten die bislang kürzesten Lichtpulse direkt aus einem Laser-Oszillator mit einer Dauer von 4,3 fs erzeugt werden. Zusätzlich konnten zahlreiche zeitliche Pulsformen wie Doppel- oder Dreifachpulse mit variablem Abstand demonstriert werden. In einer ersten Anwendung konnten zweifarbige Doppelpulse zur Femtosekunden-Spektroskopie an dem Laserfarbstoff HDITCP eingesetzt und drei Molekül-Schwingungsmoden identifiziert werden. Desweiteren wurden die ultrakurzen Laserpulse zur Bildgebung in der nichtlinearen Optischen Kohärenztomographie eingesetzt und dadurch eine bislang unübertroffene Tiefenauflösung von 1,9  $\mu\text{m}$  erreicht. Diese kann durch den Einsatz geformter Laserpulse in Zukunft weiter gesteigert und die chemische Selektivität der Bilder deutlich erhöht werden.

## **Abstract:**

The dream of "coherent quantum control", this is to steer chemical reactions with the help of laser light or to direct quantum mechanical systems towards a desired final state has partly become reality thanks to the rapid developments in the field of ultrashort laser pulse generation and the control of their spectral phase. In this thesis a significant step towards the control of the temporal intensity profile of a light pulse on a femtosecond timescale could be taken by the unique combination of a laser oscillator with a specially designed, highly efficient pulse shaping device. By its application as flexible method for dispersion compensation, the shortest light pulses directly from a laser oscillator could be generated with an unprecedented duration of 4,3 fs. In addition, numerous temporal pulse profiles such as double or triple pulses with variable delays were realized. As a first application two-color double pulses have been used for femtosecond spectroscopy of the laser dye HDITCP and three vibrational modes of this molecule could be determined. In addition the ultrashort light pulses could be applied for imaging in the field of nonlinear optical coherence tomography and the best longitudinal resolution so far of 1,9  $\mu\text{m}$  could be achieved. These results can be further improved by using shaped pulses which will also allow for a higher chemical selectivity of this imaging technique.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse</b>	<b>3</b>
2.1	Prinzip der Modenkopplung . . . . .	3
2.2	Methoden zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse . . . . .	6
2.2.1	Passive Modenkopplung . . . . .	6
2.2.2	Kerr-Linsen-Modenkopplung . . . . .	7
2.3	Dispersion . . . . .	9
2.3.1	Dispersive Pulsverbreiterung . . . . .	9
2.3.2	Anordnungen zur Dispersionskompensation . . . . .	10
2.4	Der 4-fs-Oszillator . . . . .	13
2.4.1	Resonator-interner Dispersionsausgleich . . . . .	14
2.4.2	Laser-Aufbau . . . . .	15
2.4.3	Laserspektrum und erzielte Pulsdauer . . . . .	19
2.5	Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse . . . . .	23
2.5.1	Methoden zur Messung der Pulsdauer im fs-Bereich . . . . .	23
2.5.2	SPIDER-Verfahren . . . . .	23
<b>3</b>	<b>Aufbau des Pulsformers für oktavbreite Spektren</b>	<b>29</b>
3.1	Methoden zur Formung ultrakurzer Laserpulse . . . . .	29
3.1.1	Akusto-optische Verfahren . . . . .	30
3.1.2	Deformierbare Spiegel . . . . .	30
3.1.3	LCD-Pulsformer . . . . .	32
3.2	Mathematische Beschreibung der Pulsformung . . . . .	34
3.3	Aufbau des Pulsformers . . . . .	37
3.3.1	Frequenz-Aufspaltung durch Prismen . . . . .	38
3.3.2	Flüssigkristall-Display . . . . .	41
3.3.3	Fokussierung . . . . .	43
3.3.4	Vorkompensation der Materialdispersion . . . . .	44
3.3.5	Kalibration des Pulsformers . . . . .	46

<b>4</b>	<b>Formung ultrakurzer Laserpulse</b>	<b>51</b>
4.1	Experimenteller Aufbau . . . . .	51
4.2	Pulsformer zur Dispersionskompensation . . . . .	52
4.2.1	Erzeugung Fourier-limitierter Pulse . . . . .	53
4.2.2	Kompensation zusätzlicher Materialdispersion . . . . .	54
4.3	Zeitliche Superauflösung . . . . .	57
4.4	Erzeugung komplexer Pulsformen . . . . .	61
4.4.1	Zweifarbige Doppelpulse . . . . .	62
4.4.2	Sinusförmige Phasenmodulation . . . . .	63
4.4.3	Erzeugung eines beliebigen Intensitätsverlaufs . . . . .	65
4.5	Grenzen der Phasenmessung . . . . .	67
4.5.1	Auswirkung der Parameter . . . . .	68
4.5.2	Messung von Pulsformen . . . . .	69
<b>5</b>	<b>Anwendungen ultrakurzer Laserpulse</b>	<b>75</b>
5.1	Pump-Dump Experiment . . . . .	75
5.1.1	Motivation . . . . .	75
5.1.2	Prinzip der Messung . . . . .	77
5.1.3	Experimenteller Aufbau . . . . .	78
5.1.4	Messung mit dispersiv verbreiterten Pulsen . . . . .	81
5.1.5	Messung mit zweifarbigen Doppelpulsen . . . . .	83
5.1.6	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	86
5.1.7	Messung der transienten Absorption . . . . .	88
5.2	Optische Kohärenztomographie . . . . .	91
5.2.1	Experimenteller Aufbau . . . . .	92
5.2.2	Lineare Optische Kohärenztomographie . . . . .	95
5.2.3	Nichtlineare Optische Kohärenztomographie . . . . .	96
5.2.4	Einsatzmöglichkeiten der Pulsformung in der OCT . . . . .	99
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>103</b>
<b>A</b>	<b>Raum-zeitliche Effekte der Phasenmaske</b>	<b>105</b>
A.1	Räumliches Strahlprofil . . . . .	105
A.2	Phasenabhängige Verluste . . . . .	107
A.3	Interferometrische Kreuzkorrelation . . . . .	108
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>111</b>
	<b>Publikationen</b>	<b>119</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>121</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Erzeugung und vollständige Kontrolle ultrakurzer Laserpulse auf einer Zeitskala von wenigen Femtosekunden ( $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$ ) hat in den letzten Jahren zu faszinierenden neuen Erkenntnissen in verschiedenen Bereichen von Physik, Chemie bis hin zur Biologie geführt. Durch die Konzentration der gesamten Pulsenergie auf ein sehr kleines Zeitintervall und die gute Fokussierbarkeit des Laserlichtes können auch bei niedriger Durchschnittsleistung sehr hohe Spitzenintensitäten erreicht werden. Die in diesem Bereich stark nichtlineare Wechselwirkung von Licht und Materie kann mit Hilfe der Kurz-Puls Laser erstmals untersucht werden und bietet eine Vielzahl neuartiger physikalischer Effekte und Anwendungsmöglichkeiten. Die hohe Zeitauflösung ermöglicht andererseits die Beobachtung ultraschneller dynamischer Vorgänge im Zeitbereich. Der Einsatz des im Spektralbereich zu den Pulsen korrespondierenden Modenkamms hat zudem den gesamten Bereich der Präzisionsspektroskopie und Frequenzmetrologie revolutioniert. Dafür erhielt T. Hänsch im Jahr 2005 den Physik-Nobelpreis.

Neben der explosionsartig anwachsenden Zahl an wissenschaftlichen Anwendungsmöglichkeiten haben gepulste Lasersysteme auch in viele Bereiche des Alltags bereits Einzug gehalten. Sie erlauben beispielsweise die Materialbearbeitung mit hoher Präzision oder das optische Schreiben von Wellenleitern in Glas. In der Medizin ist es möglich, nichtlineare Prozesse zur Laser-Chirurgie oder zur Bildgebung zu verwenden, ohne das umgebende Gewebe zu schädigen. Dabei ist im Bereich der Präzisions-Diagnostik vor allem die Zwei-Photonen-Mikroskopie und die Optische Kohärenz-Tomographie zu nennen.

Der rasante Aufstieg der Kurzpulslaser zu einem unverzichtbaren Werkzeug der modernen Physik begann vor ca. 10 Jahren. Durch die Entwicklung schneller sättigbarer Absorber und die Entdeckung der Kerr-Linsen-Modenkopplung konnten die bisher als Lasermedium vorherrschenden Farbstoffe durch Festkörper-Materialien abgelöst werden, die wesentlich einfacher zu handhaben sind. Das zunehmende Verständnis der Pulsformungs-Mechanismen im Resonator und die Entwicklung dispersionskompensierender Spiegel ermöglichten bald die standardmäßige Erzeugung von Pulsen mit einer Dauer unter 10 fs. Der in dieser Arbeit verwendete Kurzpulslaser generiert ein Spektrum, das mit einer Zentralwellenlänge im nahen Infrarot eine optische Oktave überdeckt, und gehört damit zu den ganz wenigen Systemen weltweit, die eine solche Bandbreite direkt aus dem Laseroszillator

zur Verfügung stellen.

Schon früh nach der Entwicklung der ersten Kurzpuls-Laser wurde erkannt, dass die zeitliche Pulsform durch Beeinflussung der Amplitude und der Phase einzelner Spektralkomponenten gezielt verändert werden kann. Anfang der 90er Jahre gelang es schließlich, durch eine dispersionsfreie Anordnung von Gittern und Hohlspiegeln die Spektralkomponenten eines Laserpulses in der Fourier-Ebene mit einer Maske zu filtern und anschließend wieder zu einem Zielpuls mit modifiziertem Zeitverlauf zu rekollimieren. Die Entwicklung von Flüssigkristall-Displays als hochauflösende und flexible Phasen- und Amplitudenmaske ermöglichte dabei eine große Freiheit in den generierbaren Pulsformen. Mit dem in dieser Arbeit entworfenen und erstmalig untersuchten Pulsformer für oktavbreite Spektren konnte ein entscheidender Fortschritt zur Phasenmanipulation einer großen Frequenzbandbreite mit hoher Effizienz erzielt werden.

Die Weiterentwicklung auf dem Gebiet der Erzeugung und der Kontrolle ultrakurzer Laserpulse führten zur Realisierung eines lange gehegten Traumes, den Ablauf chemischer Reaktionen gezielt mit Hilfe des Lasers steuern zu können. Durch die Formung der spektralen Phase und Amplitude des Pulses können quantenmechanische Systeme kohärent in einen gewünschten Endzustand überführt werden. Diese Erkenntnis führte zur Entstehung eines neuen Forschungsgebiet, der kohärenten Quantenkontrolle (*coherent quantum control*), das von fundamentaler Bedeutung für das heutige Verständnis der Quantenmechanik in komplexen Systemen ist.

Durch die einzigartige Kombination eines Lasers mit oktavbreitem Spektrum und eines hocheffizienten Pulsformers konnten in dieser Arbeit wichtige Beiträge im Bereich der Erzeugung und der Anwendung kurzer Pulse mit kontrollierter spektraler Phase geleistet werden. Aufgrund der hohen Transmission des Prismen-Pulsformers, die beinahe eine Größenordnung über der Gitter-basierter Systeme liegt, kann er erfolgreich zur flexiblen Dispersionskompensation für Pulse mit einer Dauer von weniger als 5 fs eingesetzt werden und trägt damit zur Überwindung eines der Hauptprobleme beim Umgang mit kurzen Pulsen bei. Auf diese Weise konnten in dieser Arbeit die bislang kürzesten Pulse direkt aus einem Laseroszillator erzeugt werden. Desweiteren stellt der Pulsformer auch für verstärkte Systeme eine alternative Methode zur Dispersionskompensation dar und ermöglicht durch die hohe Transmission auch Experimente im Bereich der kohärenten Kontrolle, die eine hohe Spitzenintensität und sehr kurze Pulse erfordern, wie z. B. die Steigerung der Effizienz bei der Erzeugung hoher Harmonischer.

Diese Arbeit ist wie folgt untergliedert: In Kapitel 2 werden die Methoden zur Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse vorgestellt. Insbesondere werden dabei der 4-fs-Laser und der zur Messung der spektralen Phase verwendete SPIDER-Aufbau vorgestellt, die eine wichtige Grundlage für die durchgeführten Experimente bilden. Der in dieser Arbeit aufgebaute Pulsformer wird in Kapitel 3 im Detail beschrieben. Die damit erzielten Ergebnisse zur Formung von Pulsen mit oktavbreitem Spektrum sind in Kapitel 4 zusammengestellt. Als Abschluss der Arbeit werden in Kapitel 5 zwei Anwendungsmöglichkeiten der erzeugten Laserpulse im Bereich der kohärenten Kontrolle am Beispiel des Laserfarbstoffes HDITCP in Ethanol sowie zur hochauflösenden nichtlinearen Optischen Kohärenztomographie präsentiert.



# Kapitel 2

## Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse

Der zentrale Punkt dieser Arbeit ist die Kontrolle ultrakurzer Laserpulse mit einer Dauer weniger Femtosekunden. Im ersten Abschnitt des vorliegenden Kapitels wird das Konzept der Modenkopplung vorgestellt und anschließend werden verschiedene Ansätze zur praktischen Umsetzung kurz diskutiert. Der Begriff der Dispersion und die verbreiteten Methoden zu ihrer Kompensation für breitbandige Spektren ist Gegenstand des dritten Abschnitts. Im vierten Teil wird dann der Laseroszillator vorgestellt, der zur Erzeugung von Pulsen mit einer Dauer unter 5 fs verwendet wird. Da die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse eine wichtige Grundlage dieser Arbeit ist, werden im letzten Abschnitt verschiedene Verfahren diskutiert, wobei besonders auf die hier benutzte SPIDER-Methode eingegangen wird.

### 2.1 Prinzip der Modenkopplung

Laserpulse können mathematisch als eine Überlagerung ebener Wellen mit einer Kreisfrequenz  $\omega$  und einer Wellenzahl  $k(\omega) = \omega/c n(\omega)$  dargestellt werden, die mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$  in einem Medium mit dem Brechungsindex  $n$  propagieren.

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}(\omega') e^{i(\omega' t - k(\omega') z)} d\omega' + c.c. \right] \quad (2.1)$$

Dabei wird für das in z-Richtung propagierende elektrische Feld  $E(z, t)$  eine lineare Polarisation angenommen und daher eine skalare Notation verwendet. Die Abkürzung „c.c.“ steht für den konjugiert komplexen Term, der in der weiteren Beschreibung weggelassen wird. Für ein reelles elektrisches Feld muss im folgenden daher jeweils der Realteil gebildet werden. Durch Einführung einer Koordinatentransformation  $\omega' = \omega_0 + \Delta\omega$  kann man den Puls in eine langsam veränderliche Einhüllende und einen mit  $\omega_0$  oszillierenden Träger separieren:

$$\begin{aligned}
 E(z, t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i((\omega_0 + \Delta\omega)t - k(\omega_0 + \Delta\omega)z)} d\Delta\omega \\
 &= \underbrace{\left( \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i\omega t} e^{-i\Delta k(\omega)z} d\Delta\omega \right)}_{\text{Einhüllende}} \underbrace{\left( e^{i(\omega_0 t + k(\omega_0)z)} \right)}_{\text{Träger}} e^{i\Phi_{\text{CEO}}}, \quad (2.2)
 \end{aligned}$$

wobei  $\Delta k(\omega) = k(\omega_0 + \Delta\omega) - k(\omega_0)$ . Die Träger-Einhüllenden-Phase  $\Phi_{\text{CEO}}$  bezeichnet die Phasenlage zwischen dem Maximum des elektrischen Feldes und dem der Einhüllenden  $A(z, t)$  und spielt im Bereich der nichtlinearen Optik mit ultrakurzen Pulsen eine wichtige Rolle.

Mit (2.2) ergibt sich folgende Form:

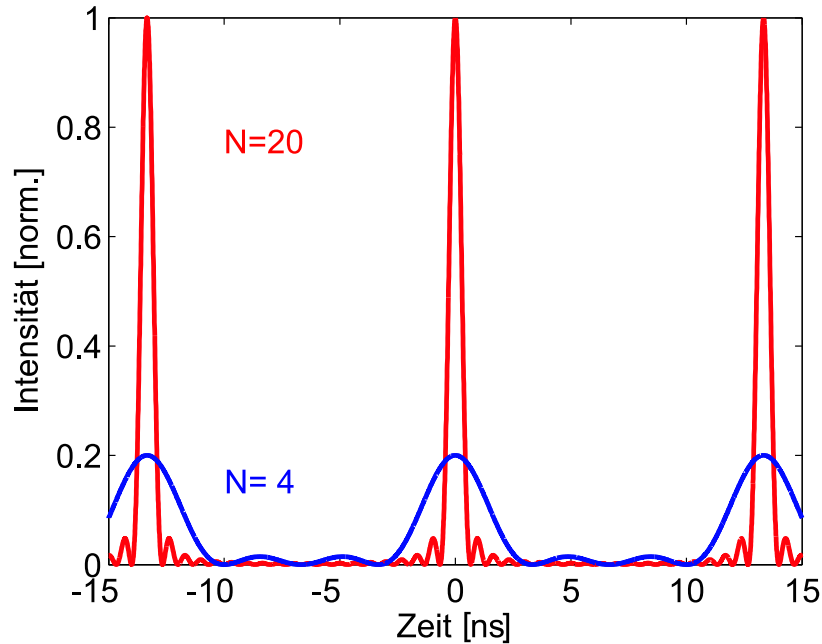
$$\begin{aligned}
 E(z, t) &= \sqrt{2Z_F} A(z, t) e^{i(\omega_0 t + k(\omega_0)z)} e^{i\Phi_{\text{CEO}}}, \quad \text{mit} \\
 A(z, t) &= 1/\sqrt{2Z_F} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}(\omega_0 + \Delta\omega) e^{i\omega t} e^{-i\Delta k(\omega)z} d\Delta\omega \quad (2.3)
 \end{aligned}$$

Der Faktor  $\sqrt{2Z_F}$  mit dem Wellenwiderstand  $Z_F = \mu_0 c/n$  (für Permeabilität  $\mu_r = 1$ ) dient dabei zur Normierung der Einhüllenden, damit  $|A(z, t)|^2$  der Intensität  $I$  entspricht. Durch die Beziehung (2.3) wird ersichtlich, dass die Dauer  $\Delta t$  eines Pulses im Zeitbereich und seine Frequenzbandbreite  $\Delta\omega$  ein Fourier-Paar mit  $\Delta t \cdot \Delta\omega = \text{const.}$  bilden und somit für einen ultrakurzen Puls ein breites Spektrum erforderlich ist. In einem Laserresonator können allerdings nur longitudinale Moden einer diskreten Frequenz  $f_m$  anschwingen, für die die Resonanzbedingung  $f_m = mc/2L$  erfüllt ist, wobei  $L$  die optische Länge des Resonators bezeichnet. In den meisten Lasermedien ist die Gewinnbandbreite wesentlich größer als der Frequenzabstand der Moden  $f_R = c/2L$ , so dass prinzipiell viele dieser Moden anschwingen können. Gelingt es nun eine feste Phasenkopplung zwischen diesen zu etablieren, kann man Gleichung (2.3) wie folgt umschreiben:

$$E(t) = \sqrt{2Z_F} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \hat{A}(\omega_m - \omega_0) e^{-i(\omega_m - \omega_0)t} \quad (2.4)$$

Dabei wurde die  $z$ -Abhängigkeit nicht berücksichtigt,  $\omega_m$  bezeichnet die diskreten Kreisfrequenzen der Moden mit  $\omega_m = m2\pi f_R$ . Diese diskrete Fourier-Reihe hat zur Folge, dass sich im Zeitbereich ein periodisches Signal ergibt, d.h. der resultierende Puls wiederholt sich mit einer Periode von  $T_R = f_R^{-1}$ ;  $f_R$  bezeichnet daher die Repetitionsrate des Lasers. Zur Veranschaulichung soll im folgenden angenommen werden, dass beginnend mit der optischen Frequenz  $f_0 = \omega_0/2\pi$  eine Anzahl von  $N$  Resonatormoden mit gleicher Amplitude  $\hat{A}_0/\sqrt{N}$  und konstanter Phase gekoppelt sind. Daraus ergibt sich ein elektrisches Feld im Zeitbereich

$$E(t) = \frac{\hat{A}_0 \sqrt{2Z_F}}{\sqrt{N}} \sum_{m=0}^{N-1} e^{im2\pi(f_R - f_0)t} \quad (2.5)$$



**Abbildung 2.1:** Zeitlicher Intensitätsverlauf bei Annahme von  $N = 4$  bzw.  $N = 20$  gekoppelten Moden mit gleicher Phase und Amplitude. Es wurde ein spektraler Abstand  $f_R = 75$  MHz angenommen. Man sieht deutlich, dass die Spitzenintensität linear mit  $N$  zunimmt, während die Pulsdauer sich mit zunehmender Modenanzahl verringert.

Diese harmonische Summe kann gemäß

$$\sum_{m=0}^{N-1} a^m = \frac{1 - a^N}{1 - a} \quad (2.6)$$

umgerechnet werden und damit die Intensität  $I$  geschrieben werden als

$$I(t) \propto |E(t)|^2 \propto \frac{|A(t)|^2 \sin^2(N\pi f_R t)}{N \sin^2(\pi f_R t)}. \quad (2.7)$$

In Abbildung 2.1 ist die Intensität für den Fall von  $N = 4$  bzw.  $N = 20$  gekoppelter Moden dargestellt. Es ist deutlich ersichtlich, dass die Pulsdauer abnimmt, umso mehr Moden gekoppelt sind und die Spitzenintensität der kurzen Pulse linear mit  $N$  zunimmt. Im Fall des später im Detail beschriebenen 4-fs-Lasers beträgt die Anzahl der beteiligten Moden  $N \approx 10^6$ , was den erheblichen Gewinn an Spitzenleistung verdeutlicht, der bei modengekoppelten Kurzpulslasern im Vergleich zum cw-Betrieb<sup>1</sup> erreicht wird.

<sup>1</sup>Der Dauerstrich-Betrieb wird im folgenden auch als cw-Betrieb (*continuous wave*) bezeichnet.

Anschaulich kann ein auf diese Weise erzeugter kurzer Laserpuls als Interferenz der angeregten Moden verstanden werden, die nur zu einem bestimmten Zeitpunkt konstruktiv, ansonsten destruktiv interferieren. Voraussetzung dafür ist allerdings die phasenstarre Kopplung der Moden, die zu Beginn des Abschnittes angenommen wurde. Ein kurzer Überblick, wie dies in der Praxis realisiert werden kann, soll im folgenden Abschnitt gegeben werden.

## 2.2 Methoden zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse

Durch Anregen zahlreicher longitudinaler Moden und die Etablierung einer festen Phasenbeziehung zwischen diesen kann ein erheblicher Gewinn an Spitzenleistung erzielt werden. Dieser Betriebszustand kann entweder im Fall der aktiven Modenkopplung durch eine externe Einwirkung herbeigeführt werden oder durch passive Modenkopplung, bei der eine Verlustmodulation durch den Puls selbst ausgelöst wird. Die nachfolgende Beschreibung dient dazu einen kurzen Überblick über aktuelle Methoden zur Erzeugung von Femtosekunden-Pulsen zu geben, wobei besonderen Wert auf die in dieser Arbeit verwendete Kerr-Linsen-Modenkopplung gelegt wird. Für eine ausführlichere Beschreibung sei auf [Sie86, Kär98] verwiesen. Theoretisch kann die Pulsformung bei aktiver und passiver Modenkopplung sehr gut durch die sogenannte Master-Gleichung der Modenkopplung [Hau75b, Hau75c, Hau75a] beschrieben werden.

### 2.2.1 Passive Modenkopplung

Das Prinzip der passiven Modenkopplung beruht darauf, dass der Puls selbst den Verlust im Resonator verändert. Dies ist durch Einbringen eines sogenannten sättigbaren Absorbers möglich, dessen Absorption mit steigender Intensität abnimmt. Dadurch erfährt ein Laserpuls aufgrund der sehr viel größeren Spitzenleistung weniger Verluste und der gepulste Laserbetrieb ist gegenüber dem cw-Betrieb energetisch bevorzugt. Damit sich ein stabiler Pulszustand ausbilden kann, muss allerdings die Modulationstiefe, d. h. der Unterschied zwischen der Absorption bei niedriger Intensität und im gesättigten Zustand bei hoher Intensität, ausreichend tief und die Zeit, in der sättigbare Verlust wieder auf seinen ungesättigten Ausgangswert relaxiert ist, deutlich kürzer sein als die Dauer eines Resonatorumlaufes. Bei den ersten passiv modengekoppelten Lasern wurden organische Farbstoffe als Absorber benutzt, die eine Lebensdauer des angeregten Niveaus im Bereich von wenigen ns bis ps besitzen. Heutzutage werden meist sättigbare Halbleiter-Spiegel, sogenannte *semiconductor saturable absorber mirror* (SESAM) verwendet, die im wesentlichen aus einem dielektrischen, hochreflektiven Spiegel bestehen, auf den eine dünne Halbleiter-Schicht aufgedampft ist. Diese dient als sättigbarer Absorber und kann bezüglich ihrer Parameter wie Lebensdauer oder Sättigungsfluss bei der Herstellung über einen großen Bereich variiert werden. Zu diesem Thema sind zahlreiche Arbeiten veröffentlicht, für eine gute Zusammenstellung sei auf [Kel96] verwiesen.

Je nach Relaxationszeit  $T_A$  unterscheidet man zwischen langsamen und schnellen sättigbaren Absorbern, wobei die Begriffe „schnell“ oder „langsam“ sich auf die jeweilige Pulsdauer  $\tau_P$  beziehen. Ein schneller Absorber kann dem Pulsverlauf quasi instantan folgen, wohingegen ein langsamer Absorber eine sehr viel größere Zeit benötigt, um wieder in den Grundzustand zurückzukehren. Im hier diskutierten Fall von fs-Pulsen muss daher ein solcher Halbleiter-Spiegel mit typischen Relaxationszeiten von mehreren ps als langsamer Absorber betrachtet werden. Zur Erzeugung eines kurzen Pulses mit  $\tau_P \ll T_A$  muss daher der Absorber stark gesättigt werden oder zusätzlich der Gewinn auf einer sehr schnellen Zeitskala verändert werden, was sich nur im Fall von Lasermedien mit sehr kurzer Lebensdauer des Laserniveaus möglich ist. Für die meisten Festkörperlaser liegt diese allerdings im Bereich von  $\mu\text{s}$  bis ms.

Trotzdem kann man mit Hilfe der sogenannten solitären Modenkopplung [Kra92][Kär96] mit einem langsamen Absorber fs-Pulse erzeugen. Dabei ergibt sich durch das Zusammenspiel von Selbstphasenmodulation und negativer Dispersion eine stabile, solitäre Pulsform, deren Halbwertsdauer sehr viel kleiner als die Relaxationszeit sein kann [Kär98]. Schnelle Absorber, die dem Pulsverlauf quasi instantan folgen können, sind im fs-Bereich nur durch sogenannte künstliche sättigbare Absorber zu verwirklichen, die auf dem Kerr-Effekt basieren. Diese Art der passiven Modenkopplung ist in Form des *additive pulse mode-locking* [Ipp89] zur Erzeugung von fs-Pulsen eingesetzt worden. Im folgenden soll die Betrachtung allerdings auf die Kerr-Linsen-Modenkopplung (KLM) konzentriert werden, da dieses Prinzip auch dem in Abschnitt 2.4 vorgestellten fs-Lasers zugrunde liegt.

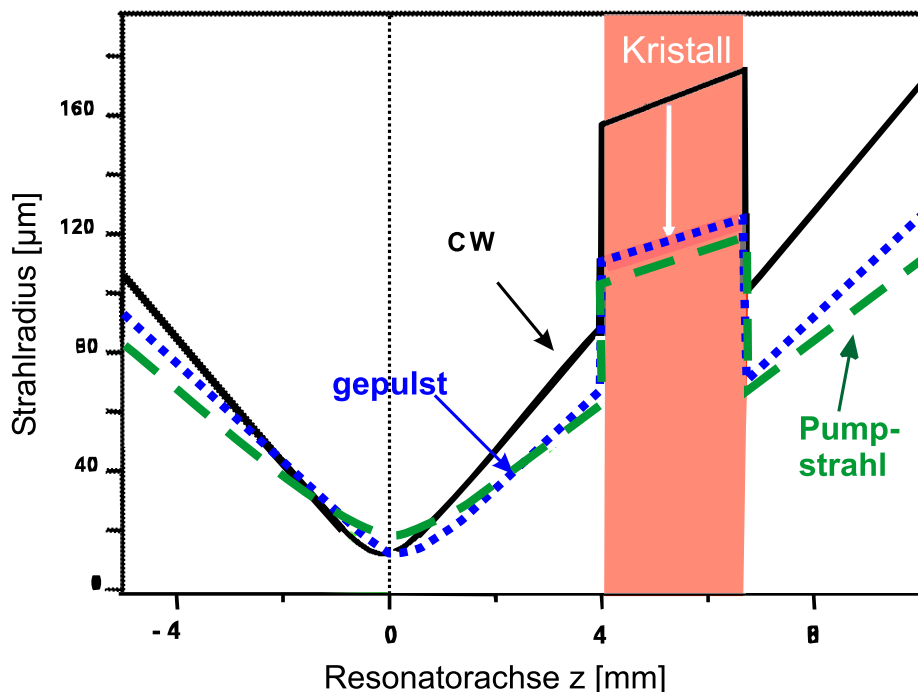
### 2.2.2 Kerr-Linsen-Modenkopplung

Der Kerr-Effekt kann als  $\chi^{(3)}$ -Effekt beschrieben werden und tritt auch in Medien mit Inversionssymmetrie auf [Boy92]. Bei sehr hohen Feldstärken, wie sie im Fall von Kurzpuls-Lasern erreicht werden, ist der Brechungsindex nicht mehr unabhängig von der Intensität  $I(\mathbf{r}, t)$  des Laserlichts:

$$n(\mathbf{r}, t) = n_0 + n_2 I(\mathbf{r}, t), \quad (2.8)$$

wobei  $n_2$  den nichtlinearen Koeffizienten des Materials symbolisiert, der in  $\text{m}^2/\text{W}$  angegeben wird. Die zeitliche Änderung des Brechungsindex erfolgt quasi instantan mit der Pulsintensität. Die Antwortzeit des Kerr-Mediums liegt unterhalb einer Femtosekunde und konnte bislang noch nicht genau experimentell bestimmt werden.

Der im Fall kurzer Pulse zeitlich schnell variierende Index  $n(\mathbf{r}, t)$  führt zu einem nichtlinearen, raum-zeitlichen Phasenverlauf  $\phi(\mathbf{r}, t)$ , wodurch zusätzliche Frequenzkomponenten generiert werden. Im Zeitbereich ist der Kerr-Effekt daher für die sogenannte Selbstphasenmodulation (SPM) verantwortlich. Nimmt man ein gaußförmiges Strahlprofil für den Laserpuls an, wird durch den Kerr-Effekt ein ebenfalls gaußförmiges Indexprofil erzeugt, das auf den propagierenden Puls die Wirkung einer Gradientenindex-Linse hat. Um diese Kerr-Linse als schnellen sättigbaren Absorber zu nutzen, muss man dafür sorgen, dass aufgrund des Resonator-Designs das cw-Licht, welches wegen seiner niedrigen Intensität keine Änderung des Brechungsindex hervorrufen kann, höhere Verluste erfährt als ein La-



**Abbildung 2.2:** Veranschaulichung der Kerr-Linsen-Modenkopplung mit Gewinnapertur. Der tangentielle Strahlradius des Pumpstrahls (grün) entlang der Resonatorachse  $z$  ist deutlich geringer als der des Lasers im cw-Betrieb (schwarze Kurve, durchgezogen). Für den gepulsten Laser (blaue Linie, gepunktet) verringert sich die Modengröße aufgrund der Kerr-Linse deutlich, so dass sich ein verbesserter Überlapp mit dem Pumpmodus im Laserkristall (in rot dargestellt) ergibt. Der gepulste Laser erfährt daher einen größeren Gewinn [E1103].

serpuls, der durch die Kerr-Linse einen anderen Strahldurchmesser im Resonator besitzt. Dies kann im Fall des KLM mit harter Apertur (*hard aperture mode locking*) durch eine Blende erfolgen, die an geeigneter Stelle im Resonator platziert wird.

Bei dem hier vorliegenden Fall des KLM mit Gewinnapertur (*soft aperture mode locking*) erreicht man den bevorzugten Pulszustand durch einen mit Hilfe der Kerr-Linse verbesserten Überlapp zwischen dem infraroten Laserstrahl im Resonator mit dem kollinear eingestrahnten Pumplaser. Dabei ist das Resonator-Design so abgestimmt, dass im cw-Betrieb der Strahlradius im Gewinnmedium größer als der des Pumplasers ist, wie auch in Abbildung 2.2 dargestellt. Dadurch wird die im Medium aufgebaute Inversion nicht optimal ausgenutzt. Kommt es nun aus dem Rauschen heraus zu einer Fluktuation mit höherer Intensität, erfährt diese durch die Kerr-Linse und die daraus resultierende Selbstfokussierung einen höheren Gewinn. Insbesondere wird die Pulsspitze effizienter verstärkt als die weniger intensiven Flanken, der Puls verkürzt sich daher mit jedem Umlauf. Aufgrund der begrenzten Gewinnbandbreite des Verstärkermaterials wird die Pulsdauer andererseits limitiert und es stellt sich ein stabiles Gleichgewicht ein.

Bei den bisherigen Betrachtungen wurden Propagationseffekte wie Dispersion außer Betracht gelassen. Es zeigte sich allerdings bereits bei den ersten Farbstofflasern, die in den Bereich von Pulsdauern unter 100 fs vorstießen, dass für eine weitere Pulsverkürzung die Resonator-interne Dispersion gut kontrolliert werden muss. Daher soll an dieser Stelle das Problem der Dispersionskompensation für ultrakurze Laser-Pulse kurz diskutiert werden, bevor der 4-fs-Laser im Detail besprochen werden kann.

## 2.3 Dispersion

### 2.3.1 Dispersive Pulsverbreiterung

Zur Erzeugung kurzer Pulse im Bereich weniger Femtosekunden ist im nahen Infrarot eine spektrale Bandbreite von mehreren hundert Nanometer erforderlich. In diesem Fall kann die Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex nicht mehr vernachlässigt werden. Bei der Propagation ändert sich gemäß Gleichung (2.3) die Pulseinhüllende und der Puls wird aufgrund des Phasenterms  $\Delta k(\omega)z$  beim Durchgang durch ein dispersives Medium zeitlich verbreitert. Dabei kann an einem festen Ort  $z_0$  die spektrale Phase  $\phi(\omega)$  in eine Taylor-Reihe entwickelt werden:

$$\phi(\omega) = \Delta k(\omega) \cdot z_0 \quad (2.9)$$

$$= \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \sum_{m=2}^{\infty} \frac{(\omega - \omega_0)^m}{m!} \left. \frac{\partial^m \phi}{\partial \omega^m} \right|_{\omega_0} \quad (2.10)$$

$$(2.11)$$

Den Taylor-Koeffizienten können verschiedene Dispersionsordnungen zugeordnet werden. Der erste Term wird im weiteren als Gruppenverzögerung (*group delay*, GD) bezeichnet:

$$D_1 = \text{GD} = \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} = \frac{z}{v_g} \quad (2.12)$$

mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k}$ . Die zweite Ordnung ist die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (*group delay dispersion*, GDD):

$$D_2 = \text{GDD} = \left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} \quad (2.13)$$

und die dritte Ordnung (*third order dispersion*) ist definiert als

$$D_3 = \text{TOD} = \left. \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} \quad (2.14)$$

Während die GD nur zu einer zeitlichen Verzögerung des Pulses als Ganzes führt, wird er durch alle höheren Dispersionsordnungen verbreitert und zwar umso stärker, je breiter

das Spektrum des Pulses ist. So wird z.B. ein 20 fs Puls beim Durchgang durch 2 mm BK 7-Glas lediglich auf 23,5 fs verbreitert, ein Puls mit einer Anfangsdauer von 5 fs jedoch auf 48,7 fs<sup>2</sup>. Dies entspricht bereits fast dem 10-fachen des ursprünglichen Wertes. Daraus wird eindrucksvoll ersichtlich, dass für ultrakurze Laserpulse eine Kompensation jeglicher Materialdispersion unbedingt erforderlich ist. Dies gilt bereits im Resonator, in dem das Verstärkungsmaterial z.B. Titan-Saphir typischerweise eine Dicke von zwei bis drei Millimetern besitzt und in einem kompletten Umlauf zweifach durchlaufen wird.

### 2.3.2 Anordnungen zur Dispersionskompensation

Zum Ausgleich der normalen Dispersion<sup>3</sup> wie sie in Luft und den meisten Gläsern auftritt, haben sich zwei Standard-Methoden etabliert, die im folgenden kurz erläutert werden sollen.

#### Prismen-Kompressor

Eine Prismen-Strecke beruht auf zwei identischen Prismen, wobei das erste den Strahl spektral aufweitet und das zweite Prisma die Spektralkomponenten wieder parallel ausrichtet (siehe auch Abbildung 2.3(a)). Durch einen Spiegel wird der Strahl mit leichtem Höhenversatz zurückreflektiert, um in am Eingang separieren zu können. Durch den unterschiedlichen optischen Weg für jede Spektralkomponente kann je nach Material der Prismen, deren Abstand und der Dicke des durchlaufenen Prismenmaterials (*insertion*) der Dispersionsverlauf verändert und angepasst werden.

Für eine analytische Berechnung der Dispersionseigenschaften sei auf [For84] verwiesen. Ein typischer Verlauf der GDD<sup>4</sup> einer Prismenstrecke ist in Abbildung 2.3(b) für den Fall von Kalziumfluorid (CaF<sub>2</sub>) und Quarzglas (*fused silica*, FS) als Prismenmaterial dargestellt.

#### Dispersionskompensierende Spiegel

Eine weitere Möglichkeit, Einfluss auf die spektrale Phase des Pulses zu nehmen, besteht in der Verwendung dispersionskompensierender Spiegel. Ein hochreflektierender Spiegel beruht auf einem dielektrischen Schichtstapel, bei dem zwei Materialien mit möglichst großem Brechungsindexunterschied im Abstand eines Viertels der Wellenlänge abwechselnd aufgedampft sind (Bragg-Spiegel). Sorgt man nun dafür, dass diese Bragg-Bedingung für kurzwelliges Licht weiter vorne im Schichtstapel erfüllt wird als für langwelliges Licht, kann man durch die unterschiedlichen optischen Wege negative Dispersion erzeugen, wie dies in Abbildung 2.4 veranschaulicht wird.

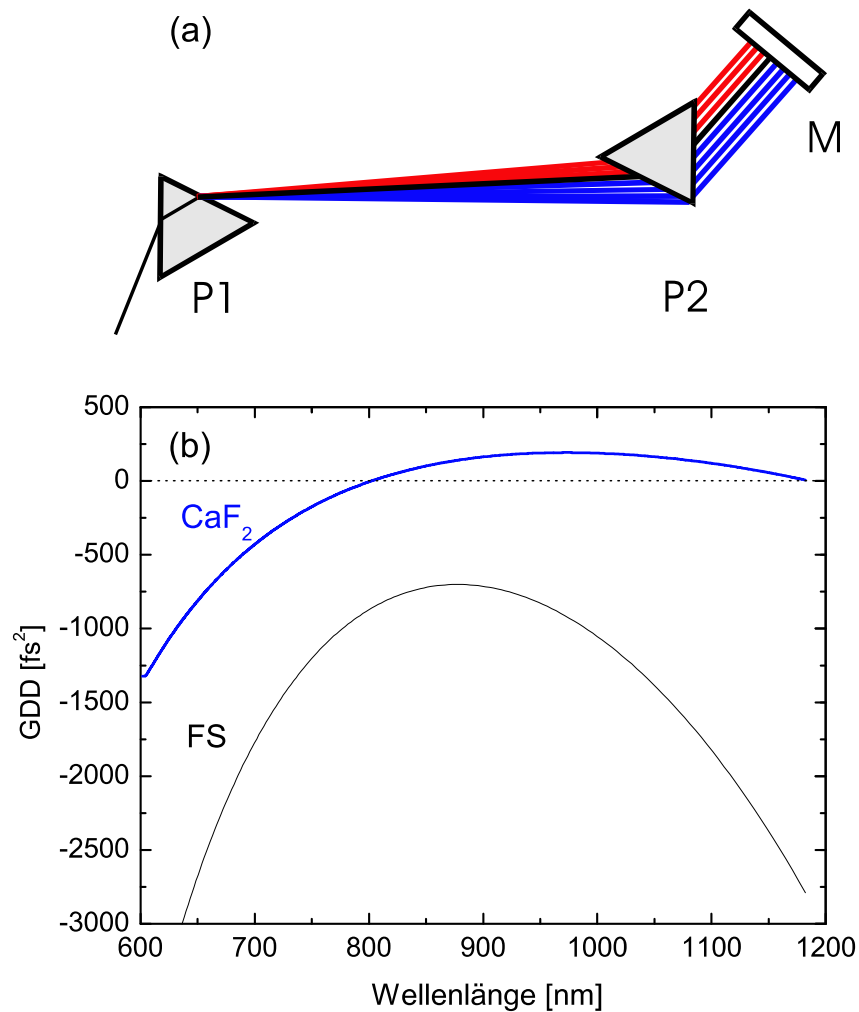
---

<sup>2</sup>Bei der Berechnung wurde ein gaußförmiges Spektrum angenommen.

<sup>3</sup>Von normaler oder positiver Dispersion ist im weiteren Verlauf die Rede, wenn der Brechungsindex mit steigender Frequenz des Lichts zunimmt. Der umgekehrte Fall wird als anomale oder negative Dispersion bezeichnet.

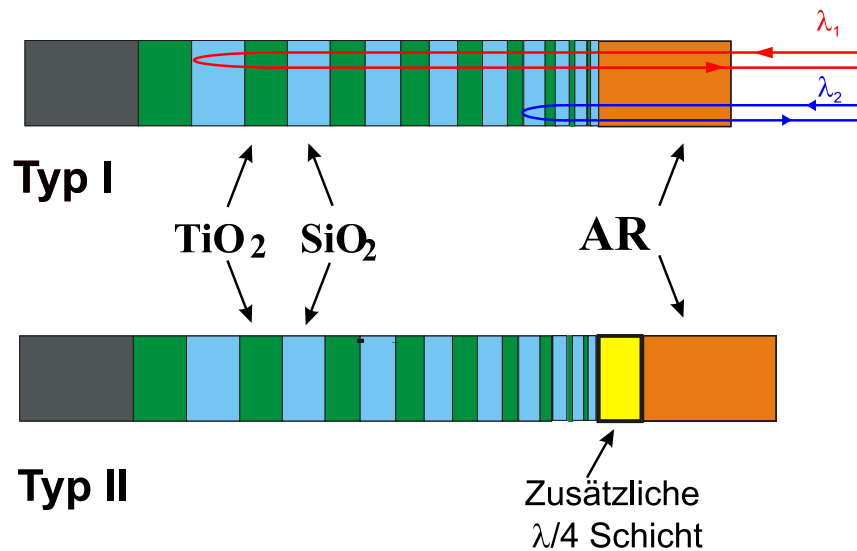
<sup>4</sup>Im weiteren Verlauf wird der Begriff „GDD“ häufig im Sinne der zweiten Ableitung der spektralen Pulsphase  $\phi(\omega)$  benutzt, die für den zeitlichen Verlauf des Pulses maßgeblich ist.





**Abbildung 2.3:** (a) Schematischer Aufbau einer Prismen-Strecke. Das vom ersten Prisma (P1) spektral aufgetrennte Licht wird vom zweiten Prisma (P2) wieder kollimiert und anschließend vom Spiegel M1 zurückreflektiert. (b) Berechneter Verlauf der GDD für den Fall einer Prismenstrecke aus  $\text{CaF}_2$  (Apex-Abstand 1000 mm, gesamte Eindringtiefe der Prismen 10 mm) und für Quarzglas (Apex-Abstand 1200 mm, Eindringtiefe 17 mm).

Auf diesem Prinzip basierten die ersten, sogenannten *chirped mirrors* [Szi94]. Allerdings treten dabei unerwünschte Reflexionen an der Eintrittsoberfläche sowie im Innern des Schichtstapels auf, die im Frequenzraum zu störenden Oszillationen in der spektralen Phase des Pulses führen. Um diese zu reduzieren, ist es notwendig, eine Anti-Reflex-Beschichtung auf den Spiegel aufzubringen und den Schichtverlauf neben den Dispersioneigenschaften auch hinsichtlich der Impedanzanpassung zu optimieren. Die Eigenschaften dieser *doubled chirped mirrors* (DCM) [Kär97] sind durch die entwickelten analytischen Modelle [Mat98, Mat99] gut verstanden. Das endgültige Design erfolgt jedoch aufgrund

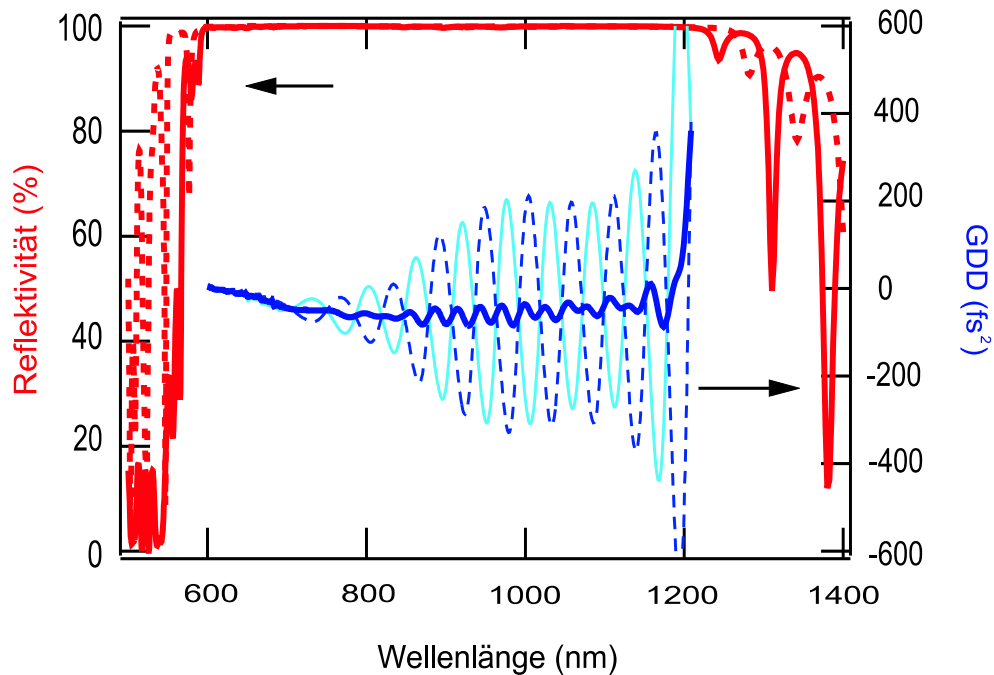


**Abbildung 2.4:** Schematischer Aufbau eines Paares doppelt-gechirpter Spiegel (DCMP). Abwechselnd aufgedampfte Schichten von Titandioxid (TiO<sub>2</sub>) und Siliziumdioxid (SiO<sub>2</sub>) bewirken eine Bragg-Reflexion, die für größere Wellenlängen  $\lambda_1$  in tieferen Schichten erfolgt als für kurzwellige Spektralanteile  $\lambda_2$ . Eine Antireflex-Beschichtung (AR) und das zusätzliche Aufbringen einer  $\lambda/4$ -Schicht bei einem der Spiegel (Typ II) sorgen für eine Verringerung von unerwünschten Reflexionen [Ell03].

seiner Komplexität mit Hilfe aufwendiger Computer-Simulationen. Für sehr breite Spektren muss dabei ein Kompromiss bezüglich der maximal erreichbaren Reflektivität und der maximalen negativen Dispersion eingegangen werden.

Eine weitere Reduzierung der Dispersionsoszillationen in der spektralen Phase konnte durch DCM-Paare (DCMP)[Kär01] erreicht werden, bei denen mittels einer Viertelwellenschicht auf einem der Spiegel eine Phasenverschiebung erzeugt wird, so dass die Oszillationen sich gegenseitig weitgehend auslöschen. Der schematische Aufbau dieser DCMPs ist in Abbildung 2.4 und der berechnete Verlauf der GDD in Abbildung 2.5 dargestellt.

Ein alternative Strategie, um eine glatte und breitbandige negative Dispersion zu erreichen, ist die Aufbringung eines Keils auf die Eintrittsfläche des Spiegels, wodurch auftretende Reflexionen nicht mehr mit dem eigentlichen Laserpuls interferieren können. Dieser Ansatz wird bei dem sogenannten *backside coated chirped mirror* (BASIC) [Mat00] und dem *tilted front mirror* [Tem00] verfolgt. Eine gute Übersicht über die Limitationen beim Design von dispersionskompensierenden Spiegeln für breitbandige Spektren ist in [Ste03] nachzulesen.



**Abbildung 2.5:** Berechneter Verlauf der Reflektivität (rot) und der GDD der DCMPs über der Wellenlänge  $\lambda$ . Die Oszillationen in der GDD der einzelnen Spiegel (blaue, gestrichelte und cyan-farbene Linie) zeigen einen gegenphasigen Verlauf, so dass sich eine wesentlich glattere Gesamtdispersion ergibt (blaue, durchgezogene Linie) [Kär01].

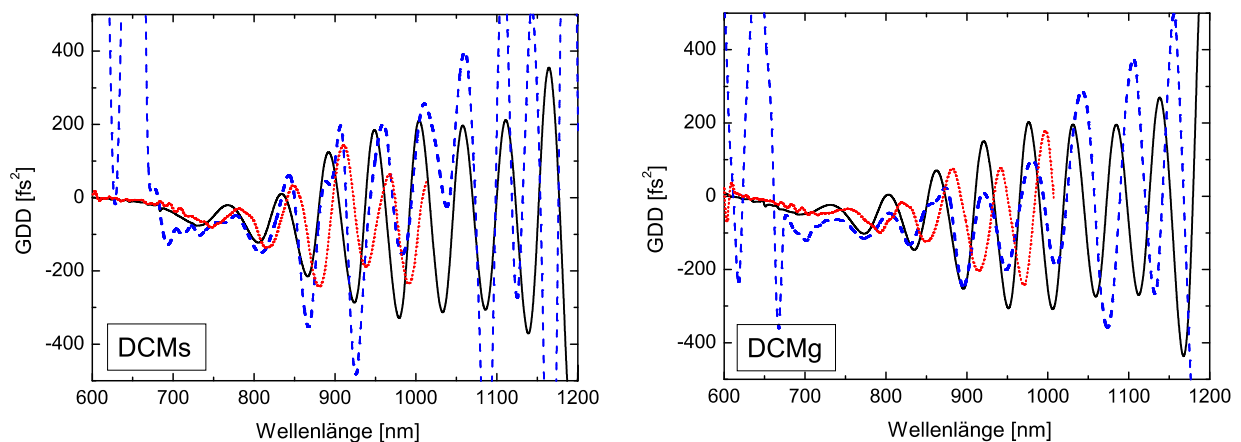
## 2.4 Der 4-fs-Oszillator

Die in dieser Arbeit verwendeten ultrakurzen Laserpulse werden direkt aus dem Oszillator ohne externe spektrale Verbreiterung erzeugt. Das hierzu verwendete Laser-Setup soll in diesem Abschnitt im Detail vorgestellt werden und ist in seinen Komponenten und dem Resonator-Design mit dem in [Ell03] verwendeten Aufbau weitgehend identisch. Daher wird im folgenden auf Einzelheiten zur Auslegung des KLM-Resonators und der Pulsformung innerhalb des Resonators auf diese Arbeit verwiesen. Das Spektrum des Lasers ist oktavbreit<sup>5</sup> und unterstützt bei flacher spektraler Phase eine Pulsdauer von 4,1 fs, was bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm weniger als zwei Zyklen des elektrischen Feldes entspricht.

<sup>5</sup>Der Begriff „oktavbreit“ wird für Spektren verwendet, die sowohl die Frequenz  $f_1$  sowie deren 2. Harmonischen  $f_2 = 2 \cdot f_1$  beinhalten. Durch Frequenz-Verdopplung der Fundamentalen  $f_1$  kann diese dann mit  $f_2$  zur Interferenz gebracht und damit die CEO-Phase des Lasers gemessen werden.

### 2.4.1 Resonator-interner Dispersionsausgleich

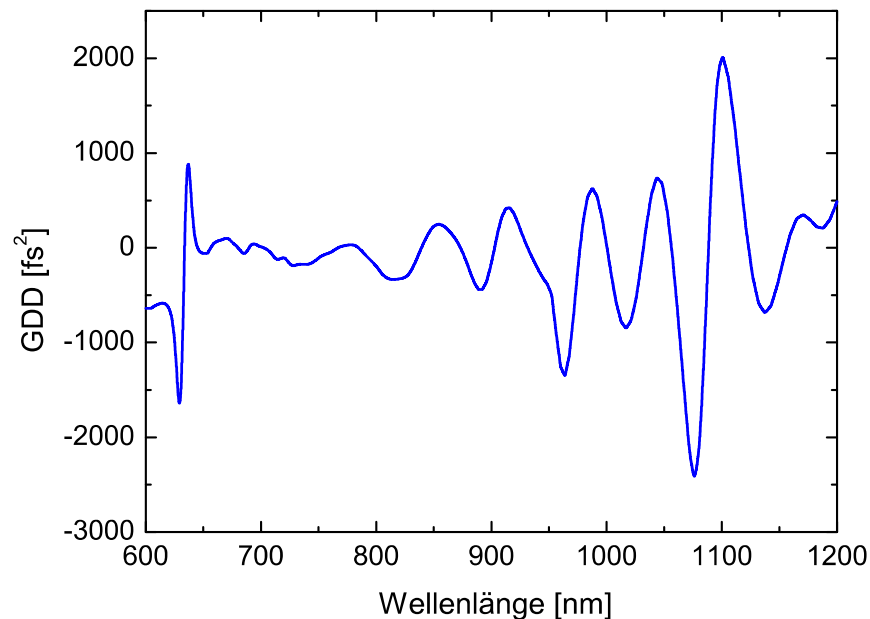
Die Pulsformung in passiv-modengekoppelten Laser kann theoretisch gut durch die Master-Gleichung der Modenkopplung [Hau75b, Hau75c, Hau75a] beschrieben werden. Es zeigt sich, dass zur Erzeugung von Pulsen mit einer Dauer unter 150 fs die Dispersion 2. Ordnung auf unter ca. 100 fs<sup>2</sup> genau kompensiert werden muss. Ab einer Pulsdauer von 25 fs ist eine Kompensation auch für die dritte Ordnung notwendig [Sve98]. Die Möglichkeit die Dispersion innerhalb des Resonators breitbandig kontrollieren zu können, ist daher eine notwendige Voraussetzung für die Erzeugung sehr kurzer Laserpulse und limitiert neben der Verstärkungsbandbreite des Lasermaterials die erreichbaren Pulsdauern [Kär00].



**Abbildung 2.6:** Dispersionsverlauf der verwendeten dispersiven Spiegel DCMP „Silber“ (DCMs) und „Grün“ (DCMg). Im Vergleich zum jeweiligen Design (schwarze Kurve) sind Messungen mit dem in Abschnitt 2.5.2 vorgestellten SPIDER-Aufbau (blaue, gestrichelte Linie) und dem Weißlicht-Interferometer WIDE [Dra05] (rote, gepunktete Linie) eingezeichnet.

Ein wesentliches Element des verwendeten Lasers sind daher die doppelt-gechirpten Spiegel-Paare (DCMP)[Kär01], deren Schichtstapel-Abfolge numerisch optimiert wurde. Die Herstellung erfordert eine gute Kontrolle der Schichtdicke und erfolgte mittels *ion beam sputtering* durch die Firma Nanolayers GmbH [Kär97]. Die Dispersion der beiden verwendeten DCM-Typen, auch als „DCM Silber“ und „DCM Grün“ bezeichnet, konnte mit dem in der Arbeitsgruppe aufgebauten Weißlicht-Interferometer WIDE [Dra05] als auch mit dem zur Charakterisierung der Pulse benutzten SPIDER-Aufbau (siehe Abschnitt 2.5.2) vermessen werden. Der gemessene Verlauf der GDD ist in Abbildung 2.6 im Vergleich zu den Design-Werten dargestellt. Für beide Spiegel stimmen die Messungen qualitativ mit dem Design überein. Im Detail sind jedoch Unterschiede in der Amplitude und der Lage der Oszillationen sowohl zwischen den Messungen und dem Spiegeldesign als auch zwischen den beiden Messungen festzustellen.

Der Verlauf der spektralen Phase ist bei diesen Spiegeln so gewählt worden, dass sich in Kombination mit einer CaF<sub>2</sub>-Prismenstrecke auch eine flache Dispersion dritter Ordnung



**Abbildung 2.7:** Berechneter Verlauf der Resonator-internen GDD über der Wellenlänge. Dabei wurde die Dispersion von 2x 2,3 mm BK 7-Glas, 2x 2,7 mm Saphir und 2x 2 m Luft berücksichtigt sowie deren Ausgleich durch eine  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke (Apex-Abstand 1 m), 5 Reflexionen auf DCM-Typ „Silber“ und 6 Reflexionen auf DCM-Typ „Grün“. Für die Dispersionseigenschaften der Spiegel wurden die entsprechenden Design-Daten verwendet.

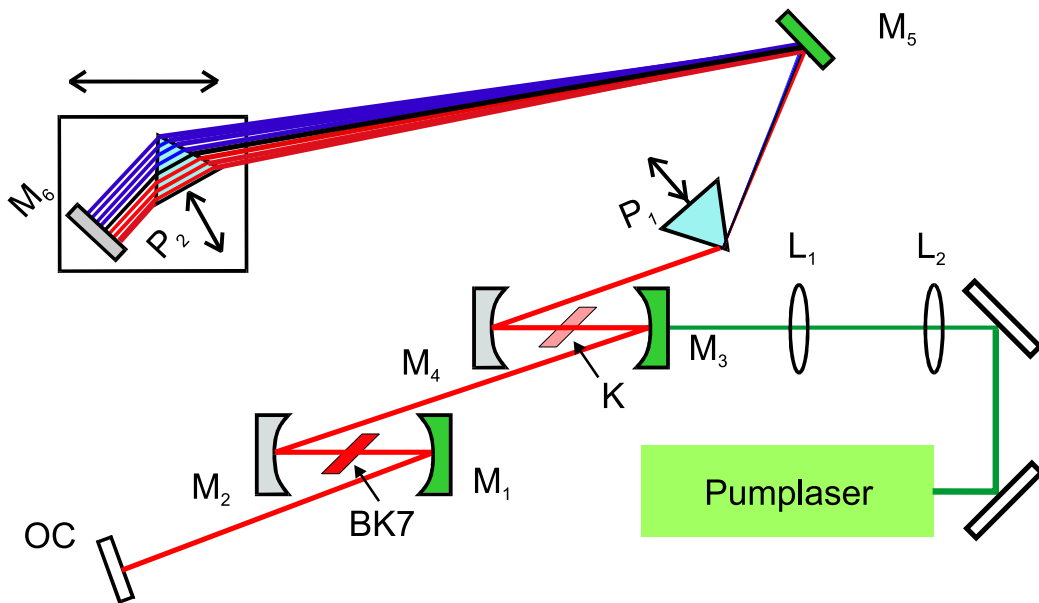
ergibt. Die durch den 2,7 mm dicken Titan-Saphir-Kristall, das 2,3 mm BK 7-Plättchen und die ca. 2 m lange Strecke Luft im Resonator verursachte positive Dispersion<sup>6</sup> wird daher mit Hilfe einer solchen Prismen-Strecke mit einem Apex-Abstand von 1 m und insgesamt 11 Reflexionen auf DCMPs kompensiert (vergleiche auch Abschnitt 2.4.2). Die resultierende, berechnete Dispersionskurve ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Es ergibt sich ein im Mittel flacher Verlauf, wobei die GDD durch die Eindringtiefe der Prismen fein abgestimmt werden kann.

## 2.4.2 Laser-Aufbau

Der in [Ell03] verwendete Oszillator wurde in dieser Arbeit transportabel auf einer 5 cm dicken Lochrasterplatte<sup>7</sup> neu aufgebaut und die Strahlhöhe auf 7,5 cm reduziert, um die Stabilität der Ausgangsleistung zu erhöhen. Eine schematische Darstellung des Oszillators ist in Abbildung 2.8 zu sehen, eine detaillierte Auflistung der gewählten Parameter ist in Tabelle 2.1 gegeben.

<sup>6</sup>Diese Elemente werden bei einem vollständigen Umlauf jeweils zwei Mal durchlaufen.

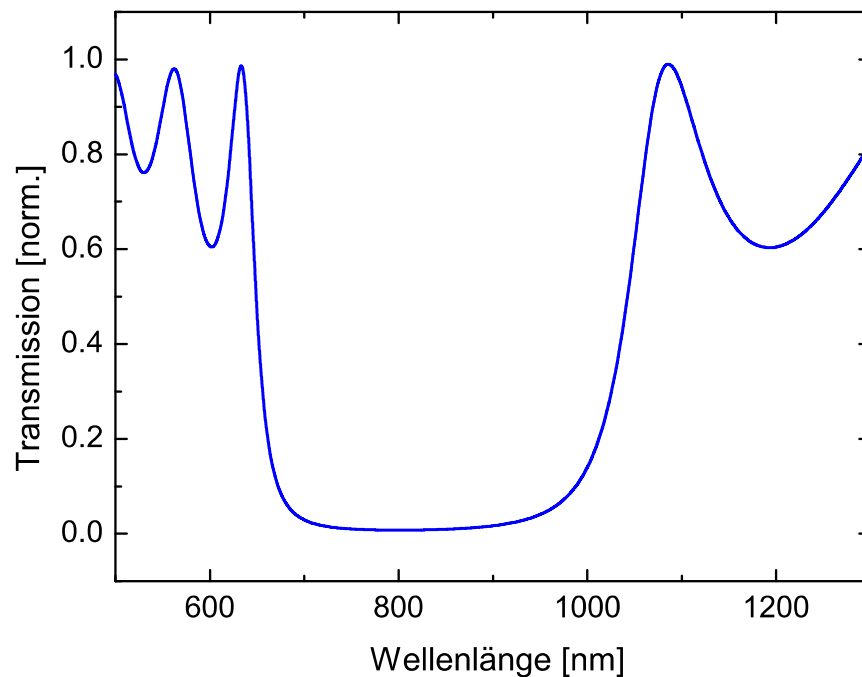
<sup>7</sup>Firma Interferenz



**Abbildung 2.8:** Schematischer Aufbau des 4-fs-Oszillators. Die Parameter der Linsen (L1, L2), der DCMPs „Grün“ (M1,M3,M5) und „Silber“ (M2,M4,M6) sowie die Abstände können Tabelle 2.4.2 entnommen werden. Die Linse L1, die Spiegel M3, M4, M2, der Kristall K, das BK 7-Plättchen im zweiten Fokus sowie beide Prismen P1 und P2 sind zur genauen Justage auf Verschiebetischen montiert. Der Endspiegel M6 befindet sich zusammen mit dem Prisma P2 auf einem Schlitten, mit dem der Laser durch leichtes Verschieben gestartet werden kann.

Brennweite	$f_{L_1} = 80 \text{ mm}$ $f_{L_2} = 100 \text{ mm}$	Radien	$R_{M_2}, R_{M_3}, R_{M_4} = 100 \text{ mm}$ $R_{M_1} = 75 \text{ mm}$
Kristall	Dicke 2,7 mm Dotierung $\alpha = 4,1 \text{ cm}^{-1}$ Index $n=1,76$ $n_2 = 2,9 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$	Abstände	$\overline{P_1 P_2} = 920..1000 \text{ mm}$ $\overline{M_3 K} = 57 \text{ mm}$ $\overline{M_3 M_4} = 108 \text{ mm}$ $\overline{L_2 K} = 135 \text{ mm}$
BK 7	Dicke 2,3 mm Index $n=1,51$ $n_2 = 3,2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$		$\overline{M_2 X} \approx 35 \text{ mm}$ $\overline{M_1 M_2} = 85 \text{ mm}$
BBO	Dicke 1,6 mm Index $n=1,66$ $n_2 = 2,8 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ Schnittwinkel $\theta = 37^\circ$		$L = \overline{OC M_6} \approx 2000..2080 \text{ mm}$ $\overline{M_1 K} = 1210..1290 \text{ mm}$ $\overline{OCK} = 790 \text{ mm}$

**Tabelle 2.1:** Zusammenstellung der wichtigsten Resonator-Parameter. Die Bezeichnungen der Elemente beziehen sich auf Abbildung 2.8



**Abbildung 2.9:** Spektraler Verlauf der Transmission des verwendeten Auskopplers. Der Auskoppelgrad beträgt bei 800 nm ca. 1 %, steigt aber zu den spektralen Rändern hin stark an und ist somit bei der Formung des Laserspektrums von großer Bedeutung.

Als Pumplaser wird ein frequenzverdoppelter Festkörperlaser<sup>8</sup> verwendet, der eine maximale Ausgangsleistung von 10 W bei 532 nm liefert. Mit Hilfe einer Halbwellen-Platte und eines polarisierenden Strahlteiler-Würfels kann die Pumpleistung fein reguliert werden und wurde typischerweise auf einen Wert von 4 W eingestellt, von denen im Kristall ca. 2.7 W absorbiert werden. Um den Strahldurchmesser für das KLM anpassen zu können, wurden zur Fokussierung des Pumplichtes zwei Linsen verwendet, wobei die zweite auf einem Verschiebetisch zur Feinjustage montiert wurde. Sämtliche Resonatorspiegel sind DCMPs, die in Kombination mit der  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke gemäß Abschnitt 2.4.1 für den Ausgleich der Dispersion sorgen. Der Laserstrahl wird durch die beiden Faltungsspiegel  $M_3$  und  $M_4$  in den 2,7 mm Titan-Saphir-Kristall fokussiert. Dabei wurde eine z-Anordnung zur Kompensation des Astigmatismus und des Kommas gewählt [Pen96, Mor01].

Die Auskopplung erfolgt mit einem speziell angefertigten  $\text{MgF}_2/\text{ZnSe}$ -Schichtstapel<sup>9</sup>, der bei 800 nm ca. 1% der Leistung ausgekoppelt wird, an den spektralen Rändern jedoch einen deutlich höheren Anteil. Der spektrale Verlauf der Reflektivität ist in Abbildung 2.9 dargestellt und trägt entscheidend zur Form des Ausgangsspektrums bei.

<sup>8</sup>Verdi-V10, Firma Coherent

<sup>9</sup>hergestellt von Max Lederer am Laser Physics Center, Australian National University, Canberra.

### Spektrale Verbreiterung in zweitem Fokus

Eine weitere Besonderheit des Lasers besteht in einem zweiten Fokus innerhalb des Laser-Resonators. Die Konfiguration wurde durch eine Arbeit von Radzewicz et al. im Jahr 1993 [Rad93] inspiriert, in der ein zweiter Fokus zur Verstärkung der Kerr-Linse durch ein dort platziertes Material mit hohem  $n_2$  genutzt wurde. In unserem Fall dient er vorwiegend der Erzeugung zusätzlicher Frequenzanteile durch Selbstphasen-Modulation (SPM) [Boy92]. Bereits im TiSa-Kristall selbst kommt es zu SPM. Die für das KLM optimale Position befindet sich allerdings etwas außerhalb des Fokus, wodurch die Intensität im Kristall und damit die SPM nicht maximal ist. Zur unabhängigen Optimierung bietet sich daher ein zweiter Fokus an.

Eine prinzipielle Limitation ergibt sich durch die, entlang der Wechselwirkungslänge  $z$  aufgesammelte, nichtlineare Phase

$$\Phi_{\text{SPM}} = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I z, \quad (2.15)$$

die zu einer Destabilisierung des Pulses und schließlich dem Aufbrechen in Mehrfach-Pulse führt, sobald sie einen Wert in der Größenordnung von  $\pi$  erreicht [Akh92].

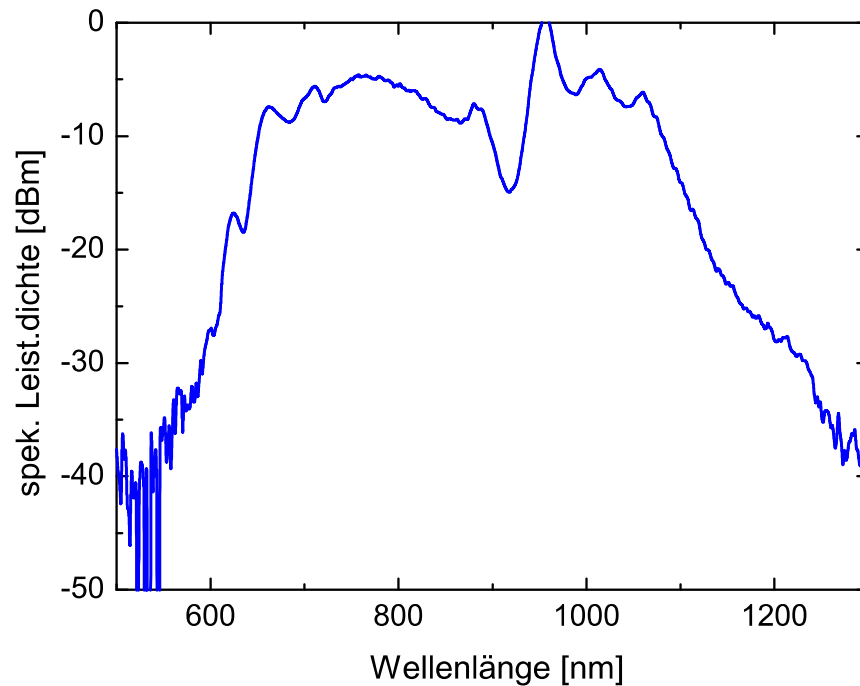
Durch Einfügen eines BK 7-Plättchens in den zweiten Fokus konnte ein oktavbreites Spektrum generiert werden, dass die volle Halbwertsbreite des TiSa-Verstärkungsprofils deutlich überschreitet [Ell03]. Dabei ist es schwierig, eine ausreichend hohe Leistung vor allem im langwelligen Spektralbereich über 1100 nm zu erhalten, da bei diesen Wellenlängen der Gewinn des TiSa bereits sehr gering ist.

Verwendet man anstelle von BK 7 einen nichtlinearen BBO-Kristall<sup>10</sup> kann man diesen zu einer parametrischen Verstärkung in diesem Spektralbereich nutzen. In einem optisch parametrischen Verstärker (*optical parametric amplifier*, OPA)[Cer02] wird ein intensiver Pump-Puls mit einer Zentralfrequenz  $f_P$  dazu verwendet, einen schwachen Signal-Puls mit  $f_S < f_P$  zu verstärken. Dabei entsteht zusätzlich die Differenzfrequenz  $f_i = f_P - f_S$ , der sogenannte *idler*. Das Konzept des BBOs im zweiten Fokus des Resonators beruht auf dem gleichen Prinzip. Dabei entstammen allerdings Pumpe und Signal dem selben, im Resonator umlaufenden Laserpuls und haben daher einen identischen Strahlverlauf und Polarisationszustand. Der Pump-Puls setzt sich aus den Spektralkomponenten nahe des Verstärkungsmaximums des TiSa bei etwa 740 nm - 800 nm zusammen, und kann bei einem Einfallswinkel von  $\theta = 37^\circ$  zur optische Achse des BBO für die Verstärkung des Signalpulses im Spektralbereich von 1100 nm bis 1200 nm genutzt werden. Durch den parametrischen Prozess sollte es daher zu einer Umverteilung der spektralen Leistung zu Gunsten der langwelligen Anteile kommen. Zusätzlich wird ein Differenzfrequenz-Signal mit einer Wellenlänge im Bereich  $2 \mu\text{m} - 4 \mu\text{m}$  erzeugt. Da sowohl das Pump- als auch das Signallight in p-Polarisation (bezüglich der Kristallachse in ordentlicher Richtung) einfallen, der *idler* allerdings s-polarisiert ist (in außerordentlicher Richtung), wird die Konfiguration auch als OOE-Prozess klassifiziert [Dmi99].

---

<sup>10</sup>Firma Döhler, (5 x 5 x 1,6) mm





**Abbildung 2.10:** Emittiertes Laserspektrum mit BK 7-Plättchen in zweitem Fokus auf logarithmischer Skala. Das Spektrum umfasst eine optische Oktave von 600 nm bis 1200 nm und unterstützt eine Fourier-limitierte Pulsdauer von 4,4 fs.

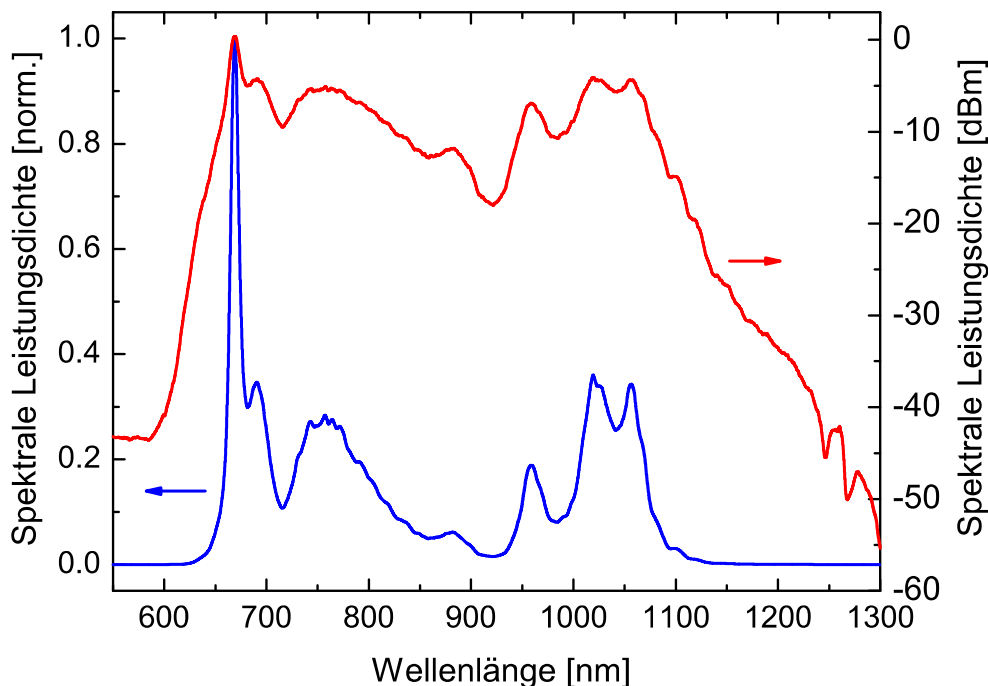
### 2.4.3 Laserspektrum und erzielte Pulsdauer

#### BK 7-Plättchen in zweitem Fokus

Der Oszillator wurde zunächst mit einem BK 7-Plättchen im zweiten Fokus betrieben. Auf diese Weise konnte ein oktavbreites Spektrum erzeugt werden, das in Abbildung 2.10 auf logarithmischer Skala dargestellt ist.

Bei Annahme einer flachen spektralen Phase, im folgenden auch als Fourier-Limit (FL) bezeichnet, ergibt sich damit ein Puls mit einer vollen Halbwertsbreite (*full width at half maximum*, FWHM) von lediglich 4,4 fs. Das Spektrum hat einen eher rechteckigen Verlauf, der wenig mit dem für solitäre Laser typischen  $\text{sech}^2$ -Profil<sup>11</sup> gemein hat. Bei der theoretischen Beschreibung der Pulsformung muss bei Pulsen mit sehr kurzen Pulsdauer berücksichtigt werden, dass die Dispersion und die SPM nicht kontinuierlich im Resonator verteilt sind, sondern getrennt voneinander auftreten. Der dadurch geformte Puls im Laser kann als *dispersion-managed soliton* beschrieben werden [Che99]. Das emittierte Spektrum entspricht im wesentlichen dem für diesen Fall vorausgesagten, rechteckigen Verlauf. Die ausgeprägte Struktur kann durch die Reflektivitätskurve des Auskopplers und

<sup>11</sup>Secans hyperbolicus



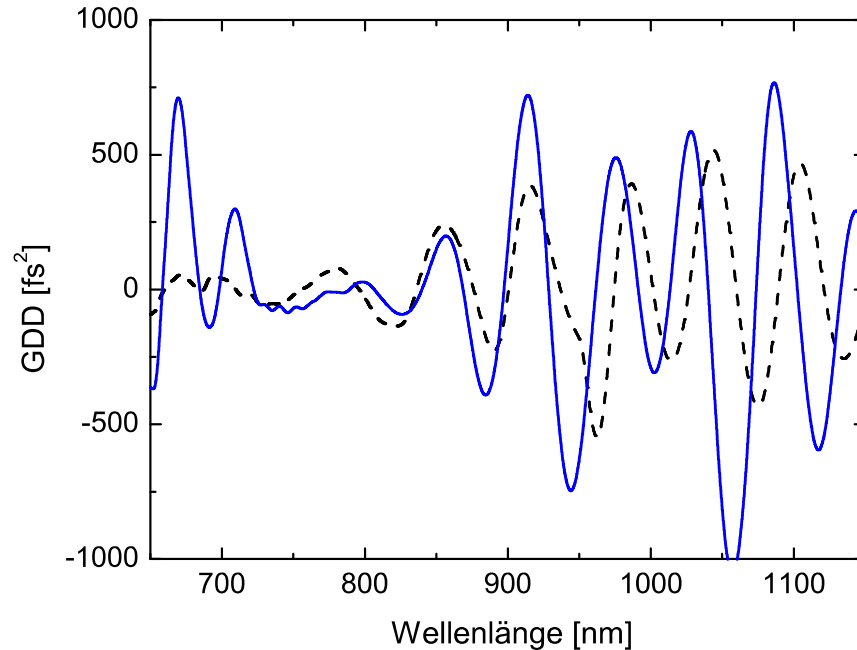
**Abbildung 2.11:** Oktavbreites Laserspektrum mit BBO-Kristall in zweitem Fokus auf logarithmischer (rote Kurve) und linearer Skala (blau). Die Fourier-limitierte Pulsdauer beträgt 4,1 fs.

die Resonator-interne Dispersion (vergleiche Abbildungen 2.9 und 2.7) erklärt werden. Die emittierte Ausgangsleistung beträgt in dieser Konfiguration zwischen 80 mW und 100 mW bei einer Pumpleistung von etwa 5,5 W.

### BBO-Kristall in zweitem Fokus

Zur Erhöhung der spektralen Leistung in den langwelligen Anteilen des Spektrums wurde an Stelle des BK 7-Substrates ein nichtlinearer BBO-Kristall in den zweiten Fokus gesetzt. Die durch diesen Austausch leicht veränderte Dispersion im Resonator kann durch Anpassen der Eindringtiefe der Prismen problemlos ausgeglichen werden. Diese Konfiguration wurde in allen weiteren, in dieser Arbeit präsentierten Experimenten verwendet. Das Spektrum des Lasers ist in Abbildung 2.11 zu sehen und unterstützt eine Fourier-limitierte Pulsdauer von 4,1 fs.

Der spektrale Verlauf ist dem in Abbildung 2.10 dargestellten Fall sehr ähnlich. Die M-förmige Struktur erscheint etwas ausgeprägter, was sich günstig auf das Fourier-Limit auswirkt. An dieser Stelle sei angemerkt, dass ein Vergleich der Spektren nur schwer möglich ist, da die Justage des Lasers und die Resonatorgeometrie, die durch Verschiebetische unter den wichtigsten Elementen abgestimmt werden kann, einen erheblichen Einfluss auf die erreichbaren Laserparameter besitzen. Eine deutliche Verbreiterung im Bereich über 1100 nm,

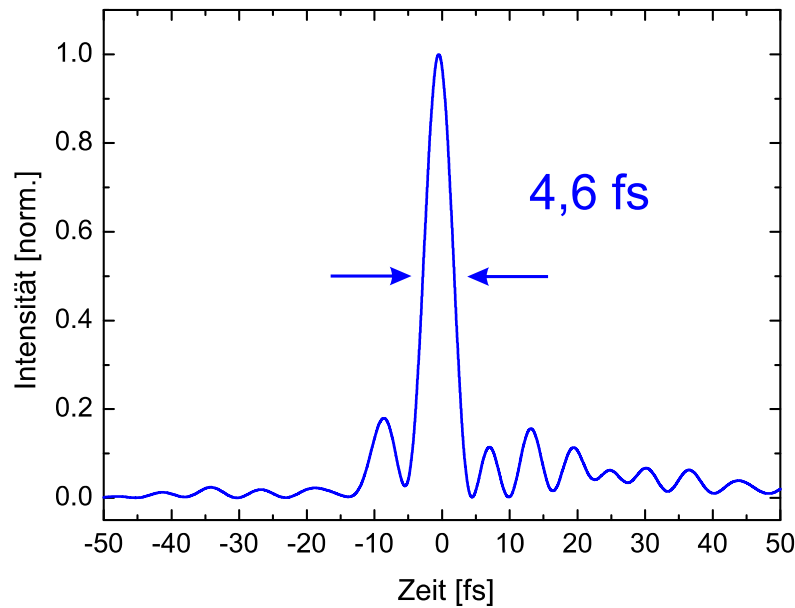


**Abbildung 2.12:** Dispersionskompensation durch Reflexionen auf DCMP's (3x „Grün“, 3x „Silber“) und einer  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke mit Apex-Abstand 600 mm. Der gemessene Verlauf (durchgezogene, blaue Kurve) stimmt sehr gut mit dem aus den Design-Werten der Spiegel berechneten Verlauf (schwarz, gestrichelt) überein.

wie sie durch den parametrischen Prozess beabsichtigt wurde, kann daher nicht eindeutig festgestellt werden. Ob dieser überhaupt zum Spektrum beiträgt, konnte bisher nicht geklärt werden. Da BBO einen ähnlich hohen nichtlinearen Index  $n_2 = 2,8 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  [DeS96] besitzt wie BK 7 ( $n_2 = 3,2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ ) [Boy92] kann die Verbreiterung des Spektrums auch allein durch SPM verursacht werden. Durch Detektion des *idlers*, der im Spektralbereich von  $2 \mu\text{m}$  bis  $3 \mu\text{m}$  liegen sollte, könnte die parametrische Verstärkung nachgewiesen werden.

Durch Einbau des BBO hat sich allerdings die Stabilität und die Ausgangsleistung des Lasers deutlich verbessert. Bei einer Pumpleistung von 4 W, von denen etwa 2,7 W im Kristall absorbiert werden, emittiert der Laser typischerweise zwischen 100 mW und 120 mW. Die Pulsenergie beträgt bei der Repetitionsrate von  $f_R \approx 75 \text{ MHz}$  in etwa 1,6 nJ, was bei einer Pulsdauer von 4,1 fs eine Spitzenleistung von 400 kW ergibt.

Damit der Puls am Ort des Experimentes auch wirklich die minimale Pulsdauer besitzt, muss die Dispersion – wie in Abschnitt 2.3 gezeigt – auch außerhalb des Resonators sehr gut ausgeglichen werden. Dazu wird ähnlich wie im Resonator eine Kombination von DCMP-Spiegeln und einer  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke benutzt, die je nach Betrag der zu kompensierenden Dispersion angepasst wird. Die Charakterisierung der Pulse erfolgt mit dem im folgenden Kapitel vorgestellten SPIDER-Aufbau. Dieser erlaubt eine direkte Messung



**Abbildung 2.13:** Mit SPIDER (siehe Abschnitt 2.5.2) gemessener Intensitätsverlauf des Laserpulses. Die Pulsdauer (FWHM) beträgt 4,6 fs und liegt damit über dem mit flacher Phase möglichen Wert von 4,1 fs. Es ergeben sich zahlreiche Vor- und Nachpulse, die aus den Oszillationen der GDD nach der Vorkompensation (Abbildung 2.12) resultieren.

der spektralen Phase, aus der sich dann – zusammen mit dem separat in einem optischen Spektrumsanalysator<sup>12</sup> gemessenen Spektrum – der Intensitätsverlauf des Pulses berechnen lässt.

Der gemessene Verlauf der GDD des Pulses ist in Abbildung 2.12 dargestellt. Zur Kompensation der bis zum SPIDER durchlaufenen Strecke in Luft (ca. 5 m) wurden dabei jeweils drei Reflexionen auf dem DCMP-Typ „Grün“ und „Silber“, eingebaut und eine CaF<sub>2</sub>-Prismenstrecke mit einem Apex-Abstand von 60 cm verwendet. Die Eindringtiefe kann dabei so eingestellt werden, dass sich eine optimale Dispersion zweiter Ordnung ergibt. Der berechnete Verlauf ist ebenfalls in Abbildung 2.12 zu sehen und stimmt qualitativ gut mit der Messung überein. Die Lage der Minima und Maxima sowie deren Amplitude scheinen ähnlich wie bei der Dispersionsmessung der einzelnen Spiegel (Abbildung 2.6) im langwelligen Bereich über 1000 nm etwas deutlicher abzuweichen. Der zeitliche Intensitätsverlauf, der sich aus dem in Abbildung 2.11 dargestellten Spektrum und der gemessenen spektralen Phase ergibt, ist in Abbildung 2.13 präsentiert. Es zeigt sich, dass die Dispersionsoszillationen im Zeitbereich zu einem deutlich ausgeprägtem Pulsuntergrund führen, wobei einzelne Vor- und Nachpulse bis zu 15 % der Maximal-Intensität aufweisen. Die Pulsdauer beträgt 4,6 fs und liegt damit um ca. 10 % über dem mit flacher Phase möglichen Wert von 4,1 fs.

<sup>12</sup>Optischer Spektrumsanalysator Ando AQ-6315QA

## 2.5 Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse

Zur gezielten Manipulation der spektralen Phase und damit des zeitlichen Profils eines ultrakurzen Pulses ist dessen genaue Charakterisierung eine grundlegende Voraussetzung. Die momentan erreichbare, elektrische Bandbreite bis 100 GHz gestattet eine Zeitauflösung im Bereich von 10 ps. Damit ist eine direkte Messung des Intensitätsverlaufs eines ultrakurzen Pulses nicht möglich, so dass in allen eingesetzten Methoden der optische Puls selbst als zeitliche Referenz genutzt wird. Eine kurze Zusammenstellung der gebräuchlichen Verfahren und eine ausführliche Beschreibung des hier verwendeten SPIDER-Aufbaus wird in diesem Abschnitt präsentiert.

### 2.5.1 Methoden zur Messung der Pulsdauer im fs-Bereich

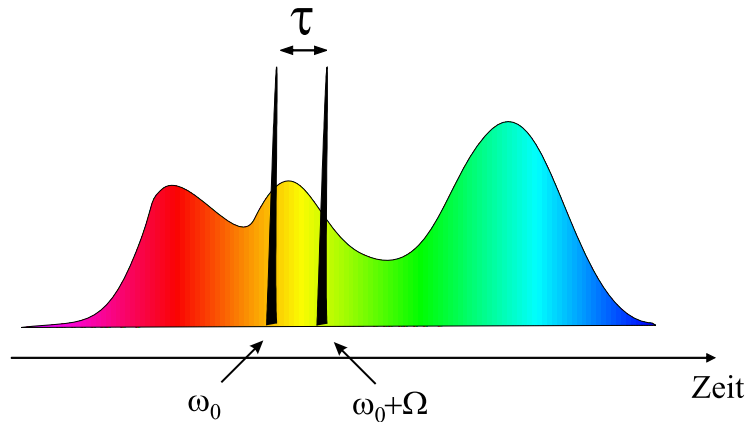
Bei der interferometrischen Autokorrelation (IAC) wird der zu charakterisierende Puls in einem Mach-Zehnder-Interferometer in zwei identische Kopien aufgeteilt, von denen eine mittels eines Piezoelements zeitlich um  $\tau$  verzögert werden kann. Beide Pulsreplika werden anschließend kollinear in einen nichtlinearen Kristall zur Frequenz-Verdopplung fokussiert, und das entstandene Signal der zweiten Harmonischen wird mit einem Detektor aufgezeichnet. Die IAC ergibt ein symmetrisches Signal, das sich durch ein vom Pulsverlauf unabhängiges Verhältnis von 1:8 zwischen dem konstanten Hintergrund und dem Maximum bei  $\tau = 0$  auszeichnet. Aufgrund des einfachen Aufbaus und des intuitiven Charakters des Signals — ein kürzerer Puls ergibt mehr Signal in der zweiten Harmonischen — ist die IAC eine weit verbreitete Methode zur Messung kurzer Pulse. Allerdings enthält das Interferogramm keinerlei direkte Information über die Pulsphase. Zur Berechnung der Pulsdauer muss daher entweder die Pulsform a priori bekannt sein oder ein aufwendiges Rekonstruktionsverfahren angewendet werden. Dieses Verfahren ist mathematisch nicht eindeutig, weshalb die so ermittelte Phase nicht der wirklichen Pulsphase entsprechen muss. Für Pulse mit einer Dauer unter 5 fs wird das Signal zunehmend durch experimentelle Schwierigkeiten wie z.B. der begrenzten Bandbreite des Verdopplungsprozesses verfälscht [Yam04b]. Für die Charakterisierung dieser Pulse ist die IAC daher nur bedingt geeignet.

Eine Weiterentwicklung der IAC stellt der FROG (*Frequency Resolved Optical Gating* [Tre93]) dar. Dabei wird die zweite Harmonische mit einem Spektrometer anstatt mit einem über alle Spektralanteile integrierenden Detektor aufgenommen. Dadurch ergibt sich ein zweidimensionales Signal  $S(\omega, \tau)$ , bei dem Mehrdeutigkeiten in der Rekonstruktion der Pulsphase deutlich unwahrscheinlicher sind. Diese Methode wurde in vielen Abwandlungen weiterentwickelt [O'S01, Sti05] und erfolgreich für Pulse im 5 fs-Bereich angewendet [Bal99].

### 2.5.2 SPIDER-Verfahren

Im folgenden Abschnitt soll im Detail auf den in dieser Arbeit verwendeten SPIDER<sup>13</sup>-Aufbau eingegangen werden, der die durchgeführten Experimente zur Kontrolle der spek-

<sup>13</sup>Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction



**Abbildung 2.14:** Veranschaulichung des Summenfrequenz-Prozesses, der zum SPIDER-Signal führt. Die kurzen Pulse im Abstand  $\tau$  (schwarz) schneiden aus dem langen Puls jeweils eine quasi-monochromatische Frequenz-Komponente aus, die sich aufgrund der linear ansteigenden Momentanfrequenz um den *shear*  $\Omega$  unterscheiden.

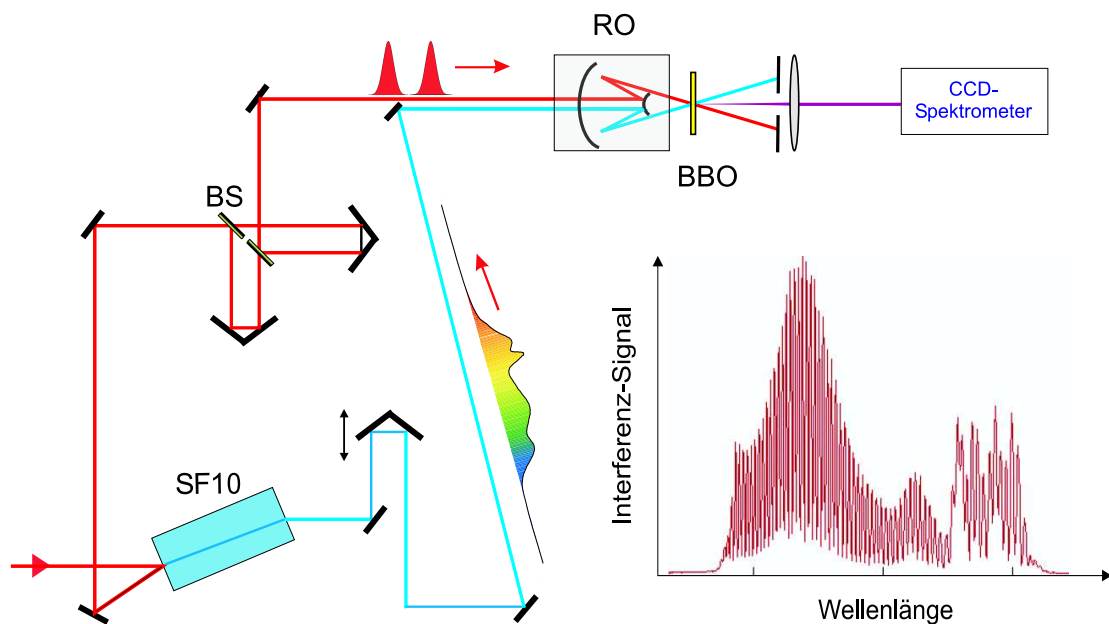
tralen Phase erst ermöglicht. Im Unterschied zu den bisher vorgestellten Methoden erlaubt das SPIDER-Verfahren [Iac99, Gal99] die direkte Messung der spektralen Phase des Pulses.

Der zu charakterisierende Puls wird zunächst in zwei Kopien aufgeteilt und eine davon auf eine Dauer von einigen Pikosekunden gestreckt. Der andere Teilpuls durchläuft ein Mach-Zehnder-Interferometer, durch das eine weitere Pulskopie mit einem festen zeitlichen Abstand  $\tau$  erzeugt wird. Aus diesen beiden, kurzen Pulse kann nun mit dem parallel verlaufenden, dispersive verbreiterten Puls die Summenfrequenz gebildet werden. Dabei trägt zur Frequenzkonversion nur ein quasi-monochromatischer Teil des Spektrums des langen Pulses bei, wie dies in Abbildung 2.14 illustriert ist. Aufgrund seines Chirps nimmt die zeitliche Momentanfrequenz einen annähernd linearen Verlauf und die konvertierten Pulse unterscheiden sich in ihrer jeweiligen Zentralfrequenz  $\omega_c$  bzw.  $\omega_c + \Omega$  um den sogenannten *shear*  $\Omega$ . Aus dem durch Überlagerung der beiden entstehenden Interferenz-Signal kann schließlich die spektrale Phase des Pulses rekonstruiert werden (siehe Abschnitt 2.5.2).

Der hier verwendete Aufbau [Ell03] ist in Abbildung 2.15 dargestellt. Der zu charakterisierende Puls wird an einem 6 cm langen SF 10-Glasblock in einen reflektierten und einen transmittierten Anteil getrennt. Die Fresnel-Reflexion beträgt etwa 6 % und wird in einem Mach-Zehnder-Interferometer durch zwei dünne, metallische Strahlteiler<sup>14</sup> in zwei Teilpulse aufgespalten. Der Hauptteil des Pulses durchläuft den SF 10-Block und wird dort dispersiv auf etwa 6 ps verbreitert. Zur Summenfrequenz-Mischung werden alle drei Pulskopien mit einem reflektiven Objektiv<sup>15</sup> in einen gekeilten BBO-Kristall mit einer Dicke von 10  $\mu\text{m}$  bis 50  $\mu\text{m}$  fokussiert, der eine ausreichende Bandbreite des nichtlinearen Prozesses gewährleistet. Das dort generierte, hintergrundfreie SPIDER-Signal wird mit

<sup>14</sup>Cr-Ni, Dicke 100  $\mu\text{m}$  – 150  $\mu\text{m}$

<sup>15</sup>Ealing-Coherent, NA=0.5, Vergrößerung x35,  $f = 5,4$  mm



**Abbildung 2.15:** Schematischer Aufbau des zur Puls-Charakterisierung verwendeten SPIDERS. Der Eingangspuls wird durch einen SF 10-Block stark dispersiv verbreitert. Der Fresnel-Reflex wird in einem Mach-Zehnder-Interferometer in zwei Kopien aufgeteilt, die dann zusammen mit dem geschirpten Puls mit einem reflektiven Objektiv (RO) in einen dünnen BBO-Kristall ( $10 \mu\text{m}$  -  $50 \mu\text{m}$ ) fokussiert werden. Das SPIDER-Signal wird mit einem CCD-Spektrometer untergrundsfrei aufgenommen.

einer Linse anschließend kollimiert, in einen hochempfindlichen Spektrographen<sup>16</sup> eingekoppelt und mit einer gekühlten CCD-Kamera<sup>17</sup> aufgenommen. Die Daten werden über einen GPIB-Bus ausgelesen und mit einem C++-Programm ausgewertet.

### Rekonstruktion des Pulses

Wie die nachfolgende mathematische Behandlung zeigt, enthält das so aufgenommene Interferogramm Information über die spektrale Phase des Pulses, die ohne die spektrale Verschiebung der jeweiligen Summenfrequenz-Pulse aus dem Signal herausfallen würde.

Der Eingangspuls am Spektrometer kann wie in Abschnitt 2.1 in eine Einhüllende  $A(t)$  und den Träger zerlegt werden, der mit der optischen Frequenz  $\omega_0$  oszilliert. Durch die Aufteilung im Mach-Zehnder-Interferometer und die anschließende Summenfrequenz-

<sup>16</sup>Lot-Oriel MS260i

<sup>17</sup>Andor DU420 CCI 010, 1024x255 pixel

Bildung erhält man zwei Pulskopien  $E_1$  und  $E_2$  mit

$$E_1(t) = A(t) e^{-i(\omega_c t)} \quad (2.16)$$

$$E_2(t) = A(t - \tau) e^{-i(\omega_c + \Omega)(t - \tau)} \quad (2.17)$$

Dabei wird angenommen, dass die Pulse im Vergleich zu der durch den Glasblock laufenden, gechirpten Kopie so kurz sind, dass von diesem nur ein monochromatischer Anteil zur Summenfrequenz beiträgt (siehe Abbildung 2.14). Die Zerlegung in einzelne Spektralkomponenten durch den Spektrographen entspricht mathematisch einer Fourier-Transformation der Felder  $\tilde{E}_1(\omega) = \mathcal{F}\{E_1(t)\}$  bzw.  $\tilde{E}_2(\omega) = \mathcal{F}\{E_2(t)\}$ . Aus der Überlagerung ergibt sich ein Signal der Form:

$$I_{\text{SPIDER}}(\omega) = \left| \tilde{E}_1(\omega) + \tilde{E}_2(\omega) \right|^2 \quad (2.18)$$

$$= \left| \tilde{A}(\omega - \omega_c) + \tilde{A}(\omega - \omega_c - \Omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (2.19)$$

Die komplexe Einhüllende  $\tilde{A}$  lässt sich in eine spektrale Amplitude und Phase zerlegen:

$$\tilde{A}(\omega) = \left| \tilde{A}(\omega) \right| e^{-i\Phi(\omega)} \quad (2.20)$$

Das SPIDER-Signal beinhaltet bei Auswertung von Gleichung (2.19) Informationen über die Pulsphase  $\Phi(\omega)$ :

$$\begin{aligned} I_{\text{SPIDER}}(\omega) &= \left| \tilde{A}(\omega - \omega_c) \right|^2 + \left| \tilde{A}(\omega - \omega_c - \Omega) \right|^2 \\ &+ 2 \cdot \left| \tilde{A}(\omega - \omega_c) \right| \left| \tilde{A}(\omega - \omega_c - \Omega) \right| \\ &\cdot \cos(\Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c) - \omega\tau) \end{aligned} \quad (2.21)$$

Nimmt man nun an, dass die Verschiebung  $\Omega$  im Vergleich zu der optischen Frequenz  $\omega$  sehr klein ist, ergibt sich aus der sogenannten SPIDER-Phase in guter Näherung die Ableitung der spektralen Phase des Pulses:

$$\phi_{\text{SP}}(\omega) = \Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c). \quad (2.22)$$

Mittels Integration von  $\phi_{\text{SP}}(\omega)$  erhält man dann den Phasenverlauf, allerdings im Spektralbereich der Summenfrequenz.

$$\frac{d\Phi(\omega - \omega_c)}{d\omega} \approx \frac{1}{\Omega} \int \phi_{\text{SP}}(\omega) d\omega \quad (2.23)$$

Durch die Bestimmung des sogenannten *shifts*, d. h. der Frequenz die bei der Summenfrequenz-Bildung zu den kurzen Pulsen hinzuaddiert wurde, kann die spektrale Phase in den Bereich des ursprünglichen Laserspektrums geschoben werden. Zur Rekonstruktion der spektralen Phase des Pulses kann man dem in [Tak82] vorgeschlagenen Algorithmus



gemäß Gleichung (2.21) in einen schnell oszillierenden AC-Anteil und einen langsam mit  $\omega$  veränderlichen Anteil (DC) zerlegen. Fourier-transformiert man (2.21) wieder in den Zeitbereich, kann die DC-Komponente unter der Annahme  $\Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c) \ll \omega\tau$  durch Multiplikation mit einer Filterfunktion<sup>18</sup>  $H(t)$  abgetrennt werden.

$$I_{\text{SPIDER}}^{\text{AC}}(\omega) = \mathcal{F}^{-1}(H(t - \tau) \cdot \mathcal{F}(I_{\text{SPIDER}})). \quad (2.24)$$

Aus der Phase des komplexen Signals  $I_{\text{SPIDER}}^{\text{AC}}(\omega)$  erhält man durch Abziehen des durch die Verzögerung der Pulse entstandenen Anteil  $\omega\tau$  die SPIDER-Phase und somit die Pulsphase. Zusammen mit dem separat in einem optischen Spektrumsanalysator<sup>19</sup> aufgenommenen Spektrum kann damit der Intensitätsverlauf des Pulses bestimmt werden.

Zur Bestimmung der Pulsphase müssen drei Größen genau kalibriert werden: die zeitliche Verzögerung  $\tau$  im Mach-Zehnder-Interferometer, die spektrale Differenz  $\Omega$  der beiden Pulse nach der Summenfrequenz-Bildung (*shear*) und deren gemeinsame Verschiebung (*shift*) bezüglich des ursprünglichen Spektrums. Alle drei Parameter sind für jeden Aufbau spezifisch. Die Werte müssen entsprechend den Anforderungen bezüglich Auflösung und Bandbreite aufeinander abgestimmt werden. Das Vorgehen zur Kalibration und die Auswirkung der einzelnen Parameter soll nun kurz angesprochen werden.

### Shift

Dieser Parameter bestimmt die Lage der spektralen Phase im Frequenzbereich und damit ihre Zuordnung zum Laserspektrum. Zur Messung des *shifts* kann eines der beiden Summenfrequenz-Spektren<sup>20</sup> oder auch das Betragsquadrat des Spider-Signals mit dem Original-Spektrum verglichen werden. Durch die große Bandbreite des nichtlinearen Kristalls erhält man einen fast identischen spektralen Verlauf und der Frequenz-Abstand kann durch eine Faltung der Spektren sehr gut bestimmt werden. Die bei der Kalibration auftretenden Messfehler sind daher für die Pulsmessung nicht allzu kritisch.

### Shear

Der *shear* dagegen skaliert nach Gleichung (2.23) die Amplitude der spektralen Phase und wirkt sich daher direkt auf das rekonstruierte Pulsprofil aus. Für eine genaue Bestimmung nimmt man die Summenfrequenz beider Puls kopien getrennt auf und bestimmt wieder mittels einer Faltung den Frequenz-Abstand der Spektren. Mit dieser Methode erreicht man bei guter Justage eine Genauigkeit von etwa 5%. Der bestimmte Wert kann durch dispersive Verbreiterung mittels eines Materials mit bekanntem Dispersionsverlauf wie z. B. BK 7-Glas und Vergleich mit der gemessenen Pulsphase gut überprüft werden.

---

<sup>18</sup>Im verwendeten C++-Programm wurde eine um  $\tau$  zentrierte Super-Gauß-Funktion 8. Ordnung als Filter benutzt.

<sup>19</sup> Ando AQ-6315QA

<sup>20</sup>Dies kann sehr einfach durch Blocken einer der Pulse im Mach-Zehnder-Interferometer aufgenommen werden

### Zeitverzögerung $\tau$

Um aus dem oszillierenden Anteil  $I_{\text{SPIDER}}^{\text{AC}}(\omega)$  des SPIDER-Signals die Pulsphase zu bekommen, muss die Verzögerung  $\tau$  der Pulskopien sehr genau bekannt sein. Ein Fehler  $\Delta\tau$  bei der Bestimmung dieses Wertes führt zu einem Fehler in der gemessenen Dispersion zweiter Ordnung  $\Delta\text{GDD}$ :

$$\Delta\text{GDD} = \frac{\tau}{\Omega}. \quad (2.25)$$

Das bedeutet, dass bei einem *shear*  $\Omega = 2\pi \cdot 5$  THz bereits eine Abweichung von  $\Delta\tau = 1$  fs einen Fehler von  $\Delta\text{GDD} = 32$  fs<sup>2</sup> bewirkt. Zur Kalibration dieses Parameters kann das frequenzverdoppelte Signal der kurzen Pulse benutzt werden. Dieses verläuft nicht kollinear mit dem SPIDER-Signal und kann daher auf anderem optischen Weg in den Spektrographen eingekoppelt werden<sup>21</sup>. Das auf diese Weise gemessene Interferogramm enthält keine Information über die Pulsphase. Es ist daher möglich, die Zeitverzögerung  $\tau$  damit sehr genau zu bestimmen. Die daraus rekonstruierte Phase kann auch als Referenzmessung verwendet werden, da sie die Dispersion zwischen den Interferometer-Armen des Mach-Zehnder-Interferometers enthält.

In dieser Arbeit wurde diese Kalibrations-Methode allerdings nicht angewendet. Bei den typischen Eingangs-Pulsenergien von 0.2 nJ – 1 nJ besitzen die aus einem Fresnel-Reflex gewonnenen Pulsreplika nach durchlaufen des Interferometers jeweils eine Energie, die im pJ-Bereich liegt. Das aus der Verdopplung im dünnen BBO-Kristall entstehende Interferogramm besitzt daher trotz der sehr empfindlichen CCD im Spektrographen ein schlechtes Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Daher ist das Ergebnis der  $\tau$ -Messung auf diesem Weg zu ungenau. Aus diesem Grund wurde ein anderer Ansatz zur Bestimmung dieses Parameters benutzt. Geht man davon aus, dass die Annahme  $\Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c) \ll \omega\tau$  für den zu charakterisierenden Puls gut erfüllt ist, ergibt die Transformation in den Zeitbereich ein scharf eingegrenztes Signal, dessen Maximum bei  $\tau$  liegt und sehr genau bestimmt werden kann. Gleichzeitig zur SPIDER-Messung wird der Puls mit einem interferometrischen Autokorrelator charakterisiert, mit dessen Hilfe die Dispersion zweiter Ordnung unabhängig kontrolliert und gegebenenfalls durch die Veränderung der Eindringtiefe eines Prismas minimiert werden kann. Im SPIDER kann dann der  $\tau$ -Wert entsprechend geringfügig angepasst werden, so dass sich auch hier eine minimale Pulsdauer ergibt.

---

<sup>21</sup>Durch Blockieren des gechirpten Pulses kann sicher gestellt werden, dass das SPIDER-Signal nicht mehr erzeugt wird.

# Kapitel 3

## Aufbau des Pulsformers für oktavbreite Spektren

In diesem Kapitel wird ein kurzer Überblick über die zum Zeitpunkt dieser Arbeit verwendeten Methoden zur Formung ultrakurzer Laserpulse gegeben. Das Prinzip eines LCD-Pulsformers wird dabei im Detail erläutert, da diese Art der Phasenmanipulation in dieser Arbeit benutzt wird. Die Besonderheit des entwickelten Aufbaus besteht in der Verwendung von Prismen anstelle von Gittern zur Aufspaltung der Spektralkomponenten. Dadurch konnten die Limitationen bezüglich Bandbreite und Effizienz überwunden und die Formung von oktavbreiten Spektren ermöglicht werden [Bin05]. Die Beschreibung der verwendeten Komponenten, das Vorgehen zur Kalibration und eine Abschätzung der realisierbaren Phasenverläufe bilden den Hauptteil dieses Kapitels und werden ausführlich diskutiert.

### 3.1 Methoden zur Formung ultrakurzer Laserpulse

Die gezielte Beeinflussung des Intensitätsverlauf eines Laserpulses auf einer Zeitskala von wenigen Femtosekunden ermöglicht eine Vielzahl von Anwendungen, von der Kontrolle chemischer Reaktionen [Rab00] oder Quantensystemen [Mes98a] bis hin zur CARS-Mikroskopie [Dud02]. Eine Kontrolle im Zeitbereich ist allerdings im allgemeinen aufgrund der im Vergleich zur Pulsdauer sehr viel langsameren Antwortzeiten verfügbarer Modulatoren nicht möglich. Fast alle Methoden zur Pulsformung beeinflussen daher Amplitude bzw. Phase im Frequenzraum. In diesem Abschnitt sollen kurz zwei oft verwendete Verfahren vorgestellt werden, die auf einem akusto-optischen Modulator bzw. einem deformierbaren Spiegel beruhen. In dieser Arbeit wird ein Flüssigkristall-Display zur Phasenmanipulation benutzt, weshalb dieses Prinzip im dritten Abschnitt ausführlich diskutiert wird. Für eine detaillierte Übersicht über die zahlreichen Möglichkeiten zur Formung kurzer Pulse sei auf [Wei00] verwiesen.

### 3.1.1 Akusto-optische Verfahren

Um die spektrale Phase des Pulses gezielt zu verändern, müssen die einzelnen Frequenzkomponenten separat angesprochen werden. Dazu werden sie in den im folgenden vorgestellten Methoden durch ein Prisma oder Gitter räumlich aufgespalten. Dies ist bei dem von Tournois [Tou97] entwickelten akusto-optischen, programmierbaren, dispersiven Filter (AOPDF) nicht erforderlich. Die Idee dieses Verfahrens beruht auf dem akusto-optischen Effekt [Yar84], durch den der zeitliche Verlauf einer akustischen Welle auf das optische Signal übertragen wird. Durch einen Aktuator wird eine geformte Schallwelle in einen akusto-optischen Kristall geschickt und verläuft dort kollinear zum Laserpuls, der in ordentlicher Achse mit dem Index  $n_o$  propagiert. Die damit einhergehende Dichtemodulation verursacht lokal eine induzierte Doppelbrechung im Medium. Dabei kann bei passendem räumlichen Abstand durch Phasenanpassung eine bestimmte optische Frequenz effizient in der Polarisation gedreht werden, so dass sie bei weiterer Propagation nun den außerordentlichen Index des Materials  $n_e$  erfährt. Da sich der Brechungsindex  $n_o$  und  $n_e$  unterscheiden, kann je nach Position an der diese Phasenanpassung erreicht wird, die relative Laufzeit für die Frequenzkomponenten des optischen Pulses gezielt verändert werden. Durch den Frequenzgang der laufenden akustischen Welle kann daher die spektrale Phase des Pulses manipuliert werden. Die Amplitude der akustischen Frequenzkomponenten bestimmt die Effizienz der Polarisationsdrehung und ermöglicht eine gleichzeitige Formung des Spektrums des Ausgangspulses. Mit dieser in Abbildung 3.1 illustrierten Methode ist somit sowohl Phasen- als auch Amplitudenformung realisierbar. Mit Hilfe eines kommerziell erhältlichen AOPDF<sup>1</sup> konnten auf diese Weise Pulse mit einer Dauer von 17 fs erfolgreich geformt und nahe an das Fourier-Limit komprimiert werden [Ver00].

Allerdings muss bei dieser Methode jeder Puls die selbe Situation im Kristall vorfinden. Da es sich bei dem akustischen Signal um eine laufende Welle handelt, muss der AOPDF mit dem Laserpuls synchronisiert werden. Aufgrund der Laufzeit der akustischen Welle von einigen  $\mu\text{s}$  ist die Repetitionsrate auf den kHz-Bereich beschränkt. Auch die Bandbreite der erhältlichen AOPDF ist begrenzt und liegt typischerweise im Bereich von 50 THz bei einer Effizienz von ca. 25 %<sup>2</sup>. Sie ist vor allem durch die große Dispersion des ca. 2,5 cm dicken  $\text{TeO}_2$ -Kristalls begrenzt, die durch den AOPDF kompensiert werden muss. Bei Verstärker-Systemen spielt dies beim Einsatz zwischen Oszillator und Verstärker allerdings ebensowenig eine Rolle wie die begrenzte Repetitionsrate. Daher findet diese Art der Pulsformung seine Anwendung vor allem im Bereich verstärkter Pulse mit einer Dauer von typischerweise 30 fs.

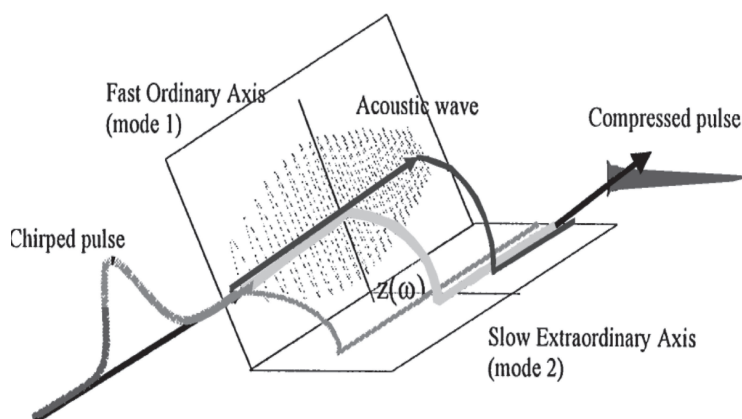
### 3.1.2 Deformierbare Spiegel

Die Pulsformung mit Hilfe eines deformierbaren Spiegels wird ähnlich wie beim AOPDF durch Laufzeit-Unterschiede zwischen den Spektralkomponenten des Pulses erreicht. Diese werden dazu durch ein Gitter oder Prisma räumlich aufgetrennt und, wie in Abbildung

---

<sup>1</sup>DAZZLER, Firma Fastlite

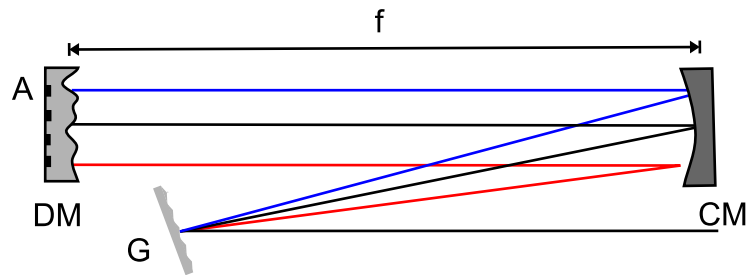
<sup>2</sup>Datenblatt DAZZLER, Firma Fastlite



**Abbildung 3.1:** Funktionsprinzip eines aksto-optischen dispersiven Filters. Der in der schnellen ordentlichen Achse (mode 1) einfallende Eingangspuls wird durch eine geformte akustische Welle ortsabhängig in der Polarisationsrichtung gedreht und propagiert in der außerordentlichen Achse (mode 2) mit anderem Brechungsindex weiter [Tou97].

3.2 dargestellt, von einer Linse oder einem Hohlspiegel auf den Spiegel abgebildet. Des- sen Oberfläche besteht aus einer sehr dünnen Membran mit einer Dicke von ca.  $1 \mu\text{m}$ , die mit einer Silber-, Aluminium- oder Goldschicht bedampft ist. Darunter befinden sich elektrostatische Aktuatoren, an die eine externe Spannung im Bereich von  $0 \text{ V} - 280 \text{ V}$  angelegt werden kann. Die Oberfläche des flexiblen Spiegels verformt sich dadurch je nach Dicke der Beschichtung um ca.  $4 \mu\text{m} - 6 \mu\text{m}$ , was bei einer Wellenlänge von  $800 \text{ nm}$  einem Phasenhub von  $20 - 30 \pi$  entspricht. Durch die begrenzte Anzahl von Aktuatoren und der Existenz eines minimalen Krümmungsradius der Membran kann der Spiegel nur für kleine Phasenkorrekturen verwendet werden. So konnte z. B. in [Zee99] ein auf  $90 \text{ fs}$  dispersiv verbreiteter Puls bis auf sein Fourier-Limit von  $15 \text{ fs}$  komprimiert werden. Für stärker gechirpte Pulse war dies allerdings bereits nicht mehr möglich. Daher ist ein dispersionsfreier Aufbau notwendig, der zur Aufspaltung der Frequenz-Komponenten Gitter einsetzt. Für große Bandbreiten ergibt sich daraus eine sehr niedrige Effizienz im Bereich von  $10 \% - 15 \%$ .

Auch wenn der zu komprimierende Puls genau charakterisiert wurde und folglich die auszugleichende spektrale Phase vorliegt, ist eine gezielte Kompensation durch Berechnung der Spannungen an den einzelnen Aktuatoren sehr schwierig. Die Verformung der Membran bei einer bestimmten Frequenzkomponente hängt aufgrund ihrer Steifigkeit nicht nur von dem direkt an dieser Stelle befindlichen Aktuator, sondern auch den benachbarten Elementen ab. Diese Kopplung setzt zur Bestimmung der notwendigen Spannungen für die direkte Phasenkompensation ein mechanisches Modell des Spiegels voraus. In der Praxis kann der Puls jedoch auf diese Weise nicht optimal komprimiert werden und die einzelnen Aktuator-Spannungen müssen durch iterative Verfahren angepasst werden [Zee99]. Für die Pulskompression werden daher evolutionäre Optimierungsalgorithmen zur Pulsverkürzung



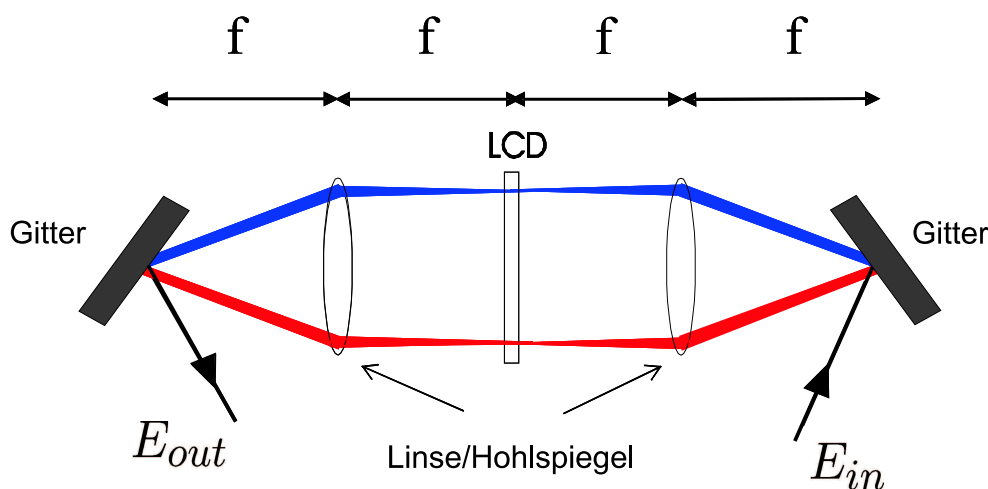
**Abbildung 3.2:** Pulsformung mit einem deformierbaren Spiegel. Der Eingangspuls wird mit einem Gitter (G) aufgespalten und die dadurch separierten Frequenzkomponenten durch einen Hohlspiegel (CM) im Abstand der Brennweite  $f$  parallel ausgerichtet. Ein Membranspiegel (DM), dessen Oberfläche durch Anlegen einer Spannung an den Aktuatoren (A) verformt werden kann, ist im Abstand  $f$  positioniert und sorgt für eine frequenzabhängige Verzögerung.

verwendet, bei denen keinerlei Kenntnisse über den Zusammenhang zwischen Verformung der Membran und den Aktuator-Spannungen nötig sind. Auf diese Weise konnte ein verformbarer Spiegel zur Korrektur der spektralen Phase eines Zwei-Zyklus-Pulses mit einer Zentralwellenlänge von ca. 600 nm erfolgreich eingesetzt werden [Bal02].

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Vorversuche zur Implementierung eines deformierbaren Spiegels mit 39 Aktuatoren als Endspiegel der Prismenstrecke im Laserresonator sowie zur externen Dispersionskompensation unternommen. Durch den hohen Kleinsignal-Gewinn des TiSa-Kristalls konnte die schlechte Reflektivität der Aluminium-beschichteten Membran im Resonator ausgeglichen und ein stabiler Laserbetrieb erreicht werden. Das Anlegen eines Spannungsmusters an die Aktuatoren führte allerdings zu einer starken Störung des Lasers, wodurch dieser in den cw-Betrieb wechselte und wieder neu gestartet werden musste. Eine Optimierung der spektralen Phase war daher nicht möglich. Ebenso waren Bemühungen, den Membranspiegel zur externen Dispersionskompensation einzusetzen, nicht erfolgreich. Der erreichbare Phasenhub war durch die geringe Anzahl von Aktuatoren und die Steifheit der Membran stark limitiert. Das zur Aufspaltung notwendige Gitter begrenzte die Effizienz auf etwa 10 %, was eine Anwendung zur Pulskompression wenig attraktiv macht. Da auch die gezielte Formung von Pulsen aufgrund der komplexen Kopplung zwischen spektraler Phase und den einzelnen Aktuator-Spannungen nur durch numerische Optimierungsverfahren erreicht werden kann, wurde dieser Ansatz nicht weiter verfolgt.

### 3.1.3 LCD-Pulsformer

In den zahlreichen Arbeiten zur Formung ultrakurzer Laserpulse, die in den letzten Jahren erschienen sind, wurde in den meisten Fällen ein Flüssigkristall-Display als Phasen- oder Amplitudenmaske eingesetzt. Die Spektralanteile des eingestrahnten Laserpulses werden bei dieser Methode durch ein dispersives Element, d. h. ein Gitter oder Prisma, in unterschied-



**Abbildung 3.3:** Standard 4-f-Aufbau zur Pulsformung mit einem Flüssigkristall-Display (LCD). Die Frequenzkomponenten des Eingangspulses  $E_{in}$  werden mit einem Gitter aufgespalten. Eine im Abstand ihrer Brennweite  $f$  platzierte Linse sorgt für die parallele Ausrichtung und eine Fokussierung des Strahls auf dem Display, das im Abstand  $f$  in der sogenannten Fourier-Ebene positioniert ist. Durch eine symmetrische Anordnung von Linse und Gitter wird das Licht wieder zu einem Ausgangsstrahl  $E_{out}$  kollimiert.

liche Propagations-Richtungen aufgespalten und dadurch räumlich separiert. Positioniert man nun im Abstand der zugehörigen Brennweite  $f$  eine Linse oder einen Hohlspiegel, werden sie wieder parallel ausgerichtet. Jede Frequenzkomponente besitzt ursprünglich näherungsweise denselben Strahldurchmesser wie der Eingangsstrahl<sup>3</sup>. Ist dieser gut kollimiert, ergibt sich nach einer weiteren Strecke  $f$  ein Zwischenfokus. In dieser sogenannten Fourier-Ebene<sup>4</sup> erhält man dadurch eine scharfe Abbildung auf eine dort platzierte Maske. Durch eine symmetrische Anordnung von Linsen und Gittern wird der Strahl wieder zusammengeführt. Ein schematischer Aufbau eines solchen 4-f-Aufbaus ist in Abbildung 3.3 dargestellt.

Bereits durch sehr einfache Schwarz-Weiss-Masken konnten Pulszüge und Schwebungen einzelner Frequenzen erzeugt werden. Die Variationsmöglichkeiten und die Flexibilität konnten durch die Benutzung eines Flüssigkristall-Displays (*liquid crystal display*, LCD) drastisch erhöht werden [Wei90]. Für die Formung von Pulsen mit einer Dauer unter 50 fs, ist es aufgrund der Dispersion und der chromatischen Aberration der Linsen notwendig, diese durch sphärische oder parabolische Spiegel zu ersetzen. Mit dieser Modifikation wurden LCD-Pulsformer zur Pulskompression der kürzesten Pulse, die im sichtbaren Spektralbereich bislang erzeugt worden sind, erfolgreich eingesetzt und ein Pulsrekord von 3.4 fs [Yam03] aufgestellt, der später auf 2.8 fs verbessert werden konnte [Yam04a].

<sup>3</sup>Der Strahldurchmesser ist bei Laserpulsen im allgemeinen abhängig von der Wellenlänge [For03].

<sup>4</sup>Die Wirkung der Linse kann als räumliche Fourier-Transformation angesehen werden.

Der Phasenhub wird bei dieser Methode durch das verwendete Display bestimmt und liegt im Bereich von einigen Vielfachen von  $\pi$ . Im Unterschied zum Membran-Spiegel kann diese Phasendifferenz zwischen benachbarten Pixeln voll ausgeschöpft werden, da die einzelnen Elemente nicht miteinander gekoppelt sind. Dadurch kann ein sehr viel stärker strukturierter Phasenverlauf und damit auch wesentlich größere Dispersion erzeugt werden. Die Anwendung eines LCD-Formers ist zudem wesentlich einfacher zu handhaben, da alle Pixel unabhängig voneinander die Phase oder Amplitude der dort auftreffenden Frequenzkomponente beeinflussen. Für die gezielte Kontrolle eines Laserpulses auf einer Femtosekunden-Zeitskala ist diese Methode daher ideal geeignet.

## 3.2 Mathematische Beschreibung der Pulsformung

Die Pulsformung kann mathematisch gesehen als lineare Filteroperation beschrieben werden. Im Zeitbereich ist dieser Filter durch seine Antwortfunktion  $H(t)$  charakterisiert, mit der der Eingangspuls  $E_i(t)$  gefaltet werden muss, um den Ausgangspuls  $E_a(t)$  zu erhalten.

$$E_a(t) = E_i(t) \circ H(t) = \int dt' E_i(t') H(t - t') \quad (3.1)$$

Um eine Modulation auf der Zeitskala des Pulses zu erreichen, ist ein entsprechend schneller Filter notwendig, der nur sehr schwer zu realisieren ist. Betrachtet man den Puls allerdings im Frequenzraum, so lässt er sich, wie in Kapitel 2.1 dargelegt, als eine Überlagerung monochromatischer Wellen mit einer festen Phasenbeziehung beschreiben. Beeinflusst man nun die komplexe spektrale Einhüllende  $\hat{E}_i(\omega)$  durch eine Filterfunktion  $H(\omega)$  gemäß

$$\hat{E}_a(\omega) = \hat{E}_i(\omega) H(\omega), \text{ mit } H(\omega) = \int dt H(t) e^{-i\omega t} \quad (3.2)$$

erhält man eine zu (3.1) analoge Beziehung, ohne dass schnelle Schaltzeiten des Filters benötigt werden. In den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde ein Flüssigkristall-Display zur Pulsformung eingesetzt. Dieses kann wie in Abschnitt 3.3.2 im Detail beschrieben sowohl zur Änderung der Amplitude als auch der Phase der Einhüllenden benutzt werden.

Um den im ersten Fall durch Abschwächen einzelner Spektralanteile resultierenden Leistungsverlust zu vermeiden, wird in dieser Arbeit eine reine Phasenmodulation verwendet. In diesem Fall ist die Filterfunktion  $H(\omega)$  mit

$$H(\omega) = e^{-i\Phi(\omega)} \quad (3.3)$$

eine rein komplexe Größe. Dabei entspricht  $\Phi(\omega)$  der durch den Filter zusätzlich auf den Puls addierten spektralen Phase.

Das Flüssigkristall-Display besteht aus einzelnen Pixeln, was zu einer diskreten Phasenfunktion führt. Bei Annahme einer konstanten spektralen Amplitude ergeben sich aus der Frequenzbreite  $df$ , die auf ein einzelnes Pixel fällt, nach Fourier-Transformation in den



Zeitbereich diskrete Replika des Ausgangspulses, die im Abstand  $\tau_m = \pm df^{-1}$  auftreten. Die Größe  $\tau_m$  wird im folgenden als Zeitfenster bezeichnet. Um mit den diskreten Phasenwerten eine Phasenfunktion ausreichend gut abzutasten, muss das Nyquist-Theorem erfüllt werden [Kie98], das in diesem Fall besagt, dass der Phasenunterschied zwischen zwei Pixeln, im folgenden auch als Pixellast bezeichnet, nicht größer als  $\pi$  werden darf.

Bisher wurde stillschweigend angenommen, dass die einzelnen Frequenzkomponenten unendlich scharf auf das Display abgebildet werden. In der Fourier-Ebene ergibt sich allerdings eine gaußförmige Intensitätsverteilung entlang des Displays (x-Richtung), deren halbe  $1/e^2$ -Breite  $x_0$  von der Größe des Eingangstrahls und den verwendeten Hohlspiegeln abhängt<sup>5</sup>. Durch die endliche Ausdehnung des Strahls ist es möglich, dass eine einzelne Frequenz auf zwei oder mehr Pixel trifft und dort jeweils eine andere Phase erfährt. Die diskrete Struktur der Maske wird mit zunehmendem Strahlradius mehr und mehr ausgeschmiert. Infolgedessen verschwinden die zeitlichen Replika zusehends und werden in räumliche Effekte konvertiert [Wef96]. Es kommt zu einer raum-zeitlichen Kopplung der Maske mit der Intensitätsverteilung der Spektralanteile des Pulses:

$$\hat{E}_a(x, \omega) = \hat{E}_i(\omega) e^{-(x-\alpha\omega)^2/x_0^2} H(x) \quad (3.4)$$

Dabei bezeichnet  $H(x) = e^{-i\Phi(x)}$  die Filterfunktion im Ortsraum und  $\alpha$  die durch die Prismen oder Gitter eingebrachte räumliche Dispersion.

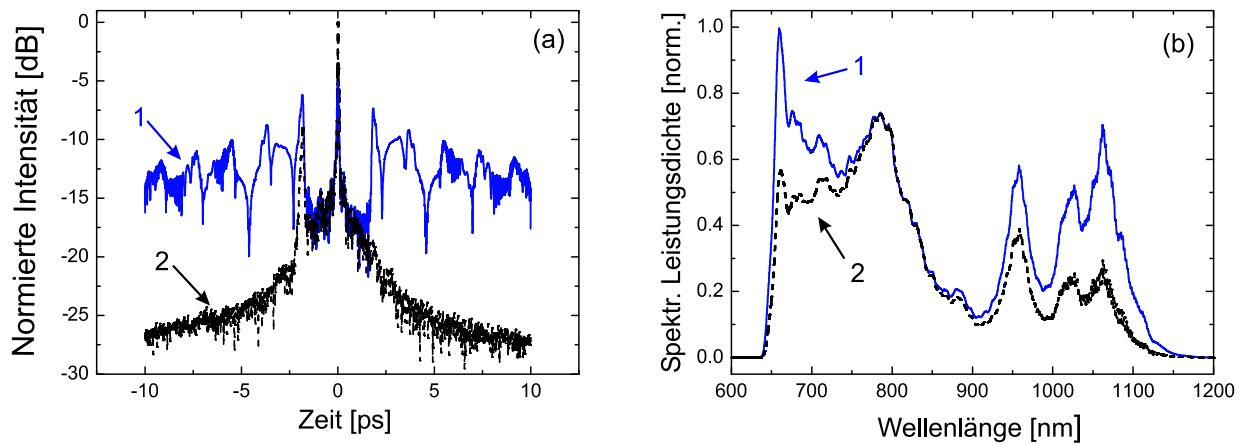
Anschaulich bedeutet dies, dass sich bei Anlegen eines Phasenverlaufs an den Pulsformer das räumliche Strahlprofil des Ausgangsstrahls ändert. Nimmt man beispielsweise an, dass die Position des Intensitätsmaximums einer Spektralkomponente genau auf der Grenze zwischen zwei Pixeln liegt, kommt es bei einem Phasenunterschied von  $\pi$  zwischen diesen Pixeln zur destruktiven Interferenz der rechten und linken Strahlhälfte entlang der optischen Achse. Eine Beschreibung der zu erwartenden Veränderung des räumlichen Strahlprofils ist in Anhang A.1 ausführlicher diskutiert.

Im Experiment kann eine Säuberung des Modenprofils durch eine räumliche Filterung mit Blenden oder durch Einkopplung in eine Faser erreicht werden. Eine Verschlechterung des Strahlprofils äußert sich in diesem Fall als phasenabhängiger Leistungsverlust des gefilterten Ausgangsstrahls. Zur Berechnung der erwarteten Pulsform wird das räumliche Profil gemäß dem von Thurston [Thu86] vorgeschlagenen Verfahren folgend in orthogonale Gaußmoden entwickelt und die TEM<sub>00</sub>-Grundmode herausprojiziert. Dadurch ergibt sich eine effektive Maskenfunktion  $H'(\omega)$  mit

$$H'(\omega) = \left( \frac{2}{\pi x_0^2} \right)^{1/2} \int dx H(x) e^{-2(x-\alpha\omega)^2/x_0^2} \quad (3.5)$$

für die die Beziehung (3.2) wieder erfüllt ist. Das elektrische Feld im Zeitbereich ist dann wieder direkt aus der Fourier-Transformation erhältlich, räumliche Effekte machen sich allein durch einen Leistungsverlust in der Grundmode bemerkbar. Bei den numerischen Berechnungen in dieser Arbeit werden die eben beschriebenen Interferenz-Effekte gemäß Gleichung (3.5) berücksichtigt und bewirken durch die auftretende Phase-zu-Amplituden Konversion eine phasenabhängige Abschwächung von Spektralanteilen.

<sup>5</sup>Im folgenden wird die halbe  $1/e^2$ -Breite des Gaußstrahls als Strahlradius definiert.



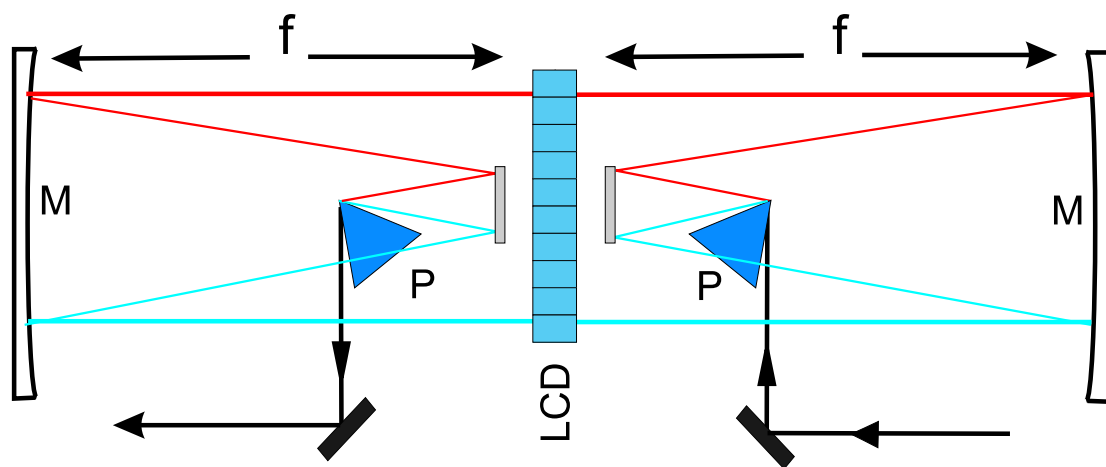
**Abbildung 3.4:** Berechneter Zeitverlauf der Intensität und Spektrum des Ausgangsstrahls bei Kompensation einer quadratischen Phase durch den Pulsformer. (a) Logarithmische Auftragung des zeitlichen Intensitätsverlaufs bei einer Fokusgröße von  $x_0 = 5 \mu\text{m}$  (1) bzw.  $x_0 = 120 \mu\text{m}$  (2). (b) Zugehöriges Spektrum, über 5 nm gemittelt.

Zur Illustration der Konversion von zeitlichen in räumliche Effekte durch die schlechtere Fokussierung ist in Abbildung 3.4(a) der berechnete Intensitätsverlauf des Ausgangspulses auf logarithmischer Skala bei einem Strahldurchmesser  $x_0 = 5 \mu\text{m}$  (blaue, durchgezogene Linie 1) bzw.  $x_0 = 120 \mu\text{m}$  (schwarze, gestrichelte Linie 2) dargestellt. Im Vergleich dazu ist das jeweils zugehörige Spektrum nach der Pulsformung in Abbildung 3.4(b) aufgezeichnet. Für die Berechnung wurden für den in Kapitel 3.3 diskutierten Aufbau relevante Parameter verwendet, unter anderem eine Pixelgröße von  $d_{pix} = 100 \mu\text{m}$ . Als Phasenfunktion am Display wurde ein rein quadratischer Verlauf angenommen, wie er zur Kompensation eines dispersiv verbreiterten Pulses typisch ist. Die außerhalb des Zeitfensters von 1,6 ps auftretenden Pulsreplika weisen daraufhin, dass im Fall eines sehr kleinen Fokus mit  $x_0 \ll d_{pix}$  die diskrete Struktur des Displays in der effektiven Maskenfunktion (3.5) weitgehend erhalten bleibt. Der rekonstruierte Puls wird von einem zeitlichen Untergrund begleitet, der allerdings um 10 dB unterdrückt ist<sup>6</sup>. Das zugehörige Spektrum wird durch Anlegen der Phase kaum verändert. Mit zunehmender Größe des Fokus verringert sich der Untergrund im Zeitbereich und die spektralen Interferenzeffekte nehmen zu. Im Fall  $x_0 = 120 \mu\text{m}$  ergibt sich ein zeitlich sehr sauberer Intensitätsverlauf, das Spektrum wird aber an den Rändern – also in Bereichen mit größeren Phasenunterschieden zwischen den Pixeln – deutlich abgeschwächt<sup>7</sup>.

Ein weiterer Effekt einer schlechten Fokussierung der Spektralkomponenten ist die Einschränkung der spektralen Auflösung  $df$  und damit des Zeitfensters des Pulsformers. Durch

<sup>6</sup>Aufgrund der nichtlinearen Frequenzaufspaltung durch die Prismen ist  $df$  nicht konstant. Es sind daher keine scharf definierten Kopien des Ursprungspulses zu erwarten (siehe auch Abschnitt 3.3.1).

<sup>7</sup>Die abgebildeten Spektren wurden mit einer typischen Spektrometer-Auflösung von 5 nm geglättet.



**Abbildung 3.5:** Schematische Darstellung des Pulsformers. Der Eingangsstrahl wird durch ein SF 59-Prisma aufgespalten, und die einzelnen Frequenzkomponenten werden durch einen Parabolspiegel mit  $f = 660$  mm parallel ausgerichtet. In der Fourier-Ebene des 4-f-Aufbaus ist das LC-Display mit 640 Pixeln positioniert. Nach Durchlaufen der Phasenmaske werden die Spektralanteile durch eine symmetrische Anordnung von Parabolspiegel und SF 59-Prisma zu einem kollimierten Ausgangsstrahl zusammengeführt.

eine höhere Anzahl von Pixeln für das gegebene Spektrum lassen sich Pulse in einem größeren Zeitbereich formen, was gleichzeitig bedeutet, dass z. B. mehr Dispersion kompensiert werden kann oder stärker strukturierte Phasenfunktionen realisierbar sind. Ein Strahldurchmesser, der die Pixelgröße deutlich überschreitet, hat eine effektive Maskenfunktion zur Folge, in der die feineren Strukturen des Displays ausgeschmiert werden, was einer Reduzierung der effektiven Pixelzahl gleichkommt.

### 3.3 Aufbau des Pulsformers

Im verbleibenden Teil dieses Kapitels soll nun der zur Formung von oktavbreiten Spektren entwickelte Pulsformer vorgestellt werden. Eine schematische Zeichnung des Aufbaus ist in Abbildung 3.5 zu sehen.

Zur räumlichen Aufspaltung des Spektrums werden hochbrechende SF 59-Prismen<sup>8</sup> verwendet. Die einzelnen Frequenzkomponenten werden durch einen silberbeschichteten, parabolischen Hohlspiegel parallel ausgerichtet, der im Abstand seiner Brennweite  $f = 660$  mm positioniert ist und einen Durchmesser von 10,5 cm (4 inch) besitzt. Um einen kleinen Einfallswinkel auf dem Hohlspiegel zu erreichen und damit den Astigmatismus so klein wie möglich zu halten, wird der von den Prismen gebrochene Strahl durch einen Planspiegel umgelenkt und mit leichtem Höhenversatz zurückreflektiert. In der Fourier-Ebene

<sup>8</sup>hergestellt von WZW optic AG

im Abstand  $f$  vom Parabolspiegel entfernt ist das Flüssigkristall-Display platziert, das die Phasenmanipulation ermöglicht. Der 4-f-Aufbau wird durch eine symmetrische Anordnung von zwei Spiegeln und eines Prismas vervollständigt. Die einzelnen Komponenten des Pulsformers werden im folgenden detailliert besprochen (siehe auch [Rit04]).

### 3.3.1 Frequenz-Aufspaltung durch Prismen

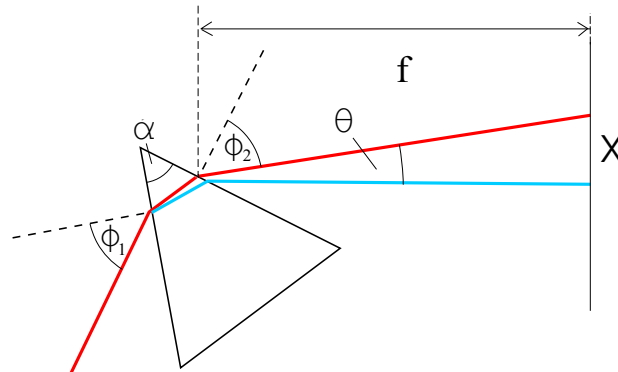
Die in den meisten Aufbauten verwendeten Gitter lassen nur eine Bandbreite bis zu einer Oktave zu, da dann verschiedene Beugungsordnungen überlappen und nicht mehr unabhängig manipuliert werden können. Zudem ist die Transmission durch den Pulsformer bei großer Bandbreite aufgrund der schlechten Beugungseffizienz der Gitter sehr gering. Mit dem vorliegenden Spektrum variiert die Reflektivität der kommerziell erhältlichen Gitter über das gesamte Spektrum gesehen sehr stark und liegt im Mittel typischerweise bei etwa 40 %. Daher ist bei zweifacher Reflexion eine Effizienz des Pulsformers von unter 15 % zu erwarten, ohne dass dabei zusätzliche Verluste durch die metallischen Spiegel oder das Display berücksichtigt wurden. Für eine Anwendung zur Pulskompression ist ein solcher Aufbau daher nur bedingt geeignet.

Aus diesen Gründen wurden in dieser Arbeit SF 59-Prismen verwendet, die eine Aufspaltung durch den frequenzabhängigen Brechungsindex bewirken. Sie besitzen eine hohe Transparenz von über 98 % in einem sehr breiten Spektralbereich von 550 nm – 2000 nm und heben somit die Beschränkung der formbaren Bandbreite weitgehend auf. Der Aufbau ermöglicht dadurch auch eine hohe Effizienz, die bei Durchgang durch den in Abbildung 3.5 dargestellten Teil der Anordnung bis zu 70 % beträgt. Allerdings erkaufte man sich diese Vorteile durch die hohe Materialdispersion der Prismen, durch die der Puls bei Durchgang durch den Pulsformer sehr stark dispersiv verbreitert wird. Das verwendete SF 59 hat einen sehr hohen Dispersionskoeffizienten 2. Ordnung von  $295 \text{ fs}^2/\text{mm}$  bei einer Wellenlänge von 800 nm, was in etwa dem 8-fachen Wert von Quarzglas entspricht. Dieses Problem konnte durch eine Vorkompensation gelöst werden (siehe Kapitel 3.3.4).

Um mit dem aufgespaltenen Laserspektrum das 63,7 mm breite Display vollständig auszuleuchten und gleichzeitig die Brennweite der Spiegel nicht zu groß werden zu lassen, sind stark brechende Prismen notwendig. Dabei lässt sich die durch die Prismen verursachte, wellenlängenabhängige Ablenkwinkel  $\Phi_2(\lambda)$  mit Hilfe des Snellius'schen Brechungsgesetzes leicht berechnen:

$$\phi_2(\lambda) = \arcsin \left( n(\lambda) \sin \left( \alpha - \arcsin \left( \frac{\sin(\phi_1)}{n(\lambda)} \right) \right) \right). \quad (3.6)$$

Das in Abbildung 3.6 dargestellte SF 59-Prisma ist dabei für einen Einfall unter dem Brewster-Winkel bei 800 nm von  $\Phi_1 = 62,4^\circ$  geschnitten und besitzt daher einen Apex-Winkel  $\alpha = 55,1^\circ$ . Der Brechungsindex  $n(\lambda)$  unterscheidet sich am kurzwelligen Ende des Spektrums bei 600 nm mit  $n(600 \text{ nm}) = 1.95$  stark von dem am langwelligen Ende bei 1200 nm mit  $n(1200 \text{ nm}) = 1.90$ . Mit diesen beiden Werten lässt sich aus dem Winkel  $\theta$  die Breite  $\Delta x$  des Spektrums im Abstand  $f$  berechnen. Für die gewählte Brennweite der

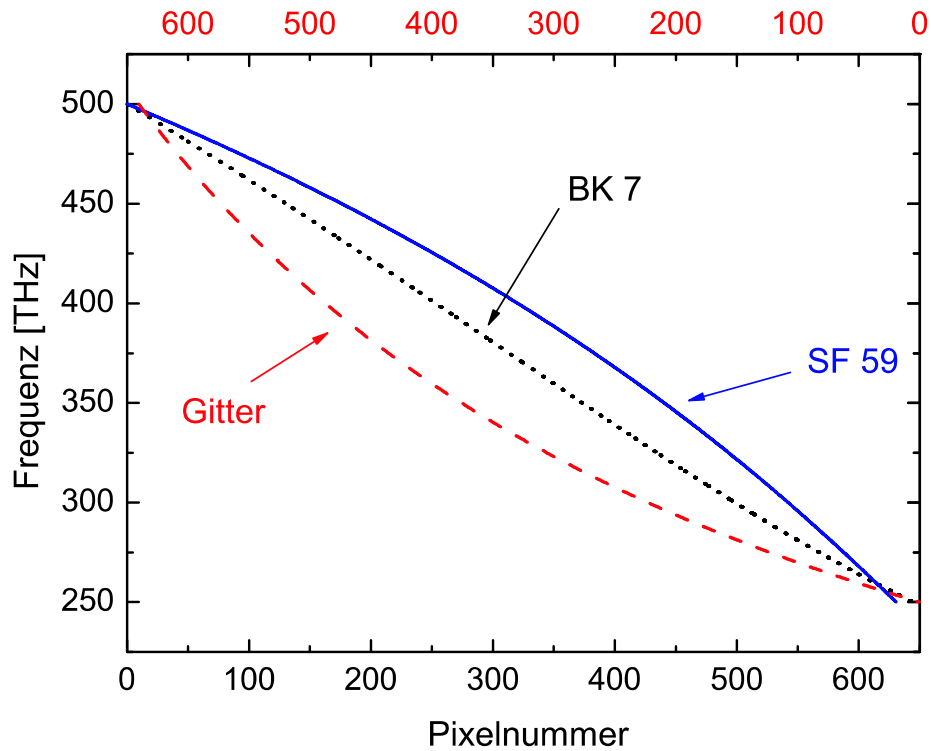


**Abbildung 3.6:** Aufspaltung des Laserstrahls durch ein Prisma. Aufgrund des frequenzabhängigen Brechungsindex wird der unter dem Einfallswinkel  $\Phi_1$  auftreffende Strahl unter unterschiedlichen Winkeln  $\Phi_2$  gebrochen und es kommt zu einer Winkeldispersion mit einem maximalen Winkel  $\Theta = \Phi_{2,\max} - \Phi_{2,\min}$ .

Spiegel von  $f = 660$  mm ergibt sich eine Breite  $\Delta x = 63$  mm, die sehr gut mit der Apertur des LCD übereinstimmt.

Beim Design des Aufbaus kann prinzipiell auch ein anderes Prismenmaterial verwendet werden, das weniger Dispersion in den Puls einbringt. SF 10-Prismen z. B. besitzen mit  $160 \text{ fs}^2/\text{mm}$  nur einen halb so großen Dispersionskoeffizienten wie SF 59, allerdings ist zur Auffächerung des Spektrums auf  $63,7$  mm bereits eine Brennweite von  $1800$  mm notwendig. Dabei gilt es zu beachten, dass für einen gleichbleibend guten Fokus auf dem Display bei doppelter Brennweite auch ein doppelt so großer Durchmesser des Eingangsstrahls erforderlich ist. Dadurch vergrößert sich die Eindringtiefe der Prismen, und die aufsummierte Dispersion erhöht sich auf etwa denselben Wert wie im Fall eines hochbrechenden Materials. Eine Alternative zu den SF 59-Prismen kann in einer Vier-Prismen-Anordnung [Pro92] aus SF 10 gesehen werden, mit der bei einem Abstand von  $1150$  mm eine Breite  $\Delta x = 640$  mm erreicht werden kann.

Die in Gleichung (3.6) gegebene Aufspaltung durch die Prismen führt zu einer nichtlinearen Verteilung der Frequenzkomponenten entlang der x-Koordinate des Displays. Dadurch kommt es zu einer geringeren Frequenzbreite pro Pixel  $df_1$  am oberen Ende des Frequenzbereichs als für den unteren mit  $df_2 > df_1$ . Das Zeitfenster des Pulsformers wird infolgedessen durch  $df_2$  limitiert und die Verluste durch Interferenzeffekte werden für langwellige Spektralanteile durch die schlechtere Abtastung und damit den größeren Phasenunterschied zwischen den Pixeln tendenziell stärker zu Buche schlagen. Aufgrund dieser Einschränkung ist ein möglichst linearer Verlauf wünschenswert. Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 3.7 der Frequenzgang für ein Gitter mit einer Strichzahl von  $150 \text{ mm}^{-1}$ , Prismen aus SF 59 und aus BK 7 berechnet.



**Abbildung 3.7:** Vergleich der Frequenzabbildung auf das Display durch verschiedene, dispersive Elemente. Während sich bei BK 7 als Prismen-Material (Abstand  $f$  zum Display 480 cm) ein sehr linearer Verlauf ergibt, ergibt sich im Fall der verwendeten SF 59-Prismen ( $f = 66$  cm) eine gekrümmte Kurve, was zu einer nicht-konstanten Frequenzbreite  $df$  pro Pixel führt. Bei der Verwendung von Gittern (Strichzahl 150/mm,  $f = 50$  cm) ist die Krümmung noch stärker. (Die Pixelnummerierung wurde zum besseren Vergleich für diesen Fall umgekehrt.)

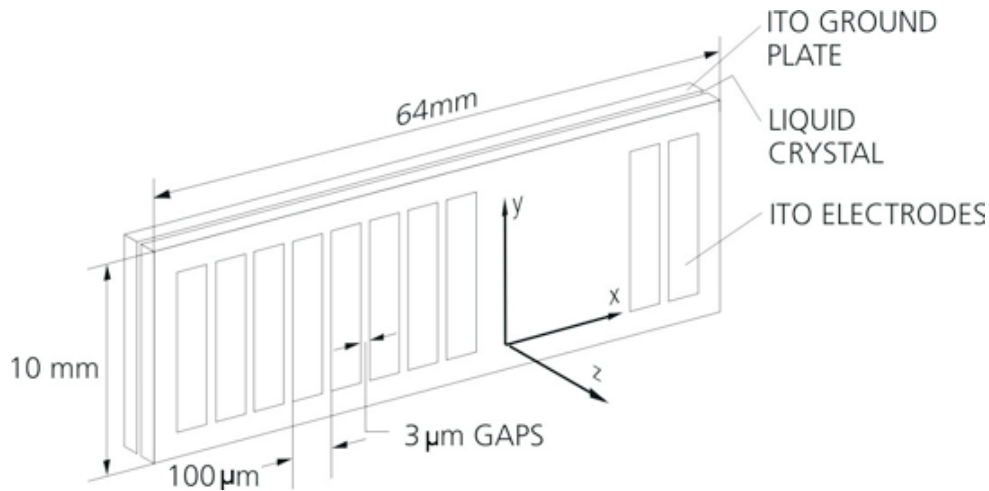
### Grenzen des Pulsformer-Aufbaus

Mit den verwendeten SF 59-Prismen ergeben sich an den spektralen Rändern Frequenzbreiten von  $df_1 = 0.2$  THz bei  $f_1 = 500$  THz bzw.  $df_2 = 0.6$  THz bei  $f_2 = 250$  THz. Mit diesen Werten kann durch zwei einfache Überlegungen die maximal erreichbare GD und GDD abgeschätzt werden, die mit diesem Pulsformer erreichbar sind.

Die maximale Steigung einer linearen Phasenkurve, die innerhalb des Nyquist-Limits abgetastet werden kann, ist durch den Phasenunterschied  $\Delta\Phi_{\max} = \pi$  pro Frequenzintervall  $\Delta\omega_{\max} = 2\pi df_{\max}$  bestimmt:

$$GD_{\max} = \frac{\Delta\Phi_{\max}}{\Delta\omega_{\max}} = \frac{1}{2df_{\max}}. \quad (3.7)$$

Es ergibt sich mit einer Frequenzbreite  $df_{\max} = df_2 = 0.6$  THz eine maximale Gruppenverzögerung von  $GD_{\max} = 800$  fs. Durch Anlegen von Geraden mit unterschiedlichem Vorzeichen können Spektralanteile daher um 1.6 ps gegeneinander verzögert werden.



**Abbildung 3.8:** Schematische Darstellung des Flüssigkristalldisplays. Auf einer Gesamtbreite von 64 mm sind 640 Pixel mit einer Breite von  $97 \mu\text{m}$  angeordnet, die durch einen Spalt (*Gap*) von  $3 \mu\text{m}$  getrennt sind [Jen03].

Zur Abschätzung der maximalen GDD wird ein rein quadratischer Verlauf angenommen, bei dem der Phasenunterschied mit dem Abstand zur Zentralfrequenz linear zunimmt. Mit einer Bandbreite  $\Delta F = f_1 - f_2$  ergibt sich aus dem maximalen GD die Beziehung

$$\text{GDD}_{\max} = 2 \frac{\text{GD}_{\max}}{2\pi\Delta F} = \frac{1}{2\pi\Delta F d f_{\max}} \quad (3.8)$$

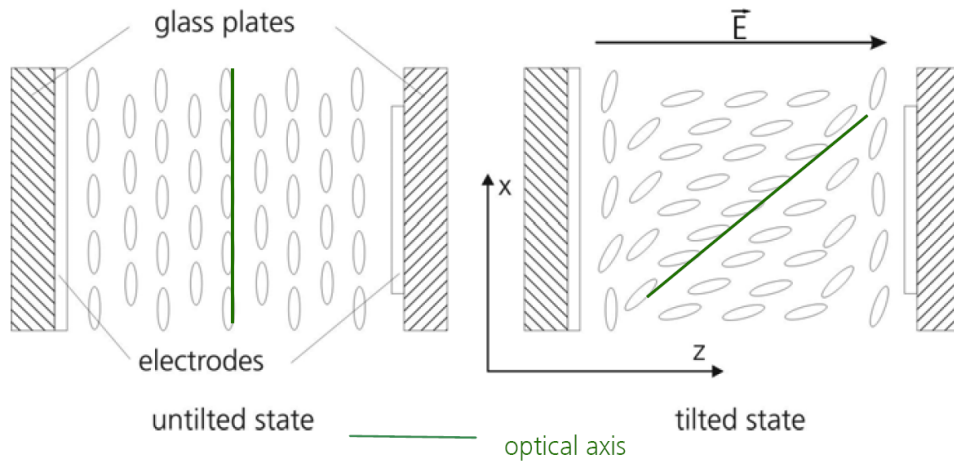
woraus sich mit  $\Delta F = 250 \text{ THz}$  ein Wert von etwa  $1000 \text{ fs}^2$  errechnen lässt. Beschränkt man die Bandbreite der Pulsformung auf Frequenzen größer als  $300 \text{ THz}$ , kann dieser Wert auf das Doppelte gesteigert werden, da aufgrund der nichtlinearen Frequenzauflösung die Phasendifferenz zwischen benachbarten Pixeln im langwelligen Spektralbereich bereits deutlich früher die Obergrenze von  $\pi$  erreicht.

### 3.3.2 Flüssigkristall-Display

Zur Phasenmanipulation der Pulse wird ein Flüssigkristall-Display<sup>9</sup> mit 640 Pixeln benutzt, das in Abbildung 3.8 schematisch aufgezeichnet ist. Die einzelnen Elemente sind  $97 \mu\text{m}$  breit und durch einen  $3 \mu\text{m}$  großen Zwischenraum getrennt.

Jede Zelle besteht aus zwei transparenten Elektroden, zwischen denen sich die länglichen Moleküle eines nematischen Flüssigkristalls befinden. Durch eine externe Spannung, die mit 12-Bit Auflösung durch eine serielle Schnittstelle angelegt werden kann, ist es möglich, die Ausrichtung der langen Achse der Moleküle entsprechend Abbildung 3.9 zu reversibel zu drehen.

<sup>9</sup>SLM-S 640/12, Firma Jenoptik LOS



**Abbildung 3.9:** Aufbau eines Flüssigkristall-Elementes. Durch Anlegen einer Spannung an die Elektroden werden die Kristalle aus ihrer Gleichgewichtslage gedreht [Jen03].

Die Flüssigkristalle sind aufgrund der unterschiedlichen Polarisierbarkeit entlang der Achsen doppelbrechend, und der Brechungsindex kann analog zu einem einachsigen-doppelbrechenden Kristall durch einen ordentlichen  $n_o$  und einen außerordentlichen Index  $n_e$  beschrieben werden. Die Drehung der Kristalle erfolgt dabei in der  $x$ - $z$ -Ebene, wie dies in Abbildung 3.9 illustriert ist. Ist das eingestrahelte Laserlicht in  $y$ -Richtung polarisiert, so erfährt es unabhängig von der Spannung  $U$  den Index  $n_e$ . Bei einem Polarisationsvektor parallel zur  $x$ -Achse ist der effektive Brechungsindex  $n_{\text{eff}}$  gegeben durch die Beziehung

$$\frac{1}{n_{\theta}^2(U, \lambda)} = \frac{\cos^2 \theta(U)}{n_e^2(\lambda)} + \frac{\sin^2 \theta(U)}{n_o^2(\lambda)}, \quad (3.9)$$

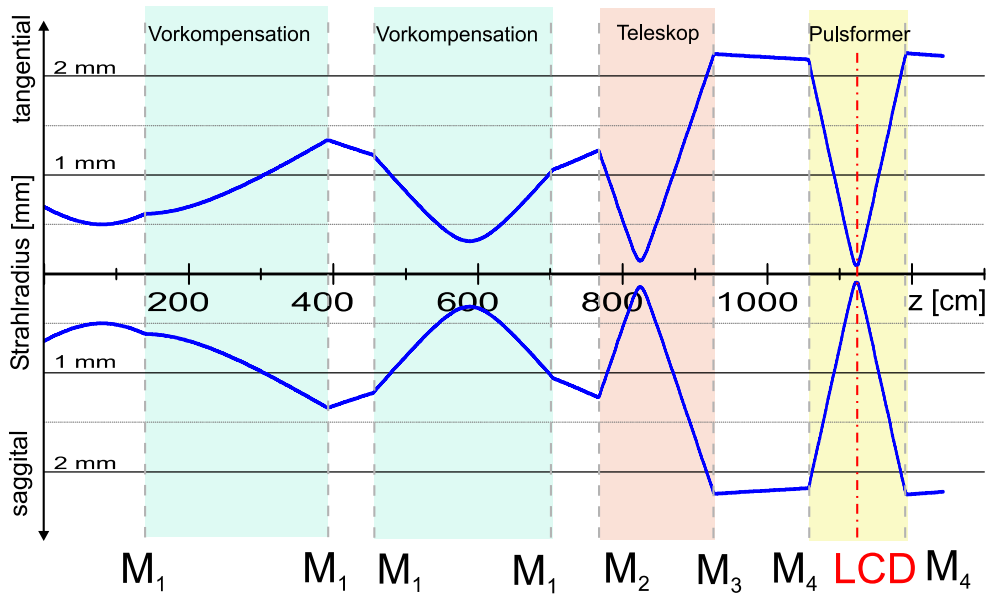
wobei  $\theta$  den spannungsabhängigen Drehwinkel der Kristallachse bezeichnet. Wählt man die Polarisation linear unter  $45^\circ$  zur  $x$ -Achse, so kommt es durch Anlegen einer Spannung zur Polarisationsdrehung, was entweder für die sogenannte Polarisations-Pulsformung [Bri01] oder durch Platzierung eines Polarisators hinter dem Display zur Amplitudenmodulation benutzt werden kann. Zur reinen Phasenmodulation muss der Laser parallel zur  $x$ -Achse polarisiert sein.

Nach Gleichung (3.9) ergibt sich für eine bestimmte Wellenlänge  $\lambda$  bei Durchgang durch die Zelle der Dicke  $d$  eine Phasenverzögerung  $\Gamma(U)$  von

$$\Gamma(U, \lambda) = \frac{2\pi d}{\lambda} n_{\theta}(U, \lambda). \quad (3.10)$$

Für die Pulsformung ist allein die relative Phase zwischen den Spektralkomponenten entscheidend, die proportional zum Brechungsindexunterschied  $\Delta n(U, \lambda) = n_{\theta}(U, \lambda) - n_o(\lambda)$  ist. Bei der großen Bandbreite muss die Spannungsabhängigkeit der Phase in Abhängigkeit von der Wellenlänge umgerechnet werden (siehe Abschnitt 3.3.5).





**Abbildung 3.10:** Berechneter Strahlverlauf des Laserstrahls nach dem Oszillator. Der Hohlspiegel  $M_1$  ( $f = 2000$  mm) vor der Vorkompensation sorgt für einen gleichbleibenden Strahlradius, der durch ein Teleskop aus  $M_2$  ( $f = 500$  mm) und  $M_3$  ( $f = 1000$  mm) auf eine Größe von 2 mm aufgeweitet wird. Mit den Parabolspiegel  $M_4$  ( $f = 660$  mm) kann dadurch im Fokus ein Radius von  $x_0 = 90$   $\mu\text{m}$  auf dem Display (LCD) erzeugt werden.

### 3.3.3 Fokussierung

Durch die große räumliche Dispersion der SF 59-Prismen konnte die Brennweite der Spiegel mit  $f = 660$  mm relativ gering gehalten werden. Eine einfache Abschätzung für einen gaußschen Strahl mit einer Eingangsgröße  $x_1$  ergibt im Abstand  $f$  eine Fokusgröße  $x_0$  mit

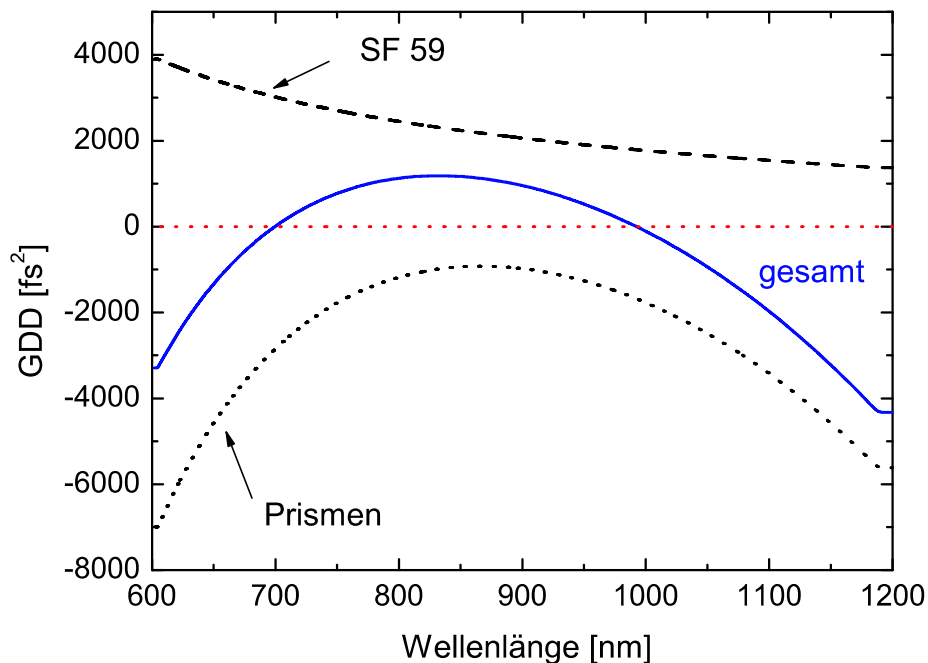
$$x_0 = \frac{\lambda f}{\pi x_1}. \quad (3.11)$$

Daraus lässt sich folgern, dass die kompakte Bauweise für eine gute Fokussierung in der Fourier-Ebene sehr hilfreich ist. Trotzdem muss bei einer Pixelgröße von nur  $100$   $\mu\text{m}$  ein relativ großer Eingangsstrahl verwendet werden, was den Bemühungen die Materialdispersion möglichst gering zu halten, entgegen läuft.

Die im Experiment gewählte Strahlführung ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Dabei wurde der komplette Verlauf der Strahlparameter nach Austritt aus dem Oszillator inklusive der in Abschnitt 3.3.4 vorgestellten Vorkompensation berechnet<sup>10</sup>.

Es zeigt sich, dass der Strahl vor dem Pulsformer auf einen Radius von 2 mm aufgeweitet werden muss, um auf dem LCD einen Fokusradius von  $x_0 = 90$   $\mu\text{m}$  zu erreichen. Mit

<sup>10</sup>Für die Berechnung wurde das Programm Winlase V2.1 Professional verwendet.



**Abbildung 3.11:** Berechneter Dispersionsverlauf der SF 59-Prismen und der Vorkompensation. Dazu wurden 8 mm insgesamt durchlaufenes SF 59-Material sowie ein Apex-Abstand der Quarzglas-Prismen von 1200 mm und ein zweimaliger Durchgang durch die Prismenstrecke angenommen.

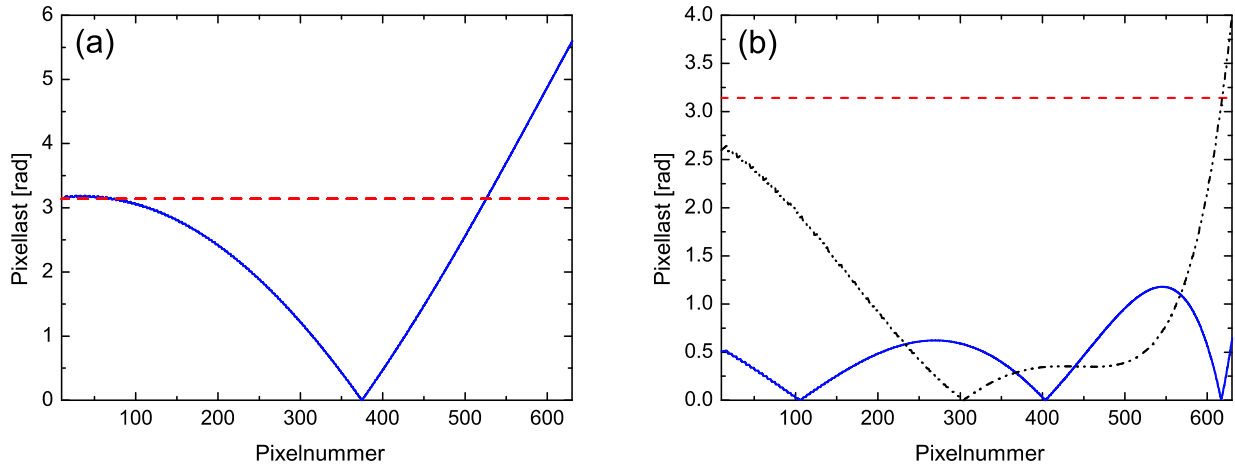
diesen Parametern wurde ein Kompromiss gewählt, durch den die volle 50 %-Breite des Laserstrahls mit  $x_{1/2} \approx 100 \mu\text{m}$  der Pixelgröße entspricht und daher Interferenz-Effekte durch Anlegen einer Phasenfunktion noch nicht in nennenswertem Ausmaß auftreten.

Zur Aufweitung des Eingangsstrahls wurde ein Teleskop aus zwei Hohlspiegeln (Brennweite  $f = 1000 \text{ mm}$  bzw.  $f = 500 \text{ m}$ ) im Abstand von 1580 mm verwendet und der Strahlradius mit Hilfe eines Strahlvermessungsgerätes<sup>11</sup> überprüft. Die gemessene Fokusgröße von  $89 \mu\text{m}$  am Ort des Displays stimmt sehr gut mit den berechneten Werten überein.

### 3.3.4 Vorkompensation der Materialdispersion

Durch den Strahldurchmesser von 4 mm an der Position der Prismen ist eine große Eindringtiefe erforderlich und es muss bei Durchgang durch den Pulsformer eine Dispersion von  $2360 \text{ fs}^2$  bei 800 nm kompensiert werden. Zum Ausgleich des in Abbildung 3.11 aufgezeichneten Dispersionsverlaufs muss ein Phasenmuster angelegt werden, das dicht an die in Abschnitt 3.3.2 abgeschätzten Grenzen des Aufbaus stößt und diese am langwelligen Rand sogar überschreitet. Die Pixellast, die im folgenden die Phasendifferenz zwischen be-

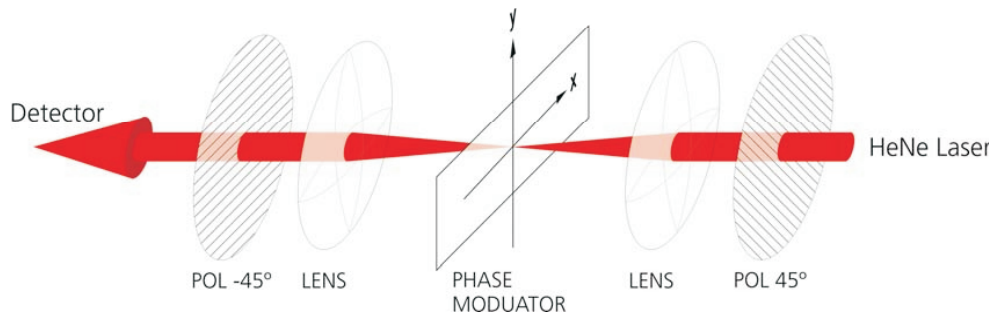
<sup>11</sup>Beammaster BM-7, Firma Coherent



**Abbildung 3.12:** (a): Berechnete Pixellast auf dem Display bei Kompensation von 8 mm SF 59. (b): Vergleich zweier Vorkompensations-Möglichkeiten mit einer doppelt-durchlaufenen Quarzglas-Prismenstrecke, die einmal auf minimale GDD bei 800 nm (Apex-Abstand 1500 mm, gepunktete, schwarze Kurve) oder im anderen Fall auf Minimierung der mittleren GDD (Apex-Abstand 1200 mm, blaue, durchgezogene Linie) ausgelegt ist.

nachbarten Pixeln bezeichnet, ist damit im Mittel bereits sehr hoch, wie dies in Abbildung 3.12(a) zu sehen ist.

Als obere Grenze ist dabei ein Wert von  $\pi$  eingezeichnet, da bei größeren Differenzen das Sampling-Theorem verletzt wird und der gewünschte Verlauf der Phase nicht mehr ausreichend durch die diskrete Phasenfunktion abgetastet wird. Bereits unterhalb dieser Grenze treten allerdings unerwünschte Interferenzeffekte auf (siehe auch Anhang A.1), weshalb ein möglichst niedriger Wert der Pixellast angestrebt werden sollte. Dies kann durch eine Vorkompensation mit einer Quarzglas-Prismenstrecke erreicht werden, die darauf ausgelegt ist, die Dispersion zweiter Ordnung des Aufbaus auszugleichen. Höhere Ordnungen können dann sehr gut durch den Pulsformer selbst kompensiert werden. Dabei kann entweder eine Konfiguration gewählt werden, bei der die GDD bei der Zentralwellenlänge (Apex-Abstand 1500 mm) oder der Mittelwert der GDD für das gesamte Spektrum (Apex-Abstand 1200 mm) ausgeglichen wird. In beiden Konfigurationen wird die Prismenstrecke doppelt durchlaufen, um den Apex-Abstand und die Prismengröße nicht zu groß werden zu lassen. Die resultierende Pixellast für beide Varianten ist in Abbildung 3.12 im Vergleich aufgezeichnet. Es zeigt sich, dass ein Prismenabstand von 1200 mm einen deutlich gleichmäßigeren Verlauf auf niedrigerem Niveau aufweist und daher die vorteilhaftere Lösung darstellt. Der Phasenverlauf der Prismenstrecke und die resultierende Gesamtdispersion des Pulsformer-Aufbaus ist in Abbildung 3.11 zu sehen.



**Abbildung 3.13:** Anordnung zur Phasenkalibration. Die Linsen fokussieren den monochromatischen Eingangsstrahl auf das Display, das sich zwischen gekreuzten Polarisatoren befindet, die für eine phasenabhängige Transmission sorgen [Jen03].

### 3.3.5 Kalibration des Pulsformers

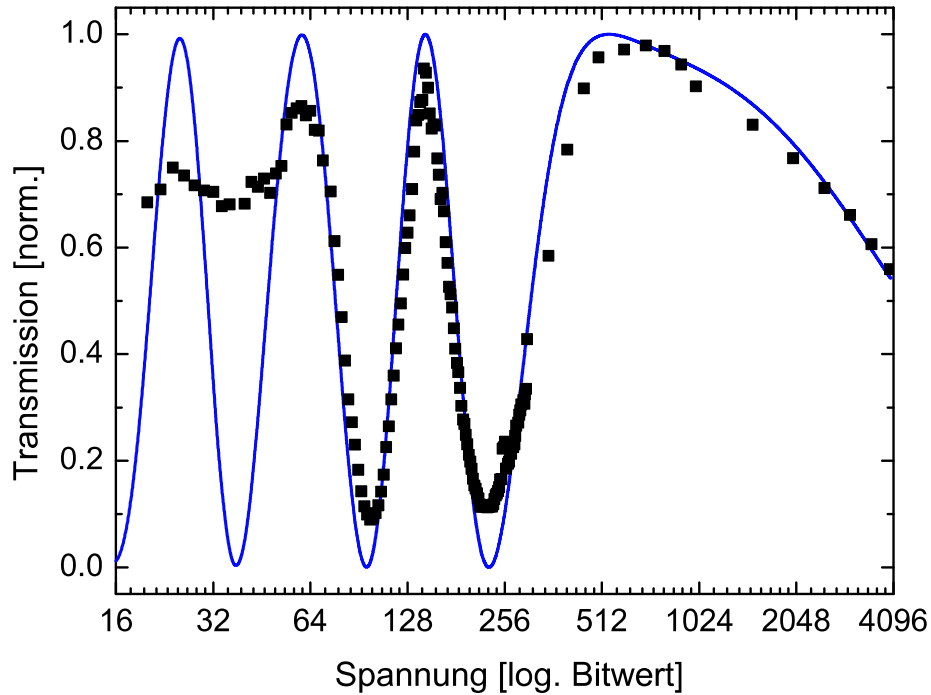
In der Mehrzahl der Arbeiten, die in den letzten Jahren zur Formung ultrakurzer Laserpulse erschienen sind, wird ein adaptiver Ansatz verfolgt. Das gewünschte Resultat wie z. B. die Minimierung der Pulsdauer oder die Maximierung eines Reaktionsprodukt wird durch iterative Anpassung der Phasenfunktion am Pulsformer erreicht. Dabei wird oft ein evolutionärer Algorithmus [Bau97] verwendet, der die vom Experiment gelieferte Zielfunktion durch geschickte Kombination und Variation von Spannungsmustern am LCD schrittweise optimiert. Bei dieser Vorgehensweise ist keinerlei genauere Kenntnis der tatsächlichen Pulsphase nötig. Allerdings ist es dadurch nur schwer möglich, die physikalischen Mechanismen zu identifizieren, die zur Optimierung der Zielgröße führen.

Im Unterschied dazu wird in der vorliegenden Arbeit eine direkte Kontrolle der Phasenfunktion angestrebt. Neben einer präzisen Charakterisierung der Pulse durch den in Kapitel 2.5.2 vorgestellten SPIDER ist auch eine genaue Kalibration des Pulsformers erforderlich. Um eine definierte Änderung der spektralen Phase bei einer bestimmten Frequenz zu erreichen, muss eine Zuordnung zwischen der angelegten Spannung und dem dadurch verursachten Phasenhub erfolgen und gleichzeitig bekannt sein, welche Frequenz auf welche Pixelnummer abgebildet wird.

#### Bestimmung des Phasenhubes

Wie in Abschnitt 3.3.2 erläutert hängt der Brechungsindex eines LCD-Elements von dem spannungsabhängigen Drehwinkel der Flüssigkristalle ab. Dadurch ergibt sich ein Phasenunterschied zwischen in ordentlicher (Brechungsindex  $n_o$ ) und in außerordentlicher Achse (Brechungsindex  $n_\theta(U, \lambda)$ ) polarisiertem Licht:

$$\Delta\Gamma(U, \lambda) = \frac{2\pi d}{\lambda} \Delta n(U, \lambda), \text{ mit } \Delta n(U, \lambda) = n_\theta(U, \lambda) - n_o(\lambda) \quad (3.12)$$



**Abbildung 3.14:** Gemessene Transmissionskurve bei 800 nm in Abhängigkeit der angelegten Spannung am Pixel.

Die Funktion  $\Delta n(U, \lambda)$  kann laut technischer Dokumentation [Jen03] in einen rein Wellenlängen- und einen spannungsabhängigen Teil separiert werden:

$$\Delta n(U, \lambda) = \Delta n(\lambda) \cdot f(U) \quad (3.13)$$

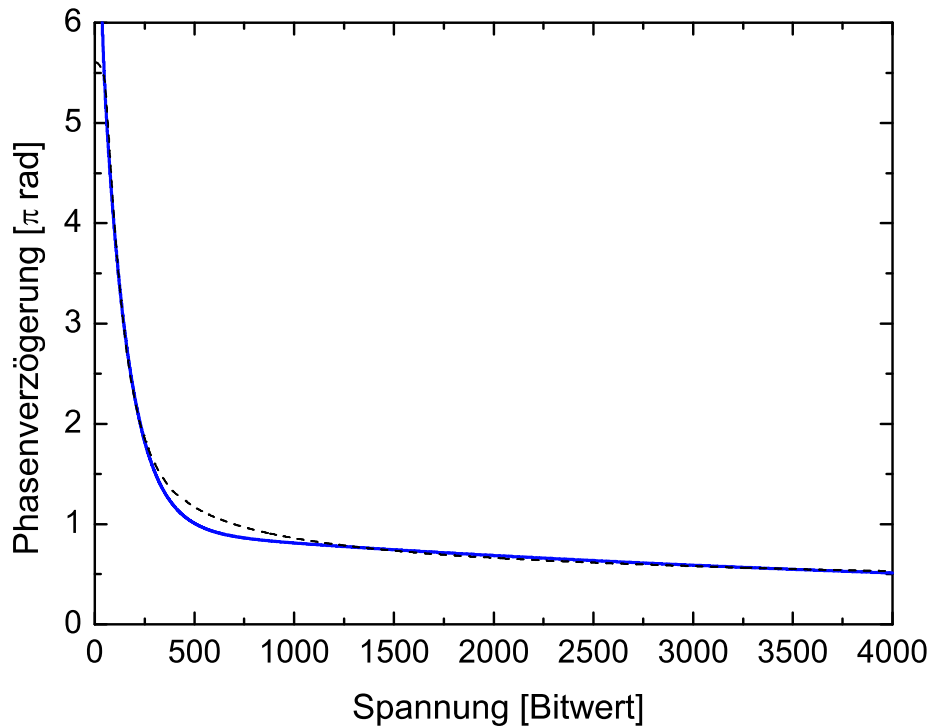
Dadurch ist es möglich, die Spannungsabhängigkeit der Phasendifferenz für eine Wellenlänge  $\lambda_m$  zu bestimmen und bei bekanntem Verlauf von  $\Delta n(\lambda)$  für das gesamte Spektrum umzurechnen:

$$\Delta \Gamma(U, \lambda) = \Delta \Gamma(U, \lambda_m) \frac{\lambda_m}{\lambda} \frac{\Delta n(\lambda)}{\Delta n(\lambda_m)} \quad (3.14)$$

Die zur Bestimmung der Funktion  $\Delta n(\lambda)$  notwendigen Sellmeier-Koeffizienten können den Hersteller-Angaben entnommen werden [Jen03].

Um die durch Anlegen einer Spannung verursachte Phasenänderung  $\Delta \Gamma(U, \lambda_m)$  zu messen, kann der in Abbildung 3.13 gezeigte Aufbau verwendet werden. Dabei wird das anfänglich p-polarisierte Licht<sup>12</sup> durch einen Polarisator auf die Winkelhalbierende der y- und x-Achse projiziert und durch einen um 90° gedrehten zweiten Polarisator gefiltert. Für

<sup>12</sup>Polarisation parallel zur x-Achse



**Abbildung 3.15:** Aus der Transmissionsmessung (Abbildung 3.14) bestimmter Phasenhub bei 800 nm in Abhängigkeit von der Pixelspannung (blaue durchgezogene Linie). Im Vergleich dazu ist die aus den Kalibrationsdaten des Herstellers umgerechnete Phase dargestellt (schwarze, gestrichelte Linie).

die Transmission  $T$  durch diese Anordnung ergibt sich dann:

$$T(U, \lambda_m) = \sin^2 \left( \frac{\Delta\Gamma(U, \lambda_m)}{2} \right), \quad (3.15)$$

wobei die maximale Transmission durch den Aufbau auf 1 normiert wurde. Aus der Umkehrfunktion kann unter Berücksichtigung der Periodizität der Sinus-Funktion der Phasenhub bestimmt werden:

$$\Delta\Gamma(U, \lambda_m) = 2k\pi \pm 2 \arcsin \sqrt{T(U, \lambda_m)}, \text{ mit } k \in \mathbf{N}. \quad (3.16)$$

Auf diese Weise kann prinzipiell für das gesamte Spektrum eine Messung der Spannungsabhängigkeit durchgeführt werden, ohne dass eine Umrechnung einer Kalibrationsmessung auf andere Wellenlängen nötig wäre. Dazu werden in den Pulsformer zwei Polarisatoren gemäß Abbildung 3.13 eingebracht und alle Pixel auf den selben Spannungswert gesetzt. Das Spektrum am Ausgang wird jeweils mit einem Spektrometer<sup>13</sup> aufgenommen und anschließend die relative Transmission für jede Wellenlänge in Abhängigkeit der Spannung  $U$

<sup>13</sup>Optischer Spektrumsanalysator Ando AQ-6315QA

berechnet. Das Ergebnis dieser Messung bei 800 nm ist in Abbildung 3.14 dargestellt. Die daraus mit Gleichung (3.16) bestimmte Phasenverzögerung ist in Diagramm 3.15 abgebildet und stimmt sehr gut mit der von Jenoptik zur Verfügung gestellten Kalibrationskurve überein.

Bei dieser Messung sind allerdings sehr kleine Spannungsschritte erforderlich, um den stark modulierten Verlauf der Transmissions-Kurve gut abzutasten. In der daraus resultierenden langen Messzeit von über einer Stunde muss die Laserleistung und das Spektrum sehr stabil sein, um das Ergebnis nicht zu verfälschen. Die mitgelieferten Polarisatoren sind zudem für eine Kalibration des Aufbaus ungeeignet, da die Bandbreite auf einen Bereich von 700 nm bis 850 nm begrenzt ist. Für die Computeransteuerung des LC-Displays wurden deshalb die Umrechnung der Kalibrationsdaten laut (3.14) verwendet.

Für die Phasenmodulation wird das Laserlicht im Unterschied zur Kalibrationsmessung mit einer Polarisation entlang der x-Richtung eingestrahlt. Der in diesem Fall auftretende Phasenhub  $\Gamma(U)$  unterscheidet sich allerdings nur um den spannungsunabhängigen Anteil  $\Gamma_0$ :

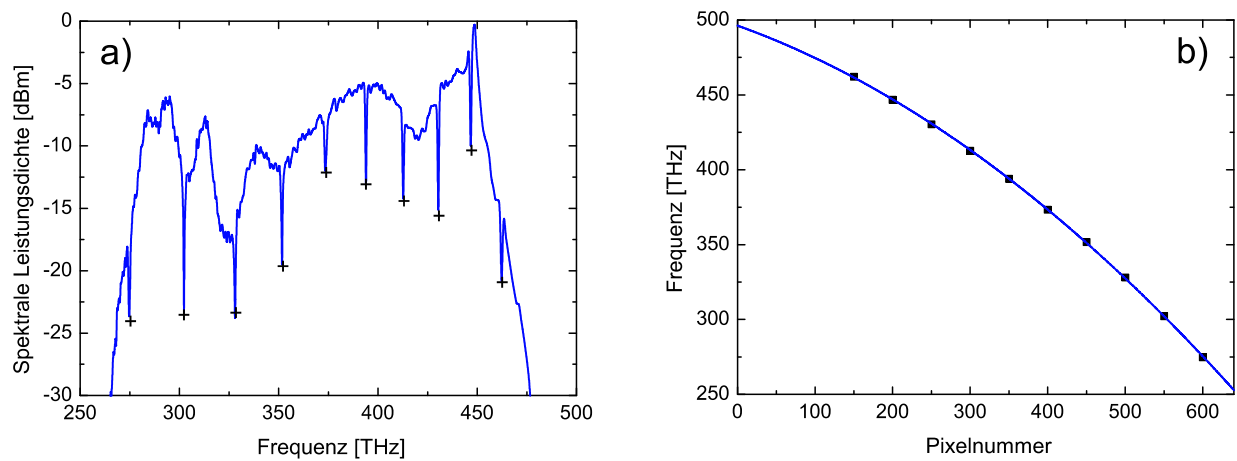
$$\Gamma(U) = \Delta\Gamma(U) + \Gamma_0, \text{ mit } \Gamma_0 = \frac{2\pi d}{\lambda} n_0(\lambda). \quad (3.17)$$

Dieser Zusatzterm entspricht der Materialdispersion der Flüssigkristall-Zelle und kann aufgrund der sehr geringen Dicke  $d$  des Elements von ca. 10  $\mu\text{m}$  vernachlässigt werden, so dass in guter Näherung  $\Gamma(U) = \Delta\Gamma(U)$  gilt.

### Frequenzabbildung auf das Display

Für eine kontrollierte Phasenmanipulation muss außer der Phasenänderung, die durch Anlegen einer bestimmten Spannung an einem Pixel hervorgerufen wird, auch bekannt sein, welche Frequenz durch dieses Pixel beeinflusst wird. Die Kalibration dieser Zuordnung kann durch ein einfaches Phasenmuster leicht durchgeführt werden. Beträgt die Phasendifferenz zwischen zwei benachbarten Pixeln  $\pi$ , so kommt es für alle Spektralanteile, die auf mehr als ein Pixel treffen, zu deutlich sichtbaren Interferenzeffekten (siehe Anhang A.1). Setzt man nun die Phase jedes 50. Pixels auf  $\pi$ , die aller anderen jedoch auf Null, treten scharfe Minima im Spektrum am Ausgang des Pulsformers auf, wie dies in Abbildung 3.16(a) dargestellt ist.

Aus der Position kann auf die Pixelnummer geschlossen werden und man erhält typischerweise 10 Messpunkte, die völlig ausreichend sind, um den glatten Verlauf der durch die Prismen verursachten Frequenzaufspaltung (vergleiche auch Abbildung 3.7) mit einem Polynom zweiter Ordnung anzupassen. Die Koeffizienten dieser in Abbildung 3.16(b) zusammen mit den Messpunkten aufgetragenen Kurve werden dann als Kalibrationsdaten in das Programm zur Computeransteuerung eingetragen. Eine Kalibration der Frequenzabbildung sollte nach jeder Justage vor dem Pulsformer neu durchgeführt werden.



**Abbildung 3.16:** (a): Spektrum des Ausgangsstrahls bei Anlegen einer Phase von  $\pi$  an jedes 50. Pixel, wobei an allen anderen die Phase 0 anliegt. (b): Aus den Minima bestimmte Frequenzzuordnung und an die Messpunkte angepasstes Polynom 2. Ordnung zur Kalibration der Frequenzabbildung.



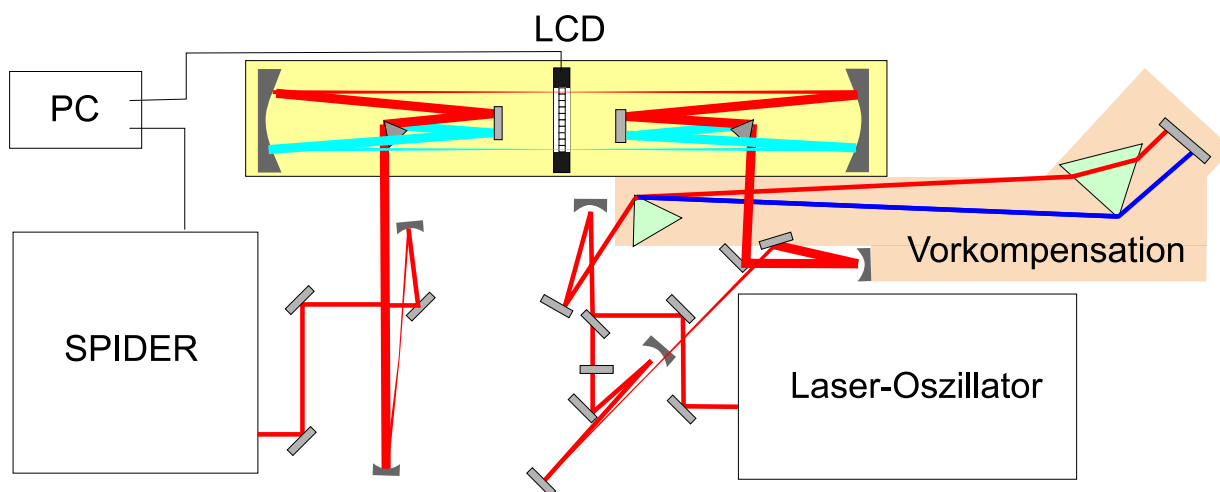
# Kapitel 4

## Formung ultrakurzer Laserpulse

Die Kombination aus einem 4-fs-Laseroszillator und dem Prismen-Pulsformer ermöglicht die Kontrolle des zeitlichen Verlaufs der Pulsintensität mit einer Auflösung im Bereich weniger Femtosekunden. Aufgrund der hohen Transmission durch den Pulsformer kann dieser zur Dispersionskompensation des Laserpulses verwendet werden. Diese flexible Methode erlaubt die Kompression des Pulses bis auf das Fourier-Limit und ermöglichte dadurch die Erzeugung der bislang kürzesten Pulse direkt aus einem Laser-Oszillator [Bin05]. Diese Anwendung wird nach kurzer Erläuterung des experimentellen Aufbaus im Detail vorgestellt. Durch Anlegen eines gaußförmigen Phasenverlaufs kann die volle Halbwertsbreite des Pulses sogar unter das Fourierlimit reduziert werden. Die erstmalige Übertragung dieses als Superauflösung (*superresolution*) aus der Mikroskopie bekannten Prinzips auf Pulse mit weniger als zwei optischen Zyklen wird im Anschluß demonstriert [Bin06]. Zusätzlich zum Ausgleich der Dispersion können mit dem Pulsformer auch diverse Pulsformen gezielt generiert werden, ohne dass ein iteratives Vorgehen nötig ist. Einige Beispiele und die Limitationen bei der Erzeugung und Charakterisierung eines zeitlichen Intensitätsprofils werden abschließend präsentiert.

### 4.1 Experimenteller Aufbau

Der in den Experimenten in diesem Kapitel verwendete Aufbau ist nach Vorstellung der einzelnen Bestandteile in den vorangegangenen Kapiteln in Abbildung 4.1 nochmals in seiner Gesamtheit zu sehen. Der Laseroszillator erzeugt Pulse mit einem oktavbreiten Spektrum in einem gut kollimierten Ausgangsstrahl. Vor dem eigentlichen Pulsformer durchläuft das Licht die Vorkompensationsstrecke aus Quarzglas-Prismen und ein Teleskop, das den Strahl auf einen Radius von 2 mm aufweitet. Nach Durchgang durch den Pulsformer wird der Puls mit Hilfe des SPIDER-Aufbaus charakterisiert und die spektrale Phase gemessen. Die Auswertung erfolgt über ein C++-Programm, das gleichzeitig dazu benutzt wird, die benötigten Spannungswerte über ein serielles Datenkabel an das LCD-Display anzulegen.



**Abbildung 4.1:** Gesamter Aufbau zur Pulsformung. Der Strahl passiert zuerst die Vorkompensation und wird anschließend mit einem Teleskop aus zwei Hohlspiegeln mit den Brennweiten  $f_1 = 500$  mm und  $f_2 = 1000$  mm auf einen Radius von 2 mm aufgeweitet. Nach Durchlaufen des Pulsformers wird der Puls im SPIDER charakterisiert.

## 4.2 Pulsformer zur Dispersionskompensation

Eines der Hauptprobleme bei der Anwendung ultrakurzer Laserpulse ist die Kompensation der auftretenden Materialdispersion im Experiment. Dabei ist die dispersive Verbreiterung wie in Kapitel 2.3 gezeigt wurde umso stärker, je breiter das Spektrum des Pulses ist. Zum Dispersionsausgleich werden meist dispersive Spiegel verwendet, die aber bei sehr breiten Spektren nur für wenig negative Dispersion pro Reflexion sorgen können und zu Oszillationen in der spektralen Phase führen. Die Spiegel besitzen nach der Herstellung zudem einen festen Phasenverlauf und können nicht mehr auf eine veränderte experimentelle Situation angepasst werden.

Pulsformer bieten daher eine willkommene Alternative zur Kompression ultrakurzer Pulse. Sie sind in der Lage auch komplizierte Phasenfunktionen auszugleichen wie sie z. B. durch Selbstphasenmodulation häufig entstehen. Allerdings begrenzt die niedrige Effizienz der normalerweise verwendeten Gitter die Einsetzbarkeit dieser Art der Kompensation auf Anwendungen, in denen der dramatische Leistungsverlust von bis zu 90 % hinnehmbar ist.

Der in dieser Arbeit entwickelte Pulsformer zeichnet sich durch eine sehr hohe Transmission aus, was ihn zum idealen Werkzeug zur Kompensation auch für sehr große Bandbreiten macht. Die in Kapitel 3.3.1 genannte Effizienz von 70 % bezieht sich dabei auf den eigentlichen Pulsformer-Aufbau. Für den in Abbildung 4.1 dargestellten Gesamtaufbau muss dieser Wert auf etwa 30 %–35 % reduziert werden, was hauptsächlich an den insgesamt über 30 Reflexionen auf Silberspiegeln liegt<sup>1</sup>. Die erreichte Gesamttransmission vom Laser

<sup>1</sup>Bei einer gemessenen Reflektivität von 97,5 % reduziert sich die Leistung bei 30 Reflexionen auf 47 %.

bis zum SPIDER kann daher prinzipiell durch Verwendung hochreflektiver Spiegel deutlich verbessert werden.

Zum Vergleich mit den experimentellen Daten wurde ein Programm zur numerischen Berechnung der Pulsformung und Kompression geschrieben. Dazu wurde die an das LCD angelegte Phasenfunktion diskretisiert und den 640 Pixeln zugeordnet. Die Fokussierung wurde entsprechend Gleichung (3.5) berücksichtigt und ein Strahlradius von  $90\ \mu\text{m}$  angenommen. Die zeitliche Pulsform ergibt sich durch Fourier-Transformation des gemessenen Laserspektrums mit der gesamten Phasenfunktion, die sich aus der an das LCD angelegten Phase, der Vorkompensation und eventueller zusätzlicher Materialdispersion zusammensetzt.

### 4.2.1 Erzeugung Fourier-limitierter Pulse

Durch den SPIDER-Aufbau ist zum Ausgleich der Dispersion kein adaptives Anpassen des Spannungsmusters am LCD notwendig, da die spektrale Phase direkt zugänglich ist<sup>2</sup>. Der Puls ist nach Durchlaufen der Vorkompensation stark dispersiv verbreitert und die spektrale Phase weist eine deutliche Krümmung auf.

Der gemessene Phasenverlauf ist in Abbildung 4.2 dargestellt und stimmt sehr gut mit der berechneten Dispersionskurve überein. Die Abweichung an den spektralen Rändern<sup>3</sup> ist auch den weiteren Messungen zu beobachten und wird durch ein zu geringes SPIDER-Signal in diesem Bereich verursacht, so dass keine sinnvolle Phasenrekonstruktion mehr möglich ist. Zur Berechnung der im Experiment erwarteten Materialdispersion wurden 8 mm SF 59, 15 m Luft und die Kompensation mit einer doppelt-durchlaufenen Quarzglas-Prismenstrecke mit einem Apex-Abstand von 1200 mm zugrunde gelegt. Obwohl die mittlere GDD durch die Vorkompensation ausgeglichen wird, sind die Beiträge höherer Ordnungen groß genug, um einen Phasengang zu verursachen, der  $30\pi$  überstreicht.

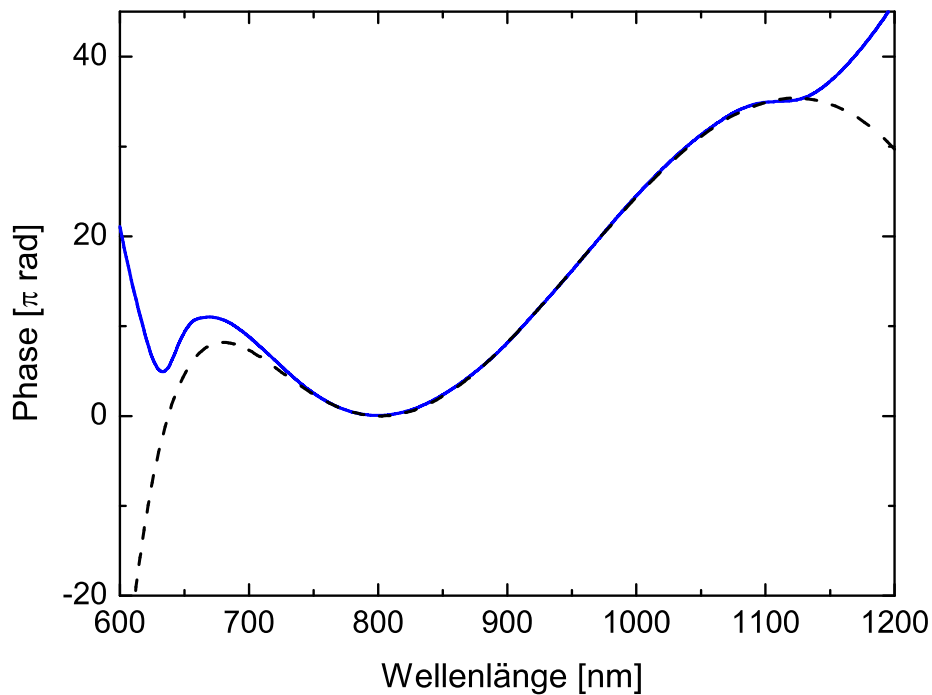
Die im SPIDER gemessene Phase kann nun invertiert und an das gemäß Kapitel 3.3.5 kalibrierte Flüssigkristall-Display angelegt werden. Man erhält ohne Iteration direkt einen gut kompensierten Phasenverlauf, der in Abbildung 4.3 zu sehen ist. Die y-Achse des Diagramms ist im Vergleich zu Abbildung 4.2 um einen Faktor 60 vergrößert und umfasst nunmehr einen Bereich von  $2\pi$ . Die Abweichungen von der Nulllinie sind deutlich reduziert und zeigen einen glatten Verlauf, der im relevanten Bereich einen maximalen Ausschlag von  $\pi/4$  nicht übersteigt.

Der aus der gemessenen spektralen Phase resultierende Intensitätsverlauf ist zusammen mit dem am Ort des SPIDER gemessenen Spektrum in Abbildung 4.4 dargestellt. Im Vergleich ist zusätzlich die berechnete Intensität des Laserpulses unter Annahme einer flachen Phase eingezeichnet. Die gemessene Pulsdauer ist mit 4,3 fs sehr nahe am Fourier-Limit von 4,2 fs. Dies sind nach unserem Kenntnisstand die kürzesten Laserpulse, die jemals

---

<sup>2</sup>Mit SPIDER lassen sich absolute Phase (CEO-Phase) oder eine absolute Gruppenverzögerung nicht bestimmen. Diese sind für den Intensitätsverlauf des Pulses nicht von Belang, weshalb die absolute Phase sowie der absolute GD in den abgebildeten Messungen bei der Zentralwellenlänge von 800 nm auf den Wert Null gesetzt wurde.

<sup>3</sup>Wellenlängenbereich  $\lambda > 1150\ \text{nm}$  und  $\lambda < 650\ \text{nm}$

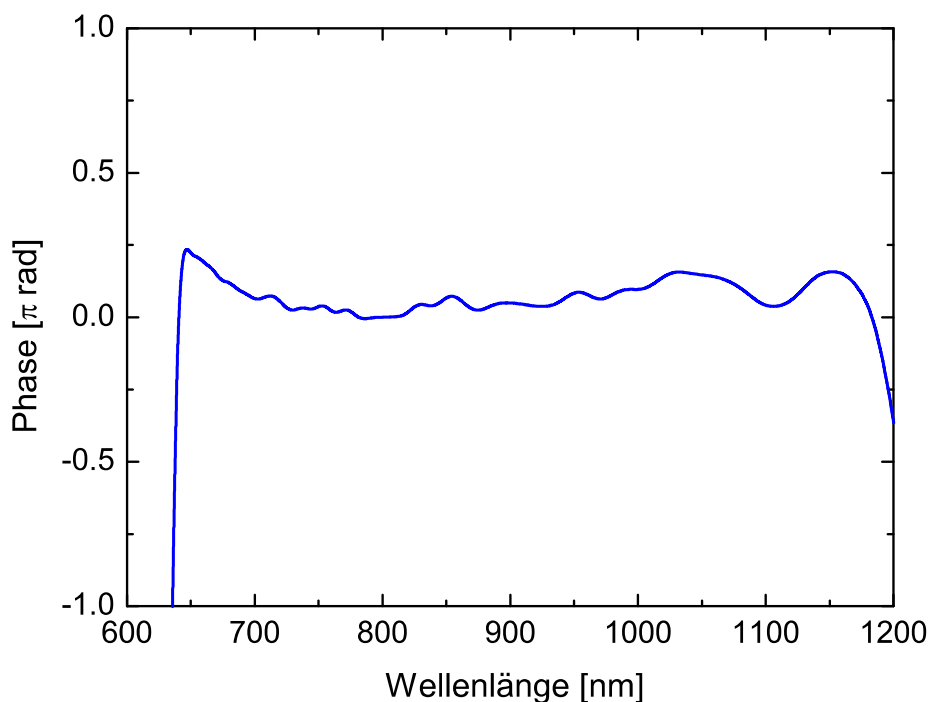


**Abbildung 4.2:** Verlauf der spektralen Phase nach Durchlaufen des Gesamtaufbaus, ohne dass eine Spannung an das LCD angelegt wurde. Die Messung ist als blaue, durchgezogene Linie gezeichnet, der aus der Materialdispersion von 8 mm SF 59, 15 m Luft und der Vorkompensation berechnete Verlauf als schwarze, gestrichelte Kurve.

direkt aus einem Laseroszillator erzeugt wurden. Durch den gut kompensierten Phasenverlauf ergibt sich auch eine sehr saubere zeitliche Struktur des Pulses ohne zusätzliche Vor- und Nachpulse. Dies stellt eine deutliche Verbesserung im Vergleich zu dem in Kapitel 2.4.3 verwendeten Kompressor dar und verdeutlicht noch einmal die Vorteile dieser Kompensationsmethode. Die durch den Pulsformer verursachten phasenabhängigen Verluste treten aufgrund der kleinen Pixellast noch nicht nennenswert in Erscheinung, die Form des nach dem Pulsformer gemessenen Spektrums ist mit dem am Ausgang des Laseroszillators identisch. Die numerische Berechnung liefert bei Projektion des räumlichen Profils des geformten Pulses auf die Grundmode einen Verlust von 13 %. Erfolgt im Experiment keine räumliche Filterung des Ausgangsstrahls, äußert sich dies vor allem als Verschlechterung des Strahlprofils durch höhere transversale Moden (siehe auch Anhang A.1).

#### 4.2.2 Kompensation zusätzlicher Materialdispersion

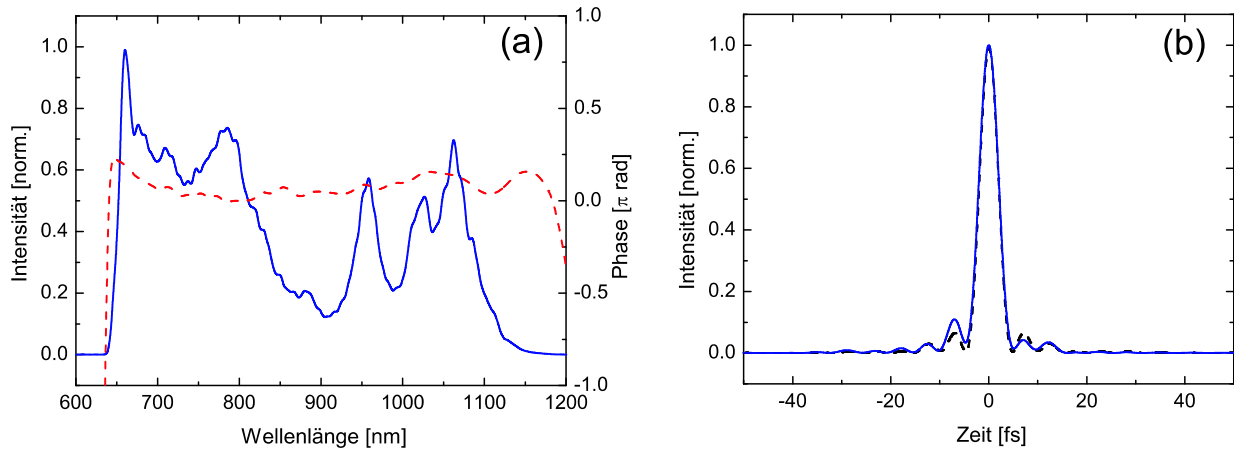
Die Kompensation der eigenen Dispersion ist durch den Pulsformer also möglich, ohne dass große Auswirkungen auf die Leistung oder die transversale Mode des Laserpulses festgestellt werden konnten. Demzufolge kann der Aufbau auch zum Ausgleich noch zusätzlicher



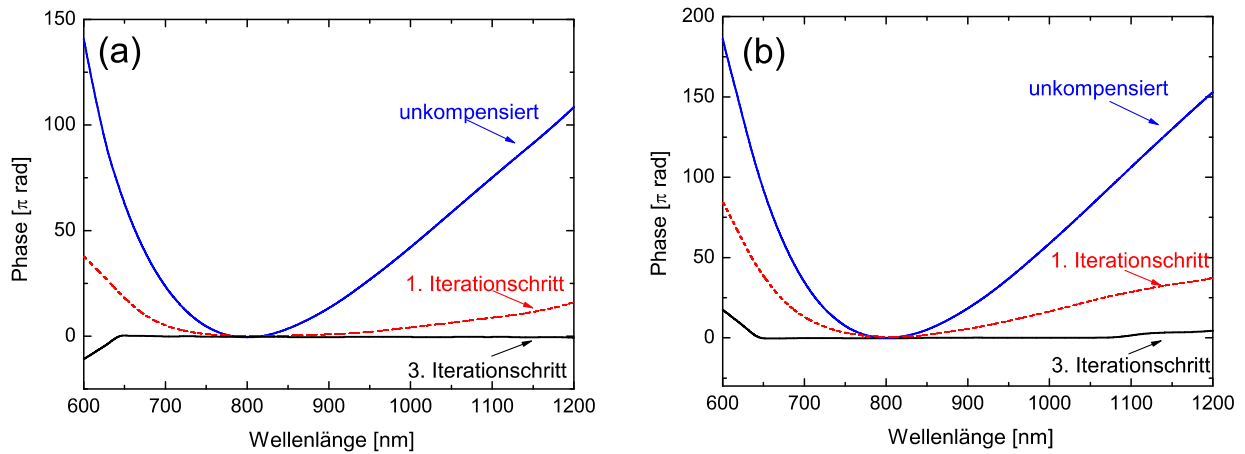
**Abbildung 4.3:** Gemessene spektrale Phase nach Anlegen der Gegenphase an das Flüssigkristalldisplay. Bereits ohne Iteration ist ein sehr flacher Verlauf realisiert, der um weniger als  $\pi/4$  von der Null abweicht.

Materialdispersion verwendet werden. Die dabei erreichbaren Maximalwerte wurden am Beispiel von BK 7-Glas untersucht. Mit Hilfe des Pulsformers konnten sechs BK 7-Substrate mit einer Gesamtdicke von 31,75 mm kompensiert werden, was einer GDD von 1400 fs<sup>2</sup> entspricht<sup>4</sup>. Aufgrund der Vorkompensation überschreitet die Pixellast entgegen der in Kapitel 3.3.1 durchgeführten Abschätzung den Wert  $\pi$  noch nicht, die Phasenfunktion kann über das gesamte Spektrum ausreichend abgetastet werden. Der mit SPIDER gemessene Phasenverlauf vor Anlegen der Gegenphase an das LCD ist in Abbildung 4.5(a) dargestellt. Es zeigt sich, dass eine Iteration nicht mehr ausreicht, um einen flachen Phasenverlauf zu erhalten. Dieser kann erst durch dreimalige Wiederholung der Phasenkompensation erreicht werden. Ein Vergleich der berechneten Phasenkurve zeigt, dass die SPIDER-Messung eine zu geringe Amplitude der Phasenfunktion misst. Die Abweichung entspricht sehr gut dem Phasenverlauf, der nach dem ersten Iterationsschritt in Abbildung 4.5(a) unkomponiert bleibt. Die Limitationen der SPIDER-Charakterisierung werden in Abschnitt 4.5 noch ausführlicher diskutiert, da auch die erzeugten Pulsformen in vielen Fällen zu Problemen bei der Phasenmessung führen.

<sup>4</sup>Um dies mit Hilfe der DCMPs zu erreichen, wären ca. 30 Reflexionen nötig, die zu sehr starkem Pulsuntergrund führen würden.



**Abbildung 4.4:** (a): Laserspektrum und zugehöriger Phasenverlauf am Ausgang des Pulsformers. (b): Gemessener Intensitätsverlauf des komprimierten Laserpulses (blaue, durchgezogene Linie) im Vergleich zum Fourier-Limit (schwarz, gestrichelt). Die Pulsdauer kommt mit 4,3 fs sehr nahe an den theoretischen Wert von 4,2 fs bei Annahme einer flachen Phase [Bin05].



**Abbildung 4.5:** Kompensation zusätzlicher Dispersion am Beispiel von BK 7-Glas. (a): Gemessene Phasenkurve nach Einbringen von fünf BK 7-Substraten mit einer Gesamtdicke von 31,7 mm vor Anlegen der Gegenphase (blaue, durchgezogene Linie), nach der ersten Iteration (rot, gestrichelt) und nach dreimaligem Anlegen der Gegenphase. (b) Entsprechende Messung für den Fall von 8 Substraten mit einer Gesamtdicke von 50,8 mm. Auch nach drei Iterationen kann die spektrale Phase nicht vollständig kompensiert werden.

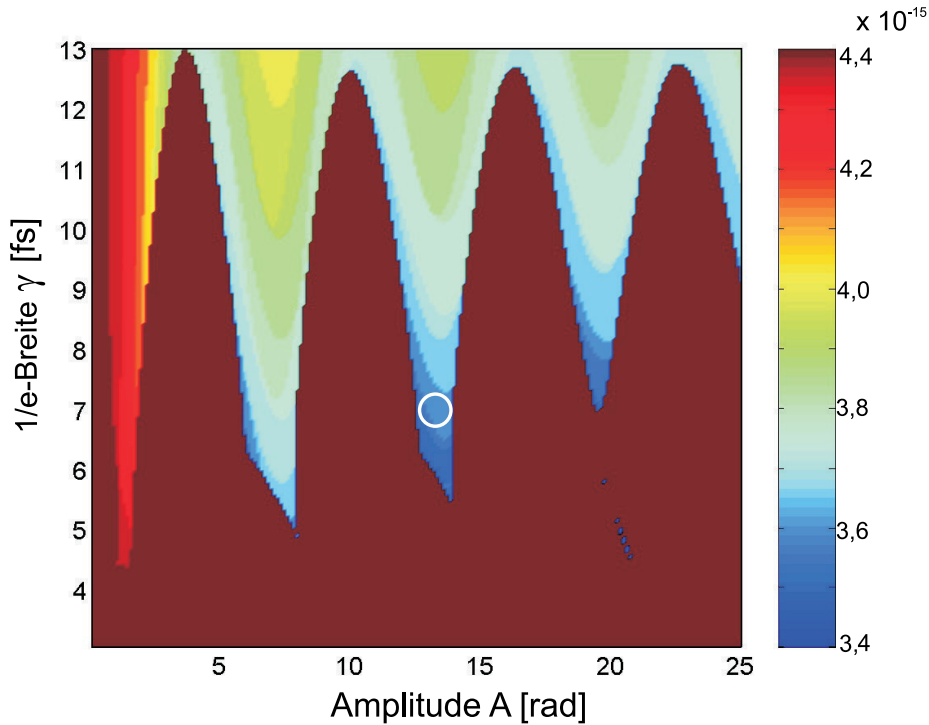
Die auftretenden Messfehler wirken sich im Fall der in Abbildung 4.5(b) dargestellten Kompensation von 50.8 mm BK 7 noch stärker aus. Allerdings ist auch durch mehrmaliges Anlegen der Gegenphase in diesem Fall keine flache Phase über das gesamte Spektrum zu erreichen, da die Pixellast an den spektralen Rändern größer als  $\pi$  wird und der gewünschte Phasenverlauf mit den 640 Pixeln nicht ausreichend reproduziert werden kann. Die starken Phasenunterschiede zwischen den Pixeln führen auch zu starken Interferenzeffekten, durch die rechnerisch etwa 70 % der Leistung aus der Grundmode herausgebeugt werden. Trotzdem gelingt es, den Puls, der durch das eingebrachte Material auf 2.5 ps verlängert wurde, wieder auf eine Pulsdauer von 6 fs zu komprimieren. Dadurch ist es im Experiment beispielsweise möglich, die Dispersion eines dicken Vakuumfensters oder einer kurzen Glasfaser auszugleichen.

### 4.3 Zeitliche Superauflösung

Analog zu dem Streben nach immer kürzeren Pulsdauern wird in der Mikroskopie beständig versucht, die optische Auflösung zu verbessern. Dabei stellt das klassische Beugungslimit die Grenze dar, die im Fernfeld mit maximaler numerischer Apertur und ebenen Wellenfronten erreicht werden kann. Als optische Superauflösung (*optical superresolution*) wird das Unterschreiten der beugungsbegrenzten Fokusgröße bezeichnet. So gelang es in [Sal97, Sal98] durch Anlegen einer gaußförmigen Phasenfunktion im Fokus eine räumliche Intensitätsverteilung zu erzeugen, die sich durch eine volle Halbwertsbreite unterhalb des Beugungslimits auszeichnet. Das zentrale Maximum wird allerdings von weiteren Beugungsringen umgeben, die aber durch eine nichtlineare Bildgebung wie z. B. bei der Zwei-Photonen-Mikroskopie unterdrückt werden können.

Aufgrund der Analogie zwischen räumlichen Propagation und der zeitlichen Entwicklung eines Laserpulses [Akh92] kann dieses Prinzip auf den Zeitbereich übertragen werden. Die zeitliche Superauflösung (*temporal superresolution*) konnte erstmals von Boyko et al. [Boy05] demonstriert werden. Mit einer gaußförmigen spektralen Phase gelang es, einen Puls mit einem Fourier-Limit von 30 fs auf eine volle Halbwertsbreite von 19 fs zu reduzieren. Das zentrale Maximum wird jedoch von großen Vor- und Nachpulsen begleitet, so dass bei dieser Art der Pulsverkürzung kein Gewinn an Spitzenleistung zu erwarten ist. Für Experimente im Bereich der extrem-nichtlinearen Optik, die direkt auf das elektrische Feld und die Träger-Einhüllenden-Phase (CEO-Phase) empfindlich sind, ist eine Verringerung der Pulsdauer allerdings sehr interessant, da der Unterschied der maximalen Feldstärke für verschiedene CEO-Phasen bei einer kleineren Anzahl der optischen Schwingungen innerhalb der Halbwertsbreite stark zunimmt. Für eine solche Anwendung benötigt man allerdings sehr kurze Pulse mit nur wenigen optischen Zyklen.

In dieser Arbeit konnte das Prinzip der zeitlichen Superauflösung erstmals auf solche Pulse mit einer Dauer unter 5 fs angewendet werden. Dazu wird als Ausgangspunkt der Puls, wie im letzten Abschnitt beschrieben, nahe an das Fourier-Limit komprimiert und besitzt daher eine flache spektrale Phase. Zusätzlich wird dann eine gaußförmige Phasen-



**Abbildung 4.6:** Berechnete Pulsdauer (FWHM) in Abhängigkeit der Amplitude und der 1/e-Breite der gaußförmigen Phase für die zeitliche Superauflösung. Zur besseren Sichtbarkeit wurden Werte, die das Fourier-Limit von 4,5 überschreiten auf diesen Wert gesetzt. Der Kreis markiert den für das Experiment ausgewählten Parametersatz mit  $A = 13,5$  rad und  $\gamma = 7$  fs.

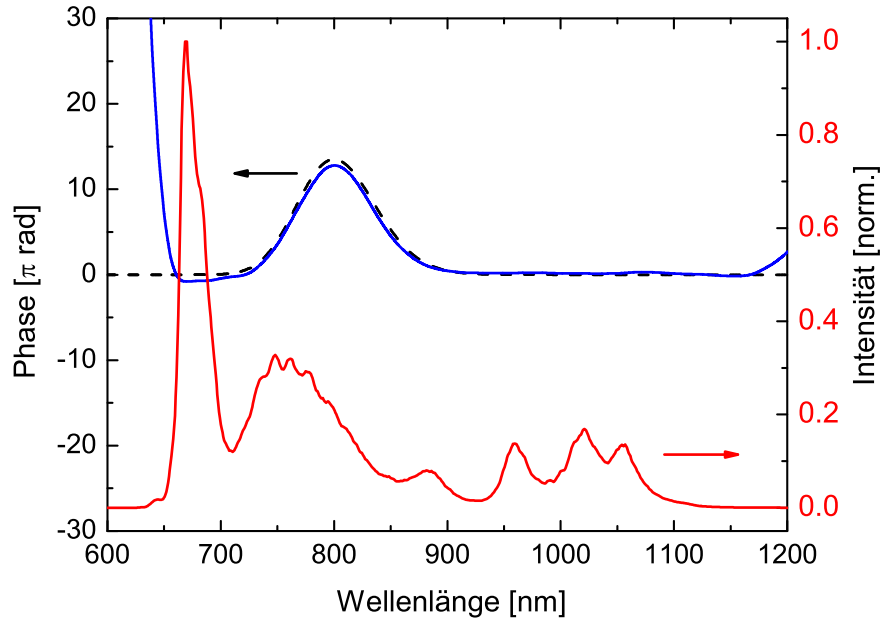
funktion  $S(\omega)$  der Form

$$S(\omega) = A e^{-(\omega-\omega_0)^2 \gamma^2} \quad (4.1)$$

mit der Amplitude  $A$ , der Zentralwellenlänge  $\omega_0 = 2\pi f_0$  und der 1/e-Breite  $\Delta\omega = \gamma^{-1}$  an den Pulsformer angelegt.

Das erzeugte zeitliche Intensitätsprofil kann mit Hilfe dieser drei Parameter auf minimale Pulsdauer optimiert werden. Zu diesem Zweck wurde aus dem gemessenen Spektrum aus Abbildung 4.7 mit einem Fourier-Limit von 4,5 fs zusammen mit der Phasenfunktion (4.1) das elektrische Feld im Zeitbereich numerisch berechnet, wobei die Werte für  $A$ ,  $\omega_0$  und  $\gamma$  systematisch variiert wurden. Während die Wahl der Zentralwellenlänge die berechnete Pulsdauer nur wenig beeinflusst, ergeben sich bei der Variation der Amplitude und Breite der Gaußfunktion Bereiche im Parameterraum, in denen die Höhe der Seitenmaxima deutlich geringer ausfällt als in anderen Gebieten. Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Abbildung 4.6 zu sehen. Dabei wurden zur besseren Sichtbarkeit alle Pulsdauern, die das Fourier-Limit überschreiten, auf dessen Wert gesetzt. Aus der Berechnung ergeben sich vor allem zwei Bereiche bei einer Amplitude  $A \approx 7$  rad bzw.  $A \approx 13.5$  rad, bei denen



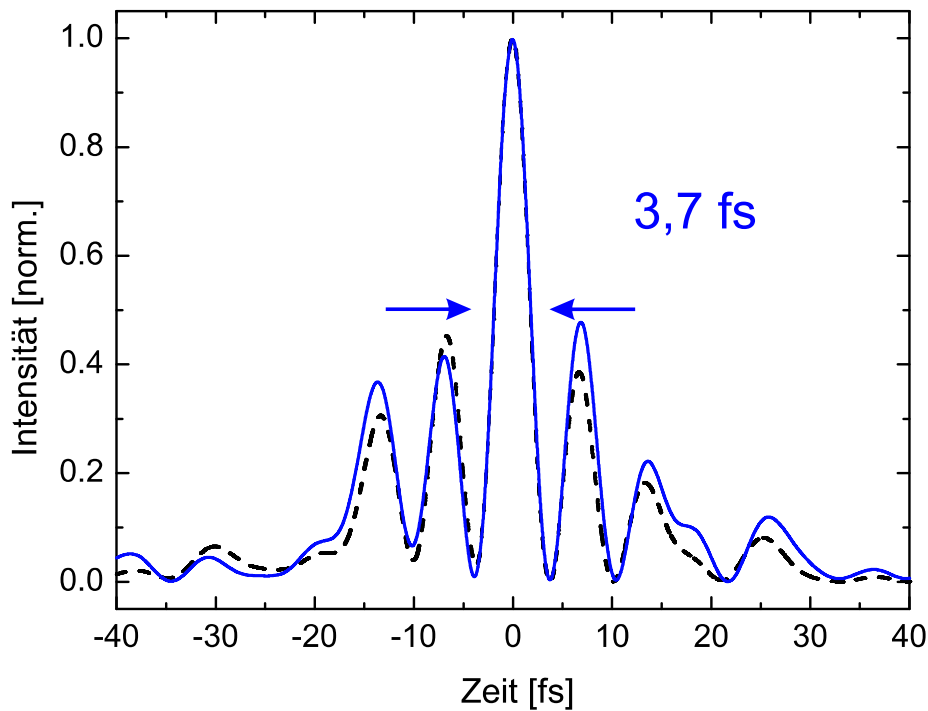


**Abbildung 4.7:** Das gemessene Laserspektrum unterstützt eine Pulsdauer von 4,5 fs. Der für die Superauflösung gewählte, gaußförmige Phasenverlauf mit  $A = 13.5$  rad,  $\omega_0 = 2\pi \cdot 375$  THz und  $\gamma = 7$  fs ist ebenfalls eingezeichnet. Die Messung (blaue, durchgezogene Kurve) stimmt sehr gut mit dem berechneten Verlauf (schwarz, gestrichelt) überein.

eine deutliche Reduktion der vollen Halbwertsbreite der Pulsdauer auf 3,5 fs und damit um 22 % unter dem Fourier-Limit erreichbar sein sollte. Dabei lässt sich feststellen, dass die Höhe der Seitenmaxima mit geringerer Pulsdauer tendenziell zunimmt und sich über die Wahl der Breite  $\gamma$  beeinflussen lässt.

Zur experimentellen Realisierung wurden anhand Abbildung 4.6 ein Parametersatz mit  $A = 13.5$  rad,  $\omega_0 = 2\pi \cdot 375$  THz und  $\gamma = 7$  fs ausgewählt, da diese Kombination in einem stabilen Gebiet befindet, so dass auch bei einer leichten Abweichung der gewählten Werte im Experiment die Höhe der Seitenmaxima nicht zu stark anwächst. Das verwendete Laserspektrum ist in Abbildung 4.7 dargestellt und unterstützt bei flacher Phase eine Pulsdauer von 4,5 fs. Durch Kompensation der Dispersion mit dem Pulsformer konnte dieser Wert auch experimentell erreicht werden. Für die zeitliche Superauflösung wird nun zusätzlich die oben spezifizierte Gaußfunktion mit dem Pulsformer angelegt. Die gemessene spektrale Phase des Pulses ist ebenfalls in Abbildung 4.7 eingezeichnet und stimmt sehr gut mit dem berechneten Verlauf überein.

Der sich daraus ergebende zeitliche Intensitätsverlauf ist in Abbildung 4.8 zu sehen. Es sind drei ausgeprägte Seitenpulse zu erkennen, die das zentrale Maximum begleiten.

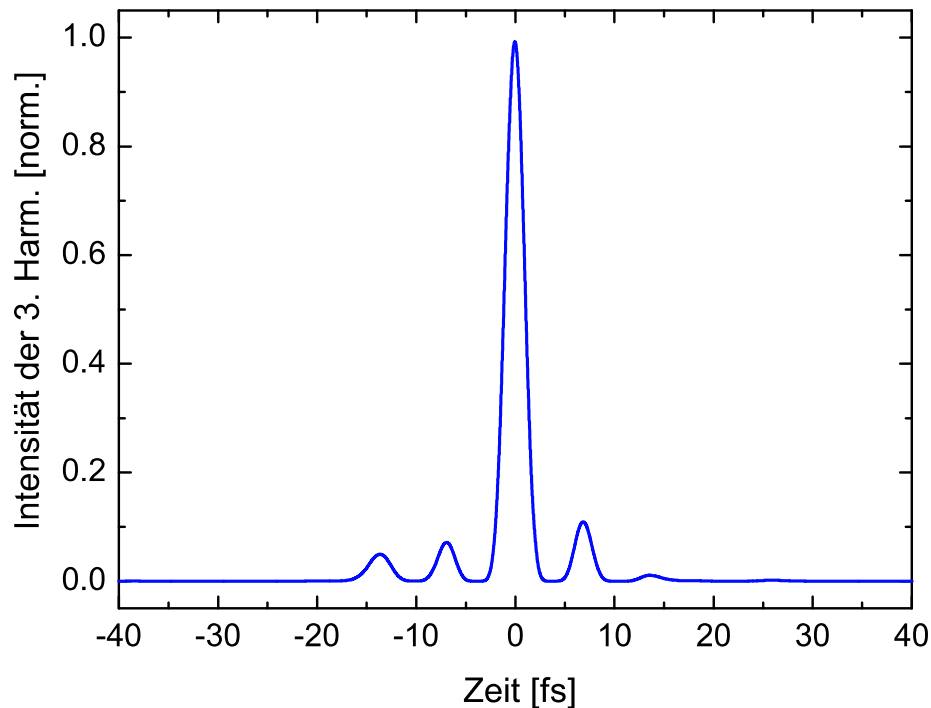


**Abbildung 4.8:** Gemessener zeitlicher Intensitätsverlauf (blau, durchgezogene Kurve) des Pulses mit Superauflösung im Vergleich zu dem erwarteten Verlauf (schwarz, gestrichelt). Die Pulsdauer von 3,7 fs (FWHM) liegt deutlich unter dem Fourier-Limit von 4,5 fs und stellt den kürzesten Puls direkt aus einem Oszillator dar [Bin06].

Die Übereinstimmung mit der berechneten Kurve ist auch in diesem Fall exzellent. Die volle Halbwertsbreite des Pulses beträgt lediglich 3,7 fs und konnte damit um 18 % unter das Fourier-Limit reduziert werden. Dies ist der kürzeste Puls, der jemals ohne externe spektrale Verbreiterung direkt aus dem Oszillator erzeugt werden konnte. Damit wurde gleichzeitig das Prinzip der zeitlichen Superauflösung zum ersten Mal für Pulse im 5-fs-Bereich demonstriert.

Die Schwingungsdauer des elektrischen Feldes bei einer Trägerfrequenz von 375 THz beträgt 2,7 fs, so dass ein Puls mit einer Dauer von 4,5 fs schon weniger als zwei vollständige Zyklen enthält. Dadurch unterscheiden sich die maximalen Feldstärken von Pulsen mit CEO-Phase  $\Phi_{\text{CEO}} = 0$  bzw.  $\Phi_{\text{CEO}} = \pi/2$  bereits um 10 %. Durch eine weitere Reduzierung der zentralen Pulsdauer auf 3,7 fs lässt sich dieser Wert auf 15 % steigern, was bei der oft hohen Nichtlinearität der untersuchten Prozesse zu einer deutlichen Steigerung der phasenabhängigen Effekte führt. Bei diesen Experimenten kann daher die zeitliche Superauflösung eine mögliche Anwendung finden.

Das zeitliche Pulsprofil weist sehr viel Untergrund auf, der durch die Wahl einer größeren Breite  $\gamma$  verringert werden kann, allerdings auf Kosten eines breiteren zentralen Maximums.

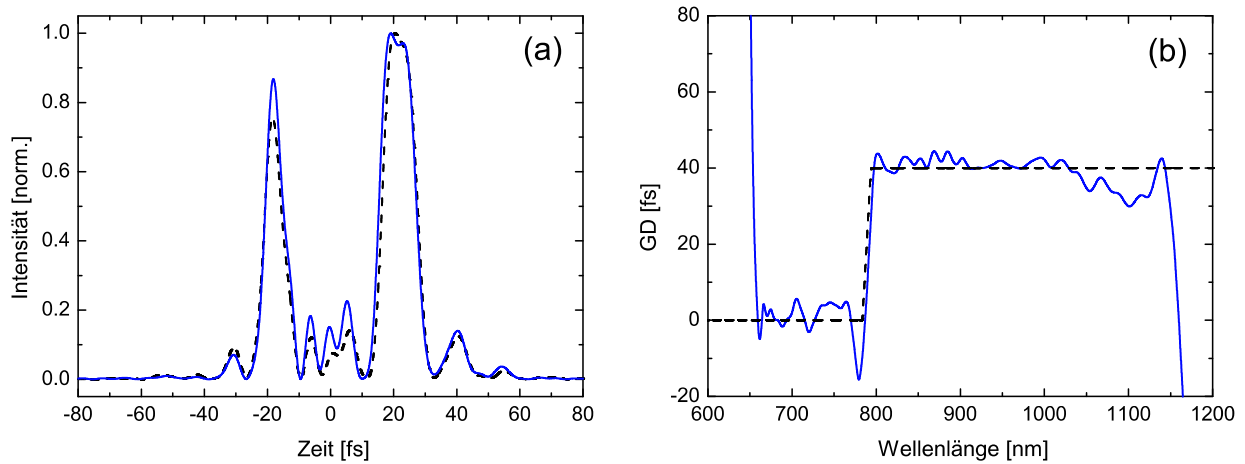


**Abbildung 4.9:** Berechneter Intensitätsverlauf der dritten Harmonischen des Superauflösungs-Pulses aus Abbildung 4.8. Der deutlich ausgeprägte Untergrund des Pulses wird durch die Nichtlinearität stark unterdrückt und das zeitliche Profil weist nur noch kleine Vor- und Nachpulse von etwa 10 % auf.

In nichtlinearen Anwendungen werden die Nebenmaxima jedoch stark unterdrückt. So reduziert sich bei einem Effekt, der mit der dritten Potenz der Intensität skaliert, die Höhe der Seitenmaxima in Abbildung 4.8 von 48 % auf nur noch 11 % der Maximalintensität. Zur Veranschaulichung dieser Säuberung des Pulsprofils durch die Nichtlinearität ist in Abbildung 4.9 die dritte Potenz des Intensitätsverlaufs aus Abbildung 4.8 dargestellt. Dies zeigt, dass in diesem Fall die zeitliche Superauflösung zu einer Pulsverkürzung unter das Fourier-Limit benutzt werden kann, ohne dass das Pulsprofil zu stark in Mitleidenschaft gezogen wird.

## 4.4 Erzeugung komplexer Pulsformen

Neben der Anwendung zur Pulsverkürzung und Dispersionskompensation sollen im folgenden Abschnitt die Einsatzmöglichkeiten des Pulsformers zur Kontrolle des Intensitätsprofils mit einer Zeitauflösung von wenigen Femtosekunden demonstriert werden. Der kalibrierte Aufbau und die Kombination mit dem SPIDER ermöglichen dabei eine gezielte Phasenmanipulation, so dass das gewünschte Pulsprofil direkt ohne adaptive Verfahren erreicht



**Abbildung 4.10:** Zweifarbige Doppelpulse mit einem relativen Abstand von 40 fs. (a) Der gemessene Pulsverlauf (blaue, durchgezogene Kurve) stimmt sehr gut mit dem berechneten Verlauf (schwarz, gestrichelt) überein. Die jeweiligen Pulsdauern hängen von dem gewählten Aufteilungspunkt des spektralen GD ab, die im rechten Teil (b) der Abbildung gezeigt ist. Die relative Verzögerung der Spektralanteile entspricht dem vorgegebenen Wert von 40 fs und führt zu zweifarbigen Doppelpulsen [Bin06].

werden kann. Als Ausgangspunkt für die Pulsformung dient dabei jeweils der rekonprimierte Puls mit flacher spektraler Phase. Im folgenden sollen zuerst zweifarbige Doppelpulse und die Erzeugung eines Pulszuges mit definiertem Pulsabstand als zwei Beispiele vorgestellt werden, bei denen die notwendige Phasenfunktion bekannt ist. Im zweiten Teil dieses Abschnitts wird das Verfahren vorgestellt, das in dieser Arbeit dazu benutzt wurde, einen beliebigen zeitlichen Intensitätsverlauf zu erzeugen.

#### 4.4.1 Zweifarbige Doppelpulse

Die spektrale Phase kann gemäß Kapitel 2.3 in verschiedene Dispersionsordnungen entwickelt werden. Dabei lässt sich feststellen, dass ein linearer Phasenverlauf, also ein konstanter GD, zu einer Verzögerung des Pulses als Ganzes führt. Mit dem Pulsformer ist es nun möglich, Geraden mit einstellbarer Steigung an verschiedene Teile des Spektrums anzulegen. Dadurch können diese Spektralanteile gezielt gegeneinander verzögert werden.

Als Beispiel für diese Pulsform ist in Abbildung 4.10 ein Doppelpuls gezeigt, bei dem die „blauen“ kurzwelligen gegenüber den „roten“ langwelligen Spektralanteilen um 40 fs verzögert wurden. Dabei wurde der GD bei der Zentralwellenlänge von 800 nm aufgeteilt und an den infraroten Teil des Spektrums eine Verzögerung von 40 fs angelegt, wie dies in Abbildung 4.10(b) zu sehen ist. Daraus ergibt sich der in Abbildung 4.10(a) dargestellte Intensitätsverlauf. Da für die beiden Pulse nur eine halb so große Bandbreite zu Verfügung steht, sind die jeweiligen Pulsdauern entsprechend länger als das Fourier-Limit des Spek-

trums. Der maximale zeitliche Abstand der Doppelpulse beträgt nach der in Kapitel 3.3.1 durchgeführten Abschätzung 1,6 ps. Eine sinnvolle Charakterisierung der Pulse war allerdings nur bis zu einer Verzögerung von 400 fs möglich. Das SPIDER-Verfahren kann prinzipiell die spektrale Phase nur dann korrekt bestimmen, wenn das Interferogramm eine durchgängige Modulation aufweist. Treten allerdings Nullstellen im Spektrum oder nicht modulierte Anteile im SPIDER-Signal auf, geht die relative Phasenbeziehung der Spektralanteile an dieser Stelle verloren. Um die Charakterisierung der zweifarbigen Pulse zu ermöglichen, wurde daher zwischen den unterschiedlichen GD-Werten ein kleiner linearer Übergangsbereich mit einer Breite von ca. 5 THz eingerichtet, der den zeitlichen Verlauf nur unmerklich beeinflusst.

#### 4.4.2 Sinusförmige Phasenmodulation

Eine sinusförmige Modulation der spektralen Phase bietet eine sehr einfache Möglichkeit, einen Pulszug zu generieren, dessen zeitlicher Verlauf zudem analytisch berechnet werden kann. Diese Phasenfunktion in zahlreichen Experimenten zur Quantenkontrolle verwendet [Pra04, Bar05]. Dabei ist vor allem eine Anwendung im Bereich der kohärenten Anti-Stokes-Raman Spektroskopie (CARS) zu nennen. Durch Anlegen einer solchen Phasenmanipulation konnten trotz eines breiten Spektrums gezielt die resonante Erzeugung der Anti-Stokes-Frequenz einer einzelnen Schwingungsmode angeregt werden. Die erreichte spektrale Auflösung lag dabei um zwei Größenordnungen unter der Bandbreite des eingestrahnten Laserspektrums [Dud03].

Eine sinusförmige Modulation der Phase kann durch ihre Amplitude  $A$  und die Modulationsfrequenz  $f_M = T^{-1}$  beschrieben werden:

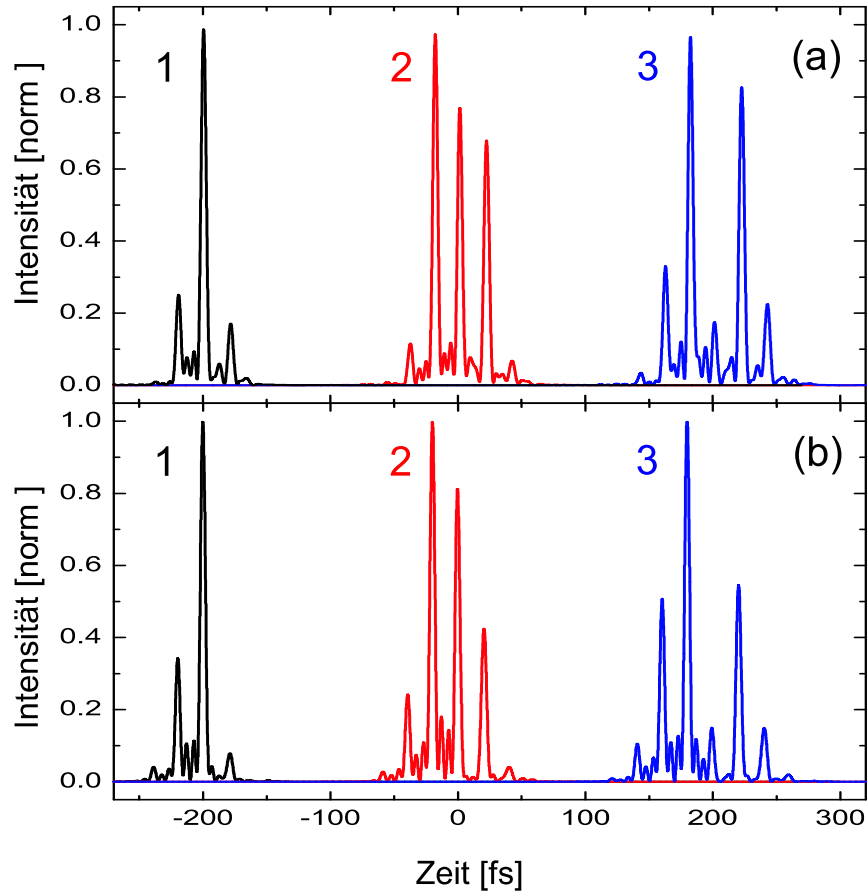
$$\Phi_{\text{sin}}(\omega) = A \sin(\omega T) \quad (4.2)$$

Die zeitliche Feldverlauf kann zudem analytisch berechnet werden und ist durch eine Summe von Puls kopien mit der Einhüllenden  $\zeta(t)$  gegeben, deren Amplitude durch eine Besselfunktion  $J_n$  erster Ordnung bestimmt ist:

$$E_{\text{sin}}(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(A) \zeta(t + nT) e^{-i\omega_0(t+nT)}. \quad (4.3)$$

Der zeitliche Abstand  $T$  der Pulse kann dabei über die Modulationsfrequenz  $f_M = T^{-1}$  kontrolliert werden, die Einhüllende des Pulszuges wird durch die Amplitude  $A$  der Sinusphase bestimmt.

In Abbildung 4.11(a) ist die berechnete Pulssequenz mit einem Abstand von 20 fs für verschiedene Amplituden  $A$  dargestellt. Man erkennt deutlich, dass die einzelnen Pulse eine Dauer im Bereich von 5 fs besitzen und die Anzahl der auftretenden Puls kopien mit steigendem  $A$  zunimmt. Der mit dem SPIDER gemessene Intensitätsverlauf ist im Vergleich in Abbildung 4.11(b) aufgezeichnet und stimmt bis auf kleinere Abweichungen in der Amplitude der einzelnen Pulse gut mit dem berechneten Verlauf überein.



**Abbildung 4.11:** Vergleich des gemessenen Pulsprofils (a) mit dem theoretisch erwarteten Verlauf (b) für eine sinusförmige Modulation der spektralen Phase mit  $T = 20$  fs für verschiedene Amplituden, durch die die Einhüllende des Pulszuges bestimmt wird. 1:  $A = 0,8$  rad, 2:  $A = 1,4$  rad, 3:  $A = 2$  rad.

Eine Abschätzung des experimentell erreichbaren Pulsabstandes kann über die mit dem Pulsformer maximal realisierbare Steigung der Sinus-Funktion erfolgen:

$$\left. \frac{d\Phi_{\sin}}{d\omega} \right|_{\max} = A T \approx \text{GD}_{\max} \quad (4.4)$$

Mit einer Amplitude  $A = 1.4$  rad ergibt sich dann ein maximaler Pulsabstand von ca. 600 fs.

Im Experiment konnten die erzeugten Pulse allerdings nur für kleine Amplituden bis 2 rad und Zeitverzögerungen unter 60 fs mit dem SPIDER-Verfahren charakterisiert werden (siehe dazu Abschnitt 4.5). Die aufgenommenen interferometrischen Autokorrelationen zeigen allerdings, dass der Zeitverlauf auch für größere Werte dieser Parameter gut mit dem berechneten Verlauf übereinstimmt.

### 4.4.3 Erzeugung eines beliebigen Intensitätsverlaufs

Für die bislang präsentierten Pulsformen war die benötigte spektrale Phase vorgegeben, und der resultierende Intensitätsverlauf konnte daraus berechnet und mit dem Experiment verglichen werden. Im folgenden soll nun der umgekehrte Fall betrachtet werden. Der Pulsformer kann als optischer Synthesizer benutzt werden, um ein vorgegebenes zeitliches Pulsprofil durch die Manipulation der spektralen Phase zu erreichen. Der für das Laserspektrum benötigte Phasenverlauf kann dabei allerdings nicht analytisch aus dem Intensitätsverlauf bestimmt werden.

Zum Auffinden einer geeigneten Phasenfunktion wird daher ein numerisches Optimierungsverfahren benutzt. Die Gruppenverzögerung wird im Frequenzraum durch eine Spline-Kurve mit einer gewissen Anzahl von Stützstellen repräsentiert. Durch Fourier-Transformation der so festgelegten spektralen Phase zusammen mit dem gemessenen Laserspektrum wird daraus ein zeitlicher Intensitätsverlauf  $I_{\text{Test}}$  berechnet. Als Zielgröße  $S_{\text{opt}}$  der Optimierung dient die Summe der Abweichungsquadrate dieser Testfunktion vom angestrebten Intensitätsverlauf  $I_{\text{Ziel}}$

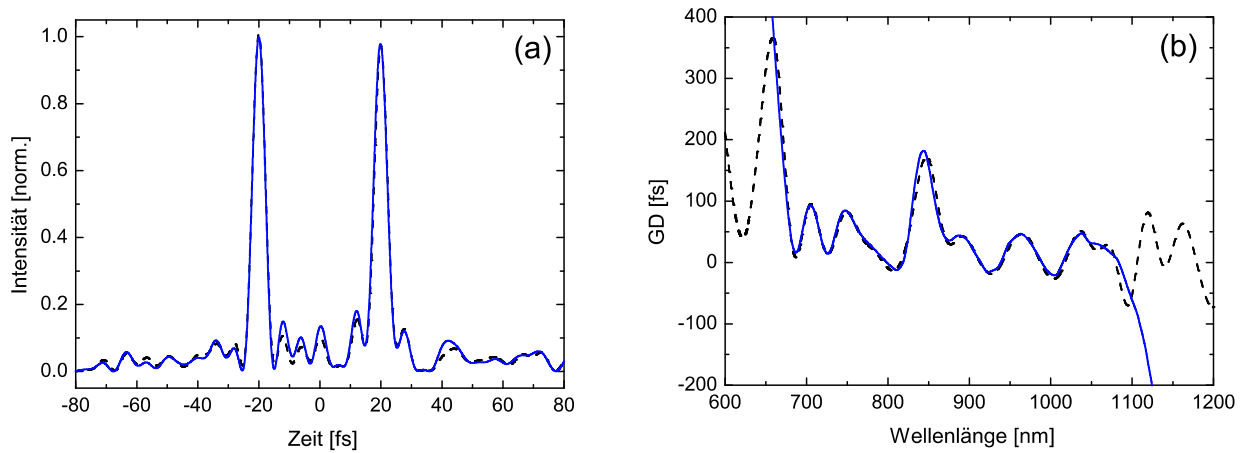
$$S_{\text{opt}} = \sum_{m=1}^N (I_{m,\text{Ziel}} - I_{m,\text{Test}})^2, \quad (4.5)$$

wobei  $m$  dem Index des in  $N$  diskrete Punkte unterteilten Zeitrasters entspricht. Diese wird mittels verschiedener numerischer Verfahren wie *Simulated Annealing* oder *Simplex* [Pre92] durch Variieren der GD-Werte an den einzelnen Stützstellen minimiert. Diese Vorgehensweise wurde zur Formung verschiedener Pulsprofile durchgeführt, von denen einige ausgewählte Beispiele im folgenden vorgestellt werden.

Die Erzeugung von Doppelpulsen verschiedener Farbe wurde bereits im vorhergehenden Abschnitt beschrieben. In diesem Fall ist allerdings die Dauer der einzelnen Pulse merklich vergrößert, da sie jeweils nur aus einem Teilbereich der vorhandenen Bandbreite bestehen. In einem Anrege-Abfrage-Experiment kann es nun jedoch wünschenswert sein, Doppelpulsen zu generieren, die sich spektral nicht unterscheiden und deren volle Halbwertsbreite nahe an das Fourier-Limit heran reicht. Die dazu notwendige Phasenstruktur ist deutlich komplizierter und a priori nicht bekannt<sup>5</sup>.

Das Ergebnis des numerisch optimierten Verlaufs der Gruppenverzögerung ist für den Fall eines Doppelpulses mit einem Pulsabstand von 40 fs in Abbildung 4.12(b) als schwarze, gestrichelte Kurve dargestellt. Rechnerisch ergibt sich daraus der in Abbildung 4.12(a) eingezeichnete Intensitätsverlauf, der dem gewünschten Doppelpuls sehr nahe kommt. Die numerische Phasenoptimierung liefert zwei Doppelpulse mit einer jeweiligen Dauer von ca. 5 fs, wobei der Untergrund weitgehend unterhalb von 10 % der Spitzenintensität bleibt. Durch Anlegen dieses Phasenmusters an den Pulsformer ergibt sich ohne iterative Verfahren direkt der als blaue, durchgezogene Linie dargestellte Pulsverlauf. Die Messung stimmt sehr gut mit dem erwarteten Verlauf überein. Die Abweichung des gemessenen GD treten

<sup>5</sup>Das Anlegen eines über der Frequenz alternierenden Musters zweier konstanter GD-Werte führt nicht zu Doppelpulsen, sondern zu einem ganzen Pulszug.



**Abbildung 4.12:** Doppelpulse im Abstand von 40 fs. Der zeitliche Verlauf der Intensität ist in (a), die zugehörige spektrale Gruppenverzögerung in (b) dargestellt. Die Messung ist jeweils als blaue, durchgezogene Linie eingezeichnet und stimmt sehr gut mit dem Ergebnis der numerischen Optimierung des Phasenverlaufs überein, der schwarz gestrichelt markiert ist.

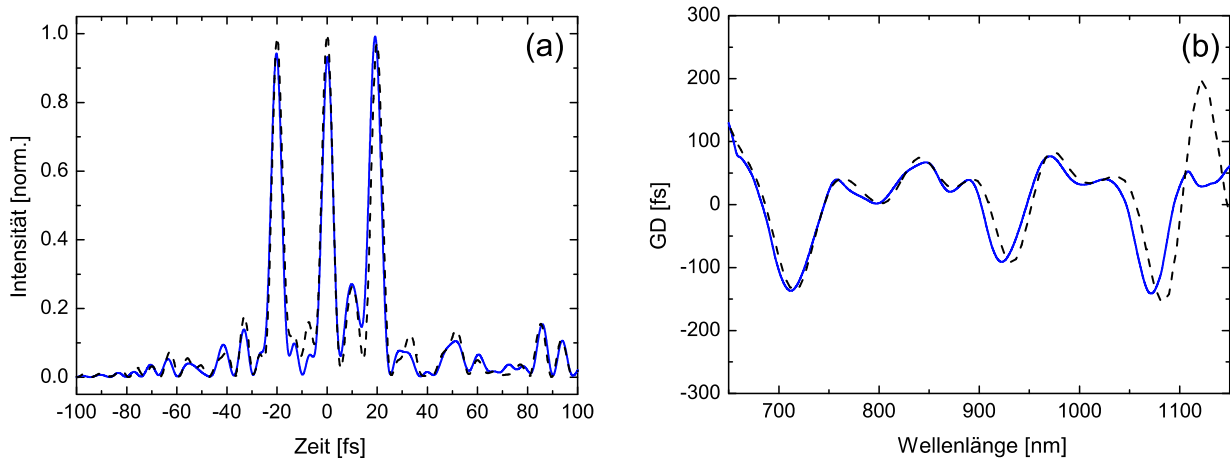
lediglich in den Randbereichen des Spektrums auf, da hier das SPIDER-Signal sehr gering ist, und beeinflussen den Intensitätsverlauf nicht merklich. Zur Erzeugung solcher Doppelpulse mit anderen zeitlichen Abständen ist jeweils eine neue numerische Berechnung des Phasenverlaufs notwendig, da dieser sich im Unterschied zu den zweifarbigem Doppelpulsen nicht durch Skalierung der bereits bekannten Phasenfunktion gewinnen lässt.

Mit der vorgestellten Methode können Doppelpulse mit variablem Abstand generiert werden, wobei auch die Höhe der einzelnen Pulse vorgegeben werden kann. So ist es z. B. möglich, einen Vorpuls mit der halben Maximalintensität zu erzeugen, der zur Anregung eines Atoms oder Moleküls benutzt werden kann, bevor der Hauptpuls auf das System trifft.

Auch die Anzahl der Pulse kann gezielt erhöht werden. Als weiteres Beispiel ist in Abbildung 4.13 ein Pulsprofil gezeigt, das aus drei kurzen Laserpulsen im Abstand von 20 fs besteht, deren Pulsdauer im Bereich von 5 fs liegt. Wiederum ist der numerisch optimierte Phasen- und Intensitätsverlauf als schwarze, gestrichelte Linie dargestellt, die SPIDER-Messung als blaue, durchgezogene Linie. Auch in diesem Fall ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung.

Mit zunehmender Komplexität des zeitlichen Pulsprofils wird es allerdings immer schwieriger, einen geeigneten Phasenverlauf numerisch zu finden. Die Anzahl der Stützstellen im Frequenzraum muss dabei erhöht werden, um auch feinere Strukturen im Frequenzraum zu erlauben. Dadurch ergibt sich als Resultat der Optimierung ein kompliziertes Phasenmuster, das durch den Pulsformer aber noch gut reproduziert werden kann. Eine experimentelle Überprüfung des Intensitätsverlaufs ist jedoch in vielen Fällen mit dem verwendeten SPIDER-Aufbau nicht mehr möglich (siehe dazu Abschnitt 4.5).





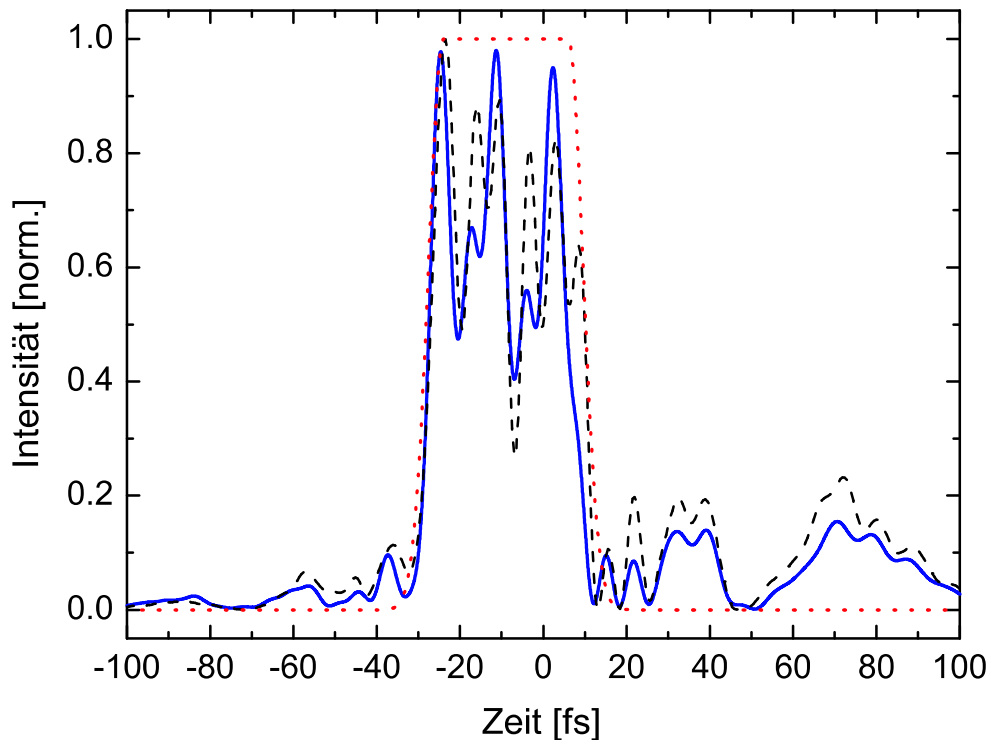
**Abbildung 4.13:** Pulsprofil und spektraler GD für eine Pulssequenz aus drei Pulsen im Abstand von 20 fs. Der aus der Phasenoptimierung berechnete Verlauf der Intensität und des GD (schwarz, gestrichelte Linie) stimmt sehr gut mit der Messung überein (blaue, durchgezogene Kurve).

Eine grundlegende Limitation der realisierbaren Pulsformen ergibt sich aus der reinen Phasenmanipulation, mit der es prinzipiell nicht gelingt, alle gewünschten Zielfunktionen zu erreichen [Mes98b]. Dabei ist es generell sehr einfach, einen Zeitverlauf zu generieren, der dem ursprünglichen Puls sehr ähnlich ist, wie dies auch bei den bisher gezeigten Pulssequenzen der Fall war. Davon abweichende Pulsformen lassen sich nur schwer realisieren. Dies wird in Abbildung 4.14 am Beispiel eines Rechteckpulses veranschaulicht. Das als schwarze, gestrichelte Linie dargestellte Ergebnis des Optimierungsalgorithmus weicht deutlich von der gewünschten Form ab, die rot gepunktet eingezeichnet ist. Es lässt sich auf diese Weise kein Phasenverlauf finden, mit dem ein solcher Puls erzeugt werden kann.

Diese Begrenzung der Pulsformung kann allerdings durch die zusätzliche Manipulation der spektralen Amplitude überwunden werden. Zu diesem Zweck kann ein zweites Flüssigkristall-Display zur Amplitudenmodulation eingesetzt werden. In dieser Kombination verwirklicht das System einen optischen Synthesizer mit fs-Auflösung und ermöglicht dann die Erzeugung eines beliebigen Intensitätsverlaufs. Durch Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase im Laser-Oszillator kann diese Kontrolle sogar direkt auf das elektrische Feld übertragen und eine Zeitauflösung im Attosekunden-Bereich realisiert werden.

## 4.5 Grenzen der Phasenmessung

Die SPIDER-Charakterisierung lieferte für die in diesem Kapitel präsentierten Pulsformen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem jeweils berechneten Intensitätsverlauf. In vielen Fällen konnte die spektrale Phase des Pulses nach Anlegen des Phasenmusters an das LCD allerdings nicht mehr mit dem SPIDER bestimmt werden. Solche Schwierigkeiten traten



**Abbildung 4.14:** Erzeugung eines Rechteckpulses. Die Messung (blaue, durchgezogene Kurve) weicht sehr stark von der gewünschten Pulsform (rot, gepunktete Linie) ab. Die Ursache hierfür liegt allerdings an der numerischen Bestimmung der benötigten Phase, deren Ergebnis den schwarz, gestrichelt eingezeichneten Intensitätsverlauf ergibt. Durch reine Phasenmanipulation ist die Menge der erzeugbaren Pulsformen beschränkt und das gewünschte Pulsprofil nicht zu erreichen.

z. B. für einen sinusförmigen Phasenverlauf mit  $T \geq 80$  fs oder mit Amplituden  $A > 2$  auf. Die numerische Simulation des Pulsformers ergibt dabei jeweils, dass die Phasenfunktion gut abgetastet und die Pulsform ohne größere Verluste durch Interferenz-Effekte erzeugt werden kann. Dies konnte durch Messung der interferometrischen Autokorrelation weitgehend bestätigt werden. Die Ursachen sind daher im verwendeten SPIDER-Aufbau zu suchen, dessen Limitationen nun im folgenden diskutiert werden sollen.

#### 4.5.1 Auswirkung der Parameter

Beim Aufbau eines SPIDERS ergeben sich zwei freie Parameter, die je nach Anwendung aufeinander abgestimmt werden müssen. Die Zeitverzögerung  $\tau$  der beiden Puls kopien ist für die Modulationsfrequenz des SPIDER-Signals verantwortlich. Je größer dieser Wert gewählt wird, umso schneller ist das Interferogramm moduliert. Die Auflösung des verwendeten Spektrometers begrenzt dabei die Größe des zeitlichen Abstands  $\tau$ , da es möglich sein

muss, eine Oszillationsperiode mit mindestens zwei Punkten abzutasten. Wie in Kapitel 2.5.2 beschrieben, ergibt sich durch Fourier-Transformation des SPIDER-Signals

$$I_{\text{SPIDER}}^{\text{AC}}(\omega) = A_{\text{SPIDER}}^{\text{AC}} \cdot \cos(\Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c) - \omega\tau) \quad (4.6)$$

im Zeitbereich ein scharf definiertes Maximum bei  $t = \tau$ , und der modulierte Signal-Anteil kann durch anschließende Multiplikation mit einer um  $\tau$  zentrierten Super-Gaußfunktion abgetrennt werden. Wird der Parameter  $\tau$  zu klein gewählt, ist die dabei zugrunde liegende Annahme

$$\Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c) \ll \omega\tau, \quad (4.7)$$

d. h. dass die Pulsphasendifferenz gegenüber dem Modulationsterm  $\omega\tau$  vernachlässigt werden kann, nicht mehr gerechtfertigt, und die soeben beschriebene Trennung ist auf diese Weise nicht mehr möglich. Bei Berücksichtigung dieser oberen und unteren Schranke ist die Wahl des Parameters  $\tau$  für die Genauigkeit der SPIDER-Messung nicht kritisch, wie durch numerische Simulationen in [Phi00] gezeigt werden konnte.

Die spektrale Verschiebung  $\Omega$  ist mit  $\tau$  durch die Dispersion verknüpft, mit der der Puls im SF 10-Block verbreitert wird.

$$\Omega = \tau/\text{GDD}_{\text{SF10}} \quad (4.8)$$

Dabei wird nur Dispersion 2. Ordnung angenommen, wodurch sich zeitlich ein linearer Verlauf der Momentanfrequenz des Pulses ergibt. Durch die Dicke des Glasblocks kann somit der Wert des *shear* verändert werden. Da bei der Auswertung des Interferogramms die Annahme (2.23) getroffen wird, dass aus der Phasendifferenz  $\Phi(\omega - \omega_c - \Omega) - \Phi(\omega - \omega_c)$  auf die Ableitung der Pulsphase geschlossen werden kann, ist prinzipiell ein kleiner Wert für die spektrale Verschiebung wünschenswert. Dabei ist allerdings zu beachten, dass die zu messende Differenzphase dabei sehr gering werden kann und dadurch der Einfluss des Rauschens auf die Messung zunimmt [Phi00]. Außerdem wird es experimentell sehr schwierig, den Parameter genau zu kalibrieren. Bei der Wahl eines zu großen Wertes für  $\Omega$  ist die Annahme (2.23) bei einem strukturierten Phasenverlauf oft nicht mehr gerechtfertigt. Das Whittaker-Shannon-Theorem [Iac99] besagt, dass mit einem Sampling-Intervall von  $\Omega$  im Frequenzraum der Puls innerhalb eines Zeitfensters von  $T = 2\pi/\Omega$  rekonstruiert werden kann. Der *shear* sollte daher so gewählt werden, dass dieses Zeitfenster sehr viel größer als die Pulsdauer ist. Im verwendeten Aufbau ist diese Voraussetzung mit  $\Omega = 2\pi \cdot 5$  THz und damit  $T = 200$  fs für den komprimierten Puls gut erfüllt, bei einigen Pulsformen ist dies allerdings nicht mehr der Fall.

## 4.5.2 Messung von Pulsformen

Für das Scheitern der SPIDER-Charakterisierung sind mehrere verschiedene Ursachen verantwortlich zu machen, die nun anhand der in diesem Kapitel präsentierten Pulsformen diskutiert werden sollen. Dabei sind prinzipielle Limitationen des SPIDER-Verfahrens von experimentellen Gegebenheiten wie dem Signal-zu-Rausch-Verhältnis oder der Spektrometer-Auflösung zu trennen. Zum besseren Verständnis der verschiedenen Einflüsse wurde eine numerische Simulation der einzelnen Messungen durchgeführt.

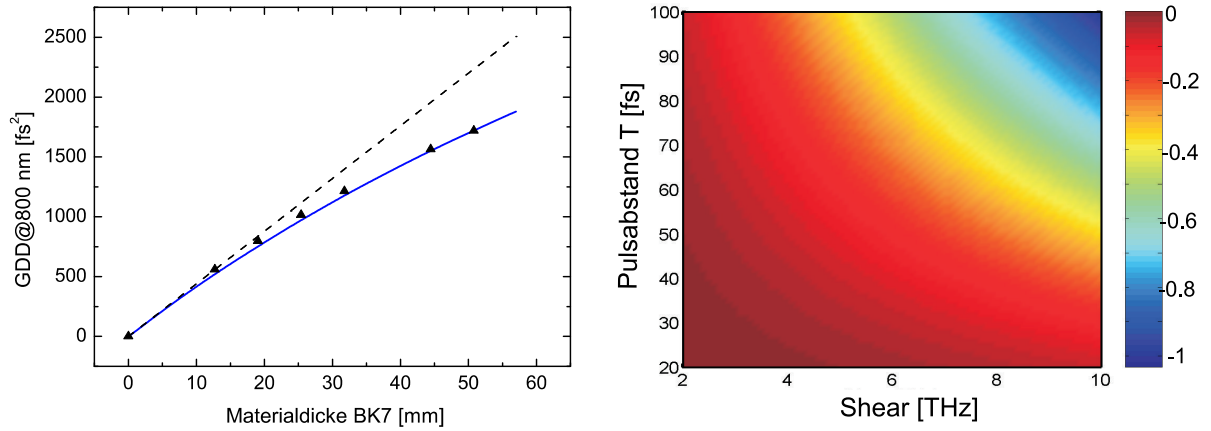
### Zweifarbige Doppelpulse

Bei der Charakterisierung von Pulsformen treten bereits im Fall der zweifarbigen Doppelpulse Probleme auf. Mit SPIDER sind keine Absolutwerte der Phase oder des GDs messbar, sondern lediglich die für die Pulsform maßgebliche relative Phase der spektralen Anteile zueinander. Daher ist ein kontinuierlicher Verlauf der Phase und damit des Interferogramms erforderlich. Durch eine abrupte Änderung der Steigung kommt es zu einer Diskontinuität der lokalen Oszillationsfrequenz des SPIDER-Interferogramms und die relative Phasenbeziehung geht an dieser Stelle verloren. Um dies zu vermeiden wurde bei den erzeugten Doppelpulsen ein kleiner linearer Übergangsbereich des GDs eingerichtet. Bei zu großen Zeitabständen (mehr als 400 fs) reicht dieser allerdings nicht mehr aus, um eine zu starke Änderung der Modulationsfrequenz des SPIDER-Signals auf diesem Frequenzintervall zu verhindern. Dadurch kann das Interferogramm mit dem Spektrometer dort nicht mehr aufgelöst werden und die Phasenbeziehung der Spektralanteile beider Doppelpulse und damit ihr zeitlicher Abstand kann somit nicht mehr bestimmt werden.

### Messung großer Dispersion

Bei der Anwendung des Pulsformers als Dispersionskompensation ist mit zunehmender Dispersionsmenge eine Abweichung des gemessenen vom erwarteten Phasenverlauf festzustellen, der in diesem Fall aus den Sellmeier-Gleichungen des BK 7-Glas berechnet werden kann. Aufgrund des im vorherigen Abschnitts definierten Zeitfensters ist es allerdings erstaunlich, dass diese Messfehler erst bei relativ großen Materialdicken von ca. 25 mm auftreten. Durch das Glas wird vor allem Dispersion 2. Ordnung in den Puls eingebracht, wodurch sich ein linearer Verlauf des GD ergibt. Die Näherung (2.23) ist dadurch immer gut erfüllt. Dies gilt allerdings nicht für die zweite Annahme (4.7), da mit zunehmender Dispersion die lokale Oszillationsperiode immer mehr durch die Pulsphase bestimmt ist. Außerdem kann entgegen der idealisierten Vorstellung nicht mehr davon ausgegangen werden, dass die nicht-verbreiterten Puls-Replika im BBO nur eine cw-Komponente des langen Pulses zur Summenfrequenzbildung herauschneiden. Durch die Materialdispersion ergibt sich im zu charakterisierenden Puls ebenfalls ein linearer Verlauf der Momentanfrequenz. Der *shear* stellt daher eine gemittelte Größe dar.

Eine Simulation der erwarteten Messfehler in Abhängigkeit von der Dispersion 2. Ordnung ist in Abbildung 4.15 dargestellt. Zur Anpassung an die ebenfalls eingezeichneten experimentellen Werte (siehe Abschnitt 4.2.2) wurden als SPIDER-Parameter eine Zeitverzögerung  $\tau = 300$  fs und eine rein quadratische Dispersion des Glasblocks von  $13000$  fs<sup>2</sup> angenommen. Beide Werte sind für den SPIDER-Aufbau durchaus realistisch. Die gemessene GDD weicht mit zunehmender Materialdicke immer mehr von dem erwarteten Verlauf ab. Dabei wird wie in der Messung die GDD im Puls unterschätzt. In beiden Fällen wurde der *shear* für den komprimierten Puls bestimmt. Die große GDD ist aber im Vergleich zu der durch den SF 10-Block eingebrachten Dispersion nicht mehr vernachlässigbar, der gestretchte Puls im SPIDER ist dadurch stärker verbreitert. Die tatsächliche Größe der spektralen Verschiebung ist daher geringer als der bei der Kalibration mit dem kompri-

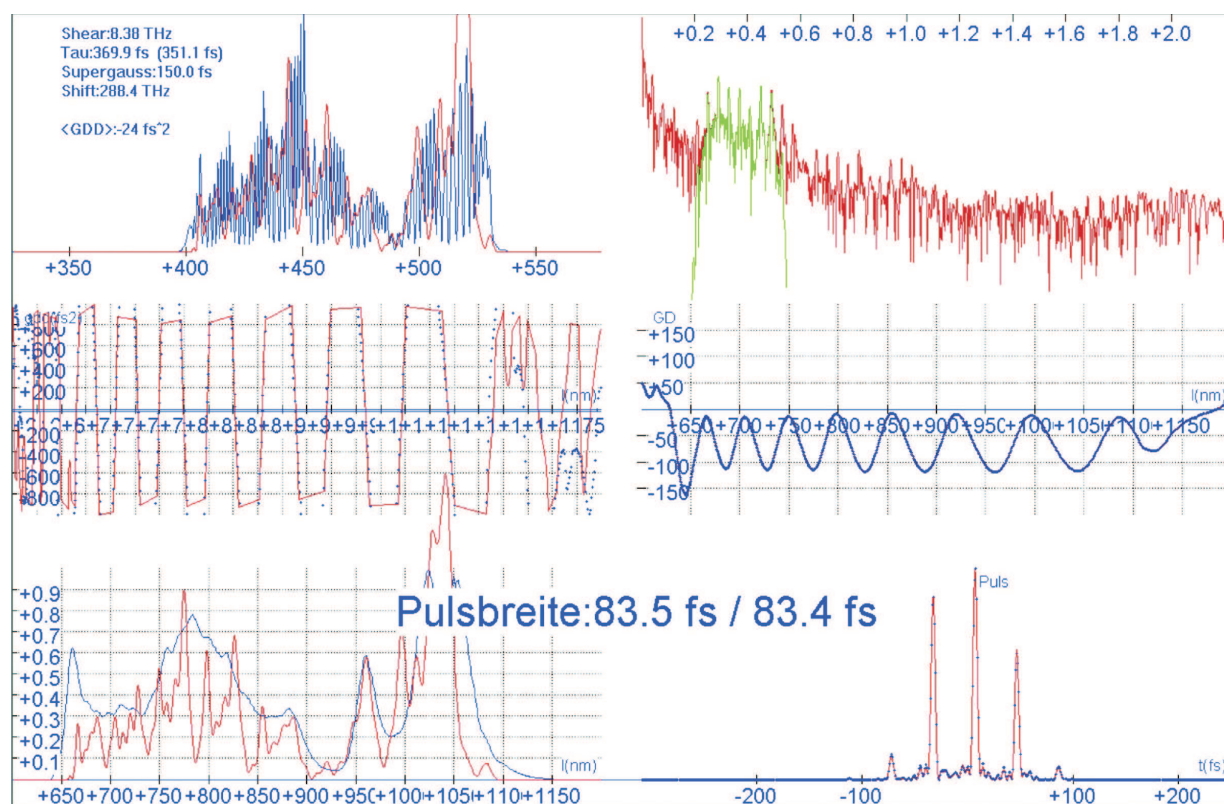


**Abbildung 4.15:** Numerische Simulation des SPIDER-Verfahrens. (a) Die blaue Kurve stellt die mit SPIDER bestimmte GDD bei 800 nm in Abhängigkeit von der Dicke des BK 7-Substrats, wobei allein die Dispersion zweiter Ordnung von  $44 \text{ fs}^2/\text{mm}$  berücksichtigt wurde. Die Simulation wurde mit einem gemessenen Spektrum durchgeführt. Zum Vergleich ist der vorgegebene GDD-Wert als gestrichelte Linie eingezeichnet. (b) In der Simulation bestimmte Amplitude  $A$  einer sinusförmigen Phase in Abhängigkeit von der Periodendauer  $T$  und dem im SPIDER festgelegten *shear*  $\Omega$ . Die Farbskala kodiert die relative Abweichung vom vorgegebenen Wert  $A = 1,4 \text{ rad}$ . Für zunehmende Modulationsfrequenz wird das Signal bei großem  $\Omega$  schlecht abgetastet und die Amplitude unterschätzt.

mierten Puls bestimmt. Da der *shear* für die Skalierung der Phase verantwortlich ist, liefert dies eine mögliche Erklärung für die unterschätzte Größe der GDD.

### Messung eines strukturierten Phasenverlaufs

Die Limitationen bei der Messung eines komplizierten Phasenverlaufs können sehr gut anhand der angelegten Sinusphasen diskutiert werden. Zur Veranschaulichung ist in Abbildung 4.16 ein Screenshot einer SPIDER-Messung für den Fall einer Sinusphase mit einem Pulsabstand von 40 fs gezeigt. Durch die Pulssequenz ergibt sich eine starke Modulation der lokalen Oszillationsfrequenz im SPIDER-Interferogramm, die auch deutlich in der Fourier-Transformierten zu erkennen ist. Ein zu großer Pulsabstand von mehr als 80 fs führt daher bereits zu sehr geringen Abständen in der lokalen Modulationsperiode, die mit der Auflösung des verwendeten Spektrometers nicht mehr aufgelöst werden können. Ähnlich zu der Situation mit den zweifarbigen Doppelpulsen geht dann die Phasenbeziehung zwischen den Spektralanteilen an dieser Stelle verloren. Bereits zuvor weicht die gemessene Amplitude der Phase von dem am Pulsformer angelegten Wert ab. Dies ist umso stärker der Fall, je größer der Pulsabstand ausfällt. Der Grund hierfür ist in der unzureichenden Abtastung der Phasenstruktur durch den für diesen Fall zu großen *shear* zu suchen, der



**Abbildung 4.16:** Screenshot einer SPIDER-Messung für einen sinusförmigen Verlauf mit  $A = 1,4 \text{ rad}$ ,  $T = 40 \text{ fs}$ . Die lokale Periode des Interferenzsignals (oben, links) variiert lokal bereits sehr stark, was auch in der im rechten oberen Fenster dargestellten Fouriertransformierten des SPIDER-Signals deutlich zu sehen ist.

zu einer effektiven Glättung des Phasenverlaufes führt. Die Simulation des Messvorgangs ist in Abbildung 4.15 für verschiedene Werte des *shear* und der Frequenz der Sinusphase dargestellt.

Mit Hilfe der numerischen Simulationen konnte ein gutes Verständnis für die Verlässlichkeit der SPIDER-Messung für die angelegten Pulsformen ermittelt werden. Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass das SPIDER-Verfahren hervorragend geeignet ist, die Phase eines dispersiv verbreiterten Pulses zu messen. Auch Pulsformen, die einen genügend glatten spektralen Verlauf aufweisen, stellen kein Problem dar. Ist dieser jedoch stark strukturiert, treten Messfehler auf, die im SPIDER-Verfahren selbst begründet sind. Prinzipiell ist eine möglichst große Zeitverzögerung  $\tau$  und ein kleiner Wert des *shear* wünschenswert, da dann eine gute Abtastung der spektralen Phase erreicht wird. Im Experiment ist dafür allerdings eine hochauflösendes und zugleich breitbandiges Spektrometer notwendig.

Die zuverlässige Charakterisierung kurzer Pulse ist eine wichtige Grundlage für viele Experimente, besonders im Bereich der Quantenkontrolle, in dem der Intensitätsverlauf

des Pulses zur Steuerung quantenmechanischer Vorgänge benutzt wird. Es zeigt sich, dass der Pulsformer-Aufbau sehr gut geeignet ist, die Leistungsfähigkeit eines Messverfahrens sehr detailliert zu testen. Darüber hinaus ist es auch möglich verschiedene Verfahren zu vergleichen und entsprechend der experimentellen Anforderung die optimale Methode auszuwählen.





# Kapitel 5

## Anwendungen ultrakurzer Laserpulse

Nachdem in den vorhergehenden Kapiteln die Phasenkontrolle für ultrakurze Laserpulse und die Erzeugung verschiedener Pulsformen gezeigt werden konnte, soll nun im folgenden die Anwendung solcher Pulse im Mittelpunkt stehen. Zunächst wird die Untersuchung der Dynamik großer Moleküle in Lösung mittels einer zweifarbigen Anrege-Abfrage-Technik vorgestellt. Dabei konnte die vielseitige Verwendbarkeit des Pulsformers demonstriert werden. Im zweiten Teil dieses Kapitels wird der Laser zur Optischen Kohärenztomographie (*optical coherence tomography*, OCT) eingesetzt, die ein wichtiges Verfahren zur Bildgebung in biologischen Systemen darstellt. Die vorgestellte Erweiterung dieser Methode durch Detektion nichtlinearer Prozesse in der Probe liefert material- und strukturspezifische Informationen *in vivo*, d. h. ohne die Notwendigkeit histologischer Schnitte. Durch die große Bandbreite des eingesetzten Lasers konnte dabei die Auflösung der Tiefenscans auf bisher mit dieser nichtlinearen Technik unerreichte  $1,9 \mu\text{m}$  gesteigert werden.

### 5.1 Pump-Dump Experiment

#### 5.1.1 Motivation

Zum besseren Verständnis chemischer Vorgänge ist eine genaue Kenntnis der molekularen Dynamik und der Übertragung elektronischer Anregung erforderlich. In einem isolierten Molekül können dabei mit Hilfe der Infrarot-Spektroskopie anhand der Position und der Form der Absorptions- oder Emissionslinien die angeregten Schwingungsmoden und deren Dämpfungsraten bestimmt werden. Durch die starke Wechselwirkung mit der Umgebung ist dies allerdings in einer Flüssigkeit nicht mehr möglich, da sehr viele verschiedene dynamische Vorgänge zu der Linienverbreiterung beitragen. Für große Moleküle in Lösung ergibt sich daher meist ein Emissions- bzw. Absorptionsband, das keine Linienstruktur mehr erkennen lässt. Gerade diese komplizierte Situation ist allerdings das Umfeld, in dem sehr viele chemische und fast alle biologischen Vorgänge ablaufen. Aus diesem grundlegenden Interesse heraus wurden zahlreiche Techniken entwickelt, um mit Femtosekunden-Pulsen einen direkteren Zugang zu den intra-molekularen Prozessen sowie der Wechselwirkung

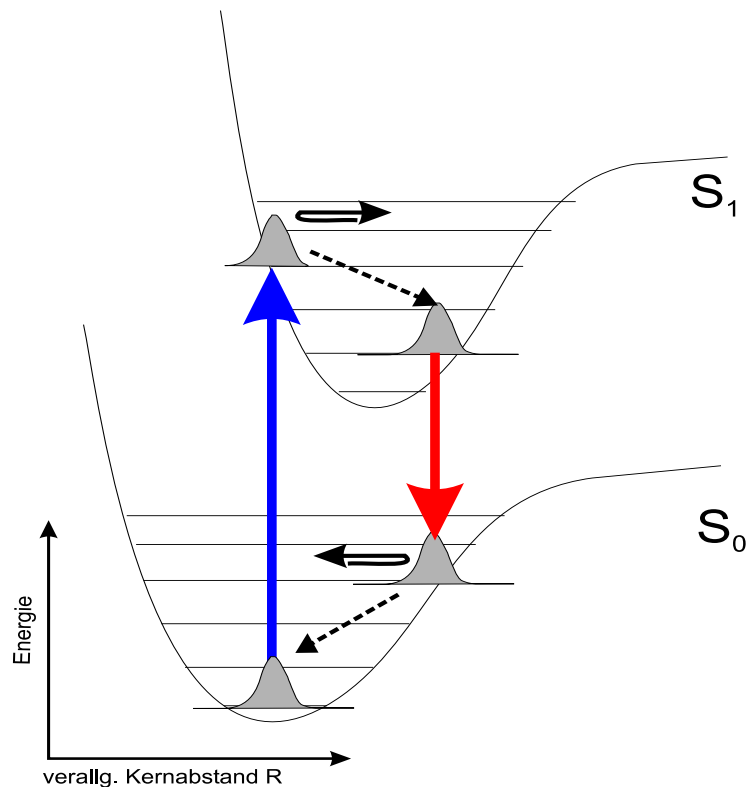
zwischen den Molekülen und dem Lösungsmittel zu erhalten. Dabei wurden vor allem Laserfarbstoffe wie Oxazin, Rhodamin oder Cyanin-Farbstoffe ausgiebig untersucht, da sie aufgrund ihrer praktischen Bedeutung in der Laserphysik oftmals gut bekannte optische Eigenschaften besitzen und sich sehr einfach optisch anregen lassen.

Prinzipiell lassen sich nach erfolgter Anregung eines Moleküls durch einen Laserpuls zwei Prozesse unterscheiden [Lae90]: Zunächst wird die eingebrachte Energie innerhalb des Moleküls auf die zahlreichen Schwingungsniveaus umverteilt, bis eine Quasi-Gleichgewichtsbesetzung erreicht ist. Dies geschieht für typische Farbstoffe auf einer Zeitskala von 25 fs – 500 fs. Die Verteilung entspricht dabei einer Temperatur, die deutlich über der der Umgebung liegt. Die nachfolgende Kühlung erfolgt durch Stöße mit dem Lösungsmittel. Der Zeitraum, der für diese Thermalisierung benötigt wird, hängt dabei vom verwendeten Lösungsmittel ab und liegt im Bereich von 5 ps – 50 ps. Dieser Vorgang wird auch als Solvatisierung bezeichnet.

Neben diesen schnellen Relaxationsprozessen konnten in Anrege-Abfrage-Experimenten mit fs-Pulsen für zahlreiche Laserfarbstoffe Oszillationen im detektierten Signal mit Frequenzen im THz-Bereich beobachtet werden [Ros86]. Dieses unerwartete Verhalten wurde als Überlagerung von Schwingungsmoden im angeregten Zustand  $S_1$  des Farbstoffs interpretiert und zeigte sich auch in nachfolgenden Experimenten [Mok89]. Daraus lässt sich schließen, dass es trotz der schnellen Dephasierung in der Flüssigkeit und der hohen Zahl an Vibrationsmoden der großen organischen Moleküle möglich ist, eine kohärente Superposition von Schwingungsmoden zu erzeugen, wenn die Pulsdauer kurz im Vergleich zur Oszillationsperiode ist.

Die theoretische Beschreibung der Photoanregung in Farbstoffmolekülen zeigt [Fai98], dass eine anschauliche Beschreibung anhand eines aus einer kohärenten Überlagerung von molekularen Schwingungszuständen bestehenden Wellenpaketes erfolgen kann, wie dies in Abbildung 5.1 zu sehen ist. Der Lichtpuls regt dabei gemäß des Franck-Condon-Prinzips ein Elektron vom Grundzustand  $S_0$  in den angeregten Zustand  $S_1$  an. Dieser Prozess erfolgt als rein elektronischer Vorgang quasi instantan. Aufgrund der geänderten Elektronenverteilung ergibt sich im allgemeinen ein veränderter Gleichgewichtsabstand der einzelnen Atome im Molekül, so dass die Potentialkurve in  $S_1$  gegenüber der Kurve im Grundzustand verschoben ist. Im Idealfall einer Anregung einer einzelnen Eigenmode in einem rein harmonischen Potential würde das Wellenpaket in  $S_1$  eine Oszillation beginnen mit einer Frequenz, die dem Energieeigenwert des Vibrationszustands entspricht. Während dieser Bewegung verändert sich der Franck-Condon-Faktor und damit das Matrixelement, das für einen optischen Übergang zwischen  $S_0$  und  $S_1$  entscheidend ist, so dass die Bewegung des Wellenpaketes mit optischen Methoden untersucht werden kann.

In einem etwas realistischeren Bild muss die eindimensionale Vorstellung in Abbildung 5.1 durch eine hochdimensionale Potentialfläche ersetzt werden und das Wellenpaket muss als eine Überlagerung sehr vieler Schwingungsmoden aufgefasst werden, deren Anzahl von der Dichte der Zustände in  $S_1$  und der spektralen Bandbreite des anregenden Laserpulses abhängt. Die Oszillationsfrequenz der einzelnen Moden ist entsprechend ihres Energieeigenwertes unterschiedlich, wodurch es zu einem schnellen Zerlaufen des Wellenpaketes kommt. Durch eine Anharmonizität des Potentials kommt es außerdem zur Kopplung der



**Abbildung 5.1:** Vereinfachtes Wellenpaketbild der Farbstoff-Anregung. Durch die kurzwelligen „blauen“ Spektralanteile des eingestrahnten Laserpulses wird im angeregten  $S_1$ -Zustands des Farbstoffs ein nicht-stationärer Überlagerungszustand erzeugt. Die zeitliche Entwicklung des Wellenpaketes hängt von der Energiedifferenz der beteiligten Schwingungsniveaus ab. Der durch den „roten“ Abfragepuls verursachte Transfer in den Grundzustand  $S_0$  ist proportional zu dem momentanen Franck-Condon-Überlapp und liefert daher Informationen über die molekulare Dynamik.

Schwingungsmoden, was letztendlich zu einer Gleichverteilung der eingebrachten Energie auf alle Schwingungsmoden führt. Die Beobachtbarkeit eines oszillatorischen Verhaltens erfordert daher Dekohärenz-Zeiten der beteiligten Schwingungszustände, die länger sind als die entsprechende Dauer einer Oszillationsperiode, und ist nur mit einer sehr guten Zeitauflösung im Bereich weniger Femtosekunden möglich. Werden nur wenige Moden direkt optisch angeregt, kann gegebenenfalls auch die Schwebungsfrequenz dieser Moden als sogenannte *quantum beats* im detektierten Signal auftreten.

### 5.1.2 Prinzip der Messung

Die Lebensdauer typischer Farbstoffe im  $S_1$ -Niveau liegt im Bereich von 100 ps bis 1 ns, so dass bereits weitgehend ein neuer Gleichgewichtszustand erreicht ist, bevor das Fluor-

reszenzlicht emittiert wird. Verwendet man zur Anregung des Farbstoffes allerdings einen Puls, der einen linearen Chirp aufweist, kann es je nach Phasengang innerhalb der Zeitdauer des Pulses zu einer stimulierten Emission kommen. Im Fall positiver Dispersion treffen zuerst die langwelligen Spektralanteile auf das Molekül, deren Energie nicht ausreicht, um eine Anregung zu bewirken. Die später eintreffenden Komponenten mit höherer Energie finden ein quasi unverändertes Molekül im Grundzustand vor. Die Situation bei negativer Dispersion ist wesentlich interessanter. Hier laufen die kurzwelligen Anteile des Pulses voraus und regen im Farbstoff ein Wellenpaket in  $S_1$  an, wie dies in Abbildung 5.1 gezeigt ist. Je nach Zeitentwicklung des Wellenpaketes und Verlauf der Momentanfrequenz des Lichtpulses kommt es nun zu einer mehr oder weniger effizienten stimulierten Abregung des  $S_1$ -Niveaus in den Grundzustand.

Das Fluoreszenz-Signal ist proportional zur Besetzung des angeregten Zustands und liefert in diesem Fall in Abhängigkeit der GDD, durch die der Laserpuls verbreitert wurde, Information über die Dynamik in  $S_1$ . Dieser sogenannte *pump-dump* Prozess wurde erstmals von Cerullo et al. in den Laserfarbstoffen LD 690 und LDS 750 beobachtet [Cer96] und später auch theoretisch beschrieben [Fai00]. Diese sogenannte *chirped pulse excitation* kann auch zur Anregung von bei Raumtemperatur normalerweise unbesetzten Schwingungsniveaus im elektronischen Grundzustand  $S_0$  genutzt werden. Die zeitliche Entwicklung des so entstandenen Wellenpaketes kann dann durch einen zusätzlichen Abfrage-Puls detektiert werden [Bar95].

### 5.1.3 Experimenteller Aufbau

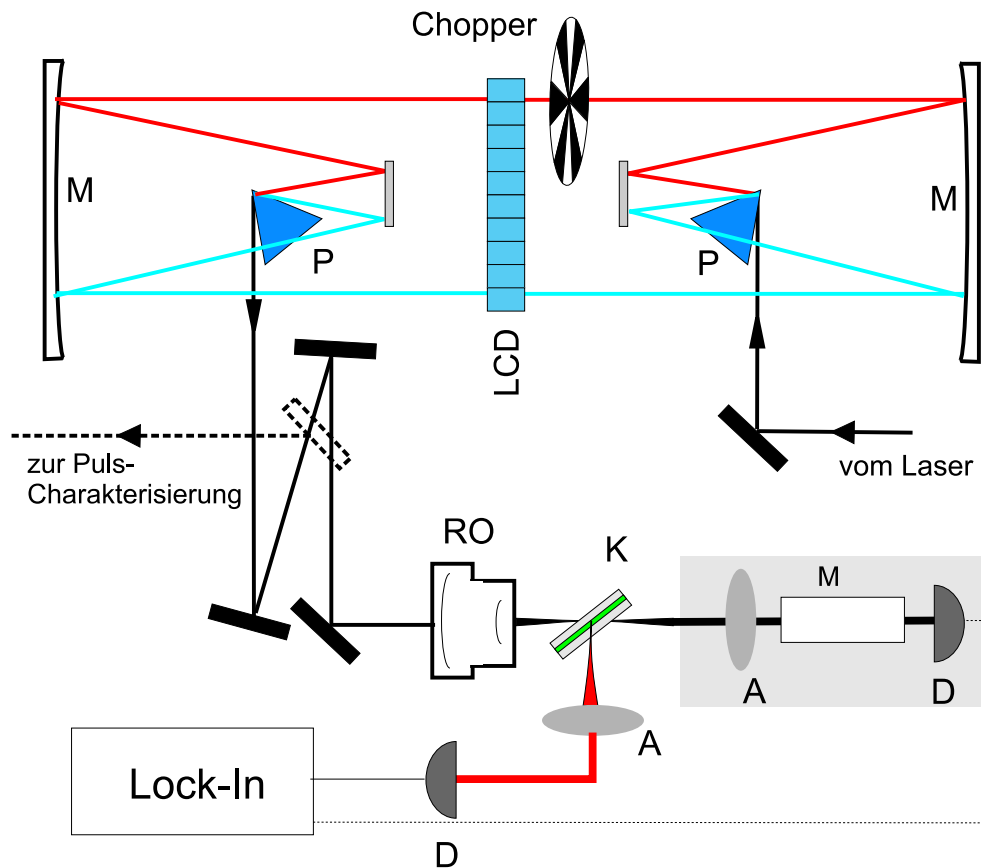
Die Kombination des Kurzpuls-Oszillators mit dem hocheffizienten Pulsformer stellt für diese Messungen ein sehr flexibles Werkzeug dar, mit dessen Hilfe sich verschiedene Pulsprofile mit hoher Zeitaufösung sehr einfach generieren lassen. Als erste Anwendung unseres Systems wurden *pump-dump*-Messungen am Laserfarbstoff HDITCP<sup>1</sup> durchgeführt, die im folgenden detailliert beschrieben werden.

Dabei soll zum einen die Anregung mit dispersiv verbreiterten Pulsen untersucht werden, wobei es mit Hilfe des Pulsformer möglich ist, einen rein quadratischen Phasengang ohne höhere Dispersionsordnungen zu erzeugen. Andererseits ist es auf diese Weise ebenfalls möglich, wie bereits im vorangegangenen Kapitel demonstriert, zweifarbige Doppelpulse zu generieren, die je nach zeitlicher Anordnung der kurzwelligen, „blauen“ und der langwelligen, „roten“ Frequenzanteile zu einem vergleichbaren *pump-dump* Prozess und damit zu einer analogen Abnahme des Fluoreszenzlichts führen sollten. Diese neuartige Methode besitzt den Vorteil, dass die zeitliche Auflösung über den gesamten Bereich der Zeitverzögerung konstant bleibt, was aufgrund der zunehmenden zeitlichen Verbreiterung der Pulse durch Erhöhung der GDD im anderen Fall nicht gegeben ist. Beide Methoden werden im folgenden zur Untersuchung des *pump-dump*-Prozesses in HDITCP eingesetzt.

Der experimentelle Aufbau für beide Fluoreszenz-Messungen ist in Abbildung 5.2 zu sehen. Der Laserpuls wird nach Durchlaufen des Pulsformers mit einem Hohlspiegel der

---

<sup>1</sup>1,1',3,3',3',3'-Hexamethyl-4,4',5,5'-dibenzo-2,2'-indotricarbocyanin Hexadibenzocyanin, Radiant Dyes



**Abbildung 5.2:** Schematischer Aufbau zur Untersuchung der Farbstoff-Dynamik. Der gewünschte spektrale Phasenverlauf wird an den Pulsformer (LCD) angelegt und der Ausgangspuls mit einem reflektiven Objektiv (RO) in die Durchfluß-Küvette (K) fokussiert. Die Fluoreszenz des Farbstoffs wird mit einer asphärischen Linse (A) aufgefangen und mit einer Photodiode (D) detektiert. Durch das Chopper-Rad wird nur der zur Abfrage verwendete, infrarote Spektralanteil moduliert, so dass mit dem Lock-In-Verstärker nur die durch diesen verursachten Änderungen der Fluoreszenz gemessen werden. Der grau hinterlegte Teil der Detektion dient zur Aufnahme der stimulierten Emission, die mit Hilfe des Monochromators (M) spektral zerlegt werden kann. Bei dieser Messung wird das Chopper-Rad allerdings so platziert, dass der Spektralbereich des Pump-Pulses moduliert wird.

Brennweite  $f = 2000$  mm kollimiert und kann durch entsprechend platzierte Klappspiegel zur Charakterisierung in den Autokorrelator bzw. den SPIDER umgelenkt werden. Zur Anregung eines Übergangs mit cw-Licht ist die Sättigungsintensität ein gutes Maß für die Intensität, die zu einer nennenswerten Besetzung des angeregten Zustands benötigt wird. Im Fall kurzer Pulse, deren Dauer geringer ist als die Lebensdauer des betrachteten oberen Niveaus, ist allerdings vielmehr die eingestrahelte Energiedichte maßgeblich [Sve98]. Aufgrund der niedrigen Pulsenergie, die bei einer typischen Durchschnittsleistung von 30 mW

nach dem Pulsformer nur etwa 0.5 nJ beträgt, ist nur eine geringe Anregung des Farbstoffs zu erwarten. Zur Erhöhung der Energiedichte wird der Laserstrahl daher mit Hilfe eines reflektiven Objektivs<sup>2</sup> mit einer Brennweite von 13,4 mm auf einen theoretischen Wert des Strahlradius von ca. 5  $\mu\text{m}$  fokussiert. Der Farbstoff wird durch eine Durchfluss-Küvette<sup>3</sup> gepumpt, um die Ansammlung von Molekülen in langlebigen Triplet-Zuständen zu verhindern. Die Schichtdicke der Flüssigkeit beträgt 100  $\mu\text{m}$  und entspricht damit sehr gut der Rayleigh-Länge des fokussierten Laserstrahls<sup>4</sup>. Die Küvette ist um einen Winkel von ca. 45° gegenüber der Strahlachse gedreht, damit senkrecht zum Eingangsstrahl das Fluoreszenzlicht des Farbstoffes mit einer asphärischen Linse aufgesammelt und mit einer Silizium-Photodiode<sup>5</sup> detektiert werden kann. Durch den infraroten Abregepuls kann aufgrund der niedrigen Pulsenergie nur eine kleine Änderung des Fluoreszenz-Signals erwartet werden. Daher wird ein Chopper-Rad<sup>6</sup> so in den Pulsformer-Aufbau platziert, dass mit dem Lock-In-Verstärker<sup>7</sup> nur die Auswirkung der mit dem Chopper-Rad modulierten Spektralanteile detektiert wird.

### Eigenschaften des untersuchten Laserfarbstoffs

Als Probe wurde ein Laserfarbstoff ausgewählt, der das fundamentale Laserlicht im Bereich 650 nm – 800 nm direkt absorbiert und daher Fluoreszenz im nahen Infrarot zeigt. Die Klasse der Tricarbocyanine (z.B. HDITCP, IR144, IR125) erfüllt diese Anforderungen und ist zudem bereits von einigen Arbeitsgruppen bezüglich der Solvatisierungsdynamik [Yu02] und optisch aktiven Schwingungsmoden [Yan99] untersucht worden. Für die folgenden Experimente wurde HDITCP benutzt, dessen chemische Struktur in Abbildung 5.3 eingezeichnet ist. Als Lösungsmittel diente Ethanol. Die optische Dichte der Lösung betrug im Bereich der Absorption von 650 nm bis 820 nm ca. 4  $\text{mm}^{-1}$ , so dass in der Schichtdicke von 100  $\mu\text{m}$  ungefähr 60 % des Pumplichtes absorbiert wurde.

Das gemessene Absorptions- und Fluoreszenzspektrum von HDITCP in Ethanol ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Das Maximum der Emission liegt bei 825 nm und ist gegenüber dem Absorptionsmaximum bei 780 nm um die Stokes-Verschiebung von 21 THz rotverschoben. Die Abhängigkeit des mit einer Photodiode detektierten Fluoreszenzlichtes von der Pumpleistung zeigt einen linearen Zusammenhang, so dass keine Sättigungseffekte oder unerwünschte Zwei-Photonenabsorption in nennenswertem Umfang stattfinden. Durch Verwendung einer schnellen GHz-Photodiode konnten im Zeitbereich die einzelnen Pulse im Fluoreszenzlicht nachgewiesen werden, was bedeutet, dass die Lebensdauer des oberen  $S_1$ -Niveaus weniger als 1 ns beträgt. Dies deckt sich gut mit dem in [Yu02] angegebenen Wert für HDITCP in Ethanol von 512 ps. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass trotz

---

<sup>2</sup>Ealing, 15-fache Vergrößerung, numerische Apertur 0.28

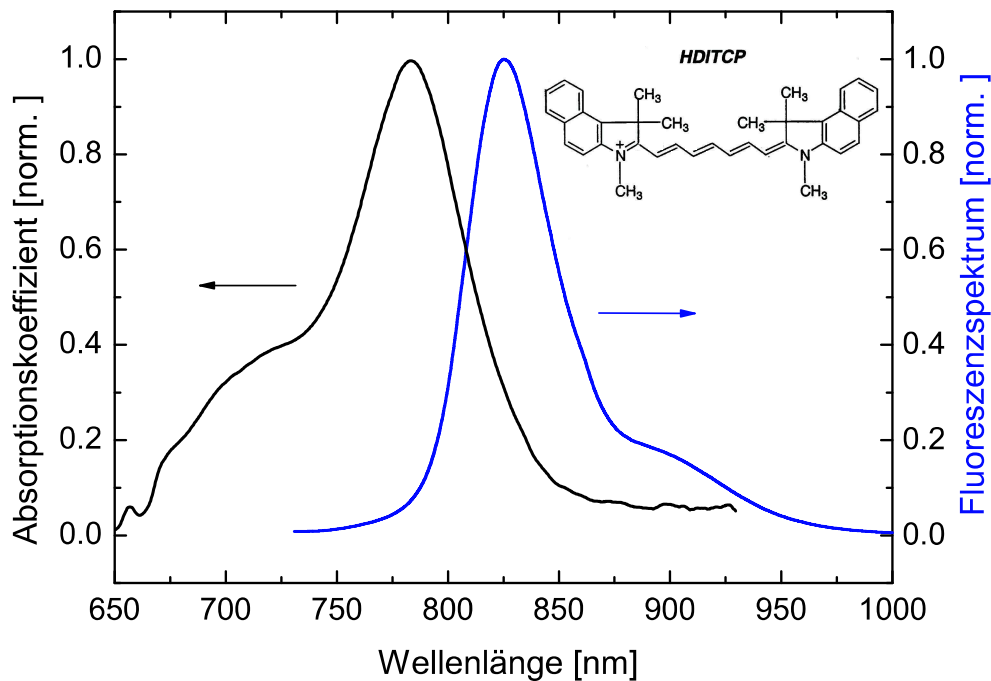
<sup>3</sup>Starna, Typ 48/Q/0.1

<sup>4</sup>Die Rayleigh-Länge bezeichnet die Distanz zum Fokus, nach der der Strahlradius um den Faktor  $\sqrt{2}$  angewachsen ist.

<sup>5</sup>Hamamatsu, S 1223-01

<sup>6</sup>Thorlabs MC1000. Die gewählte Modulationsfrequenz lag typischerweise bei 1 kHz.

<sup>7</sup>Stanford Research Systems, SR 830 DSP



**Abbildung 5.3:** Gemessene Frequenzabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten und Emissionsspektrum des Farbstoffs HDITCP in Ethanol. Das Maximum der Absorption liegt bei 780 nm, das Emissionsspektrum ist um ca. 21 THz ( $700\text{ cm}^{-1}$ ) rot-verschoben und hat sein Maximum bei 825 nm. Die chemische Struktur des Farbstoffs ist im rechten, oberen Teil der Abbildung eingezeichnet.

der hohen Repetitionsrate von 75 MHz der Farbstoff nach der Anregung wieder in den Grundzustand relaxiert ist, bevor der nächste Laserpuls auf das Molekül trifft.

#### 5.1.4 Messung mit dispersiv verbreiterten Pulsen

Zunächst wurde mit dem Pulsformer durch Anlegen einer rein quadratischen Phasenfunktion analog zu [Cer96] die Fluoreszenz des Farbstoffs in Abhängigkeit der spektralen Phase des Pulses untersucht. Als Ausgangspunkt der Messung wird der Puls wie in Kapitel 4.2.1 beschrieben zeitlich komprimiert und weist in der SPIDER-Charakterisierung einen flachen Phasenverlauf und eine Pulsdauer von 4,5 fs auf. Zusätzlich zu der Kompensationsphase wird dann ein parabolischer Phasenverlauf an das LCD angelegt und die mit Hilfe des Lock-In-Verstärkers detektierte Fluoreszenz des Farbstoffs aufgenommen. Zur Kompensation des 1 mm dicken Küvettenmaterials wurde bei der SPIDER-Messung ein entsprechendes Ausgleichssubstrat in den Strahlengang gestellt. Entsprechend des Absorptions- bzw. Emissionsspektrums des Farbstoffs (Abbildung 5.3) wird der kurzwellige Teil des Laserspektrums bis 820 nm zu einer Anregung des Farbstoffs führen, während die langwellige-

ren Anteile zur stimulierten Emission und damit der Abregung des  $S_1$ -Niveaus beitragen. Durch die Position des Chopper-Rades, das so in der Fourier-Ebene platziert wurde, dass nur Frequenzen oberhalb 820 nm moduliert werden, ist der Lock-In-Verstärker nur auf Änderungen der Fluoreszenz empfindlich, die von diesen Spektralanteilen verursacht werden.

Da HDITCP das Laserlicht bis etwa 850 nm noch in geringem Maß absorbiert, wurde allerdings auch dieses Fluoreszenzlicht direkt detektiert und sorgte für einen nahezu konstanten Untergrund in der Messung. Aus diesem Grund wurde eine Referenzmessung durchgeführt, bei der die „Pump-Wellenlängen“ bis 820 nm geblockt wurde und dadurch der zu untersuchende *pump-dump*-Prozess nicht auftrat. Diese konnte dann von den Messdaten abgezogen werden. Das beobachtete *pump-dump*-Signal ist proportional zur Energie der zur Anregung benutzten Pump-Wellenlängen und der abregenden, langwelligen Spektralkomponenten. Durch Anlegen von konstanten GDD-Werten an den Pulsformer kommt es zu phasenabhängigen Verlusten in der Grundmode (vergleiche Kapitel 3.2). Daher wurde das gemessene Signal auf die gleichzeitig aufgenommenen Gesamtfluoreszenz normiert, die linear mit der Energie in dem zur Anregung benutzten Spektralbereich zusammenhängt. Durch die Referenzmessung ist dieselbe Vorgehensweise auch für die Probe-Wellenlängen möglich. Die phasenabhängige Änderung der Pulsenergie zeigt einen sehr glatten Verlauf und kann durch ein Polynom zweiter Ordnung sehr gut angepasst werden. Der maximale Verlust bei  $\pm 500 \text{ fs}^2$  beträgt in beiden Fällen ca. 15 % – 20 % (siehe Anhang A.2).

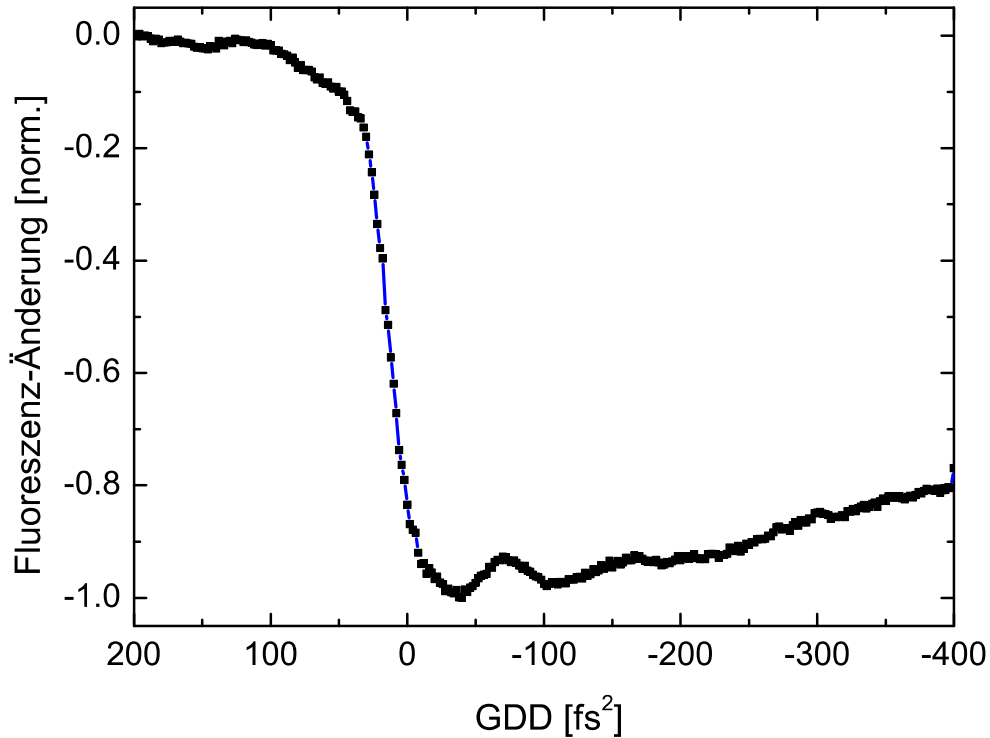
Die Ergebnisse der Messung im Bereich von  $-400 \text{ fs}^2$  bis  $200 \text{ fs}^2$  sind in Abbildung 5.4 dargestellt. Der Verlauf des Signals entspricht qualitativ dem in [Cer96] beobachteten Verhalten. Man erkennt deutlich, dass für positive Dispersion die Fluoreszenz weitgehend konstant bleibt. Bei negativen GDD-Werten kommt es dagegen zu einer Abnahme der Fluoreszenz. In diesem Fall treffen zuerst die kurzwelligen Frequenzen auf den Farbstoff und ermöglichen eine Anregung in das  $S_1$ -Niveau. Die Besetzung dieses Zustands führt für die nachfolgenden infraroten Spektralanteile zur stimulierten Emission, wodurch es zu einer Reduzierung der Fluoreszenz kommt. Aufgrund der niedrigen Pulsenergie ist allerdings nur ein kleiner Effekt festzustellen, die Änderung der Fluoreszenz beträgt lediglich 0,15 % des Gesamtsignals. Durch die Lock-In-Detektion mit einer Integrationszeit von 100 ms und die gute Stabilität des Lasers konnte bereits in der Einzelmessung (Dauer ca. 10 Minuten) ein sehr gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis von durchschnittlich 80:1 erreicht werden<sup>8</sup>. Durch Mittelung über 30 aufeinanderfolgende Messungen konnte dieser Wert auf 150:1 gesteigert werden, wobei langfristige Drifts der Laserleistung durch die Normierung auf die Gesamtfluoreszenz ausgeglichen werden.

Die gemessene Fluoreszenz ist direkt proportional zur resultierenden Besetzung des  $S_1$ -Zustands nach Ablauf des *pump-dump*-Vorgangs. Die Änderung des Fluoreszenz-Signals in Abhängigkeit des Puls-Chirps liefert daher Informationen über die Dynamik des Wellenpaketes im oberen Farbstoff-Niveau, da der Franck-Condon-Überlapp mit dem Grundzustand je nach zeitlichem Abstand der abregenden Spektralanteile verschieden ist. Durch

---

<sup>8</sup>Zur Berechnung dieses Wertes wurde das RMS-Rauschen von ca.  $10 \mu\text{V}$  im Bereich von  $120 \text{ fs}^2$  bis  $160 \text{ fs}^2$  ins Verhältnis zum Gesamtsignal von  $0,8 \text{ mV}$  gesetzt.



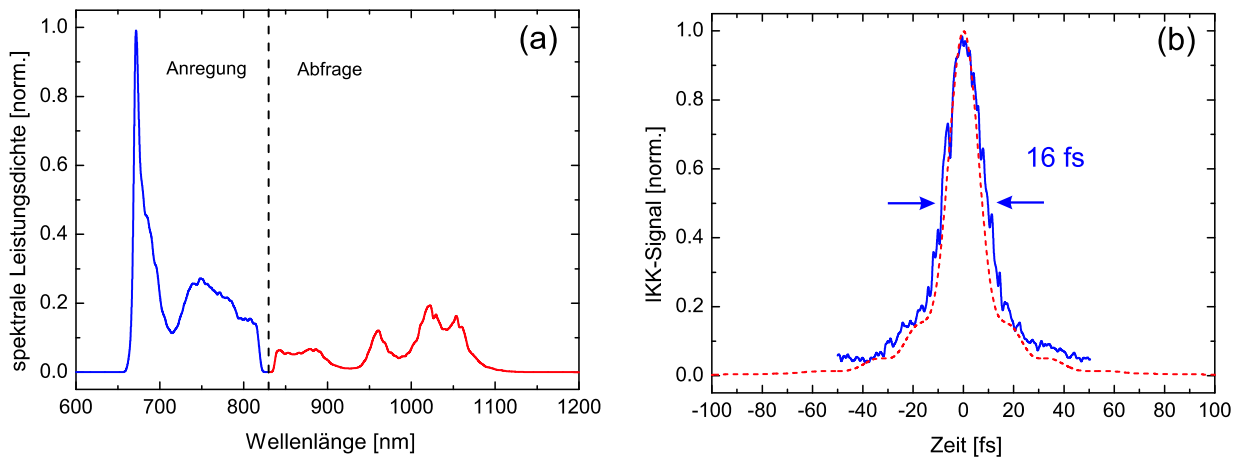


**Abbildung 5.4:** Gemessene Fluoreszenz in Abhängigkeit der Dispersion 2.Ordnung, die am Pulsformer angelegt ist. Das gemessene Signal wurde über 30 Einzelmessungen gemittelt und eine Referenzmessung abgezogen, bei der die Pump-Wellenlängen geblockt wurden. Die Änderung der Fluoreszenz wurde anschließend auf das Maximum normiert.

Vergrößern des Puls-Chirps wird jedoch gleichzeitig die Pulsdauer wesentlich vergrößert und daher die zeitliche Auflösung verschlechtert. Ein Rückschluß auf die interne Dynamik des Farbstoffs ist zwar durchführbar [Fai00], detaillierte Informationen über intramolekulare Schwingungsmoden und deren Dämpfung können aber nicht direkt gewonnen werden. Durch Ersetzung des dispersiv verbreiterten Pulses durch zwei Pulse, die aus unterschiedlichen Teilen des Spektrums bestehen, erfolgt die An- bzw. Abregung des Farbstoffs zu einem definierten Zeitpunkt, was die theoretische Beschreibung deutlich vereinfacht. Die Erzeugung solcher zweifarbigen Doppelpulse ist mit dem Pulsformer ebenfalls problemlos möglich und wurde bereits in Kapitel 4.4.1 vorgestellt.

### 5.1.5 Messung mit zweifarbigen Doppelpulsen

Durch die flexible Phasenkontrolle mit dem Pulsformer ist es ohne Änderung des experimentellen Aufbaus möglich, für den *pump-dump*-Prozess anstatt eines dispersiv verbreiterten Anregepulses zweifarbige Doppelpulse zu verwenden. Das in Abbildung 5.5(a) gezeigte Laserspektrum am Ausgang des Pulsformers weist durch das in der Fourierebene platzierte



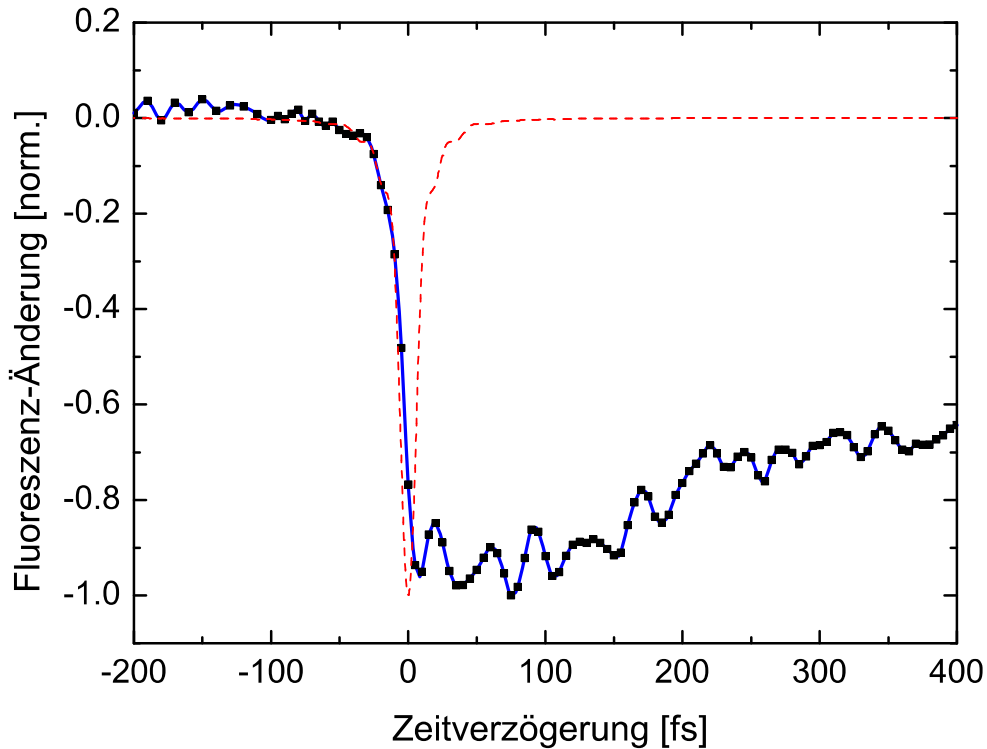
**Abbildung 5.5:** (a): Das Laserspektrum wird durch die Position des Chopper-Rads (gestrichelte Linie) in zwei Bereiche geteilt, die dem Anrege- bzw. Abfrage-Puls entsprechen. (b) Gemessene Kreuzkorrelation  $R(\tau)$  zwischen Anrege- und Abfragepuls (durchgezogene, blaue Linie) im Vergleich mit der unter der Annahme Fourier-limitierter Pulse berechneten Korrelationsfunktion (rot, gestrichelt).

Chopper-Rad im Bereich von 820 nm bis 840 nm eine Lücke auf. Der Aufteilungspunkt zwischen Pump- und Abfragepuls ist mit 830 nm so gewählt, dass nur die durch den Abfragepuls verursachte Änderung der Fluoreszenz detektiert wird. Die SPIDER-Messung ergibt für beide Pulse eine nahezu Fourier-limitierte Pulsdauer von jeweils ca. 10 fs.

Durch Anlegen einer linearen Phase mit unterschiedlichem Vorzeichen an die jeweiligen Spektralanteile können die beiden Pulse gegeneinander verzögert werden. Da hierbei im Unterschied zu optischen Verzögerungsstrecken keine Variation der Weglängen z. B. durch mechanische Vibrationen auftreten, kann mit dem Pulsformer eine hohe Stabilität der Zeitverzögerung im fs-Bereich<sup>9</sup> realisiert werden. Ebenso sind dadurch Langzeitdrifts bei den Messungen nicht zu erwarten, wie sie bei der Verwendung von Verschiebetischen durch Ungenauigkeiten in der Reproduzierbarkeit oder durch thermische Ausdehnung auftreten können. Beide Pulse besitzen eine feste, mit dem Pulsformer einstellbare Phasenbeziehung, da sie aus dem selben Laserspektrum stammen. Dadurch dass keine beweglichen Teile im Aufbau vorhanden sind, kommt es zu keinen messbaren Schwankung des zeitlichen Abstands.

Zur Bestimmung der Zeitauflösung wurde zunächst eine Kreuzkorrelation aufgenommen, bei der Anrege- und Abfragepuls mit dem Pulsformer gegeneinander verzögert werden und die in einem dünnen, gekielten BBO (Dicke  $10\ \mu\text{m} - 50\ \mu\text{m}$ ) erzeugte Summenfrequenz detektiert wird. Das gemessene Signal ist in Abbildung 5.5(b) zu sehen und stimmt sehr gut mit dem berechneten Verlauf für Fourier-limitierte Pulse überein. Für die *pump-dump-*

<sup>9</sup>Eine Zeitverzögerung der Pulse um 10 fs wird bereits durch einen Armlängen-Unterschied von  $1,5\ \mu\text{m}$  erreicht.



**Abbildung 5.6:** Gemessene Fluoreszenz in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung zwischen den zweifarbigen Doppelpulsen. Negative (positive) Zeiten bedeuten dabei, dass der Abfrage-Puls vor (nach) dem Pump-Puls auf den Farbstoff trifft. Das gemessene Signal wurde über 10 Einzelmessungen gemittelt und eine Referenzmessung abgezogen, bei der der Pump-Puls geblockt wurde. Die Änderung der Fluoreszenz wurde anschließend auf das Maximum normiert. Die berechnete Kreuzkorrelation  $R(\tau)$  der Anrege- und Abfragepulse aus Abbildung 5.5 ist rot gestrichelt eingezeichnet, um die Zeitauflösung der Messung zu veranschaulichen.

Messung kann daher eine Zeitauflösung von ca. 16 fs erwartet werden. Obwohl beide Pulse spektral nicht überlappen, kommt es aufgrund der festen Phasenbeziehung und der großen Bandbreite der einzelnen Spektren zu einem Interferenzterm im Kreuzkorrelations-Signal, dessen Oszillationsperiode durch die am Pulsformer angelegte Phasenfunktion variiert werden kann (siehe Anhang A.3). Um diese Effekte zu vermeiden, wurde zwischen den aufeinander folgenden Einzelmessungen jeweils eine zusätzliche Phase von  $\pi$  auf den infraroten Spektralbereich des Abfragepulses gegeben, wodurch sich eventuelle Interferenzterme herausmitteln.

Die experimentelle Anordnung der Farbstoff-Messung ist identisch zum oben beschriebenen Fall der Anregung mit dispersiv verbreiterten Pulsen. Als Integrationszeit am Lock-In-Verstärker wurde 300 ms gewählt und die Größe eines Zeitschrittes entsprechend der Auflösung auf 5 fs gesetzt, so dass ein einzelner Scan von -100 fs bis 400 fs ca. 15 Mi-

nuten benötigt. Das über 10 Messungen gemittelte *pump-dump*-Signal ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Die Fluoreszenz bleibt für negative Zeitverzögerung, d. h. wenn der „rote“ Abfrage-Puls vor dem „blauen“ Pump-Puls auf den Farbstoff trifft, nahezu konstant, was durch weitere Messungen im Bereich -800 fs – 800 fs belegt werden konnte. Sobald sich die Reihenfolge der Pulse umkehrt, kommt es zu einem raschen Abfall der Fluoreszenz. Von dem gemessenen Signal wurde analog zum Vorgehen in Abschnitt 5.1.4 eine im Anschluß aufgenommene Referenzmessung abgezogen und die Fluoreszenzabnahme auf ihr Maximum normiert. Die relative Abnahme beträgt wiederum lediglich 0,2% der Gesamtfluoreszenz, was aber bei einer Signalamplitude von 0,8 mV, einem sehr geringen RMS-Rauschen von ca. 5  $\mu$ V und der guten Reproduzierbarkeit der Einzelmessung kein Problem darstellt.

Der Verlauf der Fluoreszenz in Abhängigkeit der Zeitverzögerung der Pulse gleicht qualitativ dem bei Variation der GDD beobachteten Verhalten. Innerhalb der ersten 20 fs ist ein Rückgang der Signal-Amplitude festzustellen, was als Abnahme der Fluoreszenz durch die vom Abrege-Puls induzierte stimulierte Emmission interpretiert werden kann. Das Signal ist nach ca. 200 fs auf ein leicht erhöhtes Niveau relaxiert und verbleibt bis zu einer Verzögerungszeit von 800 fs in etwa auf diesem Niveau. Es sollte daher möglich sein, die schnelle Zeitkonstante der intra-molekularen Energieumverteilung zu bestimmen. Zudem ist aufgrund der konstant guten Zeitaufösung eine deutliche Struktur in der Messung zu erkennen, die im folgenden ausführlicher untersucht werden soll.

### 5.1.6 Diskussion der Ergebnisse

Die sehr schnelle Abnahme der Fluoreszenz bei positiver Zeitverzögerung  $\tau$  beruht auf der Tatsache, dass die Anregung des Farbstoffs als rein elektronischer Prozess im Vergleich zur Pulsdauer sehr schnell erfolgt. Der zeitliche Verlauf des *pump-dump*-Signals  $\Delta F(\tau)$  kann durch die Antwortfunktion  $S(t)$  des Farbstoffs beschrieben werden [Mok90]:

$$\Delta F(\tau) = - \int_{-\infty}^{\infty} S(t) R(t - \tau) dt, \quad (5.1)$$

wobei  $R(t - \tau)$  das Kreuzkorrelationssignal des Anrege- und Abregepulses darstellt, das die Zeitaufösung der Messung bestimmt.

Die Wahrscheinlichkeit eines stimulierten Übergangs ist durch  $S(t)$  gegeben:

$$S(t) \propto \sum_{i,j,f} \rho_{ij}(t) P_{if} P_{fj}. \quad (5.2)$$

Dabei repräsentiert  $\rho_{ij}$  für  $i = j$  die Besetzungszahldichte bzw. für  $i \neq j$  die Kohärenz im angeregten Zustand  $S_1$ , während  $P_{if}$  und  $P_{fj}$  die elektronischen Übergangsmatrixelemente darstellen, die Informationen über die Franck-Condon-Faktoren zwischen den Anfangszuständen  $i$  und  $j$  und den Endzuständen  $f$  beinhalten.

Zahlreiche Untersuchungen an Farbstoff-Molekülen in Lösung zeigen, dass  $S(t)$  durch zwei Exponentialfunktionen mit einer langsamen Zeitkonstante  $\tau_s$  (5 ps – 100 ps) und einer

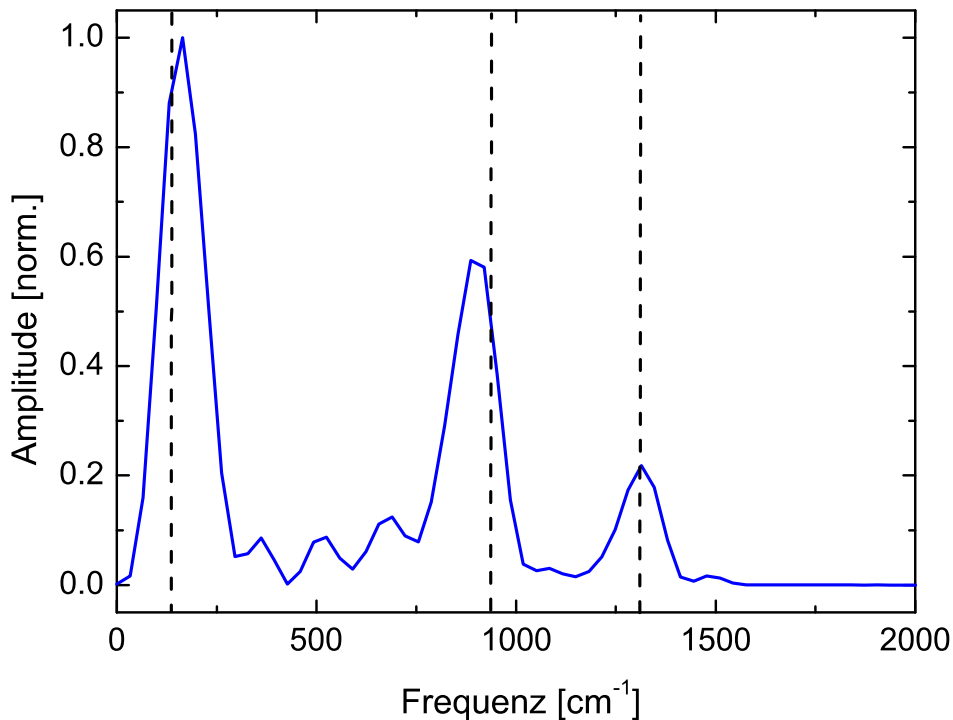
schnellen Zeitkonstante  $\tau_f$  (50 fs – 2 ps) beschrieben werden kann. Diese repräsentieren die in Abschnitt 5.1.1 beschriebenen Solvatisierungsprozesse, bei denen die vibronische Anregung des Farbstoffs durch die Moleküle des Lösungsmittels ins thermische Gleichgewicht gebracht werden, bzw. die intra-molekulare Umverteilung und Dephasierung der einzelnen Vibrationsniveaus. Der nicht-modulierte Untergrund in der Fluoreszenz-Abnahme kann durch überdämpfte Schwingungsmoden erklärt werden, deren Dephasierungszeiten schneller als eine Oszillationsperiode sind. Die zeitliche Entwicklung der Übergangswahrscheinlichkeit  $S(t)$  aus Gleichung (5.2) kann daher in einen exponentiell zerfallenden und einen oszillierenden Anteil aufgeteilt werden [Mok90]:

$$\begin{aligned} S(t) &= S_{exp} + S_{osc} \\ &\propto (a_0 - a_f e^{-t/\tau_f} - a_s e^{-t/\tau_s}) + \sum_i a_i e^{-\alpha_i t} \cos(\omega_i t) \end{aligned} \quad (5.3)$$

Dabei sind die jeweiligen Amplituden mit  $a_x$  bezeichnet und der oszillatorische Anteil als Überlagerung von gedämpften Schwingungen mit den Kreisfrequenzen  $\omega_i$  und den Dämpfungskonstanten  $\alpha_i$  angenommen.

Da die langsame Zeitkonstante  $\tau_s$  der Solvatisierung für die kurzen Verzögerungszeiten unter 500 fs nicht relevant ist, kann der nicht-modulierte Untergrund der Messung durch eine einzige Exponentialfunktion gut beschrieben werden. Die Anpassung der Zeitkonstante ergab einen Wert von  $\tau_f = 170$  fs, was sehr gut mit dem in [Yan99] gefundenen Wert von  $\tau_f \approx 200$  fs für das strukturell identische HDITC in Ethylenglykol übereinstimmt.

Der nach Subtraktion des Untergrunds übrig bleibende, modulierte Signalanteil kann nun Fourier-transformiert werden, um besetzte Schwingungsmoden im angeregten Zustand zu identifizieren. Das Ergebnis der Fourier-Transformation ist in Abbildung 5.7 zu sehen. In dem dargestellten Spektrum sind vor allem drei dominante Schwingungsfrequenzen zu erkennen:  $\nu_1 = 5$  THz ( $166 \text{ cm}^{-1}$ ),  $\nu_2 = 27$  THz ( $900 \text{ cm}^{-1}$ ) und  $\nu_3 = 39$  THz ( $1300 \text{ cm}^{-1}$ ). Eine detaillierte Analyse der Schwingungsmoden von HDITC in Ethylenglykol wurde von Yang 1999 durchgeführt [Yan99]. Es konnten 10 fundamentale Schwingungsmoden im Bereich von  $30 \text{ cm}^{-1}$  bis  $1400 \text{ cm}^{-1}$  identifiziert werden. Davon sind drei Frequenzen mit  $135 \text{ cm}^{-1}$ ,  $936 \text{ cm}^{-1}$  und  $1310 \text{ cm}^{-1}$  in sehr guter Übereinstimmung mit den in dieser Arbeit gefundenen Werten. Die Abweichung liegt jeweils innerhalb der Mess-Auflösung im Frequenzraum, die aufgrund des begrenzten Verzögerungsbereichs von 500 fs auf 2 THz begrenzt ist. Dadurch können weitere eventuell angeregte Moden nicht aufgelöst werden. Die im Fourier-Spektrum auftretenden Linien sind aus diesem Grund verbreitert und die daraus prinzipiell ableitbaren Dämpfungsraten können nicht bestimmt werden, wenn die volle Halbwertsbreite  $\gamma$  des zugehörigen Lorentz-Profiles kleiner als 2 THz ist. Yang *et al.* geben für die beobachteten Schwingungszustände Dämpfungskonstanten  $\alpha_i$  an, aus denen die jeweiligen Linienbreiten (FWHM) zu  $\gamma_1 = 1,2$  THz,  $\gamma_2 = 0,56$  THz und  $\gamma_3 = 0,84$  THz berechnet werden können.

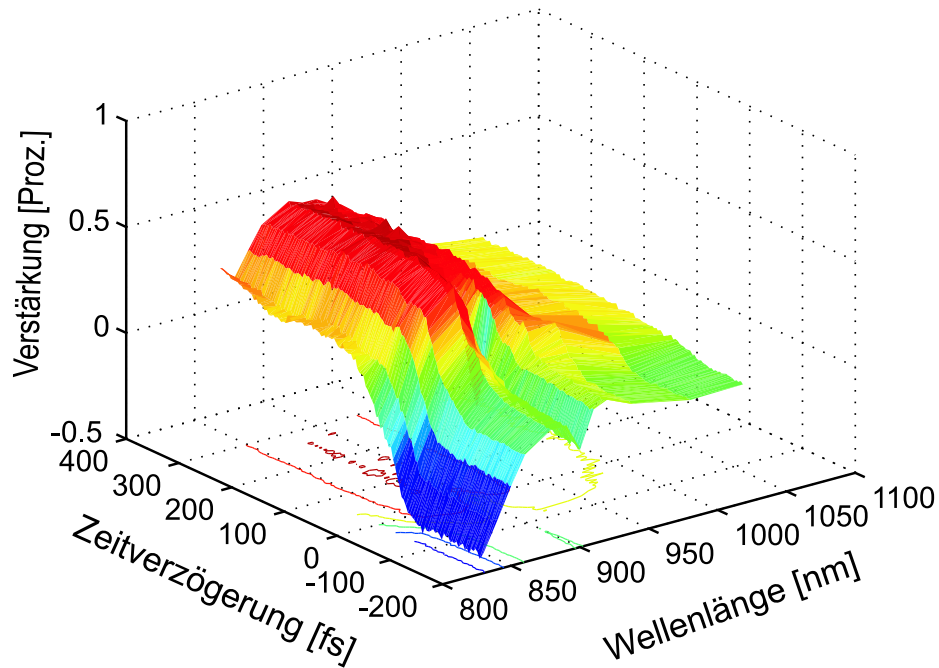


**Abbildung 5.7:** Frequenzspektrum der Oszillationen in der *pump-dump*-Messung aus Abbildung 5.6. Dazu wurde der nicht-modulierte Signal-Anteil durch eine Exponential-Funktion angepasst und abgezogen. Die Fourier-Transformation des so erhaltenen Zeitsignals ergibt das dargestellte Frequenzspektrum. Drei Schwingungsmoden des Farbstoffs bei  $166\text{ cm}^{-1}$ ,  $900\text{ cm}^{-1}$  und  $1300\text{ cm}^{-1}$  sind deutlich erkennbar und stimmen gut mit den Literaturwerten [Yan99] von  $135\text{ cm}^{-1}$ ,  $936\text{ cm}^{-1}$  und  $1310\text{ cm}^{-1}$  überein, die als gestrichelte Linien eingezeichnet sind. Die begrenzte Auflösung von  $2\text{ THz}$  ( $67\text{ cm}^{-1}$ ) verhindert die Identifizierung weiterer Moden.

### 5.1.7 Messung der transienten Absorption

Die im vorigen Abschnitt demonstrierte Anrege-Abfrage-Technik mittels zweifarbiger Doppelpulse kann auch zur Untersuchung der transienten Absorption des Farbstoffs verwendet werden. Unter diesem Begriff lassen sich mehrere Effekte zusammenfassen. Zum einen kann es durch einen starken Anrege-Puls zu einem Ausbleichen des Farbstoffs kommen, so dass sich die Absorption eines Abfrage-Pulses im selben Wellenlängenbereich durch die veränderte Besetzung des elektronischen Grundzustands in Abhängigkeit vom zeitlichen Abstand und der Relaxationsdynamik des Farbstoffes verändert. Andererseits kann es durch die vom Anrege-Puls erzeugte Besetzung im  $S_1$ -Niveau zu einer Absorption des Abfrage-Pulses in höher gelegene elektronische Zustände kommen. Dies wird auch als *excited state absorption* bezeichnet.

Im folgenden soll der Fall der stimulierten Emission untersucht werden, der abhängig vom Franck-Condon-Überlapp zu einer transienten Verstärkung des Abfrage-Pulses führt.



**Abbildung 5.8:** Relative Verstärkung des transmittierten Infrarot-Lichts durch stimulierte Emission in Abhängigkeit der Wellenlänge und der Verzögerungszeit zwischen den zweifarbigen Doppelpulsen. Die zeitliche Entwicklung der stimulierten Emission entspricht dem aus der Fluoreszenz-Abnahme erwarteten Verlauf. Für negative Zeiten ergeben sich negative Werte, die als Absorption durch angeregte Triplett-Zustände gedeutet werden können.

In Abschnitt 5.1.5 wurde angenommen, dass die beobachtete Fluoreszenz-Abnahme durch stimulierte Emission verursacht wird. Das Fluoreszenzlicht ist proportional zur Besetzung des angeregten Zustands nach Ablauf der Pulssequenz und wird vom vollständig relaxierten vibronischen Grundzustand des  $S_1$ -Niveaus emittiert. Das erwartete Signal der stimulierten Emission sollte komplementär zu dem der *pump-dump*-Messung verlaufen. Darüber hinaus kann durch eine wellenlängenselektive Detektion untersucht werden, ob das transiente Verhalten über den gesamten Spektralbereich der Emission gleich ist.

Zur Messung der stimulierten Emission kann ebenfalls der in Abbildung 5.2 dargestellte, experimentelle Aufbau verwendet werden. Da wie im Fall der Fluoreszenzmessungen nur ein kleiner Verstärkungseffekt zu erwarten ist, wird jedoch der Spektralbereich des Pumplichts bis 800 nm mit dem Chopper moduliert und nur die dadurch verursachte Transmissionsänderung mit Hilfe des Lock-In-Verstärkers gemessen. Durch spektrale Aufspaltung des transmittierten Laserlichts mit einem Monochromator<sup>10</sup> kann das transiente Verhalten der stimulierten Emission wellenlängenselektiv untersucht werden.

<sup>10</sup>H2O IR, Firma Jobin Yvon.

Die Ergebnisse dieser Messung sind in Abbildung 5.8 für eine Zeitverzögerung von -200 fs bis 400 fs und einen Spektralbereich von 830 nm bis 1000 nm zusammengefasst. Zur Berechnung der Verstärkung wurde das Verhältnis aus der gemessenen Transmissionsänderung und dem gleichzeitig dazu aufgenommenen Gesamtsignal gebildet.

Es zeigt sich, dass sich bei einer positiven Zeitverzögerung  $\tau$ , d.h. wenn der Pump-Puls vor dem detektierten Abfragepuls auf den Farbstoff trifft, eine Verstärkung von bis zu einem Prozent ergibt, die umso mehr ansteigt, je näher die Abfragewellenlänge an das Emissionsmaximum des Farbstoffs von 825 nm rückt. Die transiente Absorption verläuft qualitativ komplementär zur Fluoreszenzmessung in Abschnitt 5.1.5 und bestätigt dadurch die Annahme, dass die Fluoreszenz-Abnahme durch stimulierte Emission verursacht wird. Die geringere Steilheit der Anstiegsflanke und die fehlende Oszillationsstruktur können zum einen durch eine bei dieser Messung nicht optimale zeitliche Kompression der kurzen Pulse und damit einer, durch die breitere Kreuzkorrelation  $R(t)$  verursachten, schlechteren Zeitauflösung erklärt werden. Andererseits ist das Gesamtsignal nach Durchgang durch den Monochromator sehr gering und die durch stimulierte Emission verursachte, prozentual kleine Verstärkung nur mit schlechterem Signal-zu-Rausch-Verhältnis messbar.

Es kann zudem keine Zeitverzögerung für die Verstärkung von Spektralanteilen festgestellt werden, die weit entfernt von der maximalen Anregungswellenlänge bei 800 nm liegen. Dies spricht dafür, dass schon kurz nach der Anregung ein stimulierter Übergang in den Grundzustand mit wesentlich geringerer Energie möglich ist, ohne dass dafür eine Umverteilung der Energie auf niederenergetische Schwingungsniveaus notwendig ist.

Dem transienten Verhalten ist allerdings eine durch den Pump-Puls induzierte Abschwächung überlagert, die vor allem für negative Zeiten im Spektralbereich zwischen 830 nm und 900 nm deutlich wird. Eine mögliche Erklärung könnte in einer Absorption des Abfrage-Pulses aus angeregten, langlebigen Triplet-Niveaus des Farbstoffs liegen. Aufgrund der hohen Repetitionsrate des Lasers ist es nicht möglich, Moleküle in diesen Zuständen bis zum Auftreffen des nächsten Oszillatorpulses aus dem Fokusbereich zu pumpen. Durch eine Absorption des Abfrage-Pulses können diese in höhere Niveaus angeregt werden und durch nachfolgende Fluoreszenz oder strahlungslose Übergänge relaxieren. Dadurch wird ein von der Zeitverzögerung unabhängiger negativer Offset verursacht, der auch zu dem erhöhten Rauschen in der Messung beiträgt.



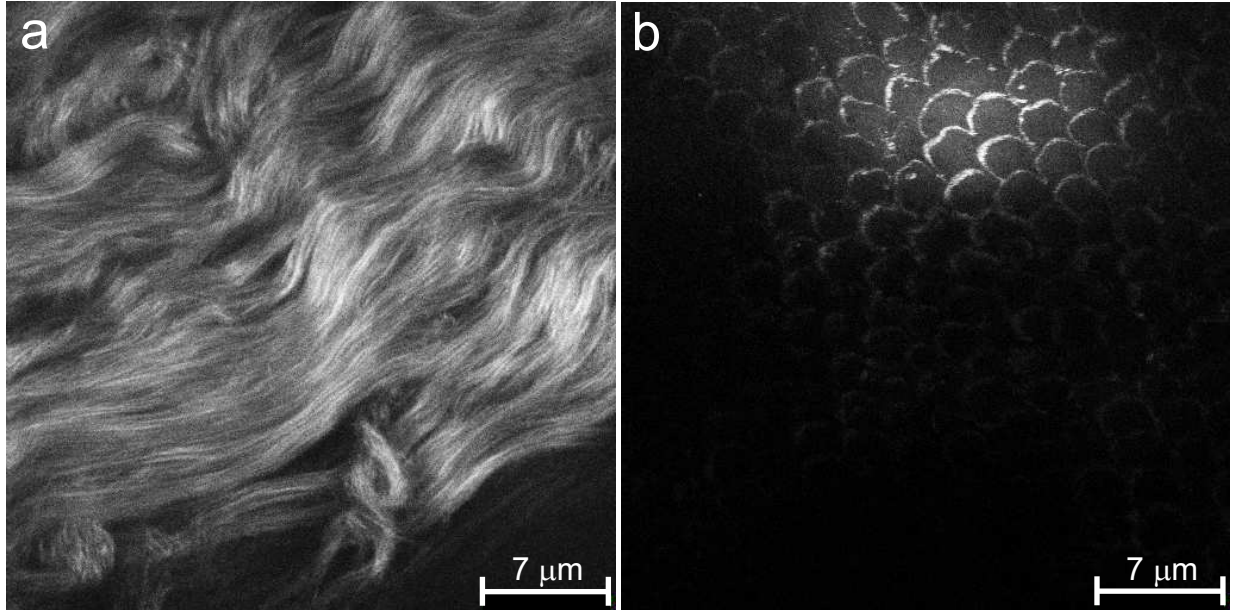
## 5.2 Optische Kohärenztomographie

Die optische Kohärenztomographie (*optical coherence tomography*, OCT) ist ein interferometrisches Bildgebungsverfahren, das zerstörungsfrei *in vivo* hochauflösende Untersuchungen von biologischem Gewebe ermöglicht und eine breite Anwendung in der Dermatologie [Sch95] und Ophthalmologie [Fer93] findet. Das Prinzip der Messung besteht darin, das von der Probe an Diskontinuitäten des Brechungsindex zurückgestreute Licht mit Licht aus einem Referenzarm zur Interferenz zu bringen. Die Tiefenauflösung der Messung ist dabei durch die Kohärenzlänge des verwendeten Lichtes bestimmt. Ein Titan-Saphir-Laser mit oktavbreitem Spektrum stellt daher eine ideale Lichtquelle für dieses Verfahren dar, da er aufgrund der großen Bandbreite eine extrem kurze Kohärenzlänge mit sehr guten räumlichen Kohärenzeigenschaften verbindet, die für eine gute Fokussierbarkeit und damit eine hohe transversale Auflösung nötig sind. Auf diese Weise konnte die bislang beste Tiefenauflösung<sup>11</sup> von ca.  $1,5 \mu\text{m}$  erreicht werden [Dre99], im Gewebe reduziert sich dieser Wert durch den dort vorherrschenden Brechungsindex von  $n \approx 1,3$  (Wasser) um den Faktor  $1/n$  weiter. In der Praxis werden allerdings meist Superlumineszenz-Dioden eingesetzt, die wesentlich preiswerter und einfacher zu handhaben sind. Die hierbei erreichbare Auflösung beträgt ca.  $15 \mu\text{m}$ . Als kostengünstige Alternative zu Titan-Saphir-Laser können diodengepumpte Festkörper-Laser zur hochauflösenden OCT eingesetzt werden. Innerhalb der Arbeitsgruppe wurde ein Cr:LiCAF-Laser entwickelt, mit dem eine Tiefenauflösung von  $4,5 \mu\text{m}$  demonstriert werden konnte [Wag04].

Bei der linearen OCT wird der Kontrast des Bildes durch das Brechungsindexprofil der Probe bestimmt. Um Material-spezifische Informationen über die chemische Zusammensetzung oder die lokale Struktur zu erhalten, wurden zahlreiche Erweiterungen des Mess-Verfahrens entwickelt. Als Beispiel sei hier die Spektroskopische OCT [Mor00] erwähnt, bei der eine tiefenaufgelöste Messung des gestreuten Spektrums zusätzliche Informationen über die lokalen Absorptionseigenschaften der Probe liefert, oder die Ausnutzung der Doppelbrechung, durch die sich krankes Gewebe von gesundem unterscheiden lässt [Hee92].

Die lokale Struktur der Probe kann auch mit Hilfe der Frequenzverdopplung (*second harmonic generation*, SHG) untersucht werden, da die Verdopplungseffizienz stark von der Nahordnung in der Probe abhängt. In vielen biologischen Strukturen wie Zellmembranen, Kollagenfasern oder Myosin konnte die Erzeugung der zweiten Harmonischen nachgewiesen werden [Yaz04]. Bei der SHG-OCT wird ähnlich wie bei der weit verbreiteten Zwei-Photonen-Mikroskopie diese Nichtlinearität zur Bildgebung genutzt. Zur Illustration ist in Abbildung 5.9 ein innerhalb der Arbeitsgruppe mittels Zwei-Photonen-Mikroskopie aufgenommenes Bild der Sklera eines Schweineauges und des Zahnschmelzes gezeigt. Zur effizienten Frequenzkonversion sind allerdings hohe Spitzenleistungen notwendig. Da es sich bei den zu untersuchenden Objekten meist um thermisch empfindliche, biologische Proben handelt, ist zur Anregung ein Kurzpuls-Laser sehr gut geeignet, der die erforderliche Intensität bei gleichzeitiger niedriger thermischer Belastung erreicht. Eine große spektrale

<sup>11</sup>Für die Angabe der erreichbaren Tiefenauflösung wird im weiteren Verlauf der Wert im Vakuum, d.h. für einen Brechungsindex von  $n = 1$  angenommen.



**Abbildung 5.9:** Mittels Zwei-Photonen-Mikroskopie aufgenommene Bilder der Sklera eines Schweineauges (a) und des Zahnschmelz eines menschlichen Zahnes (b) [Kil05]

Bandbreite des frequenzverdoppelten Lichtes ist dabei notwendig, um eine hohe Tiefenauflösung zu erhalten. Bisher wurde dabei ein Wert von  $24 \mu\text{m}$  erreicht [Jia04], der durch die Bandbreite des verwendeten Lasersystems begrenzt war. Mit Hilfe des 4-fs-Lasers kann theoretisch eine deutliche Verbesserung der Auflösung auf minimale  $1,6 \mu\text{m}$  erreicht werden. Zur Untersuchung biologischer Proben ist diese gute Tiefenauflösung erforderlich, um auch für feine Strukturen, wie sie in Abbildung 5.9 zu sehen sind, ein Details-reiches Tomogramm zu erhalten.

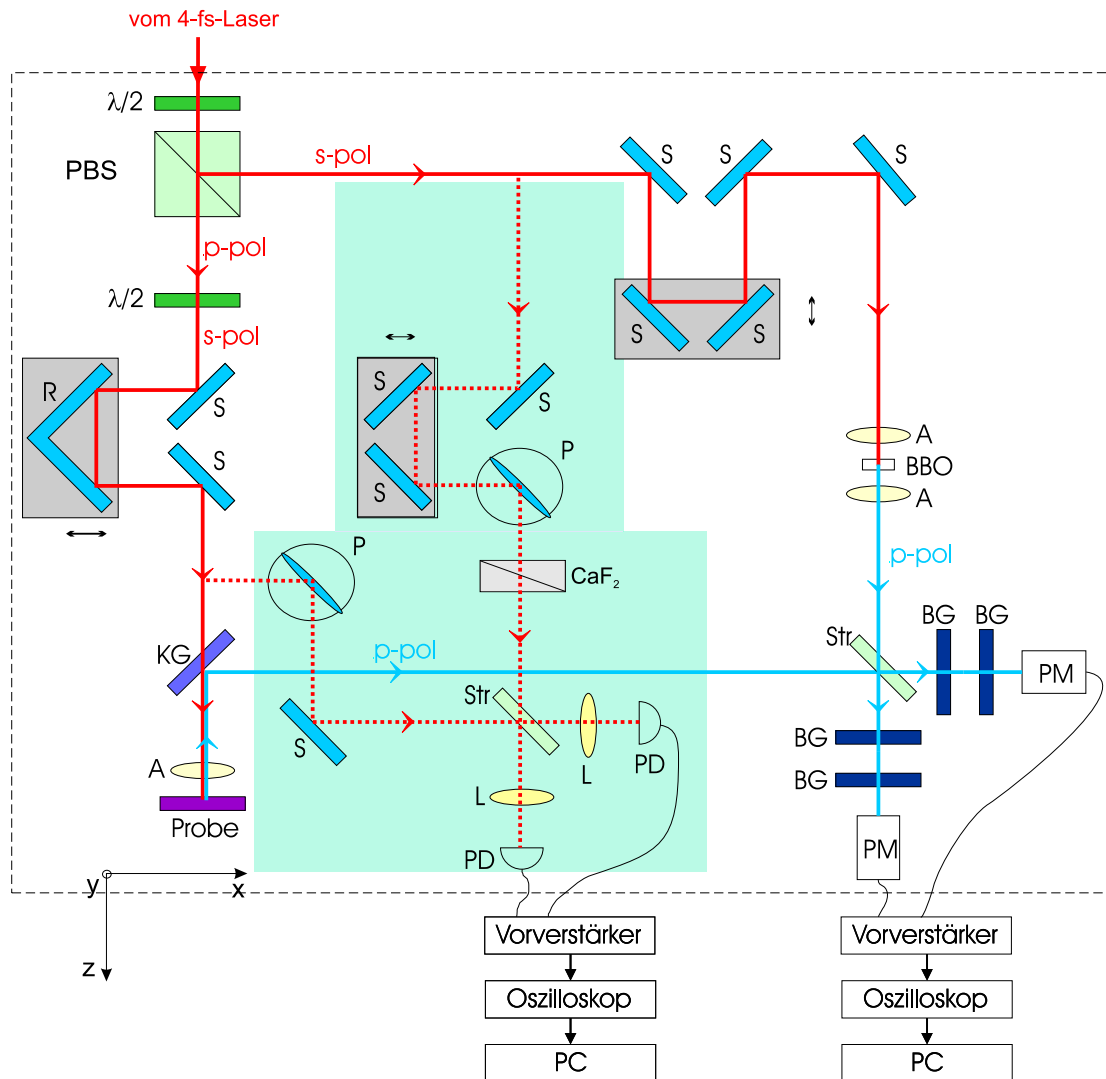
### 5.2.1 Experimenteller Aufbau

Das Signal  $S(\tau)$  der linearen OCT kann als Interferogramm der elektrischen Felder  $E_{Ref}(t)$  im Referenz- bzw.  $E_{Pr}(t)$  Probenarm beschrieben werden:

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} |E_{Ref}(t) + E_{Pr}(t + \tau)|^2 dt \quad (5.4)$$

$$= I_{Ref} + I_{Pr} + 2\text{Re} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} A_{Ref}(t) A_{Pr}^*(t + \tau) dt \right] \cos(\omega_0 \tau + \Phi(\tau)) \quad (5.5)$$

Dabei bezeichnen  $A_{Ref}(t)$  und  $A_{Pr}(t)$  gemäß Gleichung (2.3) die komplexen Einhüllende der Felder und  $I(t)$  die Intensität. Ein spektraler Phasengang des Pulses vor dem OCT-Aufbau fällt aus Gleichung (5.5) heraus. Allein Dispersionsunterschiede zwischen den beiden Interferometer-Armen wirken sich durch den Phasenterm  $\Phi(\tau)$  und eine verbreiterte



**Abbildung 5.10:** Schematische Darstellung des kombinierten OCT-Aufbaus. Der blau unterlegte Teil der Anordnung dient zur Aufnahme linearer OCT-Bilder, während die SHG-OCT gleichzeitig durch zwei Photomultiplier (PM) detektiert werden kann. Weitere Bezeichnungen: ( $\frac{\lambda}{2}$ ) achromatische Halbwellen-Platte; (PBS) polarisierender Strahlteilerwürfel; (S) Silberspiegel; (R) Retroreflektor; (P) Periskop zur Polarisationsdrehung; (KG) Kaltglas; (A) achromatische Linse; (Str) dielektrischer Strahlteiler; ( $\updownarrow$ ) Verschiebetisch; (BG) Blaugläser (BG12 und BG23).

Einhüllende auf das Signal aus, so dass für eine hohe Auflösung ein guter Ausgleich der Dispersion geschaffen werden muss.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein kombinierter Aufbau realisiert, mit dem es möglich ist, gleichzeitig lineare und nichtlineare OCT-Messungen durchzuführen. Eine schematische Zeichnung ist in Abbildung 5.10 dargestellt. Da vor allem die erreichbare

Auflösung der SHG-OCT im Mittelpunkt der Untersuchungen stand, wurde ein variabler Freistrahlaufbau gewählt, der im Signal-Rausch-Verhältnis nicht mit kommerziellen, Faser-basierten OCT-Systemen vergleichbar ist.

Am Eingang des Interferometers wird der vom 4-fs-Laser emittierte Puls durch einen breitbandigen, polarisierenden Strahlteilerwürfel<sup>12</sup> in den p-polarisierten Proben- und den s-polarisierten Referenzarm aufgespalten, wobei die Leistungsaufteilung durch eine vorgeschaltete achromatische Halbwellenplatte<sup>13</sup> eingestellt werden kann. Der Polarisationszustand im Probenarm wird durch eine weitere Halbwellenplatte<sup>13</sup> ebenfalls auf s-Polarisation gedreht und durchläuft anschließend eine Verzögerungsstrecke, deren Länge durch einen Piezokristall periodisch im Bereich einiger 100  $\mu\text{m}$  variiert<sup>14</sup> werden kann. Dadurch ist es möglich, die zu untersuchende Probe in diesem Tiefenbereich abzutasten. Um dabei eine hohe laterale Auflösung zu erreichen, muss das Licht stark fokussiert werden. Dies geschieht durch eine achromatische Linse<sup>15</sup>, deren kurze Brennweite von 16 mm bei einem Eingangstrahl mit  $1/e^2$ -Radius von 0,5 mm einen theoretischen Fokusradius von 5  $\mu\text{m}$  (Rayleigh-Länge  $\approx 100 \mu\text{m}$ ) erlaubt. Das aus der Probe zurückgestreute Licht wird durch die Linse wieder aufgesammelt und rekollimiert. Dabei wird der frequenzverdoppelte Anteil durch ein Kaltglas<sup>16</sup> zum Ausgang des nichtlinearen Interferometers reflektiert. Ein Teil des transmittierten Fundamentallichts wird durch einen Glasreflex zum linearen Ausgang des Interferometers (blau hinterlegt) umgelenkt und an einem breitbandigen Strahlteiler mit dem ebenfalls an einem Glasplättchen reflektierten Teil des Referenzarms überlagert. Zum Ausgleich der Dispersion wird bei der linearen OCT ein Ausgleichsubstrat in den Referenzarm eingebracht. Der spektrale Phasengang der achromatischen Linse kann dabei in guter Näherung durch 18 mm  $\text{CaF}_2$  ausgeglichen werden. Zur Aufnahme der SHG-OCT wird das Licht im Referenzarm in einem dünnen, gekeilten BBO-Kristall (10  $\mu\text{m}$  – 50  $\mu\text{m}$ ) verdoppelt, wobei zur Fokussierung und Rekollimation zwei zu der im Probenarm baugleiche achromatische Linsen verwendet werden. Das frequenzverdoppelte Licht aus der Probe und dem Referenzarm werden an einem dünnen, breitbandigen Strahlteiler<sup>17</sup> überlagert und nach Filterung durch zwei Farbgläser mit einem Photomultiplier detektiert. Durch gleichzeitige Aufnahme beider Interferometer-Ausgänge und nachfolgende Subtraktion der Signale (*balanced detection*) kann das Signal-Rausch-Verhältnis erhöht werden, da sich dabei der modulierte Anteil des Signals aus Gleichung (5.5) addiert, während der von der Verzögerung  $\tau$  unabhängige Signalanteil subtrahiert und damit das aus dem Laser stammende Intensitätsrauschen reduziert wird.

---

<sup>12</sup>Firma B. Halle, PTW 1.10, 600 nm – 900 nm, Material: SF 15.

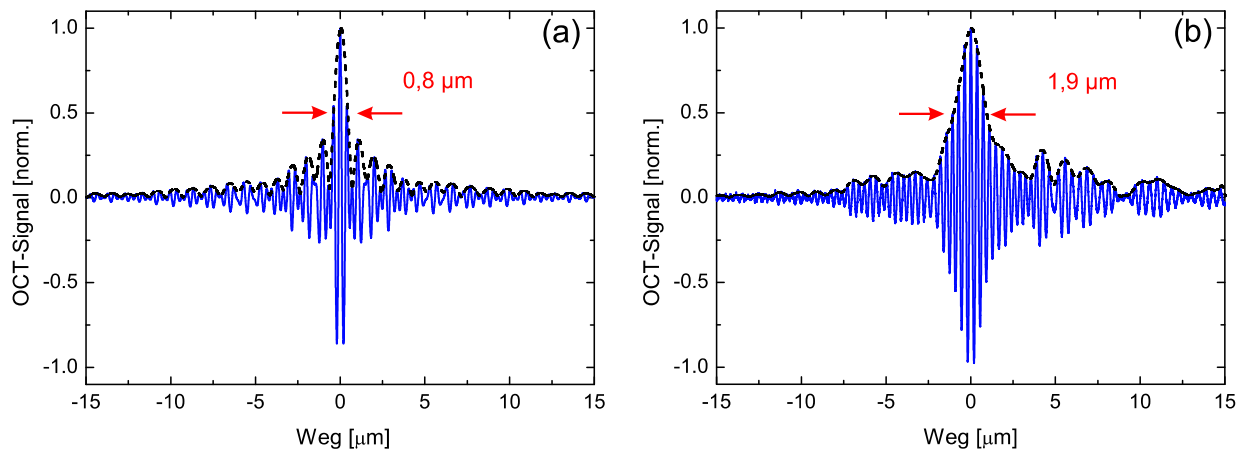
<sup>13</sup>Firma B. Halle, RAC 5.2.10L 600 nm – 1200 nm

<sup>14</sup>Zur Erhöhung des Scan-Bereichs kann an dieser Stelle auch ein handelsüblicher Lautsprecher verwendet werden, der einen Hub im Bereich einiger Millimeter besitzt.

<sup>15</sup>Firma Linos, Produktnummer 32 2207. Die Brennweite variiert nach Hersteller-Angaben von 16,35 mm bei 633 nm bis 16,47 mm bei 1064 nm.

<sup>16</sup>Thorlabs UV-Kaltglas FM 04, Transmission > 85 % von 600 nm bis 1200 nm, Reflexion > 90 % von 325 nm bis 475 nm.

<sup>17</sup>Layertec 102004 dielektrisch, dispersionsflach 350 nm – 470 nm



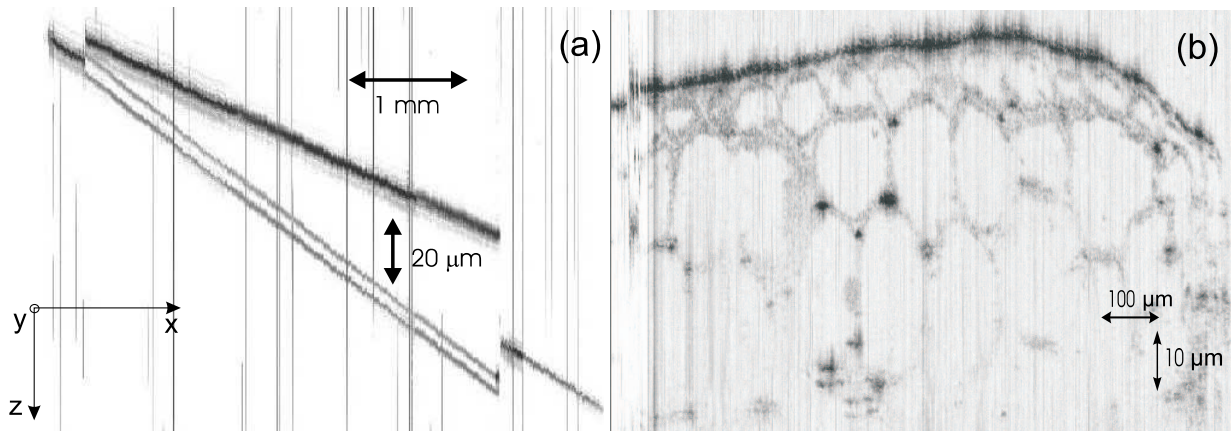
**Abbildung 5.11:** Auflösung der linearen OCT. (a) Die berechnete maximale Auflösung mit dem am Ausgang des Oszilators gemessenen Laserspektrum ergibt  $0,8 \mu\text{m}$ . (b) Das gemessene OCT-Signal ist mit einer vollen Halbwertsbreite von  $1,9 \mu\text{m}$  deutlich verbreitert.

## 5.2.2 Lineare Optische Kohärenztomographie

Die Tiefenabtastung der Probe erfolgt bei den OCT-Aufnahmen durch eine periodische Variation der Weglänge eines Interferometer-Armes. Zur Kalibration der Wegachse wurde nur ein  $10 \text{ nm}$  schmaler Bereich des Spektrums mit einer wohldefinierten Zentralwellenlänge genutzt und anhand des Interferogramms der Verschiebe-Weg bestimmt. Dabei entspricht der Abstand im Interferogramm von einem Oszillationsmaximum zum nächsten gerade einem optischen Wegunterschied von einer Wellenlänge  $\lambda$ . Da das zurückreflektierte Licht aus der Probe diesen Weg zweimal durchläuft, muss diese Strecke durch zwei geteilt werden und der Fringe-Abstand bezüglich der Wegstrecke in der Probe beträgt  $\lambda/2$ .

Die maximal erreichbare Auflösung mit dem in Abbildung 2.11 dargestellten Laserspektrum könnte bei optimal ausgeglichener Dispersion im Interferometer bei linearer OCT  $0,8 \mu\text{m}$  betragen. Das berechnete Interferogramm für diesen Idealfall ist in Abbildung 5.11(a) dargestellt. Zur Bestimmung der tatsächlichen Auflösung, die mit dem verwendeten Aufbau erreicht werden kann, wird als Probe ein Silberspiegel verwendet, der eine definierte optische Oberfläche bietet. Die gemessene volle Halbwertsbreite des in Abbildung 5.11(b) dargestellten Interferogramms beträgt  $1,9 \mu\text{m}$  und ist damit mehr als doppelt so groß wie der theoretische Wert. Die gleichzeitige Aufnahme des Spektrums am linearen OCT-Ausgang zeigt eine deutlich reduzierte Bandbreite, die vor allem durch die verbleibende chromatische Aberration der Fokussierlinse und die begrenzte Bandbreite der Polarisations-Optik verursacht wird. Die Berechnung des OCT-Signals mit diesem Spektrum ergibt eine maximale Auflösung von  $1,7 \mu\text{m}$ . Diese gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert zeigt, dass es mit Hilfe des  $\text{CaF}_2$ -Prismen-Paares möglich ist, die Dispersion zwischen den Interferometer-Armen gut abzugleichen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden einige Proben mittels linearer OCT untersucht. Für



**Abbildung 5.12:** Zweidimensionale OCT-Bilder eines gekielten KDP-Verdopplerkristalls (a) und eines Zwiebelhäutchens (b). In (a) sind deutlich die beiden Oberflächen des Kristalls zu sehen sowie eine sehr dünne Klebeschicht, mit der dieser auf das Substrat aufgebracht ist. In der biologischen Zwiebel-Probe sind einzelne Zellen sowie Zellkerne erkennbar. Die senkrechten Linien in beiden Bildern werden durch bei der Messung auftretende Schwankungen der Laserleistung verursacht.

Details und eine ausführlichere Beschreibung soll an dieser Stelle auf [Dra05] verwiesen werden. Stellvertretend für diese Messungen sind in Abbildung 5.12 zweidimensionale OCT-Bilder eines gekielten KDP-Kristalls und eines Zwiebelhäutchens dargestellt. Dabei wurde jeweils der Tiefenscan durch den Hub eines Lautsprechers im Probenarm durchgeführt und anschließend die Probe durch einen motorisierten Verschiebetisch um  $3 \mu\text{m}$  weiter bewegt. Mit Hilfe des zur Ansteuerung benutzten C++-Programms kann aus den einzelnen OCT-Scans schließlich ein zweidimensionales Bild zusammengesetzt werden. Die senkrechten Linien in den Bildern erklären sich durch Intensitätsschwankungen des Lasers, die zeitweilig zu einem erhöhten Rauschen in den Einzelmessungen führte.

Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR) ist im folgenden im Unterschied zu Abschnitt 5.1 in Übereinstimmung mit der Literatur als Quotient der Signalleistung zur Rauschleistung definiert. Mit diesem OCT-Aufbau kann dabei ein Wert im Bereich von 50 dB erzielt werden. Die Freistrah-Anordnung kann damit nicht mit anderen Systemen konkurrieren, in denen bis zu 110 dB möglich sind [Fer03]. Ziel dieses Aufbaus war es jedoch, nichtlineare OCT-Aufnahmen mit hoher Auflösung zu erreichen, so dass auf die Optimierung der Empfindlichkeit der linearen OCT verzichtet wurde.

### 5.2.3 Nichtlineare Optische Kohärenztomographie

Für die SHG-OCT ist der 4-fs-Oszillator als Lichtquelle sehr gut geeignet, da die notwendigen hohen Spitzenintensitäten bei einer niedrigen thermischen Belastung der Probe erreicht werden können. Zudem ermöglicht er eine sehr hohe Auflösung, die theoretisch um eine

Größenordnung besser ist, als die bisher publizierten Resultate. Bei Annahme eines idealen Verdopplungsprozesses kann ein SHG-Spektrum berechnet werden, mit dem sich eine Auflösung von  $1,6 \mu\text{m}$  ergibt. Während bei der linearen OCT die Pulsphase am Eingang des Interferometers keine Rolle spielt, muss im nichtlinearen Fall eine Vorkompensation verwendet werden, um die Dispersion des Strahlteilerwürfels und der achromatischen Linsen vor der Probe auszugleichen. Ein schlecht kompensierter Phasengang des Pulses führt zu einer geringen Konversions-Effizienz in der Probe und beeinflusst auch das Spektrum der erzeugten zweiten Harmonischen.

### Bestimmung der Auflösung

Zur Bestimmung der erreichbaren Auflösung wird für die nichtlineare OCT ein gekelter BBO-Kristall verwendet, in dem das Licht mit hoher Effizienz verdoppelt und teilweise an der Austrittsfläche zurückreflektiert wird. Mit dieser Probe liegt die Signalamplitude um einen Faktor 400 über dem RMS-Wert des Rauschens, das daraus resultierende Signal-zu-Rausch-Verhältnis von 52 dB ist mit dem der linearen OCT durchaus vergleichbar. Die erzielte Tiefenauflösung des in Abbildung 5.13(b) dargestellten nichtlinearen OCT-Signals im BBO-Kristall mit einem Brechungsindex von  $n = 1,66$  beträgt  $1,9 \mu\text{m}$  und ist damit deutlich schlechter als der theoretisch erwartete Wert. Die Ursache hierfür liegt in der relativ geringen Bandbreite des SHG-Signals, dessen optisches Spektrum in Abbildung 5.13(a) zu sehen ist und die theoretische Auflösung auf  $1,7 \mu\text{m}$  (im Material) begrenzt. Die Dispersion im Interferometer ist durch die Verwendung baugleicher Komponenten gut ausgeglichen und nicht für die Abweichung vom Maximalwert verantwortlich. Zur Verbesserung der Auflösung muss daher das verdoppelte Spektrum verbreitert werden. Dieses ist vor allem durch die Breitbandigkeit der verwendeten Polarisationsoptik und die chromatischen Aberrationen der Linse begrenzt. Desweiteren ist die berechnete spektrale Phase des Pulses am Ort der Probe durch die Vorkompensation nur in einem Wellenlängenbereich von  $700 \text{ nm} - 800 \text{ nm}$  ausreichend flach, wodurch vor allem dieser Spektralbereiche effizient in die zweite Harmonische konvertiert wird.

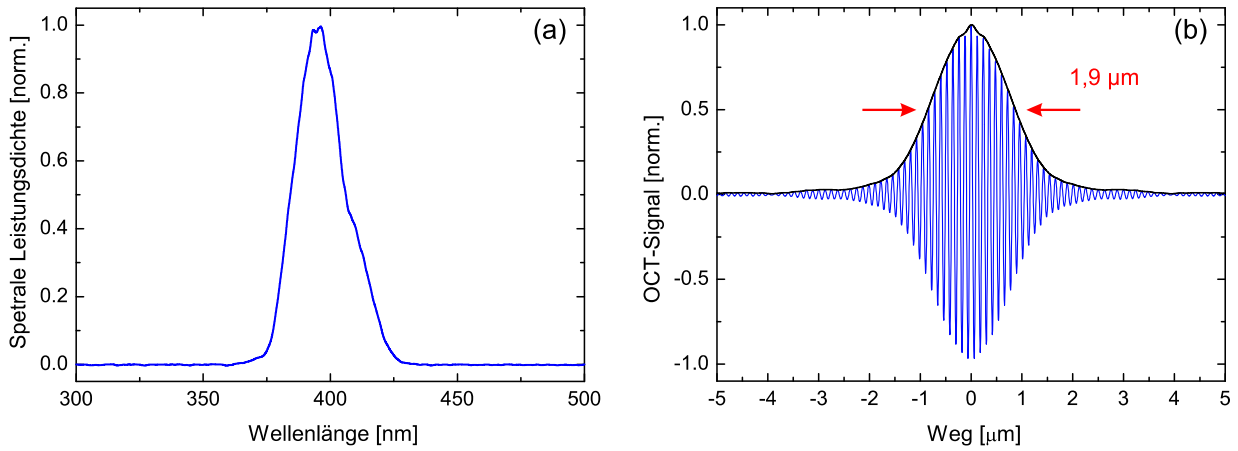
Trotzdem ist die erreichte Auflösung von  $1,9 \mu\text{m}$  in BBO deutlich besser als der bisher publizierte Wert von  $24 \mu\text{m}$  [Jia04], der an einer Kollagen-Probe gemessen wurde. Im folgenden Abschnitt soll demonstriert werden, dass das aufgebaute OCT-System empfindlich genug ist, um Messungen an biologischen oder anorganischen Proben durchzuführen.

### SHG-OCT an anorganischen Proben

Zur Bestimmung geeigneter Proben für die SHG-OCT wurden Voruntersuchungen zur Frequenz-Verdopplung in verschiedenen biologischen Strukturen und an Halbleiter-Oberflächen durchgeführt. Die mit einem Photomultiplier gemessenen Signal-Pegel sind in Tabelle 5.1 zusammengestellt.

Es zeigt sich, dass mit der vorhandenen Laserintensität ein ausreichend starkes SHG-Signal in der Sklera eines Schweineauges erzielt werden kann und dieses zeitlich stabil bleibt (d. h. es kommt zu keiner strukturellen Beschädigung der Probe). Bei biologischen Proben





**Abbildung 5.13:** (a) Spektrum der zweiten Harmonischen am Ort des Photomultipliers. (b) Interferogramm der SHG-OCT mit BBO-Kristall als Probe. Die erreichte Auflösung im BBO beträgt  $1,9 \mu\text{m}$  und entspricht sehr gut dem mit der Bandbreite des verdoppelten Lichtes erreichbaren Wert von  $1,7 \mu\text{m}$ .

ist allerdings zu erwarten, dass die Phasenfronten des zurückgestreuten Lichts deutlich deformiert sind und nur ein kleiner Teil des Lichts mit dem Referenzstrahl interferenzfähig ist. Aus diesem Grund wird als erste Probe zunächst ein GaAs-Substrat verwendet, das aufgrund der guten Oberflächen-Qualität ein gutes Modenprofil im rückgestreuten Licht aufweist. Da das erwartete OCT-Signal an der GaAs-Oberfläche entsteht [Hei91] und daher aus einem einzigen Peak bestehen sollte, kann diese Probe zusätzlich als klar definierte Referenz für die Auflösung dienen.

Probe	SHG-Signal	Probe	SHG-Signal
Sklera (Schweineauge)	$\approx 600 \text{ mV}$	GaAs	80 mV
Zahnschmelz	$\approx 150 \text{ mV}$	Ge	20 mV
Fischschuppen	$\approx 100 \text{ mV}$	Si	10 mV

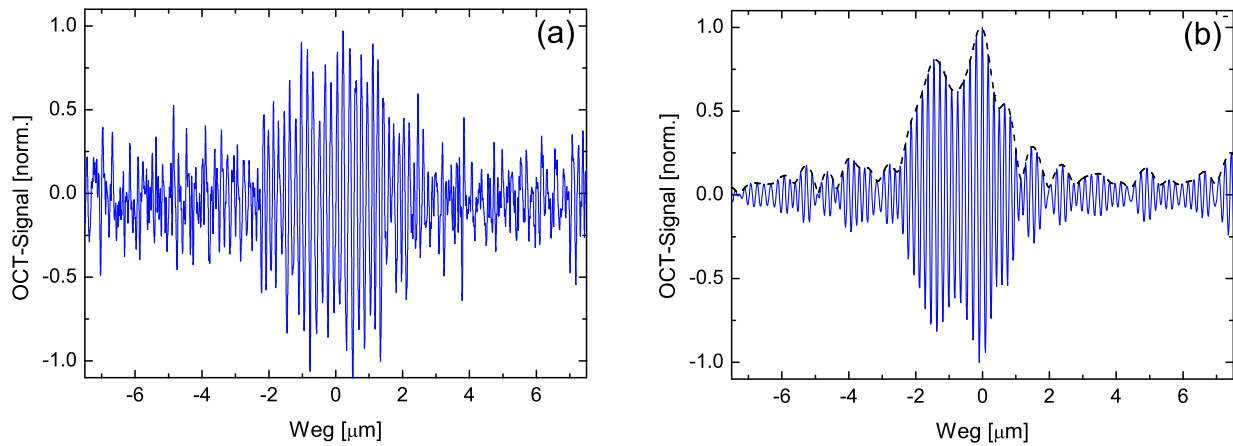
**Tabelle 5.1:** Zusammenstellung des mit dem Photomultiplier gemessenen SHG-Signals für verschiedene organische und anorganische Proben.

Das Signal der SHG-OCT ist in Abbildung 5.14(a) dargestellt und liegt nur wenig über dem Rausch-Pegel. Durch nachträgliche Frequenzfilterung des Signals<sup>18</sup> kann das Signal-zu-Rausch-Verhältnis etwas erhöht werden und ein verbessertes SHG-OCT-Signal erzielt werden, das in Abbildung 5.14(b) zu sehen ist.

Trotzdem wird durch diese Messung deutlich, dass die Empfindlichkeit des OCT-Aufbaus in dieser Form noch nicht ausreichend ist, um biologische Proben zu untersuchen. Eine

<sup>18</sup>Das fourier-transformierte Signal wurde im Frequenzraum mit einer Super-Gaußfunktion 8. Ordnung multipliziert und wieder in den Zeitbereich rücktransformiert.





**Abbildung 5.14:** Nichtlineares Interferogramm einer GaAs-Oberfläche als erstes Signal einer anorganischen Probe. (a) Das Signal ist nur wenig über dem Rausch-Untergrund. Durch anschließende Bandpass-Filterung mit einer Supergauß-Funktion kann das Signal-zu-Rausch-Verhältnis etwas verbessert werden.

Verbesserung der Detektionsempfindlichkeit des Freistrahl-Aufbaus kann mittels Lock-In-Technik erreicht werden. Dazu kann der Probenarm mit der Frequenz  $f_1$  und der Referenzarm mit der Frequenz  $f_2$  moduliert werden, so dass durch die Detektion bei der Differenzfrequenz  $f_1 - f_2$  das OCT-Signal vom nicht interferierenden Untergrund getrennt werden kann. Für die Implementation ist allerdings ein sehr langsames Durchfahren der Verzögerungstrecke nötig, wodurch die Signalsuche stark erschwert wird. Zum Auffinden schwacher Signale sollte daher ein in der Arbeitsgruppe vorhandener Kurzpuls-Laser mit deutlich höherer Pulsenergie [Dew06] eingesetzt werden. Anschließend kann die vorgeschlagene Lock-In-Technik verwendet werden, um ein hochauflösendes SHG-OCT-Signal zu erhalten.

Eine weitere Steigerung der Laser-Leistung ist mit dem verwendeten 4-fs-Laser nur in begrenztem Umfang möglich. Durch die verwendete Vorkompensation wird der Puls allerdings nur im Bereich von 700 nm – 800 nm gut kompensiert und von vielen Vor- und Nachpulsen begleitet. Dies reduziert die Spitzenintensität des Pulses am Ort der Probe und begrenzt die Bandbreite des verdoppelten Spektrums. Im folgenden Abschnitt wird daher der Einsatz des Pulsformers zur Phasenkompensation diskutiert.

#### 5.2.4 Einsatzmöglichkeiten der Pulsformung in der OCT

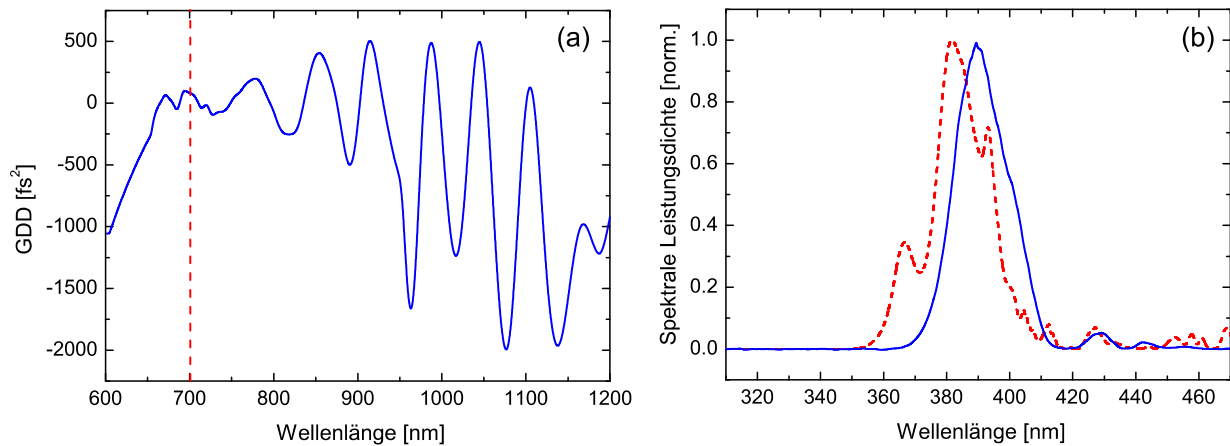
Zum Abschluß dieses Kapitels sollen kurz die Anwendungsmöglichkeiten des Pulsformers in der nichtlinearen OCT aufgezeigt werden. Beide Aufbauten können problemlos kombiniert werden, so dass es möglich ist, die Pulsphase am Interferometer-Eingang hinsichtlich der Tiefenaufösung der OCT zu optimieren. Während die spektrale Phase, die Referenz- und Probenarm gemeinsam ist, für die lineare OCT keine Auswirkung auf das Signal besitzt

(siehe Gleichung (5.5)), kann bei der SHG-OCT das Spektrum der Frequenzverdopplung durch den zeitlichen Intensitätsverlauf des Pulses beeinflusst werden. Abschließend soll die Möglichkeit der CARS-OCT angesprochen werden, bei der der Pulsformer dazu benutzt werden kann, Molekül-spezifische Vibrationsniveaus gezielt anzuregen. In Ergänzung zur CARS-Mikroskopie ist damit eine chemisch-sensitive, hochauflösende Bildgebung realisierbar.

### Optimierung des SHG-Signals

Die Auflösung der SHG-OCT wird durch mehrere Faktoren reduziert. Zum einen ist dabei die Bandbreite der zur Verdopplung eingesetzten BBO-Kristalle zu nennen. Die Frequenzabhängigkeit der Phasen Anpassung lässt sich näherungsweise durch eine Gaußfunktion mit einer vollen Halbwertsbreite von 100 THz beschreiben, so dass dadurch die Auflösung auf etwa  $1,3 \mu\text{m}$  eingeschränkt wird. Durch einen dünneren Verdopplungs-Kristall kann diese Limitation prinzipiell beseitigt werden. Die durch die geringere Dicke des Kristalls reduzierte Stärke des Referenz-Signals sollte dabei nicht problematisch sein. Andererseits begrenzen die Bandbreite der Polarisationsoptik und die verbleibenden chromatischen Aberrationen der achromatischen Linsen bereits die Auflösung der linearen OCT auf  $1,7 \mu\text{m}$ . Dieses Problem ist nicht so einfach zu lösen, da breitbandigere Strahlteiler-Würfel und Linsen nicht in guter Qualität erhältlich sind. Zur Vermeidung dieser Limitation kann die Strahlaufteilung in Referenz- und Probenarm mit einem Fresnel-Reflex vorgenommen werden, was allerdings ein festes Aufteilungsverhältnis zur Folge hat. Die auftretenden chromatischen Aberrationen können durch Umbau auf eine rein reflektive Fokussierungs-Optik verhindert werden. Dabei ist es allerdings schwierig, einen harten Fokus zu erreichen, ohne dass Astigmatismus im rekollimierten Strahl auftritt.

Eine weitere Begrenzung ergibt sich allerdings durch die Vorkompensation des Pulses. Aufgrund der großen Dispersion der verwendeten Komponenten, insbesondere des Strahlteiler-Würfels und der achromatischen Linse, werden 13 Reflexionen auf DCMPs und eine Quarzglas-Prismenstrecke benötigt. Die berechnete spektrale Phase am Ort der Probe ist in Abbildung 5.15 dargestellt. Die Pulsphase ist nur im Spektralbereich von 700 nm bis 800 nm gut kompensiert. Dadurch werden vor allem diese Spektralanteile effizient konvertiert und das Spektrum der zweiten Harmonischen ist in seiner Bandbreite begrenzt. Wie in Abschnitt 4.2 gezeigt wurde, kann der Pulsformer zur breitbandigen Phasenkompensation verwendet werden. Allerdings war es aus Zeitgründen im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr möglich, eine Messung der spektralen Phase am Ort der Probe durchzuführen. Alternativ kann ein evolutionärer Algorithmus verwendet werden, der die Pulsphase hinsichtlich der Signalstärke der SHG optimiert. Hier konnte bei ersten Versuchen bereits eine Verbesserung um einen Faktor drei bezüglich der allein mit Prismen und DCMPs optimierten Phase erreicht werden. Die spektrale Bandbreite der zweiten Harmonischen und somit die resultierende Tiefenauflösung der SHG-OCT vergrößerte sich dabei allerdings bisher nicht. Bei weiteren Optimierungsversuchen sollte daher das SHG-OCT-Signal direkt als Optimierungsgröße dienen, um eine weitere Verbesserung zu erzielen.



**Abbildung 5.15:** (a) Berechnete spektrale GDD des Pulses am Ort der Probe im OCT-Aufbau. Durch die Vorkompensation mittels DCMPs und einer Quarzglas-Prismenstrecke ist die Phase nur im Bereich von 700 nm bis 800 nm gut kompensiert. Dabei muss die Eindringtiefe des zweiten Prismas so klein gewählt werden, dass das Spektralanteile unterhalb 700 nm abgeschnitten werden (rote, gestrichelte Linie). (b) Mit der Pulsphase aus (a) und dem gemessenen Laserspektrum berechnetes SHG-Spektrum (gestrichelte, rote Kurve) unter Annahme eines idealen Verdopplers im Vergleich zum gemessenen SHG-Spektrum.

## CARS-OCT

Neben der SHG-OCT wurden in den letzten Jahren weitere Techniken entwickelt, um die chemische Sensitivität weiter zu verbessern. Dabei konnte in [Bre05] die kohärente Anti-Stokes Raman-Streuung (*Coherent Anti-Stokes Raman Scattering*, CARS) zur Optischen Kohärenz-Tomographie genutzt werden. Durch gleichzeitiges Einstrahlen eines intensiven Pump-Pulses bei 807 nm und eines langwelligeren Stokes-Pulses bei 1047 nm konnte innerhalb eines Schichtstapels gezielt die Aceton-haltige Bereiche identifiziert werden. Aceton besitzt ein Raman-aktives Schwingungsniveau mit einer Eigenfrequenz von 88,5 THz ( $2952 \text{ cm}^{-1}$ ). Durch die resonante Anregung des Anti-Stokes-Übergangs kommt es zur kohärenten Erzeugung von kurzwelligem Licht mit einer Zentralfrequenz von 647 nm, das mit dem Referenzarm zur Interferenz gebracht werden kann. Diese Methode ist auch für biologische relevante Lipid-Schichten möglich, für die bei 85 THz eine Lipid-Resonanz vorliegt.

Für eine hohe Auflösung der OCT muss dieser Konversionsprozess allerdings sehr breitbandig angeregt werden. Die Verwendung von sehr kurzen Pump- und Stokespulsen reduziert jedoch die chemische Selektivität der Messung. Dudovich *et al.* [Dud03] konnten zeigen, dass es durch Kontrolle der spektralen Phase des Pulses möglich ist, trotz eines breiten Spektrums gezielt einzelne Vibrationsniveaus anzusprechen. Mit Hilfe des in dieser Arbeit entwickelten Pulsformers könnte dabei durch Anlegen einer sinusförmigen Phase ein Pulszug mit einstellbarem Abstand  $\tau_m$  generiert werden (vergleiche Kapitel 4.4.2), der

im Vergleich zum Fourier-limitierten Puls zu einer Reduktion des nicht-resonanten Untergrunds führen sollte.

Durch Kombination des 4-fs-Lasers, des Pulsformers und eines leicht modifizierten OCT-Aufbaus können dadurch hochauflösende Tiefenscans mit sehr großer chemischer Sensitivität verwirklicht werden, die detaillierte *in vivo* Informationen über den strukturellen Aufbau biologischer Proben ohne die Notwendigkeit histologischer Schnitte liefern.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

Im Mittelpunkt dieser Arbeit steht die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse sowie die Kontrolle ihrer spektralen Phase und damit ihres Intensitätsverlaufs auf einer Zeitskala von wenigen Femtosekunden. Dieses Ziel konnte durch die weltweit einzigartige Kombination eines Laseroszillators mit oktavbreitem Spektrum und eines eigens für diesen Zweck entworfenen, hocheffizienten LCD-Pulsformers erreicht werden. Durch den Einbau eines nichtlinearen Kristalls in den zweiten Fokus des Laser-Resonators gelang die Erzeugung des wohl weltweit breitesten Spektrums direkt aus einem Oszillator, das eine Pulsdauer von 4,1 fs unterstützt. Die zur Kompensation der Pulsphase üblicherweise eingesetzten Methoden wurden vorgestellt. Auf diese Weise konnte mittels dispersiver Spiegel und einer  $\text{CaF}_2$ -Prismenstrecke eine Pulsdauer von 4,6 fs erreicht und mit dem SPIDER-Verfahren verifiziert werden. Dieses erlaubt eine direkte Messung der Pulsphase und stellt daher eine wichtige Voraussetzung für die Pulsformung dar.

Zur gezielten Phasenmanipulation wurde ein Prismen-basierter Pulsformer entwickelt und im Detail vorgestellt. Durch den Einsatz von SF 59-Prismen konnte ein hocheffizienter Pulsformer für oktavbreite Spektren verwirklicht werden, der eine Transmission von 70 % möglich macht. Das gewählte Vorgehen zur Pulsformung durch direktes Anlegen eines gewünschten Phasenverlaufs erfordert eine genaue Kalibration des Aufbaus, d. h. des Phasenhubs der einzelnen Pixel in Abhängigkeit der angelegten Spannung und die Zuordnung der Pixelnummer zu der Frequenz der beeinflussten Spektralkomponente.

Die Charakterisierung der Pulse mittels des SPIDER-Verfahrens ermöglichte die Messung der spektralen Phase und die direkte Kompensation des Chirps mit Hilfe des Pulsformers ohne iterative Optimierungsalgorithmen. Auf diese Weise gelang die Erzeugung des bislang kürzesten Pulses direkt aus einem Laser-Oszillator mit einer Pulsdauer von lediglich 4,3 fs. Darüber hinaus konnte durch Anlegen einer geeigneten spektralen Phasenfunktion das Konzept der zeitlichen Superauflösung erstmals für so kurze Pulse demonstriert werden. Dadurch gelang es, die volle Halbwertsbreite des Pulses noch weiter auf 3,7 fs zu reduzieren. Trotz der entstehenden Vor- und Nachpulse ist diese Art der Pulsverkürzung vor allem für Anwendungen interessant, die auf die Träger-Einhüllenden-Phase sensitiv sind, da der resultierende Puls weniger als 1,5 optische Zyklen beinhaltet.

Neben der Anwendung zur Dispersionskompensation konnte der Pulsformer auch er-

folgreich zur Erzeugung verschiedenster zeitlicher Intensitätsprofile, wie z. B. Doppel- oder Dreifachpulse mit variablem Abstand, verwendet werden. Dabei ist allerdings durch die alleinige Manipulation der spektralen Phase nicht jeder gewünschte Verlauf erreichbar. Diese Limitation könnte in Zukunft durch die zusätzliche Verwendung eines Amplitudenmodulators überwunden und somit ein Wellenform-Synthesizer mit einer Auflösung von 4 fs verwirklicht werden.

Die Kombination der kürzesten Laserpulse direkt aus dem Oszillator mit einem hoch-effizienten Pulsformer-Aufbau, der die Kontrolle ihrer spektralen Phase gestattet, stellt eine ideale Lichtquelle für Experimente im Bereich der kohärenten Quantenkontrolle dar. Als erste Anwendung wurde die Anregung des Laserfarbstoffs HDITCP in Lösung mit nicht Fourier-limitierten Pulsen und mit zweifarbigen Doppelpulsen untersucht. Durch die alleinige Manipulation der spektralen Phase mit dem Pulsformer konnten dabei aus dem Fluoreszenz-Signal des *pump-dump*-Prozesses drei Schwingungsfrequenzen identifiziert werden, die in guter Übereinstimmung mit bereits veröffentlichten Werten sind.

Desweiteren konnte die Anwendung der ultrakurzen Laserpulse in der nichtlinearen Optischen Kohärenztomographie (OCT) demonstriert werden. Die bisher erreichte Tiefenauflösung von 24  $\mu\text{m}$  konnte in dieser Arbeit deutlich auf 1,9  $\mu\text{m}$  (in BBO) verbessert werden. Durch den Einsatz des Pulsformers wird eine weitere Optimierung des OCT-Signals möglich sein. Eine weitere Erhöhung der molekularen Selektivität kann mit Hilfe der vorgeschlagenen CARS-OCT erreicht werden. Auch hierfür stellt das kombinierte System aus Laseroszillator und Pulsformer eine ideale Lichtquelle dar.

Der Prismen-basierte Pulsformer ist zudem mit geringen Modifikationen bezüglich der Leistung und der Bandbreite skalierbar. Dabei ist vor allem der Einsatz in verstärkten Laser-Systemen zu atomphysikalischen Messungen mit hoher Intensität interessant. In der Gruppe von F.X. Kärtner ist bereits eine phasenstarre Kopplung eines Titan-Saphir- und eines Cr:Forsterit-Lasers gelungen. Das damit generierte Spektrum reicht von 600 nm bis 1500 nm und könnte durch den Einsatz des Pulsformers als Dispersionskompensation den ersten Ein-Zyklus-Puls im infraroten Spektralbereich ermöglichen.

# Anhang A

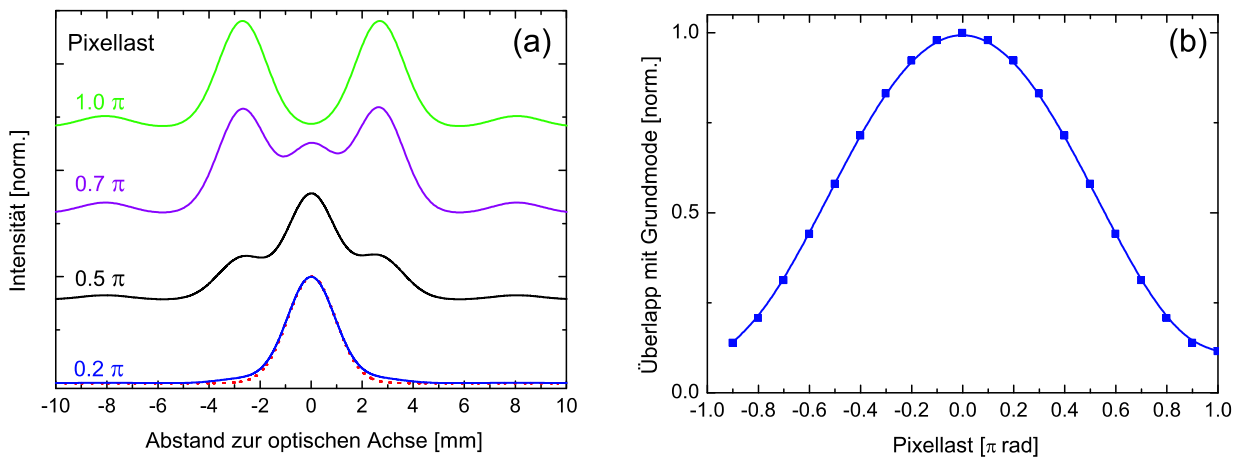
## Raum-zeitliche Effekte der Phasenmaske

Zur Kontrolle der spektralen Phase der ultrakurzen Pulse wurde in dieser Arbeit ein aus 640 diskreten Pixeln bestehendes Flüssigkristall-Display benutzt. Nimmt man den Idealfall einer unendlich kleinen Strahlgröße für jede Spektralkomponente an, verursacht das Anlegen einer Phasendifferenz zwischen zwei Pixeln im Zeitbereich aufgrund der diskreten Struktur der Phasenmaske zeitliche Pulsreplika, die außerhalb des Zeitfensters des Pulsformers auftreten. Durch den endlichen Strahlradius, der in den präsentierten Experimenten etwa  $90 \mu\text{m}$  beträgt, kommt es allerdings zu einer Kopplung des räumlichen und zeitlichen Pulsprofils, wie dies in Kapitel 3.2 beschrieben wurde. Es kommt zu Interferenzeffekten, da jede Frequenzkomponente nun mehrere Pixel überdeckt und dort jeweils eine unterschiedliche Phasenwerte erfährt. Die Auswirkungen auf das Strahlprofil können nun auf zwei unterschiedliche Arten berücksichtigt werden. Betrachtet man die Leistung in der fundamentalen Gaußmode, so kommt es bei einer Verschlechterung des Strahlprofils zu einem phasenabhängigen Verlust, wie er mit Gleichung (3.5) berechnet werden kann.

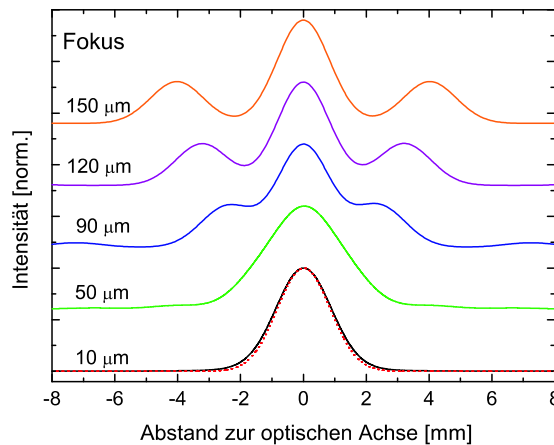
Andererseits kann numerisch auch das räumliche Profil berechnet werden, das sich durch Anlegen einer Phasenfunktion ergibt. Im folgenden sollen numerische Berechnungen der Verluste in der Grundmode bzw. zur Verschlechterung der räumlichen Mode für einige in dieser Arbeit relevante Pulsformen durchgeführt werden.

### A.1 Räumliches Strahlprofil

Zur Veranschaulichung der Auswirkungen der Phasenmaske auf das Strahlprofil wurde die Propagation eine gaußförmige Verteilung des elektrischen Feldes mit einem  $1/e$ -Radius von  $x_0$  in der Fourier-Ebene angenommen. Das Display wurde dabei durch 640 diskrete Elemente mit festem Phasenwert repräsentiert. Diese Phase führt zur Deformation der ursprünglich als flach angenommenen Wellenfronten. Nach Rekollimierung durch einen Hohlspiegel mit Brennweite  $f = 660 \text{ mm}$  kann dann die räumliche Intensitätsverteilung numerisch berechnet werden.



**Abbildung A.1:** (a) Berechnetes, transversales Strahlprofil für verschiedene Pixellast bei dem im Experiment vorliegenden Strahlradius von  $90 \mu\text{m}$ . (b) Normiertes Überlappintegral mit der gaußförmigen Grundmode



**Abbildung A.2:** Berechnetes, transversales Strahlprofil für eine Pixellast von  $0,5 \pi$  bei verschiedenen Strahlradien.

Als erstes Beispiel wurde ein konstanter Phasenunterschied zwischen den Pixeln, auch als Pixellast bezeichnet, und ein Strahlradius von  $90 \mu\text{m}$  angenommen. Die in Abbildung A.1(a) dargestellte Intensitätsverteilung zeigt bereits bei einem Wert von  $0,5 \pi$  deutliche Deformationen. Erreicht die Pixellast  $\pi$ , bildet sich im Zentrum ein Minimum aus, das von zwei Seitenmaxima flankiert wird. Durch die Größe des Strahls in der Fourier-Ebene erfährt eine Frequenzkomponente die Phase von zwei oder mehr Pixeln. Nimmt man an, dass die Position des Intensitätsmaximums genau auf der Grenze zwischen zwei Pixeln liegt, kommt

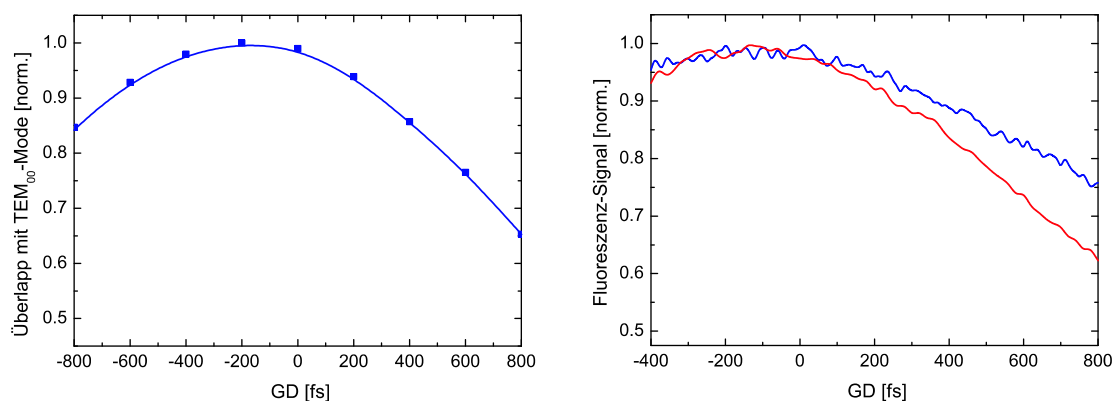


es bei einem Phasenunterschied von  $\pi$  zur destruktiven Interferenz der rechten und linken Strahlhälfte entlang der optischen Achse.

Dieser Interferenzeffekt führt zu einem verringerten Überlapp mit der Grundmode, die für einen gute Fokussierbarkeit wünschenswert ist. Das normierte Überlappintegral der in Abbildung A.1(a) dargestellten Intensitätsverteilung ist in A.1(b) gezeigt und bestätigt eine kontinuierliche Verschlechterung des transversalen Strahlprofils mit zunehmender Pixellast.

Durch eine kleine Fokusgröße können diese Auswirkungen deutlich verringert werden, da nur noch in der Nähe der Pixelgrenze eine Frequenzkomponente verschiedene Phasenwerte erfährt. Für eine Differenz von  $0,5 \pi$  ist dies in Abbildung A.2 mit verschiedenen Fokusgrößen gezeigt. Es wird deutlich, dass ein kleinerer Strahldurchmesser zu einem besseren Modenprofil des Ausgangsstrahls führt. Die diskrete Struktur des Displays wird nur unwesentlich geglättet, wodurch dann im Zeitbereich zunehmend Vor- und Nachpulse auftreten (vergleiche Kapitel 3.2).

## A.2 Phasenabhängige Verluste



**Abbildung A.3:** Vergleich der phasenabhängigen Verluste für zweifarbige Doppelpulse. Die numerische Berechnung (a) stimmt gut mit der Fluoreszenz-Leistung im *pump-dump*-Experiment (b) überein, die proportional zur Pulsenergie im Fokusvolumen ist. Die rote Kurve stellt dabei die Referenzmessung und die blaue Kurve die Anregung durch den Pump-Puls dar.

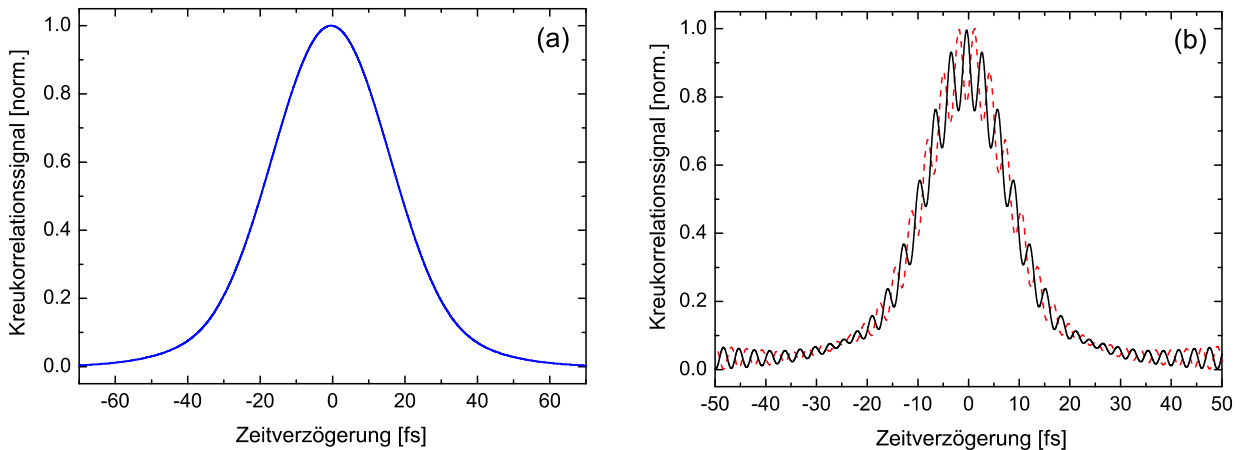
Bei den numerischen Berechnungen in dieser Arbeit wurde die Verschlechterung des Strahlprofils durch phasenabhängige Verluste in der Grundmode gemäß Gleichung (3.5) berücksichtigt, da höhere Moden einen größeren Beugungsverlust und eine schlechtere Fokussierbarkeit aufweisen. In Abbildung A.3(a) sind die numerisch berechneten Verluste für den Fall zweifarbiger Doppelpulse in Abhängigkeit des zeitlichen Abstands dargestellt. Die Übereinstimmung mit der zur eingestrahlten Energie proportionalen Fluoreszenz der Farbstoffanregung (vergleiche Kapitel 5.1.5, die in Abbildung A.3(b) aufgezeichnet ist, rechtfertigt diese Betrachtungsweise.

### A.3 Interferometrische Kreuzkorrelation

Zur Bestimmung der Zeitauflösung wurde in Abschnitt 5.1.5 die Kreuzkorrelation zwischen den zweifarbigen Doppelpulsen, die als Anrege- und dem Abfrage-Puls für die *pump-dump*-Messung verwendet wurden, aufgenommen. Die Zeitverzögerung wird dabei durch den Pulsformer eingestellt und beide Pulse kollinear in einen gekielten BBO-Kristall mit einer Dicke von 10  $\mu\text{m}$  bis 50  $\mu\text{m}$  zur Summenfrequenzbildung fokussiert. Das erwartete Signal

$$R(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \left| \left( E_1(t) + E_2(t + \tau) \right)^2 \right|^2 dt \quad (\text{A.1})$$

entspricht mathematisch dem der interferometrischen Autokorrelation, mit dem Unterschied, das die komplexen elektrischen Felder  $E_1(t)$  und  $E_2(t)$  aus unterschiedlichen, disjunkten Spektralanteilen des selben Pulses bestehen. Daher sind keine Interferenzen im Signal zu erwarten.



**Abbildung A.4:** Berechnetes Kreuzkorrelationssignal für ein gemessenes Laserspektrum unter Annahme einer flachen spektralen Phase. (a) Für einen Spektralbereich von 400 THz bis 500 THz für den Anregepuls und von 300 THz bis 250 THz für den Abfrage-Puls ergibt sich eine glatte Einhüllende. (b) Beträgt die spektrale Lücke nur 10 THz, kommt es zu Interferenzen im Kreuzkorrelationssignal. Durch Anlegen einer zusätzlichen Phase von  $\pi$  zwischen den beiden Spektralbereichen können verlaufen diese gegenphasig zum vorhergehenden Signal (rote, gestrichelte Kurve).

Das für das gemessene Laserspektrum unter Annahme einer flachen Phase berechnete Kreuzkorrelationssignal ist in Abbildung A.4 dargestellt. Dabei ist in Teil (a) der Abbildung für den Anrege-Puls ein Spektralbereich von 400 THz bis 500 THz und für den Abfrage-Puls ein Spektralbereich von 300 THz bis 250 THz angenommen worden. Die Berechnung ergibt eine glatte Einhüllende, aus der die Zeitauflösung einer mit diesen Pulsen durchgeführten Anrege-Abfrage-Messung bestimmt werden kann.

Das berechnete Kreuzkorrelationssignal im Fall der in Abschnitt 5.1.5 *pump-dump*-Messung ist in Teil (b) von Abbildung A.4 zu sehen. Zwischen den Spektralbereichen des Anrege- bzw. Abfragepulses liegt nur eine kleine spektrale Lücke von ca. 10 THz, die im Experiment durch den Rand des Chopper-Rades verursacht wird. Erstaunlicherweise ergeben sich trotz des nicht-überlappenden Spektrums Oszillationen im Signal. Durch den nichtlinearen Entstehungsprozess des Signals (siehe Gleichung (A.1)) kann es offenbar trotzdem zu einer Interferenz kommen, wenn die spektrale Breite der Pulse größer ist als ihr spektraler Abstand. Die Modulationsfrequenz sowie die Lage der Maxima und Minima der Oszillationen kann dabei durch die am Pulsformer angelegte relative Phase zwischen den Spektralanteilen bestimmt werden. Diese wird im Fall des *pump-dump*-Experimentes zwischen aufeinander folgenden Einzelmessungen um  $\pi$  verschoben, da sich dann solche in diesem Fall unerwünschten Effekte herausmitteln.



# Literaturverzeichnis

- [Akh92] S. Akhmanov, V.A.Vysloukh, A. Chirkin, *Optics of Femtosecond Laser Pulses* (American Institute of Physics, 1992).
- [Bal99] A. Baltuska, M. S. Pshenichnikov, D. A. Wiersma, *Second-harmonic generation frequency-resolved optical gating in the single-cycle regime*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **35**(4), 459–478 (1999).
- [Bal02] A. Baltuska, T. Kobayashi, *Adaptive shaping of two-cycle visible pulses using a flexible mirror*, Appl. Phys. **B75**, 427–443 (2002).
- [Bar95] C. J. Bardeen, Q. Wang, C. V. Shank, *Selective Excitation of Vibrational Wave-Packet Motion Using Chirped Pulses*, Phys. Rev. Lett. **75**(19), 3410–3413 (1995).
- [Bar05] A. F. Bartelt, T. Feurer, L. Woste, *Understanding optimal control results by reducing the complexity*, Chemical Physics **318**(3), 207–216 (2005).
- [Bau97] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber, *Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback*, Appl. Phys. **B 65**, 779–82 (1997).
- [Bin05] T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, U. Morgner, *Prism-based Pulse Shaper for Octave Spanning Spectra*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **41**, 1552–1557 (2005).
- [Bin06] T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, U. Morgner, *Spectral phase control and temporal superresolution towards the single-cycle limit*, Opt. Lett. **31**, 1552–1554 (2006).
- [Boy92] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, New York, 1992).
- [Boy05] O. Boyko, C. Valentin, G. Rey, L. Antonucci, P. Balcou, S. Coudreau, *Temporal superresolution of ultrashort laser pulses*, Optics Express **13**(20), 8222–8230 (2005).
- [Bre05] J. S. Bredfeldt, C. Vinegoni, D. L. Marks, S. A. Boppart, *Molecularly sensitive optical coherence tomography*, Opt. Lett. **30**(5), 495–497 (2005).

- [Bri01] T. Brixner, G. Gerber, *Femtosecond polarization pulse shaping*, Opt. Lett. **26**(8), 557–559 (2001).
- [Cer96] G. Cerullo, C. J. Bardeen, Q. Wang, C. V. Shank, *High-power femtosecond chirped pulse excitation of molecules in solution*, Chemical Physics Letters **262**(3-4), 362–368 (1996).
- [Cer02] G. Cerullo, S. D. Silvestri, *Ultrafast optical parametric amplifiers*, Rev. Sci. Instrum. **74**, 1–18 (2002).
- [Che99] Y. Chen, F. Kärtner, U. Morgner, S. Cho, H. Haus, E. Ippen, J. Fujimoto, *Dispersion-managed mode locking*, J. Opt. Soc. Am. **16**, 1999–2004 (1999).
- [DeS96] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. V. Stryland, M. Sheik-Bahae, *Infrared to Ultraviolet Measurements of Two-Photon Absorption and  $n_2$  in Wide Bandgap Solids*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **32**, 1324–1333 (1996).
- [Dew06] S. Dewald, T. Lang, C. D. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, M. Siegel, U. M. T., *Ionization of noble gases with pulses directly from a laser oscillator*, accepted for publication Opt. Lett. (2006).
- [Dmi99] V. Dmitriev, G. Gurzadyan, D. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* (Springer, Berlin, 1999), 3. Auflage.
- [Dra05] S. Draxler, *Lineare und nichtlineare Interferometrie zur Präzisionsvermessung von Mikrostrukturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2005).
- [Dre99] W. Drexler, U. Morgner, F. X. Kartner, C. Pitris, S. A. Boppart, X. D. Li, E. P. Ippen, J. G. Fujimoto, *In vivo ultrahigh-resolution optical coherence tomography*, Opt. Lett. **24**(17), 1221–1223 (1999).
- [Dud02] N. Dudovich, D. Oron, Y. Silberberg, *Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy*, Nature **418**(6897), 512–514 (2002).
- [Dud03] N. Dudovich, D. Oron, Y. Silberberg, *Single-pulse coherent anti-Stokes Raman spectroscopy in the fingerprint spectral region*, Journal of Chemical Physics **118**(20), 9208–9215 (2003).
- [Ell03] R. Ell, *Sub-two cycle Ti:sapphire laser and phase sensitive nonlinear optics*, Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (2003).
- [Fai98] B. D. Fainberg, *Nonperturbative analytic approach to the interaction of intense ultrashort chirped pulses with molecules in solution: Picture of "moving" potentials*, Journal of Chemical Physics **109**(11), 4523–4532 (1998).
- [Fai00] B. D. Fainberg, *Absorption spectrum of intense chirped pulse by molecules in solution and the time evolution of vibrationally non-equilibrium populations*, Chemical Physics Letters **332**(1-2), 181–189 (2000).

- [Fer93] A. Fercher, C. Hitzenberger, W. Drexler, G. Kamp, H. Sattmann, *In vivo optical coherence tomography*, Amer. J. Ophthalmol. **116**, 113–114 (1993).
- [Fer03] A. F. Fercher, W. Drexler, C. K. Hitzenberger, T. Lasser, *Optical coherence tomography principles and applications*, Reports on Progress in Physics **66**(2), 239–303 (2003).
- [For84] R. L. Fork, O. E. Martinez, J. P. Gordon, *Negative dispersion using pairs of prisms*, Opt. Lett. **9**, 150–2 (1984).
- [For03] T. M. Fortier, D. J. Jones, S. T. Cundiff, *Phase stabilization of an octave-spanning Tisapphire laser*, Opt. Lett. **28**, 1198–1200 (2003).
- [Gal99] L. Gallmann, D. Sutter, N. Matuschek, G. Steinmeyer, U. Keller, C. Iaconis, I. Walmsley, *Characterization of sub-6-fs optical pulses with spectral interferometry for direct electric-field reconstruction*, Opt. Lett. **24**, 1314–6 (1999).
- [Hau75a] H. Haus, *A Theory of Forced Mode Locking*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **QE 11**, 323–30 (1975).
- [Hau75b] H. Haus, *Theory of mode locking with a fast saturable absorber*, Journ. of Appl. Phys. **64**, 3049–58 (1975).
- [Hau75c] H. Haus, *Theory of mode locking with a slow saturable absorber*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **QE 11**, 736–46 (1975).
- [Hee92] M. R. Hee, D. Huang, E. A. Swanson, J. G. Fujimoto, *Polarisation-sensitive low-coherence reflektometer for birefringence characterisation and ranging*, J. Opt. Soc. Am. B **9**(6), 903–908 (1992).
- [Hei91] T. F. Heinz, *Nonlinear Surface Electromagnetic Phenomena*, Kapitel Second-Order Nonlinear Optical Effects at Surfaces and Interfaces, 353–416 (Elsevier, 1991).
- [Iac99] C. Iaconis, I. Walmsley, *Self-referencing Spectral Interferometry for Measuring Ultrashort Optical Pulses*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **35**, 501–9 (1999).
- [Ipp89] E. P. Ippen, H. A. Haus, L. Y. Liu, J. Opt. Soc. Am. **B 6**, 1736 (1989).
- [Jen03] *SLM-S 640/12 Technische Dokumentation*, Jenoptik LOS (2003).
- [Jia04] Y. Jiang, I. Tomov, Y. Wang, Z. Chen, *Second-harmonic optical coherence tomography*, Opt. Lett. **29**(10), 1090–1092 (2004).
- [Kär96] F. Kärtner, I. Jung, U. Keller, *Soliton Mode-Locking with Saturable Absorbers*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **2**, 540–56 (1996).

- [Kär97] F. Kärtner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Scheuer, M. Tilsch, T. Tschudi, *Design and fabrication of double-chirped mirrors*, Opt. Lett. **22**, 831–3 (1997).
- [Kär98] F. Kärtner, J. A. der Au, U. Keller, *Mode-Locking with slow and fast saturable absorbers—what’s the difference*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **4**, 159–168 (1998).
- [Kär00] F. Kärtner, U. Morgner, R. Ell, C. Jirauschek, Y. Chen, H. Haus, E. Ippen, J. Fujimoto, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, *Challenges and Limitations on Generating Few Cycle Laser Pulses Directly from Oscillators*, in *Ultrafast Phenomena XI*, 51–5 (Springer, Berlin, 2000).
- [Kär01] F. Kärtner, U. Morgner, R. Ell, T. Schibli, J. Fujimoto, E. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, *Ultrabroadband Double-Chirped Mirror Pairs for Octave Spectrum Generation*, J. Opt. Soc. Am. **B 18**, 882–5 (2001).
- [Kel96] U. Keller, K. Weingarten, F. Kärtner, D. Kopf, B. Braun, I. Jung, R. Fluck, C. Hönninger, N. Matuschek, J. a.d. Au, *Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM’s) for Femtosecond to Nanosecond Pulse Generation in Solid-State Lasers*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **2**, 435 (1996).
- [Kie98] U. Kiencke, *Signale und Systeme* (Oldenbourg Verlag, 1998).
- [Kil05] A. Killi, *Cavity-Dumping in solitär modengekoppelten Femtosekunden-Laseroszillatoren*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2005).
- [Kra92] F. Krausz, M. Fermann, T. Brabec, P. Curley, M. Hofer, M. Ober, C. Spielmann, E. Wintner, A. Schmidt, *Femtosecond Solid-State Lasers*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **QE 28**, 2097–2122 (1992).
- [Lae90] F. Laermer, W. Israel, T. Elsaesser, *Femtosecond Spectroscopy of Stimulated-Emission from Highly Excited Dye Molecules*, J. Opt. Soc. Am. **B 7**(8), 1604–1609 (1990).
- [Mat98] N. Matuschek, F. Kärtner, U. Keller, *Theory of Double-Chirped Mirrors*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **4**, 197–208 (1998).
- [Mat99] N. Matuschek, F. Kärtner, U. Keller, *Analytical Design of Double-Chirped Mirrors with Custom Tailored Dispersion Characteristics*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **QE 35**, 129–37 (1999).
- [Mat00] N. Matuschek, L. Gallmann, D. Sutter, G. Steinmeyer, U. Keller, *Back-side coated chirped mirrors with ultra-smooth broadband dispersion characteristics*, Appl. Phys. **B 71**, 509–22 (2000).



- 
- [Mes98a] D. Meshulach, Y. Silberberg, *Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse.*, Nature **396**, 239–242 (1998).
- [Mes98b] D. Meshulach, D. Yelin, Y. Silberberg, *Adaptive real-time femtosecond pulse shaping*, J. Opt. Soc. Am. **15**, 1615 (1998).
- [Mok89] A. E. Mokhtari, J. Chesnoy, *Terahertz Fluorescence Quantum Beats in a Dye Solution*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **25**(12), 2528–2531 (1989).
- [Mok90] A. Mokhtari, A. Chebira, J. Chesnoy, *Subpicosecond Fluorescence Dynamics of Dye Molecules*, J. Opt. Soc. Am.B **7**(8), 1551–1557 (1990).
- [Mor00] U. Morgner, W. Drexler, F. Kärtner, X. Li, C. Pitris, E. Ippen, J. Fujimoto, *Spectroscopic optical coherence tomography*, Opt. Lett. **25**, 111–3 (2000).
- [Mor01] U. Morgner, *Erzeugung kürzester Laserpulse im nahen Infraroten*, Habilitationssarbeit, Universität Karlsruhe (2001).
- [O'S01] P. O'Shea, M. Kimmel, X. Gu, R. Trebino, *Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement*, Opt. Lett. **26**(12), 932–934 (2001).
- [Pen96] A. Penzkofer, M. Wittmann, E. Sigert, S. MacNamara, *Kerr lens effects in a folded-cavity four-mirror linear resonator*, Optical and Quantum Electronics **28**, 423–42 (1996).
- [Phi00] PhillionKuizenga75, *The effects of noise on ultrashort-optical-pulse measurement using SPIDER*, Applied Physics B-Lasers and Optics **70**, S85–S93 (2000).
- [Pra04] A. Prakelt, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, *Phase control of a two-photon transition with shaped femtosecond laser-pulse sequences*, Physical Review A **70**(6), 063407 (2004).
- [Pre92] W. Press, S. Teukolsky, W. Vetterling, B. Flannery, *Numerical Recipes in C* (Cambridge University Press, New York, 1992).
- [Pro92] B. Proctor, F. Wise, *Quartz prism sequence for reduction of cubic phase in a mode-locked Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser*, Opt. Lett. **17**, 1295–97 (1992).
- [Rab00] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, K. Kompa, *Chemistry - Whither the future of controlling quantum phenomena?*, Science **288**, 824–828 (2000).
- [Rad93] C. Radewicz, G. Pearson, J. Krasinski, *Use of ZnS as an additional highly non-linear intracavity self-focusing element in a Ti:sapphire self-modelocked laser*, Opt. Commun. **102**, 464–8 (1993).
- [Rit04] E. Rittweger, *Zeitliche Formung von Femtosekunden-Laserpulsen*, Diplomarbeit, Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg (2004).

- [Ros86] M. J. Rosker, F. W. Wise, C. L. Tang, *Femtosecond Relaxation Dynamics of Large Molecules*, Phys. Rev. Lett. **57**(3), 321–324 (1986).
- [Sal97] T. R. M. Sales, G. M. Morris, *Fundamental limits of optical superresolution*, Opt. Lett. **22**, 582–584 (1997).
- [Sal98] T. R. M. Sales, G. M. Morris, *Axial superresolution with phase-only pupil filters*, Opt. Commun. **156**(4-6), 227–230 (1998).
- [Sch95] J. M. Schmitt, M. Yadlowsky, R. F. Bonner, *Subsurface imaging of living skin with optical coherence microscopy*, Dermatol. **191**(2), 93–98 (1995).
- [Sie86] A. Siegman, *Lasers* (University Science Books, Mill Valley, 1986).
- [Ste03] G. Steinmeyer, *Dispersion Oscillations in Ultrafast Phase-Correction Devices*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **39**, 1027–1034 (2003).
- [Sti05] G. Stibenz, G. Steinmeyer, *Interferometric frequency-resolved optical gating*, Opt. Exp. **13**(7), 2617–2626 (2005).
- [Sve98] O. Svelto, *Principles of Lasers* (Plenum Press, New York, 1998), 4. Auflage.
- [Szi94] R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, F. Krausz, *Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers*, Opt. Lett. **19**, 201–3 (1994).
- [Tak82] M. Takeda, H. Ina, S. Kobayashi, *Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry*, J. Opt. Soc. Am. **72**(1), 156–160 (1982).
- [Tem00] G. Tempea, F. Krausz, *Dispersion management over one octave with tilted-front-interface chirped mirrors*, in *12th International Conference on Ultrafast Phenomena*, MF 5, Optical Society of America, (2000).
- [Thu86] R. Thurston, J. Heritage, A. Weiner, W. Tomlinson, *Analysis of Picosecond Pulse Shape Synthesis by Spectral Masking in a Grating Pulse Compressor*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **22**, 682 (1986).
- [Tou97] P. Tournois, *Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems*, Opt. Commun. **140**(4-6), 245–249 (1997).
- [Tre93] R. Trebino, D. J. Kane, *Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved-optical-gating*, J. Opt. Soc. Am. **A 10**, 1101–11 (1993).

- [Ver00] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, P. Tournois, *Amplitude and phase control of ultrashort pulse by use of an acousto-optic programmable device*, Opt. Lett. **25**, 575 (2000).
- [Wag04] P. C. Wagenblast, T. H. Ko, J. G. Fujimoto, F. X. Kaertner, U. Morgner, *Ultrahigh-resolution optical coherence tomography with a diode-pumped broadband Cr<sup>3+</sup>: LiCAF laser*, Opt. Exp. **12**(14), 3257–3263 (2004).
- [Wef96] M. Wefers, K. Nelson, *Space-time profiles of shaped ultrafast optical waveforms*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **32**, 161 (1996).
- [Wei90] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. R. Patel, J. S. and Wullert, *Programmable Femtosecond Pulse Shaping by Use of a Multielement Liquid-Crystal Phase Modulator*, Optics Letters **15**(6), 326–328 (1990).
- [Wei00] A. Weiner, *Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators*, Rev. Sci. Instrum. **71**, 1930–60 (2000).
- [Yam03] K. Yamane, Z. G. Zhang, K. Oka, R. Morita, M. Yamashita, A. Suguro, *Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation*, Opt. Lett. **28**, 2258–60 (2003).
- [Yam04a] K. Yamane, T. Kito, R. Morita, M. Yamashita, *2.8 fs transform-limited optical pulse generation in the monocycle region*, in *International Conference on Ultrafast Phenomena*, CPDC2, Optical Society of America, (2004).
- [Yam04b] K. Yamane, T. Kito, R. Morita, M. Yamashita, *Experimental and theoretical demonstration of validity and limitations in fringe-resolved autocorrelation measurements for pulses of few optical cycles*, Opt. Exp. **12**(12), 2762–2773 (2004).
- [Yan99] T. S. Yang, M. S. Chang, R. Chang, M. Hayashi, S. H. Lin, P. Vohringer, W. Dietz, N. F. Scherer, *Femtosecond pump-probe study of molecular vibronic structures and dynamics of a cyanine dye in solution*, Journal Of Chemical Physics **110**(24), 12070–12081 (1999).
- [Yar84] A. Yariv, P. Yeh, *Optical Waves in Crystals* (Wiley, NewYork, 1984).
- [Yaz04] S. Yazdanfar, L. H. Laiho, P. T. C. So, *Interferometric second harmonic generation microscopy*, Opt. Express **12**(12), 2739–2745 (2004).
- [Yu02] A. C. Yu, C. A. Tolbert, D. A. Farrow, D. M. Jonas, *Solvatochromism and solvation dynamics of structurally related cyanine dyes*, Journal Of Physical Chemistry A **106**(41), 9407–9419 (2002).
- [Zee99] E. Zeek, K. Maginnis, S. Backus, U. Russek, M. Murnane, G. Mourou, H. Kapteyn, G. Vdovin, *Pulse compression by use of deformable mirrors*, Opt. Lett. **24**(7), 493–495 (1999).



# Publikationen

## Zeitschriftenartikel

1. T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, U. Morgner, *Prism-based Pulse Shaper for Octave Spanning Spectra*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **41**, 1552–1557 (2005).
2. T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, and U. Morgner, *Spectral phase control and temporal superresolution towards the single-cycle limit*, Opt. Lett. **31**, 1552–1554 (2006).

## Beiträge auf internationalen Konferenzen

1. T. Binhammer, E. Rittweger, and U. Morgner *Pulse shaping of few-cycle femtosecond laser pulses*, **CLEO Europe/EQEC**, Munich (Germany), 2005.
2. T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, and U. Morgner, *Prism-based pulse shaper for direct phase manipulation of octave spanning spectra*, **CLEO/QELS**, Baltimore (Maryland—USA), 2005.
3. T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, and U. Morgner, *Temporal Superresolution for Sub-two Cycle Pulses*, **CLEO/QELS**, Long Island (California—USA), 2005.

## Beiträge auf nationalen Konferenzen

1. T. Binhammer, E. Rittweger, and U. Morgner *Formung von Pulsen mit oktavbreiten Spektren mittels eines Prismen-LCD-Pulsformers*, **DPG-Frühjahrstagung**, München, 2004.

2. E. Rittweger, T. Binhammer, and U. Morgner *Formung von Pulsen mit oktavbreiten Spektren*, **DPG-Frühjahrstagung**, Berlin, 2005.
3. T. Binhammer, S. Draxler and U. Morgner *Hochauflösende nichtlineare Optische Kohärenz-Tomographie*, **DPG-Frühjahrstagung**, Berlin, 2005.
4. T. Binhammer, E. Rittweger, and U. Morgner *Pulsformung von Sub-Zwei-Zyklus-Pulsen*, **DPG-Frühjahrstagung**, Frankfurt, 2006.

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen und mich in vielfältiger Weise unterstützt haben.

Zuallererst gilt mein Dank meinem Doktorvater, Uwe Morgner, der mir die Möglichkeit gab, an diesem Thema zu arbeiten und viel über die interessante Welt der kurzen Pulse zu lernen. Ich konnte jederzeit mit meinen Fragen und Problemen zu ihm kommen und verließ sein Büro immer mit einem neuen Schub an Motivation und Ideen. Auch nach seinem Wechsel nach Hannover hat er keine Mühen gescheut, uns „Heidelbergern“ eine gute Betreuung zu bieten.

Ganz herzlich möchte ich mich auch bei meinen Ex-Diplomandinnen Eva Rittweger und Simone Draxler bedanken, die viel zu dieser Arbeit beigetragen haben und das Arbeiten im Labor sehr angenehm gemacht haben. Ebenso möchte ich mich bei allen anderen „Femtos“ für die tolle Arbeitsatmosphäre und die vielen interessanten Diskussionen bedanken. Mit meinen Doktoranden-Kollegen Alexander Killi, Sebastian Dewald, Hartmut Gimpel und Martin Siegel gab es immer eine tolle Zusammenarbeit und viele informative Kaffee-Pausen!

Allen anderen Kollegen der Gruppe Ullrich möchte ich herzlichen Dank sagen. Durch sie konnte ich viel über Physik jenseits der Optik lernen und meinem Magen zahlreiche Portionen Kuchen zuführen.

Prof. Ullrich ermöglichte mir die Arbeit an seinem Institut und kümmerte sich trotz großer Arbeitsbelastung immer um die Anliegen der Gruppe. Dafür herzlichen Dank!

Ebenso möchte ich mich bei den Werkstätten und den zahlreichen anderen Abteilungen des MPI-K bedanken, die einem das Leben als Wissenschaftler durch ihre Arbeit erst ermöglichen.

Bei Prof. Oberthaler möchte ich mich für die Übernahme des Zweit-Gutachtens für diese Arbeit bedanken.

Zum Schluß das Wichtigste. Ohne die moralische Unterstützung meiner Freunde und meiner Familie wäre diese Arbeit wohl nicht so weit gediehen. Danke auch, das ihr einen oft etwas zerstreuten Doktoranden ertragen und in die Realität zurück geholt habt! Dabei gilt mein Dank vor allen anderen meinen Eltern, Roland und Reinhild Binhammer, die mich während meines gesamten Studiums finanziell und moralisch unterstützt haben.

**Allen ein herzliches Dankeschön!!!**