

**Erzeugung und zeitliche Modulation  
von fs-Laserpulsen bei 197 nm**

**DIPLOMARBEIT**

FRIEDRICH-SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA

PHYSIKALISCH-ASTRONOMISCHE  
FAKULTÄT

eingereicht von: Martin Hacker  
geboren am: 8.11.1974 in: Gotha

Jena, am 30.11.1998

1. Gutachter: .....

2. Gutachter: .....

Tag der Verleihung des Diploms: .....

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen der Behandlung von Laserpulsen</b>	<b>3</b>
2.1	Mathematische Beschreibung . . . . .	3
2.2	Amplitudenmodulation . . . . .	5
2.3	Frequenzkonversion . . . . .	7
2.4	Pulsfrontverkippen und -verkrümmungen . . . . .	17
<b>3</b>	<b>Zeitliche Charakterisierung von Laserpulsen bei 197 nm</b>	<b>20</b>
<b>4</b>	<b>Prinzip der Erzeugung modulierter fs-Pulse bei 197 nm</b>	<b>24</b>
4.1	Schema für die effiziente Erzeugung kurzer Laserpulse im Bereich von 204 bis 186 nm . . . . .	24
4.2	Erweiterung zu einem Pulsformer . . . . .	29
<b>5</b>	<b>Charakterisierung des Aufbaus mit Prismen</b>	<b>33</b>
5.1	Erläuterungen zur Prismensequenz . . . . .	33
5.2	Untersuchung des Konversionsregimes . . . . .	34
5.3	Vergleich der berechneten und der gemessenen Spektren . . . . .	38
5.4	Modulierbarkeit der Spektren . . . . .	50
5.5	Zeitlicher Verlauf der erzeugten Pulse . . . . .	53
<b>6</b>	<b>Charakterisierung des Aufbaus mit Gittern</b>	<b>57</b>

6.1	Erläuterungen zum Einsatz eines Gitters . . . . .	57
6.2	Spektrum der vierten Harmonischen . . . . .	59
6.3	Zeitlicher Verlauf der erzeugten Pulse . . . . .	63
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>67</b>
<b>A</b>	<b>Theorie der Dreiwellenmischung</b>	<b>69</b>
<b>B</b>	<b>Pulsfrontverkipfung bei spektral kompensierter SFM</b>	<b>71</b>
<b>C</b>	<b>Theoretische Verknüpfung der Spektren</b>	<b>73</b>
<b>D</b>	<b>Zeichnung des Versuchsaufbaus</b>	<b>74</b>
<b>E</b>	<b>Technische Daten des Jenoptik SLM-S 160/h</b>	<b>75</b>
<b>F</b>	<b>Optische Materialdaten</b>	<b>75</b>
F.1	Quarzglas (SQ1) . . . . .	75
F.2	$\beta$ - BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub> (BBO) . . . . .	75
F.3	LiB <sub>3</sub> O <sub>5</sub> (LBO) . . . . .	77
<b>G</b>	<b>Kalibrierung der SiC-Diode</b>	<b>79</b>
	<b>Literatur</b>	<b>80</b>

# 1 Einleitung

Seit einigen Jahren werden theoretisch und experimentell die Möglichkeiten untersucht, amplituden- bzw. phasenmodulierte Femtosekundenlaserpulse zur kontrollierten Anregung von Molekülen zu nutzen. Dabei wird eine geeignete kohärente Überlagerung stationärer Zustände angestrebt, deren zeitliche Entwicklung durch die Art des präparierten Anfangszustandes mitbestimmt wird. Auf diese Weise sollte es zum Beispiel möglich sein, die Produkte einer photoinduzierten Dissoziation zu beeinflussen bzw. zu kontrollieren.

Prinzipiell sind für derartige Anregungen nur Laserpulse geeignet, deren Strukturen zeitliche Längen in dem Zeitbereich aufweisen, in dem auch die innermolekularen Prozesse, wie z.B. Vibrationen, ablaufen, d.h. im Femtosekundenbereich. Die Pulse müssen weiterhin eine der jeweiligen Aufgabenstellung angepaßte zeitliche Strukturierung aufweisen [1]. Um auch Anregungen unter Beteiligung der Elektronenhülle eines Moleküls durchführen zu können, sind Pulse im sichtbaren und im ultravioletten Spektralbereich notwendig.

Derzeit beschäftigen sich verschiedene Arbeiten entweder mit der zeitlichen Modulation von infraroten Femtosekundenpulsen [2, 3, 4, 5, 6] oder mit der Frequenzkonversion solcher Femtosekundenpulse in den Bereich 189 – 200 nm [7, 8, 9] durch Erzeugung der vierten Harmonischen. Das Hauptproblem der Übertragung der Pulse in den UV-Bereich besteht darin, daß die Konversion der für Femtosekundenpulse notwendigen breiten Spektren mit den üblichen Konversionsschemata nur sehr ineffektiv erfolgen kann.

Durch die Nutzung eines neuartigen Konversionsschemas nach [10] bietet sich wegen der in ihm angewendeten spektral kompensierten Summenfrequenzmischung [11] neben einer verhältnismäßig hohen Konversionseffizienz auch die Möglichkeit einer gleichzeitigen zeitlichen Strukturierung der generierten Pulse mittels Amplituden- oder Phasenmodulation. Dazu muß der Konversionsaufbau allerdings um eine entsprechende optische Komponente zur räumlichen Lichtmodulation (spatial light modulator - SLM) erweitert werden.

Ziel dieser Arbeit ist somit die Realisierung und Charakterisierung eines Aufbaus zur effektiven Erzeugung zeitlich modulierter Femtosekundenpulse bei 197 nm durch Frequenzkonversion der von einem Titan-Saphirlasersystem erzeugten infraroten Femtosekundenpulse (etwa 100 fs) unter Verwendung des zu einem Pulsformer erweiterten Konversionsschemas nach [10].

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen strukturiert:

Der Abschnitt 2 enthält die Behandlungsgrundlagen der in der Arbeit angewendeten Prinzipien zur Strukturierung und Konversion von Laserpulsen. Anschließend folgt eine knappe Betrachtung von räumlichen Effekten bei der Fokussierung und spektralen Zerlegung kurzer Pulse.

Im Abschnitt 3 werden die Besonderheiten der zeitlichen Charakterisierung von Femtosekundenpulsen im Bereich um 197 nm und mögliche Korrelationstechniken zum Nachweis der Amplitudenmodulation diskutiert.

Eine ausführliche Diskussion des oben erwähnten Konversionsschemas nach [10] und ein Vergleich mit den in anderen Arbeiten genutzten Schemen wird im Abschnitt 4 vorgenommen. In diesem Abschnitt wird auch die Erweiterung des Konversionsaufbaus zu einem Pulsformer und das in dem genutzten Lichtmodulator angewendete Prinzip erläutert.

In den Abschnitten 5 und 6 werden zwei realisierte Aufbauvarianten charakterisiert und die Ergebnisse diskutiert.

Einige theoretische Betrachtungen, eine Skizze des Versuchsaufbaus und einige für die Arbeit relevante Materialdaten wurden in den Anhängen A bis F beigefügt.

## 2 Grundlagen der Behandlung von Laserpulsen

### 2.1 Mathematische Beschreibung

In homogenen, isotropen Dielektrika ohne Ströme und freie Ladungen wird das Verhalten von Licht durch die folgenden MAXWELLSchen Gleichungen beschrieben:

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{\mathbf{E}} &= -\frac{\partial \vec{\mathbf{B}}}{\partial t} & \nabla \times \vec{\mathbf{H}} &= \frac{\partial \vec{\mathbf{D}}}{\partial t} \\ \nabla \cdot \vec{\mathbf{D}} &= 0 & \nabla \cdot \vec{\mathbf{B}} &= 0 \end{aligned} \quad (2.1.1)$$

Sind die auftretenden Intensitäten so niedrig, daß die folgenden Materialgleichungen

$$\vec{\mathbf{D}} = \epsilon \epsilon_0 \vec{\mathbf{E}} \quad \vec{\mathbf{B}} = \mu \mu_0 \vec{\mathbf{H}} \quad (2.1.2)$$

gültig sind, so spricht man von einem linearen Medium. Die in den Beziehungen verwendeten Symbole haben die folgenden Bedeutungen:

$\vec{\mathbf{E}}$ - elektrische Feldstärke,	$\epsilon_0$ - Dielektrizitätskonstante des Vakuums,
$\vec{\mathbf{B}}$ - magnetische Induktion,	$\epsilon$ - relative Dielektrizitätskonstante,
$\vec{\mathbf{D}}$ - dielektrische Verschiebung,	$\mu_0$ - Permeabilität des Vakuums,
$\vec{\mathbf{H}}$ - magnetische Feldstärke,	$\mu$ - relative Permeabilitätskonstante

Die Gleichungen 2.1.1 und 2.1.2 lassen sich dann zu den Wellengleichungen

$$\Delta \vec{\mathbf{E}} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathbf{E}}}{\partial t^2} = 0 \quad \Delta \vec{\mathbf{H}} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathbf{H}}}{\partial t^2} = 0 \quad c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon \epsilon_0 \mu \mu_0}} \quad (2.1.3)$$

zusammenfassen. Der Feldstärkeverlauf einer ebenen harmonischen Welle der Kreisfrequenz  $\omega$  und mit einer ortsabhängigen Amplitude  $\vec{\mathbf{E}}(z)$ , die linear polarisiert ist und sich mit der Zeit  $t$  in  $z$ -Richtung ausbreitet,

$$\mathbf{E}(z, t) = \vec{\mathbf{E}}(z) e^{i(kz - \omega t)} + \text{c.c.} \quad \text{mit} \quad k = \frac{\omega}{c} \quad (2.1.4)$$

ist eine Lösung der Wellengleichungen. Die Größe  $c$  wird als Phasengeschwindigkeit der Welle und  $k$  als deren Wellenzahl bezeichnet. Unter c.c. ist immer die komplex konjugierte Wiederholung des zuvorstehenden Terms zu verstehen.

Da die Intensität gleich dem Betrag des zeitlich gemittelten<sup>1</sup> POYNTINGvektors  $\vec{\mathbf{S}}$  ist, ergibt sich aus dem POYNTINGschen Satz  $\vec{\mathbf{S}} = \vec{\mathbf{E}} \times \vec{\mathbf{H}}$  für die Intensitätsver-

<sup>1</sup>Die Mittelungszeit sei dabei groß gegenüber einem optischen Zyklus und klein gegenüber den Zeiten, in denen im jeweils betrachteten Vorgang eine wesentliche Änderung stattfinden kann [12].

teilung  $\mathbf{I}(z, t) = |\langle \mathbf{S}(z, t) \rangle| = \epsilon \epsilon_0 c |\mathbf{E}(z, t)|^2$ . Für viele Betrachtungen genügt es, die Intensität proportional dem Quadrat der elektrischen Feldstärke zu setzen.

Da eine additive Überlagerung monochromatischer Wellen verschiedener Kreisfrequenzen  $\omega$  und Amplituden  $\tilde{\mathbf{E}}(z, \omega)$  noch immer eine Lösung der obigen Gleichungen darstellt, ist auch jede Feldverteilung

$$\mathbf{E}(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \tilde{\mathbf{E}}(z, \omega) e^{i(kz - \omega t)} d\omega + c.c. \quad (2.1.5)$$

eine Lösung. Die Kenntnis eines zeitlichen Feldstärkeverlaufs  $\mathbf{E}(t)$  an einem Ort  $z$  ist somit der Kenntnis der Amplituden und Phasen aller seiner FOURIERkomponenten  $\tilde{\mathbf{E}}(\omega)$  dort gleichwertig. Um die räumliche und zeitliche Entwicklung eines Laserpulses beschreiben zu können, genügt es somit, den Verlauf der Amplituden und Phasen der einzelnen Frequenzkomponenten in dem Medium zu kennen. Die Bestimmung der Phaseninformationen stellt sich im allgemeinen aber als sehr problematisch dar.

In einem nichtlinearen Medium bzw. beim Auftreten hoher Intensitäten ist allerdings nicht mehr von einer einfachen unabhängigen Superposition der einzelnen Frequenzkomponenten auszugehen, d.h., es sind auch Wechselwirkungen zwischen den Frequenzkomponenten und die Generierung neuer Frequenzkomponenten, wie zum Beispiel bei der sogenannten Selbstphasenmodulation, zu berücksichtigen.

Allgemein läßt sich der zeitliche Verlauf eines Laserpulses an einem festen Ort  $z$  auch mittels der reellen Einhüllenden  $\mathbf{E}_0(t)$  und des reellen Phasenverlaufs  $\Phi(t)$  folgendermaßen formulieren:

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0(t) e^{-i\Phi(t)} + c.c. \quad (2.1.6)$$

Zur Beschreibung der meisten Effekte im Zusammenhang mit Laserpulsen genügt die Verwendung einer Einhüllenden, die z.B. einer Gaußverteilung

$$\mathbf{E}_0^2(t) \sim e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} \quad (2.1.7)$$

oder einer Sekans-Hyperbolikus-Verteilung

$$\mathbf{E}_0^2(t) \sim \operatorname{sech}^2\left(\frac{t}{\tau}\right) \quad \text{mit} \quad \operatorname{sech}(x) = \frac{2}{e^x + e^{-x}} \quad (2.1.8)$$

entspricht, wobei o.B.d.A. der Maximalwert der Einhüllenden zum Zeitpunkt  $t = 0$  am Ort  $z$  auftrete.

Die Halbwertsbreite des Gaußpulses beträgt damit  $\tau_{FWHM} = 2\tau\sqrt{\ln 2}$ , die des Sekans-Hyperbolicus-Pulses  $\tau_{FWHM} \approx 1.76\tau$ .

Der zeitliche Phasenverlauf  $\Phi(t)$  beschreibt die schnellen Feldstärkeoszillationen unter der Einhüllenden. Die Frequenz der Oszillationen kann sich mit der Zeit verändern. Ist dies der Fall, spricht man von einem frequenzmodulierten Laserpuls. Die momentane oder auch instantane Kreisfrequenz entspricht der zeitlichen Ableitung der Phase

$$\omega_i(t) = \frac{d\Phi(t)}{dt} \quad (2.1.9)$$

und läßt sich, ebenso wie die Phase, als Reihenentwicklung darstellen:

$$\Phi(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \Phi^{(k)}(0) t^k = \Phi(0) + \omega_0 t + \frac{1}{2} b t^2 + \frac{1}{6} c t^3 + \dots \quad (2.1.10)$$

$$\omega_i(t) = \omega_0 + b t + \frac{1}{2} c t^2 + \dots \quad (2.1.11)$$

Die Koeffizienten lassen sich folgendermaßen interpretieren:  $\omega_0$  ist die Trägerfrequenz des Pulses,  $b$  der lineare und  $c$  der quadratische Chirpparameter usw.

Die Beziehungen zwischen der zeitlichen Länge und der spektralen Breite von frequenzmodulierten Laserpulsen sowie die Effekte bei ihrer Ausbreitung in dispersiven Medien und die Möglichkeiten des Streckens bzw. der Kompression von Laserpulsen werden ausführlich in der Literatur [12, 13, 14, 15] behandelt und sollen deshalb nicht Gegenstand dieser Arbeit sein.

## 2.2 Amplitudenmodulation

Werden im Spektrum eines Laserpulses Phasen oder Amplituden von Frequenzkomponenten variiert, so verändert sich i.a. entsprechend 2.1.5 auch seine zeitliche Struktur. Man bezeichnet die Änderung der Phasenstruktur des Spektrums als Phasenmodulation, die Änderung des Amplitudenverlaufs als Amplitudenmodulation. Wenn man die Modifikation des phasenbehafteten, d.h. komplexen, Spektrums  $\mathbf{E}(\omega)$  mittels einer komplexen Filterfunktion  $T(\omega)$  ausdrückt,

$$\mathbf{E}'(\omega) = T(\omega) \mathbf{E}(\omega) \quad (2.2.1)$$

so beinhalten die Beträge  $|T(\omega)|$  die Amplitudenmodulation, die Argumente  $\arg(T(\omega)) = \arctan(\text{Im}(T(\omega)) / \text{Re}(T(\omega)))$  die Phasenmodulation.

Die Amplitudenmodulation hat gegenüber der Phasenmodulation den Nachteil, daß

dabei meist die Intensität von Frequenzkomponenten verringert wird, da i.a. nur passive Elemente mit  $|T(\omega)| \leq 1$  realisierbar sind. In diesem Fall kann nur ein Teil der anfänglichen Pulsenergie genutzt werden. Wenn das Spektrum aber in seiner Form korrigiert werden soll, z.B. um unerwünschte Strukturen in diesem zu beseitigen, ist dies nur mittels einer Amplitudenmodulation möglich.

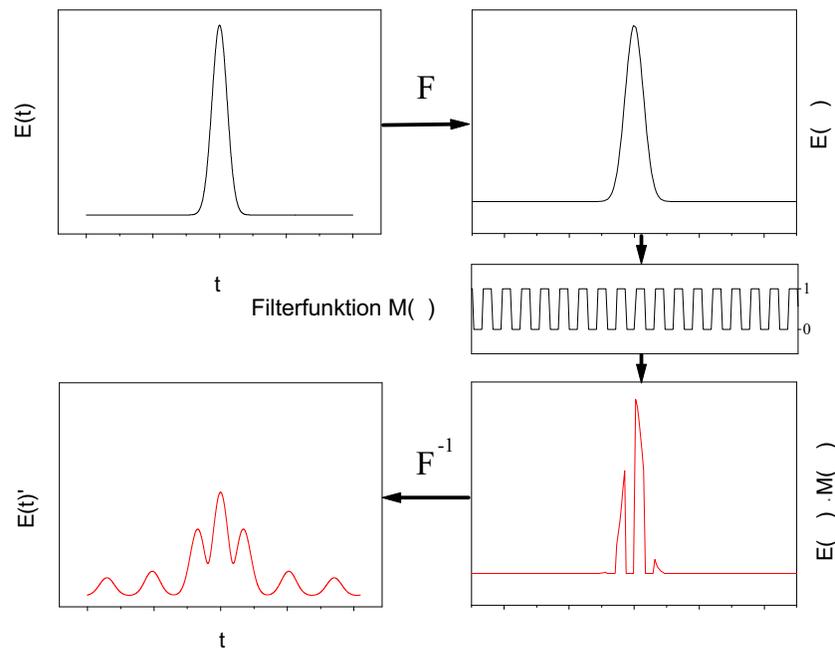


Abbildung 2.2.1: Schema einer Amplitudenmodulation eines Pulses mit einer Modulationsfunktion  $M(\omega)$

In den Abbildungen 2.2.1 ist zur Verdeutlichung die Amplitudenmodulation eines gaußförmigen Pulses dargestellt. Das ebenfalls gaußförmige Spektrum des Pulses wird mit einer reellen Funktion  $M(\omega)$ , die nur die Werte 0 oder 1 annimmt, multipliziert. Wird das sich ergebende Spektrum zurücktransformiert, erhält man den zeitlich modulierten Puls. Experimentell kann dies durch das Einbringen einer der Filterfunktion  $M(\omega)$  entsprechenden amplitudenmodulierenden Streifenmaske in die FOURIEREbene des in Abb. 2.2.2 dargestellten Aufbaus realisiert werden. Bei Verwendung einer Phasenmaske ist der Aufbau auch für die Phasenmodulation geeignet [2].

Nach dem FERMATschen Prinzip sind die optischen Wege der einzelnen spektralen Komponenten im gezeigten Aufbau gleich lang [11], so daß für ideale, dünne Linsen,

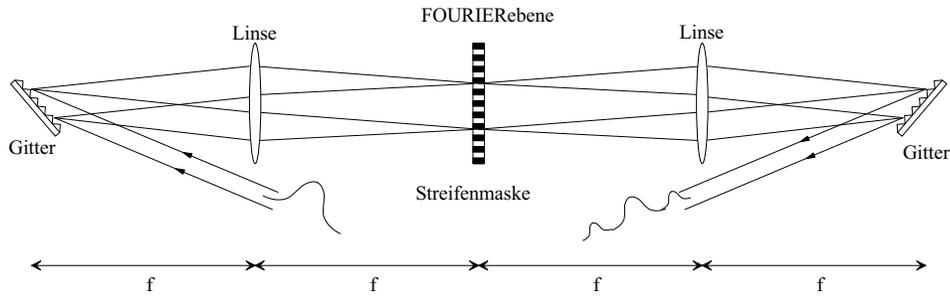


Abbildung 2.2.2: Realisierung einer Amplitudenmodulation mittels einer der Filterfunktion entsprechenden Streifenmaske in der FOURIEREbene eines 4f-Aufbaus, wobei  $f$  die Brennweite der genutzten Linsen ist.

ansonsten keine Phasenmodulation auftritt. Es zeigt sich, daß dies bei entsprechenden Aufbauten mit Prismen, d.h. unter Verwendung dispersiver Medien, nicht der Fall ist.

Bei theoretischen Betrachtungen ist zu beachten, daß für die FOURIERtransformationen die Feldstärkespektren und nicht die Intensitätsspektren zu verwenden sind.

### 2.3 Frequenzkonversion

Mit Hilfe nichtlinearer optischer Kristalle ist es möglich, Laserstrahlung einer Frequenz mit der einer anderen Frequenz zu mischen und Strahlung einer dritten Frequenz zu erzeugen. Der Mischungsprozeß dreier monochromatischer Wellen wird als Dreiwellenmischung bezeichnet. Die Summen- und Differenzfrequenzerzeugung, sowie die Frequenzverdopplung und die parametrische Verstärkung (OPA)<sup>2</sup> sind Spezialfälle der Dreiwellenmischung [12, 16]. Im folgenden wird der Begriff ‘Summenfrequenzmischung’ durch die Bezeichnung SFM<sup>3</sup> abgekürzt, ‘Differenzfrequenzerzeugung’ durch die Bezeichnung DFG<sup>4</sup> und ‘Erzeugung der zweiten (,dritten,vierten) Harmonischen’ durch die Bezeichnung SHG (THG, FHG)<sup>5</sup>.

Im Anhang A ist, ausgehend von den MAXWELLSchen Gleichungen für ein in zweiter Ordnung nichtlineares, anisotropes Medium, die Herleitung des Systems gekoppelter Differentialgleichungen A.0.4 umrissen, *welches sämtliche Wechselwirkungen zwischen den drei Wellen und somit alle obengenannten Spezialfälle der Dreiwellen-*

<sup>2</sup>optical parametric amplification

<sup>3</sup>sum frequency mixing

<sup>4</sup>difference frequency generation

<sup>5</sup>second (third, fourth) harmonic generation

*lenmischung beschreibt.* Für das Differentialgleichungssystem ist keine allgemeine analytische Lösung bekannt.

In Abb. 2.3.1 ist als Beispiel die numerisch ermittelte Lösung des Differentialgleichungssystems für reale Randdaten einer SFM in einem dicken BBO-Kristall abgebildet. Ein Kristall gilt dann als dick, wenn seine Dicke in der Größenordnung der Weglänge liegt, die die erzeugende Welle im Kristall zurücklegen muß, damit ihre Intensität infolge der Rückkonversion der erzeugten Welle wieder zunimmt. Diese Länge ist intensitätsabhängig.

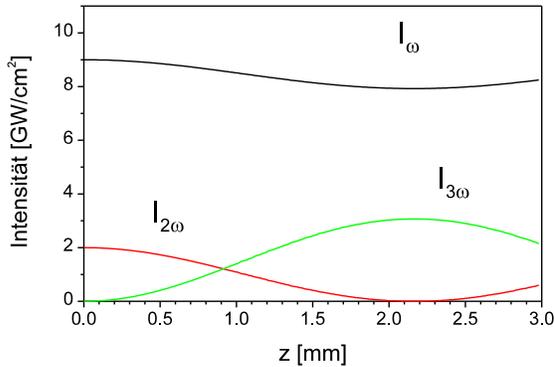


Abbildung 2.3.1: Numerische Modellierung von A.0.4 für die kollineare SFM von  $\omega + 2\omega = 3\omega$ ,  $\omega = 790\text{nm}$  in einem dicken BBO-Kristall für Phasen Anpassung des Typs **ooe** mit der Orientierung  $\phi = 0^\circ$ ,  $\Theta = 56.53^\circ$ ,

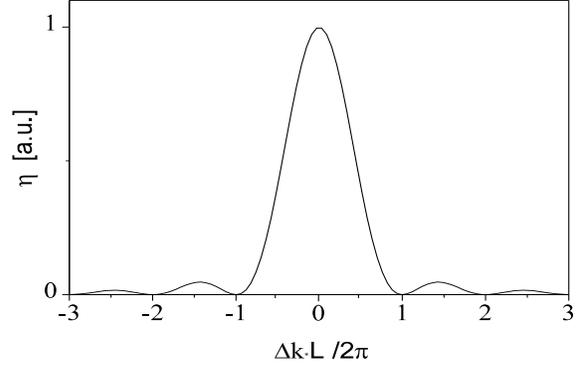


Abbildung 2.3.2: Typischer Konversionseffizienzverlauf  $\eta(\Delta k L)$  in der Näherung ungeschwächter Fundamentalwellen

Soll die Konversion von Pulsen exakt formuliert werden, so ist zu beachten, daß nun nicht mehr nur drei monochromatische Wellen, sondern die Spektren dreier Pulse miteinander wechselwirken, weshalb zu dem System gekoppelter Integrodifferentialgleichungen A.0.11 überzugehen ist. Die numerische Modellierung dieser Gleichungen erfordert größte Sorgfalt und einen erheblichen rechentechnischen Aufwand. Dewegen werden die Betrachtungen vorerst nur auf Effekte beschränkt, die sich mittels der Superposition vieler unabhängiger Dreiwellenmischungsprozesse hinreichend gut beschreiben lassen.

Wie ebenfalls im Anhang A dargestellt, gelangt man ausgehend vom Differentialgleichungssystem für die Mischung dreier monochromatischer Wellen unter der *Annahme ungeschwächter erzeugender Wellen*<sup>6</sup>[16, 17] zu der Beziehung<sup>7</sup>

<sup>6</sup>non depleted fundamental wave approximation

<sup>7</sup>In der Beziehung A.0.10 sind die vollständigen Vorfaktoren angegeben.

$$\eta(\Delta k L) = \frac{I_3}{I_1 I_2} \sim L^2 \text{sinc}^2 \left( \frac{1}{2} \Delta k L \right) \quad (2.3.1)$$

für die Konversionseffizienz einer Dreiwellenmischung. Dabei ist  $L$  die Kristalldicke und

$$\Delta k = \frac{\omega_3}{c_3} - \left( \frac{\omega_1}{c_1} + \frac{\omega_2}{c_2} \right) \quad (2.3.2)$$

die Differenz der Wellenzahlen der erzeugten und der erzeugenden Wellen (siehe auch Anhang A). Unter  $\omega_1 \dots \omega_3$  sind die Kreisfrequenzen und unter  $c_1 \dots c_3$  die Phasengeschwindigkeiten der beteiligten Wellen im Medium zu verstehen. Die Abhängigkeit von 2.3.1 vom Argument  $(\Delta k L)$  ist in Abb. 2.3.2 dargestellt. Es ist offensichtlich, daß die bestmögliche Frequenzkonversion bei Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung  $|\Delta k| = 0$  erfolgt.

Diese Aussage macht auch das in der Literatur oft verwendete Photonenbild [12, 16], das auf der Anwendung des Energie- und des Impulserhaltungssatzes für die beteiligten Photonen beruht. Es gilt z.B. für die vollständige SFM zweier Photonen

$$\hbar\omega_3 - (\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2) = 0 \quad \text{und} \quad \Delta \vec{p} = \hbar \Delta \vec{k} = \hbar \left( \vec{k}_3 - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \right) = 0 \quad (2.3.3)$$

Der Vorteil dieses Bildes besteht in der anschaulichen Beschreibung der Verhältnisse für die nichtkollineare Mischung von Licht mittels Impuls- bzw. Wellenzahlvektoren, was Abb. 2.3.3 veranschaulichen soll. Die Berechnung von Konversionseffizienzen dürfte in diesem Modell aber recht schwierig sein.

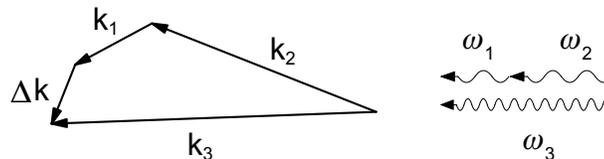


Abbildung 2.3.3: Schematische Verhältnisse bei einer nichtkollinearen SFM im Photonenbild

Die Phasenanpassung wird experimentell meist durch die Ausnutzung der unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten der verschiedenen polarisierten Wellen in anisotropen Kristallen erreicht (Doppelbrechung). Dabei gibt es verschiedene Möglichkeiten diese zu erreichen. In dieser Arbeit wurden nur zwei Varianten, die

**ooe-** und die **oeo-**

Phasenanpassung angewendet. Im ersten Fall sind beide an einer SFM beteiligten, erzeugenden Wellen bzw. bei einer SHG die Fundamentalwelle ordentlich (ordinary  $\rightarrow$  **o**) polarisiert und die erzeugte Welle außerordentlich (extraordinary  $\rightarrow$  **e**). Im zweiten Fall der **ooe**-Anpassung sind die längerwellige der beiden erzeugenden Wellen und die erzeugte Welle außerordentlich, die kurzwelligere erzeugende Welle aber ordentlich polarisiert. Die Definitionen der Polarisationszustände und der die Kristallorientierung betreffenden Größen  $\theta$  und  $\phi$  ist im Anhang F und speziell mit der Abbildung F.2.1 gegeben. Die genutzten und alle anderen möglichen Phasenanpassungsschemata und die Wege der Berechnung der zur Phasenanpassung notwendigen Kristallorientierung werden sehr ausführlich in der Literatur, z.B. in [16], behandelt. Sie werden deshalb hier nicht noch einmal dargestellt und als bekannt vorausgesetzt.

Es ist zu beachten, daß nur die vollständige Theorie Aussagen über die Abhängigkeit der Konversionseffizienz von dem Winkel  $\phi$  (Rotationswinkel des Indexellipsoiden) bei einachsigen Kristallen wie BBO macht. Bei diesen Kristallen bleibt zwar mit verändertem  $\phi$  die Phasenanpassung erhalten, doch da dieser Winkel in die nichtlinearen Kopplungskoeffizienten eingeht, ändert sich die Konversionseffizienz wesentlich, wie in Abb. 2.3.4 zu erkennen ist. Dies sollte bei der Auswahl und Justage von Kristallen unbedingt berücksichtigt werden. Die wesentliche Struktur der Kurve in Abb. 2.3.4 ist, da Intensitäten betrachtet werden, im wesentlichen durch das Quadrat des  $\cos(3\phi)$ -Terms in der Beziehung für den effektiven Kopplungskoeffizienten F.2.4 für den **ooe**-Fall bestimmt, weshalb eine sechszählige Symmetrie vorliegt. In [7] wurden ähnliche Betrachtungen, allerdings für ein **ooe**-Phasenanpassungsschema, gemacht, die, wegen der dort vorliegenden  $(1 - \sin(3\phi))^2$ -Abhängigkeit, zur Wahl eines Kristalls mit  $\phi = 90^\circ$  führten. Bei genauerer Untersuchung der Zusammenhänge für eine bestimmte Kristalldicke zeigt sich aber, daß bei Winkeln, für die die effektive Nichtlinearität  $d_{eff}$  maximal wird, nicht unbedingt auch ein maximaler Konversionswirkungsgrad erreicht werden muß, was Abb. 2.3.4 ebenfalls zeigt. Die Ursache dafür kann bei Betrachtung von Abb. 2.3.1, d.h. der sich bei einer **ooe**-SFM ergebenden Intensitätsverläufe, verstanden werden. Ab einer bestimmten, von der Größe der Nichtlinearität abhängenden Kristalldicke nimmt die Intensität der erzeugten Welle wieder ab. Deshalb ist es möglich eine Kristalldicke zu wählen, bei der die erzeugte Welle für den  $\phi$ -Winkeln maximaler effektiver Nichtlinearität schon abnimmt, während sie bei anderen  $\phi$ -Winkel noch anwächst.

In der Näherung ungeschwächter Fundamentalwellen wächst die Konversionseffizienz entsprechend 2.3.1 quadratisch mit der Länge des verwendeten Kristalls an. Die vollständige Theorie liefert aber Grenzwerte für die Kristalldicken, wie anhand des Beispiels Abb. 2.3.1 erkennbar ist, ab denen sich die Intensitäten, ähnlich den Amplituden gekoppelter Pendel, nur noch periodisch ändern bzw. infolge der Absorption

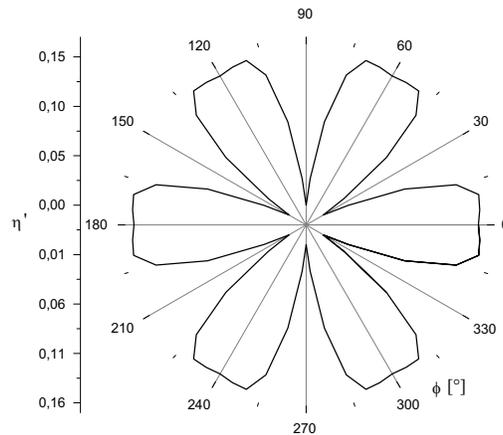


Abbildung 2.3.4: Theoretischer Konversionswirkungsgrad  $\eta' = I_3/(I_1 + I_2)$  der in Abb. 2.3.1 beschriebenen SFM  $\omega + 2\omega = 3\omega$  vom Typ eoe in Abhängigkeit vom Winkel  $\phi$  unter Berücksichtigung der Schwächung der erzeugenden Wellen in einem 2mm dicken BBO-Kristall

abnehmen.

Die Beziehung 2.3.1 gestattet auch die Aussage, daß die Breite des spektralen Bereichs, in dem die Konversion erfolgt, umgekehrt proportional der Kristalllänge ist. Das Produkt der spektralen Halbwertsbreite der Pulse nach der Konversion mit der Dicke des verwendeten Kristalls wird als *spektrale Akzeptanz (SA)* bezeichnet [18], und kann zur Berechnung der bei anderen Kristalldicken zu erwartenden spektralen Breiten verwendet werden.

Werden z.B. 197 nm-Pulse durch Frequenzkonversion in einem 1mm dicken BBO-Kristall mittels einer kollinearen SFM  $(790 \text{ nm})^{-1} + (265 \text{ nm})^{-1} = (197 \text{ nm})^{-1}$  erzeugt, so beträgt die maximale spektrale Breite infolge der großen Kristalldicke und der geringen spektralen Akzeptanz höchstens<sup>8</sup> 0.05 nm, wodurch ihre Länge  $\geq 1$  ps ist. Die relativ geringe spektrale Akzeptanz hat ihre Ursache in der hohen Dispersion des BBOs im UV-Bereich. Die Wellenlängenabhängigkeit der spektralen Akzeptanzen dreier für die Frequenzverdopplung oft genutzter Kristallarten ist zum Vergleich in Abb. 2.3.5 dargestellt.

Das bedeutet, daß zur Konversion von Laserpulsen im Subpikosekundenbereich mit

<sup>8</sup>bei Verwendung der Dispersionsrelation nach KATO, die aber eigentlich nur bis 212 nm gültig sein soll, siehe auch im Abschnitt F.2

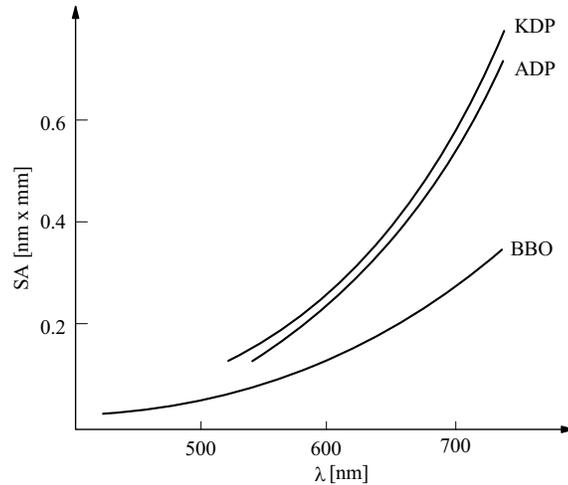


Abbildung 2.3.5: Spektrale Akzeptanzen für die Frequenzverdopplung in ADP, KDP und BBO [18]

den üblichen, kollinearen Phasenanpassungsschemata nur kurze Kristalle  $< 1$  mm geeignet sind, die aber nur geringe Konversionseffizienzen bieten (Abb. 2.3.6 a).

Um gleichzeitig einen großen akzeptierten Spektralbereich und eine hohe Konversionseffizienz zu erzielen, bietet sich die in [11] vorgestellte Methode der *spektral kompensierten Summenfrequenzmischung* an, die bei gleicher Kristalldicke eine gegenüber der kollinearen Summenfrequenzmischung mindestens *verzehnfachte* spektrale Breite gewähren soll (Abb. 2.3.6 c, Abb. 2.3.11). Dies wird dadurch erzielt, daß alle spektralen Komponenten möglichst genau unter dem speziell für ihre Phasenanpassung notwendigen Einfallswinkel auf den Kristall treffen. Somit besteht das Problem darin, für ein bestimmtes Konversionsschema das benötigte Winkelspektrum der spektralen Komponenten zu berechnen und durch einen geeigneten optischen Aufbau, z.B. durch Gitter oder Prismen, möglichst gut anzunähern.

In Abb. 2.3.7 sind für verschiedene  $\theta$ -Winkel eines BBO-Kristalls bzgl. der einfallenden dritten Harmonischen bei einer SFM  $\omega + 3\omega = 4\omega$  die exakten Phasenanpassungskurven<sup>9</sup> für das Fundamentalspektrum angegeben. Die horizontalen Linien markieren den in dieser Arbeit bei einer entsprechenden SFM tatsächlich anzupassenden Spektralbereich. Die Abb. 2.3.8 zeigt ein an eine der Kurven angenähertes, lineares Winkelspektrum, welches in den verwendeten Grenzen sehr gut einem von einem Gitter erzeugten Spektrum entspricht.

<sup>9</sup>allerdings ohne Berücksichtigung der wellenlängenabhängigen Brechung an der Frontfläche des Kristalls

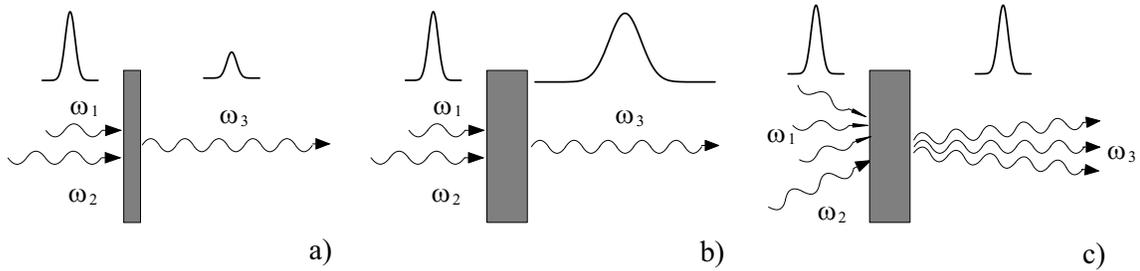


Abbildung 2.3.6: Schematische Verhältnisse bei der Pulsconversion durch eine kollineare SFM in einem dünnen a) und einem dicken Kristall b) sowie bei der spektral kompensierten SFM c)

Wie anhand Abb. 2.3.9 und Abb. 2.3.10 zu erkennen ist, nimmt die Ableitung einer solchen Phasenanpassungskurve, jetzt allerdings  $\kappa(\lambda)$ , mit zunehmender Wellenlänge ab, und auch die Krümmung verringert sich, was eine bessere Annäherung der Kurve durch eine Gerade ermöglicht. Bei nochmaliger Betrachtung von Abb. 2.3.7 zeigt sich damit, daß durch die Orientierung des Kristalls unter größeren  $\theta$ -Winkeln bzgl. der dritten Harmonischen zwar auch größere Einfallswinkel der Fundamentalkomponenten nötig sind, aber auch eine bessere Anpassung und die Verwendung kleinerer Winkeldispersionen möglich wird. Allerdings verkleinern sich die effektiven Akzeptanzbreiten in dem betrachteten Winkelbereich dadurch nicht wesentlich. Zu große Winkel zwischen den Fundamentalkomponenten und der dritten Harmonischen sind u.a. wegen der damit verbundenen verringerten räumlichen Überlappung eher ungünstig. Deswegen wurde für die in dieser Arbeit realisierte spektral kompensierte SFM eine solche  $\theta$ -Orientierung des Kristalls gewählt, bei der die das kurzwellige Ende des Fundamentalspektrums bildende spektrale Komponente mit der dritten Harmonischen kollinear ist.

Die sich in diesem Fall für einen 1.5 mm dicken BBO-Kristalls ergebende spektrale Akzeptanzkurve (Abb. 2.3.11) ist mit einer Halbwertsbreite von 3.5 nm im Vergleich zu derjenigen der unkompensierten SFM etwa um den Faktor 23 breiter.

Wie oben angesprochen, kann die Konversion und die Propagation von Laserpulsen in Kristallen über die angegebenen Differentialgleichungen exakt beschrieben werden. Es ist aber auch eine vereinfachte Behandlung wie folgt möglich:

Wird angenommen, daß für das Pulslänge-Bandbreitenprodukt der betrachteten Laserpulse

$$\tau \cdot \Delta\omega_{Puls} = const. \quad (2.3.4)$$

gilt [12, 14] und die spektrale Akzeptanz des Kristalls so klein ist, daß sie die spektra-

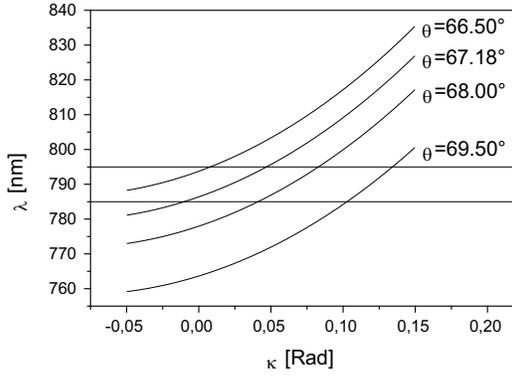


Abbildung 2.3.7: Exakte Phasen Anpassungskurven für eine spektral kompensierte SFM  $(790\text{nm})^{-1} + (263.5\text{nm})^{-1} = (197\text{nm})^{-1}$  für verschiedene  $\theta$ -Orientierungen eines BBO-Kristalls bzgl. der einfallenden dritten Harmonischen, wobei  $\kappa(\lambda)$  der Winkel zwischen einer Fundamentalkomponenten  $\lambda$  und der dritten Harmonischen in Richtung abnehmender  $\theta$ -Winkel ist

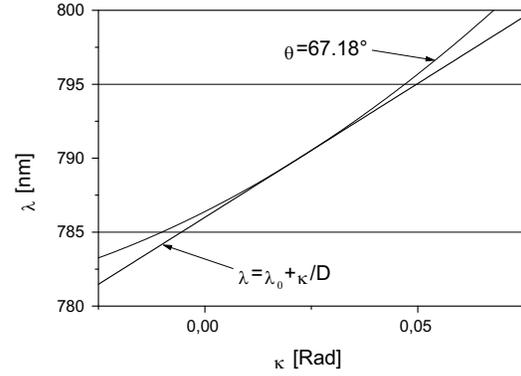


Abbildung 2.3.8: Annäherung der Phasen Anpassungskurve für  $\theta = 67.181^\circ$  durch ein Winkelspektrum  $\lambda_{approx}(\kappa) = \lambda_0 + D \cdot \kappa$  mit  $\lambda_0 = 786\text{nm}$  und  $D = 5.525 \text{ mRad/nm}$

le Breite des generierten Pulses  $\Delta\omega'_{Puls}$  und damit seine zeitliche Länge  $\tau'$  maßgeblich bestimmt, d.h.

$$\Delta\omega_{Kristall} \approx \Delta\omega'_{Puls} \ll \Delta\omega_{Puls} \quad \text{und} \quad \tau' \gg \tau,$$

so ergibt sich mittels der aus 2.3.1 folgenden Beziehung

$$L \cdot \left( \frac{dk(\omega)}{d\omega} \cdot \Delta\omega_{Kristall} \right) = const. \quad (2.3.5)$$

z.B. für einen **ooe**-Prozeß eine Verbreiterung des Pulses von [18]

$$\Delta t \approx \tau' \sim L \cdot \left( \frac{dn_o}{d\lambda} - \frac{dn_e}{d\lambda} \right). \quad (2.3.6)$$

Da der erzeugende und der erzeugte Puls verschiedene Gruppengeschwindigkeiten

$$v_G(\omega_0) = \left( \frac{dk}{d\omega} \right)^{-1} \Big|_{\omega_0} = c \left( \frac{dn}{d\omega} \cdot \omega + n \right)^{-1} \Big|_{\omega_0} \quad (2.3.7)$$

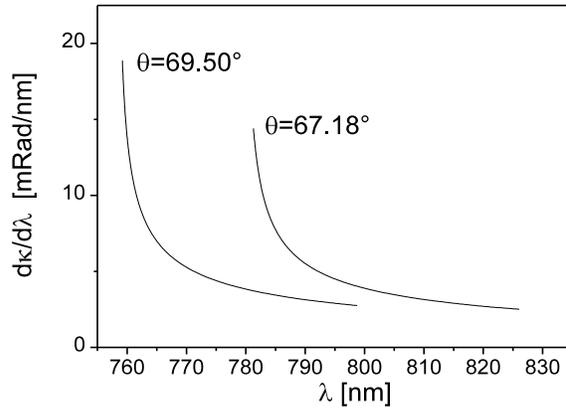


Abbildung 2.3.9: Erste Ableitung der Phasenanpassungskurve  $\kappa(\lambda)$  bzw. Wellenlängenabhängigkeit der für eine spektral kompensierte Anpassung benötigten Winkeldispersion  $D$

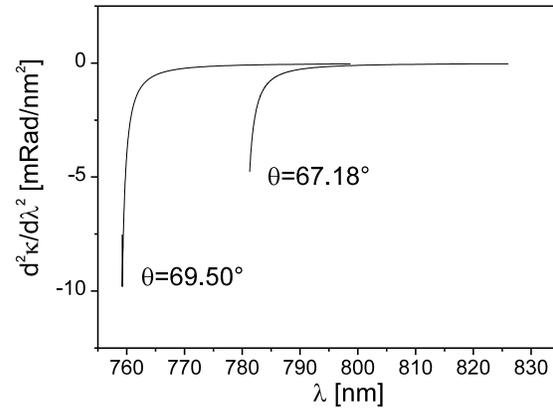


Abbildung 2.3.10: Zweite Ableitung der Phasenanpassungskurve  $\kappa(\lambda)$ , die ein Maß für Anpaßbarkeit durch ein lineares Winkelspektrum ist. Bei einem Wert von 0 (keine Krümmung) wäre die spektrale Akzeptanzbreite maximal.

besitzen, würde z.B. ein über einen **ooe**-SHG-Prozeß produzierter Puls dem erzeugenden Puls, auch im Fall der Anpassung der Phasengeschwindigkeiten, hinterherhinken<sup>10</sup>, was zu einer Verbreiterung des erzeugten Pulses von

$$\Delta t \sim L (v_{G,o}^{-1} - v_{G,e}^{-1}) \sim L (dn_o/d\lambda - dn_e/d\lambda) \quad (2.3.8)$$

führen würde. Dieser Effekt soll nach [9] bei Pulslängen unterhalb 150 fs auch schon bei dünnen Kristallen nicht zu vernachlässigen sein. In [18] wird eine mögliche Kompensationsmethode mittels Pulsfrontverkipfung durch Prismen und Anwendung einer nichtkollinearen Phasenanpassung erwähnt, die aber wiederum andere störende Effekte und die Einführung einer zusätzlichen Frequenzmodulation (chirp) in den generierten Puls nach sich zieht.

Welcher der beiden Effekte sich stärker auswirkt, hängt von dem Verhältnis der Dicke des verwendeten Kristalls zu der Länge des zu konvertierenden Pulses ab. Werden zum Beispiel 100 fs lange 800 nm-Pulse in einem LBO-Kristall von 1.5 mm frequenzverdoppelt, so zeigt sich, daß die erzeugten 400 nm-Pulse auf Grund der eingeschränkten spektralen Akzeptanz des Kristalls eine Länge von etwa 380 fs hätten, die Verlängerung der Pulse auf Grund der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten aber nur etwa 190 fs beträgt.

Wichtig ist aber, daß die Beziehungen 2.3.6 und 2.3.7 übereinstimmen und damit

<sup>10</sup>dieser Effekt wird auch als zeitlicher walk-off bezeichnet

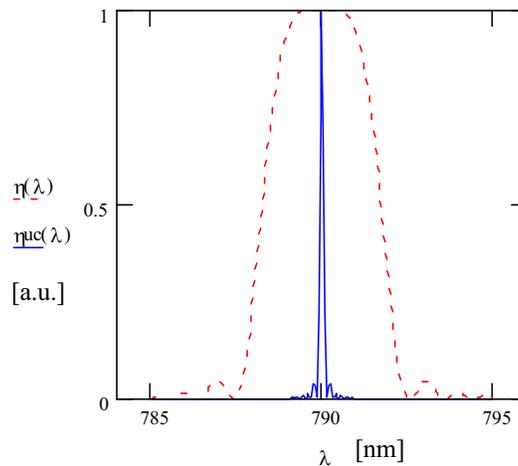


Abbildung 2.3.11: Vergleich der Akzeptanzkurven für die entsprechend Abb. 2.3.8 mit  $\lambda_{approx}(\kappa)$  spektral kompensierte SFM (gestrichelt) und eine unkompensierte, kollineare SFM (durchgezogen) bei einer SFM  $790 \text{ nm}^{-1} + 263.5 \text{ nm}^{-1} = 197 \text{ nm}^{-1}$  in einem 1.5 mm dicken BBO-Kristall.

beide Verbreiterungsarten von der Differenz der Dispersionen des Kristallmaterials für die Wellenlängen des erzeugenden und des erzeugten Pulses abhängen [18].

Die bei der Propagation eines Laserpulses durch ein Medium infolge der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD<sup>11</sup>) auftretende Pulsverbreiterung ist nach [18] in den meisten Verdopplerkristallen für Pulse bis hinab zu 30 fs vernachlässigbar. Da die Dispersionen aber mit abnehmender Wellenlänge stark zunehmen, ist die Möglichkeit der Verbreiterung von Pulse bei der vierten Harmonischen durch diesen Effekt, besonders in den im Vergleich zu den Kristalldicken langen Glaswegen, in Betracht zu ziehen. Eine solche Pulsverbreiterung sollte sich aber mittels geeigneter Kompressoren kompensieren lassen [18].

Die wichtigsten Aussagen dieses Abschnitts sind:

- $\eta$  wird maximal bei Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung  $\Delta \vec{k} = 0$ .
- $\eta$  kann auch bei einachsigen Kristallen von der  $\phi$ -Orientierung des Kristalls (Rotationswinkel des Indexellipsoiden) abhängen.
- Im Falle ungeschwächter Fundamentalwellen gilt  $\eta \sim L^2$ .

---

<sup>11</sup>group velocity dispersion

- *Im Falle geschwächter Fundamentalwellen gibt es eine Kristalldicke, bei der  $\eta$  maximal wird.*
- *Für die spektrale Akzeptanz eines Kristalls gilt  $\Delta\omega \sim L^{-1}$ .*
- *Durch Anwendung der spektral kompensierten SFM läßt sich die spektrale Akzeptanzbreite gegenüber der üblichen SFM mehr als verzehnfachen.*
- *Die spektral kompensierte SFM läßt sich durch eine Vielzahl von Kombinationen von Kristallorientierungen, Einfallswinkeln und Winkeldispersionen realisieren, wobei sich die spektrale Akzeptanzbreite nicht wesentlich ändert.*
- *Eine große Differenz zwischen den Dispersionen des Kristallmaterials bei den Wellenlängen des erzeugenden und des erzeugten Pulses führt zu einer Verbreiterung des generierten Pulses.*
- *Die Verbreiterung der Pulse bei der reinen Propagation durch die Kristalle infolge der Gruppengeschwindigkeitsdispersion kann im Bereich der vierten Harmonischen auch schon oberhalb von 30fs nicht zu vernachlässigen sein. Tritt eine solche Verbreiterung auf, sollte sie aber kompensierbar sein.*

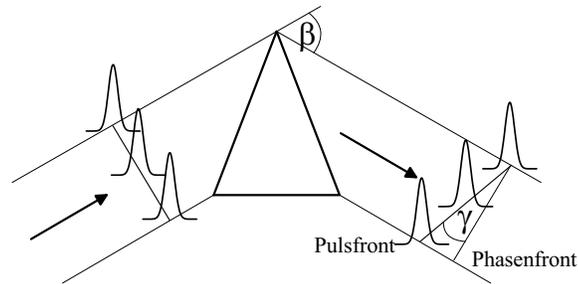
## 2.4 Pulsfrontverkippen und -verkrümmungen

Entsprechend den Ausführungen in [19] ergibt sich beim Durchgang kurzer Pulse durch ein beliebiges winkeldispersives Element immer eine Pulsfrontverkippen von

$$\tan \gamma = \bar{\lambda} \frac{d\beta}{d\lambda}, \quad (2.4.1)$$

wobei  $\bar{\lambda}$  die mittlere Wellenlänge,  $\frac{d\beta}{d\lambda}$  die Winkeldispersion und  $\gamma$  der Verkippenwinkel der Pulsfront gegen die Phasenfront ist. Zur Veranschaulichung sind in Abb. 2.4.1 die Verhältnisse beim Durchgang durch ein Prisma dargestellt.

Aus der Beziehung 2.4.1 folgt, daß ein optisches System, das keine effektive Winkeldispersion besitzt, d.h. in dem alle in ihm auftretenden Winkeldispersionen noch vor dem Ausgang des Systems wieder kompensiert werden, auch keine effektive Pulsfrontverkippen verursacht. Daß heißt, ein Strahl, der durch ein winkeldispersives Element in ein Winkelspektrum aufgespalten und anschließend durch ein zweites, entsprechend angepaßtes winkeldispersives Element wieder kollimiert wird, erleidet keine effektive Pulsfrontverkippen.

Abbildung 2.4.1: Pulsfrontverkipfung an einem Prisma mit der Ablenkung  $\beta$ 

Bei einer spektral kompensierten SFM werden zwar die Winkeldispersion *und* die mittlere Wellenlänge geändert, doch wird unter der Voraussetzung der Allgemeingültigkeit der Beziehung 2.4.1 im Anhang B gezeigt, daß dabei die Pulsfrontverkipfung erhalten bleibt.

Ein viel problematischerer Effekt tritt beim Durchgang kurzer Pulse durch eine Linse auf. Entsprechend dem FERMATschen Prinzip legen zwar alle Strahlanteile in der gleichen Zeit den gleichen optischen Weg zurück, doch kann der Anteil des dabei zurückgelegten Glasweges für die sich durch verschiedene Regionen der Linse ausbreitenden Strahlanteile unterschiedlich groß sein. Da im Glas i.a. eine gegenüber dem umgebenden Medium niedrigere Gruppengeschwindigkeit herrscht, bewirkt dies eine ortsabhängige zeitliche Verzögerung der Pulsfront gegenüber der Phasenfront. Dieser Effekt wird als *Pulsfrontverkrümmung* bezeichnet. Er kann

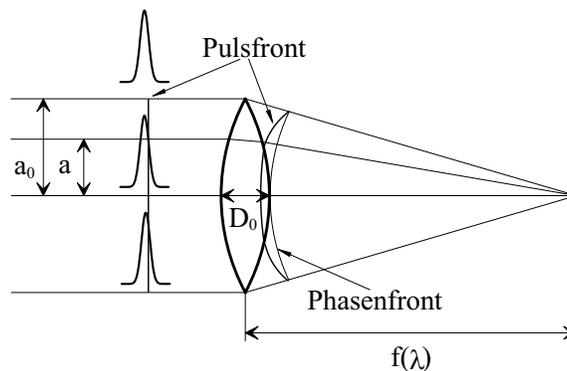


Abbildung 2.4.2: Pulsfrontverkrümmung an einer Linse

bewirken, daß im Fokus über einen sehr langen Zeitraum Pulsanteile eintreffen, die aus verschiedenen räumlichen Strahlanteilen stammen.

Dieser Zeitraum kann nach [20] für 100 fs lange UV-Pulse bei Verwendung einer Quarzlinse ohne weiteres 5 ps betragen.

Die zeitliche Verzögerung der Pulsfront eines Strahlanteils gegenüber der Phasenfront entsprechend der Abb. 2.4.2 ist nach [20] gegeben durch

$$\Delta T(a) = \frac{a_0^2 - a^2}{2c f_0^2} \lambda_0 \left. \frac{df}{d\lambda} \right|_0, \quad (2.4.2)$$

wobei  $2a_0$  der Linsendurchmesser,  $a$  der Abstand des betrachteten einfallenden Strahles zur optischen Achse,  $f_0$  die Brennweite bei der Zentralwellenlänge  $\lambda_0$ ,  $\frac{df}{d\lambda}$  die sogenannte longitudinale chromatische Aberration, d.h. die Änderung der Brennweite der Linse mit der Wellenlänge, und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit ist. Man kann den Sachverhalt auch dahingehend interpretieren, daß die verschiedenen spektralen Anteile in verschiedenen Brennpunkten fokussiert werden, was den Puls dort jeweils zeitlich gestreckt erscheinen läßt. Es ist sofort zu erkennen, daß das Problem durch den Einsatz von Achromaten gelöst bzw. gemildert würde, da diese keine longitudinale chromatische Aberration haben sollten. Leider standen für diese Arbeit keine Achromaten für den Bereich unterhalb von 200 nm zur Verfügung. Die Herstellung von Achromaten ist wegen der unterhalb des sichtbaren Spektralbereichs mit der Wellenlänge stark abnehmenden Zahl verfügbarer Linsenmaterialien sehr problematisch. Speziell für den Bereich unterhalb 200 nm beschränkt sich die Auswahl im wesentlichen auf sehr reine Quarzgläser,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{MgF}_2$  und  $\text{LiF}$ . Das Problem läßt sich aber durch die Verwendung von Hohlspiegeln umgehen, da diese keine chromatischen Fehler aufweisen.

Die Hauptaussagen dieses Abschnitts sind:

- *Werden die mittels zweier winkeldispersiver Elemente erzeugten Winkeldispersionen aneinander angepaßt, so wird auch die Pulsfrontverkipfung wieder kompensiert.*
- *Bei einer spektral kompensierten SFM bleibt eine gegebene Pulsfrontverkipfung erhalten.*
- *Im Fokus einer einfachen Sammellinse kann ein fs-Puls infolge der Pulsfrontverkrümmung wesentlich verlängert erscheinen.*
- *Die Pulsfrontverkrümmung läßt sich durch den Einsatz von Achromaten wesentlich verringern.*
- *Stehen diese nicht zur Verfügung, wie z.B. bei 197nm, so muß auf Hohlspiegel zurückgegriffen werden.*

### 3 Zeitliche Charakterisierung von Laserpulsen bei 197 nm

Werden die Spektren von Laserpulsen aufgenommen, so lassen sich wegen der i.a. unbekanntenen Phasen der spektralen Komponenten nur sehr wenige Aussagen über den zeitlichen Verlauf der Pulse machen. Meist wird nur die Breite des Spektrums dazu verwendet, die kürzeste theoretisch mögliche Pulsdauer zu berechnen. Sollen mehr Informationen über den Puls gewonnen werden, so müssen Korrelationstechniken bis hin zur in [21] vorgestellten Dreifachkorrelation<sup>12</sup> oder Kombinationen solcher Techniken mit der Vermessung von Spektren, wie z.B. beim FROG<sup>13</sup>-Schema [14], angewendet werden, welches nicht nur Aussagen über den zeitlichen Amplitudenverlauf, sondern auch über den Phasenverlauf zulässt. Da die Grundlagen der Pulsvermessung in der Literatur [13, 14, 22], ausführlich diskutiert werden und die Darstellung der Sachverhalte einen zu großen Umfang beanspruchen würde, wird hier darauf verzichtet. An gegebener Stelle wird aber auf Details, wie z.B. auf die Unterschiede bei der Nutzung von Effekten zweiten oder dritten Ordnung,<sup>14</sup> eingegangen.

Die bei längerwelligen Laserpulsen üblichen Korrelationsverfahren, die auf der Erzeugung höherer Harmonischer in nichtlinearen Kristallen basieren, sind für Laserpulse unterhalb von etwa 400 nm wegen der i.a. unterhalb von 200 nm stark einsetzenden Absorption bzw. wegen der nicht mehr realisierbaren Phasenanpassung nicht mehr anwendbar. Erläuterungen zur Problematik der Phasenanpassung in diesem Bereich sind in Abschnitt 4.1 enthalten.

Im folgenden soll unter der Bezeichnung 'Ultraviolett' (UV) der Bereich unterhalb 200 nm und unter 'nahe UV' der Bereich zwischen 200 nm und 400 nm verstanden werden.

Für die Charakterisierung des zeitlichen Verlaufs kurzer UV-Pulse bei 193 nm in den Pulslängen- und Energiebereichen, die in dieser Arbeit betrachtet werden sollen, sind aber mehrere Autokorrelationstechniken und Korrelationstechniken bekannt, die z.T. erst vor kurzem durch die Entwicklung neuartiger Halbleiterdetektoren und Dünnschichtbauelemente, wie Polarisatoren mit hohem Kontrastverhältnis für 193 nm, realisierbar wurden.

Die für diese Arbeit geeignetesten Verfahren sind:

---

<sup>12</sup>Triple Correlation

<sup>13</sup>FROG Frequency Resolved Optical Gating

<sup>14</sup>bzw.  $\chi^{(2)}$ - und  $\chi^{(3)}$ -Effekt [14]

- Korrelation der UV-Pulse mit fs-Fundamentalenpulsen über Differenzfrequenzerzeugung [7, 8, 9]
- Autokorrelation der UV-Pulse über 2-Photonenleitfähigkeitsänderung in Photodioden mit großer Bandlücke [23]
- Korrelation der UV-Pulse mit fs-Fundamentalenpulsen in einem KERRschalter [14, 15]

Weiterhin sind der sogenannte Plasmaschalter, die 2-Photonenionisation [24] und die Fluoreszenz des BaF<sub>2</sub> [25] Prinzipien bzw. Effekte, mit deren Hilfe eine Korrelation von UV-Pulsen möglich sein sollte. Die darauf basierenden Meßmethoden wären aber mit einem höheren experimentellen Aufwand oder einem erhöhten Bedarf an UV-Pulsenergien verbunden.

Die oben erwähnte Differenzfrequenzerzeugung (Abb. 3.0.3) ist als die Umkehrung der Summenfrequenzerzeugung (SFM) anzusehen, weshalb die im vorhergehenden Kapitel für die spektrale Akzeptanz eines Kristalls angegebenen Beziehungen auch hierfür gültig sind. Das bedeutet, daß zur Vermessung kurzer Pulse nur dünne Kristalle geeignet sind, die allerdings wegen der geringen Konversionseffizienzen auch nur entsprechend kleine Signale erwarten lassen.

Nach [7] und entsprechend den Überlegungen in Abschnitt 2.3 wäre eine Differenzfrequenzerzeugung z.B. mit Pulsen der dritten Harmonischen wegen des geringeren zeitlichen walk-offs zwischen den dann spektral enger benachbart liegenden Pulsen günstiger. Da aber die zeitliche Auflösung des Meßverfahrens entscheidend von der Kürze der Pumppulse abhängt, wird trotzdem meist auf die Fundamentale zur Differenzfrequenzerzeugung zurückgegriffen.

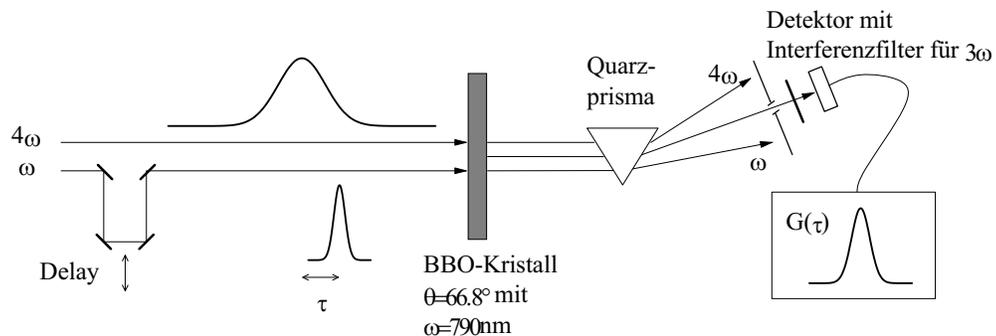


Abbildung 3.0.3: Schema der Korrelation der UV-Pulse mit den Fundamentalenpulsen über Differenzfrequenzerzeugung (DFG) und Gewinnung des Korrelationssignals  $G(\tau)$

Neben dem relativ geringen experimentellen Aufwand hat die Methode den Vorteil,

daß der zu vermessende UV-Puls mit dem zur Differenzfrequenzerzeugung notwendigen, kürzeren IR-Puls quasi abgetastet wird, da für kleine Intensitäten nach 2.3.1 das Korrelationssignal nahezu linear von der UV-Intensität abhängt<sup>15</sup>. Dadurch kann, abgesehen von einer Faltung mit der Pulsform des Pumpulses, der echte zeitliche Intensitätsverlauf des UV-Pulses gewonnen werden, auch wenn dieser *asymmetrisch* ist. Sind die UV-Pulse allerdings so kurz, daß die Pulsbreite des Pumpulses merklich zur Breite der entsprechend Abb. 3.0.3 gewonnenen Korrelationsfunktion

$$G(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_{4\omega}(t) I_{\omega}(t - \tau) dt \quad (3.0.3)$$

beiträgt, so kann diese durch Anwendung des Faltungstheorems [12] entfaltet werden, wenn mindestens einer der beteiligten Pulse eine symmetrische Struktur aufweist. Nur in diesem Fall besitzt nämlich die Korrelationsfunktion die Struktur einer wirklichen Faltung, für die das Theorem gültig ist. Es gilt dann:

$$\tilde{G}(\omega) = \tilde{I}_{4\omega}(\omega) \cdot \tilde{I}_{\omega}(\omega) \quad (3.0.4)$$

$$I_{4\omega}(t) = \mathcal{F}^{-1} \left( \frac{\tilde{G}(\omega)}{\tilde{I}_{\omega}(\omega)} \right) \quad (3.0.5)$$

Für diese Berechnung muß allerdings der zeitliche Verlauf des Fundamentalpulses bzw. dessen FOURIERtransformierte bekannt sein. Bei bekanntermaßen bandbreitenlimitierten Pulsen könnte dazu auch direkt das Spektrum des Pulses, natürlich nur relativ zu der Trägerfrequenz, zur Berechnung verwendet werden.

Bei der ebenfalls oben erwähnten Autokorrelation über 2-Photonenleitfähigkeitsänderung in Photodioden mit großer Bandlücke können dagegen *nur symmetrische* Autokorrelationsfunktionen des Pulses aufgenommen werden, da hier, wie bei den konventionellen Autokorrelationsmethoden über die Erzeugung der zweiten Harmonischen, ein Effekt zweiter Ordnung genutzt wird. Es können somit keine Informationen über eventuelle Assymmetrien der zu vermessenden Pulse gewonnen werden. Der Vorteil dieses Verfahrens besteht darin, daß entsprechende Korrelatoraufbauten für den sichtbaren Spektralbereich durch einfaches Austauschen der Photodioden für den UV-Betrieb umgerüstet werden können.

Es ist auch möglich, vorhandene Korrelatoren mit KERRschaltern durch einen Austausch der Polarisatoren und Detektoren auf den Betrieb im Bereich von 197 nm umzurüsten. Da es sich bei dem genutzten Effekt um einen Effekt dritter Ordnung handelt, können auch mit diesen Aufbauten Informationen über Assymmetrien im

<sup>15</sup>siehe auch in [12], Abschnitt Parametric Amplification and Oscillation

Verlauf der UV-Pulse erhalten werden [14], doch ist der experimentelle Aufwand höher als bei den anderen erläuterten Methoden. Das Prinzip der KERRschalter besteht darin, daß der Polarisationszustand der UV-Pulse mittels einer durch einen intensitätsstarken Pumpimpuls induzierten Doppelbrechung geändert wird. Dazu wird die Polarisationssebene des linear polarisierten Pumpimpulses unter  $45^\circ$  bzgl. des ebenfalls linear polarisierten UV-Pulses orientiert, so daß die induzierte Brechzahländerung  $\Delta n = n_2 \cdot I_P$  nur auf die zum Pumpimpuls parallele UV-Komponente wirkt. Dabei ist  $I_P$  die Intensität des Pumpimpulses und  $n_2$  der sogenannte nichtlineare Brechungsindex [14]. Problematisch ist dabei, daß zur Analyse des Polarisationszustandes der UV-Pulse, wegen geringen Zahl der unterhalb 200nm einsetzbaren Materialien, nicht ohne weiteres auf hochwertige Polarisatoren, wie GLAN-Laserprismen, die z.B. bei 248 nm noch verwendbar wären, zurückgegriffen werden kann. Entsprechende Prismen für 197nm müßten entsprechend den Aussagen eines Herstellers solcher Optiken z.B. in  $\text{MgF}_2$  oder gar in BBO ausgeführt werden und dementsprechend teuer. Einen Ausweg bilden in den letzten Jahren entwickelte Dünnschichtpolarisatoren, die allerdings ein geringeres Kontrastverhältnis bieten, was sich aber durch Verwendung einer Folge solcher Polarisatoren kompensieren lassen sollte.

## 4 Prinzip der Erzeugung modulierter fs-Pulse bei 197 nm

### 4.1 Schema für die effiziente Erzeugung kurzer Laserpulse im Bereich von 204 bis 186 nm

Seit etwa 1992 wurden in der Literatur verschiedene Aufbauten zur Erzeugung kurzer UV-Pulse im 193nm-Bereich mittels Frequenzkonversion in BBO vorgestellt [7, 8, 9, 11]. Abgesehen von Systemen mit zwei oder mehr Laserquellen [11], bei denen wegen der unvermeidlichen Synchronisierungsprobleme nur ein Femtosekundenpuls mit einem Nanosekundenpuls kombiniert werden kann, basieren alle diese Systeme auf einer schrittweisen Frequenzkonversion von Femtosekundenpulsen aus Titan-Saphir-Laserquellen mit Zentralwellenlängen von geringfügig unterhalb 800nm in das Ultraviolette unterhalb von 200nm.

Die Konversion der Fundamentalen zur vierten Harmonischen erfolgt dabei immer nach folgendem Schema:

$$\omega_2 = \omega_1 + \omega_1 \text{ (ooe)} \longrightarrow \omega_3 = \omega_2 + \omega_1 \text{ (ooe) oder (eoe)} \longrightarrow \omega_4 = \omega_3 + \omega_1 \text{ (ooe)}$$

Nach [7] sind für die letzte Konversionsstufe nur zwei kommerziell erhältliche Kristallarten, nämlich BBO und KBO<sup>16</sup>, geeignet, da nur diese unterhalb 200nm transparent sind. BBO-Kristalle werden allerdings den KBO-Kristallen vorgezogen, da KBO, abgesehen von einer starken Hygroskopie, eine um etwa den Faktor 50 kleinere Nichtlinearität als BBO besitzt. Nach [26] wurde aber schon eine weitere Konversion der mit dem dreistufigen Schema erzeugten Pulse durch eine zusätzliche Summenfrequenzmischung mit parametrisch erzeugten IR-Pulsen in LBO bis zu einer Wellenlänge von 172.7 nm erreicht.

Daß in allen in der Literatur vorgestellten Systemen dasselbe, dreistufige Konversionsschema verwendet wird, ist anhand der Abbildungen 4.1.1 und 4.1.2 erklärbar. Ein zweistufiger Prozeß, d.h. eine zweifache Erzeugung der zweiten Harmonischen, ist wegen der bei etwa 204 nm liegenden Grenzwellenlänge<sup>17</sup> für eine Phasenanpassung nicht mehr möglich. Bei Anwendung einer SFM infraroter Strahlung mit solcher im nahen UV, d.h. z.B. der Fundamentalen mit ihrer dritten Harmonischen, kann jedoch eine Phasenanpassung bis zur Transparenzgrenze des BBO, d.h. bis etwa 189nm [16, 27], realisiert werden.

<sup>16</sup> $KB_5O_8 \cdot 4H_2O$

<sup>17</sup>Unterhalb der sogenannten cut-off-Wellenlänge, für welche  $\theta(\lambda_{\text{cut off}}) = 90^\circ$  gilt, ist eine Phasenanpassung nicht mehr möglich

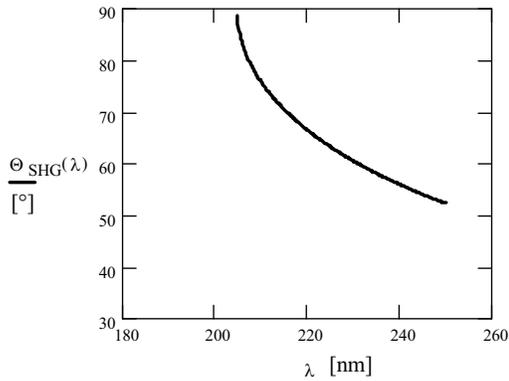


Abbildung 4.1.1: Phasenanpassungskurve für einen SHG-Prozess (**ooe**) zur Wellenlänge  $\lambda$

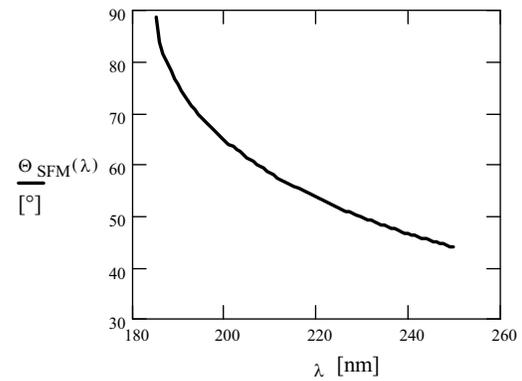


Abbildung 4.1.2: Phasenanpassungskurve für einen SFM-Prozess (**ooe**) zur Wellenlänge  $\lambda = (3/\lambda_0 + 1/\lambda_0)^{-1}$ , wobei  $\lambda_0$  die Wellenlänge der zugehörigen Grundwelle sei

Die Schemata der Aufbauten, auf die sich die oben zitierten Arbeiten beziehen, wurden in Abb. 4.1.3 dargestellt. Sie unterscheiden sich hinsichtlich

- der Art und Dicke der verwendeten Kristalle,
- des Vorhandenseins einer Verzögerungsstrecke zur zeitlichen Anpassung der in jeder Stufe zugemischten Fundamentalen an die 2. bzw. 3. Harmonische,
- nach der Art und Weise der Wiedereinkopplung der Fundamentalen
- und ob in der zweiten Konversionsstufe anstatt einer **oeo**- eine **ooe**-Phasenanpassung angewendet wird.

Die Wiedereinkopplung kann durch Anwendung nichtkollinearer Phasenanpassungsschemata [8] oder mittels dichroitischer Spiegel erfolgen [7]. Diese Spiegel besitzen wegen der i.a. erhöhten Absorption der Substrate im UV-Bereich eine Durchlässigkeit für die Fundamentale und eine hohe Reflektivität für die zu selektierende bzw. einzukoppelnde Harmonische. Bei der Wahl der Substratdicke ist die Oberflächenqualität des Spiegels gegen die negativen Auswirkungen auf die Fundamentalenpulse bei einem größerem Glasweg infolge Selbstfokussierung, Selbstphasenmodulation und Gruppengeschwindigkeitsdispersion abzuwägen.

Eine **ooe**-Phasenanpassung bietet wegen der etwa 2.5 mal größeren effektiven Nichtlinearität eine größere Konversionseffizienz, erfordert aber auch eine Rotation der Polarisationssebene der Fundamentalen um  $90^\circ$  für die 2. Konversionsstufe [7].

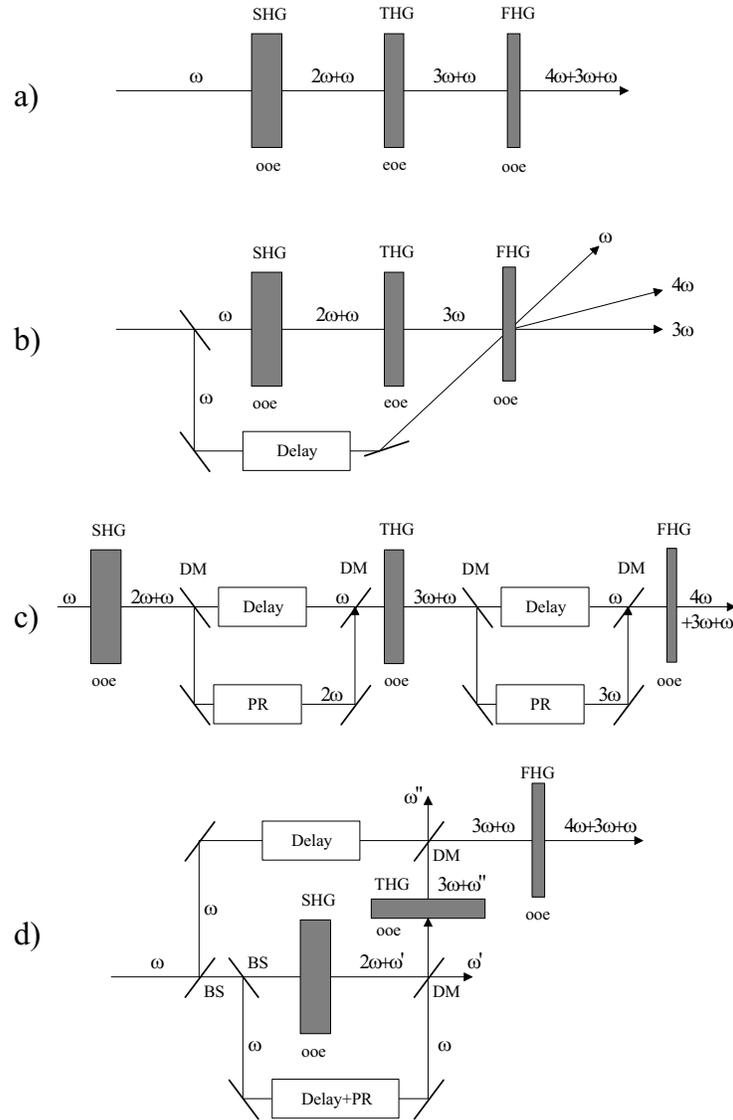


Abbildung 4.1.3: Schemata zur Konversion kurzer Pulse zur vierten Harmonischen: a) und b) realisiert nach [8], c) realisiert nach [7] d) Vorschlag, Abkürzungen: BS - Strahlteiler für die Fundamentale, PR - Polarisationsrotation, DM - dichroitischer Spiegel mit Durchlässigkeit für die Fundamentale, Delay - Verzögerungsstrecke

In den zuerst vorgestellten Aufbauten entsprechend Abb. 4.1.3a) und b) wurden folgende Kristalle verwendet: 1. Stufe 1mm BBO, 2. Stufe 0.3mm BBO, 3. Stufe 0.1mm BBO. In dem später in [7] vorgestellten Aufbau entsprechend Abb. 4.1.3c) wurde in der erste Konversionsstufe jedoch ein 1.5mm dicker LBO-Kristall verwendet.

Dies ist darin begründet, daß bei diesem Material, wie auch bei KDP, die Differenz der Dispersionen bei der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen im Vergleich zu BBO kleiner ist. Dies sollte wegen der im Abschnitt 2.3 erläuterten Beziehungen 2.3.6 und 2.3.7 eine größere spektrale Akzeptanz und auch einen größeren akzeptierten Winkelbereich [7, 18] bei einem verminderten zeitlichen Zurückbleiben des erzeugten gegenüber dem erzeugenden Puls gewährleisten. Das seitliche Auseinanderlaufen der erzeugenden und der erzeugten Welle, der sogenannte räumliche walk-off, würde durch Einsatz eines solchen Kristalls nach [18] ebenfalls vermindert. Dieser Effekt beruht auf der Tatsache, daß für den außerordentlich polarisierten Strahl der Wellenzahlvektor  $\vec{k}$  und der POYNTINGvektor  $\vec{S}$ , d.h. die Richtung normal zu den Phasenfronten und die Flußrichtung der Energie, i.a. nicht parallel sind [28].

Zwar ist die effektive Nichtlinearität eines LBO-Kristalls geringer als die eines BBO-Kristalls, doch ließe sich nach [7, 18] dieser Effekt wegen der ebenfalls geringeren Dispersion durch die Nutzung eines längeren Kristalls kompensieren, ohne die gewonnenen Vorteile wieder zu verlieren.

Da in dem Schema nach Abb. 4.1.3c) die Fundamentalimpulse ihren Weg durch sämtliche Kristalle und einige Spiegelsubstrate nehmen müssen, sind die Auswirkungen der sich akkumulierenden negativen Effekte auf die Pulsstruktur bei der Propagation durch die nichtlinearen, dispersiven Medien beträchtlich. Das derartige Effekte tatsächlich von Bedeutung sind, zeigt Abb. 5.3.10. In dieser Abbildung ist ein Fundamentalspektrum vor und nach dem Durchgang durch die beiden Kristalle bei einer Erzeugung der dritten Harmonischen unter Verwendung hoher Anfangsintensitäten im Bereich von  $100\text{GW}/\text{cm}^2$  dargestellt. Deutlich sind die Auswirkungen der Selbstphasenmodulation und einer ungleichmäßigen Schwächung erkennbar. Deswegen wird eine verbesserte Variante entsprechend Abb. 4.1.3 d) vorgeschlagen, bei dem die gestörten Fundamentalreste ( $\omega'$  und  $\omega''$ ) größtenteils abgetrennt und durch jeweils neu eingekoppelte, zeitlich und intensitätsmäßig angepaßte Fundamentalanteile ersetzt werden. Diese Variante ist vor allem für Lasersysteme geeignet sein, bei denen die verwendeten Spitzenintensitäten in der Fundamental nur durch die Zerstörschwellen der Kristalle limitiert sind.

Wird die Zerstörschwelle der Kristalle erreicht, ist aber noch eine Erhöhung der UV-Ausbeute durch den Einsatz längerer Kristalle möglich [18]. Dies bringt natürlich die in Abschnitt 2.3 diskutierte, unerwünschte spektrale Einengung mit sich.

Dieses Problem läßt sich durch die Anwendung der ebenfalls in Abschnitt 2.3 erläuterten spektral kompensierten SFM umgehen, die den Einsatz von dicken Kristallen in allen Konversionsstufen ermöglicht. Dies erhöht wiederum die Konversionseffizienz

gegenüber den oben erläuterten konventionellen Schemata wesentlich.

Ein Schema unter Verwendung dieses Prinzips nach [10] ist in Abb. 4.1.4 dargestellt. Die für kurze Pulse notwendige spektrale Breite wird den UV-Pulsen dabei *erst in der letzten Konversionsstufe* durch die Übertragung eines ausreichend großen spektralen Anteils der Fundamentalen in das Ultraviolette verliehen.

Da die bei der zweiten und dritten Harmonischen erzeugten Pulse wegen der großen Kristalldicken spektral schmal bzw. zeitlich sehr lang sind (Größenordnung 1ps), sind auch keine großen Auswirkungen der Differenz zwischen den Gruppengeschwindigkeiten zu erwarten. Aus diesem Grund wurde auf eine zeitliche Anpassung der Pulse für die zweite Konversionsstufe verzichtet.

Die Verwendung längerer Kristalle ermöglicht wegen der erhöhten mechanischen Stabilität eine unproblematischere Herstellung und Handhabung, was sich auch in den geringeren Kosten für solche Kristalle widerspiegelt.

Zusammenfassend lassen sich für diesen Abschnitt folgende Aussagen machen:

- *BBO ist ein geeigneter Kristall, um mittels Summenfrequenzmischung UV-Pulse im Bereich 200 nm  $\rightarrow$  186 nm zu erzeugen.*
- *Wegen der durch die Dispersion des BBO gegebenen Beschränkungen in der Phasenanpaßbarkeit ist nur eine dreistufige Konversion von IR-Pulsen  $<$  800 nm nach  $<$  200 nm möglich.*
- *Es ist abzuwägen, ob trotz des erhöhten experimentellen Aufwandes in allen Konversionsstufen eine Phasenanpassung des Typs "ooe" angewendet werden sollte.*
- *In der ersten Konversionstufe empfiehlt sich wegen der in diesem Fall größeren spektralen Akzeptanz der Austausch des BBO-Kristalls durch einen längeren LBO-Kristall.*
- *Wegen des zeitlichen walk-offs zwischen den UV-Pulsen und den Pulsen der Fundamentalen ist es günstig, eine zeitliche Anpassung mittels einer Verzögerungsstrecke vor der letzten Konversionsstufe vorzunehmen.*
- *Durch die Anwendung der spektral kompensierten SFM sollte sich die Effizienz der Erzeugung kurzer Pulse gegenüber konventionellen Schemata wesentlich erhöhen lassen.*

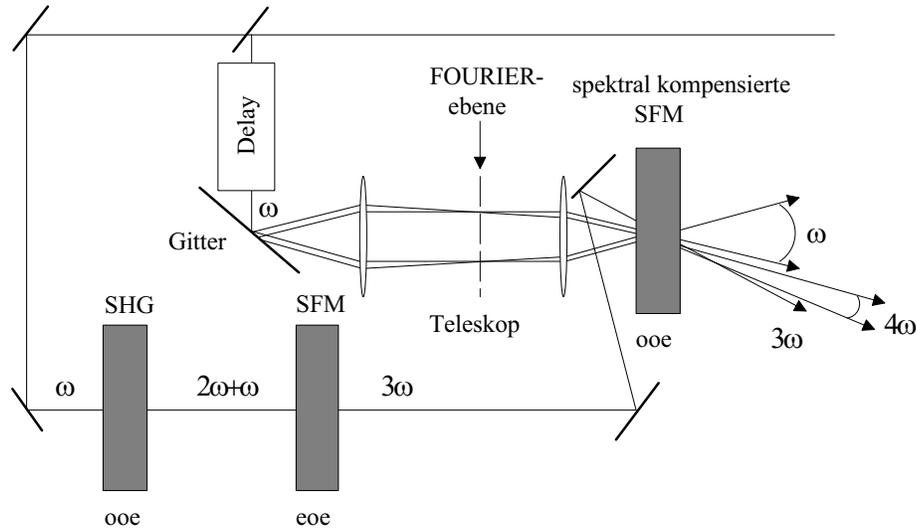


Abbildung 4.1.4: Schema nach [10] zur Erzeugung kurzer UV-Pulse unter Anwendung der spektral kompensierten SFM in einem dicken Kristall in der letzten Konversionsstufe (im Bereich des Teleskopes wurde zur Verdeutlichung der Verhältnisse ein endlicher Strahlquerschnitt angenommen)

## 4.2 Erweiterung zu einem Pulsformer

Bei Nutzung des Schemas entsprechend Abb. 4.1.4 muß i.a. das durch das Gitter erzeugte Winkelspektrum mittels eines Teleskopes mit der entsprechenden Vergrößerung für die spektral kompensierte SFM angepaßt werden. Ist das Teleskop so konzipiert, daß eine FOURIERebene im Aufbau existiert, kann durch Einbringen eines räumlicher Lichtmodulators in diese Ebene eine Amplituden- oder Phasenmodulation entsprechend den Erläuterungen in Abschnitt 2.2 der zu konvertierenden Fundamentalenpulse erfolgen. Ein geeigneter Lichtmodulator für eine Amplitudenmodulation wäre z.B. eine Flüssigkristallstreifenmatrix, bei der die Transmission der einzelnen Streifen bei entsprechender Ansteuerung geregelt werden kann. Die Modulation der Fundamentalenpulse würde sich bei der anschließenden Summenfrequenzzmischung auf die UV-Pulse übertragen. Damit wäre auch eine Änderung der zeitlichen Struktur der UV-Pulse möglich.

Das Konversionsschema entsprechend Abb. 4.1.4 würde damit zu einem Pulsformer für Pulse im Bereich unterhalb 200nm erweitert. Das Konzept des Pulsformers ist in Abb. 4.2.1 dargestellt.

Dieses Prinzip hat den großen Vorteil, daß die Modulation nur im *Infraroten* er-

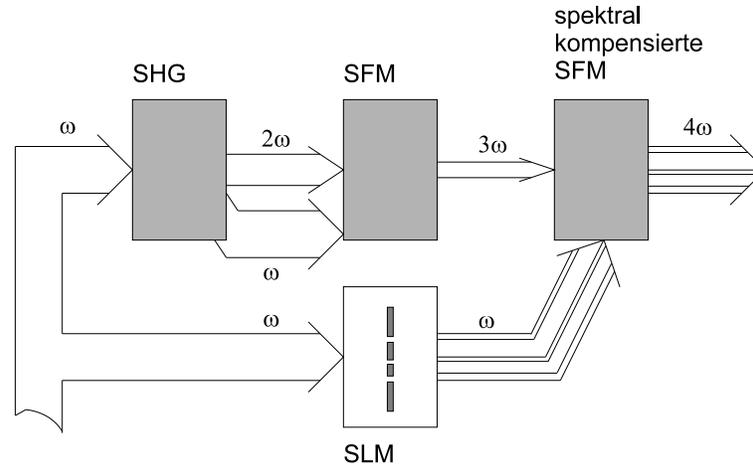


Abbildung 4.2.1: Konzept eines Pulsformers für kurze Pulse im Bereich unterhalb 200nm. Die Pfeilbreiten sollen die spektralen Breiten der jeweiligen Harmonischen qualitativ beschreiben. Ein strukturierter Pfeil soll ein moduliertes Spektrum symbolisieren.

folgt und dann in das UV übertragen wird, was äußerst günstig ist, da die meisten optischen Bauelemente eine gute Transmission im nahen Infrarot besitzen, aber im Bereich unterhalb von 200nm infolge starker Absorption nicht mehr verwendbar sind. Speziell solche komplizierten optischen Bauelemente wie Modulatoren auf Flüssigkristallbasis sind noch nicht für den UV-Bereich realisiert worden.

Für diese Arbeit stand zur Manipulation des Fundamentalspektrums ein Flüssigkristallstreifenmodulator SLM-S 160/h der Firma Jenoptik LOS zur Verfügung, dessen technische Daten im Anhang E angegeben sind.

Es handelt sich dabei um einen räumlichen Lichtmodulator (spatial light modulator oder kurz SLM) auf der Basis helixartig angeordneter, nematischer Flüssigkristalle (twisted nematic liquid crystals oder kurz TN-LCs), der in Transmission betrieben wird und bei dem ein Streifen im abgeschalteten Zustand die Polarisations Ebene des auftreffenden Lichtes um  $90^\circ$  dreht, im eingeschalteten jedoch nicht.

Bei diesem Modulatortyp können 160 Streifen auf einer Fläche von  $11 \times 11 \text{ mm}^2$  unabhängig geschaltet werden. Mit der vorhandenen elektronischen Beschaltung sind allerdings nur die beiden oben erwähnten Schaltzustände und keine Zwischenstufen realisierbar.

In nematischen Flüssigkristallen sind die Moleküle zwar zufällig verteilt, aber die einzelnen Moleküle tendieren dazu, sich entsprechend der Orientierung ihrer Nachbarn auszurichten. Die helixartige Anordnung der Flüssigkristalle wird durch ein entsprechend gerichtetes Bürsten der beiden den dünnen Flüssigkristallfilm begrenzenden

Oberflächen bei der Herstellung bewirkt, wodurch sich die oberflächennächsten Moleküle entsprechend gerichtet anlagern und ihre Orientierungen gewissermaßen auf ihre Nachbarn übertragen. Bezüglich des einfallenden Lichtes transversal orientierte Schichten dieser Flüssigkristalle wirken dann wie dünne, einachsige doppelbrechende Kristalle, deren optische Achsen mit der vorliegenden Helixstruktur rotieren. Eine solche Struktur wirkt als Polarisationsrotator.

Wird ein konstantes oder langsam variierendes elektrisches Feld entlang der Achse der Helixstruktur angelegt, so verkippen sich auf Grund induzierter elektrischer Dipole alle Kristalle, abgesehen von denjenigen, die sich nahe den Oberflächen befinden, in Feldrichtung, wodurch die polarisationsrotierende Wirkung auf das einfallende Licht verlorengeht. Nach Abschalten des Feldes kehren die Moleküle, angeregt durch die noch in der ursprünglichen Orientierung verbliebenen oberflächennahen Kristalle, wieder in ihre Anfangslage zurück.

In üblichen Einsatzgebieten solcher Modulatoren werden meist vor und hinter die-

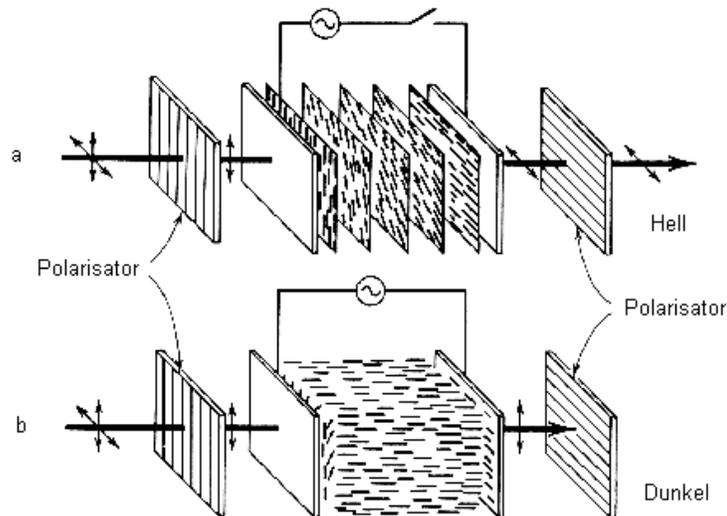


Abbildung 4.2.2: Ein optischer Schalter auf der Basis von TN-LCs, a) bei Abwesenheit und b) bei Anwesenheit des elektrischen Feldes

sem je ein Polarisator angebracht, die je nach Stellung die Polarisationsrotation in eine Intensitätsschwächung im gewünschten Schaltzustand umwandeln. Das Prinzip eines solchen Schalters ist in Abb. 4.2.2 dargestellt.

Für die hier vorliegende Anwendung ist dies aber nicht nötig, da das auftreffende Laserlicht schon gut polarisiert ist und der sich hinter dem Modulator befindliche Kristall mit seiner starken Polarisations sensitivität die Rolle des zweiten Polarisators übernimmt.

Mit diesem Modulator soll prinzipiell nur eine Amplitudenmodulation realisiert werden. Da sich aber im eingeschalteten Zustand, infolge einer geänderten effektiven Brechzahl, auch der optische Weg einer durch den entsprechenden Bereich des Modulators laufenden Lichtkomponente ändern wird, ist mit einer zusätzlichen Phasenmodulation einer schwer abzuschätzenden Stärke zu rechnen.

Grundsätzlich wäre der Einsatz eines ausschließlich phasenretardierenden Modulators, z.B. auf der Basis parallel orientierter, nematischer Kristalle, günstiger, da bei einer Phasenmodulation prinzipiell keine Spektralkomponenten vernichtet, sondern nur phasenverschoben werden und das System auf Grund einer geringeren Anzahl unbekannter Größen besser zu beschreiben wäre.

Es gibt allerdings auch theoretisch Betrachtungen zur sogenannten kohärenten Kontrolle von Molekülen, die eine Notwendigkeit der Vernichtung bestimmter spektraler Anteile des Pulses zur Erzielung eines gewünschten Effektes erklären. In Anbetracht dessen sollte einem System der Vorzug geben werden, daß sowohl eine Phasen- als auch Amplitudenmodulation ermöglichen würde [29]. Die Kosten eines solchen Modulators würden allerdings ein Vielfaches derjenigen des in dieser Arbeit verwendeten betragen.

Eine ausführliche Diskussion der Wirkprinzipien und der Anwendungsmöglichkeiten der verschiedenen Flüssigkristallmodulatorentypen ist in [12] gegeben.

Die wichtigsten Aussagen diesen Abschnitts sind:

- *Das vorgeschlagene Schema zur Erzeugung kurzer Pulse bei 197nm mittels spektral kompensierter SFM läßt sich zu einem Pulsformer für Pulse bei 197nm erweitern.*
- *Die nötige spektrale Modulation erfolgt nur im Infraroten und wird in das UV übertragen.*
- *Für die Demonstration des Prinzips der Amplitudenmodulation stand ein Flüssigkristallstreifendisplay mit 160 Streifen zur Verfügung, die jeweils die Schaltzustände "Drehung der Polarisation um 90" und "keine Drehung der Polarisation" einnehmen können. Da der letzte Kristall die Rolle eines Analysators übernimmt, sind diese den Zuständen "transparent" und "nicht transparent" gleichwertig, d.h. es wird trotz Änderung des Polarisationszustandes eine Amplitudenmodulation erzielt.*
- *Durch die Verwendung einer Kombination aus einem amplitudenmodulierenden und einem phasenretardierenden Modulator wäre die größte Anwendungsbreite eines Pulsformers gewährleistet.*

## 5 Charakterisierung des Aufbaus mit Prismen

### 5.1 Erläuterungen zur Prismensequenz

Zur Realisierung des Aufbaus entsprechend dem Schema in Abb. 4.1.4 standen zu Beginn der Arbeit ein LBO- und zwei BBO-Kristalle zur Verfügung, jeweils mit einer Dicke von 1.5 mm und einem Schnittwinkel<sup>18</sup> entsprechend den Phasenanpassungsbedingungen für die geplanten Konversionen einer Fundamentalen von 790 nm, aber kein Gitter mit einer ausreichend hohen Zerstörfestigkeit.

Deshalb mußte die für die spektral kompensierte SFM notwendige Winkeldispersion des Fundamentalspektrums durch Prismen realisiert werden, da deren Zerstörfestigkeit ähnlich hoch wie die der Kristalle ist.

Wegen der im Vergleich zu Gittern geringeren Winkeldispersion von Prismen, besonders im Bereich des Infraroten, wurde eine Sequenz dreier hochbrechender Prismen verwendet (2x SF10, 1x SF13). Um die Intensitätsverluste an den insgesamt sechs Ein- und Austrittsflächen für die bzgl. der Prismen p-polarisierte Fundamentale zu minimieren, wurden 60°-Prismen und Einfallswinkel nahe dem BREWSTERwinkel gewählt. Nach Berechnungen unter Nutzung der FRESNELschen Formeln sollte der Gesamttransmissionsgrad damit  $T \approx 75\%$  betragen.

Formuliert man die Abhängigkeit des Austrittswinkels von der Wellenlänge, so erkennt man, daß diese im Spektralbereich der Fundamentalen noch als linear betrachtet werden kann. Deshalb sind die für Gitter durchgeführten Modellrechnungen für die spektral kompensierten Summenfrequenzmischungen (z.B. Abb. 2.3.9) noch gültig. Bildet man die erste Ableitung dieser Abhängigkeit nach der Wellenlänge, erhält man eine Winkeldispersion von etwa

$$D_{Prisma} \approx 1.1 \text{ mRad/nm} .$$

Die im Kap. 2.3 dargestellten Ergebnisse von Beispielrechnungen zur spektral kompensierten SFM wurden mit den Daten des tatsächlichen Aufbaus durchgeführt, weshalb auch aus der in Abb. 2.3.9 dargestellten Abhängigkeit ersichtlich ist, daß die für die letzte Konversionsstufe benötigte Winkeldispersion im Bereich von 3 bis 6 mRad/nm liegen muß und damit etwa um den Faktor 5 größer ist als die der Prismensequenz. Deshalb wurde das durch die Prismensequenz erzeugte Winkelspektrum mittels eines Teleskopes, bestehend aus zwei Achromaten der Brennweiten 400mm und 80mm, angepaßt.

Die Brennweiten wurden so gewählt, daß auf der Breite des sich in der FOURIERebene der 400mm-Linse befindenden Flüssigkristallstreifendisplays etwa die dreifache

<sup>18</sup>Die Daten der Kristalle sind im Anhang D enthalten.

Halbwertsbreite des Fundamentalspektrums, d.h. etwa 30 nm, abgebildet wird. Damit sollte gewährleistet sein, daß alle wesentlichen Anteile des Fundamentalspektrums modulierbar sind.

Bei einer späteren Berücksichtigung der Brechung in den BBO-Kristall ergab sich allerdings, daß die im Kristall tatsächlich vorliegende Winkeldispersion etwa um den Faktor  $n_{BBO} \approx 1.7$  kleiner ist als die mit dem Teleskop erzielte, doch konnte diese Abweichung offenbar durch die Anpassung der Einfallswinkel und der Kristallorientierung entsprechend den Erläuterungen in Kap. 2.3 ausgeglichen werden.

Der in diesem Abschnitt beschriebene Zustand des Versuchsaufbaus unterscheidet sich von dem in Anhang D dargestellten nur dadurch, daß der in der Prismensequenz räumlich aufzusplittende Fundamentalestrahl mittels eines Strahlteilers nach dem Teleskop von dem für die  $2\omega$ -Erzeugung vorgesehenen Hauptstrahl abgezweigt wurde und der eingezeichnete Achromat L1 hier die oben erwähnte Brennweite von 400mm besitzt, statt der dort angegebenen 200mm (siehe dazu Abb. 6.1.1).

## 5.2 Untersuchung des Konversionsregimes

Für eine Berechnung der zu erwartenden Spektren bei den verschiedenen Harmonischen entsprechend der Darstellung im Anhang C müssen die folgenden Voraussetzungen erfüllt sein: Es muß ein Intensitätsbereich vorliegen, in dem noch die Näherungen für ungeschwächte erzeugende Wellen gültig sind, und es dürfen keine störenden Sättigungseffekte oder Selbstphasenmodulationen auftreten.

Um dies zu überprüfen, wurden zunächst einige Abhängigkeiten zwischen den Intensitäten der Harmonischen aufgenommen. Problematisch war dabei, daß wegen der geringen Intensität der vierten Harmonischen kein übliches, z.B. pyroelektrisches, Energiemeßgerät verwendet werden konnte, weshalb ein Halbleiterdetektor (SiC-Diode) zum Einsatz kam, für den eine Kalibrierung an einem ArF-Laser (193nm, Pulsdauer  $\approx 20$ ns) vorgenommen werden mußte (Anhang G).

Die Abhängigkeit der Intensität der vierten Harmonischen von der in der letzten Konversionsstufe zugeführten Intensität der Fundamentalen (Abb. 5.2.1) und auch die Abhängigkeit von der dritten Harmonischen (Abb. 5.2.2) zeigen jeweils ein nahezu lineares Verhalten (Anstieg ca. 1 in doppeltlogarithmischer Darstellung). Eine Fundamentalenintensität von 100% entspricht in dieser Abbildung einer Intensität im Bereich von  $3 - 6 \text{ GW/cm}^2$  auf dem letzten Kristall. Daß nur ein Intensitätsbereich angegeben werden kann, hat seine Ursache darin, daß zu dem Zeitpunkt dieser Messung durch den Strahlteiler (siehe Abb. 6.1.1) ein Rückreflex verursacht wurde, dessen Anteil am Meßwert schlecht abzuschätzen ist, aber prinzipiell maximal 50% betragen kann.

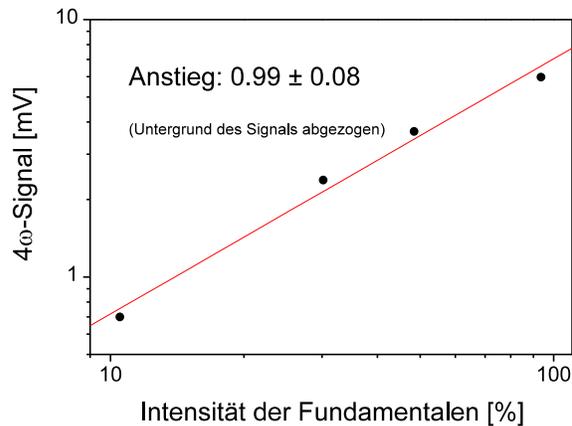


Abbildung 5.2.1: Abhängigkeit des mit der SiC-Diode gemessenen Signals der vierten Harmonischen von der Intensität der in der letzten Konversionsstufe zugemischten Fundamentalen

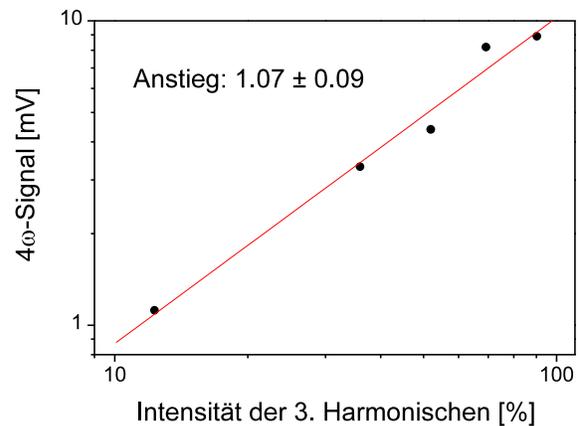


Abbildung 5.2.2: Abhängigkeit des mit der SiC-Diode gemessenen Signals der vierten Harmonischen von der Intensität der dritten Harmonischen

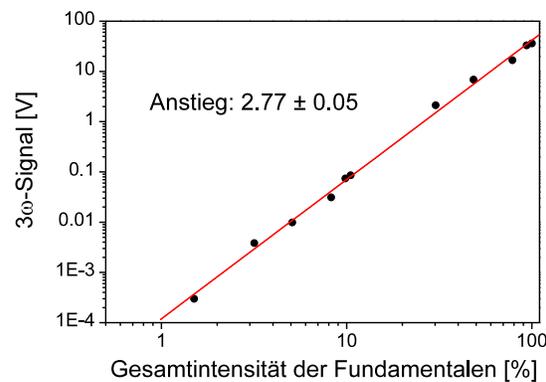


Abbildung 5.2.3: Abhängigkeit des mit der SiC-Diode gemessenen Signals der dritten Harmonischen von der Intensität der insgesamt zugeführten Fundamentalen

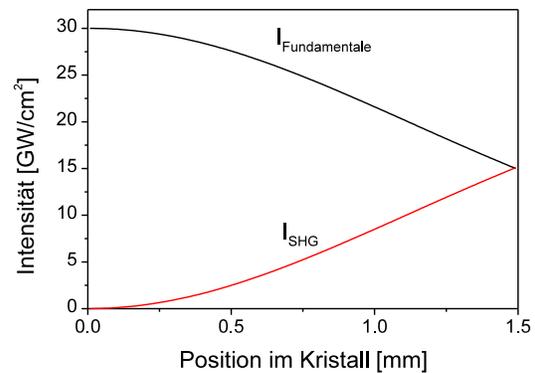


Abbildung 5.2.4: Dreiwellenmischungsmodell der Erzeugung der zweiten Harmonischen im LBO-Kristall basierend auf den Materialdaten aus [16]

Ein deutlicherer Hinweis auf eine beginnende Sättigung in den ersten beiden Konversionsstufen ist mit der in Abb. 5.2.3 doppeltlogarithmisch aufgetragenen Abhängigkeit der Intensität der dritten Harmonischen von derjenigen der insgesamt zugeführten Fundamentalen gegeben, da der ermittelte Anstieg nur etwa 2.77 beträgt. Für den Fall ungeschwächter erzeugender Wellen wäre allerdings eine kubische Abhängigkeit zu erwarten, d.h. ein Anstieg von 3. Bei dieser Messung ist zu beachten, daß ab

ca. 10% der maximalen Fundamentalintensität mit einem Abschwächer vor der Diode gearbeitet wurde und die zugehörigen, recht groß erscheinenden Signalwerte entsprechend umgerechnet sind.

Eine Fundamentalintensität von 100% in Abb. 5.2.3 entspricht einer mittleren Intensität von ca.  $30 \text{ GW/cm}^2$  auf der Frontfläche des ersten Kristalls.

Die Ungültigkeit der Näherung einer ungeschwächten Fundamentalintensität beim Auftreten solcher hoher Intensitäten im ersten Kristall wird auch durch die Lösung des die Dreiwellenmischung beschreibenden Differentialgleichungssystems für die Zentralwellenlängen mit entsprechenden Randwerten bestätigt (siehe Abb. 5.2.4). Ein solcher Ansatz sollte akzeptabel sein, solange die spektrale Akzeptanzbreite des Kristalls noch deutlich kleiner als die Breite des Fundamentalspektrums ist. Eine Messung der Pulsenergie der zweiten Harmonischen ergab einen Wert, der überraschend gut dem in der Abb. 5.2.4 vorausgesagten von 50% entspricht. Es wurde eine Pulsenergie von ca.  $86 \mu\text{J}$  gemessen, d.h. von etwa 44% der Pulsenergie der Fundamentalintensität an der vorderen Grenzfläche des Kristalls. Dabei ist zu beachten, daß in diesem Wert die Reflexionsverluste an der Kristallaustrittsfläche und an dem der Separierung der zweiten Harmonischen dienenden Quarzprisma beinhaltet sind. Dies bedeutet, daß die tatsächliche Effizienz der Erzeugung der zweiten Harmonischen noch höher war.

Problematisch für solche Berechnungen ist, daß die in der Literatur angegebenen nichtlinearen Kopplungskoeffizienten der Kristalle sehr stark, z.T. sogar im Vorzeichen, voneinander abweichen. Würden z.B. die in [12] angegebenen nichtlinearen Koeffizienten verwendet, wäre eine Umwandlungsrate von ca. 74% zu erwarten.

Alle Intensitätsangaben gehen davon aus, daß zum Zeitpunkt dieser Messung eine Eingangspulslänge von ca. 100fs vorlag, was aber wegen der damals nicht ständig verfügbaren Pulslängendiagnostik leider nicht überprüft werden konnte.

Die meßbaren Konversionseffizienzen hängen u.a. stark von der Eingangsintensität und von der Pulslänge der Fundamentalpulse ab, d.h. auch von Justagezuständen des genutzten Lasersystems. Es ist also verständlich, daß diese von Tag zu Tag stark schwanken können, weshalb die in der Überblicksdarstellung 5.2.5 angegebenen Werte nur als Anhaltspunkte zu verstehen sind. Es zeigt sich, daß die Pulse im Bereich von 197 nm mit einem Gesamtwirkungsgrad von etwa 0.15 % erzeugt werden können. Auffällig ist in der Darstellung, daß der Konversionswirkungsgrad der zweiten Konversionsstufe gegenüber den anderen Stufen vergleichsweise niedrig ist. Dies weist auf eine scheinbar doch nicht zu vernachlässigende zeitliche oder aber spektrale Fehlanpassung der Pulse der zweiten Harmonischen und der Fundamentalintensität hin. Ob eine spektrale Fehlanpassung vorliegen kann, wird in Abschnitt 5.3

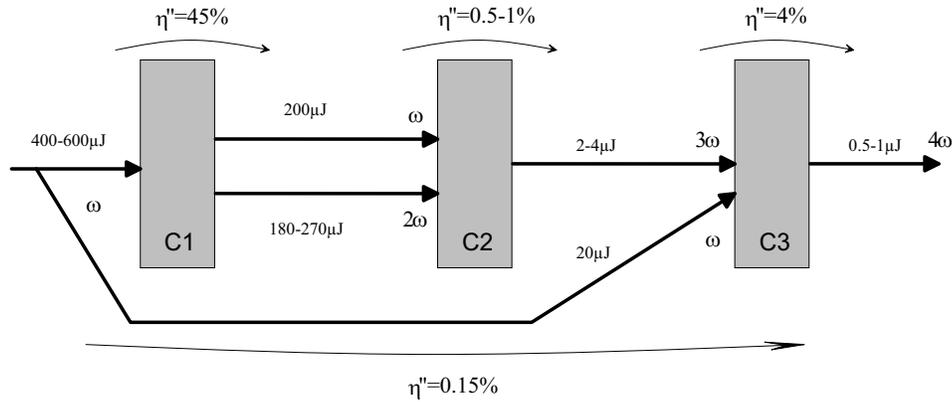


Abbildung 5.2.5: Experimentell ermittelte Konversionswirkungsgrade  $\eta''_{1+2 \rightarrow 3} = E_3 / (E_1 + E_2)$  der Kristalle  $C_{1..3}$  und des Gesamtsystems, sowie die durchschnittlichen Pulsenergien bei den einzelnen Harmonischen

diskutiert werden.

An dieser Stelle sollen die verschiedenen in dieser Arbeit auftretenden, die Effizienz einer Frequenzkonversion beschreibenden Größen definiert werden, wobei unter  $E$  eine Pulsenergie und unter  $I$  eine Intensität zu verstehen ist:

Theoretische Konversionseffizienzen von Mischungsprozessen dreier monochromatischer Wellen sind über

$$\eta_{1+2 \rightarrow 3} = I_3 / (I_1 I_2) \quad (5.2.1)$$

definiert und nicht einheitenfrei. Zur Berechnung der theoretischen Kurve in Abb. 2.3.4 im Abschnitt 2.3 wurde der Konversionswirkungsgrad

$$\eta'_{1+2 \rightarrow 3} = I_3 / (I_1 + I_2) \quad (5.2.2)$$

zwischen drei Wellen verwendet. Unter den z.B. in Abb. 5.2.5 angegebenen, einheitenfreien Wirkungsgraden ist

$$\eta''_{1+2 \rightarrow 3} = E_3 / (E_1 + E_2) \quad (5.2.3)$$

zu verstehen.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- Die für die Näherung ungeschwächter erzeugender Wellen hergeleiteten Beziehungen sind für die erste Konversionsstufe nicht anwendbar.

- Die Anwendbarkeit der Beziehungen auf die zweite Stufe bedarf einer Überprüfung.
- Die Gültigkeit der Beziehungen für die Vorgänge im letzten Kristall ist gegeben.

### 5.3 Vergleich der berechneten und der gemessenen Spektren

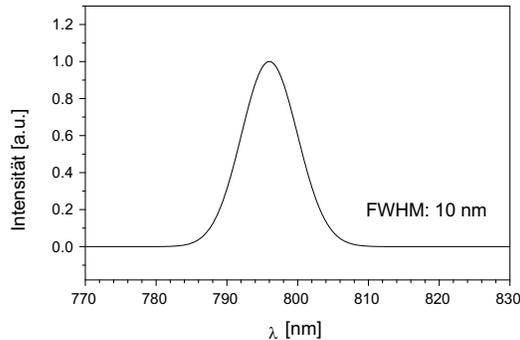


Abbildung 5.3.1: In den Modellrechnungen angenommenes Fundamentalspektrum

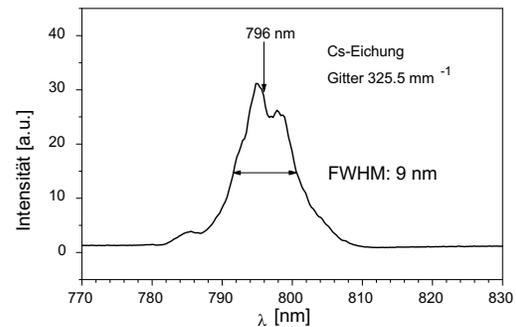


Abbildung 5.3.2: Gemessenes Fundamentalspektrum

Zunächst ist in Abb. 5.3.1 das in den folgenden Berechnungen verwendete Modellspektrum eines bandbreitenlimitierten, gaußförmigen Fundamentalspektrums der Länge 100fs dargestellt und in Abb. 5.3.2 das real vorliegende. Die im realen Spektrum vorhandenen Strukturen werden schon in den Verstärkerstufen des verwendeten Lasersystems aufgeprägt und sind sehr stabil. Da, wie im folgenden zu sehen sein wird, die größte auftretende spektrale Akzeptanzbreite eines Kristalls höchstens ein Drittel der Halbwertsbreite des Fundamentalspektrums erreicht, sind die geringfügig unterschiedlichen Breiten des gemessenen und des angenommenen Spektrums vernachlässigbar.

In den Abbildungen 5.3.3, 5.3.4 und 5.3.12 sind die auf der *Näherung ungeschwächter erzeugender Wellen* basierenden theoretischen Akzeptanzkurven der Kristalle dargestellt und die zugehörigen Halbwertsbreiten angegeben. Es ist bei dazu durchzuführenden Berechnungen zu berücksichtigen, daß die spektral kompensierte SFM nun bei 796nm stattfindet und deswegen die in Abschnitt 2.3 für eine Wellenlänge von 790nm angegebenen Daten der SFM geringfügig angepaßt werden müssen. Bei den Akzeptanzfunktionen des zweiten und des dritten Kristalls ist weiterhin zu beachten, daß diese jeweils von den Wellenlängen der *beiden* am Mischungsprozeß

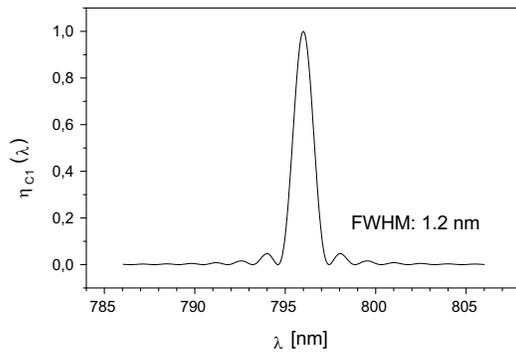


Abbildung 5.3.3: Theoretische Akzeptanz des ersten Kristalls für die Frequenzverdopplung von 796nm

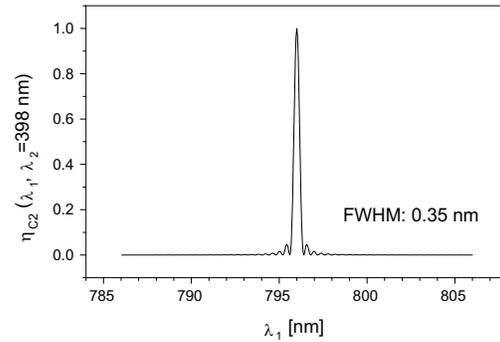


Abbildung 5.3.4: Theoretische Akzeptanz des zweiten Kristalls für die SFM der Fundamentalen mit einer monochromatischen spektralen Komponente der zweiten Harmonischen

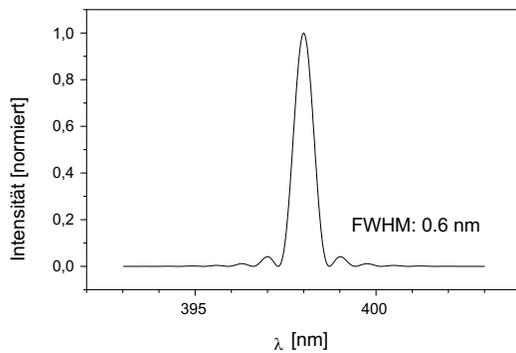


Abbildung 5.3.5: Theoretisches Spektrum der zweiten Harmonischen

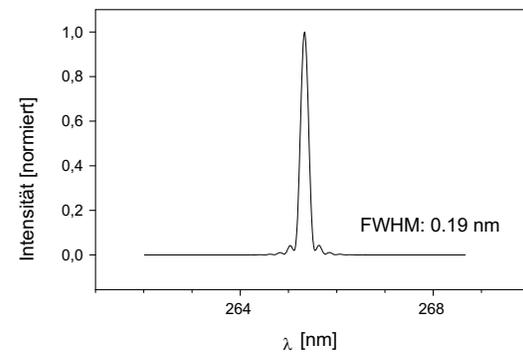


Abbildung 5.3.6: Theoretisches Spektrum der dritten Harmonischen

beteiligten Wellen, d.h. von zwei Parametern, abhängen. Für den dritten Kristall wurde diese Abhängigkeit in Abb. 5.3.15 veranschaulicht.

Zur Berechnung der theoretischen Spektren der zweiten und dritten Harmonischen müssen dann die im Anhang C angegebenen Beziehungen (Faltungen) verwendet werden. Die Ergebnisse sind in Abb. 5.3.5 und in Abb. 5.3.6 angegeben.

Die mittels eines BESTEC-Spektrometers gemessenen und mit Hilfe von Spektrallampen kalibrierten Spektren der zweiten und dritten Harmonischen sind in Abb. 5.3.7 und Abb. 5.3.8 dargestellt.

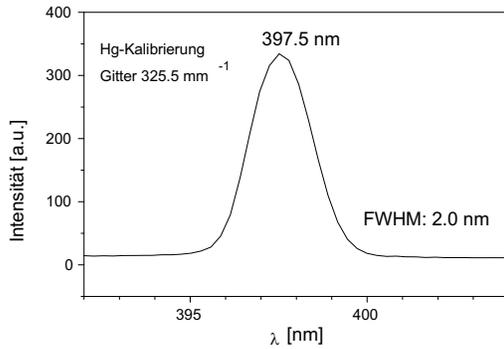


Abbildung 5.3.7: Gemessenes Spektrum der zweiten Harmonischen

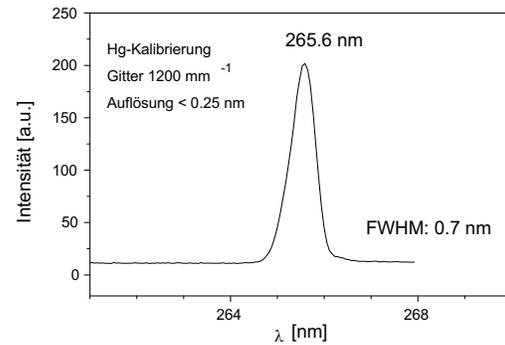


Abbildung 5.3.8: Gemessenes Spektrum der dritten Harmonischen

Wie entsprechend den Erläuterungen im Abschnitt 5.2 zu erwarten war, ist das Spektrum der zweiten Harmonischen breiter als das auf der Basis einer ungeschwächten Fundamentalen berechnete theoretische Spektrum (Abb. 5.3.5). Dies beruht darauf, daß im Falle einer vorliegenden Sättigung gegenüber dem Näherungsfall die schwächeren Spektrenanteile eine zu effiziente Umwandlung erfahren und deshalb angehoben werden. Eine weitere Verbreiterungsursache kann auch die Selbstphasenmodulationen sein. Das bei noch höheren Intensitäten (Größenordnung  $100 \text{ GW/cm}^2$ ) aufgenommene Spektrum der zweiten Harmonischen (Abb. 5.3.9) zeigt mit den typischen Strukturen deutlich die Auswirkungen der Selbstphasenmodulation. Es sind sogar Auswirkungen auf die den Effekt verursachende Fundamentale zu beobachten, was Abb. 5.3.10 zeigt.

Nun stellt sich die Frage, ob das offensichtlich ebenfalls verbreiterte Spektrum der dritten Harmonischen nur auf die Spektrenverbreiterung der zweiten Harmonischen zurückzuführen ist, oder ob im zweiten Kristall ebenfalls verbreiternde Effekte auftreten. Geht man zur theoretischen Berechnung des Spektrums der dritten Harmonischen von dem *gemessenen* Spektrum der zweiten Harmonischen aus, so erhält man nach Ausführung der Faltung das in Abb. 5.3.11 dargestellte Spektrum, welches sehr gut mit dem experimentell ermittelten Spektrum der dritten Harmonischen übereinstimmt (Abb. 5.3.8).

*Das bedeutet, die intensitätsabhängige, zusätzliche Spektrenverbreiterung erfolgt im wesentlichen nur im ersten Kristall.*

Im vorhergehenden Abschnitt 5.2 ist wegen des vergleichsweise geringen Konversionswirkungsgrades im zweiten Kristall die Frage nach einer schlechten Anpassung der spektralen Breiten der Fundamentalen und zweiten Harmonischen gestellt wor-

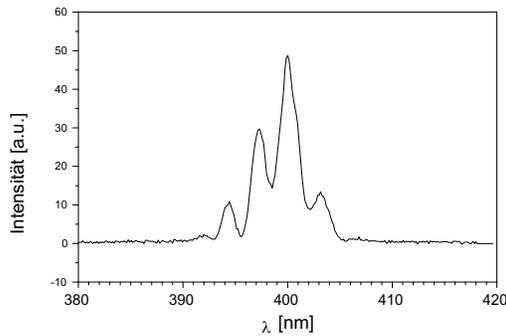


Abbildung 5.3.9: Gemessenes Spektrum der zweiten Harmonischen mit deutlichen Auswirkungen der Selbstphasenmodulation

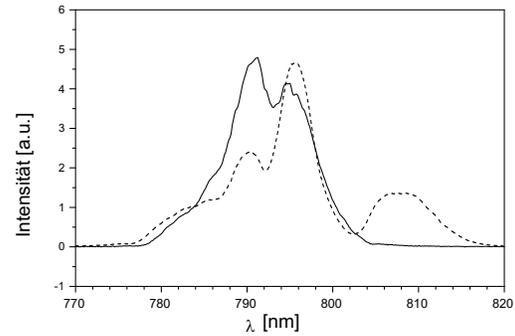


Abbildung 5.3.10: Gemessenes Fundamentalspektrum vor (durchgezogen) und nach (gestrichelt) der Konversion bei einer hohen Anfangsintensität der Fundamentalen

den. Setzt man nun die gemessene spektrale Breite der zweiten Harmonischen von etwa 2 nm an, so erkennt man, daß der Kristall, trotz der für eine einzelne Komponente der zweiten Harmonischen geringen Fundamentalenakzeptanz des Kristalls (siehe Abb. 5.3.4), dann etwa ein Drittel der Bandbreite der Fundamentalen zur Erzeugung der dritten Harmonischen akzeptiert. Das bedeutet, daß die spektrale Fehlanpassung in diesem Fall mäßig ist. Die akzeptierte Fundamentalenbandbreite ist aber dabei nahezu linear von der zur Verfügung stehenden Bandbreite der zweiten Harmonischen abhängig, weshalb die Anpassung im Fall ohne zusätzliche Verbreiterung der zweiten Harmonischen zu überdenken ist.

Da sich die Verbreiterung bis in die vierte Harmonische fortsetzen sollte, sind in Abb. 5.3.13 die berechneten Spektren der vierten Harmonischen für drei Fälle dargestellt:

- *A*: unter der Annahme eines auf eine Halbwertsbreite von 0.6 nm verbreiterten Spektrums der dritten Harmonischen (Beispiel für hohe Intensitäten)
- *B*: unter der Annahme einer allein durch die Kristallakzeptanzen festgelegten Halbwertsbreite des Spektrums der dritten Harmonischen von 0.19 nm (Fall ungeschwächter erzeugender Wellen in allen Kristallen)
- *C*: unter der Annahme einer monochromatischen dritten Harmonischen (idealisiert Fall, für den die spektral kompensierte SFM optimiert wurde)

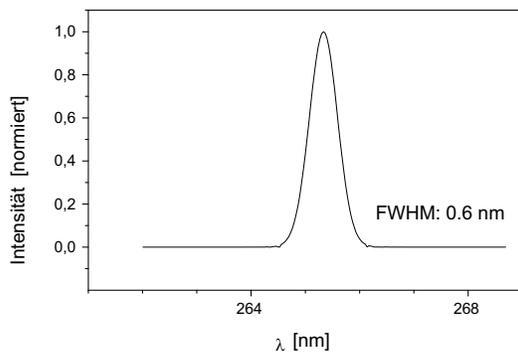


Abbildung 5.3.11: Theoretisches Spektrum der dritten Harmonischen unter Verwendung des gemessenen Spektrums der zweiten Harmonischen

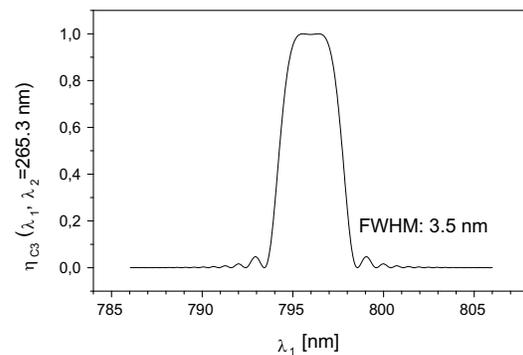


Abbildung 5.3.12: Theoretische Akzeptanz des dritten Kristalls für die spektral kompensierte SFM der Fundamentalen mit ihrer dritten Harmonischen (monochromatisch)

Die resultierenden Halbwertsbreiten des Spektrums der vierten Harmonischen sind im Fall *A* 0,5 nm, im Fall *B* 0,4 nm und im Fall *C* 0,23 nm. Die korrespondierenden zeitliche Längen bandbreitenlimitierter Pulse wären im Fall *A* 116 fs, im Fall *B* 145 fs und im Fall *C* 270 fs.

In Abb. 5.3.14 ist nun das tatsächliche, mit einer CCD-Zeile aufgenommene, Spektrum der vierten Harmonischen abgebildet. Die Position der Zeile entsprach dabei etwa dem Meßpunkt MP4 in dem im Anhang D dargestellten Aufbau. Da die so aufgenommenen Spektren der vierten Harmonischen nicht kalibrierbar waren und auch die Aufnahmesituation geringfügig verschieden waren, sind in allen folgenden Aufnahmen die Meßpunkte über der zugehörigen Pixelnummer aufgetragen. In diesem Abschnitt wird aber noch eine Methode der indirekten Vermessung der so aufgenommenen Spektren der vierten Harmonischen vorgestellt.

Bei Betrachtung der Abb. 5.3.14 fällt sofort die Ähnlichkeit des dort dargestellten Spektrums mit dem berechneten in Abb. 5.3.13 auf. Beide Kurven sind asymmetrisch, d.h. zu längeren Wellenlängen hin ausgezogen, was ein Hinweis auf einen Beitrag der dritten Harmonischen zur spektralen Breite der vierten ist. Die Festlegung der Richtung der wachsenden Wellenlänge geschieht in Abb. 5.3.14 über die relativen Positionen der Fundamentalen und der dritten Harmonischen bzgl. des dargestellten Spektrums.

Die Begründung für die beschriebene Asymmetrie ist in der Auftragung der Konversionseffizienzfunktion des dritten Kristalls über beide am Mischungsprozeß beteiligte

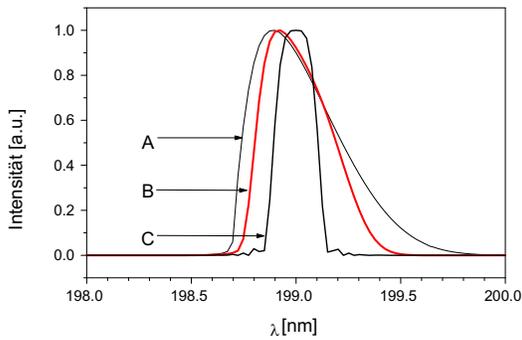


Abbildung 5.3.13: Theoretische Spektren der vierten Harmonischen für die im Text beschriebenen Fälle mit Halbwertsbreiten von A: 0.5 nm, B: 0.4 nm und C: 0.23 nm

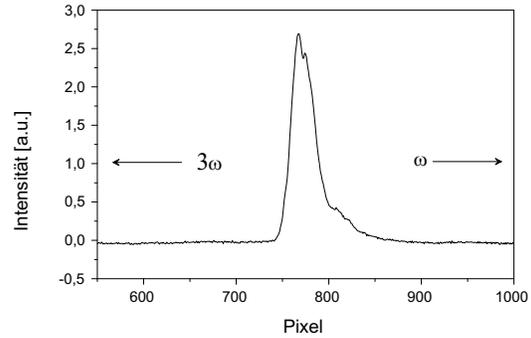


Abbildung 5.3.14: Aufnahme des unkalibrierten Spektrums der vierten Harmonischen mit einer CCD-Zeile nach Abzug des Untergrunds

Wellenlängen in Abb. 5.3.15 zu suchen. Zusätzlich sind an den jeweils den Achsen gegenüberliegenden Seiten der Abbildung die theoretischen in den Mischungsprozeß eingehenden Spektren für den oben diskutierten Fall *B* dargestellt. Wie zu erkennen ist, beteiligen sich bei einer angenommenen Verbreiterung der dritten Harmonischen wesentlich mehr längerwellige zusätzliche Anteile der dritten Harmonischen an dem Mischungsprozeß als kurzwellige, was wiederum mehr längerwellige Anteile im Spektrum der vierten erzeugt.

Die in Abb. 5.3.13 sichtbare Verschiebung des Maximums der Kurven zu kürzeren Wellenlängen der vierten Harmonischen hin wird durch die Verwendung nicht ausreichend optimierter Parameter für die spektral kompensierte SFM der Fundamentalen von 796 nm mit ihrer dritten Harmonischen der Zentralwellenlänge von 265.33 nm verursacht. Die Abb. 5.3.15 zeigt, daß die Konversionseffizienzfunktion bezüglich der Linie leicht verschoben ist, die die Zentralwellenlänge der dritten Harmonischen markiert. Daß eine leichte Fehlanpassung vorliegen muß, kann man auch aus einer genauen Untersuchung der Kurve in Abb. 5.3.12 folgern, da ein sehr schwaches lokales Minimum bei  $\lambda = 796\text{nm}$  auftritt. Das bedeutet, daß die optimale Anpassung für eine bezüglich der Zentralwellenlänge geringfügig kurzwelligere dritte Harmonische erfolgte. Bei einer Verbreiterung des Spektrums der dritten Harmonischen streben deshalb die Maxima in der Abb. 5.3.13 zu dieser optimal angepaßten Wellenlänge.

Wie im folgenden gezeigt wird, kann die räumliche Aufspaltung der spektralen Komponenten der vierten Harmonischen in Kombination mit der noch später diskutierten Modulierbarkeit des Spektrums zu dessen Vermessung genutzt werden.

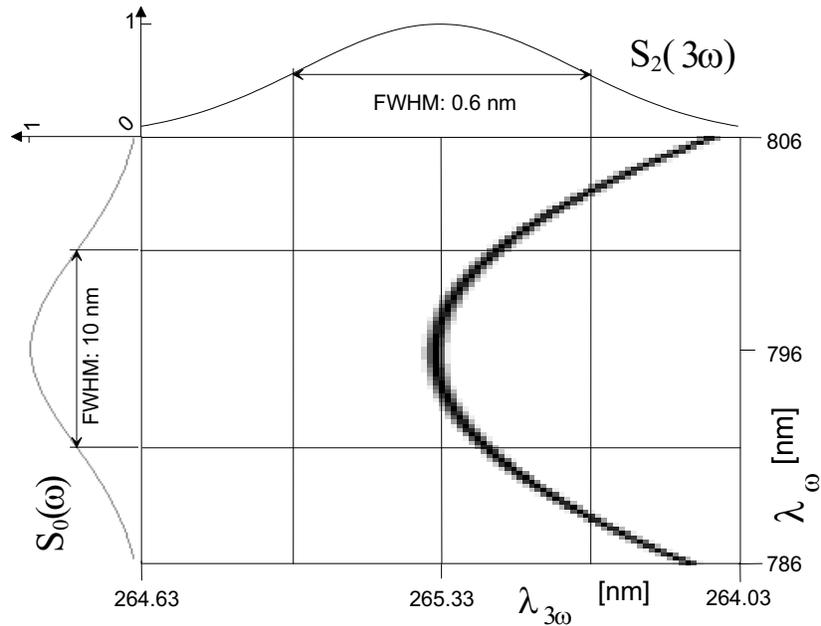


Abbildung 5.3.15: Konversionseffizienzfunktion des dritten Kristalls  $\eta_{C3}(\lambda_{\omega}, \lambda_{3\omega})$  (Bedeutung der Farben: weiß:  $\eta_{C3} = 0$ , schwarz:  $\eta_{C3} = 1$  in a.u.) und die an der SFM beteiligten, normierten Spektren  $S_0(\omega)$  und  $S_2(3\omega)$

Dazu wurde nach dem Einschreiben eines Streifenmusters in den Flüssigkristallmodulator eine weitere Aufnahme des Spektrums der vierten Harmonischen gemacht, welche in Abb. 5.3.17 abgebildet ist. Das Muster, bei welchem jeweils drei aufeinanderfolgende Streifen des SLM abwechselnd ein- und ausgeschaltet wurden, bewirkte eine Modulation des Fundamentalspektrums entsprechend der Abb. 5.3.16. Bei dieser Aufnahme ist zu beachten, daß am linken Rand der durch den verwendeten Strahlteiler generierte, seitlich versetzte Rückreflex das Spektrum stört. Deshalb wurde für die folgenden Betrachtungen nur die rechte Hälfte des Spektrums verwendet.

Durch Abzählen der jeweils der Halbwertsbreite entsprechenden Streifen im IR und im UV erhält man die Information, welcher Anteil des Fundamentalspektrums in das UV konvertiert wurde. Da die Halbwertsbreite des gesamten Fundamentalspektrums mit etwa 9nm gegeben war, betrug die spektrale Breite des in das UV konvertierten IR-Anteils

$$\Delta\lambda_{IR} = (3.6 \pm 0.7\text{nm}) \quad .$$

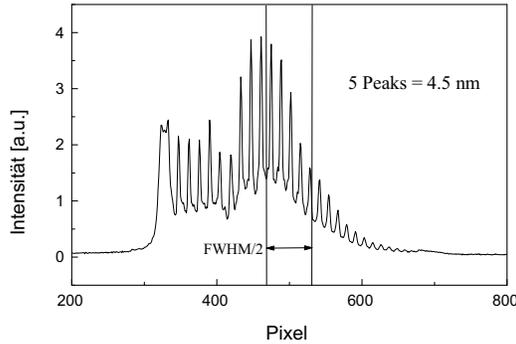


Abbildung 5.3.16: Moduliertes Fundamentalspektrum nach einem Polarisator (die Modulation besteht in einer Rotation der Polarisationssebene)

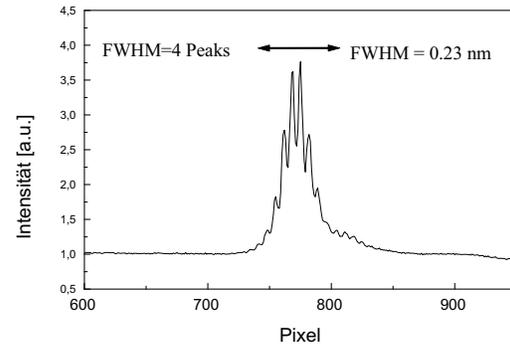


Abbildung 5.3.17: Korrespondierendes  $4\omega$ -Spektrum

Die Wellenlänge einer spektralen Komponente des in der letzten Konversionsstufe umgewandelten IR-Spektrums ist wegen des Energieerhaltungssatzes mit derjenigen der korrespondierenden UV-Komponente durch folgende Beziehung verknüpft:

$$\lambda_{4\omega}(\lambda_\omega) = \frac{1}{\frac{1}{\lambda_\omega} + \frac{1}{\lambda_{3\omega}}} \quad (5.3.1)$$

Wegen der Annahme einer quasimonochromatischen dritten Harmonischen  $\bar{\lambda}_{3\omega}$  gilt für das Verhältnis der spektralen Breiten dann

$$\frac{\Delta\lambda_{4\omega}}{\Delta\lambda_\omega} \approx \frac{d\lambda_{4\omega}}{d\lambda_\omega} \approx \frac{1}{16} . \quad (5.3.2)$$

Man erhält über diese Beziehung und die oben angegebene Halbwertsbreite des konvertierten Fundamentalenanteils dann einen Wert von

$$\Delta\lambda_{UV} \approx (0.23 \pm 0.04\text{nm}) .$$

Dieser Wert ist schmaler als der theoretisch mindestens zu erwartende Wert von 0.4 nm entsprechend dem Fall *B*.

Eine mögliche Ursache für ein scheinbar verschmälertes Spektrum kann aber eine Frequenzmodulation entweder in den Fundamentalenpulsen oder in den Pulsen der dritten Harmonischen sein. Um diese Möglichkeit zu überprüfen, wurde das Spektrum der vierten Harmonischen in Abhängigkeit vom Delay zwischen der Fundamentalen und der dritten Harmonischen aufgenommen. Das Ergebnis der Messungen

ist in Abb. 5.3.18 dargestellt. Offensichtlich tritt eine Verschiebung des Spektrums der vierten Harmonischen in Abhängigkeit vom erwähnten Delay auf. Um sicherzustellen, daß das Spektrum nicht infolge einer Strahlrichtungsänderung der dritten Harmonischen einfach nur eine seitliche Ablenkung erfuhr, wurde zusätzlich noch ein Streifenmuster in das Fundamentalspektrum eingeschrieben, welches dann im UV zur Festlegung von Positionen konstanter Wellenlänge diente.

Die Abb. 5.3.19 zeigt aber eindeutig, daß das UV-Spektrum gegenüber dem feststehenden Streifenmuster verschoben wird. Setzt man das in Abb. 5.3.19 enthaltene, zeitlich verschmierte Spektrum über das angegebene Streifenmuster mit dem in Abb. 5.3.16 vermessenen UV-Spektrum ins Verhältnis, so erhält man einen durch die vierte Harmonische überstrichenen Spektralbereich von

$$\Delta\lambda'_{UV} = (0.43 \pm 0.10) \text{ nm} ,$$

der im Bereich der theoretisch erwarteten spektralen Breiten liegt.

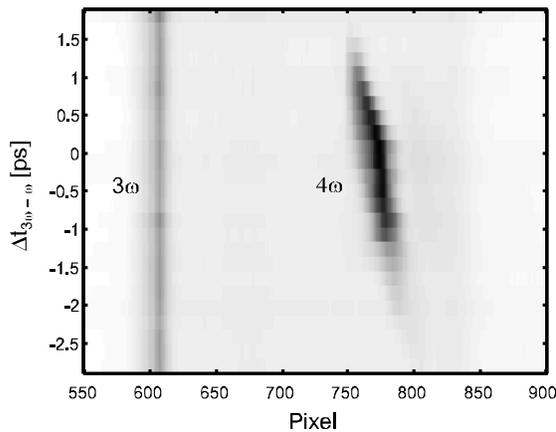


Abbildung 5.3.18: Aufnahme des Spektrums der vierten Harmonischen in Abhängigkeit vom Delay zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalen

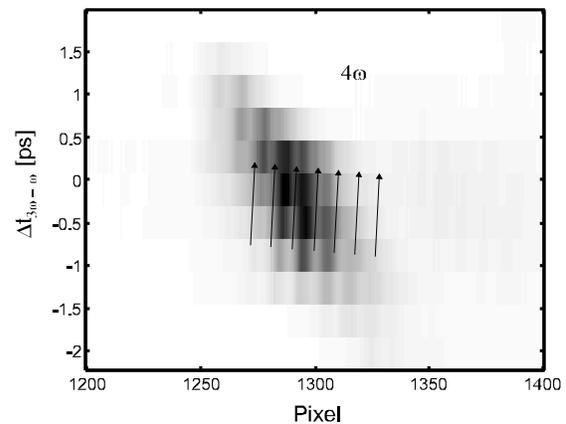


Abbildung 5.3.19: Detailaufnahme der gleichen Abhängigkeit für ein mit Streifen modulierte Fundamentalspektrum (Muster: 5 Streifen an, 5 aus,..)

Aus solchen Aufnahmen, wie sie in Abb. 5.3.18 und Abb. 5.3.19 dargestellt sind, lassen sich Informationen über die zeitliche Verläufe, etwaige Frequenzmodulationen oder Pulsfrontverkippen der beteiligten Pulse gewinnen. Betrachtet man die Abbildung Abb. 5.3.18, so erkennt man, daß bei einem *späteren* Eintreffen des Pulses der dritten Harmonischen im Kristall bezüglich der Fundamentalen (positives Delay entsprechend den Angaben in der Abbildung) kurzwelligere Komponenten der vierten Harmonischen erzeugt werden. Dies bedeutet, daß entweder die Pulse der

dritten Harmonischen einen negativen linearen Chirpparameter entsprechend der Definition 2.1.10 besaßen oder aber die Pulse der Fundamentalen einen positiven. Da die bei dieser Messung verwendeten Pulse vor Eintritt in den Aufbau nicht frequenzmoduliert waren (Kompressorposition für kürzeste Pulse), kann wegen der normalen Dispersion sämtlicher verwendeter optischer Komponenten nur die zweite Variante in Betracht kommen.

Deswegen muß eine positive Frequenzmodulation des Fundamentalimpulses im dritten Kristall vorgelegen haben, d.h. seine längerwelligen Komponenten trafen früher ein als die kurzwelligeren.

In [18] wird, wie schon einmal erwähnt, auf der Basis des FERMATschen Prinzips die Feststellung getroffen, daß in einem 4f-Aufbau unter Verwendung von Gittern alle Frequenzkomponenten zum selben Zeitpunkt in der FOURIERebene eintreffen, also keine zusätzliche Frequenzmodulation durch den Aufbau eingeführt wird. Diese Argumentation ist aber wegen der Verwendung dispersiver Medien in einem Aufbau mit Prismen nicht mehr haltbar. Deshalb wurde eine Abschätzung der durch die Prismensequenz eingeführten Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) durchgeführt. Dazu wurden der optischen Weg der spektralen Komponenten vom Eintrittspunkt in die Prismen bis zu einer Ebene senkrecht zur Strahlrichtung der Zentralwellenlänge formuliert, dieser in eine Phasendifferenz der jeweiligen spektralen Komponente bzgl. der Zentralwellenlänge umgerechnet und abschließen die sich ergebende Funktion zweimal bei der Zentralwellenlänge nach der Frequenz abgeleitet. Anhand des sich ergebenden Wertes von ca.  $+60000 \text{ fs}^2$  konnte berechnet werden, daß ein Fundamentalimpuls der Länge 100 fs beim Durchgang durch die Prismensequenz auf eine Länge von etwa 1.6 ps gestreckt wird. Dieser Wert ist wegen der schlecht durchzuführenden Messung der realen Eintrittsposition des Strahls in die Prismen und wegen der zum Zeitpunkt der Messung nicht überprüfbar, das Ergebnis aber wesentlich bestimmenden Anfangspulslänge mit einem großen Fehler verbunden (50%).

Dieser Wert liegt in der Größenordnung der zeitlichen Dispersion des Spektrums in Abb. 5.3.16. Dabei ist allerdings zu beachten, daß bei den verschiedenen, oft stark schwankenden Intensitäten in der dritten Harmonischen prinzipiell bandbreitenlimitierte Pulse mit Längen zwischen 540 fs (0.19 nm im Fall *B*) und 170 fs (0.6 nm im Fall *A*) aufgetreten sein können.

Öfter durchgeführte Korrelationen zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalimpulsen über die integrale Vermessung der gesamten erzeugten vierten Harmonischen mittels der SiC-Photodiode in Abhängigkeit vom Delay zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalimpulsen ergaben Halbwertsbreiten im Bereich zwischen 1.5 und 2.4 ps, je nach Justagezustand des Aufbaus und Betriebszustand des

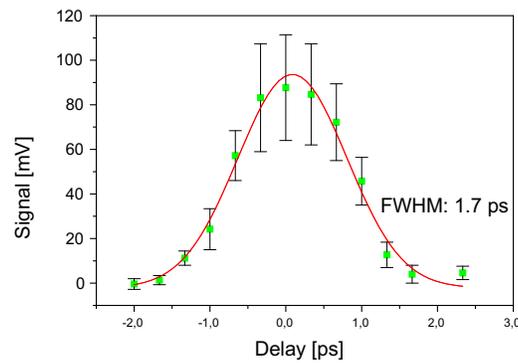


Abbildung 5.3.20: Korrelation der Pulse der 3. Harmonischen und der Fundamentalenpulse durch die Messung der Gesamtintensität der bei der letzten SFM erzeugten vierten Harmonischen mit der SiC-Diode

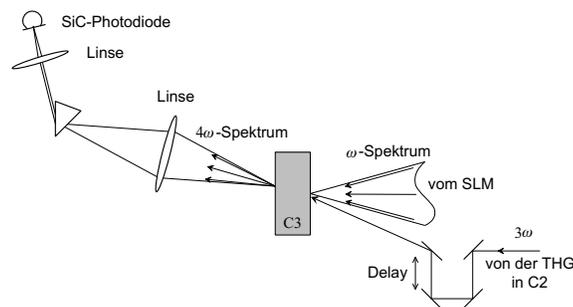


Abbildung 5.3.21: Zur Messung der in Abb. 5.3.20 dargestellten Abhängigkeit verwendeter Aufbau

Lasers (z.T. erhebliche Schwankungen in den Pulsenergien und in der Strahlposition, was durch die Verwendung eines Periskopes mit einer Länge  $> 10$  m verstärkt wurde). Ein Beispiel für eine solche Messung ist in Abb. 5.3.20 angegeben.

Bei dieser Korrelation ist allerdings zu beachten, daß die Korrelationsfunktion durch die gegenüber den Bandbreiten der beteiligten Pulse eingeschränkten spektralen Akzeptanzbreiten des Kristalls modifiziert sein kann. Im Falle ungechirpter Pulse kann gezeigt werden, daß die Messung die gleiche Korrelationsbreite liefert wie eine Messung ohne den Einfluß der eingeschränkten Akzeptanz. Für gechirpte Pulse ist aber die meßbare Breite der Korrelationsfunktion nur als untere Grenze des tatsächlichen Wertes betrachtbar.

Der oben vermutete Wert für die Pulsverlängerung infolge einer Frequenzmodulation

ist somit mit den Messungen im Rahmen der Fehler vereinbar.

Um die zeitliche Verteilung des Spektrums zu beseitigen, wurde auf Grund dieser Erkenntnisse doch noch ein Gitter beschafft und ein zweiter Aufbau mit diesem realisiert. Die Charakterisierung dieses Aufbaus erfolgt in Abschnitt 6.1.

Die in diesem Abschnitt dargestellten Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- *Das Spektrum der zweiten Harmonischen ist breiter als theoretisch unter der Näherung einer ungeschwächten Fundamentalen zu erwarten war. Diese Verbreiterung ist intensitätsabhängig.*
- *Das Spektrum der dritten Harmonischen ist infolgedessen auch verbreitert.*
- *Die dritte Harmonische leistet in jedem Fall einen wesentlichen Beitrag zur spektralen Breite der vierten Harmonischen ( $\approx 50\%$ ) und verursacht dessen asymmetrische Form.*
- *Prinzipiell sind mit dem beschriebenen Aufbau spektrale Komponenten bei der vierten Harmonischen über einen spektralen Bereich von etwa 0.4 nm erzeugbar.*
- *Diese spektrale Breite entspricht etwa derjenigen eines 145 fs langen, bandbreitenlimitierten Puls.*
- *Dieses Spektrum ist jedoch zeitlich verschmiert, so daß für ein bestimmtes Delay zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalen maximal eine spektrale Halbwertsbreite von 0.22 nm erhalten werden kann.*
- *Diese spektrale Breite entspricht in etwa derjenigen eines mindestens 260 fs langen, bandbreitenlimitierten Pulses.*
- *Ursache der zeitlichen Verschmierung ist vermutlich eine durch die verwendete Prismensequenz hervorgerufene positive lineare Frequenzmodulation des Fundamentalimpulses.*
- *Prinzipiell ist es möglich, mit dem Aufbau indirekte spektrometrische Vermessungen im Bereich von 197 nm durchzuführen, indem man Kalibrierungsmarken in ein infrarotes Spektrum setzt, dieses in das Ultraviolette konvertiert und mit dem zu vermessenden Spektrum vergleicht. Die Auflösung beträgt dabei mindestens 0.05 nm.*

## 5.4 Modulierbarkeit der Spektren

Im Anschluß an die Vermessung der Spektren wurde ebenfalls mittels der CCD-Zeile untersucht, welche in das Streifendisplay eingeschriebene Strukturen noch sicher im erzeugten Spektrum der vierten Harmonischen aufgelöst werden können. Die Abbildungen 5.4.1 und 5.4.2 zeigen zwei in das Streifendisplay eingeschriebene Muster mit einer Strukturbreite von 2 bzw. 3 Streifen, die Abbildungen 5.4.3 und 5.4.5 die damit modulierten IR-Spektren und letztendlich die Abbildungen 5.4.4 und 5.4.6 die damit erzeugten UV-Spektren. Unter den in den Abbildungen angegebenen Zuständen "transparent" bzw. "undurchlässig" sind eigentlich die Zustände "Drehung der Polarisationssebene um 90°" bzw. "keine Drehung der Polarisationssebene" zu verstehen. Es wurden die kürzeren Bezeichnungen gewählt, da die Auswirkungen der analogen Zustände die gleichen wären, bis auf den Unterschied, daß zur Sichtbarmachung der tatsächlich im IR vorliegenden Modulation ein Analysator verwendet werden muß.

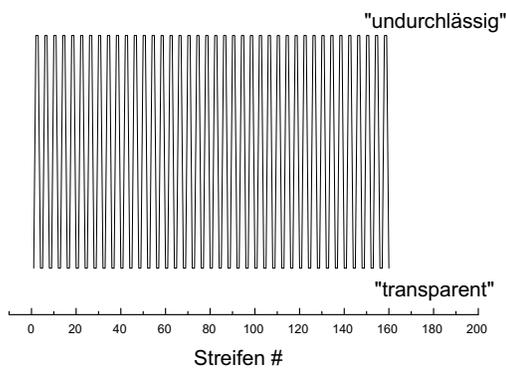


Abbildung 5.4.1: In das SLM eingeschriebenes Streifenmuster  $F1$ : 2 Streifen ein, 2 Streifen aus

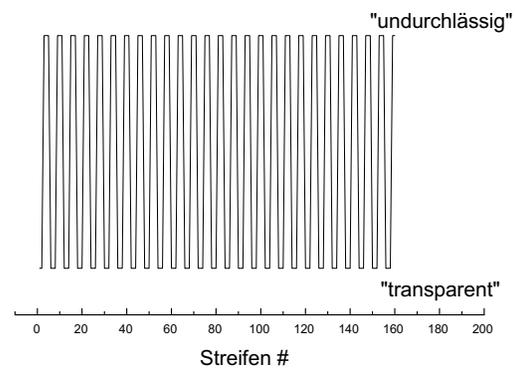


Abbildung 5.4.2: In das SLM eingeschriebenes Streifenmuster  $F2$ : 3 Streifen ein, 3 Streifen aus

Bei den Aufnahmen des IR-Spektrums, außer Abb. 5.4.7, ist auch wieder zu berücksichtigen, daß die Störungen am linken Rand durch den Rückreflex des Strahlteilers (siehe Abb. 6.1.1) verursacht wurden, der in dem hier beschriebenen Zustand des Aufbaus noch zum Einsatz kam. Die Störung setzt sich allerdings wegen einer fehlenden zeitlichen Anpassung des Rückreflexes an die Pulse der dritten Harmonischen nicht in das UV fort. Das Fundamentalspektrum in Abb. 5.4.7 wurde mit dem noch im weiteren beschriebenen Aufbau mit Gitter und ohne Strahlteiler aufgenommen, weshalb die Störungen auch hier fehlen.

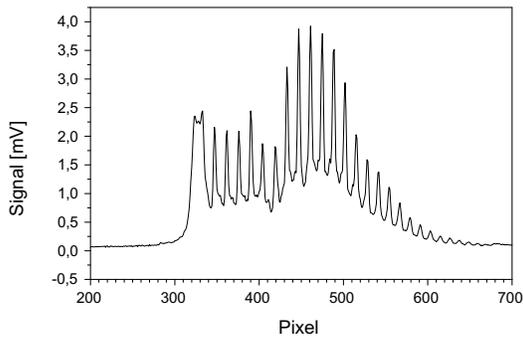


Abbildung 5.4.3: Das mit dem Muster  $F2$  modulierte IR-Spektrum

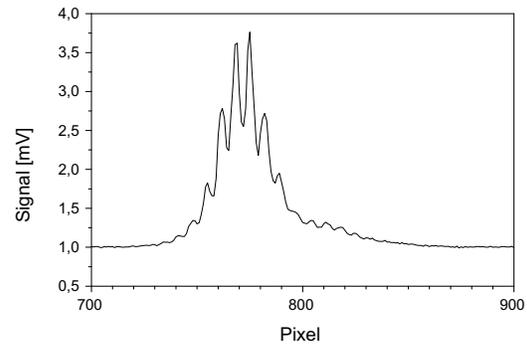


Abbildung 5.4.4: Das mit dem Muster  $F2$  erzeugte UV-Spektrum

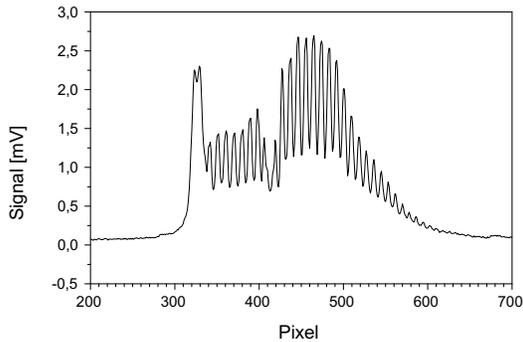


Abbildung 5.4.5: Das mit dem Muster  $F1$  modulierte IR-Spektrum

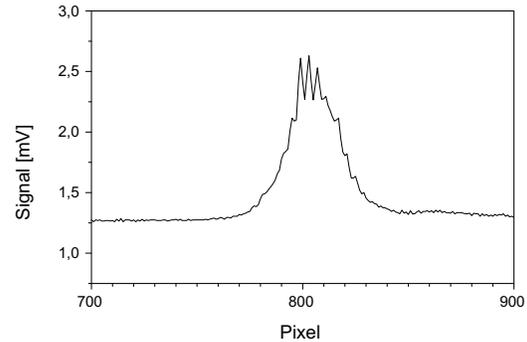


Abbildung 5.4.6: Das mit dem Muster  $F1$  erzeugte UV-Spektrum (feinere Strukturen waren nicht auflösbar)

Das in 5.4.6 abgebildete Spektrum stellt die feinste im UV erzeugbare Strukturierung dar. Wie aber in Abb. 5.4.7 gezeigt wird, ist eine noch feinere Strukturierung des Fundamentalspektrums möglich. Der Kontrast der Modulationen im IR-Spektrum hängt, neben der Qualität der Abbildung der Spektren auf der CCD, auch vom Auslöschungsverhältnis des verwendeten Polarisators ab.

Daß im Spektrum der vierten Harmonischen eine geringere spektrale Auflösung als in dem der Fundamentalenspektrum vorliegt, ist auf eine Faltung des Fundamentalspektrums mit dem endlich breiten Spektrum der dritten Harmonischen bei der SFM zurückzuführen. Zur Bestimmung der durch den Mischungsprozeß vorgegebenen theoretischen Begrenzung der spektralen Auflösung wurde das Spektrum der vierten Har-

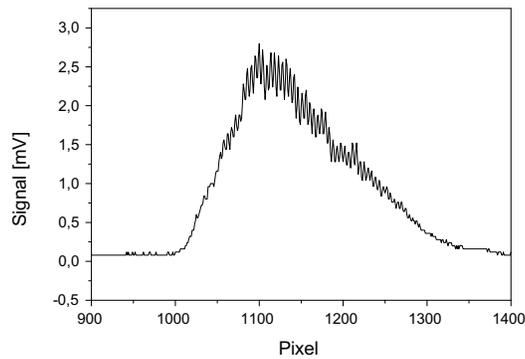


Abbildung 5.4.7: Die Modulation mit dem Muster  $F0$  (1 Streifen ein, 1 Streifen aus) ist nur noch im IR-Spektrum auflösbar

monischen unter der Annahme eines nur aus zwei monochromatischen Komponenten bestehenden Fundamentalspektrums berechnet. Wird der spektrale Abstand dieser beiden Komponenten so gewählt, daß er demjenigen der Maxima entspricht, die im Fundamentalspektrum bei einer Modulation mit dem Muster  $F0$  entstehen, so erhält man das Spektrum in Abb. 5.4.8. Entspricht er aber dem sich bei der Modulation mit  $F1$  ergebenden Maximaabstand, erhält man das in Abb. 5.4.9 dargestellte Spektrum. Es ist in diesen Abbildungen deutlich zu erkennen, daß im ersten Fall noch eine Auflösung der jeweils den einzelnen Fundamentalkomponenten entsprechenden Teilen des Spektrums der vierten Harmonischen möglich ist, im zweiten jedoch nicht. Dies entspricht genau den experimentellen Ergebnissen.

Wird der Strahl eines kollimierten Justagelasers durch das *abgeschaltete* Flüssigkristallstreifendisplay gesendet (d.h. alle Streifen drehen den Polarisationszustand des einfallenden Lichtes um  $90^\circ$ ), ist immer ein räumliches Beugungsbild beobachtbar. Dies läßt die Vermutung zu, daß der Streifenmodulator auch in diesem Zustand, infolge des Fehlens der transparenten ITO<sup>19</sup>-Elektrodenschicht im Bereich zwischen den schaltbaren Streifen (gaps), die Eigenschaften eines Gitters (Phasengitters) besitzt. Die Auswirkungen dieser Modulation konnten bei den in diesem Abschnitt beschriebenen Messungen nicht beobachtet werden. Mögliche Effekte auf die *zeitliche und räumliche* Struktur der erzeugten Pulse sind allerdings nicht auszuschließen.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts sind:

- Die feinsten mit dem Streifendisplay erzeugbaren Strukturen sind in den Fun-

---

<sup>19</sup>ITO - indium tin oxide

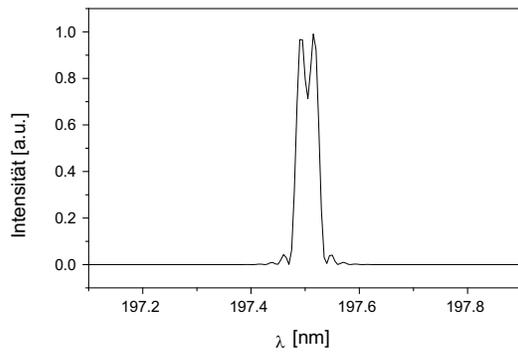


Abbildung 5.4.8: Simulation des UV-Spektrums bei Verwendung nur zweier monochromatischer Fundamentalkomponenten mit einem spektralen Abstand wie demjenigen, den die Fundamentalenmaxima bei einer Modulation mit dem Muster  $F0$  besäßen

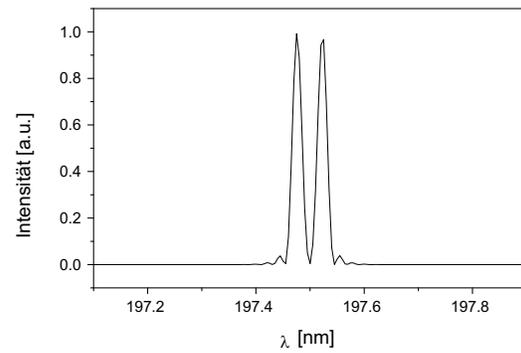


Abbildung 5.4.9: Eine entsprechende Berechnung für das Muster  $F1$

*damentalenspektren noch nachweisbar. Sie haben dort eine spektrale Breite von etwa 0.2 nm.*

- *Im Spektrum der vierten Harmonischen liegt eine geringere Auflösung dieser Strukturen vor, was auf die Mischung des Fundamentalspektrums mit dem Spektrum der dritten Harmonischen zurückzuführen ist. Theoretischen Simulationen der Verringerung der Auflösung infolge des Mischungsprozesses stimmen mit den experimentellen Ergebnissen überein.*
- *Auch bei einem abgeschalteten Display ist eine Modulationswirkung durch die Abstände zwischen den schaltbaren Streifen nachweisbar, die vermutlich ein Phasengitter bilden.*

## 5.5 Zeitlicher Verlauf der erzeugten Pulse

Die Untersuchung der Anwendbarkeit mehrerer im Abschnitt 3 erwähnter Methoden zur Korrelation der Pulse der vierten Harmonischen mit den Fundamentalenpulsen, wie Zweiphotonenionisation, Plasmaschalter und Differenzfrequenzerzeugung, zeigte, daß sich nur das letzte Verfahren mit einem vertretbaren experimentellen Aufwand realisieren ließ und eine ausreichend gute zeitliche Charakterisierung der

UV-Pulse versprach. Daß dieses Verfahren für die Zwecke dieser Arbeit geeignet sein sollte, zeigt auch die Tatsache, daß in sämtlichen im Abschnitt 4.1 zitierten Arbeiten zur Erzeugung kurzer UV-Pulse unterhalb von 200 nm dieses Verfahren zur zeitlichen Charakterisierung der generierten Pulse angewendet wurde.

Obwohl zu erwarten war, daß der an dieser Stelle beschriebene Aufbau infolge der durch die Prismensequenz eingeführten Frequenzmodulation nicht zur Erzeugung der kürzesten prinzipiell mit dem verwendeten Konversionsschema erreichbaren Pulse geeignet ist, wurde er zur Überprüfung und Optimierung des Korrelationsverfahrens genutzt.

Die Korrelation geschah entsprechend dem in Abb. 3.0.3 dargestellten Schema, wobei die zu korrelierenden Laserstrahlen zunächst mittels eines Quarzplättchens kollinear gemacht wurden und anschließend eine Fokussierung der Strahlen mittels einer Sammellinse der Brennweite 210 mm in einen 300  $\mu\text{m}$  dicken BBO-Kristall erfolgte.

Zum Zeitpunkt dieser Untersuchung war die bei der Verwendung einfacher Linsen vorliegende, bereits im im Abschnitt 2.4 diskutierte Möglichkeit einer Pulsfrontverkrümmung noch nicht berücksichtigt worden. Eine spätere Abschätzung des Effektes entsprechend der Beziehung 2.4.2 zeigte, daß für die verwendete Fokussierungssituation die auf der optischen Achse liegenden Komponenten der Pulsfront der vierten Harmonischen den Randkomponenten um etwa 234 fs hinterherlaufen, bei der Fundamentalen jedoch nur um etwa 4 fs. Somit kann höchstens eine zeitliche Verschmierung des Signals über 230 fs vorgelegen haben.

Die Abbildung 5.5.1 zeigt einen typischen Verlauf des mit der beschriebenen Methode zu gewinnenden Korrelationssignals. Die Pulse sind, wie auf Grund der festgestellten Frequenzmodulation der Fundamentalen zu erwarten war, wesentlich länger als ein dem vorhandenen Spektrum entsprechender, bandbreitenlimitierter Puls.

Die gut erkennbare Doppelpulsstruktur ist möglicherweise auf eine komplizierte Wechselwirkung des erwähnten, permanent vorliegenden Phasengitters mit der diskutierten Frequenzmodulation der Fundamentalpulse zurückzuführen.

Da an dieser Stelle nur die Anwendbarkeit des Korrelationsverfahrens auf der Basis der Differenzfrequenzerzeugung untersucht werden sollte, wurden keine weiteren Schritte zur Klärung der Ursachen für das Auftreten dieser Struktur unternommen. Interessant war allerdings die Tatsache, daß durch das Einschreiben eines Musters (jeder 4. Streifen "undurchlässig") in den Streifenmodulator eine Veränderung der Doppelpulsstruktur entsprechend Abb. 5.5.4 erzeugt werden konnte.

Die feinsten in den Korrelationskurven erkennbaren Strukturen hatten Halbwertsbreiten von etwa 800 fs, wobei die zur Korrelation verwendeten Fundamentalpul-

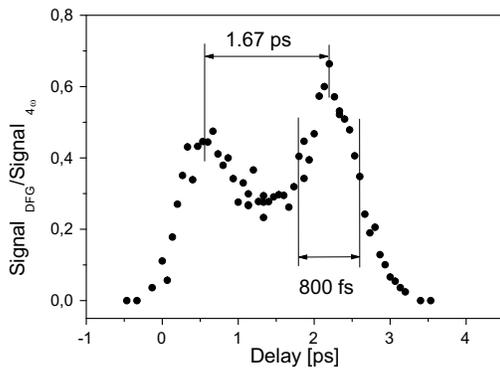


Abbildung 5.5.1: Korrelation der Pulse der vierten Harmonischen mit den Fundamentalenpulsen mittels DFG (alle Streifen auf Transmission geschaltet)

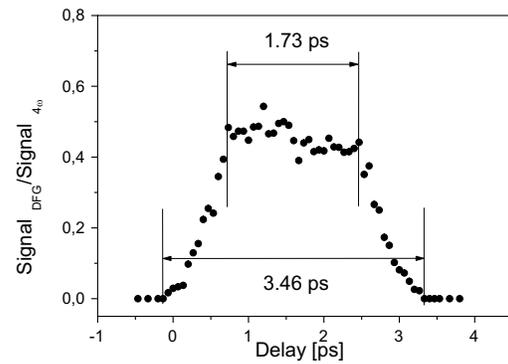


Abbildung 5.5.2: Korrelation der Pulse der vierten Harmonischen mit den Fundamentalenpulsen mittels DFG (jeder 4. Streifen abgeschaltet)

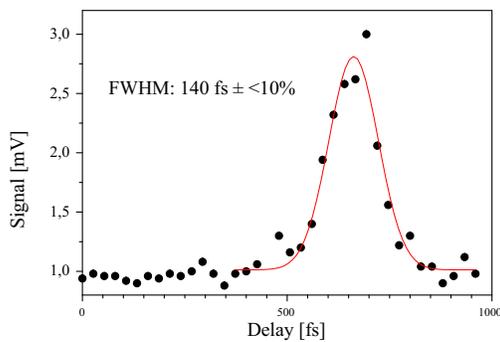


Abbildung 5.5.3: Zweiphotonenleitfähigkeitsautokorrelation der Fundamentalenpulse an einer GaAs-Photodiode (Intensitätsautokorrelation) mit einer resultierenden Pulslänge von  $(99 \pm 10)$  fs

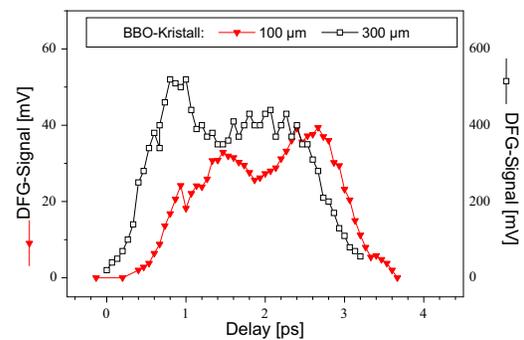


Abbildung 5.5.4: Korrelation der Pulse der vierten Harmonischen mit den Fundamentalenpulsen bei Verwendung eines  $100 \mu\text{m}$  bzw. eines  $300 \mu\text{m}$  dicken BBO-Kristalls

se eine zeitliche Halbwertsbreite von etwa 100 fs hatten. Um auszuschließen, daß dies auf eine spektrale Einengung durch die begrenzte Akzeptanz des zur Differenzfrequenzerzeugung verwendeten BBO-Kristalls zurückzuführen ist, wurden hintereinander je eine Korrelationsfunktion mit einem  $100 \mu\text{m}$  und einem  $300 \mu\text{m}$  dicken

Kristall durchgeführt. Es zeigte sich, daß die Ausbeute des Differenzfrequenzsignals bei Anwendung des dünneren Kristalls, wie entsprechend der Beziehung 2.3.1 zu erwarten ist, etwa ein Neuntel desjenigen bei Verwendung des dickeren Kristalls betrug. Es waren aber keine neuen Strukturen erkennbar, die auf eine Erhöhung der Auflösung schließen lassen konnte. Wegen der Gültigkeit der Beziehung 2.3.1 dürfte auch keine die Auflösung verringernde Sättigung vorgelegen haben.

Über einen Intensitätsbereich der Fundamentalen im Fokus von etwa

$$1 \text{ bis } 40 \text{ GW/cm}^2$$

konnten keine Auswirkungen einer Sättigung festgestellt werden.

Die Intensitäten der vierten Harmonischen im Fokus lagen dabei im Bereich von

$$1.5 \text{ bis } 6 \text{ GW/cm}^2 .$$

Die Größe der Foki wurde mittels einer kalibrierten Kamera mit Szintillator (beam profiler) ermittelt.

## 6 Charakterisierung des Aufbaus mit Gittern

### 6.1 Erläuterungen zum Einsatz eines Gitters

Entsprechend den Ergebnissen des Abschnitts 5.3 war zu vermuten, daß durch die Anwendung der Prismensequenz eine starke Frequenzmodulation der an der letzten Frequenzmischungsstufe beteiligten Fundamentalimpulse verursacht wurde. Diese ließ die generierten Pulse der vierten Harmonischen gegenüber bandbreitenlimitierten Pulsen etwa um den Faktor 10 länger erscheinen.

Prinzipiell wäre eine nachträgliche Kompression der Pulse möglich gewesen, doch wären durch den Kompressor vorraussichtlich erhebliche Verluste an Energie in der vierten Harmonischen verursacht worden ( $\approx 50\%$ ).

Entsprechend den Erläuterungen in Abschnitt 2.2 und 5.3 sollte aber beim Einsatz eines Gitters als dispersivem Element überhaupt keine Frequenzmodulation auftreten.

Aus diesem Grund wurde der Aufbau für den Einsatz eines Gitters umgerüstet und ein solches beschafft. Es sind allerdings nur spezielle Gitter mit sehr hohen Zerstörschwellen geeignet, wie z.B. die hochwertigen, goldbeschichteten Gitter die für Hochleistungspulskompressoren vorgesehen sind.

Wie im Abschnitt 5.3 gezeigt wurde, erfüllte die Geometrie des Aufbaus mit der Prismensequenz offenbar die Bedingungen für eine spektral kompensierte SFM, so daß ein Gitter ausgewählt wurde, welches nur einen geringen Anpassungsaufwand erforderte.

Bei diesem handelte es sich um ein goldbeschichtetes, holographisch hergestelltes Gitter mit 1200 Linien/mm, welches eine hohe Effizienz (bis zu 90% in LITTROW-Anordnung) in der -1. Ordnung und eine etwa *doppelt so hohe Winkeldispersion* wie die Prismensequenz bieten sollte. Um die Anpassung der Winkelspektren weiter zu gewährleisten, mußte deshalb im Aufbau der Achromat L1 mit einer Brennweite von 400 mm durch einen solchen mit einer Brennweite von 200 mm (siehe Anhang D.0.5) ersetzt werden. Diese Anpassung durch Austausch des Achromaten soll mit Abb. 6.1.1 verdeutlicht werden. Die Winkeldispersion eines Gitters in der  $m$ . Ordnung ist gegeben durch

$$D_{\text{Gitter},m} = \frac{d\beta_m}{d\lambda} = \frac{-m}{d \cdot \cos \beta_m}, \quad (6.1.1)$$

wobei  $\beta_m$  der Winkel der Beugungsordnung bzgl. der Gitternormalen,  $m$  die Beugungsordnung und  $d$  die Gitterkonstante ist. Der Einfallswinkel  $\alpha$  und der Winkel einer Beugungsordnung  $\beta_m$  sind bei einem Gitter bekanntlich über die Beziehung

$$\sin \alpha + \sin \beta_m = -m\lambda/d$$

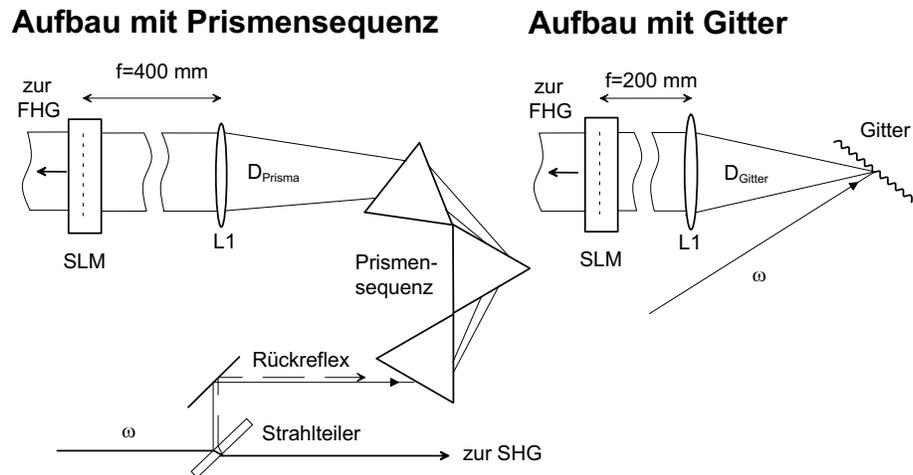


Abbildung 6.1.1: Vergleich der Erzeugung der Winkeldispersion der Fundamentalen mit der Prismensequenz und mit dem Gitter

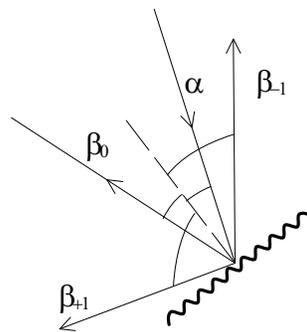


Abbildung 6.1.2: Verhältnisse bei einem Reflexionsgitter

verknüpft. Für einen Einfallswinkel von  $\alpha = 6.4^\circ$  resultiert daraus eine Winkeldispersion von

$$D_{\text{Gitter},m} \approx 2.2 \text{ mRad/nm}$$

in der -1. Ordnung des Gitters. Die mit diesem Einfallswinkel erzielte Winkeldispersion ist exakt doppelt so groß wie diejenige, die mit der Prismensequenz erzielt wurde. Mit einem dermaßen gewählten Gittereinfallswinkel und nach Austausch des Achromaten L1 aus dem Prismenaufbau (siehe Anhang D) durch einen solchen der halben Brennweite, konnte die Prismensequenz durch das Gitter ersetzt werden, ohne daß sich die Winkeldispersion der Fundamentalen auf dem letzten Kristall gegenüber dem Aufbau mit Prismensequenz änderte.

## 6.2 Spektrum der vierten Harmonischen

Durch die Verwendung des Gitters statt der Prismensequenz ergab sich ein wesentlich breiteres Spektrum der vierten Harmonischen. Eine Vermessung der modulierten Spektren in den Abbildungen 6.2.1 und 6.2.2, analog der im Abschnitt 5.3 beschriebenen, ergab eine spektrale Breite von

$$\Delta\lambda_{UV} \approx (0.46 \pm 0.10\text{nm}) .$$

Dieser Wert liegt zwischen den in Abb. 5.3.13 vorausgesagten Werten für die Fälle *A* und *B*.

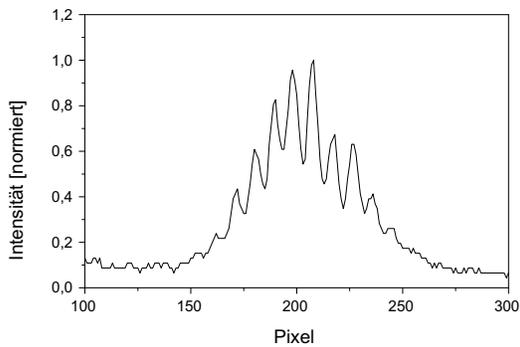


Abbildung 6.2.1: Aufnahme des modulierten Spektrums der vierten Harmonischen (Muster: 5 Streifen an, 5 aus,..)

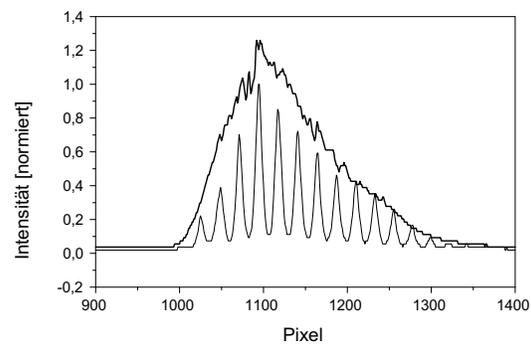


Abbildung 6.2.2: Aufnahme des Spektrums des unmodulierten (dicke Linie) und des modulierten Fundamentalspektrums (dünne Linie)

Um zu untersuchen, ob durch den Einsatz des Gitters anstatt der Prismensequenz das Problem der Frequenzmodulation gelöst werden konnte, oder ob evtl. andere optische Komponenten frequenzmodulierend wirken, wurden wiederum Aufnahmen eines unmodulierten und eines modulierten Spektrums der vierten Harmonischen in Abhängigkeit vom Delay zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalen aufgenommen (Abb. 6.2.3 und Abb. 6.2.4).

Es zeigt sich, daß die Breite des Spektrums nahezu unabhängig vom vorliegenden Delay ist. Dies bedeutet, daß zu jedem Zeitpunkt alle Frequenzkomponenten der beiden beteiligten Pulse vorlagen und ein weites Spektrum erzeugen konnten. Erstaunlicherweise ergab sich eine starke Verkippung der durch die eingeschriebenen Modulation erzeugten Spuren. Eine Überprüfung zeigte, daß keine Änderung der

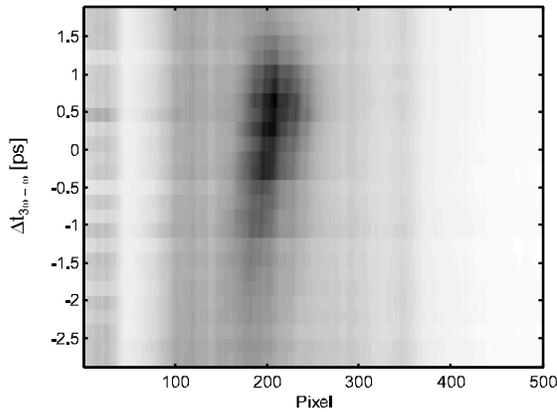


Abbildung 6.2.3: Aufnahme des Spektrums der vierten Harmonischen in Abhängigkeit vom Delay zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalen

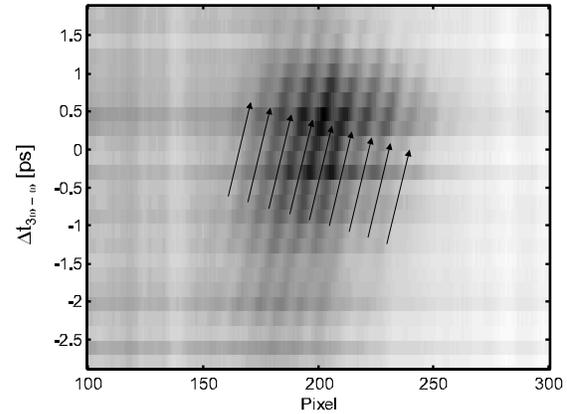


Abbildung 6.2.4: Detailaufnahme des Spektrums der vierten Harmonischen in Abhängigkeit vom Delay zwischen der dritten Harmonischen und der Fundamentalen für ein mit Streifen moduliertes Fundamentalspektrum (Muster: 5 Streifen an, 5 aus,...)

Strahlrichtung der dritten Harmonischen in Abhängigkeit von der Delayposition vorlag. Eine solche Strahlrichtungsänderung, z.B. infolge einer schlecht justierten Verzögerungsstrecke, hätte eine mögliche Ursache für die Verkippung sein können.

Wie in Abschnitt 2.4 erläutert, liegt im letzten Mischungskristall immer eine Pulsfrontverkippung infolge der Erzeugung der benötigten Winkeldispersion vor. Dies bedeutet, daß die verschiedenen räumlichen Anteile des Strahlprofils der Fundamentalen zu verschiedenen Zeitpunkten im Kristall eintreffen und die Anteile der vierten Harmonischen generieren. Somit tritt eine räumliche Verschiebung des Ortes der Generierung der vierten Harmonischen auf, welche sich entsprechend der Art der Abbildung in einer Verschiebung des Bildes des Spektrums auf der CCD widerspiegeln kann. Eine grobe Abschätzung des Effekts aus den in Abb. 6.2.3 und Abb. 6.2.4 enthaltenen Daten und eine Umrechnung der Pulsfrontverkippung in eine vor dem Kristall vorliegende Winkeldispersion entsprechend der Beziehung 2.4.1 ergibt Werte im Bereich von einigen mRad/nm, was auch theoretisch erwartet wurde. Dieser Effekt kann somit als Erklärung der Spurverkippung dienen. Es stellt sich dann allerdings die Frage, warum ein ähnlicher Effekt nicht auch bei dem im Abschnitt 5 beschriebenen Aufbau auftrat, da doch die Winkeldispersionen und damit die Pulsfrontverkippungen ähnlich groß gewesen sein sollten.

Die Ursachen dafür sollen anhand der Abb. 6.2.5 erläutert werden.

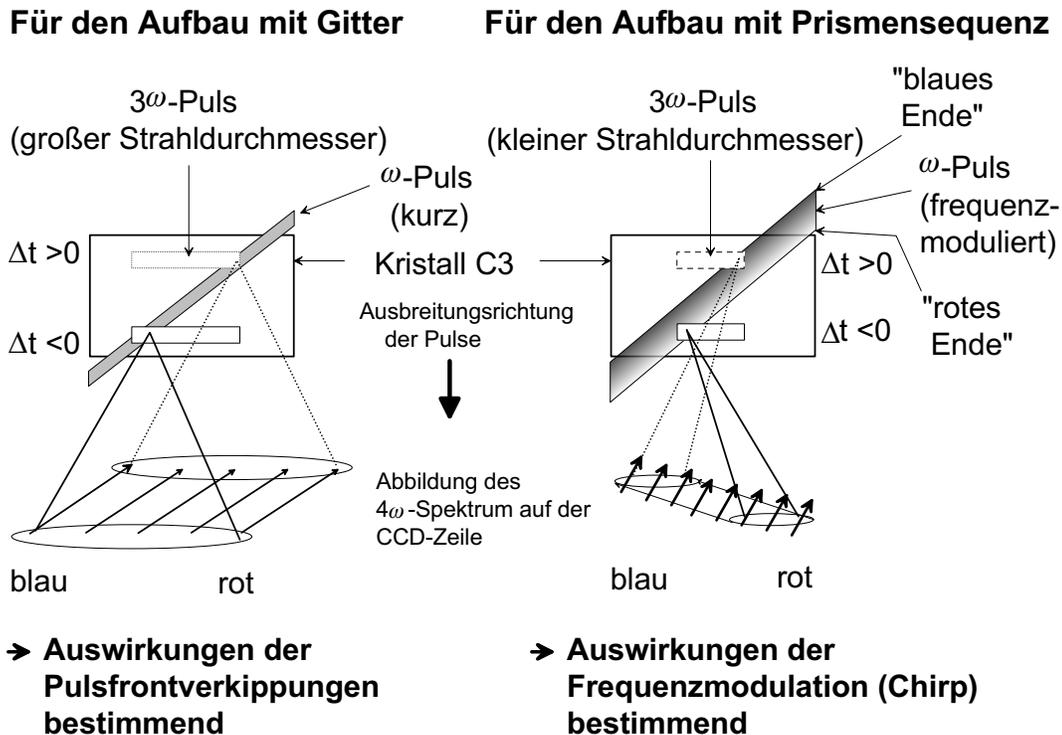


Abbildung 6.2.5: Schematische Darstellung der Auswirkungen von Pulsfrontverkippen und Frequenzmodulation der Fundamentalenpulse auf die räumliche, zeitliche und spektrale Struktur der bei der dritten SFM generierten vierten Harmonischen für die beiden untersuchten Aufbauvarianten, wobei die Pfeile die Verschiebungsrichtung einer im Spektrum erzeugbaren Modulation, d.h. Linien konstanter Wellenlänge, symbolisieren

In der Aufbauvariante mit Gitter wurde die Linse L4 (siehe Anhang D) etwas näher zum letzten Kristall verrückt, was den Strahlquerschnitt der dritten Harmonischen im Vergleich zur Aufbauvariante mit Prismen vergrößerte. Wegen des damit auch vergrößerten Bereichs, in dem eine räumliche Überlappung der dritten Harmonischen mit der Fundamentalen auftreten kann, nehmen auch die *Auswirkungen der Pulsfrontverkippen* der Fundamentalen zu. In dieser Aufbauvariante muß von Fundamentalenpulsen ausgegangen werden, die kurz gegenüber den Pulsen der dritten Harmonischen waren, und höchstens eine geringe Frequenzmodulation besaßen, da, bis auf das SLM und das Teleskop am Eingang des Aufbaus (siehe Anhang D.0.5), nur chromatisch korrigierte optische Komponenten, d.h. Achromate, verwendet wurden. Somit ergab sich über die geringe zeitliche Überlappung eine hohe örtliche Auflösung, mit der dann die Pulsfrontverkippen quasi abgetastet wurde. Dabei wurde von jedem Punkt aus, d.h. für jedes vorliegende Delay, das gesamte Spektrum der vierten Harmonischen erzeugt.

Im Aufbau mit der Prismensequenz waren die Fundamentalenpulse im letzten Kristall um ein Vielfaches länger als die Pulse der dritten Harmonischen und zudem frequenzmoduliert. Dies bedeutet, daß man dort bei einer relativ kleinen räumlichen Gesamtverschiebung und einer geringen örtlichen Auflösung nacheinander die spektralen Komponenten des Fundamentalenpulses abgetastet hat. Das führte dazu, daß eine Verschiebung Spektrums unter den Spuren auftrat und nur eine geringe Spurverkipfung. Das heißt, in diesem Fall sind im wesentlichen die *Auswirkungen der Frequenzmodulation* sichtbar und nur bei sehr genauer Betrachtung der Abb. 5.3.19 kann eine leichte Verkipfung der Spuren infolge der Pulsfrontverkipfung der Fundamentalen erkannt werden.

Beim Betrachtung der Abbildungen 5.3.19 und 6.2.4 ist zu beachten, daß die Wellenlänge einer spektralen Komponente der vierten Harmonischen jeweils in Richtung steigender Pixelzahlen zunimmt.

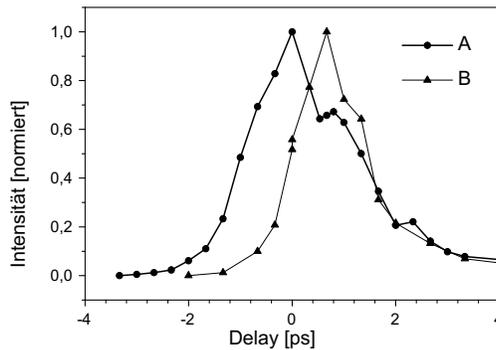


Abbildung 6.2.6: Normierte Korrelationsfunktion zwischen der Fundamentalen und der dritten Harmonischen bzw. das mittels der SiC-Diode integral gemessene Signal der vierten Harmonischen, für den gesamten Strahlquerschnitt (Kurve A) mit etwa 3mm Durchmesser und für den halben Querschnitt (Kurve B)

Das es sich hierbei tatsächlich im wesentlichen um einen räumlichen Effekt handelt, konnte durch die Untersuchung der Abhängigkeit der Korrelationsfunktion der an dem letzten Mischungsprozeß beteiligten Fundamentalen und dritten Harmonischen vom Strahlquerschnitt gezeigt werden. In Abb. 6.2.6 ist deutlich zu erkennen, daß sich die Halbwertsbreite der Korrelationsfunktion durch die Wahl eines kleineren Strahlquerschnitts deutlich verringern läßt. Dies führt aber weder theoretisch, noch experimentell zu kürzeren Pulsen bei der vierten Harmonischen, da die Pulsfrontverkipfung durch das kollimierende dispersive Element kompensiert wird, wie im Abschnitt 2.4 erläutert wurde.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts sind:

- *Durch den Einsatz des Gitters wurde die bei einem festen Delay vorliegende spektrale Breite der vierten Harmonischen auf etwa 0.46 nm erweitert, was den theoretischen Erwartungen entspricht.*
- *Bei Aufnahme der Abhängigkeit der Abbildung des Spektrums der vierten Harmonischen auf der CCD-Zeile von der Delayposition ist eine räumliche Verschiebung Spektrums erkennbar.*
- *Die Interpretation der Aufnahmen gelingt unter der Annahme kurzer Fundamentalimpulse, die eine Pulsfrontverkipfung, aber keine Frequenzmodulation aufweisen.*
- *Eine Verkleinerung des Strahlquerschnitts der an der letzten SFM beteiligten Fundamentalen bewirkt zwar eine Verringerung der Breite der Korrelationsfunktion der Fundamentalen und der dritten Harmonischen, d.h. des durch die Pulsfrontverkipfung hervorgerufenen Anteils, doch hat dies, wie erwartet, keinen Einfluß auf die Pulslänge der vierten Harmonischen.*

### 6.3 Zeitlicher Verlauf der erzeugten Pulse

Mit dem in Abschnitt 6 beschriebenen Aufbau zur Differenzfrequenzerzeugung konnten Korrelationsfunktionen zwischen den Pulsen der vierten Harmonischen und den Fundamentalimpulsen gewonnen werden, die derjenigen in Abb. 6.3.1 entsprechen. Wie die Abb. 6.3.2 zeigt, betrug die Pulslänge der an der Korrelation beteiligten Fundamentalimpulse dabei etwa  $\tau_\omega = 150$  fs. Die Halbwertsbreite der Korrelationsfunktion in Abb. 6.3.1 betrug  $\tau_{4\omega \times \omega} = 892$  fs.

Aus der Beziehung 3.0.5 ergibt sich für Gaußpulse die folgende Verknüpfung zwischen den Pulsdauern bei einer solchen Korrelation:

$$\tau_{4\omega} = \sqrt{\tau_{4\omega \times \omega}^2 - \tau_\omega^2} \quad (6.3.1)$$

Daraus folgt, daß die an der Korrelation beteiligten Pulse der vierten Harmonischen eine Länge von  $\tau_{4\omega} = 880$  fs besessen haben müßten. Entsprechend den Erläuterungen zur Beziehung 2.3.7 und der Hinweise in [9] müssen aber die Auswirkungen der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten berücksichtigt werden. Bei einer Kristalldicke von 300  $\mu\text{m}$  ergibt sich damit eine zeitliche Verzögerung zwischen den

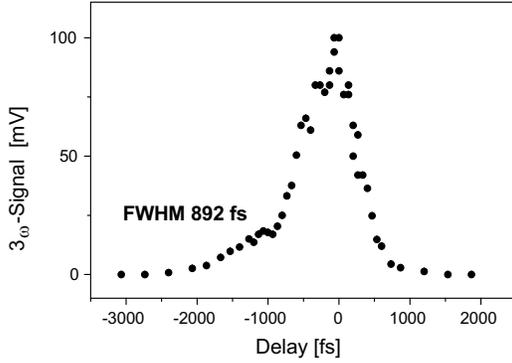


Abbildung 6.3.1: Differenzfrequenzkorrelation zwischen den  $4\omega$ -Pulsen und den Fundamentalpulsen

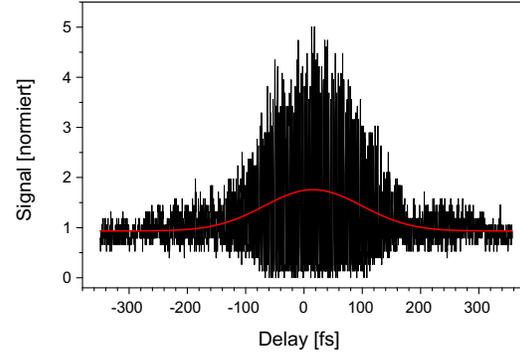


Abbildung 6.3.2: Zugehörige interferometrische Autokorrelation der Fundamentalpulse

Pulsen nach Durchlaufen des Kristalls von 650 fs. Aus der diesen Effekt berücksichtigenden Korrelationsfunktion

$$G(\tau) = \int_{-\frac{L}{2}}^{+\frac{L}{2}} \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\omega}(t + x \cdot v_{G,\omega}^{-1}) I_{4\omega}(t - \tau + x \cdot v_{G,4\omega}^{-1}) dt dx, \quad (6.3.2)$$

ergibt sich, daß die beteiligten UV-Pulse eine Länge von etwa

$$\tau_{4\omega} = 700 \text{ fs}$$

besessen haben müssen, wenn diese gaußförmig waren. Hierbei ist  $L$  die Kristalldicke,  $\tau$  das Delay zwischen den Pulsen und die  $v_G$  sind die Gruppengeschwindigkeiten. Dabei fällt auf, daß sich die Breite des Korrelationssignals erst wesentlich zu verändern beginnt, wenn eine UV-Pulsdauer der Größenordnung von etwa 600 fs bzw. der Gesamtverzögerung zwischen den Pulsen erreicht wird.

Da diese Gesamtverzögerung linear von der Kristalldicke abhängt, sollten sich dementsprechend mit einem  $100 \mu\text{m}$  dicken Kristall schon Pulse ab etwa 200 fs vermessen lassen. Durch eine Korrelation der Pulse der vierten Harmonischen mit denjenigen der zweiten oder dritten Harmonischen, eine entsprechende Kürze der Pulse vorausgesetzt, sollte sich die Auflösung ebenfalls steigern lassen, da die Differenzen der Dispersionen in diesen Fällen kleiner ist.

Aber nicht nur der gemessene Wert muß korrigiert werden, sondern auch der theoretisch zu erwartende. Infolge des zurückgelegten Glasweges in der Linse und im

kollimierenden Prisma von insgesamt etwa 1.5 cm muß mit einer Verbreiterung der Pulse der vierten Harmonischen von 145 fs auf etwa 200 fs gerechnet werden.

Die Größe der die theoretisch und experimentell ermittelten Pulslängen verlängern- den Effekte ist auf die vergleichsweise hohe Dispersion der optischen Materialien in diesem UV-Bereich zurückzuführen. Eine Verbreiterung des Korrelationssignals durch eine unerwünschte Pulsfrontverkrümmung kann wegen des hier zur Fokussierung genutzten Hohlspiegels ausgeschlossen werden.

Die Länge der bei 197 nm erzeugten Pulse erreicht somit in jedem Fall den angestrebten fs-Bereich, ist aber noch etwa drei bis viermal größer als theoretisch zu erwarten war. Eine mögliche Ursache dafür könnte eine Frequenzmodulation der Pulse der vierten Harmonischen infolge einer nicht ausreichend optimierten Positionierung des kollimierenden Quarzprismas sein.

Ein weiterer wichtiger Aspekt ist, daß wegen der großen zeitlichen Verschmierung auch etwaige zeitliche Modulationen in der Korrelationsfunktion nicht auflösbar sind, solange die auftretenden Strukturbreiten die Größenordnung der Gruppenverzögerung nicht erreichen. Die in Abb. 6.3.3 dargestellten Ergebnisse einer Modellrechnung zeigen, daß z.B. ein aus zwei kurzen, gaußförmigen Pulsen von je 200 fs Halbwertsbreite zusammengesetzter Doppelpuls eine ähnliche Korrelationsfunktion hervorruft, wie ein etwa 700 fs langer, gaußförmiger Einzelpuls. Damit wäre es denkbar, daß tatsächlich wesentlich kürzere Pulse generiert werden, diese aber wegen einer nicht zu verhindernden zeitlichen Modulation infolge des diskutierten permanenten Phasengitters im SLM z.B. in Mehrfachpulse bzw. Pulsketten umgewandelt werden und dann eine Korrelationsfunktion wie lange Einzelpulse verursachen.

Die Untersuchung der Abhängigkeit der Pulslänge von der Prismenpositionierung und -justage ist sehr aufwendig, da dabei immer eine räumliche (Strahlrichtung) und zeitliche Anpassung (Delay) der vierten Harmonischen an die Gegebenheiten des für die Differenzfrequenzerzeugung vorgesehenen Teils des Aufbaus gewährleistet sein muß.

Diese Untersuchung und auch diejenige zu den Auswirkungen der Verwendung eines kürzeren Kristalls wegen der begrenzten Diplomarbeitszeit nicht mehr beendet werden.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts sind:

- *Bei der Korrelation der Pulse mittels Differenzfrequenzerzeugung ist zu beachten, daß sich deren Gruppengeschwindigkeiten wesentlich unterscheiden. Dies kann bei einer entsprechenden Kristalldicke eine starke Verbreiterung*

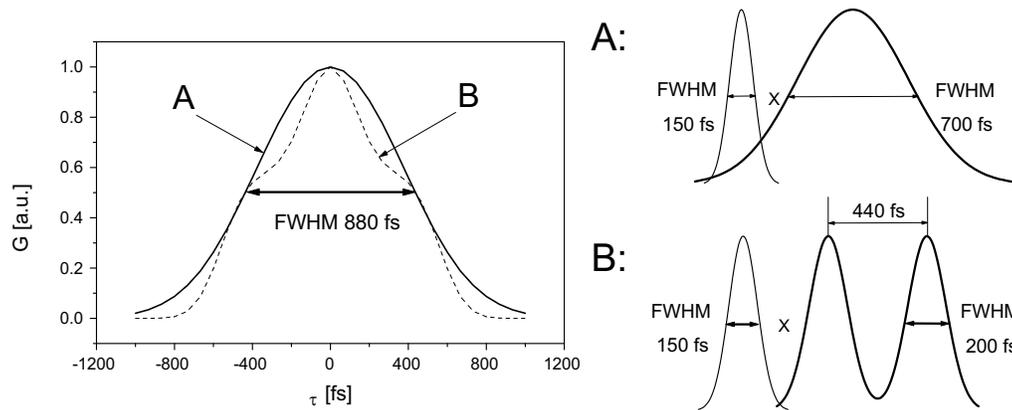


Abbildung 6.3.3: Theoretisch bei der DFG unter Berücksichtigung der Gruppengeschwindigkeiten zu erwartende Korrelationsfunktion  $G(\tau)$  für die Korrelation eines Fundamentalpulses von 150 fs mit einem UV-Gaußpuls (A) bzw. mit einem UV-Doppelgaußpuls (B)

der Korrelationsfunktion und eine Verschmierung etwaiger zeitlicher Modulationen hervorrufen.

- Es zeigt sich, daß der verwendete Kristall mit einer Dicke von  $300\ \mu\text{m}$  für eine Vermessung von Pulsen oder Pulsstrukturen nicht geeignet ist, wenn diese kürzer als 600 fs sind.
- Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten ergeben sich Pulslängen bei der vierten Harmonischen von etwa 700 fs. Das bedeutet, diese Pulse sind etwa um den Faktor 3 bis 4 länger, als theoretisch erwartet wurde.
- Ursachen für die sich ergebenden, zu großen Pulslängen können eine nicht kompensierte Frequenzmodulation der Pulse bei der vierten Harmonischen sein oder eine die Korrelationsfunktion verbreiternde zeitliche Modulation der erzeugten Pulse infolge des im SLM enthaltenen permanenten Phasengitters.

## 7 Zusammenfassung

Ziel der Arbeit war die effiziente Erzeugung zeitlich modulierter Femtosekundenpulse bei etwa 197 nm.

Die Charakterisierung des zu diesem Zweck realisierten Aufbaus hinsichtlich der Spektren und Intensitätsabhängigkeiten der einzelnen Harmonischen zeigte, daß alle Frequenzkonversionen, bis auf die Erzeugung der zweiten Harmonischen, durch die auf der Näherung ungeschwächter erzeugender Wellen basierenden Beziehungen sehr gut theoretisch beschrieben werden können. Unter Verwendung des gemessenen Spektrums der zweiten Harmonischen für die weiteren theoretischen Betrachtungen ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen theoretischen und experimentellen Ergebnissen. Die bei der vierten Harmonischen erzielte Bandbreite entspricht derjenigen von 145 fs langen, bandbreitenlimitierten Gaußpulsen.

Da anfänglich kein Gitter mit einer genügend hohen Zerstörfestigkeit gegenüber der verwendeten Laserstrahlung zur Verfügung stand, wurde zur Erzeugung der benötigten Winkeldispersion im zunächst realisierten Aufbau eine Prismensequenz verwendet. Damit ergab sich aber eine in den Rechnungen zu berücksichtigende starke Abhängigkeit des Schwerpunkts des Spektrums der vierten Harmonischen vom Delay zwischen der Fundamentalen und der dritten Harmonischen. Diese Abhängigkeit ließ sich qualitativ und quantitativ durch eine Frequenzmodulation der Fundamentalimpulse infolge der Gruppengeschwindigkeitsdispersion der Prismensequenz erklären und verschwindet bei Verwendung eines Gitters.

Mit dem verwendeten räumlichen Lichtmodulator (Streifenmodulator) ließ sich das Spektrum der Fundamentalen bis an die durch die Streifenbreite festgelegte Auflösungsgrenze strukturieren. Die ermittelte, etwas geringere Auflösung des in das UV übertragenen Spektrums ist auf eine Verschmierung infolge der Mischung mit der dritten Harmonischen einer nicht zu vernachlässigenden spektralen Breite zurückzuführen und sehr gut theoretisch beschreibbar.

Mit dem realisierten Aufbau ließen sich Pulsenergien bei der vierten Harmonischen von etwa  $1 \mu\text{J}$  erzeugen, was einem Gesamtkonversionswirkungsgrad von 0.15 bis 0.2% entspricht. Er ist damit etwa doppelt so groß wie derjenige des in [9] beschriebenen konventionellen Aufbaus ohne Modulationsmöglichkeiten, was deutlich die Vorteile einer spektral kompensierten Summenfrequenzmischung zeigt.

In der Arbeit wurden auch die Auswirkungen der durch die dispersiven Elemente verursachten Pulsfrontverkipfung diskutiert. Es wurde theoretisch und experimentell gezeigt, daß diese keine Auswirkungen auf die Länge der bei der vierten Harmonischen erzeugten Pulse hat.

Im Laufe der Arbeit ergab sich, daß die Korrelation der Pulse der vierten Harmonischen mit den Pulsen der Fundamentalen über eine Differenzfrequenzerzeugung

prinzipiell ein geeignetes Mittel zur zeitlichen Charakterisierung der UV-Pulse ist. Als problematisch erwies sich die Differenz der Gruppengeschwindigkeiten zwischen den zu korrelierenden Pulsen, die sich in einer von der Kristalldicke abhängenden zeitlichen Verschmierung bzw. Verbreiterung der Korrelationsfunktion äußert.

Die sich beim Einsatz eines nur  $300\ \mu\text{m}$  dicken Kristalls schon ergebende zeitliche Verschmierung ist die Ursache dafür, daß keine zeitliche Modulierbarkeit der erzeugten UV-Pulse nachgewiesen werden konnte. Somit war nicht klärbar, ob die ermittelte Pulsdauer von etwa  $700\ \text{fs}$  wirklich die z.B. durch eine unvollständig kompensierte Frequenzmodulation hervorgerufene Länge eines Einzelpulses oder diejenige einer Mehrfachpulsstruktur ist. Eine solche Mehrfachpulsstruktur könnte infolge einer zeitlichen Modulation durch die nachgewiesene permanente Phasengitterstruktur des Lichtmodulators tatsächlich vorliegen.

Zusammenfassend läßt sich somit feststellen, daß bis auf den Nachweis der zeitlichen Modulation der generierten UV-Pulse die gestellte Aufgabe erfüllt wurde.

Zum endgültigen Nachweis der zeitlich modulierten Pulse bei  $197\ \text{nm}$  und zur Klärung der Ursachen für die im Vergleich zu den theoretischen Erwartungen zu großen Pulslängen sollen Untersuchungen unter Verwendung wesentlich kürzerer Kristalle durchgeführt werden. Wegen der zeitlichen Begrenzung der Diplomarbeit können diese erst im Anschluß erfolgen.

## A Theorie der Dreiwellenmischung

Ausgehend von den MAXWELLSchen Gleichungen

$$\begin{aligned}
 \nabla \times \vec{\mathbf{E}} &= -\mu \partial_t \vec{\mathbf{H}} \\
 \nabla \times \vec{\mathbf{H}} &= \partial_t \vec{\mathbf{D}} \\
 \nabla \cdot \vec{\mathbf{D}} &= 0 \\
 \nabla \cdot \vec{\mathbf{B}} &= 0
 \end{aligned} \tag{A.0.3}$$

und bei Betrachtung von Effekten bis zur zweiten Ordnung in einem nichtlinearen, anisotropen Medium, d.h.

$$\begin{aligned}
 \vec{\mathbf{D}} &= \epsilon_0 \vec{\mathbf{E}} + \vec{\mathbf{P}} \\
 \vec{\mathbf{P}} &= \epsilon_0 \bar{\bar{\chi}}^{(1)} \vec{\mathbf{E}} + \vec{\mathbf{P}}_{NL} \\
 (\vec{\mathbf{P}}_{NL})_i &= \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} \mathbf{E}_j \mathbf{E}_k \ ,
 \end{aligned}$$

wobei unter  $\bar{\bar{\chi}}^{(1)}$  und  $\bar{\bar{\chi}}^{(2)}$  die elektrischen Suszeptibilitätstensoren zweiter und dritter Stufe in der Entwicklung der Polarisation nach der Feldstärke<sup>20</sup> zu verstehen sind [14], erhält man für die Mischung dreier ebener, monochromatischer Wellen, die sich in  $z$ -Richtung ausbreiten, ohne Berücksichtigung der Absorption folgendes System gekoppelter Wellengleichungen :

$$\begin{aligned}
 \partial_z \mathbf{E}_{1i} &= -i\kappa_1 \mathbf{E}_{3k} \mathbf{E}_{2j}^* e^{-i\Delta k z} \\
 \partial_z \mathbf{E}_{2j} &= -i\kappa_2 \mathbf{E}_{3k} \mathbf{E}_{1i}^* e^{-i\Delta k z} \\
 \partial_z \mathbf{E}_{3k} &= -i\kappa_3 \mathbf{E}_{1i} \mathbf{E}_{2j} e^{+i\Delta k z} \ .
 \end{aligned} \tag{A.0.4}$$

Dabei seien  $k_1$ ,  $k_2$  und  $k_3$  die Wellenzahlvektoren der Wellen 1, 2 und 3 bzw. deren  $z$ -Komponenten und es gilt

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \ . \tag{A.0.5}$$

Die Indizes  $i, j, k$  beinhalten den Polarisationszustand der Wellen 1, 2 und 3 und können nur die Werte  $x$  oder  $y$  bzw. 1 oder 2 annehmen, da nur eine transversale

---

<sup>20</sup> $\vec{\mathbf{P}} = \epsilon_0 \bar{\bar{\chi}}^{(1)} \vec{\mathbf{E}} + \epsilon_0 \bar{\bar{\chi}}^{(2)} \vec{\mathbf{E}}^2 + \epsilon_0 \bar{\bar{\chi}}^{(3)} \vec{\mathbf{E}}^3 + \dots$

Polarisation bzgl. der  $z$ -Richtung möglich ist. Für die Welle mit dem Index  $l$  ergibt sich die Kopplungskonstante [30]

$$\kappa_l = \frac{\omega_l}{4} \mu \epsilon_0 \chi^{(2)} c_l , \quad (\text{A.0.6})$$

wobei  $c_l$  die zugehörige Phasengeschwindigkeit und  $\omega_l$  die Kreisfrequenz ist. Die benötigten  $\chi^{(2)}$  lassen sich aus den für die verschiedenen Kristalle tabellierten nicht-linearen Kopplungskoeffizienten berechnen:

$$\frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} = d_{ijk} \quad (\text{A.0.7})$$

Die in der Literatur angegebenen Werte unterscheiden sich z.T. wesentlich [12, 16, 31]. Wegen der KLEINMANNschen Symmetriebedingungen [17] gilt  $\chi^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)}$  für alle Permutationen von  $i, j$  und  $k$ . Für eine gegebene Orientierung des Kristalls bezüglich der einfallenden Wellen und ein bestimmtes Polarisationschema der Wellen ist dann der effektive Kopplungskoeffizient  $d_{\text{eff}}$  entsprechend der Beziehung F.2.4 zu berechnen.

Bei der Herleitung des Differentialgleichungssystems A.0.4 wurde nur die Annahme sich langsam ändernder Amplituden gemacht <sup>21</sup>:

$$2k_3 \partial_z \mathbf{E}_{3k}(z) \gg \partial_z^2 \mathbf{E}_{3k}(z) \quad (\text{A.0.8})$$

Das bedeutet, daß sich die Amplituden nur über Längen wesentlich ändern dürfen, die groß gegenüber den Wellenlängen sind. Unter dieser Voraussetzung beschreibt das Differentialgleichungssystem alle Arten von Wechselwirkungen zwischen drei Wellen in einem nichtlinearen optischen Kristall, wie z.B. Summenfrequenzmischung, Differenzfrequenzmischung und parametrische Verstärkung. Bis auf bestimmte Spezialfälle, wie z.B. die Näherung einer ungeschwächten Fundamentalwelle<sup>22</sup> bei der SHG oder ungeschwächter erzeugender Wellen bei der SFM, sind analytische Lösungen nicht bekannt, so daß eine numerische Bearbeitung der sich ergebenden Randwertprobleme mit Hilfe entsprechender Programme, wie MathCad, Maple oder Matlab, nötig ist.

Im Falle der Näherung ungeschwächter erzeugender Wellen bei einer SFM, d.h.  $\partial_z \mathbf{E}_{1i} = 0$  und  $\partial_z \mathbf{E}_{1j} = 0$ , ergibt sich nach einem Weg  $L$  im Kristall eine Amplitude der erzeugten dritten Welle

$$\mathbf{E}_{3k} = -\frac{1}{2} \omega_3 \mu \epsilon_0 c_3 d_{\text{eff}} \mathbf{E}_{1i} \mathbf{E}_{1j} \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} , \quad (\text{A.0.9})$$

---

<sup>21</sup>slowly varying amplitude approximation

<sup>22</sup>non depleted fundamental wave approximation

woraus sich letztlich die wichtige Beziehung für die Konversionseffizienz

$$\eta(L, \Delta k) = \frac{I_3}{I_1 I_2} = \frac{\omega_3^2 d_{\text{eff}}^2}{8c_0^3 \epsilon_0 n_1 n_2 n_3} \cdot L^2 \text{sinc}^2 \left( \frac{1}{2} \Delta k L \right) \quad (\text{A.0.10})$$

ergibt.

Will man die Konversion kurzer Laserpulse in nichtlinearen Medien exakt beschreiben, so hat man zu beachten, daß nicht nur die Wechselwirkungen dreier monochromatischer Wellen zu berücksichtigen sind, sondern diejenigen dreier Spektren. Die Differentialgleichungen A.0.4 erweitern sich dann entsprechend den Darstellungen in [30] zu

$$\begin{aligned} \partial_z \mathbf{E}_{1i}(\Omega) &= -i\kappa_1 \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_{3k}(\Omega') \mathbf{E}_{2j}^*(\Omega - \Omega') e^{-i\Delta k(\Omega, \Omega')z} d\Omega' \\ \partial_z \mathbf{E}_{2j}(\Omega) &= -i\kappa_2 \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_{3k}(\Omega') \mathbf{E}_{1i}^*(\Omega - \Omega') e^{-i\Delta k(\Omega, \Omega')z} d\Omega' \\ \partial_z \mathbf{E}_{3k}(\Omega) &= -i\kappa_3 \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_{1i}(\Omega') \mathbf{E}_{2j}(\Omega - \Omega') e^{+i\Delta k(\Omega, \Omega')z} d\Omega' \\ \Delta k(\Omega, \Omega') &= k_0(\omega_1 + \Omega') + k_1(\omega_2 + \Omega - \Omega') - k_3(\omega_1 + \omega_2 + \Omega) . \end{aligned} \quad (\text{A.0.11})$$

## B Pulsfrontverkippung bei spektral kompensierter SFM

Es wird eine ideale spektral kompensierte SFM  $\lambda_2^{-1} = \lambda_1^{-1} + \bar{\lambda}_M^{-1}$  mit  $\eta(\lambda_1, \bar{\lambda}_M) \equiv 1$  angenommen. Entsprechend der Abb. B.0.4 sind die Winkel einer erzeugenden ( $\lambda_1$ ) und einer erzeugten spektralen Komponente ( $\lambda_2$ ) bzgl. des Wellenzahlvektors des zugemischten Lichtes der Wellenlänge  $\bar{\lambda}_M$  folgendermaßen verknüpft:

$$\beta_2 = \arctan \left( \frac{\sin \beta_1}{\cos \beta_1 + \frac{\lambda_1}{\bar{\lambda}_M}} \right) \quad (\text{B.0.12})$$

Nach einer Reihenentwicklung bis zum zweiten Glied und Ableitung erhält man

$$\frac{d\beta_2}{d\beta_1} \approx \frac{1}{1 + \frac{\lambda_1}{\bar{\lambda}_M}} = a(\lambda_1, \bar{\lambda}_M) . \quad (\text{B.0.13})$$

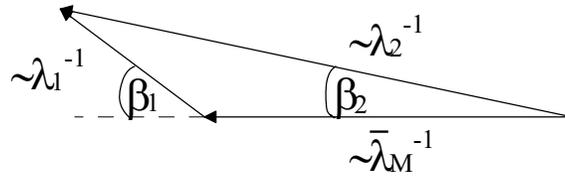


Abbildung B.0.4: Veranschaulichung der Winkelverhältnisse bei einer nichtkollinearen SFM. Die Pfeile entsprechen den Wellenzahlvektoren, die umgekehrt proportional zur jeweiligen Wellenlänge sind.

Für das Verhältnis der spektralen Breiten<sup>23</sup> vor und nach der SFM bei einem konstanten  $\bar{\lambda}_M$  erhält man

$$\frac{\Delta\lambda_2}{\Delta\lambda_1} \approx \frac{d\lambda_2}{d\lambda_1} = \frac{1}{\left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_M}\right)^2} = a^2(\lambda_1, \bar{\lambda}_M) \quad (\text{B.0.14})$$

Die Pulsfrontverkippung vor der Mischung infolge der Erzeugung der für die spektral kompensierte SFM notwendigen Winkeldispersion  $D_1$  beträgt entsprechend der Beziehung 2.4.2

$$\tan \gamma_1 = \bar{\lambda}_1 \cdot D_1 \quad \text{mit} \quad D_1 = \frac{d\beta_1}{d\lambda_1} \quad (\text{B.0.15})$$

und danach

$$\tan \gamma_2 = \bar{\lambda}_2 \cdot D_2, \quad (\text{B.0.16})$$

wobei  $D_2 = \frac{d\beta_2}{d\lambda_2}$  die Winkeldispersion nach der SFM ist. Mit den oben hergeleiteten Beziehungen ergeben sich

$$D_2 = D_1 \cdot a^{-1} \quad \text{und} \quad \bar{\lambda}_2 = a \cdot \bar{\lambda}_1, \quad (\text{B.0.17})$$

woraus sich wiederum

$$\tan \gamma_2 = \tan \gamma_1 \quad (\text{B.0.18})$$

folgern läßt, d.h. die Pulsfrontverkippungen vor und nach der SFM sind gleich.

<sup>23</sup>Unter den angegebenen Wellenlängen sind die Vakuumwellenlängen zu verstehen.

## C Theoretische Verknüpfung der Spektren

Unter der Annahme, daß die auf 1 normierten Konversionseffizienzfunktionen<sup>24</sup>  $\eta_{C_{1..3}}$  der Kristalle  $C_{1..3}$  in dem zu betrachtenden mehrstufigen Konversionsprozeß

$$\omega_2 = \omega_1 + \omega_1 \longrightarrow \omega_3 = \omega_2 + \omega_1 \longrightarrow \omega_4 = \omega_3 + \omega_1$$

nicht von den Intensitäten des zu konvertierenden bzw. generierten Lichtes abhängen<sup>25</sup> und sich auch die Spektren nicht durch intensitätsabhängige Effekte, wie z.B. Selbstphasenmodulationen, ändern, sollten die im folgenden dargestellten Beziehungen zwischen den normierten Spektren gelten:

$$\begin{aligned}
 S_0(\omega_1) & \quad \text{sei das gegebene Eingangsspektrum} \\
 S_1(\omega_2) & = \frac{\int_0^\infty S_0(\omega_1) \cdot S_0(\omega_2 - \omega_1) \cdot \eta_{C_1}(\omega_2 - \omega_1, \omega_1) \, d\omega_1}{\int_0^\infty S_0(\omega_1) \cdot S_0(\bar{\omega}_2 - \omega_1) \, d\omega_1} \\
 S_2(\omega_3) & = \frac{\int_0^\infty S_1(\omega_2) \cdot S_0(\omega_3 - \omega_2) \cdot \eta_{C_2}(\omega_3 - \omega_2, \omega_2) \, d\omega_2}{\int_0^\infty S_1(\omega_2) \cdot S_0(\bar{\omega}_3 - \omega_2) \, d\omega_2} \\
 S_3(\omega_4) & = \frac{\int_0^\infty S_2(\omega_3) \cdot S_0(\omega_4 - \omega_3) \cdot \eta_{C_3}(\omega_4 - \omega_3, \omega_3) \, d\omega_3}{\int_0^\infty S_2(\omega_3) \cdot S_0(\bar{\omega}_4 - \omega_3) \, d\omega_3}
 \end{aligned}$$

Dabei sind  $\bar{\omega}_2, \bar{\omega}_3, \bar{\omega}_4$  die Zentralwellenlängen bei der zweite, dritten und der vierten Harmonischen.

<sup>24</sup>Definiert entsprechend der Beziehung 2.3.1 ohne Vorfaktoren vor der sinc-Funktion.

<sup>25</sup>Näherung ungeschwächter erzeugender Wellen

# D Zeichnung des Versuchsaufbaus

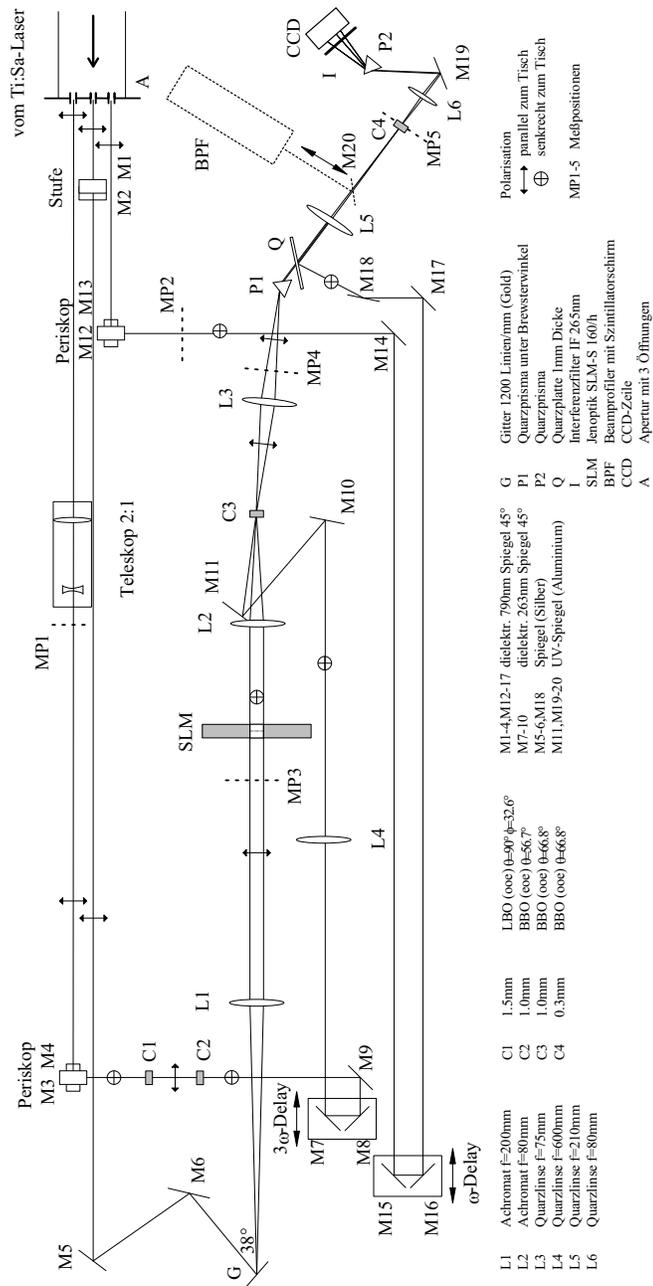


Abbildung D.0.5: Versuchsaufbau des Pulsformers

## E Technische Daten des Jenoptik SLM-S 160/h

Typ	twisted nematic
Aktive Fläche	11 × 11 mm <sup>2</sup>
Anzahl der Streifen	160
Streifenbreite/-abstand	58.42μm / 10.16μm
Schaltzeit ein	< 3ms
Schaltzeit aus	< 25ms
Schaltzustand aus	Rotation um 90°
Schaltzustand ein	Rotation um 0°
Lasertfestigkeit für 1.06μm Nd:YAG cw: pw: pw:	70W/cm <sup>2</sup> 5 – 10J/cm <sup>2</sup> bei 1ns Pulsdauer 3MW/cm <sup>2</sup> bei 2mm Fleckdurchmesser und 1kHz Folgefrequenz

Quelle: F. Reichel Jenoptik LOS

Transmission 600 – 900nm	≥ 80%
Absorption 600 – 900nm	≤ 10%

Quelle: Messung, Petra Mämpel

## F Optische Materialdaten

### F.1 Quarzglas (SQ1)

- Typ: isotropes Glas
- Dispersionsrelation ( $\lambda$  in  $\mu\text{m}$ , Quelle [32]):

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{0.6961663 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - 0.0684043^2} + \frac{0.4079426 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - 0.1162414^2} + \frac{0.8974794 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - 9.896161^2}} \quad (\text{F.1.1})$$

### F.2 $\beta$ – BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO)

- Name: Beta-Barium-Borat

- Typ: negativ einachsiger Kristall
- Transmissionsbereich (Quelle [27]): 189 – 3500nm
- Dispersionrelation ( $\lambda$  in  $\mu\text{m}$ , Quelle [16, 31] nach KATO):

$$n_o(\lambda) = \sqrt{2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354 \cdot \lambda^2} \quad (\text{F.2.1})$$

$$n_e(\lambda) = \sqrt{2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516 \cdot \lambda^2}$$

$$n^e(\theta) = n_o \sqrt{\frac{1 + \tan^2 \theta}{1 + (n_o/n_e)^2 \tan^2 \theta}} \quad (\text{F.2.2})$$

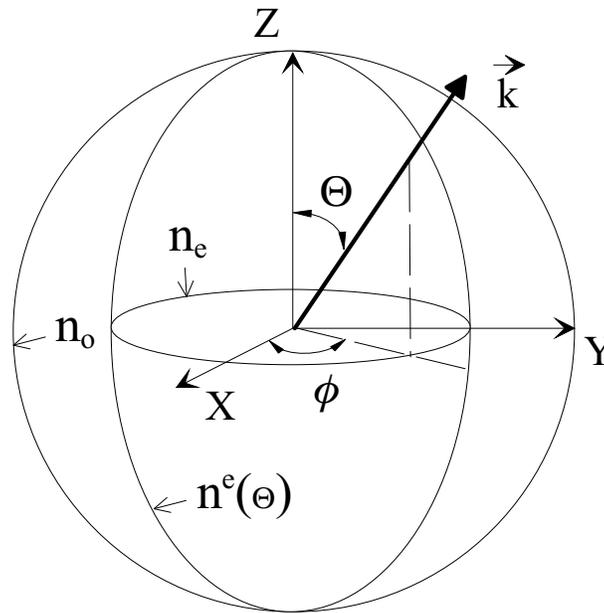


Abbildung F.2.1: Polarkoordinatensystem zur Beschreibung der Brechungsindizes in (negativ-) einachsigen Kristallen entsprechend der Definitionen in [16]

In Abbildung F.2.1 sind die Beziehungen zwischen den für die Phasenanpassung in einachsigen Kristallen relevanten Größen dargestellt, wobei  $\vec{k}$  die Normale zu den Phasenfronten der sich ausbreitenden Welle ist, die Z-Achse der

optischen Achse des Kristalls entspricht,  $\theta$  der Winkel zwischen der optischen Achse und dem  $\vec{k}$ -Vektor ist und  $\phi$  der Rotationswinkel um die optische Achse.

In der Abbildung wurden zudem die Abhängigkeiten der Brechzahlen für eine ordentliche und für eine außerordentlich polarisierte Wellen schematisch für einen negativ einachsigen Kristall dargestellt.

In einer ordentlich polarisierten Welle schwingen die Vektoren des elektrischen Feldes  $\vec{\mathbf{E}}$  senkrecht zu der Ebene, die durch die optische Achse Z und den  $\vec{k}$ -Vektor beschrieben wird, im Falle einer außerordentlich polarisierten Wellen parallel dazu.

- nichtlineare Kopplungskoeffizienten (Quelle [16]):

$$\begin{aligned} d_{22} &= \pm 2.3 \text{ pm/V} \\ d_{31} &= \mp 0.16 \text{ pm/V} \end{aligned} \quad (\text{F.2.3})$$

- effektive Kopplungskoeffizienten:

$$\begin{aligned} d_{ooe} &= d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin 3\phi \\ d_{eoe} &= d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\phi \end{aligned} \quad (\text{F.2.4})$$

### F.3 LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> (LBO)

- Name: Lithium Triborat
- Typ: negativ zweiachsiger Kristall
- Transmissionsbereich (Quelle [27]): 160 – 2600nm
- Dispersionrelation ( $\lambda$  in  $\mu\text{m}$ , Quelle [16]):

$$\begin{aligned} n_x^2 &= 2.4542 + \frac{0.01125}{\lambda^2 - 0.01135} - 0.01388\lambda^2 \\ n_y^2 &= 2.5390 + \frac{0.01277}{\lambda^2 - 0.01189} - 0.01848\lambda^2 \\ n_z^2 &= 2.5865 + \frac{0.01310}{\lambda^2 - 0.01223} - 0.01861\lambda^2 \\ n_o(\lambda) &= n_z(\lambda) \\ n_e(\lambda, \phi) &= n_y(\lambda) \sqrt{\left( \frac{1 + \tan^2(\phi)}{1 + \left(\frac{n_y(\lambda)}{n_x(\lambda)}\right)^2 \tan^2(\phi)} \right)} \end{aligned} \quad (\text{F.3.1})$$

- nichtlineare Kopplungskoeffizienten (Quelle [16]):

$$d_{31} = \mp 0.67 \text{ pm/V} \quad (\text{F.3.2})$$

$$d_{32} = \pm 0.85 \text{ pm/V} \quad (\text{F.3.3})$$

$$d_{33} = \pm 0.04 \text{ pm/V} \quad (\text{F.3.4})$$

- effektive Kopplungskoeffizienten:

für Phasenanpassungsrichtungen bei Dreiwellenmischungsprozessen in den Hauptebenen des Kristalls (entsprechend den Definitionen in [16])

$$\text{XY-Ebene: } d_{ooe} = d_{32} \cos \phi$$

$$\text{YZ-Ebene: } d_{oeo} = d_{31} \cos \theta$$

$$\text{XZ-Ebene } (\theta < \theta_z): d_{eoe} = d_{32} \sin^2 \theta + d_{31} \cos^2 \theta$$

$$\text{XZ-Ebene } (\theta > \theta_z): d_{eoo} = d_{32} \sin^2 \theta + d_{31} \cos^2 \theta$$

für sonstige Richtungen siehe Verweis in [16]

## G Kalibrierung der SiC-Diode

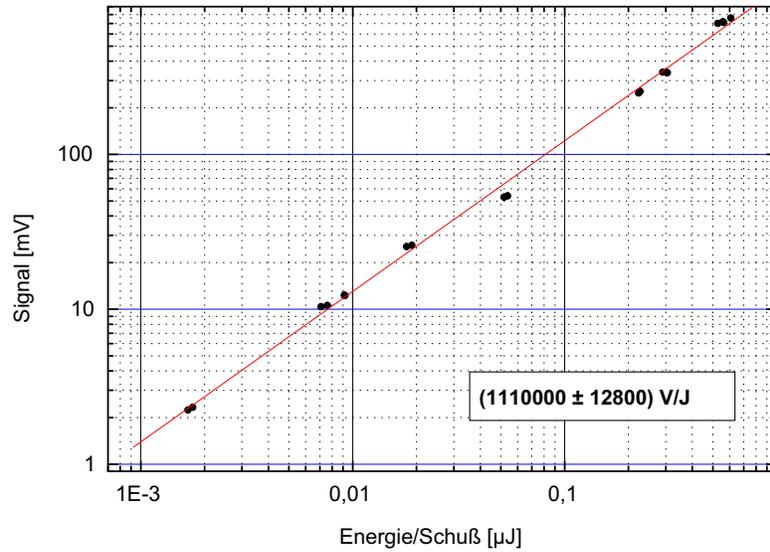


Abbildung G.0.1: Pulsenergieabhängigkeit des Signals der SiC-Photodiode, vermessen an einem ArF-Lasersystem bei 193nm und bei einer Pulsdauer von etwa 20ns mit kalibriertem Abschwächersatz

## Literatur

- [1] Mohammed Dahleh, Anthony Peirce, V. Ramakrishna, and Herschel Rabitz. Control of Molecular Motion. preprint, October 1994.
- [2] A. M. Weiner, D.E. Leaird, J.S. Patel, and J.R. Wullert. Programmable femto-second pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator. *Optics Letters*, 15(6):326–328, March 1990.
- [3] Marc M. Wefers and Keith A. Nelson. Programmable phase and amplitude femtosecond pulse shaping. *OPTICS LETTERS*, 18(23):2032–2034, December 1993.
- [4] D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg. Adaptive real-time femtosecond pulse shaping. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15(5):1615–1619, May 1998.
- [5] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber. Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback. *Appl. Phys.*, B 65:779–782, 1997.
- [6] G. Imeshev, A. Galvanauskas, D. Harter, M.A. Arbore, M. Proctor, and M.M. Fejer. Engineerable femtosecond pulse shaping by second-harmonic generation with fourier synthetic quasi-phase-matching gratings. *OPTICS LETTERS*, 23(11):864–866, June 1998.
- [7] F. Rotermund and V. Petrov. Generation of the fourth harmonic of a femtosecond Ti:sapphire laser. *OPTICS LETTERS*, 23(13):1040–1042, July 1998.
- [8] J. Ringling, O. Kittelmann, F. Seifert, F. Noak, G. Korn, and J. Squier. Femtosecond solid state light sources tunable around 193 nm. *SPIE*, 2116:56–65, 1993.
- [9] J. Ringling, O. Kittelmann, F. Noak, G. Korn, and J. Squier. Tunable femtosecond pulses in the near vacuum ultraviolet generated by frequency conversion of Ti:sapphire laser pulses. *OPTICS LETTERS*, 18(23):2035–2037, December 1993.
- [10] G. Szabó. Schema zur Frequenzkonversion breitbandiger Pulse bei 790nm zur vierten Harmonischen, Oktober 1997. Persönliche Mitteilung.
- [11] Th. Hofmann, K. Mossavi, F.K. Tittel, and G. Szabó. Spectrally compensated sum-frequency mixing scheme for generation of broadband radiation. *Optics Letters*, 17(23):1691–1693, December 1992.

- [12] Bahaa E. Saleh and Malvin Carl Teich. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, Inc., 1991.
- [13] N. Danz and M. Hacker. Charakterisierung von Laserscanning-Mikroskopen im Femtosekundenbereich. *Zusatzversuch zum Fortgeschrittenenpraktikum*, 1996.
- [14] Rita Fernsler. Charakterisierung ultrakurzer UV-Laserpulse und deren Anwendung. *Diplomarbeit*, 1996.
- [15] Govind P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics*. The Institute of Optics, University of Rochester, New York, second edition.
- [16] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan, and D.N. Nikogosyan. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*. Springer-Verlag, second edition, 1997.
- [17] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, Inc., 1992.
- [18] G. Szabó and Zs. Bor. Frequency Conversion of Ultrashort Pulses. *Applied Physics B*, B 58:237–241, 1994.
- [19] J. Hebling. Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion. *Optical and Quantum Electronics*, (28):1759–1763, 1996.
- [20] Zs. Bor and Z.L. Horváth. Distortion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description. *Optics Communications*, (94):249–258, 1992.
- [21] T. Feurer and R. Sauerbrey. Measuring the Intensity of Ultrashort Laser Pulses by Triple Correlation. 1997.
- [22] J. Herrmann and B. Wilhelmi. *Laser für ultrakurze Lichtimpulse*. Physik Verlag, Weinheim, 1984.
- [23] Alexandre M. Streltsov, Jinendra K. Ranka, and Alexander L. Gaeta. Femtosecond ultraviolet autocorrelation measurements based on two-photon conductivity in fused silica. *OPTICS LETTERS*, 23(10):798–800, February 1998.
- [24] S. Szatmári and F. P. Schäfer and J. Jethwa. A single-shot autocorrelator for the ultraviolet with a variable time window. *Rev. Sci. Instrum.*, 61(3):998–1003, March 1990.
- [25] S. P. LeBlanc, F. Cote, G. Szabó, and R. Sauerbrey. Single shot phase sensitive autocorrelator for short pulse ultraviolet laser. *SPIE Ultrafast Pulse Generation and Spectroscopy*, 1861:163–169, 1993.

- [26] F. Seifert, J. Ringling, F. Noack, V. Petrov, and O. Kittelmann. Generation of tunable femtosecond pulses to as low as 172.7 nm by sum-frequency mixing in lithium triborate. *Opt. Lett.*, 19(19):1538–1540, October 1994.
- [27] CASIX Inc. *Crystal Guide 97/98*.
- [28] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, New York, 6th edition, 1959.
- [29] Cambridge Research and Instrumentation Inc. *Spatial Light Modulator SLM-128 Specifications*.
- [30] Jean-Claude Diels and Wolfgang Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press, San Diego New York Boston London Sydney Tokyo Toronto, 1996.
- [31] D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham, and A. Zalkin. Optical, mechanical, and thermal properties of barium borat. *Applied Physics*, 62(5):1968–1983, September 1987.
- [32] René Weidner. Aufbau eines modengekoppelten Titan:Saphir-Laserszillators mit Impulslängen unter 30fs. *Diplomarbeit*, 1998.

# Erklärung

Ich erkläre, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Jena, den

---

Martin Hacker

## Danksagung

Ich möchte an dieser Stelle herzlich denjenigen danken, die die Durchführung dieser Arbeit ermöglichten oder unterstützten:

Herrn Prof. Dr. R. Sauerbrey für die Vergabe dieser vielseitigen Diplomarbeit,  
Herrn Prof. Dr. G. Szabó für die Vermittlung grundlegender Prinzipien,  
Herrn Dr. T. Feurer für die umfassende Betreuung,  
Herrn T. Lucza für die Hilfe bei den Experimenten,  
Herrn A. Glass für die richtige Hilfe zur richtigen Zeit,  
allen Mitarbeitern des IOQ, die mir mit Rat und Tat zur Seite standen,  
den Mitarbeitern der E- und M-Werkstatt für ihre gute und schnelle Arbeit,  
der Firma Jenoptik Laser Optik Systeme, besonders den Herren F. Reichel und  
H. Breiffelder, für die Unterstützung bei der Beschaffung und Inbetriebnahme des  
Streifenmodulators,  
sowie der Carl-Zeiss-Schott-Förderstiftung für die finanzielle Unterstützung