

# Aufbau eines nichtkollinear gepumpten optisch parametrischen Verstärkers

## Diplomarbeit

an der Friedrich-Schiller-Universität Jena  
Physikalisch-Astronomische-Fakultät

eingereicht von: Matthias Roth  
geb. am 16. November 1975 in Jena.

Jena, 30. November 2000

1. Gutachter: .....

2. Gutachter: .....

Tag der Verleihung des Diploms: .....

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>402 nm-SHG-Spektrum als Modell</b>	<b>3</b>
2.1	Modellrechnung . . . . .	3
2.2	Vergleich mit der Messung . . . . .	7
<b>3</b>	<b>Phasen- und Gruppengeschwindigkeitsanpassung</b>	<b>9</b>
3.1	Reine Phasenanpassung . . . . .	10
3.2	Reine Gruppengeschwindigkeitsanpassung . . . . .	13
3.3	Simultane Anpassung . . . . .	18
<b>4</b>	<b>Superfluoreszenz</b>	<b>20</b>
4.1	Gruppengeschwindigkeitsanpassung bei der Superfluoreszenz . . . . .	20
4.2	Experimentelle Realisierung . . . . .	21
<b>5</b>	<b>Weißlichtkontinuum</b>	<b>23</b>
5.1	Erzeugung des Weißlichtkontinuums . . . . .	23
5.2	Messung eines Spektrogramms mittels optischem Kerr-Effekt . . . . .	24
5.3	Simulation der Gradienten-Index-Linse . . . . .	26

5.4	Auswertung des Spektrogramms . . . . .	27
5.5	Ergebnisse für das unverstärkte Weißlicht . . . . .	32
<b>6</b>	<b>Nichtkollinearer optisch parametrischer Verstärker</b>	<b>34</b>
6.1	Funktionsweise des NOPAs . . . . .	34
6.2	Auswahl der Schwerpunktwellenlänge . . . . .	36
6.3	Zur Frequenzmodulation des verstärkten Weißlichts . . . . .	36
6.4	Der Prismenkompressor . . . . .	39
6.5	Die komprimierten Pulse, Ergebnisse . . . . .	40
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>43</b>
<b>A</b>	<b>Anhang zur Gruppengeschwindigkeitsanpassung</b>	<b>45</b>
	Literatur . . . . .	54

# Kapitel 1

## Einleitung

Die schnelle Entwicklung der Femtosekudentechnik hat den Zugang zu neuen, vor einigen Jahren noch undenkbaren, Anwendungen geöffnet. Hatte der Rubinlaser von Maiman [1] noch eine Pulslänge von  $\simeq 1$  ms, waren in der zweiten Hälfte der neunziger Jahre schon Pulse unter 5 fs möglich. Viele Forschungsfelder in der Molekülphysik und Physikalischen Chemie hätten sich ohne Femtosekundenlaser nie entwickelt. Die hohe Zeitauflösung dieser Technik erlaubt die direkte Beobachtung von chemischen Reaktionen, das Aufbrechen und Neuformieren chemischer Bindungen [2]. In diesem Zusammenhang hat sich der Begriff Femtochemie entwickelt.

Aber nicht nur die Beobachtung, auch die gezielte Beeinflussung der Dynamik solcher Prozesse ist möglich. Um dieses Ziel zu erreichen, wurde zunächst im Frequenzbereich mit cw-Lasern gearbeitet [3]. Inzwischen konzentriert sich die Forschung aber auf Kontrollschemas, bei denen die zeitliche Struktur von ultrakurzen Laserpulsen die zentrale Rolle spielt [4]. Durch rückkopplungskontrollierte Pulsformung läßt sich dieses Prinzip zu einem selbstlernenden System erweitern [5]. Die optimal angepaßten Laserpulse wechselwirken dabei mit den Materiewellen eines Ausgangszustands und das ursprüngliche Wellenpaket läßt sich in einen Zielzustand dirigieren. Diese Coherent Control<sup>1</sup> genannte Technik wird es vielleicht einmal ermöglichen, Moleküle zu erzeugen, deren Synthese herkömmlichen chemischen Verfahren verschlossen bleibt.

Die dazu notwendigen elektromagnetischen Kontrollfelder zu erzeugen, ist ein wesentliches technisches Problem. Für die Laserfelder sollten idealerweise alle Parametern frei wählbar sein. Das Formen von ultrakurzen Laserpulsen im Frequenzbereich ermöglicht die Erzeugung nahezu beliebig modulierter Pulse [6, 7]. Um auch die Zentralfrequenz der Pulse in einem weiten Bereich anpassen zu können, benötigt man zusätzlich nichtlineare Prozesse.

---

<sup>1</sup>engl.: Kohärente Kontrolle

Schon kurz nach der Erfindung des Lasers wurde Frequenzverdopplung in Quartz, einem nichtlinearen Kristall, nachgewiesen [8]. Dieser Effekt war vorher auch von Mikrowellen bekannt. Von daher kannte man auch die Bildung von Summen- und Differenzfrequenzen, die ebenfalls für optische Frequenzen möglich sind [9]. Damit stehen, trotz der weitgehend festgelegten Laserwellenlänge, Möglichkeiten zur Verfügung, weitere Frequenzbereiche zugänglich zu machen.

Ziel der vorliegenden Diplomarbeit war es, einen nichtkollinear gepumpten optisch parametrischen Verstärker (NOPA<sup>2</sup>) zu bauen. Die erzeugten Pulse sollten möglichst kurz und im Bereich 450-750 nm durchstimmbare sein. Dazu muß der Verstärker eine möglichst große spektrale Bandbreite haben. Mit der NOPA-Technik ist es möglich, Pulse zu erzeugen, die weit kürzer als die Ausgangspulse des Lasers und konventioneller OPAs sind. Mit ähnlichen Aufbauten wurden in den letzten Jahren Pulse bis unter 5 fs erzeugt [10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17].

Beim NOPA-Typ eines OPA sind Pump- und Signalwelle nicht parallel, sondern nehmen einen kleinen Winkel (2-3°) zueinander ein. Der Grund dafür, Gruppengeschwindigkeitanpassung zwischen den beteiligten Pulsen, wird in Kapitel 3 ausführlich diskutiert. Weiterhin wird die Phasenanpassung bei nichtlinearen Prozessen behandelt, und es werden Rechnungen zur simultanen Anpassung der Phase und der Gruppengeschwindigkeiten zwischen den wechselwirkenden optischen Feldern vorgestellt. Als Pumpquelle für den NOPA dient der frequenzverdoppelte Ausgang eines Titan-Saphir-Lasers bei 402 nm. Daher beschäftigt sich Kapitel 2 zunächst mit dem SHG<sup>3</sup>-Spektrum als Modell für nichtlineare Wechselwirkungen. In Kapitel 4 wird die sog. Superfluoreszenz besprochen. Dies ist ein spontaner Vorgang in nichtlinearen Kristallen, ähnlich dem induzierten Verstärkungsvorgang im NOPA. Als Signalquelle für den NOPA wird ein breitbandiges Kontinuum verwendet, dessen Erzeugung und Eigenschaften in Kapitel 5 behandelt werden. Im Rahmen der Diplomarbeit wurde ein Verfahren entwickelt, die spektrale Phase dieses Weißlichtkontinuums zu messen [18]. In Kapitel 6 werden die Aussagen aller vorherigen Kapitel verwendet, um den am IOQ gebauten NOPA zu charakterisieren und die Ergebnisse vorzustellen.

---

<sup>2</sup>engl.: Noncollinear Optical Parametric Amplifier

<sup>3</sup>engl.: Second Harmonic Generation, Erzeugung der zweiten Harmonischen

## Kapitel 2

# 402 nm-SHG-Spektrum als Modell

Ziel der in diesem Abschnitt beschriebenen Messungen und Berechnungen war, die Verwendbarkeit einfacher mathematischer Modelle bei der 3-Wellen-Mischung zu prüfen. Dazu wurde das Spektrum der zweiten Harmonischen [8] (SHG<sup>1</sup>) eines Ti:Sa-Lasers bei 402 nm gemessen und mit einem einfachen mathematischen Modell verglichen. Für die Messung wurde ein 1 mm dicker Beta-Bariumborat<sup>2</sup>-Kristall (BBO) verwendet, mit einem Schnittwinkel von 29° [19]. Dieser Winkel ist optimal für die Erzeugung der SHG aus einer 804 nm Fundamentalen. Die erzeugten Pulse bei 402 nm werden dann als Pumpulse für den NOPA benutzt.

### 2.1 Modellrechnung

Grundlage der nichtlinearen Dreiwellenwechselwirkung sind die Maxwellgleichungen [20]. Da diese Wechselwirkung ein nichtlinearer Prozeß zweiter Ordnung ist, wird die Polarisation bis  $E^2$  entwickelt:

$$\vec{P}(\vec{E}) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}^2 \quad (2.1)$$

$$\vec{D}(\vec{E}) = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}(\vec{E}) \quad (2.2)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (2.4)$$

---

<sup>1</sup>engl.: Second Harmonic Generation - Zweite Harmonische Erzeugung

<sup>2</sup> $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

Im Folgenden werden die Felder zur Vereinfachung eindimensional behandelt. Setzt man die Gleichungen (2.2) in (2.4) und dann diese in (2.3) ein, erhält man die nichtlineare Wellengleichung:

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (2.5)$$

Nun kann man den linearen Anteil von  $P = \epsilon_0 \chi E + P_{nl}$  abtrennen, sowie  $n^2 = 1 + \chi$  und  $c^2 = \frac{c_0^2}{n^2}$  verwenden. Dann erhält man 2.5 in einer Form, die der Wellengleichung im Medium entspricht. Auf der rechten Seite steht statt einer Null ein Quellterm für elektromagnetische Strahlung:

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \underbrace{\frac{\partial^2 P_{nl}}{\partial t^2}}_{-\Phi_{nl}} \quad (2.6)$$

In der ersten Born Näherung [20] erzeugt das einfallende Feld  $E(t)$  eine nichtlineare Polarisation und damit die Strahlungsquelle  $\Phi_{nl}$ . Unter Vernachlässigung der Schwächung des einfallenden Felds  $E(t)$  überlagern sich Elementarwellen zu neuen EM-Wellen. Im Fall der SHG ist  $E(t) = \text{Re}\{E_0 e^{i\omega t}\}$  und die Polarisation

$$P_{nl}(t) = 2d E^2(t) = dE_0^2 + dE_0^2 e^{i2\omega t}. \quad (2.7)$$

Entsprechend der Born-Näherung enthält das emittierte Feld aus  $\Phi_{nl}$  in (2.6) die gleichen spektralen Anteile wie  $P_{nl}$ . Es wird also ein Feld mit der Frequenz  $2\omega$  erzeugt. Die Intensität der SHG in dieser Näherung läßt sich aus  $\Phi_{nl}(t) = -\mu_0 \partial^2 P_{nl} / \partial t^2$  bestimmen

$$I_{2\omega} \propto |E_{02\omega}|^2 \propto \omega^4 d^2 I_\omega^2, \quad (2.8)$$

mit  $I_\omega^2$  als Intensität der Fundamentalen.

Bei der 3-Wellen-Mischung, zu der auch die SHG gehört, muß die Energieerhaltung erfüllt sein. Daher gilt für die Kreisfrequenzen  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  und  $\omega_3$ :

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3. \quad (2.9)$$

Im Folgenden soll  $\omega_1 \leq \omega_2 < \omega_3$  gelten. Die Indizes können auch i-idler, s-signal, p-pump bezeichnet werden. Diese Notation ist beim umgekehrten Vorgang, dem Zerfall eines Photons in zwei mit jeweils niedrigerer Energie, der in Kapitel 3 genauer beschrieben wird üblich. In diesem Abschnitt soll nur der Spezialfall der SHG betrachtet werden, dabei sind  $\omega_1$  und  $\omega_2$  gleich und  $\omega_3 = 2\omega_1$ . Neben dem durch Gleichung (2.9) repräsentierten Energieerhaltungssatz muß auch Impulserhaltung gelten. Phasenanpassung und damit Impulserhaltung ist erfüllt, wenn die k-Vektoren der beteiligten EM-Felder folgende Vektor-Beziehung erfüllen:

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3. \quad (2.10)$$

$\Delta k$  soll für den Fall kollinearer Phasenanpassung als

$$\Delta k = |\vec{k}_3| - |\vec{k}_2| - |\vec{k}_1| \quad (2.11)$$

definiert sein [20, 21]. Im Falle von  $\Delta k \neq 0$  können sich die Polarisationswellenanteile mit den entsprechenden Frequenzen nicht über eine hinreichend lange Strecke phasenrichtig überlagern. Die Umwandlung wird in diesem Fall niedrig sein. Bei breitbandigen Spektren kurzer Pulse tritt zusätzlich noch das Problem auf, daß sich nicht für alle Spektralkomponenten optimale Phasenanpassung erreichen läßt. Das Ziel der Phasenanpassung ist,  $\Delta k$  möglichst klein oder Null zu machen. Dazu kann man die unterschiedlichen Dispersionsrelationen für ordentliche und außerordentliche Strahlen in einem doppelbrechenden Kristall ausnutzen. Unter einem bestimmten Winkel zur optischen Achse stimmt der Brechungsindex des ordentlichen Strahls bei der Frequenz  $\omega$  mit dem des außerordentlichen bei der doppelten Frequenz  $2\omega$  überein<sup>3</sup>. Vom mikroskopischen Standpunkt aus gesehen kann man sagen, für den Fall  $\Delta k = 0$  schwingen die atomaren Dipole phasenrichtig, so daß sich alle emittierten Felder in Ausbreitungsrichtung kohärent überlagern können.

Um eine quantitative Abschätzung für die Abhängigkeit der SHG-Intensität von  $\Delta k$  für den Fall paralleler Ausbreitung in  $z$ -Richtung zu erhalten, geht man von den gekoppelten Differentialgleichungen für die Amplituden der Summenfrequenzerzeugung aus [22]:

$$\begin{aligned}\frac{dA_3}{dz} &= -\frac{id\omega_3^2}{2\pi c_0^2 k_3} A_1 A_2 e^{-i\Delta k z} \\ \frac{dA_1}{dz} &= -\frac{id\omega_1^2}{2\pi c_0^2 k_1} A_3 A_2^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{dA_2}{dz} &= -\frac{id\omega_2^2}{2\pi c_0^2 k_2} A_3 A_1^* e^{i\Delta k z}\end{aligned}\quad (2.12)$$

Dabei bedeuten  $k$  die Wellenvektoren,  $\omega$  die Frequenzen,  $d$  die effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung des Materials und  $z$  die Position in Ausbreitungsrichtung. Um die Abschätzung zu vereinfachen, nimmt man die Amplituden  $A_1$  und  $A_2$  als konstant an (ungeschwächte Pumpe = nondepleted pump). Um die Amplitude der Summenfrequenz beim Austritt aus dem nichtlinearen Medium zu berechnen, braucht man dann nur Gleichung (2.12) über die Länge  $L$  des nichtlinearen Mediums zu integrieren:

$$\begin{aligned}A_3(L) &= -\frac{id\omega_3^2 A_1 A_2}{2\pi c_0^2 k_3} \int_0^L e^{i\Delta k z} dz \\ &= \frac{id\omega_3^2 A_1 A_2}{2\pi c_0^2 k_3} \left( \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \right).\end{aligned}\quad (2.13)$$

Um einen Ausdruck für die Intensität zu finden, kann man den zweiten Faktor in (2.13) umformen:

$$\begin{aligned}\left| \left( \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \right) \right|^2 &= L^2 \left( \frac{e^{i\Delta k} - 1}{\Delta k L} \right) \left( \frac{e^{-i\Delta k} - 1}{\Delta k L} \right) \\ &= L^2 \text{Sinc}^2(\Delta k L/2)\end{aligned}\quad (2.14)$$

---

<sup>3</sup>Daß Phasenanpassung durch gleiche Brechungsindizes erreicht werden kann, gilt nur für die SHG, allgemeine Summenfrequenzen werden in Kap. 3 behandelt.

Neben den zu Beginn des Abschnitts ausgeführten Abschätzungen gilt für die Intensität der zweiten Harmonischen also auch

$$I_{2\omega} \propto I_{\omega}^2 L^2 \operatorname{Sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right). \quad (2.15)$$

Die Sinc-Quadrat-Funktion ist in Abb. 2.1 dargestellt. Stellt man den SHG-Kristall so ein, daß die

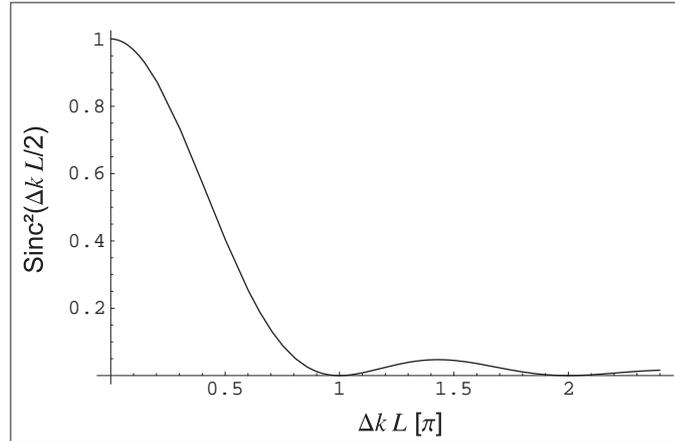


Abbildung 2.1: Sinc-Quadrat-Funktion,  $\Delta k L$  in Vielfachen von  $\pi$

optimale Phasenanpassung ( $\Delta k = 0$ ) neben der Zentralwellenlänge der Grundwelle liegt, kann man die Schwerpunktswellenlänge der zweiten Harmonischen, in den Grenzen der spektralen Breite der Grundwelle, allein durch Verdrehen des Kristalls variieren.

Dieser Effekt sollte nun mit dem Sinc-Quadrat-Modell berechnet werden. Dazu wurde für jeden Einfallswinkel das SHG-Spektrum aus den Spektralkomponenten der Fundamentalen einzeln (als wären diese das Spektrum eines wirklich monochromatischen Lasers) nach der Sinc-Quadrat-Theorie berechnet. Ergebnis ist die Verteilung  $I_{2\omega}(\lambda, \theta)$  in Abb. 2.2 oben. Neben der Annahme der ungeschwächten Fundamentalen werden keine Gruppengeschwindigkeitseffekte (walk-off) beachtet, mit ebenen monochromatischen Wellen gerechnet und daher auch keine spektralen Faltungen berücksichtigt [23]. Unter dieser „Kreuzmischung“ kann man sich vorstellen, daß es bei der relativ großen Bandbreite der Fundamentalen auch möglich wäre zum Beispiel zwei EM-Wellen bei 795 nm und 805 nm zu einer bei 400 nm zu mischen.

Für die numerische Rechnung mit LabView wurden die Kristallparameter des BBO-Kristalls im Experiment verwendet und auch die Brechung ins Medium beachtet.

## 2.2 Vergleich mit der Messung

Zur Messung wurde folgender Aufbau verwendet: Mit dem unfokussierten Titan-Saphir-Laser wurde in einem 1 mm BBO-Kristall auf einem Goniometer die zweite Harmonische erzeugt und diese in einem Spektrometer analysiert. Für jeden Einfallswinkel wurde so das SHG-Spektrum gemessen, Ergebnis war die Verteilung  $I_{2\omega}(\lambda, \theta)$  in Abb. 2.2 unten. Vergleicht man die Simulation mit

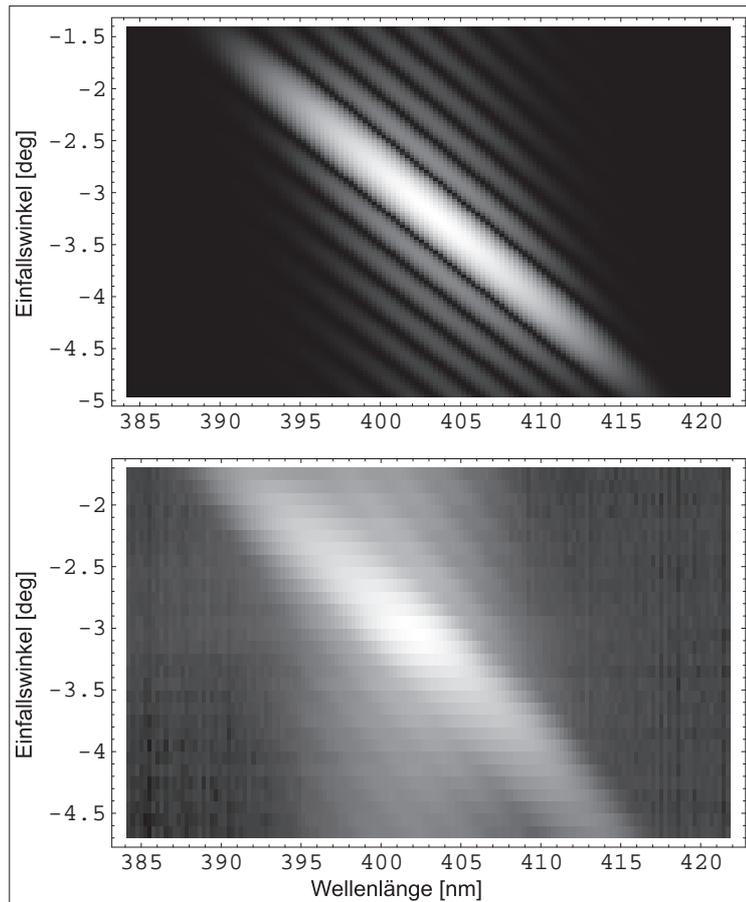


Abbildung 2.2: Vergleich von  $I_{2\omega}(\lambda, \theta)$ ; oben: simuliert, unten: gemessen. Um die Nebenmaxima besser sichtbar zu machen wurde die Intensität logarithmisch aufgetragen.

der Messung kann man eine prinzipielle Übereinstimmung der Verteilungen feststellen. Sowohl die Abhängigkeit der Lage des Hauptmaximums vom Einfallswinkel, der Abstand der Nebenmaxima als auch der Abfall der SHG-Intensität sind in beiden Darstellungen etwa gleich. Der Kontrast der Nebenmaxima ist in der Messung geringer als in der Simulation. Hier zeigt sich der Einfluß der spektralen Faltung, der im Experiment die Nebenmaxima verwischt. Dieser Mangel des vereinfach-

ten Modells ist aber nicht so wesentlich. Wichtig war, daß die Rechnungen die gleiche Geometrie ergeben wie das Experiment, vor allem also die Lage der Maxima. Denn das Ziel der Rechnungen in Kapitel 3 besteht darin, eine optimale Geometrie für den NOPA zu finden, daher werden diese Rechnungen mit den selben Annahmen durchgeführt.

## Kapitel 3

# Phasen- und Gruppengeschwindigkeitsanpassung

Unter Differenzfrequenzerzeugung versteht man die Erzeugung neuer Frequenzen aus einer höheren Frequenz. Man kann sich ein höherenergetisches (kurzwelliges) Photon vorstellen, das in zwei mit niedrigerer Energie (größerer Wellenlänge) zerfällt. Für die Frequenzen muß die Beziehung (2.9) gelten, entsprechend der Energieerhaltung. Um diese nichtlinearen Wechselwirkungen makroskopisch beobachten zu können, ist Phasenanpassung notwendig, die in Kapitel 2 schon beschrieben wurde (Gleichung (2.10)). Besonderheiten der nichtkollinearen Phasenanpassung bei Differenzfrequenzerzeugung ist Inhalt von Abschnitt 3.1. Für die Differenzfrequenzerzeugung kann in diesem Zusammenhang ein analoges Modell wie bei der Summenfrequenzerzeugung verwendet werden, da die Maxwellgleichungen, die die mathematische Beschreibung dieser Prozesse liefern, symmetrisch in der Zeit sind. In Abschnitt 3.2 soll auf spezielle Probleme mit ultrakurzen Laserpulsen eingegangen werden. Während bei cw-Lasern oder Lasern mit Pulsbreiten im ps-Bereich die Effekte der Phasenanpassung dominieren, spielt bei ultrakurzen Pulsen im fs-Bereich auch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD<sup>1</sup>) eine entscheidende Rolle. Dabei wird der räumliche und zeitliche Überlapp der beteiligten Pulse durch deren verschiedene Gruppengeschwindigkeiten beeinflusst. Wie diese beiden Effekte zusammen wirken wird in Abschnitt 3.3 behandelt.

Verwendet wird das mathematische Modell das in Kapitel 2 geprüft wurde. Für die Rechnungen bedeutet das:

---

<sup>1</sup>engl.: Group Velocity Dispersion

- es wird mit ebenen Wellen gerechnet
- Phasenanpassung wird für die Zentralwellenlängen der beteiligten Pulse gerechnet, als wären sie monochromatisch
- Pulse werden als feste Wellenpakete bei der jeweiligen Zentralfrequenz aufgefasst, d.h. Dispersion bewirkt kein zeitliches Auseinanderlaufen (Frequenzmodulation)
- die Pulsfronten werden als unendlich ausgedehnt aufgefasst, d.h. walk off wird vernachlässigt

### 3.1 Reine Phasenanpassung

Zunächst sollen Effekte, die durch die Verwendung von kurzen Pulsen zustande kommen, nicht beachtet werden. Nur die Phasenanpassung bei allgemeinen 3-Wellen-Wechselwirkungen, zu denen die Differenzfrequenzbildung gehört, wird betrachtet.

Der nichtlineare Polarisationsanteil im Medium ist:

$$P_{nl}(t) = 2d E^2(t) \quad (3.1)$$

Setzt man in (3.1) ein elektrisches Feld  $E(t) = \frac{1}{2}(E_{01}e^{i\omega_1 t} + cc + E_{02}e^{i\omega_2 t} + cc)$  ein, das aus zwei Frequenzkomponenten bei  $\omega_1$  und  $\omega_2$  besteht, ergeben sich theoretisch Polarisationsanteile bei den fünf Frequenzen  $0$ ,  $2\omega_1$ ,  $2\omega_2$ ,  $\omega_1 - \omega_2$  und  $\omega_1 + \omega_2$ :

$$\begin{aligned} P_{nl}(t) \propto & d(E_{01}^2 + E_{02}^2) + \\ & \frac{1}{2}d(E_{01}^2 e^{i2\omega_1 t} + cc) + \\ & \frac{1}{2}d(E_{02}^2 e^{i2\omega_2 t} + cc) + \\ & d((E_{01}^2 + E_{02}^2)e^{i(\omega_1 - \omega_2)t} + cc) + \\ & d((E_{01}^2 + E_{02}^2)e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} + cc). \end{aligned} \quad (3.2)$$

Nicht alle diese Frequenzen können auch tatsächlich erzeugt werden, sondern nur solche, für die Phasenanpassung gilt. Im allgemeinen müssen dabei die  $\vec{k}$ -Vektoren nicht parallel sein, da Gleichung (2.10) eine Vektorbeziehung darstellt.

Im Gegensatz zu der in Kapitel 2 verwendeten Definition (2.11) [20, 21] soll die Phasendifferenz  $\Delta k$  jetzt definiert sein als

$$\Delta k = |\vec{\Delta k}| = |\vec{k}_3 - \vec{k}_2 - \vec{k}_1|, \quad (3.3)$$

wobei größere Indizes Wellen mit höherer Frequenz bezeichnen. Mit dieser Definition kann die nichtkollineare Phasenanpassung für kleine Winkel behandelt werden. Exakter ist es mit dem vektoriellen  $\vec{\Delta k}$  zu rechnen. In diesem Fall muß man Produkte aus skalarem  $\Delta k$  und skalaren

Größen (z.B.  $z$ ) durch Skalarprodukte aus  $\vec{\Delta k}$  und den entsprechenden vektoriellen Größen (z.B.  $\vec{z}$ ) ersetzen. Für die hier gezeigten Rechnungen wurde immer (3.3) verwendet, da die Winkel zwischen den Vektoren klein sind ( $< 5^\circ$ ).

Zur Phasenanpassung werden, wie bei der SHG, die unterschiedlichen Dispersionsrelationen für ordentlich und außerordentlich polarisiertes Licht genutzt. Die Brechungsindizes sind dabei nicht wie in isotropen Materialien nur von der Wellenlänge, sondern auch von Polarisationsrichtung und Richtung des  $\vec{k}$ -Vektors zur optischen Achse abhängig. Betrachtet man einen einachsigen, optisch negativen Kristall wie BBO, ergeben sich folgende Konsequenzen: Im Fall der SHG findet man eine Richtung zur optischen Achse, für die der Brechungsindex für  $2\omega$ , außerordentlich polarisiert, gleich dem für  $\omega$ , ordentlich polarisiert ist (Abb. 3.1).

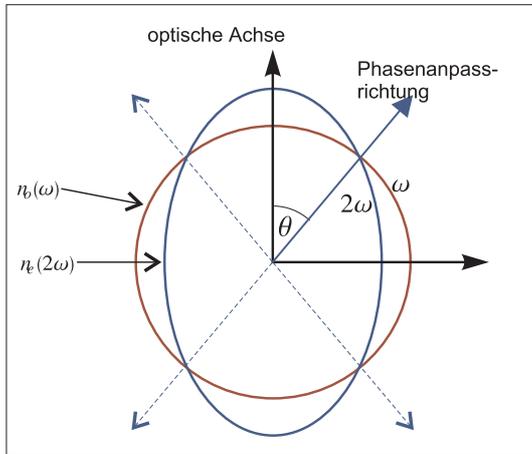


Abbildung 3.1: Phasenanpassung für den Fall der SHG. Der Brechungsindex der ordentlich polarisierten Fundamentalen ist gleich der außerordentlich polarisierte SHG.

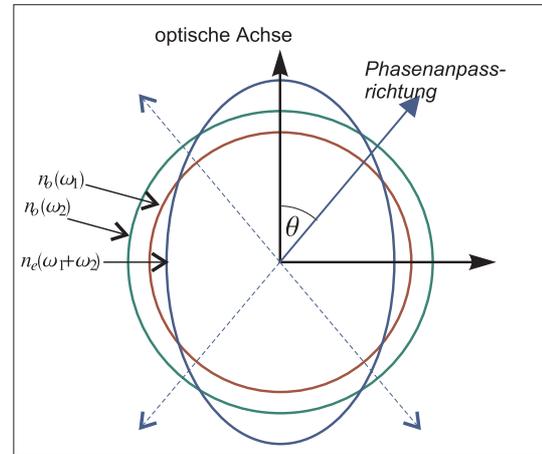


Abbildung 3.2: Phasenanpassung für Summenfrequenzen. Der Brechungsindex der außerordentlich polarisierten Summenfrequenz hat einen Wert, der zwischen denen für die beiden langwelligeren ordentlich polarisierten Wellen liegt.

Im allgemeinen beschränkt nur die Energieerhaltung (2.9) die Auswahl der Wellenlängen. Bei kollinear Geometrie kann man in der Vektorbeziehung (3.3) die Beträge betrachten:

$$\Delta k = \frac{1}{c} (n_e(\theta, \omega_1 + \omega_2)(\omega_1 + \omega_2) - n_o(\omega_1)\omega_1 - n_o(\omega_2)\omega_2) = 0. \quad (3.4)$$

Für den Spezialfall der SHG vereinfacht sich diese Beziehung zu:  $n_e(\theta, 2\omega) = n_o(\omega)$ . Für allgemeine Summenfrequenzbildung folgt aus (3.4):

$$n_e(\theta, \omega_1 + \omega_2) = \frac{n_o(\omega_1)\omega_1 + n_o(\omega_2)\omega_2}{\omega_1 + \omega_2}. \quad (3.5)$$

Der Brechungsindex der Summenfrequenz muß also bei kollinearer Phasenanpassung zwischen dem der beiden langwelligeren Wellen liegen (Abb. 3.2).

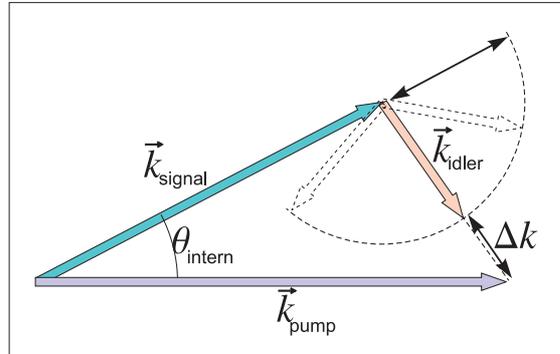


Abbildung 3.3: Da Glch. (2.10) eine Vektorbeziehung darstellt, kann Phasenanpassung auch mit nicht parallelen  $\vec{k}$ -Vektoren erfolgen. Dargestellt ist, wie sich bei vorgegebenen Richtungen von Pumpe und Signal die Idlerichtung auf minimales  $\Delta k$  einstellt.

Man braucht sich aber nicht auf kollineare Phasenanpassung zu beschränken, diese ist ein Spezialfall. Auch für  $\vec{k}$ -Vektoren, die nicht parallel sind, findet man nach (3.3) Richtungen, für die  $\Delta k = 0$  oder sehr klein wird. Die Richtungsverhältnisse können z.B. so wie in Abb. 3.3 sein, wobei angenommen wurde, daß für vorgegebene Richtungsverhältnisse der Pump- und Signalwelle die Idlerichtung so eingestellt ist, daß die Phasendifferenz  $\Delta k$  so gering wie möglich ist. Dieser Fall tritt z.B. bei der in Kapitel 4 besprochenen Superfluoreszenz auf.

Für das Ziel dieser Arbeit, möglichst große Verstärkungsbandbreiten zu erreichen, sollte im Weiteren abgeschätzt werden, ob die Winkelabhängigkeit der Phasenanpassung eine breitbandige Verstärkung verhindern kann. Das wäre der Fall, wenn für die zu verwendende Pumpwellenlänge 402 nm der Winkel der bestmöglichen Phasenanpassung (also nicht notwendigerweise  $\Delta k = 0$ ) sehr stark von der Signalwellenlänge abhängt. Dann ist Phasenanpassung nur in einem schmalen Bereich um eine bestimmte Signalwellenlänge möglich. Abb. 3.4 zeigt die Abhängigkeit des Phasenanpasswinkels von der Signalwellenlänge für verschiedene Pumpwellenlängen in BBO. Das Diagramm wurde berechnet, indem für eine feste Pump- und Signalwellenlänge (die Idlerwellenlänge liegt dann fest) für jeden Winkel der  $\vec{k}$ -Vektoren zur optischen Achse die Phasendifferenz berechnet wurde. Im Diagramm ist aufgetragen, bei welchem Winkel in Abhängigkeit von der Signalwellenlänge  $|\Delta k|$  am kleinsten ist. Zur Vereinfachung der beabsichtigten Abschätzung wurde mit kollinearen Vektoren gerechnet. Es zeigt sich, daß die Kurve für 402 nm Pumpwellenlänge wie auch die anderen relativ flach verlaufen, also mit einer festen Kristallstellung breitbandige Phasenanpassung möglich ist.

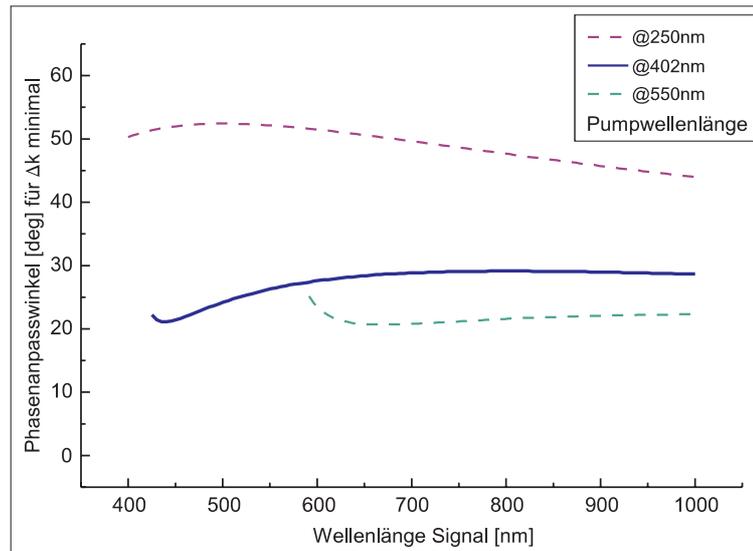


Abbildung 3.4: Phasenanpasswinkel abhängig von der Signalwellenlänge für verschiedene feste Pumpwellenlängen bei kollinearer Geometrie in BBO. Da die Kurven relativ flach verlaufen, kann Phasenanpassung mit einem festen Kristall-Winkel für einen breiten Wellenlängenbereich erzielt werden.

## 3.2 Reine Gruppengeschwindigkeitsanpassung

Da die Intensitäten aufgrund der kurzen Pulsdauern sehr hoch sind, können die nichtlineare Effekte schon teilweise in Sättigung sein. Dann ist der Einfluß einer kleinen Abweichung vom Idealfall  $\Delta k = 0$  kleiner, als ein Auseinanderlaufen der Pulsschwerpunkte aufgrund der GVD. Pulse im fs-Bereich haben eine Dicke in Ausbreitungsrichtung von einigen  $\mu\text{m}$  ( $\approx 30 \mu\text{m}$  bei 100 fs Pulsdauer) und die Pulszentren können sich mit unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten bewegen. Laufen die Pulse in Ausbreitungsrichtung auseinander, ist eine Wechselwirkung kaum noch möglich [24, 25]. Für einen OPA der besonders kurze Pulse erzeugen soll, kann die unterschiedliche Gruppengeschwindigkeit der Pulse noch folgende Konsequenz haben: Signalpuls und simultan entstehender Idlerpuls laufen mit unterschiedlicher Gruppengeschwindigkeit. Die unteren beiden Gleichungen von (2.12) beschreiben das Anwachsen der Signal- bzw. Idleramplituden. Auf den rechten Seiten stehen neben der Amplitude der Pumpwelle auch die der jeweils anderen erzeugten/verstärkten Welle. Abb. 3.5 skizziert, wie sich Signal- und Idlerpuls in diesem Fall über die (räumliche) Länge des Pumpulses gegenseitig verstärken können. Der Pumpuls ist nicht mitgezeichnet, da dieser als lang angenommen wird. Breiten sich also Signal- und Idlerpuls mit unterschiedlicher Gruppengeschwindigkeit aus, wächst der Abstand der Pulszentren  $d$ . Dabei bewirkt der schnellere Puls (in der Skizze rot) eine Verlängerung des langsameren Pulses nach vorn und der langsamere Puls bewirkt eine Verlängerung des schnelleren nach hinten. Die zeitliche Verlängerung der Pulse be-

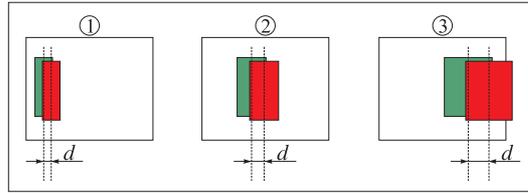


Abbildung 3.5: Signal- und Idlerpuls können sich bei nicht optimaler Gruppengeschwindigkeitsanpassung gegenseitig zeitlich verlängern. Damit werden die Pulse unerwünscht länger, die Intensität und damit die Umwandlungseffizienz sinken.

deutet auch eine Verringerung der Intensität und damit nach (2.12) auch eine Verschlechterung der Umwandlungseffizienz.

Dieses Problem zu vermeiden, ist das Ziel der Gruppengeschwindigkeitsanpassung bei NOPAs für sehr kurze Pulse. Der Begriff „Anpassung“ ist etwas irreführend, da man die Gruppengeschwindigkeiten der Pulse nicht dadurch anpaßt, daß wie bei der Phasenanpassung unterschiedliche Dispersionsrelationen ausgenutzt werden. Statt dessen verkippt man Pump- und Signalstrahlrichtung in einer nichtkollinearen Anordnung so zueinander wie in Abb. 3.6. Die Gruppengeschwindigkeiten von Signal und Idler in der Projektion auf die Signalrichtung sind dann gleich [25]. Für den Winkel zwischen den beiden Strahlrichtungen gilt:

$$\cos \Theta = \frac{v_{gr}^{signal}}{v_{gr}^{idler}} \quad (3.6)$$

Dann laufen die Pulse zwar noch quer zur Ausbreitungsrichtung auseinander, da die Winkel in Wirklichkeit viel kleiner als in Abb. 3.6 sind (etwa  $3 - 4^\circ$ ), wirkt sich das nicht so negativ aus wie ein Auseinanderlaufen in Ausbreitungsrichtung. Auch ist das Verhältnis von lateraler zu Längsausdehnung der Pulse viel größer als in der Skizze.

In einem doppelbrechenden Kristall müssen die Richtung der Wellenfrontnormale und Strahlrichtung (=Richtung des Energietransports) nicht übereinstimmen. Deshalb nun zunächst einige Bemerkungen zur Problematik der Gruppengeschwindigkeit und der Richtungsverhältnisse verschiedener Vektoren in doppelbrechenden Kristallen, speziell BBO, einem optisch negativen einachsigen Kristall der wegen seiner hohen Nichtlinearität und günstiger optischer Eigenschaften [19] häufig in NOPAs eingesetzt wird.

Der Absolutbetrag der Gruppengeschwindigkeit  $v_{gr}$  ist definiert durch

$$v_{gr} = \frac{\partial \omega(k)}{\partial k} \quad (3.7)$$

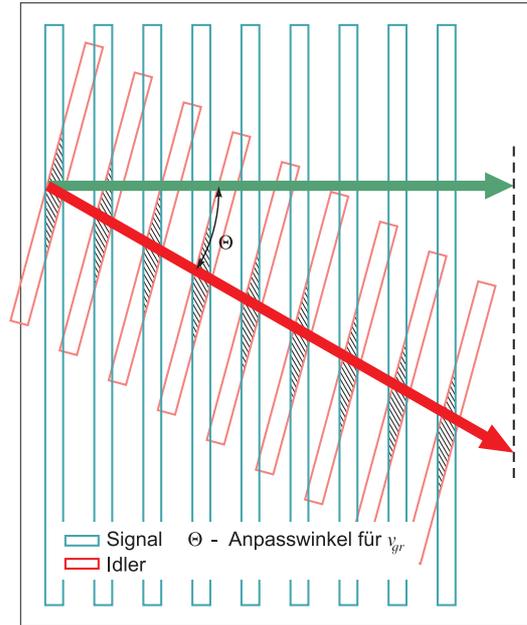


Abbildung 3.6: Gruppengeschwindigkeitsanpassung zwischen Signal- und Idlerpuls bei nichtkollinearer Geometrie. Das Wechselwirkungsvolumen (schraffiert) bleibt über die Kristalldicke etwa konstant. Der Anpasswinkel  $\Theta$  wurde für die Skizze stark übertrieben gezeichnet, in Wirklichkeit beträgt  $\Theta$  nur  $3\text{-}4^\circ$ .

Analog kann man auch vektoriell ableiten [20]:

$$\vec{v}_{gr} = \nabla_{\vec{k}} \omega(\vec{k}); \quad v_i = \frac{\omega(k_x, k_y, k_z)}{\partial k_i} \quad \text{mit } i = x, y, z. \quad (3.8)$$

Um die Dispersionsrelation  $\omega(\vec{k})$  zu erhalten, geht man von den Maxwellgleichungen in der Form ohne Ladungs- und Stromdichten aus. Für diese Felder macht man jetzt die Annahme monochromatischer, ebener Wellen der Frequenz  $\omega$ , die Amplituden haben dann die Form:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}_0 e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \quad (3.9)$$

Mit diesem Ansatz vereinfachen sich die Maxwellgleichungen zu:

$$\vec{k} \times \vec{H}_0 = -\omega \vec{D}_0 \quad (3.10)$$

$$\vec{k} \times \vec{E}_0 = \omega \mu_0 \vec{H}_0 \quad (3.11)$$

$$i\vec{k}\vec{D}_0 = 0 \quad (3.12)$$

$$i\vec{k}\vec{B}_0 = 0 \quad (3.13)$$

Die Felder  $\vec{D}$  und  $\vec{E}$  sind durch die Tensorbeziehung

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (3.14)$$

verknüpft, d.h.  $\vec{D}$  und  $\vec{E}$  sind im allgemeinen nicht parallel zueinander. Für  $\vec{B}$  und  $\vec{H}$  wird von einem linearen, isotropen Zusammenhang  $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$  ausgegangen. Der Pointingvektor  $\vec{S}$ , der Betrag und Richtung des Energieflusses angibt, ist definiert durch

$$\vec{S} = \frac{1}{2} \vec{E} \times \vec{H}. \quad (3.15)$$

Wegen (3.14) muß dann auch  $\vec{S}$  (entspricht der Richtung von  $\vec{v}_{gr}$ ) nicht parallel zu  $\vec{k}$  sein. Damit lassen sich die Richtungsverhältnisse wie in Abb. 3.7 skizzieren [20].

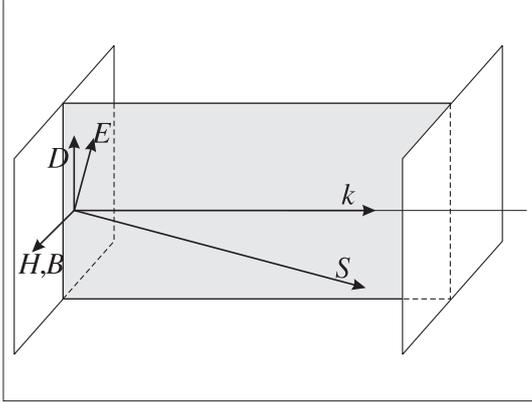


Abbildung 3.7: Richtungsverhältnisse in anisotropen Medien.

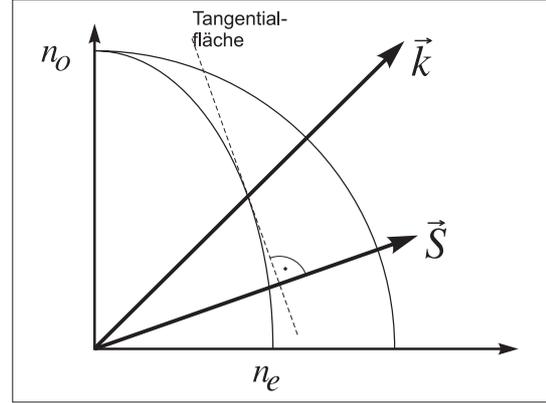


Abbildung 3.8: Zur Konstruktion der Richtung des Pointingvektors.

Die Dispersionsrelation  $\omega(k)$  kann man ableiten [20], wenn man Gleichung (3.11) in (3.10) einsetzt.

$$\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) + \omega^2 \mu_0 \bar{\epsilon} \vec{E} = 0 \quad (3.16)$$

In dieser Gleichung soll der Tensor  $\bar{\epsilon}$  auf Hauptachsen transformiert sein  $\bar{\epsilon}_{ii} = \epsilon_i$ . Der Brechungsindex für eine Hauptachse ist  $n_i = \sqrt{\frac{\epsilon_i}{\epsilon_0}}$ . Setzt man das in Gleichung (3.16) ein, erhält man:

$$\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) + \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 (n_i^2 \vec{E}_i) = 0. \quad (3.17)$$

Wegen  $c_0^2 = 1/\mu_0 \epsilon_0$  kann man den unterstrichenen Ausdruck in Gleichung (3.17) in  $\frac{\omega^2}{c_0^2} = k_0^2$  umwandeln.  $k_0$  ist der Betrag des Wellenvektors im Vakuum,  $\vec{k}$  der Wellenvektor im Medium. Damit wird das Gleichungssystem zu:

$$\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) + k_0^2 (n_i^2 \vec{E}_i) = 0 \quad (3.18)$$

In Matrixschreibweise:

$$\begin{pmatrix} k_0^2 n_1^2 - k_2^2 - k_3^2 & k_1 k_2 & k_1 k_3 \\ k_1 k_2 & k_0^2 n_2^2 - k_1^2 - k_3^2 & k_2 k_3 \\ k_1 k_3 & k_2 k_3 & k_0^2 n_3^2 - k_1^2 - k_2^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{pmatrix} = 0. \quad (3.19)$$

Hier bezeichnen die Indizes 1-3 an den  $k$ 's und  $n$ 's die Richtungen entlang der Koordinatenachsen  $e_1$ ,  $e_2$  und  $e_3$ , über die  $n_i(\omega)$  wird die Dispersion eingeführt.  $k_0$  ist wieder der Betrag des Wellenvektors im Vakuum. Dieses Gleichungssystem hat dann eine nichttriviale Lösung, wenn die Koeffizientendeterminante Null wird. Das Mathematica-Notebook zur simultanen Anpassung von Gruppengeschwindigkeit und Phase in Anhang A enthält zu Beginn auch die Lösung dieses Gleichungssystems. Für einen einachsigen Kristall ergeben sich folgende zwei Lösungen für ordentlichen und außerordentlichen Strahl:

$$\text{const} = k_0 = \sqrt{\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{n_o^2}} \quad (3.20)$$

$$\text{const} = k_0 = \sqrt{\frac{k_1^2}{n_e^2} + \frac{k_2^2}{n_e^2} + \frac{k_3^2}{n_o^2}} \quad (3.21)$$

$k_0$  kann noch mit  $c_0$  multipliziert werden, und man erhält die gesuchte Relation  $\omega(\vec{k})$ . Wie erwartet ist Gleichung (3.20) die einer Kugel und Gleichung (3.21) für  $n_e < n_o$  die eines prolaten Rotationsellipsoids mit der größeren Achse in z-Richtung.  $n_e$  bezeichnet dabei den Brechungsindex in der x-y-Ebene des Ellipsoids. Mit der so erhaltenen Dispersionsrelation  $\omega(\vec{k})$  kann man nach (3.8) Betrag und Richtung der Gruppengeschwindigkeit berechnen.

Daß die Richtung des Pointingvektors identisch mit der Richtung der Gruppengeschwindigkeit ist, kann man sich so vorstellen: Der Pointingvektor gibt die Richtung und den Betrag des Energietransports in einer EM-Welle an und die Gruppengeschwindigkeit definitionsgemäß dessen Geschwindigkeit. Ebenfalls muß man beachten, daß mit dem Begriff der Strahlrichtung immer die Richtung des Pointingvektors/Gruppengeschwindigkeit gemeint ist. Man kann also zusammenfassen: Die Phasengeschwindigkeit  $\vec{v}_{ph}$  ist parallel der Richtung von  $\vec{k}$ , während die Energie des elektromagnetischen Wellenpakets entlang des Pointingvektors  $\vec{S}$  mit der Gruppengeschwindigkeit  $\vec{v}_{gr}$  transportiert wird.

In der Literatur [26] findet man auch die folgende Konstruktionsvorschrift für die Richtung der Gruppengeschwindigkeit oder des Pointingvektors: An den Durchstoßpunkt des  $\vec{k}$ -Vektors durch den Indexellipsoid des außerordentlichen Strahls legt man eine Tangentialebene zu diesem Ellipsoid, die Energieflußrichtung ist dann senkrecht dazu (Abb. 3.8).

Gruppengeschwindigkeitsanpassung bedeutet also, der schnellere Puls wird so verkippt, daß er eine größere Strecke relativ zum langsameren zurücklegt. Der prinzipielle Unterschied zwischen Wellenfrontnormale  $\vec{k}$  und Gruppengeschwindigkeit<sup>2</sup> wurde im Weiteren bei der gleichzeitigen Betrachtung von Phasen- und  $\vec{v}_{gr}$ -Anpassung mit berücksichtigt.

<sup>2</sup>Das ist auch die Ursache für den Walk-off Effekt

### 3.3 Simultane Anpassung

Nachdem in den beiden vorigen Abschnitten Phasen- und Gruppengeschwindigkeitsanpassung jeweils für sich betrachtet wurden, sollte nun versucht werden, sowohl die Gruppengeschwindigkeitsdifferenz (GVM<sup>3</sup>) als auch  $\Delta k$  minimal oder möglichst Null zu machen. Dabei gibt es zwei unterschiedliche Zielstellungen:

- kürzest mögliche Pulse durch GVM-Minimierung zwischen Signal und Idler
- bestmögliche Gruppengeschwindigkeitsanpassung zwischen jeweils Signal *und* Idler in Bezug auf den Pumpuls sowie Signal und Idler zueinander

Experimentell ist der zweite Punkt einfacher zu realisieren. Bei der in Kapitel 4 noch zu behandelnden Superfluoreszenz tritt Selbstanpassung (Selfmatching) auf, d.h. es wird nur der Winkel Pumpe-optische Achse vorgeben - die Richtungen von Signal und Idler stellen sich spontan so ein, daß minimales GVM und  $\Delta k$  vorliegen. Rechnerisch ist dieser Fall aber schwieriger zu behandeln, da man bei gegebenen Wellenlängen vier Parameter anzupassen hat: Phasenanpassung, d.h.  $\Delta k$  minimieren und gleichzeitig die GVM Signal-Pumpe, Idler-Pumpe und Signal-Idler minimieren. Jede Anpassung hat aber andere Auswirkungen auf die Gesamtumwandlungseffizienz, so daß eine genaue quantitative Rechnung der Propagation durch den Kristall nötig wäre. Die Optimierungsaufgabe besteht hier also darin, die optimale Geometrie bei nur einem vorgegebenen Winkel zu finden.

Beim ersten Punkt muß das Auseinanderlaufen von Signal und Idler relativ zueinander verhindert werden, wie es in einem NOPA angesteht wird. Dieser Vorgang ist leichter zu simulieren als die experimentell einfachere Superfluoreszenz.

Die Rechnungen wurden mit Mathematica nach folgendem Algorithmus durchgeführt:

- die Pumpwellenlänge liegt fest.
- man gibt eine gewünschte Signalwellenlänge an, damit liegt die Idlerwellenlänge fest.
- man nimmt die Winkel Pumpstrahl-optische Achse  $\theta_{pump}$  und Pumpstrahl-Signalstrahl  $\theta_{intern}$  an. Die Richtung des Idlerstrahls wird dann so berechnet, daß wie in Abb. 3.3 minimales  $\Delta k$  bei festen Richtungsverhältnissen vorliegt.
- jetzt werden die Gruppengeschwindigkeitsvektoren nach (3.8) und die Differenz zwischen der Projektion der Idlergeschwindigkeit auf die Signalgeschwindigkeit und der Signalgeschwindigkeit berechnet. Der Absolutbetrag dieser Differenz ist das GVM.

---

<sup>3</sup>engl.: Group Velocity Mismatch

- nun sucht man nach Kombinationen der Winkel  $\theta_{pump}$  und  $\theta_{intern}$ , für die  $|\Delta k|$  und das GVM möglichst klein sind.

Überraschenderweise findet man bei BBO im untersuchten Spektralbereich für jede Signalwellenlänge eine Kombination der Winkel  $\theta_{pump}$  und  $\theta_{intern}$ , für die sowohl Phasenanpassung als auch Gruppengeschwindigkeitsanpassung erfüllt ist. In Abb. 3.9 und 3.10 sind die Ergebnisse der Rechnungen dargestellt. Sie decken sich mit den publizierten Ergebnissen [12, 10].

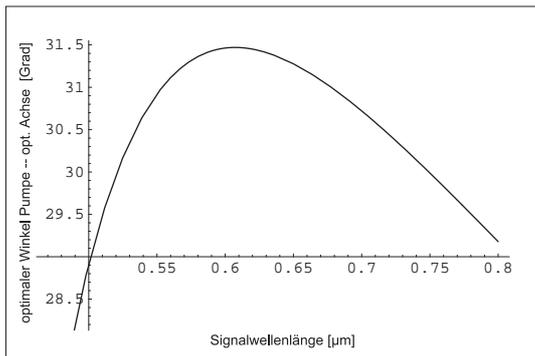


Abbildung 3.9: Optimaler Winkel  $\theta_{pump}$  des Pumpstrahls zur optischen Achse von BBO für  $\Delta k = 0$  und  $GVM=0$

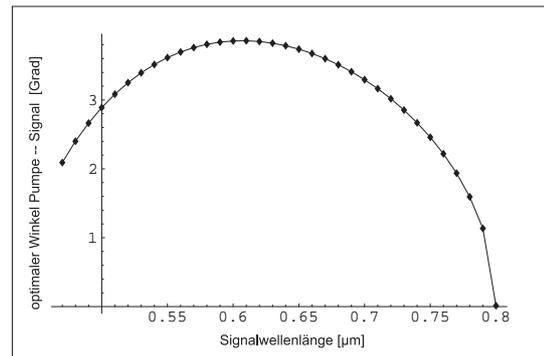


Abbildung 3.10: Optimaler Winkel  $\theta_{intern}$  des Signalstrahls zum Pumpstrahl für  $\Delta k = 0$  und  $GVM=0$

In Anhang A ab Seite 45 ist das verwendete Mathematica-Notebook eingefügt, die einzelnen Schritte sind mit Kommentaren im Notebook erklärt.

## Kapitel 4

# Superfluoreszenz

Wie in Kapitel 3 erwähnt, kann man Gruppengeschwindigkeitsanpassung zwischen allen beteiligten Pulsen bei der Superfluoreszenz beobachten [24, 25, 27, 16]. Dieser Begriff ist etwas irreführend, da es sich dabei nicht um strahlende Übergänge zwischen angeregten Zuständen, sondern um einen nichtlinearen 3-Wellen-Prozeß handelt. Manchmal wird daher auch der Begriff parametrische Fluoreszenz verwendet [16]. Dabei zerfällt ein kurzwelliges Photon mit  $\omega_3$  in zwei langwelligere mit  $\omega_1$  und  $\omega_2$ , es gilt wieder  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Die Initialphotonen für diesen Verstärkungsvorgang liefert das Quantenrauschen.

### 4.1 Gruppengeschwindigkeitsanpassung bei der Superfluoreszenz

Bei der Superfluoreszenz tritt Selbstanpassung auf, d.h. der Winkel Pumpe-optische Achse wird vorgeben und die Richtungen von Signal und Idler stellen sich spontan so ein, daß minimales GVM und  $\Delta k$  vorliegen. Diese Winkel  $\Theta_{sig}$  und  $\Theta_{idl}$  zum Pumpstrahl ergeben bei Typ I Phasenanpassung (e-oo) Kegelmäntel mit Öffnungswinkeln  $2\Theta_{sig}$  bzw.  $2\Theta_{idl}$  in deren Richtung verstärkt wird (Abb. 4.1). Der langwelligere Kegel liegt im IR, und ist schwerer zu beobachten. Für verschiedene Kristallstellungen werden verschiedene Kombinationen  $\omega_1$  und  $\omega_2$  bevorzugt, wodurch sich unterschiedliche Öffnungswinkel des Kegels ergeben. Abb. 4.2 zeigt, wie die in Abschnitt 3.2 behandelten Gruppengeschwindigkeitseffekte den Öffnungswinkel des Kegels beeinflussen.

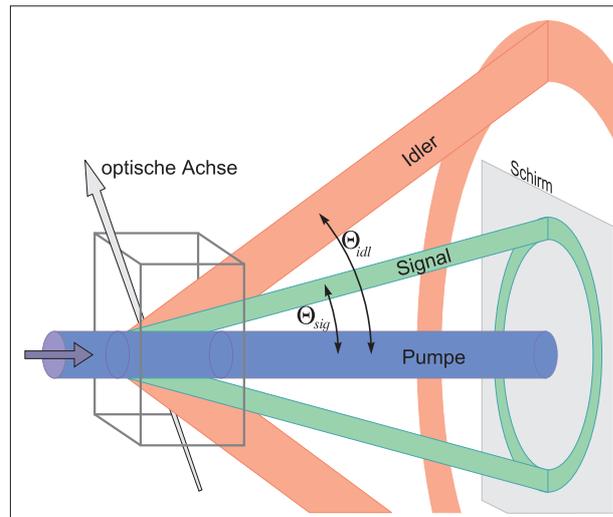


Abbildung 4.1: Durch Selbstanpassung stellen sich bei der Superfluoreszenz die Richtungen von Signal und Idler selbst so ein, daß ein Kompromiss zwischen  $\Delta k$  und GVM besteht. Signal und Idler lassen sich dann unter einer Vorzugsrichtung zur Pumpe beobachten.

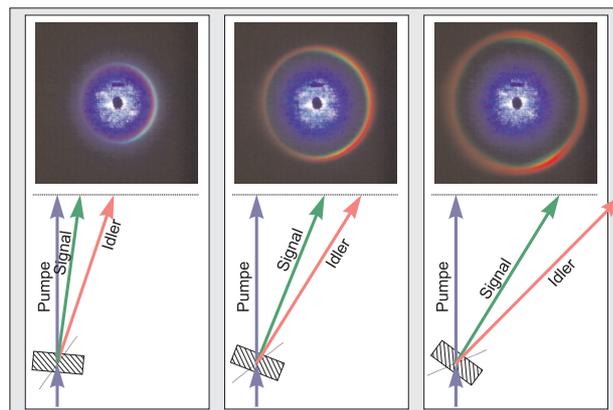


Abbildung 4.2: Prinzip der Gruppengeschwindigkeitsanpassung zwischen der Pumpe, Signal und Idler für verschiedene Wellenlängenkombinationen. Die Pfeile zeigen die prinzipiellen Richtungsverhältnisse der Gruppengeschwindigkeiten, die Fotos zeigen den Schirm für diesen Fall. Die Wellenlänge des Signalpulses (grün) und der Öffnungswinkel des Kegels nehmen von links nach rechts zu.

## 4.2 Experimentelle Realisierung

Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 4.3 a) gezeigt. Die Pulsenergie der Fundamentalen betrug  $252 \mu\text{J}$  bei 64 fs Pulsbreite. Die Pulsenergie der SHG betrug  $40 \mu\text{J}$ . Der SHG-Puls wurde mit einer

langbrennweitigen Linse ( $f=393$  mm) fokussiert, der 1 mm BBO-Kristall stand etwa 5 mm hinter dem Fokus, da sonst Schäden auftreten können. Der Kristall ist bei  $29^\circ$  zur optischen Achse geschnitten. Die Polarisation der SHG muß außerordentlich sein, d.h. die Polarisationsrichtung liegt in der Ebene aus optischer Achse und Einfallsrichtung. Bei kleinen Winkeln der Kristallnormalen zum Pumpstrahl kann man auf einem Schirm hinter dem Kristall den sichtbaren Kegel der Superfluoreszenz beobachten (Abb. 4.3 b)). Der infrarote Idlerkegel wurde nicht nachgewiesen.

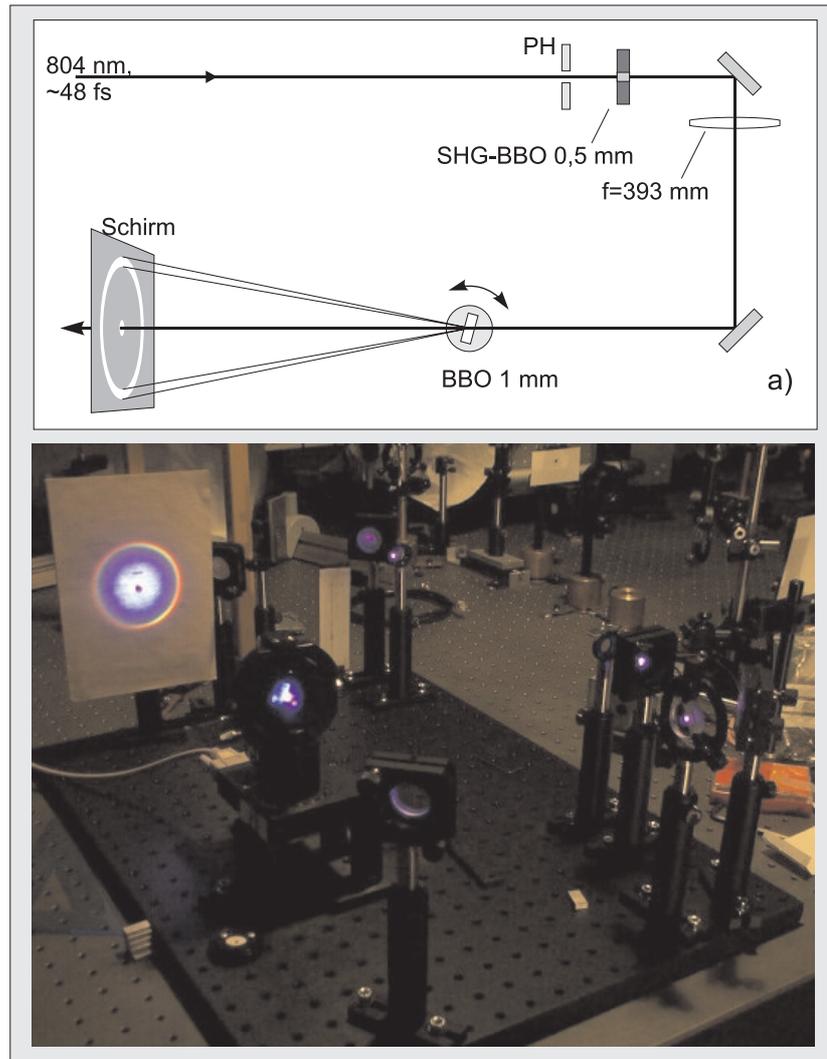


Abbildung 4.3: a) Experimenteller Aufbau zur Beobachtung der Superfluoreszenz. Der BBO Kristall in dem die  $400$  nm Pumpe zerfällt, steht etwa  $5$  mm hinter dem Fokus, da die Intensität sonst über der Zerstörschwelle liegen würde. b) Foto des Aufbaus. In den Schirm wurde für den Pumpstrahl ein Loch geschnitten, damit dieser den Signalkegel nicht überstrahlt.

## Kapitel 5

# Weißlichtkontinuum

Wie in Kapitel 4 gezeigt wurde, tritt parametrische Verstärkung auch ohne Initialpuls auf, wenn das Quantenrauschen die ersten Photonen für die Verstärkung liefert [25]. Für NOPAs, die sehr kurze Pulse erzeugen sollen, wird dagegen ein breitbandiges Kontinuum als Initialpuls verwendet [13, 12, 14, 15, 17]. Im folgenden soll kurz auf die Entstehung des Weißlichts eingegangen und eine Methode zur Bestimmung der zeitlichen und spektralen Phase des Weißlichts beschrieben werden. Dazu wurden zuerst die Parameter der Phase im Zeitbereich bestimmt und dann in den Frequenzbereich transformiert. Die Parameter der Phase im Zeitbereich wurden außerdem verwendet, um das elektrische Feld des NOPA-Ausgangs näherungsweise zu berechnen und den Prismenkompressor für den NOPA optimal zu planen. Dieses Vorgehen wird im Einzelnen in Abschnitt 6.3 und 6.4 beschrieben.

### 5.1 Erzeugung des Weißlichtkontinuums

Zur Erzeugung des Weißlichts verwendet man folgendes Schema: ein Laserpuls wird in ein transparentes Medium wie Wasser, Saphir oder Quarz fokussiert. Abb. 5.1 zeigt das Spektrum eines auf diese Weise erzeugten Weißlichtpulses. Das vorher schmalbandige Laserspektrum wird dabei in ein äußerst breitbandiges Spektrum konvertiert, mit Wellenlängen vom UV über den sichtbaren Bereich bis ins IR [28]. Die Mechanismen, die daran beteiligt sind, sind komplex und selbst noch Gegenstand der Forschung. Von den beteiligten nichtlinearen Effekten spielt die Selbstphasenmodulation (SPM) die Hauptrolle, weiterhin treten Selbstfokussierung und eine Reihe anderer nichtlinearer Prozesse auf [23]. Der Effekt der Weißlichtgenerierung tritt nur oberhalb einer bestimmten Schwellenintensität auf [29]. Wegen der Dispersion im Medium hat das Weißlicht eine positive

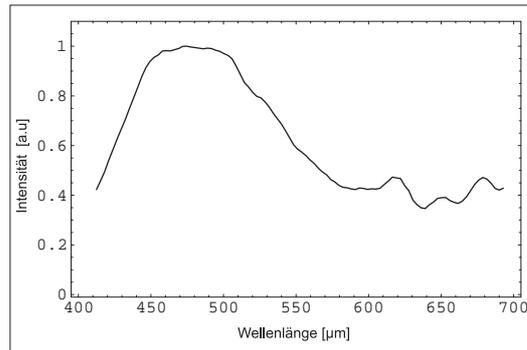


Abbildung 5.1: Typisches Weißlichtspektrum. Das Spektrum wurde erzeugt, indem ein Puls bei 800 nm in eine 1,3 mm dicke Quarzglasplatte fokussiert wurde.

Frequenzmodulation<sup>1</sup>, das heißt die langwelligeren Spektralkomponenten laufen den kürzerwelligen voraus. Wie in Kapitel 6 gezeigt wird, ist diese zeitliche Frequenzmodulation eine Möglichkeit zur Auswahl des zu verstärkenden Wellenlängenbereichs. Da die verstärkten Pulse komprimiert werden sollen, ist die Kenntnis der Frequenzmodulation von Interesse für die Planung eines Kompressors und der Verzögerungs-Strecke im NOPA. Besondere Bedeutung haben die Parameter der Frequenzmodulation wenn das Weißlicht vorkomprimiert werden soll [17].

Untersuchungen zu den Kohärenzeigenschaften des Weißlichts haben eine determinierte Phasenbeziehung zum Erzeugerpuls ergeben [30]. Diese Kohärenz ist wichtig für die Nutzung in einem NOPA (Kapitel 6).

## 5.2 Messung eines Spektrogramms mittels optischem Kerr-Effekt

Abb. 5.2 a) zeigt den experimentellen Aufbau. Die Anordnung ist gleich der eines NOPA, wobei keine SHG erzeugt wird und der nichtlineare Kristall zur Differenzfrequenzzeugung durch eine Quarzglasplatte von 1,3 mm Dicke, das Kerr-Medium, ersetzt wurde. Die Laserquelle ist ein Ti:Sa-Laser der Pulse bei 804 nm mit einer Pulsbreite von 64 fs bei 1 kHz Wiederholfrequenz liefert. Die Anfangspulsenergie beträgt 165  $\mu\text{J}$ . Ein kleiner Teil davon wird mit einer dünnen Glasplatte abgelenkt und mit einem variablen Abschwächer weiter auf etwa 1,5  $\mu\text{J}$  abgeschwächt. Dieser Teil wird dann zur Weißlichterzeugung in eine Quarzglas- (1,3 mm dick) oder Saphirplatte (1 mm dick) fokussiert, die zur genauen Abstimmung der Intensität auf einem Mikrometertisch befestigt ist.

<sup>1</sup>engl.: chirp

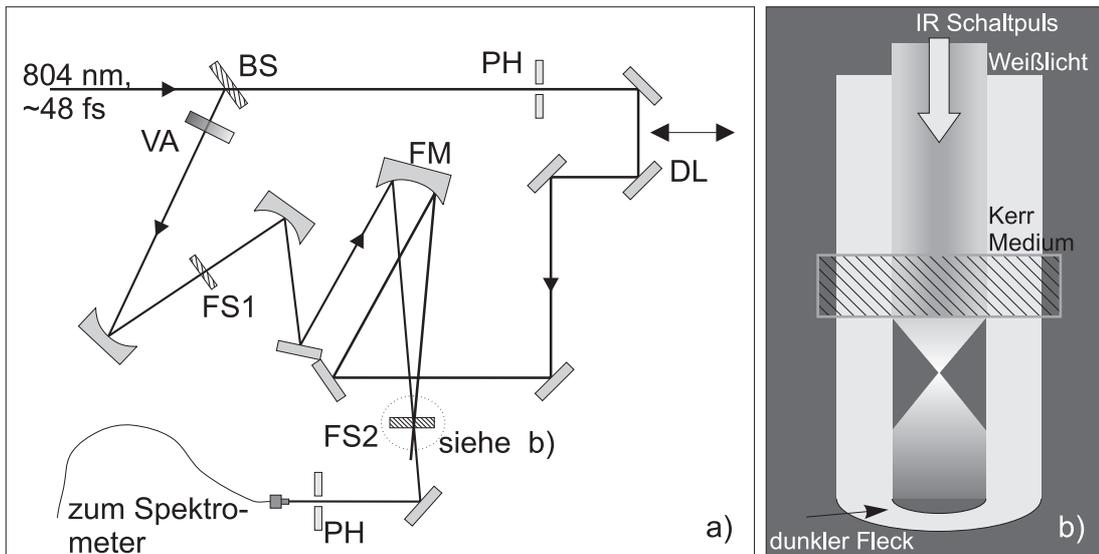


Abbildung 5.2: a) Experimenteller Aufbau. BS: Strahlteiler, VA: variabler Abschwächer, FS1: Quarzglasplatte zur Weißlichterzeugung, DL: Verzögerungsstrecke, FM: Fokussierspiegel, FS2: Quarzplatte die als Kerr-Schalter benutzt wird, PH: Apertur; b) Der Schaltimpuls erzeugt eine Gradienten-Index-Linse im Kerr-Medium, der so fokussierte Teil des Weißlichts fehlt dann im dunklen Fleck. Das verbleibende Spektrum im Fleck wurde gemessen.

Der Hauptteil (Schaltimpuls) des Anfangspulses wird durch eine Apertur (mit Abschwächung der Pulsenergie auf etwa  $50 \mu\text{J}$ ), eine Verzögerungsstrecke und einen Fokussierspiegel mit  $f = 230 \text{ mm}$  auf das Kerr-Medium gelenkt. Über den gleichen Spiegel wird das kollimierte Weißlicht auf das Kerr-Medium fokussiert. Beide Strahlen überlappen sich in diesem zweiten Plättchen, das etwa  $25 \text{ mm}$  vor dem eigentlichen Fokus steht. Der Abstand zum Fokus wurde gerade so gewählt, daß die Intensität des Schaltimpulses so hoch wie möglich ist, ohne Weißlicht zu generieren. Der Schaltimpuls erzeugt im Quarzglas durch optischen Kerr-Effekt eine Gradienten-Index-Linse entsprechend dem Intensitätsprofil des Strahls. Aufbau und Abbau der induzierten Linse folgen fast instantan dem zeitlichen Intensitätsverlauf des  $804 \text{ nm}$  Schaltimpulses [31]. Der Teil des Weißlichtkontinuums, der das Kerr-Medium zur gleichen Zeit wie der Schaltimpuls passiert<sup>2</sup>, wird durch die induzierte Linse fokussiert (Abb. 5.2 b)). Wenn die Brennweite dieser Linse kleiner als der Abstand zum Schirm ist, kann man dort einen dunklen Fleck in dem vorher gleichmäßigen Weißlichtprofil erkennen. Abb. 5.3 zeigt das Aussehen dieses Flecks für verschiedene Verzögerungen des Schaltimpulses. Man erkennt hier auch visuell, daß die langwelligeren den kurzwelligen Spektralanteilen vorausseilen.

<sup>2</sup>Da der Weißlichtpuls frequenzmoduliert ist, kommen die einzelnen Spektralkomponenten zu verschiedenen Zeiten im Kerr-Medium an - zuerst rot, später blau.



Abbildung 5.3: Das Weißlichtprofil für verschiedene Delays. Die Gradientenindexlinse schneidet die spektralen Anteile, die zeitlich mit dem Schaltimpuls überlappen heraus. Die Farbe des dunklen Flecks auf dem Schirm entspricht den verbliebenen Komponenten. Ganz links überlappt der Schaltimpuls mit der Front des Weißlichts. Dann fehlen die langwelligen Anteile und der Fleck ist blau. Rechts fehlen die blauen Anteile, die später folgen, und der Fleck erscheint rot.

Das verbliebene Spektrum (mit den fehlenden Spektralkomponenten) in diesem Fleck wurde für jeden Delay-Schritt gemessen und vom ungestörten Weißlichtspektrum abgezogen. Ergebnis waren Verteilungen  $S(t, \lambda)$  wie in Abb. 5.5 a) für ein Quarzplättchen zur Weißlichterzeugung und einem 0,5 mm BBO Kristall im Strahlengang des Weißlichts. Dieses zusätzliche dispersive Element wurde eingeführt, um die Parameter der Frequenzmodulation des NOPA Ausgangs zu erhalten. Dazu kann man annehmen, daß die Phasenmodulationen durch Dispersion mit und ohne Verstärkung gleich sind. Die Spektrogramme wurden dann in die Darstellung  $S(t, \omega)$  mit der Frequenz relativ zur Schwerpunktsfrequenz umgewandelt und durch Filterung geglättet (Abb. 5.5 b)).

### 5.3 Simulation der Gradienten-Index-Linse

Um abzuschätzen, ob der in Abb. 5.2 b) skizzierte Strahlenverlauf der Realität entsprechen kann, sollte die induzierte Gradientenindexlinse mit Zemax simuliert werden. Mit diesem Optikdesign-Programm kann man auch Strahlengänge durch diese sog. Gradient-Index-(Grin-)<sup>3</sup>Linsen simulieren.

Das gaußförmige Intensitätsprofil des Schaltimpulses wird durch die Apertur mit dem Radius  $r_{aper}$

<sup>3</sup>engl.: Gradientenindex

verändert:

$$I(r) = \begin{cases} I_0 e^{-2r^2/r_s^2} & \text{für } r \leq r_{aper} \\ 0 & \text{für } r > r_{aper}. \end{cases} \quad (5.1)$$

Dabei ist  $r_s$  der Radius, bei dem die Intensität auf  $1/e^2$  abgenommen hat. Im Experiment war  $r_s$  etwa 3 mm und  $r_{aper}$  etwa 1,5 mm. Damit läßt sich das Intensitätsprofil näherungsweise durch eine Parabel beschreiben, die für  $r > r_{aper}$  null wird:

$$I(r) = \begin{cases} I_0 - I_0 \frac{2r^2}{r_s^2} & \text{für } r \leq r_{aper} \\ 0 & \text{für } r > r_{aper}. \end{cases} \quad (5.2)$$

Der von der Intensität abhängige Brechungsindex des optischen Kerr-Effekts wird beschrieben durch [20]

$$n(I) = n + \frac{3Z_0}{\epsilon_0 n} \chi^{(3)} I = n + n_2 I, \quad (5.3)$$

mit  $n$  dem linearen Brechungsindex,  $Z_0$  dem Wellenwiderstand des Vakuums,  $\chi^{(3)}$  der Suszeptibilität dritter Ordnung und  $n_2$  dem nichtlinearen Brechungsindex. Für Quarz ist  $n = 1,48$  und  $n_2 \approx 3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ . Damit lassen sich die Parameter für eine Grin-Linse mit parabolischem Verlauf des Brechungsindex in Zemax bestimmen. Der Strahlenverlauf wurde für ein Strahlenbündel bei 550 nm berechnet. Abb. 5.4 zeigt den Querschnitt des Strahlenbündels nach 10 cm Weg hinter der Grin-Linse. In der Mitte wurden die Strahlen fokussiert und laufen nun stärker auseinander. Außerhalb der induzierten Grin-Linse bleibt das Strahlenbündel weitgehend unbeeinflusst. Dadurch bildet sich der in Abschnitt 5.2 besprochene dunkle Fleck. Die Simulation rechtfertigt damit die in Abb. 5.2 b) skizzierte Modellvorstellung. Es sei aber darauf hingewiesen, daß diese Simulation nur der Abschätzung dienen sollte, ob ein solcher Effekt auftreten kann. Die Simulation ist sicher mit einem großen Fehler behaftet (50%).

## 5.4 Auswertung des Spektrogramms

Die helle Region in Abb. 5.5 b) entspricht dem Frequenzbereich, der zeitlich mit dem Schaltimpuls überlappt. Abb. 5.5 b) kann daher als Spektrogramm  $S(t, \omega)$  des Weißlichts betrachtet werden. Es zeigt, welche Frequenzen zu welcher Zeit auftreten. Das Spektrogramm zeigt positive Frequenzmodulation, was nach Durchgang durch dispersive Medien zu erwarten ist. Für das Spektrogramm in Abb. 5.5 b) bedeutet das, die helle Region verläuft von der unteren linken Ecke (niedrigere Frequenzen eher) zur rechten oberen Ecke (höhere Frequenzen später).

Das Spektrogramm ist definiert als [23]:

$$S(\omega, t) = \left| \int d\tau E(\tau) K(\tau - t) e^{-i\omega\tau} \right|^2. \quad (5.4)$$

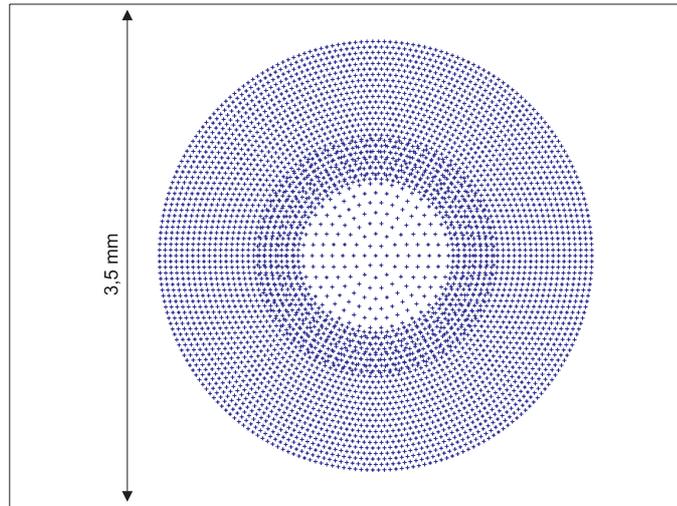


Abbildung 5.4: Ergebnis der Rechnungen mit Zemax. In der induzierten Grinlinse wird ein Teil des Weißlichts zusätzlich fokussiert und fehlt in größerem Abstand dann im vorher gleichmäßigen Weißlichtprofil. Das Bild zeigt ein simuliertes Strahlenbündel des Weißlichts auf einem Schirm 10 cm hinter der Grin-Linse.

$K(t)$  ist der Kern des Spektrogramms. Der Kern ist auf Grund der Geometrie eine relativ komplizierte Funktion des Schaltimpulses. Unter der einfachen Annahme, daß das Herausschneiden der Spektralkomponenten nur vom Kerr-Effekt abhängig ist, hat der Kern die Form

$$K(t) = |h(t)|^2, \quad (5.5)$$

mit  $h(t)$  dem elektrischen Feld des Schaltimpulses. Diese Form des Kerns vernachlässigt Effekte wie z.B. das Fokussieren oder die mögliche Sättigung nichtlinearer Prozesse. So kann der Exponent in  $|h(t)|^2$  auch verschieden von 2 sein. Im Folgenden wird angenommen, daß  $h(t)$  dem elektrischen Feld des Schaltimpulses entspricht, die gemessene Intensität im Spektrogramm also nur vom Kerreffekt abhängt. Um die exakte Struktur des Kerns zu bestimmen sind genauere Untersuchungen nötig. Es zeigt sich, daß die Annahmen für den Kern gerechtfertigt sind, da man im Wesentlichen an der Phasen- und nicht an der Amplitudenstruktur des Weißlichts interessiert ist.

#### 5.4.1 Zeitbereich

Im Prinzip können Amplitude und Phase direkt aus dem Spektrogramm extrahiert werden [32]. Dazu muß aber der Kern des Spektrogramms mit hoher Genauigkeit bekannt sein. Versuche das Spektrogramm direkt zu invertieren, scheiterten an numerischen Effekten und der niedrigen Genauigkeit der Messungen. Stattdessen wurden Methoden verwendet, die auch verrauschte Signale

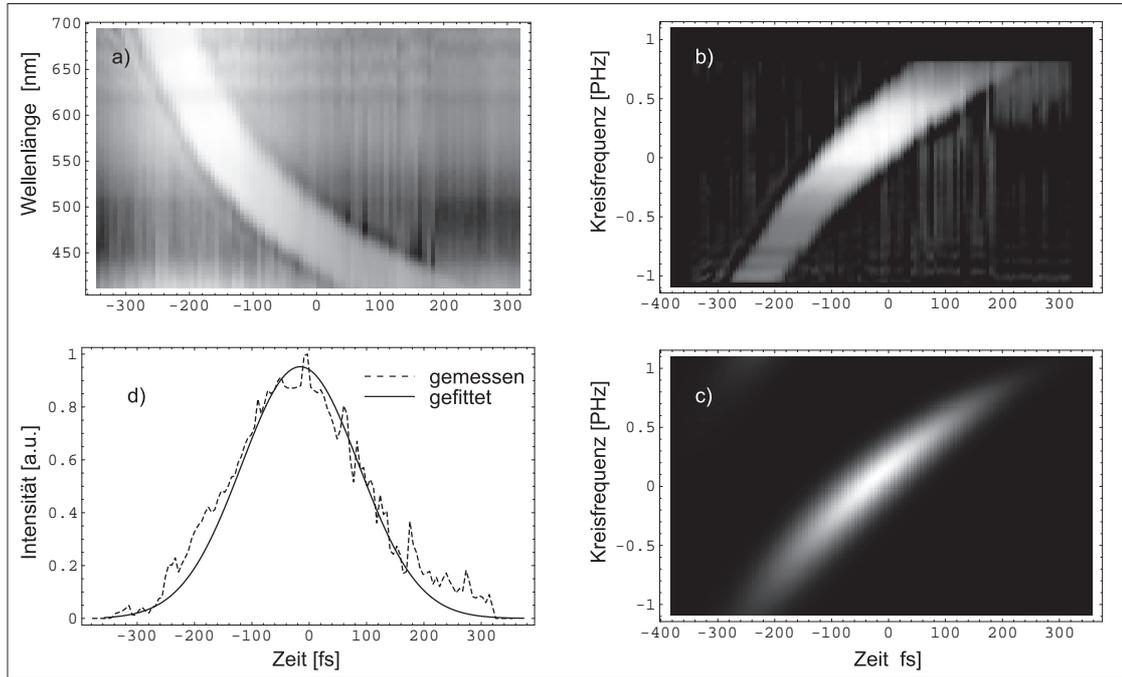


Abbildung 5.5: a) Gemessenes Spektrogramm  $S(t, \lambda)$  für 1.3 mm Quarz Platte und zusätzlichen 0,5 mm BBO Kristall; b) Spektrogramm a) konvertiert zu  $S(t, \omega)$  und gefiltert mit der Kreisfrequenz relativ zur Schwerpunktsfrequenz  $\omega_0$ ; c) Bester Fit an Spektrogramm b). Das angepasste numerische Spektrogramm liefert die Parameter der Frequenzmodulation in Glch. (5.8); d) Kreuzkorrelationsintensitäten über der Zeit. Diese Kurven wurden durch Addieren über die Frequenz aus den Spektrogrammen b) (gemessen) und c) (gefittet) erhalten. Die Übereinstimmung bestätigt die verwendete Auswertmethode.

gut auswerten können.

In der Literatur werden verschiedene Konventionen zur Beschreibung von Frequenzmodulationen benutzt [33, 23]. Das elektrische Feld läßt sich durch folgenden Ausdruck beschreiben:

$$E(t) = A(t)e^{i\Phi(t)} + \text{c.c.} \quad (5.6)$$

wobei  $A(t)$  und  $\Phi(t)$  die zeitabhängige Amplitude und Phase sind. Das Ziel ist es jetzt, diese Phase aus Abb. 5.5 b) zu bestimmen. Da das Spektrogramm gekrümmt ist, die instantane Frequenz also mindestens eine Funktion zweiter Ordnung der Zeit ist, muß die Phase mindestens dritter Ordnung sein, da gilt:

$$\omega_{inst}(t) = \frac{d\Phi(t)}{dt} \quad (5.7)$$

Damit kann (5.6) durch

$$E(t) \approx e^{-a^2 t^2} e^{i(\omega_0 t + \frac{1}{2} \phi^{(2)} t^2 + \frac{1}{6} \phi^{(3)} t^3)} \quad (5.8)$$

angenähert werden, wenn eine gaußförmige Einhüllende angenommen und die Phase in eine Taylor-Reihe entwickelt wird.

Eine Abschätzung für die Phasenterme in (5.8) erhält man, wenn die instantane Frequenz aus dem Spektrogramm extrahiert, und an die Kurve

$$\omega_{inst}(t) = \omega_0 + \phi^{(2)}t + \frac{1}{2}\phi^{(3)}t^2 \quad (5.9)$$

angefittet wird. (5.9) ergibt sich aus (5.7) und (5.8).  $\omega_{inst}(t)$  kann man bestimmen, indem die Beziehung

$$\omega_{inst}(t) = \frac{\int \omega S(t, \omega) d\omega}{\int S(t, \omega) d\omega} \quad (5.10)$$

verwendet wird. Danach ist die instantane Frequenz das erste Moment der Frequenzverteilung zu einer bestimmten Zeit. Weil der Messbereich nur auf den sichtbaren Bereich beschränkt wurde, macht sich bei dieser Methode das Abschneiden des Spektrogramms negativ bemerkbar. Eine bessere Abschätzung ergibt sich, wenn Punkte von Hand in das Spektrogramm gelegt und diese an die Kurve (5.9) angefitet werden. In Abb. 5.6 werden diese und die im Folgenden beschriebene Methode verglichen.

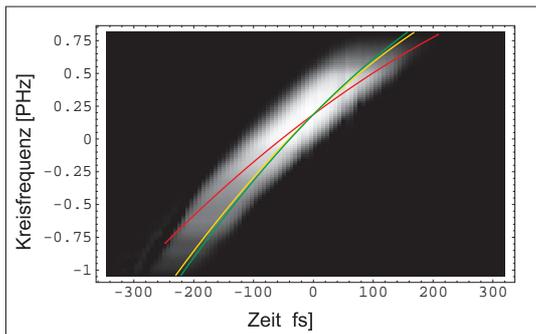


Abbildung 5.6: Vergleich der Auswertmethoden. rot:  $\omega_{inst}$  nach (5.10), wegen Beschneidung des Spektrums bei langen/kurzen Wellenlängen kommt es zu Abweichungen von den anderen Kurven; gelb: von Hand in das Spektrogramm gelegte Punkte wurden angefitet; grün:  $\omega_{inst}$  durch Anfiten eines numerischen Spektrogramms an die Messung.

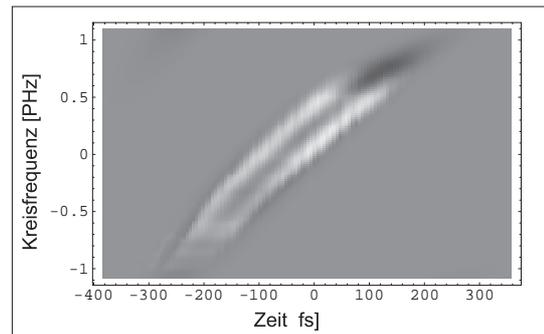


Abbildung 5.7: Differenz zwischen Abb. 5.5 b) und Abb. 5.5 c). Der Betrag der maximalen Abweichung der auf eins normierten Spektrogramme beträgt 0,4. Hauptsächlich erkennt man, daß Anstieg und Krümmung übereinstimmen, also die Phasenparameter richtig bestimmt wurden.

Die reproduzierbarste Methode zur Bestimmung der Parameter der Frequenzmodulation war das Anfiten eines numerisch berechneten Spektrogramms an das gemessene. Es sollte der Parametersatz für (5.8) gefunden werden, für den die Summe der Fehlerquadrate zwischen gemessenem und berechnetem Spektrogramm minimal ist.

Ein Spektrogramm, das durch optischen Kerr-Effekt erhalten wird, ist definiert durch (5.4) mit der vereinfachten Annahme, daß  $h(t)$  das elektrische Feld des Schaltimpulses ist. Da der Kerr-Effekt von der Intensität  $I_h(t) \approx |h(t)|^2$  des Schaltimpulses abhängt, kann  $h(t)$  als Einhüllende beschrieben werden:

$$h(t) = e^{-a_g^2 t^2} \quad (5.11)$$

Das elektrische Feld des Kontinuums in (5.4) soll durch Glch. (5.8) beschrieben werden. Mit einem Term dritter Ordnung im Exponenten kann das Integral in (5.4) nicht analytisch gelöst werden. Deshalb wurde numerisch, unter Ausnutzung des FFT<sup>4</sup>-Algorithmus gerechnet [34]. Die Dauer des Schaltimpulses  $a_g$  ist bekannt. Damit hängt das berechnete Spektrogramm von fünf Parametern ab:  $\Phi^{(2)}$ ,  $\Phi^{(3)}$ ,  $a$  und  $t_0$  sowie  $\omega_0$ , wobei die beiden letzten lediglich eine relative Verschiebung von Messung zu Rechnung bedeuten. Die fünf Werte wurden simultan solange variiert, bis im Rahmen des vorgegebenen Präzisionsziels die beste Anpassung des Spektrogramms gefunden wurde. Abb. 5.5 c) zeigt das beste angepasste Spektrogramm für die Messung in Abb. 5.5 b). In Abb. 5.7 ist die Differenz zwischen Abb. 5.5 b) und Abb. 5.5 c) dargestellt. Es zeigt sich deutlich, daß der Anstieg und die Krümmung des gemessenen Spektrogramms richtig angepasst wurden. Die Breite des hellen Streifens hängt im Wesentlichen von der Pulsbreite des Schaltimpulses und der richtigen Beschreibung des Kerns ab. Sie ist aber nicht kritisch für die Bestimmung der Parameter der Frequenzmodulation.

Integration über die Frequenz im Spektrogramm liefert die Intensität der Kreuzkorrelation zwischen Schalt- und Weißlichtpuls

$$I_{corr}(t) = \int d\omega S(\omega, t). \quad (5.12)$$

In Abb. 5.5 d) sind die auf diese Weise berechneten Kreuzkorrelationen für das gemessene und das gefittete Spektrogramm dargestellt. Daß beide gut übereinstimmen, bestätigt nochmals die verwendete Auswertmethode.

## 5.4.2 Frequenzbereich

Für die eigentliche Verwendung des Weißlichts, das zu verstärkende Signal eines NOPAs mit nachfolgender Pulskompression zu liefern, ist die frequenzabhängige Phase  $\phi(\omega)$  von Interesse. Wie bei der Berechnung des Spektrogramms schon gesagt, kann man eine Exponentialfunktion mit einer Phase dritter Ordnung wie (5.8) nicht analytisch Fourier-transformieren. Deshalb wurden die Parameter  $\Phi^{(2)}$ ,  $\Phi^{(3)}$  und  $a$  verwendet, um eine numerische Darstellung des elektrischen Feldes mit der FFT zu transformieren. Die Phase  $\phi(\omega)$  der Form

$$\phi(\omega) \approx \phi_0 + \phi_1 \omega + \frac{1}{2} \phi_2 \omega^2 + \frac{1}{6} \phi_3 \omega^3 \quad (5.13)$$

---

<sup>4</sup>engl.: Fast Fourier Transformation - Schnelle Fourier Transformation

Material	$\lambda_0$ [nm]	$\Delta\lambda$ [nm]	$\Delta\tau$ [fs]	$\Phi^{(2)}$ [fs <sup>-2</sup> ]	$\Phi^{(3)}$ [fs <sup>-3</sup> ]	$\phi_2$ [fs <sup>2</sup> ]	$\phi_3$ [fs <sup>3</sup> ]	$\phi_2^{calc}$ [fs <sup>2</sup> ]	$\phi_3^{calc}$ [fs <sup>3</sup> ]
Saphir 1.0 mm	521	250	68	0.011	$-7.9 \cdot 10^{-5}$	-98	-45	-108	-42
Quarz 1.3 mm	502	280	98	0.012	$-8.6 \cdot 10^{-5}$	-81	-22	-94	-35
Quarz 2.6 mm	516	270	129	0.010	$-5.0 \cdot 10^{-5}$	-98	-25	-180	-72
Quarz 1.3mm+BBO	502	280	227	0.0046	$-8.2 \cdot 10^{-6}$	-224	-64	-240	-85

Tabelle 5.1: Gemessene Werte der Phasenmodulation im Zeit- und Frequenzbereich.  $\phi_2^{calc}$  und  $\phi_3^{calc}$  wurden für einen bandbreitenbegrenzten Puls mit dem Spektrum des Weißlichts berechnet [35], der durch die beteiligten dispersiven Elemente läuft.

wurde dann aus den numerischen Phasenwerten bestimmt. Die Werte von  $\phi_0$  and  $\phi_1$  bedeuten lediglich eine Zeitverschiebung. Zur Planung eines möglichst angepassten Pulscompressors in Abschnitt 6.4 wurden die Werte  $\phi_2$  und  $\phi_3$  für das verstärkte Signal des NOPA in einem ähnlichen Verfahren aus  $\Phi^{(2)}$  und  $\Phi^{(3)}$  berechnet. Sie wurden in einer Simulation verwendet, um den Prismencompressor zu optimieren und möglichst kurze Pulse zu erzeugen (Abs. 6.3 und 6.4).

Da im Spektrogramm aber Zeit und Frequenz prinzipiell gleichberechtigt sind, kann man  $\phi(\omega)$  auch ohne den Umweg über eine Darstellung im Zeitbereich finden. Dazu setzt man in (5.4) das elektrische Feld in der Form

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega E(\omega) e^{i\omega t}, \quad (5.14)$$

also die Fouriertransformierte ein. Ergebnis ist das Spektrogramm in der Form

$$S(\omega, t) = \left| \int d\omega' E(\omega - \omega') |h(\omega')|^2 e^{-i\omega' t} \right|^2. \quad (5.15)$$

Zur Bestimmung der Phasenparameter  $\phi_i(\omega)$  geht man dann analog dem beschriebenen Verfahren für die  $\Phi^{(i)}(t)$  vor.

## 5.5 Ergebnisse für das unverstärkte Weißlicht

In Tabelle 5.1 sind die Werte für  $\Phi^{(2)}$ ,  $\Phi^{(3)}$  (Zeitbereich) sowie  $\phi_2$ ,  $\phi_3$  (Frequenzbereich) für einige der untersuchten Materialien dargestellt.  $\Delta\tau$  ist die zeitliche Breite (FWHM) des Weißlichtpulses, definiert durch  $a$  in (5.8).

$\phi_2^{calc}$  und  $\phi_3^{calc}$  in Tabelle 5.1 sind mit Lab2 [35] berechnete Werte unter der Annahme, daß ein bandbreitenbegrenzter Puls mit der Schwerpunktswellenlänge  $\lambda_0$  und der Bandbreite  $\Delta\lambda$  durch die entsprechenden Materialien läuft. Die gemessenen Werte für 1 mm Saphir und 1,3 mm Quarz zeigen größenordnungsmäßige Übereinstimmung mit der Simulation. Für die 2,6 mm Quarzplatte

dagegen, sind die berechneten Werte etwa doppelt so groß wie die gemessenen. Der Grund ist offensichtlich, daß das Weißlicht mehr in der Mitte des Quarzes generiert wurde und so nicht die gesamte Phasenmodulation wie nach Durchgang durch 2,6 mm Quarz aufweist. Das bedeutet, daß man die Phaseneigenschaften des Weißlichts auch dadurch beeinflussen kann, in welcher Tiefe im Weißlichtmedium der Fokus liegt. Dieser Punkt muß aber noch ausführlicher untersucht werden.

Die Simulation für das Weißlicht, das zuerst in 1,3 mm Quarz erzeugt wird und dann durch 0,5 mm BBO propagiert, bevor die Phasenwerte bestimmt werden, zeigt 6.7% bzw. 25% Abweichung für  $\phi_2$  und  $\phi_3$ . Um einen Kompressor für die verstärkten NOPA-Pulse zu konfigurieren (Abschnitt 6.4), ist  $\phi_2$  wichtiger als  $\phi_3$ . Die Methode ist daher gut geeignet um die Phaseneigenschaften des Weißlichts im Zeit- und Frequenzbereich zu bestimmen.

## Kapitel 6

# Nichtkollinearer optisch parametrischer Verstärker

### 6.1 Funktionsweise des NOPAs

Zunächst zur prinzipiellen Funktionsweise des NOPA in Abb. 6.1. Ein kleiner Teil der Grundwelle bei 804 nm ( $< 10\mu\text{J}$ ) wird mit einer Quarzplatte abgelenkt. Die Intensität dieses Teil kann über einen variablen Abschwächer genau eingestellt werden. Anschließend läuft dieser Teils über einen Fokussierspiegel in eine Saphirplatte von 1 mm Dicke. Dort wird der Weißlicht-Seed<sup>1</sup> erzeugt (Kap. 5). Die Saphirplatte läßt sich zur Justage der Intensität mit einer Mikrometerschraube in Strahlrichtung verschieben. Das Weißlicht wird mit einem weiteren Hohlspiegel kollimiert, und läuft über einen Umlenkspiegel auf den gemeinsamen Fokussierspiegel von Weißlicht und Pumpe. Der Hauptteil der Grundwelle wird in einem 0,5 mm dicken BBO-Kristall frequenzverdoppelt (Kap. 2). Die Pumpe bei 402 nm wird über drei Umlenkspiegel auf den Fokussierspiegel gelenkt. Pump- und Weißlichtpuls überlappen zeitlich und räumlich im 1 mm dicken BBO-Kristall. Dort läuft die in Kapitel 3 ausführlich besprochene Differenzfrequenzerzeugung ab. Ein Teil des Weißlicht-Seeds wird dabei um einige Größenordnungen verstärkt. Der zeitliche Überlapp zwischen Pumpe und Seed kann durch die Verzögerungsstrecke justiert werden. Der Wellenlängenbereich der im Kristall verstärkten Strahlung kann durch verschiedene Einstellungen festgelegt werden (Absch. 6.2). Der Signalpuls wird mit einem Hohlspiegel  $f=50$  mm kollimiert und im Prismenkompressor komprimiert.

---

<sup>1</sup>engl.: seed - Saat, säen

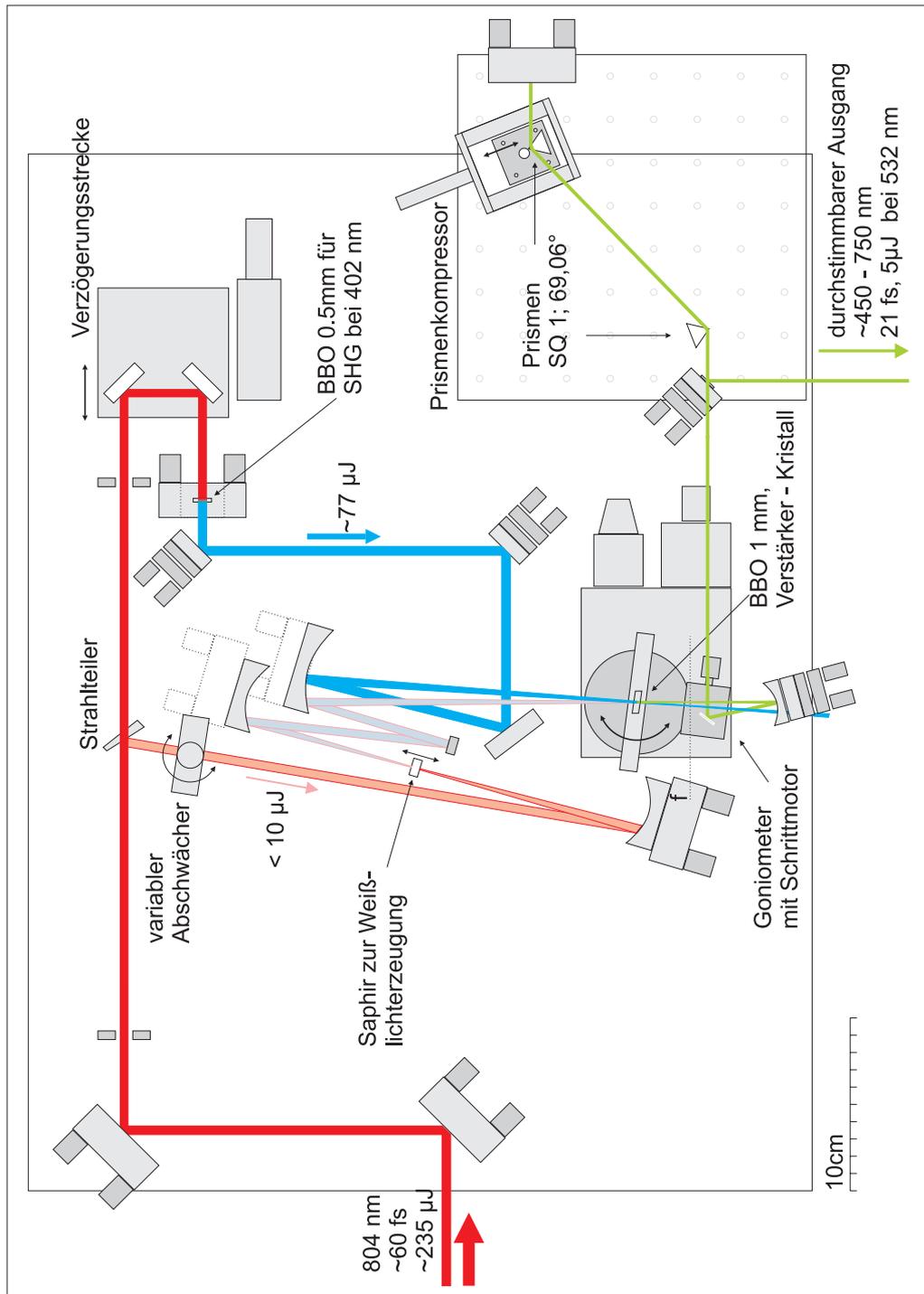


Abbildung 6.1: Maßstäbliche Skizze des NOPA-Aufbaus.

## 6.2 Auswahl der Schwerpunktswellenlänge

Zur Auswahl der Schwerpunktswellenlänge des Signals müssen drei Parameter richtig gewählt werden:

- Über die Verzögerungsstrecke läßt sich der zeitliche Überlapp der 402 nm-Pumpe mit einem bestimmten Teil des frequenzmodulierten Weißlichts einstellen. Will man z.B. größere Wellenlängen verstärken, muß die Verzögerung der Pumpe verringert werden. Dann überlappt diese mit den weiter vorauslaufenden, langwelligeren Anteilen des Weißlichts.
- Um Gruppengeschwindigkeitsanpassung zwischen Signal und Idler herzustellen, muß der Winkel Pumpstrahl-Weißlicht entsprechend den Ausführungen in Kapitel 3 eingestellt werden.
- Der Winkel Pumpstrahl-optische Achse muß ebenfalls wie in Kapitel 3 beschrieben, justiert werden.

Siehe dazu auch Abb. 6.2. Praktisch geht man so vor, daß die erzeugte Strahlung im Spektrometer analysiert wird. Dann werden die oben genannten Parameter justiert, bis bei der gewünschten Signalwellenlänge maximale Umwandlung besteht.

Abb. 6.1 zeigt eine maßstäbliche Skizze des NOPA-Aufbaus mit Puls-Kompressor. Die Verzögerung der Pumpe wird mit einer sehr feingängigen, differentiellen Mikrometerschraube justiert. Der Winkel, unter dem die Pumpe und das Weißlicht in den Verstärkerkristall laufen, wird über eine Parallelverschiebung des Pumpstrahls eingestellt. Dazu nutzt man zwei Umlenkspiegel des Pumpstrahls. Da der Abstand Fokussierspiegel-Kristall bekannt ist, kann man aus dem Querabstand zwischen Pumpe und Weißlicht am Fokussierspiegel den Winkel, unter dem beide Strahlen in den Kristall laufen, abschätzen. Der Winkel Pumpe-optische Achse wird über ein Goniometer mit Schrittmotor geregelt.

## 6.3 Zur Frequenzmodulation des verstärkten Weißlichts

Um den Prismenkompressor zu planen, benötigt man die spektrale Phase des verstärkten Signals, also die Parameter  $\phi_2(\omega)$  und  $\phi_3(\omega)$ . In Kapitel 5 wurde die Frequenzmodulation des Weißlichts auch für den Fall gemessen, daß eine zusätzliche Dispersion durch einen 1 mm dicken BBO-Kristall eingeführt wird. Es kann angenommen werden, daß diese Phasenmodulation während des Verstärkungsvorgangs gleich der ohne Verstärkung ist. In Kapitel 5 wurden die Parameter  $\Phi^{(2)}$  und  $\Phi^{(3)}$  für das *gesamte* Weißlichtspektrum bestimmt. Der NOPA verstärkt aus diesem breiten Spektrum ( $\simeq$ sichtbarer Bereich) einen relativ schmalen Bereich (zwischen 20 und 50 nm). Im Zeitbereich bedeutet das: die Frequenzänderung innerhalb der Einhüllenden des verstärkten Signals

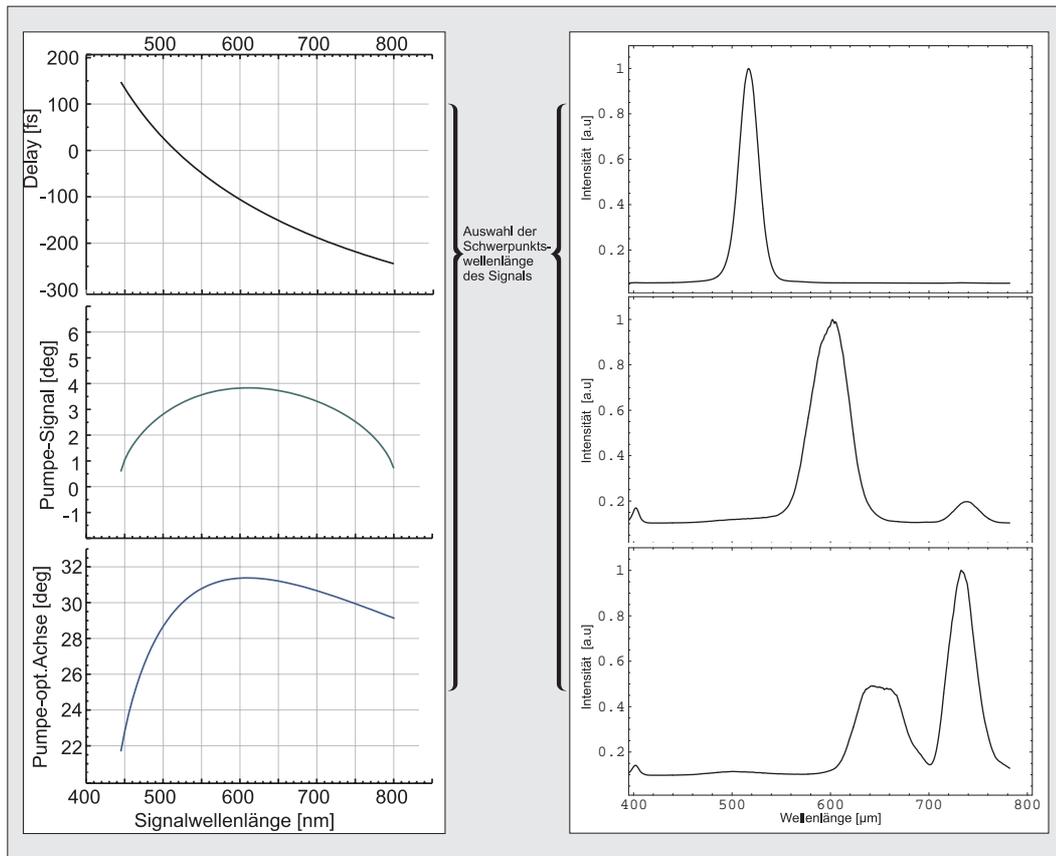


Abbildung 6.2: Zur Auswahl der Schwerpunkswellenlänge. Die Bestimmung der oberen Kurve links wurde in Kap. 5 besprochen. Die unteren beiden Kurven links sind Ergebnis der simultanen Phasen- und Gruppengeschwindigkeitsanpassung in Kap 3. Alle drei Parameter bestimmen die Wellenlänge des Signals. Auf der rechten Seite sind einige gemessene Spektren des NOPAs dargestellt. Beim unteren Spektrum wurde ein Fall dargestellt, bei dem eine Verstärkung zusätzlich noch in einem anderen als dem ausgewählten Bereich stattfindet.

entspricht der des unverstärkten Weißlichts. Das heißt, für das E-Feld des Weißlichts der Form (5.8) ändert sich nur die Einhüllende. Diese neue Einhüllende wird im Wesentlichen von der Pulsform des Pumpimpulses bestimmt. Da dessen Pulsform weitgehend bekannt ist, kann man das E-Feld des NOPA-Ausgangs berechnen. Um daraus die gesuchten Phasenparameter  $\phi(\omega)$  und  $\phi_3(\omega)$  zu bestimmen geht man wie in Abschnitt 5.4.2 vor: Das elektrische Feld wird numerisch in den Frequenzbereich konvertiert<sup>2</sup>. Die Phasenterme werden bestimmt, indem eine Kurve dritter Ordnung der Form (5.13) an die numerischen Werte  $\phi(\omega)$  angepasst wird. Abb. 6.3 faßt diese Methode zusammen.

<sup>2</sup>Wegen der Phasenmodulation dritter Ordnung im Zeitbereich kann man nicht analytisch rechnen.

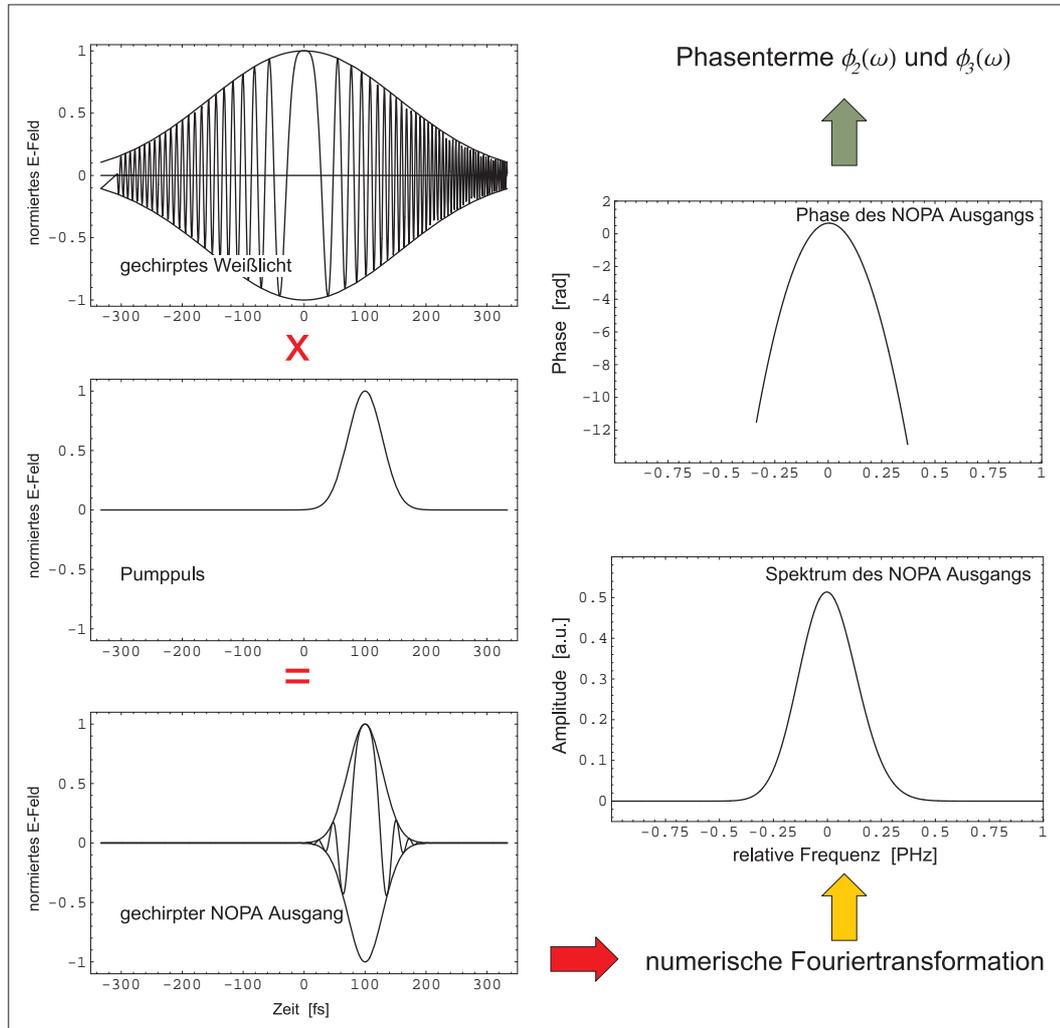


Abbildung 6.3: Zur Bestimmung der Phasenterme des verstärkten Signals. Für die E-Felder ist der Realteil der komplexen Einhüllenden dargestellt, also in der Phase ohne den Term  $i\omega_0 t$ . Daher ist das Spektrum und die spektrale Phase (rechts) um Null zentriert. Aus den Phasentermen  $\phi_2(\omega)$  und  $\phi_3(\omega)$  lassen sich die Parameter des Pulscompressors berechnen.

$\lambda_s$ [nm]	$\Delta\lambda$ [nm]	$\phi_2^{nopa}$ [fs <sup>2</sup> ]	$\phi_3^{nopa}$ [fs <sup>3</sup> ]	$\Delta t_{min}$ [fs]	$\Delta t_{komp}$ [fs]
517,0	23,6	-178,3	-64,3	16,7	18,2
547,0	23,6	-160,6	-53,3	18,7	20,1
599,6	43,4	-142,3	-40,8	12,2	14,2
650,5	54,1	-130,8	-33,2	11,5	13,7
733,8	30,8	-120,6	-27,0	25,8	25,9

Tabelle 6.1:  $\lambda_s$  gemessene Schwerpunktswellenlänge des NOPA Ausgangs;  $\Delta\lambda$  gemessene spektrale Breite;  $\phi_2^{nopa}$  und  $\phi_3^{nopa}$  berechnete Phasenterme 2. und 3. Ordnung des NOPA Ausgangs;  $\Delta t_{min}$  Pulslänge eines bandbreitenbegrenzten Pulses mit diesem Spektrum;  $\Delta t_{komp}$  beste Pulsbreite mit dem optimierten Kompressor in der Lab2-Simulation [35]

## 6.4 Der Prismenkompressor

Zunächst wurden die Spektren bei verschiedenen Schwerpunktswellenlängen ohne Kompression gemessen. In Tabelle 6.1 sind  $\lambda_s$  und  $\Delta\lambda$  für diese Messungen dargestellt. Mit der in Abschnitt 6.3 beschriebenen Methode wurden die Werte  $\phi_2^{nopa}$  und  $\phi_3^{nopa}$  in Tabelle 6.1 bestimmt. Mit diesen Werten wurde in Lab2 der Prismenkompressor für jedes der Spektren in Tabelle 6.1 optimiert. Dazu wurden der Prismenabstand und der Eintritt des Strahls in das erste und zweite Prisma<sup>3</sup> variiert und mit der Methode des Simulated Annealing [36] auf kürzeste Pulse hin optimiert. Da der Kompressor nicht für jeden Wellenlängenwechsel umgebaut werden soll, wurde für die Kompressorlänge und den Eintritt in das erste Prisma der Mittelwert aus den optimierten Werten bestimmt. Mit diesen festen Werten wurden erneut optimale Werte für den Eintritt in das zweite Prisma gesucht. Damit ergab sich folgender optimaler Kompressor:

Prismenabstand :	137 mm
Eintritt Prisma 1 :	1 mm
Eintritt Prisma 2 :	je nach Schwerpunktswellenlänge 1,2 bis 2,4 mm
Eintrittswinkel :	55,7°, entspricht minimaler Abweichung
Prismenwinkel :	69,06°, Winkel zwischen den brechenden Seiten der Prismen
Prismenmaterial :	Quarzglas

<sup>3</sup>Abstand des Strahls von der Prismenkante, genauere Angaben dazu in der Dokumentation von Lab2.

## 6.5 Die komprimierten Pulse, Ergebnisse

Der Prismenkompressor wurde entsprechend den Rechnungen im vorigen Abschnitt gebaut. Zunächst wurde das Zweiphotonensignal mit einer Siliziumcarbidge-Diode (SiC) am Ausgang des NOPAs gemessen. In einer Zweiphotonendiode werden bei jedem Absorptionsvorgang zwei Photonen nahezu gleichzeitig absorbiert, damit wird das Signal proportional  $I(t)^2$  [37]. Die Diode mittelt über die Pulslänge und die Spannung an der Zweiphotonendiode ist dann

$$U_{2ph} \propto \int_{\text{Puls}} I(t)^2 dt. \quad (6.1)$$

Im Gegensatz zum Einphotonensignal ist damit das Signal  $U_{2ph}$  bei minimaler Pulslänge maximal. Damit läßt sich der Kompressor für kurze Pulse optimieren, die Pulslänge läßt sich mit der SiC-Diode allein aber nicht messen.

Zur Messung der Pulslängen wurde ein interferometrischer Autokorrelator verwendet [23, 38]. Der Aufbau des Autokorrelators entspricht dem eines Michelson-Interferometers (Abb. 6.7). Als Detektor wurde eine SiC-Diode zur Messung des Zweiphotonensignals verwendet.

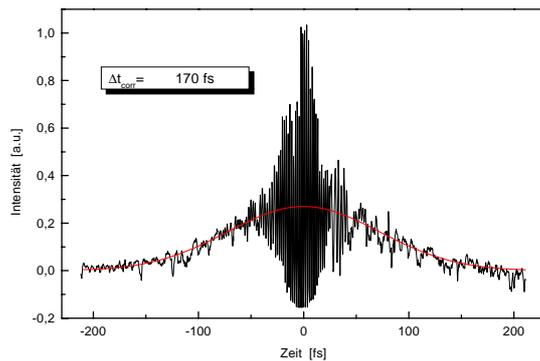


Abbildung 6.4: Chirppter Puls mit  $\Delta t_{FWHM}=120$  fs

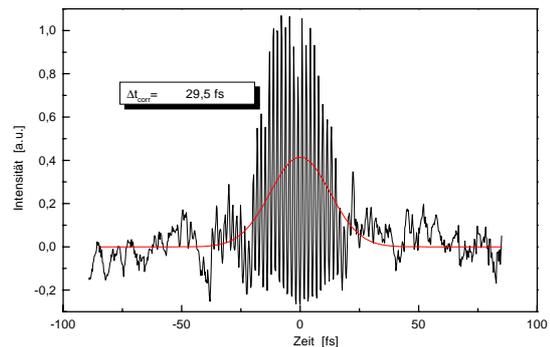


Abbildung 6.5: Komprimierter Puls mit  $\Delta t_{FWHM}=21,2$  fs

Abb. 6.4 zeigt die gemessene Autokorrelationskurve mit dem Kompressor entsprechend Abschnitt 6.4. An der Struktur der Autokorrelation erkennt man eine deutliche Frequenzmodulation. Weiterhin liegt die Pulslänge mit  $\Delta t_{FWHM}=120$  fs weit über dem theoretisch möglichen Wert von rund 18 fs. Hierfür sind die Glaselemente im Autokorrelator verantwortlich. Insgesamt werden, bevor die Teilstrahlen interferieren, etwa 7 mm Glas durchlaufen. Wegen der großen Bandbreite bewirkt das eine starke Verlängerung des Pulses durch Dispersion. Mit Lab2 wurde ein entsprechender bandbreitenbegrenzter Puls simuliert, der ebenfalls durch etwa 7 mm Glas läuft. In der Simulation ist der Puls dann etwa 102 fs lang. Das entspricht größenordnungsmäßig dem gemessenen Wert von 120 fs Pulsbreite. Daraus folgt, daß der Puls im Experiment vor Eintritt in den Autokorrelator

sehr kurz war und erst durch die Glaselemente gestreckt wurde. Die Rechnungen zur Bestimmung der spektralen Phase des NOPA-Signals und des Kompressor-Designs werden damit bestätigt.

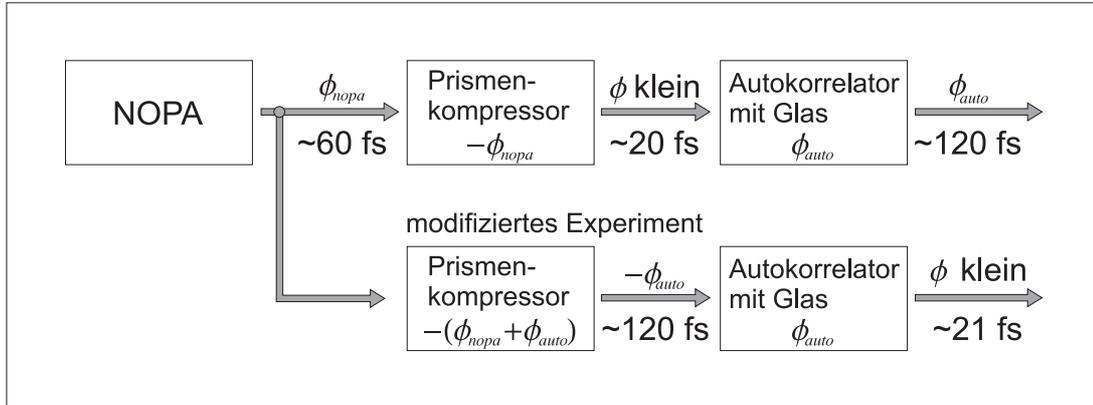


Abbildung 6.6: Zur Modifikation des Prismenkompressors. Der optimierte Kompressor erzeugt zunächst kurze Pulse, diese wurden durch die Glaselemente im Autokorrelator wieder gestreckt. Erst durch Vor-komprimieren der Pulse im modifizierten Experiment (unten) ließ sich die kurze Pulslänge auch mit dem Autokorrelator messen.

Um dieses Ergebnis zu bestätigen, wurde im weiteren der Prismenabstand vergrößert. Motivation für diese Messung war also die Annahme, daß die Pulse erst durch die Glaselemente des Autokorrelators auf 120 fs gestreckt werden. Die Modifikation des Kompressors sollte bewirken, daß die Pulse den Kompressor mit einer negativen Frequenzmodulation verlassen (kurzwelligere Anteile laufen den langwelligeren voraus). Nach Durchlaufen der Glaselemente des Autokorrelators ist diese Frequenzmodulation wieder kompensiert und die Pulse haben minimale Pulsbreiten. Abb. 6.6 zeigt schematisch den Unterschied zwischen den beiden beschriebenen Konfigurationen. Die interferometrische Autokorrelation für das modifizierte Experiment ist in Abb. 6.5 dargestellt. Unter Annahme einer Gauß-Einhüllenden ergibt sich eine Halbwertsbreite von  $\Delta t_{FWHM} = 21,2$  fs. Der Wert für einen bandbreitenbegrenzten Puls mit diesem Spektrum liegt bei rund 18 fs. Abb. 6.8 zeigt die mit Lab2 berechnete Autokorrelationskurve für diese theoretische Grenze.

Im Idealfall ist das Teilungsverhältnis im Autokorrelator 1:1. Dann sind die Verhältnisse in der interferometrischen Autokorrelation zweiter Ordnung wie folgt: Bei destruktiver Interferenz geht das Signal auf Null zurück. Bei konstruktiver Interferenz steigt das Signal auf das Achtfache des Wertes für sich nicht überlappende Pulse (Abb. 6.8). Das Verhältnis von Signalzunahme bei Interferenzmaxima zu Signalabnahme bei Interferenzminima ist damit 7:1. Für die Autokorrelation in Abb. 6.5 ist dieses Verhältnis etwa 5,1:1. Ursache dafür ist das Teilungsverhältnis der Interferometerarme: Die Zweiphotonensignale verhalten sich wie 0,77:1. Damit ist das lineare Teilungsverhältnis

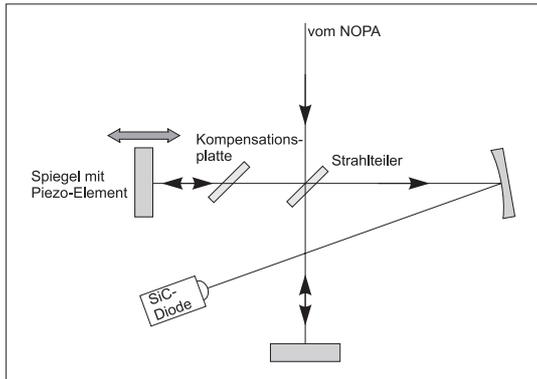


Abbildung 6.7: Prinzipieller Aufbau zur Messung der interferometrischen Autokorrelation zweiter Ordnung. Die Kompensationsplatte wurde eingeführt um in beiden Armen gleiche Glasdicken zu erreichen.

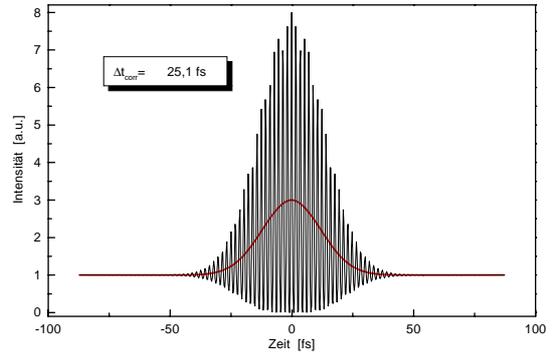


Abbildung 6.8: Mit Lab2 berechnete interferometrische Autokorrelation für den Puls in Abb. 6.5 im Falle von Bandbreitenbegrenzung.

$\sqrt{0,77} : 1 = 0,88 : 1$ . Mit dem Verhältnis der Zweiphotonensignale kann man das Verhältnis der Interferenzmaxima zu den Minima korrigieren:  $5,1/0,77 = 6,6$ . Dieser Wert kommt dem Idealwert von 7 schon sehr nahe.

Die Pulsenergie der Grundwelle bei 804 nm des Ti:Sa-Lasers betrug  $235 \mu\text{J}$ , bei 1 kHz Wiederholrate. Die Pulsenergie der SHG betrug  $77 \mu\text{J}$  oder 33% der Grundwelle. Für das NOPA-Signal läßt sich die Pulsenergie mit der genutzten pyroelektrischen Energiemeßtechnik nur mit großen Fehlern messen. Im Folgenden sind die Obergrenzen der Pulsenergien und der Umwandlungseffizienzen in Bezug zur SHG-Pumpe aufgeführt:

$2 \mu\text{J}$	$\sim 2,6\%$	bei 475 nm
$5 \mu\text{J}$	$\sim 6,5\%$	bei 520 nm
$1 \mu\text{J}$	$\sim 1,3\%$	bei 604 nm.

Daß die Pulse die theoretische Grenze von 18 fs nicht erreichen konnten, ist vor allem eine Folge von Phasenmodulationen höherer Ordnung. Diese lassen sich mit herkömmlichen dispersiven Elementen wie Prismen- und Gitterkompressoren kaum kompensieren. Hier kann man z.B. Pulsshaper einsetzen, die die Phasenlage einzelner Spektralkomponenten gezielt beeinflussen können. Damit wurden in einem ähnlichen Aufbau Pulse bis unter 16 fs komprimiert [39]. Mit dem hier gewählten Prismenkompressor war es aber möglich, Pulse mit etwa 21 fs Halbwertsbreite zu erzeugen, was nur etwa 3 fs über dem theoretisch erreichbaren Wert liegt.

## Kapitel 7

# Zusammenfassung und Ausblick

Die Ziele der Arbeit, der Aufbau eines nichtkollinear gepumpten optisch parametrischen Verstärkers sowie die Erzeugung und Charakterisierung von kurzen, durchstimmbaren Pulsen, konnten erreicht werden. Für parametrische Verstärkung in BBO wurde die optimale Geometrie berechnet. Diese Modellrechnungen ergaben, daß simultane Gruppengeschwindigkeits- und Phasenanpassung möglich ist. Die Pulse des NOPA sind zwischen etwa 450 und 750 nm durchstimmbare. Die spektralen Breiten der Spektren liegen im Bereich 20 bis 50 nm und ermöglichen theoretisch, je nach Zentralwellenlänge, Pulsbreiten unter 20 fs, im Idealfall auch unter 15 fs. Die Umwandlungseffizienzen konnten wegen der fehlenden Meßtechnik nur größenordnungsmäßig bestimmt werden und liegen zwischen 0,4 und 2 % in Bezug auf den Ti:Sa-Puls. Für den Spektralbereich um 530 nm, in dem die Umwandlung am größten war, wurden die Pulse mit interferometrischer Autokorrelation charakterisiert. Nachdem die Phasenmodulation der Glaselemente kompensiert wurde, war es möglich, Pulse mit 21 fs Halbwertsbreite nachzuweisen. Der theoretisch mögliche Wert lag bei 18 fs. Die erzeugten Pulse waren damit nahezu ein Drittel so lang wie der Pumpuls des Ti:Sa-Lasers.

Im Rahmen der Diplomarbeit wurde ein neues Verfahren zur Messung der zeitlichen und spektralen Phase eines Breitband-Kontinuums unter Verwendung des optischen Kerr-Effekts erprobt. Damit können Amplitude und Phase des Weißlichts gemessen werden. Im Gegensatz zu bekannten Verfahren wie FROG oder SPIDER, ist dieses Verfahren nicht durch die begrenzte Bandbreite von nichtlinearen Kristallen beschränkt, und kann daher auch für extrem breitbandige Pulse verwendet werden. Ein weiterer Vorteil des Verfahrens ist, daß der NOPA-Aufbau nur wenig modifiziert werden muß, um Phasenmessungen vorzunehmen. Die Kenntnis der Phase des Weißlichts aus diesen Messungen wurden für die Planung des Prismenkompressors verwendet.

Die Erhöhung der Umwandlungseffizienz für Wellenlängen außerhalb des Bereichs um 530 nm ist

ein wichtiges Ziel für eine verbesserte Version des NOPA. Weiter könnte man die Pulsmessung verbessern, so daß der berechnete Kompressor direkt getestet werden kann, und die Pulse nicht vorkomprimiert werden müssen. Auch eine bequemere Möglichkeit zur Justage des Winkels zwischen Signal und Pumpe wäre wünschenswert.

Der gebaute NOPA läßt sich gut in vorhandene und geplante Experimente am IOQ integrieren. In diesem Zusammenhang ist es günstig, daß nicht die volle Pulsenergie von 1 mJ des kHz-Systems benötigt wird, und somit noch Pulsenergie für parallel laufende Experimente zur Verfügung steht.

Ideal kann man den NOPA mit dem seit kurzem vorhandenen Pulshaper kombinieren. Damit lassen sich die durchstimmbaren Pulse in ihrer zeitlichen Struktur beeinflussen und für vielfältige Experimente auf dem Gebiet der Moleküldynamik einsetzen. Weiterhin kann man in dieser Kombination die noch vorhandenen höheren Phasenterme korrigieren, und nahezu bandbreitenbegrenzte, ultrakurze Pulse erzeugen.

## Anhang A

# Anhang zur Gruppengeschwindigkeitsanpassung

Auf den folgenden Seiten ist das Mathematica-Notebook wiedergegeben, mit dem die Rechnungen zur simultanen  $\Delta k$ - und GVM-Minimierung durchgeführt wurden. Das Notebook ist aufgeteilt in Zellen: jeweils eine Eingabe- und Ausgabezelle sind am rechten Rand mit einer Klammer eingefaßt. Textzellen sind ebenfalls mit einer Klammer markiert. Erklärungen zu den einzelnen Schritten werden jeweils in der Textzelle vor der Eingabezelle gegeben, nach dieser folgt die Ausgabezelle des Programms. In Mathematica kann man die vorhandenen Prozeduren nutzen oder selbst Funktionen definieren. Es hat sich bewährt eigene Funktionsnamen nur klein zu schreiben, während die Mathematica eigenen Funktionen immer mit Großbuchstaben beginnen. Nun noch einige Erklärungen zu Mathematica-Konventionen, die nicht im Notebook selbst erklärt sind:

- *funktion*[var1\_, var2\_] die Unterstriche bedeuten, daß bei Aufruf der Funktion die entsprechenden Argumente durch die im Aufruf ersetzt werden (=lokale Variablen).
- *ausdruck* der *x* enthält /.  $x \rightarrow a$  ist eine Ersetzungsregel und bedeutet, im Ausdruck der *x* enthält soll *x* durch *a* ersetzt werden. Dabei bestehen kaum Beschränkungen wie *x* oder *a* aussehen.
- *liste*[[*i, j, ..*]] - so werden in ein- oder mehrdimensionalen Listen die Elemente referenziert, Elemente können beliebige Ausdrücke sein, also z.B. auch Funktionen, Ersetzungsregeln usw.

# Gruppengeschwindigkeitsanpassung in BBO für den Fall möglichst kurzer Pulse

## ■ verschiedene Funktionen

<< Calculus`VectorAnalysis`

Vektorbetrag

$$\text{vbetr}[k\_List] = \sqrt{\text{DotProduct}[k, k]};$$

Dispersionsrelationen für BBO

$$n_o[lam\_] = \sqrt{2.7359 + \frac{0.01878}{lam^2 - 0.01822} - 0.01354 lam^2};$$

$$n_e[lam\_] = \sqrt{2.3753 + \frac{0.01224}{lam^2 - 0.01667} - 0.01516 lam^2};$$

$$n_{ee}[th\_ , l\_ ] := n_o[l] \sqrt{\frac{1 + \text{Tan}[th]^2}{1 + \left(\frac{n_o[l]}{n_e[l]}\right)^2 \text{Tan}[th]^2}}$$

$$\text{einsvektor}[th\_ ] = \{\text{Sin}[th], 0, \text{Cos}[th]\};$$

Wellenlänge des Idlerpulses, ergibt sich aus der Energieerhaltung.

$$lamid[lpump\_ , lsignal\_ ] = \frac{1}{\frac{1}{lpump} - \frac{1}{lsignal}};$$

Funktion, um aus 3D-Vektoren auf den Winkel zur z-Achse zurückrechnen zu können

$$\text{winkelzuz}[k\_List] = \text{ArcTan}[k[[3]], \sqrt{k[[1]]^2 + k[[2]]^2}];$$

## ■ Berechnung der Gr.-geschw für o und e Strahl aus den MWG

Aus Saleh/Teich "Fundamentals of Photonics":  $k_0$  ist der Betrag des Wellenvektors im Vakuum,  $k_0$  wird später durch  $\omega=c_0k_0$  ersetzt. Die Indizes von  $k$  (im Medium) werden in der Rechnung als Komponenten in doppelten eckigen Klammern angegeben.

$$\text{MatrixForm}[komat3 = \{\{n1^2 k0^2 - k[[2]]^2 - k[[3]]^2, k[[1]] k[[2]], k[[1]] k[[3]]\}, \{k[[2]] k[[1]], n2^2 k0^2 - k[[1]]^2 - k[[3]]^2, k[[2]] k[[3]]\}, \{k[[3]] k[[1]], k[[3]] k[[2]], n3^2 k0^2 - k[[1]]^2 - k[[2]]^2\}\}]$$

$$\begin{pmatrix} k_0^2 n1^2 - k[[2]]^2 - k[[3]]^2 & k[[1]] k[[2]] & k[[1]] k[[3]] \\ k[[1]] k[[2]] & k_0^2 n2^2 - k[[1]]^2 - k[[3]]^2 & k[[2]] k[[3]] \\ k[[1]] k[[3]] & k[[2]] k[[3]] & k_0^2 n3^2 - k[[1]]^2 - k[[2]]^2 \end{pmatrix}$$

Für einen einachsigen Kristall sind  $n_1 = n_2 = n_o$  sowie  $n_3 = n_e$ . Das wird im nächsten Schritt mit den Ersetzungen  $\{n_1 \rightarrow no, n_2 \rightarrow no, n_3 \rightarrow ne\}$  ausgeführt.  $no$  und  $ne$  sind aber zunächst noch reine Symbole (Konstanten), die Dispersion wird erst später eingebaut.

`MatrixForm[komat = komat3 /. {n1 -> no, n2 -> no, n3 -> ne}]`

$$\begin{pmatrix} k_0^2 no^2 - k[[2]]^2 - k[[3]]^2 & k[[1]] k[[2]] & k[[1]] k[[3]] \\ k[[1]] k[[2]] & k_0^2 no^2 - k[[1]]^2 - k[[3]]^2 & k[[2]] k[[3]] \\ k[[1]] k[[3]] & k[[2]] k[[3]] & k_0^2 ne^2 - k[[1]]^2 - k[[2]]^2 \end{pmatrix}$$

Das Gleichungssystem hat nur dann nichttriviale Lösungen, wenn die Koeffizientendeterminante Null wird:

`lsg = Solve[Det[komat] == 0, k0]`

$$\left\{ \{k_0 \rightarrow 0\}, \{k_0 \rightarrow 0\}, \left\{ k_0 \rightarrow -\sqrt{\frac{k[[1]]^2 + k[[2]]^2 + k[[3]]^2}{no^2}} \right\}, \left\{ k_0 \rightarrow \sqrt{\frac{k[[1]]^2 + k[[2]]^2 + k[[3]]^2}{no^2}} \right\}, \left\{ k_0 \rightarrow -\sqrt{\frac{k[[1]]^2}{ne^2} + \frac{k[[2]]^2}{ne^2} + \frac{k[[3]]^2}{no^2}} \right\}, \left\{ k_0 \rightarrow \sqrt{\frac{k[[1]]^2}{ne^2} + \frac{k[[2]]^2}{ne^2} + \frac{k[[3]]^2}{no^2}} \right\} \right\}$$

Das Programm liefert 6 Lösungen, zwei triviale und jeweils zwei für ordentlichen und außerordentlichen Strahl in positiver und negativer Ausbreitungsrichtung. Lösung[[4]] (Gleichung für Kugel) ist die Lösung für den ordentlichen, Lösung[[6]] (Gleichung für Ellipsoid) für den außerordentlichen Strahl.

In die  $\omega$ 's müssen noch die  $n_{e/o}[\lambda_0]$  als  $n_{e/o}\left[\frac{2\pi}{|k_0|}\right]$  eingesetzt werden, damit ist auch die Dispersion berücksichtigt. Dazu werden über eine Ersetzungsregel die konstanten Symbole  $no$  und  $ne$  durch die (vorher im Abschnitt "Funktionen" definierten) Dispersionsrelationen ersetzt.  $wdis[k]$  bedeutet  $\omega_1(k)$  mit Dispersion.

`wldis[k_List] = (c k0 /. lsg[[4]]) /. {no -> no[ $\frac{2\pi}{vbetr[k]}$ ], ne -> ne[ $\frac{2\pi}{vbetr[k]}$ ]}`

$$c \sqrt{\frac{k[[1]]^2 + k[[2]]^2 + k[[3]]^2}{2.7359 + \frac{0.01878}{-0.01822 + \frac{4\pi^2}{vbetr[k]^2}} - \frac{0.534538}{vbetr[k]^2}}}$$

`w2dis[k_List] = (c k0 /. lsg[[6]]) /. {no -> no[ $\frac{2\pi}{vbetr[k]}$ ], ne -> ne[ $\frac{2\pi}{vbetr[k]}$ ]}`

$$c \sqrt{\left( \frac{k[[1]]^2}{2.3753 + \frac{0.01224}{-0.01667 + \frac{4\pi^2}{vbetr[k]^2}} - \frac{0.598493}{vbetr[k]^2}} + \frac{k[[2]]^2}{2.3753 + \frac{0.01224}{-0.01667 + \frac{4\pi^2}{vbetr[k]^2}} - \frac{0.598493}{vbetr[k]^2}} + \frac{k[[3]]^2}{2.7359 + \frac{0.01878}{-0.01822 + \frac{4\pi^2}{vbetr[k]^2}} - \frac{0.534538}{vbetr[k]^2}} \right)}$$

Die Phasengeschw. sind für beide Strahlen:  $v_{phase} = \frac{k}{|k|} \frac{\omega[k]}{|k|}$

$$vph1[k\_List] = \frac{k wldis[k]}{vbetr[k]^2};$$

$$vph2[k\_List] = \frac{k w2dis[k]}{vbetr[k]^2};$$

Die Funktionen sind dabei nur definiert worden, die ausführlichen Ausdrücke  $vph2[\{k1, k2, k3\}]$  sind wegen der Dispersionrelation schon einige Bildschirmseiten lang. Wenn man z.B.  $vph1[k]$  mit einem  $k_0$ -Vektor aufruft, wird die Funktion wie oben definiert ausgeführt und liefert die Phasengeschwindigkeit des ordentlichen Strahls.

Die Gruppengeschwindigkeit ist definiert als  $v_{\text{grup}} = \text{nabla} \omega[\mathbf{k}]$ . Im Programm wurde die räumliche Ableitung so ausgeführt, daß zunächst die  $\omega_i$  mit lokalen Variablen  $x, y, z$  aufgerufen wurde und dann diese wieder durch  $k[1] \dots$  ersetzt werden.

```
vgr1[k_List] := Module[{x, y, z},
  {(∂x wldis[{x, y, z}]) /. {x -> k[[1]], y -> k[[2]], z -> k[[3]]},
  (∂y wldis[{x, y, z}]) /. {x -> k[[1]], y -> k[[2]], z -> k[[3]]},
  (∂z wldis[{x, y, z}]) /. {x -> k[[1]], y -> k[[2]], z -> k[[3]]} ]
```

```
vgr1[{k1, k2, k3}] [[1]]
```

$$c \left( \frac{(k_1^2 + k_2^2 + k_3^2) \left( \frac{1.06908 k_1}{(k_1^2 + k_2^2 + k_3^2)^2} + \frac{1.48281 k_1}{(k_1^2 + k_2^2 + k_3^2)^2 \left( -0.01822 + \frac{4 \pi^2}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} \right)^2} \right)}{\left( 2.7359 - \frac{0.534538}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} + \frac{0.01878}{-0.01822 + \frac{4 \pi^2}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}} \right)^2} + \frac{2 k_1}{2.7359 - \frac{0.534538}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} + \frac{0.01878}{-0.01822 + \frac{4 \pi^2}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}}} \right) \sqrt{\frac{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}{2.7359 - \frac{0.534538}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2} + \frac{0.01878}{-0.01822 + \frac{4 \pi^2}{k_1^2 + k_2^2 + k_3^2}}}}$$

```
vgr2[k_List] := Module[{x, y, z},
  {(∂x w2dis[{x, y, z}]) /. {x -> k[[1]], y -> k[[2]], z -> k[[3]]},
  (∂y w2dis[{x, y, z}]) /. {x -> k[[1]], y -> k[[2]], z -> k[[3]]},
  (∂z w2dis[{x, y, z}]) /. {x -> k[[1]], y -> k[[2]], z -> k[[3]]} ]
```

Als Beispiel wurde nur die x-Komponente der Gruppengeschwindigkeit des ordentlichen Strahls ausgedrückt. Die Gruppengeschwindigkeitskomponenten des außerordentlichen Strahls sind noch längere Funktionen, die mehrere Seiten füllen würden.

Testrechnung:

Ordentlicher Strahl: (k's willkürlich in der Größenordnung 5...6, c=1 gesetzt.)

```
vgr1[{5, 5, 5}] /. c -> 1
{0.341464, 0.341464, 0.341464}

vph1[{5, 5, 5}] /. c -> 1
{0.347164, 0.347164, 0.347164}

{vbetr[vgr1[{5, 5, 5}]], vbetr[vph1[{5, 5, 5}]]}
{0.591433 √c2, 0.601305 √c2}
```

Für den ordentlichen Strahl zeigt sich wie erwartet für die Beträge:  $v_{\text{phase}} > v_{\text{gruppe}}$  und für die Richtungen:  $v_{\text{phase}} \parallel v_{\text{gruppe}}$

Außerordentlicher Strahl:

```
vgr2[{5, 5, 5}] /. c -> 1
{0.376773, 0.376773, 0.325052}
```

```
vph2[{5, 5, 5}] /. c -> 1
{0.364832, 0.364832, 0.364832}
```

```
{vbetr[vgr2[{5, 5, 5}]], vbetr[vph2[{5, 5, 5}]]}
{0.624159  $\sqrt{c^2}$ , 0.631908  $\sqrt{c^2}$ }
```

$\Rightarrow v_{\text{phase}} > v_{\text{gruppe}}$  und  $v_{\text{phase}}$  nicht  $\parallel v_{\text{gruppe}}$

## ■ Phasenanpassung / kvm

Die Phasenanpassung ist vom Typ I, d.h. der Pumpstrahl ist außerordentlich polarisiert, Signal und Idler ordentlich. Die Funktionen genkpump und genksignal erzeugen die k-Vektoren des Pumpstrahls und des Signalstrahls im Kristall nach der Formel  $k = \frac{2\pi n}{\lambda}$ . Die Parameter die übergeben werden sind der Winkel des Strahls zur z-Achse in rad und die Wellenlänge in  $\mu\text{m}$ . Die Pumpe ist außerordentlich polarisiert, der Signalstrahl ordentlich.

```
genkpump[th_, lam_] = einsvektor[th]  $\frac{2 \pi n_e[\text{th}, \text{lam}]}{\text{lam}}$ ;
```

```
genksignal[th_, lam_] = einsvektor[th]  $\frac{2 \pi n_o[\text{lam}]}{\text{lam}}$ ;
```

Funktion genkidler berechnet den  $k_{\text{idler}}$ -Vektor wie im Text beschrieben. Übergeben werden die k-Vektoren der Pumpe und des Signals sowie deren Wellenlängen. Der erste Faktor gibt die Richtung des kürzesten  $k_{\text{pump}}$ -Vektors an, der zweite bestimmt dessen Betrag im Medium. Der Idlerpuls ist auch ordentlich polarisiert.

```
genkidler[kp_, ks_, lp_, ls_] =  $\frac{\text{kp} - \text{ks}}{\text{vbetr}[\text{kp} - \text{ks}]} \frac{2 \pi n_o[\text{lamid}[\text{lp}, \text{ls}]]}{\text{lamid}[\text{lp}, \text{ls}]}$ ;
```

kvm-Funktion, die Winkel werden in Grad und  $\lambda$  in  $\mu\text{m}$  übergeben, sie berechnet  $\Delta k$ :

```
kvm[thp_, ths_, lp_, ls_] = Module[{kp, ks, ki},
  kp = genkpump[thp  $\frac{\pi}{180}$ , lp];
  ks = genksignal[ths  $\frac{\pi}{180}$ , ls];
  ki = genkidler[kp, ks, lp, ls];
  vbetr[kp - ks - ki]
];
```

## ■ GVM

Mit Hilfe der Ausdrücke für die Gruppengeschwindigkeit definiert man die Group-Velocity-Mismatch-Funktion gvmMWG. Die übergebenen Parameter sind die Winkel von Pumpe und Signal zur z-Achse, die gleichzeitig die optische Achse ist. Zurückgeliefert wird der Betrag des "Abweichungsvektors" in Einheiten von c (hier immer als eins angenommen).

GV-Match als Betrag des Differenz-Vektors zwischen Signal und Proj. Idler auf Signal [Winkel der Pumpe zur z-Achse (=optische Achse BBO), Winkel des Signals,  $\lambda$  Pumpe,  $\lambda$  Signal in  $\mu\text{m}$ ] (Winkel in Grad von z-Achse)

```

gvmMWG [thp_, ths_, lp_, ls_] := Module[{kp0, ks0, kim, ki0, vp, vs, proj, projvek},
  kp0 = einsvektor [thp  $\frac{\pi}{180}$ ]  $\frac{2 \pi}{lp}$ ;
  ks0 = einsvektor [ths  $\frac{\pi}{180}$ ]  $\frac{2 \pi}{ls}$ ;
  kim = genkidler [genkpump [thp  $\frac{\pi}{180}$ , lp], genksignal [ths  $\frac{\pi}{180}$ , ls], lp, ls];
  ki0 =  $\frac{kim}{no[lamid[lp, ls]]}$ ;
  vs = vgr1 [ks0];
  vi = vgr1 [ki0];
  proj = DotProduct [ $\frac{vs}{vbetr[vs]}$ , vi];
  projvek =  $\frac{vs}{vbetr[vs]}$  proj - vs;
  vbetr [projvek]
]

```

Beispiele:

```
gvmMWG [27, 27, 0.4, 0.6]
```

0.0123584  $\sqrt{c^2}$

```
gvmMWG [27, 29, 0.4, 0.6]
```

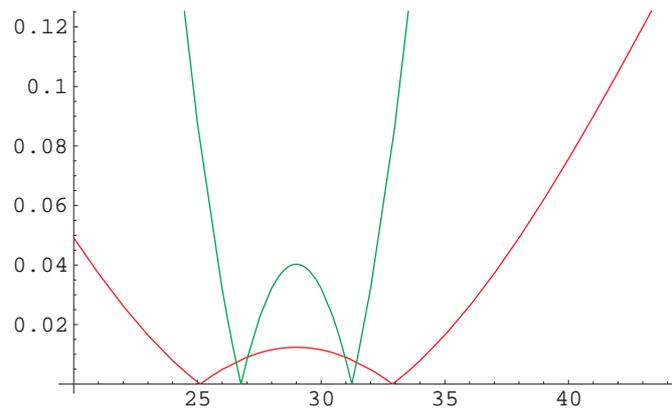
0.00906148  $\sqrt{c^2}$

gvm (rot) und Phasenmismatch kvm (grün) abhängig vom Winkel des Signals, bei festem Pumpwinkel 29°, Pumpwellenlänge 400nm Signalwellenlänge 600nm:

```

thpump = 29; c = 1;
Plot [{gvmMWG [thpump, ths, 0.4, 0.6], kvm [thpump, ths, 0.4, 0.6]},
  {ths, 20, 44}, PlotStyle -> {RGBColor [1, 0, 0], RGBColor [0, 1, 0]};

```



In diesem Plot erkennt man, daß Phase und Gruppengeschwindigkeit noch nicht simultan angepasst sind.

## ■ Phasen- und Gruppengeschwindigkeitsanpassung simultan

Eine Winkelkombination von Pumpwinkel ( $t_p$ ) und Signalwinkel ( $t_s$ ), bei der sowohl Phasenanpassung besteht als auch das GVM minimiert oder Null gemacht wird kann man numerisch mit der Funktion FindRoot suchen lassen. Die Startwerte liegen immer im Bereich  $30^\circ$ , also ungefähr wie für Phasenanpassung SHG  $800\text{nm} \rightarrow 400\text{nm}$ .

$\theta(\text{pumpe})$  und  $\theta(\text{signal})$  sind variabel, die Signalwellenlänge wurde für dieses Beispiel  $600\text{nm}$  gewählt.

```
FindRoot[{kvm[tp, ts, 0.4, 0.6] == 0, gvmMWG[tp, ts, 0.4, 0.6] == 0},  
  {tp, 30}, {ts, 28}]  
  
{tp -> 31.5271, ts -> 27.67}
```

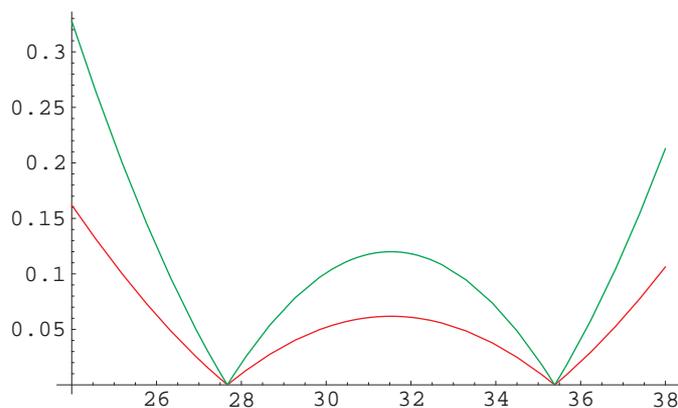
Es gelingt also tatsächlich beide mismatch-Faktoren zu Null zu machen.

Der interne Verkippungswinkel zwischen Pumpe und Signal ist die Differenz zwischen beiden Winkeln zur optischen (z)-Achse:

```
(tp /. %[[1]]) - (ts /. %[[2]])  
  
3.85708
```

Im Plot ist GVM rot, kvm grün, der Pumpwinkel ist wie mit FindRoot berechnet auf  $31.53^\circ$  festgelegt, GVM und kvm als Funktionen des Signalwinkels aufgetragen. Die Funktion GVM wurde zur besseren Sichtbarkeit überhöht.

```
Plot[{5 gvmMWG[31.53, t, 0.4, 0.6], kvm[31.53, t, 0.4, 0.6]}, {t, 24, 38},  
  PlotStyle -> {RGBColor[1, 0, 0], RGBColor[0, 1, 0]}];
```



Wie der Plot zeigt gibt es zwei Verkippungswinkel, für die GVM und kvm Null werden. Startet man FindRoot mit anderen Werten, kann man auch die andere Winkelkombination finden. Hier wurden zwei Startwerte benutzt, weil *Mathematica* dann numerische Ableitungen benutzen kann und die Lösung schneller findet.

```
FindRoot[{kvm[tp, ts, 0.4, 0.6] == 0, gvmMWG[tp, ts, 0.4, 0.6] == 0},  
  {tp, 30, 30.5}, {ts, 37, 38}]  
  
{tp -> 31.5271, ts -> 35.3842}
```

Die obige Vorgehensweise kann man in einer Funktion zusammenfassen: iwsmMWG liefert drei Werte zurück: den Pumpwinkel, den Signalwinkel und die Differenz zwischen beiden. Dabei wird die Gr.-geschw. für alle Strahlen aus den MWG berechnet. Die übergebenen Parameter sind: geschätzter Winkel pumpe zu z-Achse,  $\lambda_{\text{pump}}$ ,  $\lambda_{\text{signal}}$ . Die Angabe eines Startwertes ist für die Suche mit FindRoot notwendig.

```
iwsmMWG[tstart_, lp_, ls_] := Module[{lsng, tp, ts, thint},
  lsng = FindRoot[{kvm[tp, ts, lp, ls] == 0,
    gvmMWG[tp, ts, lp, ls] == 0},
    {tp, tstart},
    {ts, Evaluate[tstart + 3.5]},
    MaxIterations -> 100];
  tp = tp /. lsng[[1]];
  ts = ts /. lsng[[2]];
  thint = ts - tp;
  {tp, ts, thint}
]

iwsmMWG[27, 0.4, 0.475]

{26.9062, 29.1591, 2.25293}
```

Testberechnungen, jeweils mit beiden Methoden:

Für diese Wellenlängen wurden im Experiment (E. Riedle, Opt. Lett. 22, 1494 (1997)) folgende interne Winkel zwischen Signal und Pumpe gefunden:

480nm  $\rightarrow \theta_{\text{int}}=2,2^\circ$

620nm  $\rightarrow \theta_{\text{int}}=3,7^\circ$

700nm  $\rightarrow \theta_{\text{int}}=3,3^\circ$

```
{iwsmBUR[27, 0.4, 0.48], iwsmMWG[27, 0.4, 0.48]}
{{27.3724, 29.763, 2.39058}, {27.4079, 29.809, 2.4011}}

{iwsmBUR[30, 0.4, 0.62], iwsmMWG[30, 0.4, 0.62]}
{{31.4504, 35.2669, 3.81654}, {31.5071, 35.3562, 3.84905}}

{iwsmBUR[32, 0.4, 0.7], iwsmMWG[32, 0.4, 0.7]}
{{30.7219, 33.9903, 3.26845}, {30.7507, 34.0454, 3.29465}}
```

Die berechneten Werte stimmen alle bis auf eine Stelle nach dem Komma mit den veröffentlichten Meßwerten überein. Bei der Berechnung wurde noch nicht beachtet, daß auch noch Brechung der Strahlen an den Kristallflächen auftritt, die Meßwerte beziehen sich aber auf Winkel außerhalb des Kristalls.

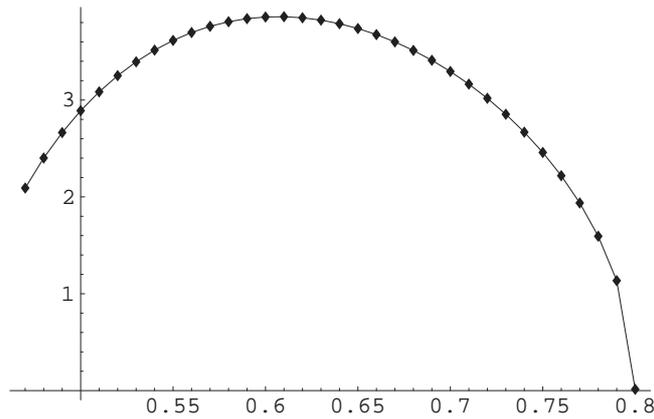
Zunächst soll der interne Winkel berechnet und dargestellt werden.

```
listMWG = Table[{1, iwsmMWG[30, 0.4, 1][[3]]}, {1, 0.47, 0.8, 0.01}];
```

Die Berechnung der 33 Werte mit der MWG-Methode dauerte mit einem Pentium 200 etwa 45 Minuten.

```
<<Graphics`MultipleListPlot`
```

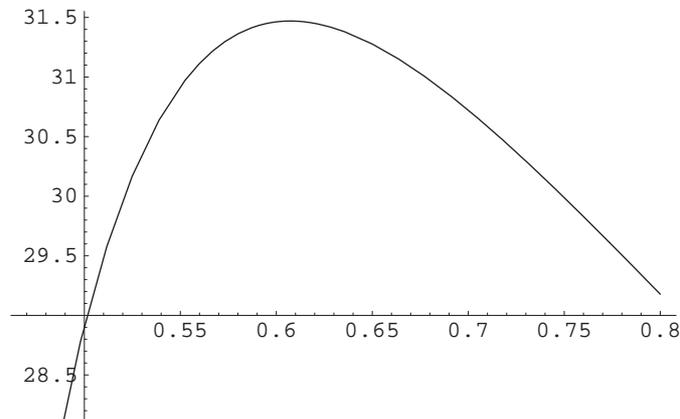
```
MultipleListPlot[listMWG,
PlotJoined -> True];
```



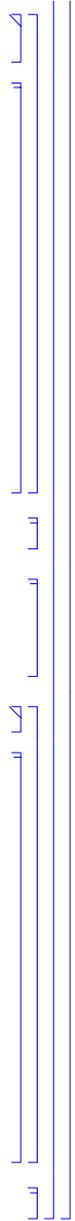
interner Winkel zwischen Pumpe und Signal als Funktion der Wellenlänge des Signalpulses

Schließlich ist noch der Winkel, den der Pumpimpuls zur optischen Achse einnehmen muß von Interesse. Durch die Wahl dieses Winkels legt man die Zentralwellenlänge fest, die aus einem Kontinuum am besten verstärkt wird.

```
Plot[iwsmBUR[30, 0.4, 1][[1]], {1, 0.47, 0.8}];
```



Pumpwinkel



# Literaturverzeichnis

- [1] T. H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, 187:493, Aug 1960.
- [2] A. H. Zewail. *Femtochemistry: Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond*. World Scientific, Singapore, 1994.
- [3] M. Shapiro P. Brumer. *Chem. Phys. Lett.*, 126:54, 1986.
- [4] S. A. Rice D. J. Tannor, R. Kosloff. Coherent pulse sequence induced control of selectivity of reactions: Exact quantum mechanical calculations. *Journal of Chemical Physics*, 85(10):5805–5820, Nov 1986.
- [5] H. Rabitz R.S. Judson. Teaching lasers to control molecules. *Physical Review Letters*, 68(10):1500–3, March 1992.
- [6] J.S. Patel J.R. Wullert A.M. Weiner, D.E. Leaird. Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator. *Optics Letters*, 15(6):326–8, March 1990.
- [7] A.M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Review of Scientific Instruments*, 71(5):1929–60, May 2000.
- [8] C. W. Peters G. Weinreich P. A. Franken, A. E. Hill. Generation of Optical Harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 7(4):118, Aug 1961.
- [9] Ed.Y.R. Shen R.L. Byer. *Nonlinear Infrared Generation*. Springer, Berlin, 1977.
- [10] D.K. Negus M.K. Reed, M.K. Steiner-Shepard. Widely tunable femtosecond optical parametric amplifier at 250 kHz with a Ti:sapphire regenerative amplifier. *Optics Letters*, 19(22):1855–7, Nov 1994.
- [11] V. V. Yakovlev K. R. Wilson. Ultrafast rainbow: tunable ultrashort pulses from a solid-state kilohertz system. *Journal of the Optical Society of America B*, 14(2):444–8, 1997.

- [12] R. Riedle T. Wilhelm, J. Piel. Sub-20-fs pulses tunable across the visible from a blue-pumped single-pass noncollinear parametric converter. *Optics Letters*, 22(19):1494, Oct 1997.
- [13] S. De Silvestri G. Cerullo, M. Nisoli. Generation of 11 fs pulses tunable across the visible by optical parametric amplification. *Appl. Phys. Lett.*, 71(25):3616, Dec 1997.
- [14] S. Stagira S. De Silvestri G. Cerullo, M. Nisoli. Sub-8-fs pulses from an ultrabroadband optical parametric amplifier in the visible. *Opt. Lett.*, 23(16):1283, Aug 1998.
- [15] T. Kobayashi A. Shirakawa, I. Sakane. Pulse-front-matched optical parametric amplification for sub-10-fs pulse generation tunable in the visible and near infrared. *Opt. Lett.*, 23(16):1292, Aug 1998.
- [16] T. Kobayashi A. Shirakawa. Noncollinear Phase- and Group-Velocity Matching of Optical Parametric Amplifier for Ultrashort Pulse Generation. *IEICE Trans. Electron.*, E81-C(2):246–253, Feb 1998.
- [17] M. Takasaka T. Kobayashi A. Shirakawa, I. Sakane. Sub-5-fs visible pulse generation by pulse-front-matched noncollinear optical parametric amplification. *Appl. Phys. Lett.*, 74(16):2268–70, Apr 1999.
- [18] R. Sauerbrey M. Roth, T. Feurer. Measurement of white light chirp with Kerr lens. *in preparation*, 2000.
- [19] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan, and D.N. Nikogosyan. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*. Springer-Verlag, second edition, 1997.
- [20] Bahaa E. Saleh and Malvin Carl Teich. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, Inc., 1991.
- [21] C. C. Davis. *Lasers and Electro-Optics*. Cambridge University Press, 1996.
- [22] T. Feurer. *persönliche Mitteilungen*, 2000.
- [23] W. Rudolph J. C. Diels. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press Inc., 1996.
- [24] G. P. Banfi C. Solcia R. Danielius A. Piskarskas P. Foggi M. Monguzzi C. Sozzi P. Di Trapani, A. Andreoni. Group-velocity self-matching of femtosecond pulses in noncollinear parametric generation. *Physical Review A*, 51(4):3164–8, April 1995.
- [25] P. Di Trapani A. Andreoni C. Solcia P. Foggi R. Danielius, A. Piskarskas. Matching of group velocities by spatial walk-off in collinear three-wave interaction with tilted pulses. *Optics Letters*, 21(13):973–5, 1996.
- [26] D. S. Tannhauser S. G. Lipson, H. S. Lipson. *Optical Physics*. Cambridge University Press, 1995.

- [27] A. Migdall. Polarization directions of noncollinear phase-matched optical parametric downconversion output. *Journal of the Optical Society of America B (Optical Physics)*, 14(5):1093–8, May 1997.
- [28] S. L. Shapiro R. R. Alfano. Observation of self-phase modulation and small filaments in crystals and glasses. *Phys. Rev. Lett.*, 24(11):592, 1970.
- [29] L. Wöste J. Manz. *Femtosecond Chemistry*. VCH, Weinheim, 1995.
- [30] H. Schwoerer. Spektrale Lochbrennmaterialien als hochauflösende lineare Amplituden- und Phasenfilter für ultrakurze Laserpulse. *Dissertation Nr. 10933*, 1994.
- [31] Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons, New York, 1984.
- [32] Leon Cohen. Time-Frequency Distributions - A Review. *Proceedings of the IEEE*, 77(7):123, July 1989.
- [33] T. Feurer. Kohärente Kontrolle molekularer Systeme. *Vorlesung*, 1999.
- [34] T. Butz. *Fouriertransformation für Fußgänger*. Teubner, Stuttgart, 1998.
- [35] G. Stobrawa B. Schmidt T. Feurer, M. Hacker. The Virtual Femtosecond Laser Lab. *www.lab2.de*, 2000.
- [36] W.T. Vetterling B.P. Flannery W.H. Press, S.A. Teukolsky. *Numerical Recipes in C*. Cambridge University Press, second edition.
- [37] R. Sauerbrey T. Feurer, A. Glass. Two-photon photoconductivity in SiC photodiodes and its application to autocorrelation measurements of femtosecond optical pulses. *Applied Physics B*, 65:295–297, 1997.
- [38] H. Yamada K. Naganuma, K. Mogi. General method for ultrashort light pulse chirp measurement. *IEEE J of Quantum Electronics*, 25:1225–33, 1989.
- [39] D. Proch M. Motzkus D. Zeidler, T. Hornung. Adaptive compression of tunable pulses from a non-collinear-type OPA to below 16 fs by feedback-controlled pulse shaping. *Appl. Phys. B*, May 2000.

# Erklärung

Hiermit erkläre ich, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe.

Jena, November 2000

Matthias Roth

An dieser Stelle möchte ich allen herzlich danken, die diese Diplomarbeit ermöglicht und unterstützt haben:

Herrn Prof. Dr. R. Sauerbrey für die Vergabe dieses interessanten Themas,  
Herrn Dr. T. Feurer für die umfassende Betreuung,  
den Herren M. Hacker, G. Stobrawa und R. Netz für die vielen beantworteten Fragen,  
allen Mitarbeitern des IOQ, die mir mit Rat und Tat zur Seite standen,  
sowie der Carl-Zeiss-Schott-Förderstiftung für die finanzielle Unterstützung.