

Erzeugung und Charakterisierung
von frequenzverdoppelten ultrakurzen
Terawatt Titan-Saphir-Laserimpulsen

Diplomarbeit

FRIEDRICH-SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA
PHYSIKALISCH-ASTRONOMISCHE FAKULTÄT



eingereicht von Jörg Schreiber
geboren den 19.11.1976 in Suhl

1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. R. Sauerbrey

2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. A. Tünnermann

Tag der Verleihung des Diploms:

Erklärung

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

Jena, den 21. Februar 2002

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	6
2	Theorie zur Erzeugung der zweiten Harmonischen	9
2.1	Festlegung der Koordinatensysteme - Beschreibung anisotroper Kristalle	9
2.2	Herleitung der Grundgleichungen zur Erzeugung der zweiten Harmonischen	11
2.2.1	Der lineare Fall	12
2.2.2	Der nichtlineare Fall	15
2.3	Beschreibung der Terme	17
2.4	Abschätzungen und Relevanzbetrachtungen	20
3	Charakterisierung von Laserimpulsen	23
3.1	Die Kreuzkorrelation	25
4	Experimente	27
4.1	Experimente mit 1 mJ-Impulsen	29
4.1.1	Charakterisierung des Fundamentalimpulses	29
4.1.2	Charakterisierung der zweiten Harmonischen	30
4.1.3	Aufbau und Justage des Kreuzkorrelators	34
4.1.4	Messungen mit dem Korrelator	38
4.2	Experimente im 100 mJ-Bereich	38
4.2.1	Charakterisierung des Fundamentalimpulses	39
4.2.2	Charakterisierung der zweiten Harmonischen	43
4.2.3	Messungen mit dem Korrelator	51

5	Diskussion der Ergebnisse	59
6	Zusammenfassung	63

Abbildungsverzeichnis

2.1	Indexellipsoid	10
2.2	„Walk-off“Winkel	18
3.1	Schema einer Korrelationsmessung	23
4.1	Lasersystem	28
4.2	Strahlprofil	30
4.3	SHG-Einzelschußautokorrelation	31
4.4	Meßaufbau hinter dem regenerativen Verstärker	32
4.5	Konversionseffizienz	33
4.6	SHG-Spektrum	34
4.7	Empfindlichkeit des CCD-Chips	35
4.8	Spektrum der zweiten Harmonischen	36
4.9	Kreuzkorrelator	37
4.10	Überprüfung des Korrelators	39
4.11	THG-Autokorrelationskurve des Ti:Sa-Laserimpulses	40
4.12	Transmission des Kompressors	41
4.13	Strahlprofil	41
4.14	Spektrum des Titan-Saphir-Laserimpulses	42
4.15	THG-Autokorrelationskurve	43
4.16	Bild des KDP-Kristalles	44
4.17	Meßaufbau nach dem Vakuumkompressor	44
4.18	Spektrum der zweiten Harmonischen	45
4.19	Spektrum der zweiten Harmonischen	46
4.20	Transmissionskurve der dielektrischen Spiegel	47

4.21	Meßaufbau nach dem Vakuumkompressor	48
4.22	Konversionseffizienz	49
4.23	Vakuumpopf	50
4.24	Kreuzkorrelationen in Luft	52
4.25	Kreuzkorrelationen in Vakuum	54
4.26	Überprüfung des Korrelators	55
4.27	Halbwertsbreiten	55
4.28	Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung	56
4.29	Kreuzkorrelationskurve	57
5.1	Fundamentalencharakterisierung	62

Kapitel 1

Einleitung

Hochintensitäts-Femtosekundenlasersysteme erfuhren innerhalb der letzten 10 Jahre einen enormen Aufschwung durch eine Leistungssteigerung auf bis zu 10^{15} W und die weite Verbreitung in Wissenschaft, Technik und industrieller Anwendung [1]. Die Verstärkung frequenzmodulierter Laserimpulse, im Englischen „chirped pulse amplification“ (CPA) genannt, ist dabei die Schlüsseltechnologie [2].

Bei der Erzeugung und Verstärkung von Femtosekunden-Laserimpulsen in einem CPA-System kann es zur Erzeugung von Vor- und Nachimpulsen kommen, die in manchen Hochintensitätsexperimenten die physikalischen Bedingungen signifikant verändern können.

Eine mögliche Quelle für Vorimpulse ist der Femtosekundenoszillator selbst. Der Jenaer 15 TW-Laser-Oszillator liefert Impulse mit einer Rate von 83 MHz. Aus diesem Impulszug werden Impulse mit einer Rate von 10 Hz zur weiteren Verstärkung ausgekoppelt. Die Unterdrückung der restlichen Impulse gelingt jedoch nicht zu hundert Prozent, so daß Vor- und Nachimpulse in Abständen von 12 ns auftreten.

Die Verstärkermedien erzeugen neben induzierten auch spontan emittierte Photonen, die dann in den darauffolgenden Stufen verstärkt werden. Dieser Vorgang wird mit ASE („Amplified Spontaneous Emission“) bezeichnet. Die Impulse besitzen Zeitdauern, die denen der Nd:Yag-Pumplaser entsprechen, typischerweise im Nanosekundenbereich, und bilden deshalb einen Untergrund niedriger Intensität.

Desweiteren treten auch Vor- und Nachimpulse im Abstand von einigen hundert Femtosekunden bis zu einigen Pikosekunden auf, die auf Amplituden- und Phasenmodulationen im Spektrum des zu verstärkenden Impulses zurückzuführen sind. Die Ursachen dieser spektralen Modulationen sind nur unzureichend bekannt und deshalb nicht einfach zu eliminieren.

Die Frequenzverdopplung der Laserstrahlung, im englischen „Second harmonic generation“ (SHG) genannt, bietet als ein nichtlinearer Effekt zweiter Ordnung eine Möglichkeit, das Kontrastverhältnis zwischen Hauptimpuls und den verschiedenen vorauslaufenden und nacheilenden Impulsen zu vergrößern. Das Kontrastverhältnis steht hier für das Verhältnis der Spitzenintensität des intensivsten Vorimpulses zu der des Hauptimpulses. Im günstigsten Fall wird dieses quadriert, und aus einem Kontrastverhältnis von beispielsweise 1 : 1000 wird demnach 1 : 10^6 im frequenzverdoppelten Strahl. Dieser Idealfall wird jedoch nicht erreicht, da bei hohen Umwandlungseffizienzen Sättigungserscheinungen im Hauptimpuls auftreten.

Die Erzeugung der zweiten Harmonischen ist als Spezialfall der Summenfrequenzgeneration ein gut verstandener nichtlinearer Prozeß. Für den Fall ultrakurzer (< 100 fs) und hochintensiver ($> 10^{10}$ Wcm $^{-2}$) Laserimpulse existieren jedoch keine analytischen Lösungen der Erzeugungsgleichungen. Einerseits kann man sich nicht mehr auf monochromatische Wellen beschränken, sondern muß ein endliches Spektrum in die Betrachtungen einbeziehen. Andererseits ist es nicht mehr möglich, von ungeschwächten Fundamentalwellen zu sprechen, wenn eine möglichst hohe Umwandlungseffizienz erreicht werden soll.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, den Strahl des Jenaer 80 fs, 15 TW Titan-Saphir-Lasersystems zu frequenzverdoppeln und zu charakterisieren. Dabei soll besonderes Augenmerk auf die Verbesserung des Kontrastverhältnisses und die Bestimmung der Impulsdauer gelegt werden. In diesem Zusammenhang ist es notwendig, einen Korrelator mit großer Dynamik (besser als 4 bis 5 Größenordnungen) aufzubauen, um die Kontrastverbesserung durch Frequenzverdopplung zu messen.

Ein weiterer Punkt ist die Optimierung der Konversion der Energie des Fundamentalimpulses in den SHG-Impuls. Eine möglichst gute Energiekonversion

erfordert hohe Laserintensitäten, die jedoch infolge nichtlinearer Effekte zur zeitlichen Verlängerung des SHG-Impulses führen können. Das Ziel ist die Bestimmung eines optimalen Intensitätsbereiches der Fundamentalen, bei dem eine gute Energiekonversion mit einer vertretbaren Impulsverlängerung verbunden ist.

Kapitel 2

Theorie zur Erzeugung der zweiten Harmonischen

Die Summenfrequenzerzeugung ist ein gut verstandenes und weitgehend untersuchtes Spezialgebiet der nichtlinearen Optik. In den nächsten Abschnitten wird auf die mathematische Behandlung der Summenfrequenzmischung in doppelbrechenden Kristallen und die Erzeugung der zweiten Harmonischen als ein Spezialfall eben dieser eingegangen.

2.1 Festlegung der Koordinatensysteme - Beschreibung anisotroper Kristalle

Die Erzeugung von Summenfrequenzen sowie die SHG wird im allgemeinen in nichtlinearen, anisotropen Kristallen realisiert. Die Anisotropie ermöglicht die Phasenanpassung zwischen den wechselwirkenden Wellen, welche die Voraussetzung einer effizienten Generierung ist.

Zunächst wird ein Laborsystem (x, y, z) festgelegt. Die z -Richtung stellt die Hauptausbreitungsrichtung dar. Zur Summenfrequenzmischung bzw. SHG wird der nichtlineare, anisotrope Kristall in dieses System eingefügt (Abb. 2.1). Die dielektrischen Eigenschaften des Kristalls werden durch den dielektrischen Tensor $\hat{\epsilon}$ beschrieben [3]. Dieser kann mit Hilfe des Indexellipsoids wie in Abb. 2.1 beschrieben werden. Die Hauptachsen des Ellipsoids legen das Kristallsystem (X, Y, Z) fest, so daß der dielektrische Tensor in diesem System die Hauptach-

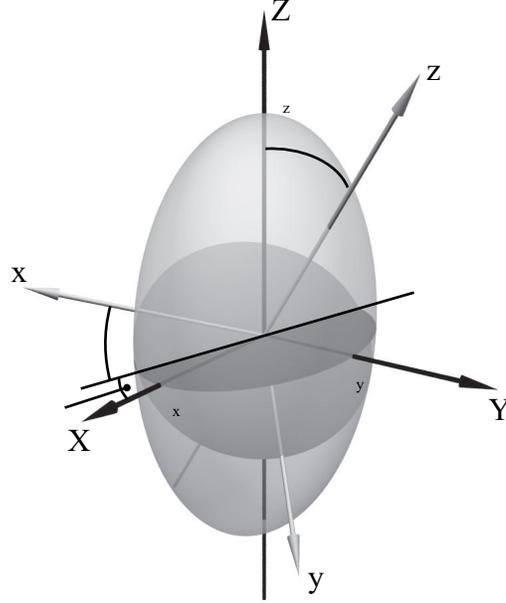


Abb. 2.1: Darstellung des Labor- und des Kristallsystems zusammen mit dem Indexellipsoiden und den Eulerschen Winkeln.

senform

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} n_x^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_y^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_z^2 \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

erhält. Nun führt man die Eulerschen Winkel ein (Abb. 2.1) und transformiert den Tensor $\hat{\epsilon}$ mit deren Hilfe in das Laborsystem [4], wo er mit $\hat{\epsilon}$ bezeichnet wird.

Im nächsten Abschnitt wird die Herleitung der Ausbreitungsgleichungen in nichtlinearen, anisotropen Medien beschrieben. Es wird vorausgesetzt, daß die Anisotropie von schwacher Natur ist, der Indexellipsoid also fast kugelförmig ist. Dann ist es zweckmäßig, $\hat{\epsilon}$ als eine Summe aus einem isotropen Anteil $\epsilon \hat{I}$ (\hat{I} Einheitstensor) und einem anisotropen Anteil $\hat{\Delta}$ zu beschreiben, wobei ϵ der mittleren Hauptachse des Ellipsoids entspricht. Die Näherung der schwachen Anisotropie, also $\Delta_{ij} \ll 1$, ist für viele Kristalle, die zur Summenfrequenzerzeugung eingesetzt werden, gültig.

2.2 Herleitung der Grundgleichungen zur Erzeugung der zweiten Harmonischen

Um die Summenfrequenzerzeugung in einem nichtlinearen anisotropen dielektrischen Medium zu beschreiben, geht man von den Maxwellgleichungen aus:

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \vec{D} &= \rho & \operatorname{rot} \vec{E} &= -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B} \\ \operatorname{div} \vec{B} &= 0 & \operatorname{rot} \vec{H} &= \frac{\partial}{\partial t} \vec{D} + \vec{j} \end{aligned} \quad (2.2)$$

Hierin bezeichnet \vec{D} die dielektrische Verschiebung, \vec{E} die elektrische Feldstärke, \vec{B} die magnetische Induktion und \vec{H} die magnetische Feldstärke. ρ und \vec{j} bezeichnen die elektrische Ladungsdichte bzw. Stromdichte. Alle Felder hängen im allgemeinen vom Ort und von der Zeit ab. Es wird davon ausgegangen, daß freie Ladungen und Ströme verschwinden. Desweiteren wird die Magnetisierung des Mediums vernachlässigt. Mit der Berücksichtigung dieser Vereinfachungen folgen die Materialgleichungen:

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} \quad \vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2.3)$$

Die Größe \vec{P} bezeichnet die Polarisierung. Nach dem Einsetzen von Gl. (2.3) in Gl. (2.2) und den bekannten Umformungen erhält man die Wellengleichung [5]

$$\operatorname{rot} \operatorname{rot} \vec{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\vec{P}^L + \vec{P}^{NL}) \quad (2.4)$$

Hier wurde die Polarisierung \vec{P} in einen linearen Anteil \vec{P}^L und einen nichtlinearen Anteil \vec{P}^{NL} zerlegt.

Um diese Gleichung weiter zu behandeln, geht man in den Frequenzraum über. Dabei stellt man \vec{E} , \vec{P}^L und \vec{P}^{NL} durch ihre fouriertransformierten Größen $\underline{\vec{E}}$, $\underline{\vec{P}}^L$ und $\underline{\vec{P}}^{NL}$ dar:

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \underline{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) e^{i\omega t} d\omega \\ \vec{P}^{L/NL}(\vec{r}, t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \underline{\vec{P}}^{L/NL}(\vec{r}, \omega) e^{i\omega t} d\omega \end{aligned} \quad (2.5)$$

2.2.1 Der lineare Fall

Das Ziel ist die Beschreibung der Erzeugung der zweiten Harmonischen eines Femtosekunden-Laserimpulses. Experimentell wird die Frequenzverdopplung in einem anisotropen Kristall, z.B. KDP oder BBO, verwirklicht. Die Herleitung der Mastergleichungen erfolgt nicht auf dem in den meisten Grundlagenwerken für nichtlineare Optik [6, 7] beschriebenen Weg. Stattdessen wird der tensorielle Zusammenhang zwischen linearer Polarisation \vec{P}^L und elektrischer Feldstärke \vec{E} in Anlehnung an die Veröffentlichung von Christoph Etrich *et al.* [8] verwendet:

$$\begin{aligned} \vec{P}_i^L(\vec{r}, \omega) &= \epsilon_0 \chi_{ij}^{(1)}(-\omega; \omega) \vec{E}_j(\vec{r}, \omega) \\ \text{mit } \chi_{ij}^{(1)} &= \epsilon_0 (\chi^{(1)} \delta_{ij} + \Delta_{ij}) \quad \text{und} \quad \Delta_{ij} = \Delta_{ji} \quad i, j = x, y, z \quad . \end{aligned} \quad (2.6)$$

Dieser Ansatz ermöglicht die Beschreibung räumlicher „walk-off“-Effekte. Der Suszeptibilitätstensor $\hat{\chi}^{(1)}$ läßt sich in einen isotropen Anteil $\epsilon_0 \chi^{(1)} \hat{I}$ und einen anisotropen Anteil $\epsilon_0 \hat{\Delta}$ zerlegen. Dabei sollen die Zahlen Δ_{ij} viel kleiner als $\chi^{(1)}$ sein, demnach nur eine schwache Anisotropie, wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, vorliegen.

Setzt man die Fouriertransformation (2.5) unter Verwendung der linearen Polarisation (2.6) in die Wellengleichung (2.4) ein, erhält man die Wellengleichung im Frequenzraum

$$\begin{aligned} (\text{div grad}) \vec{E}(\vec{r}, \omega) - \text{grad div} \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} [\epsilon(\omega) \hat{I} + \hat{\Delta}] \vec{E}(\vec{r}, \omega) \\ = \frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \vec{P}^{NL}(\vec{r}, \omega) \end{aligned} \quad (2.7)$$

mit

$$1 + \chi^{(1)}(-\omega; \omega) = \epsilon(\omega) = n^2(\omega) \quad . \quad (2.8)$$

Es wird angenommen, daß die z-Richtung mit der Hauptausbreitungsrichtung übereinstimmt. Das bedeutet, daß für die transversalen Komponenten der Wellenzahlen $k_x^2, k_y^2 \ll k^2$ gilt. Es gilt weiterhin die Dispersionsrelation $k^2(\omega) = \epsilon(\omega) \omega^2 / c^2$. Das elektrische Feld \vec{E} wird nun durch ihre räumliche Fouriertransformierte $\vec{e}(z; k_x, k_y, \omega)$ in Bezug auf x und y dargestellt (Gl. 2.9). Die nichtlineare

Polarisation wird vorerst vernachlässigt, da sie keinen Einfluß auf die folgenden Überlegungen hat.

$$\underline{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{e}(z; k_x, k_y, \omega) e^{i(k_x x + k_y y)} dk_x dk_y \quad (2.9)$$

Außerdem werden die langsam veränderlichen Amplituden \tilde{A}_i als $e_i(z; k_x, k_y, \omega) = \tilde{A}_i(z; k_x, k_y, \omega) \exp[ik(\omega_0 z)] + \text{c.c.}$ eingeführt, wobei ω_0 die Trägerkreisfrequenz und c.c. das konjugiert komplexe des ersten Terms der rechten Seite bedeuten.

Die Einhüllende des Impulses soll sich in Propagationsrichtung über eine Strecke von der Größe der Wellenlänge bzw. zeitlich während einer Oszillationsperiode kaum ändern. Das wird in der sogenannten Näherung der langsam veränderlichen Einhüllenden, im englischen „slowly varying envelope approximation“ (SVEA), berücksichtigt, die bis in den sub-100-fs-Bereich angewendet wird [8]. Setzt man die Gleichungen (2.9) in (2.7) ein und verwendet die eben beschriebene Näherung, erhält man für die ersten beiden Komponenten $\tilde{A}_j(z; k_x, k_y, \omega)$, $j = x, y, z$, folgende Differentialgleichungen:

$$2ik_0 \frac{\partial \tilde{A}_j}{\partial z} + \left(k_z^2(\omega) - k_0^2\right) \tilde{A}_j + k_j \left(k_x \tilde{A}_x + k_y \tilde{A}_y + k_0 \tilde{A}_z\right) - ik_j \frac{\partial \tilde{A}_z}{\partial z} + \frac{\omega^2}{c^2} \left(\Delta_{jx} \tilde{A}_x + \Delta_{jy} \tilde{A}_y + \Delta_{jz} \tilde{A}_z\right) = 0 \quad (2.10)$$

Hierbei gilt $k_z^2(\omega) = k^2(\omega) - k_x^2 - k_y^2$ und $k_0 = k(\omega_0)$. Verwendet man die Näherungen, daß $k_x, k_y, \omega - \omega_0$ und Δ_{ij} kleine Größen sind, so kann man für die z-Komponente \tilde{A}_z unter Mitnahme kleiner Größen bis zur ersten Ordnung statt (2.10)

$$\tilde{A}_z = - \left[\frac{k_x}{k_0} \tilde{A}_x + \frac{k_y}{k_0} \tilde{A}_y + \frac{\Delta_{xz}(\omega_0)}{\epsilon(\omega_0)} \tilde{A}_x + \frac{\Delta_{yz}(\omega_0)}{\epsilon(\omega_0)} \tilde{A}_y \right] \quad (2.11)$$

schreiben. Diese Gleichung folgt auch aus $\text{div} \vec{D} = 0$ mit $D_i = \epsilon_0 \epsilon_{ij} E_j$. Somit kann \tilde{A}_z in Gl. (2.10) ersetzt werden. Dabei werden nur Terme bis zur zweiten Ordnung in Bezug auf $k_x, k_y, \omega - \omega_0$ und Δ_{ij} berücksichtigt. Führt man jetzt die Fourierreücktransformation

$$a_j(\vec{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \iiint_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}_j(z; k_x, k_y, \omega) e^{i(k_x x + k_y y - (\omega - \omega_0)t)} dk_x dk_y d(\omega - \omega_0) \quad (2.12)$$

durch, erhält man zwei gekoppelte Differentialgleichungen (2.13), welche die Ausbreitung eines Laserimpulses bis zu 100 fs in einem schwach anisotropen Medium ohne nichtlineare Wechselwirkung beschreiben [8]:

$$\begin{aligned}
& \left[i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_G} \frac{\partial}{\partial t} \right) - \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{1}{2k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \right] \begin{pmatrix} a_x \\ a_y \end{pmatrix} \\
& + i \frac{\omega_0^2}{2k_0^2 c^2} \begin{pmatrix} 2\Delta_{xz} \frac{\partial}{\partial x} & \Delta_{yz} \frac{\partial}{\partial x} + \Delta_{xz} \frac{\partial}{\partial y} \\ \Delta_{xz} \frac{\partial}{\partial y} + \Delta_{yz} \frac{\partial}{\partial x} & 2\Delta_{yz} \frac{\partial}{\partial x} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_x \\ a_y \end{pmatrix} \\
& + \frac{\omega_0^2}{2k_0 c^2} \begin{pmatrix} \Delta_{xx} & \Delta_{xy} \\ \Delta_{xy} & \Delta_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_x \\ a_y \end{pmatrix} = 0
\end{aligned} \tag{2.13}$$

Hier bezeichnen $1/v_G = (\partial k / \partial \omega)|_{\omega=\omega_0}$ die inverse Gruppengeschwindigkeit, $\beta_2 = (\partial^2 k / \partial \omega^2)|_{\omega=\omega_0}$ die Gruppengeschwindigkeitsdispersion und $k_0 = k(\omega_0)$ die Wellenzahl an der Stelle ω_0 . Diese Terme entstehen aus der Potenzreihenentwicklung von $k_z^2(\omega, k_x, k_y) - k_0^2 \approx 2k_0(k_z(\omega, k_x, k_y) - k_0)$ um $\omega = \omega_0$ und $k_x = k_y = 0$.

Die zweite und dritte Zeile stellen walk-off (erste Ableitung bezüglich x und y) bzw. lineare Kopplungen zwischen den beiden Komponenten a_x und a_y dar, die auf die Anisotropie des Mediums zurückzuführen sind. Die linearen Kopplungsterme können jedoch durch eine Hauptachsentransformation mit der Transformationsmatrix U

$$\begin{pmatrix} \kappa_x & 0 \\ 0 & \kappa_y \end{pmatrix} = U^{-1} \frac{\omega_0^2}{2k_0^2 c^2} \begin{pmatrix} \Delta_{xx} & \Delta_{xy} \\ \Delta_{xy} & \Delta_{yy} \end{pmatrix} U \tag{2.14}$$

mit den Eigenwerten

$$\kappa_{x/y} = \frac{\omega_0^2}{2k_0 c^2} \frac{1}{2} \left[\Delta_{xx} + \Delta_{yy} \pm \sqrt{(\Delta_{xx} - \Delta_{yy})^2 + 4\Delta_{xy}^2} \right] \tag{2.15}$$

eliminiert werden. Es ist leicht nachzuvollziehen, daß bei der Transformation

$$\begin{pmatrix} a_x^T \\ a_y^T \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta_{xx} & \Delta_{xy} \\ \Delta_{xy} & \Delta_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_x \\ a_y \end{pmatrix} \tag{2.16}$$

Terme der Form $i(\partial/\partial z)a_j^T + \kappa_j a_j^T$ auftauchen, wobei κ_j die Eigenwerte der transformierten Matrix sind. Das legt eine zweite Transformation der Form

$$a'_j = a_j^T \exp(-i\kappa_j z) \tag{2.17}$$

nahe, denn auf diese Weise verschwinden die linearen Terme gänzlich aus den Gleichungen. Desweiteren ist zu erkennen, daß an den Nichtdiagonalelementen der walk-off Terme aus Gl. (2.13) Phasenterme der Form $\exp[\pm i(\kappa_1 - \kappa_2)z]$ auftauchen. Somit kann man diese Elemente als nicht phasenangepaßt betrachten und sie im weiteren vernachlässigen, da es zu keinem kohärenten Energieaustausch kommen kann [8].

Aus diesen Überlegungen ergeben sich die Ausbreitungsgleichungen, in denen die Komponenten a_x und a_y vollständig entkoppelt sind.

$$i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_G} \frac{\partial}{\partial t} - \delta_{xj} \frac{\partial}{\partial x} - \delta_{yj} \frac{\partial}{\partial y} \right) a'_j - \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} a'_j + \frac{1}{2k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) a'_j = 0 \quad (2.18)$$

Die walk-off-Konstanten δ_{xj} und δ_{yj} ergeben sich aus den Transformationen. Äquivalente Gleichungen sind auch für die zweite Harmonische herzuleiten. Dazu muß in der obigen Gleichung und den früher definierten Parametern lediglich $2\omega_0$ statt ω_0 verwendet werden.

2.2.2 Der nichtlineare Fall

Da der Schwerpunkt der Arbeit auf der Erzeugung der zweiten Harmonischen liegt, reicht es aus, die zweite Ordnung der nichtlinearen Polarisation zu diskutieren. Sie wird im Frequenzraum durch

$$\underline{P}_i^{NL}(\vec{r}, \omega) = \underline{P}_i^{(2)}(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \iint \chi_{ijk}^{(2)}(-(\omega_1 + \omega_2); \omega_1, \omega_2) \underline{E}_j(\vec{r}, \omega_1) \underline{E}_k(\vec{r}, \omega_2) \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega) d\omega_1 d\omega_2 \quad (2.19)$$

definiert. Wendet man die Fouriertransformation (2.5) auf diese Gleichung an und benutzt die Näherung der langsam veränderlichen Amplituden, so erhält man

$$P_i^{(2)}(\vec{r}, t) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} \left(a_{1j}(\vec{r}, t) e^{i(k_{10}z - \omega_0 t)} + a_{2j}(\vec{r}, t) e^{i(k_{20}z - 2\omega_0 t)} + \text{c.c.} \right) \left(a_{1k}(\vec{r}, t) e^{i(k_{10}z - \omega_0 t)} + a_{2k}(\vec{r}, t) e^{i(k_{20}z - 2\omega_0 t)} + \text{c.c.} \right) \quad (2.20)$$

$$i, j, k = x, y, z \quad ,$$

wobei die Frequenzabhängigkeit der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi_{ijk}^{(2)}$ in der Umgebung der beiden Mittenfrequenzen ω_0 und $2\omega_0$ vernachlässigt wurde. a_{1i} bezeichnet die zu ω_0 gehörigen Komponenten und a_{2i} die zu $2\omega_0$ gehörigen. Jetzt

multipliziert man den Ausdruck (2.20) aus und ordnet nach Phasentermen, die $\pm\omega_0$, $\pm 2\omega_0$ usw. enthalten. Diese Terme multipliziert man mit $-\omega_0^2/(2k(\omega_0)\epsilon_0 c^2)$ bzw. $-(2\omega_0)^2/(2k(2\omega_0)\epsilon_0 c^2)$ und setzt sie an die Stelle der 0 auf der rechten Seite von Gl. (2.13). Die Faktoren resultieren aus den Umformungen, die auf dem Wege zu Gl. (2.13) verwendet wurden. Vollführt man die oben beschriebenen Transformationen, ergibt sich auf der linken Seite wieder Gl. (2.18). Rechts vom Gleichheitszeichen tauchen zusammen mit den nichtlinearen Kopplungstermen Phasenterme auf, welche die Wellenzahlen und die Eigenwerte aus Gl. (2.15) enthalten. Die Gleichungen bekommen damit die Form

$$\begin{aligned}
& i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{G1}} \frac{\partial}{\partial t} - \delta_{x1} \frac{\partial}{\partial x} - \delta_{y1} \frac{\partial}{\partial y} \right) a'_1 - \frac{\beta_{21}}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} a'_1 + \frac{1}{2k_{10}} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) a'_1 \\
& = -\gamma_1 a_2'^* a_3' \exp[-i(k_{10}^{an} + k_{20}^{an} - k_{30}^{an})z] \\
& i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{G1}} \frac{\partial}{\partial t} - \delta_{x2} \frac{\partial}{\partial x} - \delta_{y2} \frac{\partial}{\partial y} \right) a'_2 - \frac{\beta_{21}}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} a'_2 + \frac{1}{2k_{10}} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) a'_2 \\
& = -\gamma_2 a_1'^* a_3' \exp[-i(k_{10}^{an} + k_{20}^{an} - k_{30}^{an})z] \\
& i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{G2}} \frac{\partial}{\partial t} - \delta_{x3} \frac{\partial}{\partial x} - \delta_{y3} \frac{\partial}{\partial y} \right) a'_3 - \frac{\beta_{22}}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} a'_3 + \frac{1}{2k_{20}} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) a'_3 \\
& = -\gamma_3 a_1' a_2' \exp[i(k_{10}^{an} + k_{20}^{an} - k_{30}^{an})z] \quad . \tag{2.21}
\end{aligned}$$

Hier sind a'_1 und a'_2 die Komponenten der beiden einfallenden Wellen, und a'_3 steht für die Komponente der erzeugten Welle, die an dem Umwandlungsprozess beteiligt ist. Hier wurden nur Terme mit dem Phasenfehlanpassungsterm $\Delta k = k_{10}^{an} + k_{20}^{an} - k_{30}^{an}$ einbezogen, der bei Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung in nullter Ordnung verschwindet. Für die anisotropen Wellenzahlen gilt $k_{10}^{an} = k_{10} + \kappa_1$, $k_{20}^{an} = k_{10} + \kappa_2$ und $k_{30}^{an} = k_{20} + \kappa_3$, wobei κ_1 und κ_2 den Eigenwerten κ_x bzw. κ_y aus Gl. (2.15) entsprechen. κ_3 kann aus κ_x bzw. κ_y in Gl. (2.15) unter Verwendung von $2\omega_0$ statt ω_0 berechnet werden. Die effektiven nichtlinearen Koeffizienten γ_1 , γ_2 und γ_3 ergeben sich aus den Transformationen in Abschnitt 2.2.1 zu

$$\gamma_{1/2} = \frac{k(\omega_0)}{n^2(\omega_0)} \frac{\chi_{\text{eff}}}{4} \quad \text{und} \quad \gamma_3 = \frac{k(2\omega_0)}{n^2(2\omega_0)} \frac{\chi_{\text{eff}}}{4} \tag{2.22}$$

mit der nichtlinearen Effektivität χ_{eff} . Sie ist durch

$$\chi_{\text{eff}} = \sum_{i,j,k} e_{3i} \chi_{ijk}^{(2)}(-(\omega_1 + \omega_2); \omega_1, \omega_2) e_{1j} e_{2k} \tag{2.23}$$

definiert, worin \vec{e}_1 sowie \vec{e}_2 die Polarisationsvektoren der einfallenden Wellen und \vec{e}_3 den Polarisationsvektor der erzeugten Welle bezeichnen.

2.3 Beschreibung der Terme

In diesem Abschnitt werden die einzelnen Terme der Gl. 2.21 diskutiert und quantitative Größen definiert, um dem jeweiligen physikalischen Problem angepaßte Näherungen einzuführen. Dazu werden für die unterschiedlichen Effekte charakteristische Wechselwirkungslängen definiert [9]. Sie erlauben eine Aussage darüber zu treffen, wie lang ein Kristall sein muß, damit der jeweilige Effekt auftritt bzw. bis zu welcher Kristalllänge dieser vernachlässigt werden kann.

Von nun an werden einachsige Kristalle betrachtet. In Abb. 2.1 aus Abschnitt 2.1 bedeutet das $\varepsilon_x = \varepsilon_y$. Der allgemeine Ellipsoid wird in diesem Fall rotationssymmetrisch um die Z -Achse, die als optische Achse bezeichnet wird. Zur Darstellung reicht eine Schnittebene, welche die optische Achse und den Wellenzahlvektor der betrachteten Welle enthält (Abb. 2.2).

Der erste Term, also die Ableitung bezüglich z , beschreibt die Änderung der Einhüllenden während der Ausbreitung im Medium.

Der Term $(1/v_{G1})(\partial/\partial t)$ beschreibt die zeitliche Modulation des Pulses und Effekte wie die Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung zwischen der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen. Er ist auch als zeitlicher „walk-off“-Term interpretierbar, denn aufgrund unterschiedlicher Gruppengeschwindigkeiten entfernen sich die Pulse mit der Zeit voneinander. Die *quasi-statische Wechselwirkungslänge* L_{qs} wird durch

$$L_{qs} = \frac{\tau}{v_{G1}^{-1} - v_{G2}^{-1}} = \frac{\tau}{\nu} \quad (2.24)$$

eingeführt. Dabei sind τ die Impulsdauer und v_{Gi} die Gruppengeschwindigkeiten.

Die ersten Ableitungen bezüglich x bzw. y mit den Vorfaktoren δ_{xi} und δ_{yi} beschreiben den räumlichen „walk-off“ bezüglich der transversalen Koordinaten. Die Anisotropie des Mediums verursacht diesen Effekt und bewirkt, daß die Poin-tingvektoren der ordentlichen und der außerordentlichen Wellen \vec{S}_o bzw. \vec{S}_{ao} im allgemeinen nicht in dieselbe Richtung zeigen (Abb. 2.2). Der Winkel zwischen

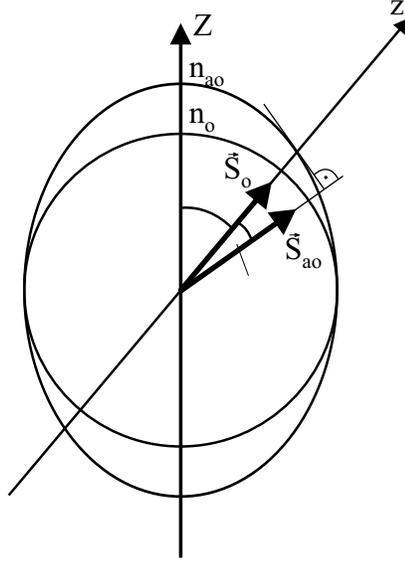


Abb. 2.2: Der Winkel ρ bezeichnet den „walk-off“-Winkel zwischen ordentlichem und außerordentlichem Strahl in einem anisotropen, einachsigen Kristall.

ihnen wird mit dem „walk-off“-Winkel ρ bezeichnet und ist durch

$$\rho = \pm \arctan \left[\left(\frac{n_o}{n_{ao}} \right)^2 \tan \theta \right] \mp \theta \quad (2.25)$$

bestimmt [9], n_o und n_{ao} bezeichnen die Hauptachsen des Indexellipsoiden. Dabei steht das obere Vorzeichen für negative ($n_o > n_{ao}$) und das untere für positive einachsige Kristalle ($n_o < n_{ao}$). Es ist leicht einzusehen, daß die beiden Pulse mit einer Strahlbreite d_0 aufgrund der unterschiedlichen Richtungen im Kristall nach einer charakteristischen *Aperturlänge*

$$L_a = \frac{d_0}{\rho} \quad (2.26)$$

keine Energie mehr austauschen können.

Die zweite Ableitung bezüglich der Zeit beschreibt die dispersive Aufweitung des Impulses. Der Vorfaktor β_{2i} wird Gruppengeschwindigkeitsdispersion genannt. Er ist identisch mit $\partial^2 k / (\partial \omega^2)|_{\omega=\omega_0}$. Dieser Effekt ist nach der *dispersiven Aufweitungslänge*

$$L_d = \frac{\tau^2}{\beta_{2i}} \quad (2.27)$$

zu beobachten.

Der Term, der die zweiten Ableitungen nach den transversalen Koordianten x und y enthält, beschreibt den Effekt der Beugung. Die *Beugungslänge*

$$L_b = kd_0^2 \quad (2.28)$$

ist durch den Wellenzahlvektor k und den Strahldurchmesser d_0 bestimmt.

Die rechte Seite der Gl. 2.21 beschreibt die nichtlineare Kopplung der wechselwirkenden Pulse. Hier kann eine effektive *nichtlineare Wechselwirkungslänge*

$$L_{NL} = \frac{1}{\gamma \sqrt{a_1'^2(0) + a_2'^2(0) + a_3'^2(0)}} \quad (2.29)$$

eingeführt werden, die ein Maß für die Strecke durch einen nichtlinearen Kristall ist, nach der die Fundamentalwellen deutlich geschwächt werden. Die Größen $a_i'(0)$ stehen für die Wellenamplituden an der Eintrittsoberfläche des Kristalles ($z = 0$), und γ ist der nichtlineare Koeffizient aus Gl. 2.22.

Der Phasenterm $\exp[\pm i\Delta kz]$ verschwindet für $\Delta k = 0$. Man spricht dann von Phasenanpassung, die allerdings ohne größeren Aufwand nur für eine Frequenz verwirklicht werden kann. Bei einem kurzen Impuls wählt man dafür im allgemeinen die Mittenfrequenz. Da die benachbarten Frequenzen aus dem Spektrum phasenfehlangepaßt sind, werden diese ineffektiver umgewandelt. Dieser Effekt verstärkt sich, je weiter die jeweilige Frequenz von der Mittenfrequenz entfernt ist. Der Kristall zwingt somit dem Spektrum der zweiten Harmonischen seine Akzeptanzkurve auf, die proportional zu $[\sin(\frac{1}{2}\Delta kL)/(\frac{1}{2}\Delta kL)]^2$ ist [9, 5]. L steht für die Kristalllänge, und Δk ist die Phasenfehlanpassung, die in erster Näherung mittels

$$\begin{aligned} \Delta k &= \Delta k(\lambda, \theta, T) = \\ &\Delta k(\lambda_0, \theta_0, T_0) + \left. \frac{\partial \Delta k}{\partial \lambda} \right|_{\lambda_0} \Delta \lambda + \left. \frac{\partial \Delta k}{\partial \theta} \right|_{\theta_0} \Delta \theta + \left. \frac{\partial \Delta k}{\partial T} \right|_{T_0} \Delta T + \dots \end{aligned} \quad (2.30)$$

beschrieben werden kann. Δk hängt von den Parametern Temperatur T , Winkel θ und Wellenlänge λ sowie ihren Variationen ΔT , $\Delta \theta$ und $\Delta \lambda$ ab. An dieser Stelle kann nun eine *Phasenkohärenzlänge*

$$L_{pk} = 0.866 \frac{\pi}{\Delta k} \quad (2.31)$$

Bezeichnung	Wechselwirkungslänge [mm]
nichtlineare Wechselwirkungslänge L_{NL}	0,8
Phasenkohärenzlänge L_{pk}	0,9
quasi-statische Wechselwirkungslänge L_{qs}	1
dispersive Aufweitungslänge L_d	80
Aperturlänge L_a	600
Beugungslänge L_b	10^7

Tabelle 2.1: Wechselwirkungslängen eines 90 fs-Impuls mit 20 nm Bandbreite bei $\lambda_0 = 795$ nm für die Erzeugung der zweiten Harmonischen. Die Energie beträgt 250 mJ und der Strahldurchmesser 3 cm. Für die Berechnungen wurden die Materialkonstanten eines KDP-Kristalles verwendet.

eingeführt werden. Übersteigt die Länge des Kristalles diesen Wert, wird das Spektrum des Impulses durch die Akzeptanzkurve des Kristalles bestimmt. Es wird deutlich, daß das Spektrum des erzeugten Impulses mit wachsender Kristalllänge enger wird.

Im folgenden Abschnitt wird das Problem der Frequenzverdopplung am Jenner Terawatt-Ti:Sa-Lasersystem konkretisiert.

2.4 Abschätzungen und Relevanzbetrachtungen

Es existiert keine analytische Lösung für Gl. 2.21. Daher ist es wünschenswert, irrelevante bzw. kleine Terme zu vernachlässigen. Um die Näherungen einzuführen, müssen die Parameter des Laserimpulses bekannt sein.

Hinter dem Vakuum-Kompressor, wo der Laserimpuls frequenzverdoppelt werden soll, besitzt dieser eine Energie von ungefähr 250 mJ ohne bzw. 900 mJ mit 2-Pass-Verstärker. Die Impulsdauer beträgt ca. 90 fs. Der Querschnitt ist elliptisch mit einer Ausdehnung von 3 mal 5 Zentimetern. Daraus ergibt sich eine Intensität von 110 bzw. 400 GWcm^{-2} . Aus diesen Daten werden die in Abschnitt 2.3 eingeführten Wechselwirkungslängen mittels der Gleichungen 2.24 bis 2.29 berechnet (Tab. 2.1). Natürlich gehen in die Berechnungen ebenfalls die charakteristischen Materialkonstanten Gruppengeschwindigkeit v_G , Brechzahl n und Gruppengeschwindigkeitsdispersion β sowie die nichtlineare Effektivität χ_{eff} ein.

Für diese Abschätzungen wurde ein KDP-Kristall gewählt. Zur Abschätzung der Relevanz der verschiedenen Effekte reicht es jedoch aus, die Werte in der richtigen Größenordnung zu verwenden.

Anhand der Daten wird deutlich, daß die Kristalllänge im Bereich einiger Millimeter liegen sollte, um eine möglichst hohe Umwandlungseffizienz zu erreichen. Andererseits macht sich dann schon die Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung bemerkbar, wie aus dem L_{qs} -Wert deutlich wird. Eine weitere Beschränkung der Kristalllänge ist durch die Einengung des Spektrums der zweiten Harmonischen gegeben. Diese setzt ein, falls der Kristall eine Länge von 900 μm übersteigt.

Zur theoretischen Beschreibung müssen demnach die Schwächung der Fundamentalwellen, die Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung und die spektrale Akzeptanz des Kristalles berücksichtigt werden. Damit erhalten die Gleichungen 2.21 die Form

$$\begin{aligned} i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{G1}} \frac{\partial}{\partial t} \right) a'_1 &= - \gamma_1 a_2'^* a_3' \exp[-i\Delta kz] \\ i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{G1}} \frac{\partial}{\partial t} \right) a'_2 &= - \gamma_2 a_1'^* a_3' \exp[-i\Delta kz] \\ i \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_{G2}} \frac{\partial}{\partial t} \right) a'_3 &= - \gamma_3 a_1' a_2' \exp[i\Delta kz] \quad . \end{aligned} \quad (2.32)$$

Auch für diesen Spezialfall existiert keine analytische Lösung.

Betrachtet man die SHG in ooe-Wechselwirkung, so sind die ersten beiden Gleichungen aus (2.32) identisch. Wird außerdem der zeitliche „walk-off“-Term vernachlässigt und die Anfangsintensität der zweiten Harmonischen Null gesetzt, kann die exakte Lösung der zwei gekoppelten Differentialgleichungen betrachtet werden. Die SHG-Effizienz η^* eines nichtlinearen Mediums der Länge l beträgt somit

$$\eta^* = (0) v_b^2 \text{sn}^2 \left(\frac{\Gamma l}{v_b} \middle| v_b^4 \right) \quad , \quad (2.33)$$

worin sn für die Jakobische elliptische Funktion steht [10, 11]. Die Konstanten sind definiert durch

$$\frac{1}{v_b} = \frac{\Delta k}{4\Gamma} + \sqrt{1 + \left(\frac{\Delta k}{4\Gamma} \right)^2} \quad \text{und} \quad \Gamma = \frac{\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} |E_1| \quad (2.34)$$

mit der Phasenfehlانpassung Δk , der nichtlinearen Effektivität $d_{\text{eff}} = \chi_{\text{eff}}/2$ und dem Brechungsindex bzw. der Frequenz der Fundamentalen n_1 und ω_1 sowie der Lichtgeschwindigkeit c in Luft. Γ ist umgekehrt proportional zu der in Abschnitt 2.3 eingeführten nichtlinearen Wechselwirkungslänge. Ein wichtiges Resultat ist die Einengung der Hauptspitze der Akzeptanzfunktion mit zunehmender Konversion. Die Halbwertsbreite $(\Delta kl)_{FWHM}$ nimmt ab, je höher die Eingangsintensität der Fundamentalen ist [11, 12]. Mittels

$$\Delta\lambda_{PM} = \left(\frac{d(\Delta kl)}{d\lambda} \right)^{-1} (\Delta kl)_{FWHM} \quad (2.35)$$

kann die spektrale Bandbreite berechnet werden. Bei konstanter Kristalllänge nimmt diese mit steigender Intensität der Fundamentalen ab und beschränkt somit die maximale Konversionseffizienz.

Kapitel 3

Charakterisierung von Laserimpulsen

In den meisten Experimenten ist es von großer Bedeutung, den Laserimpuls zu charakterisieren, was durch die Bestimmung des Strahlprofils, der Impulsdauer und im Idealfall auch der Phase des Laserimpulses realisiert wird. Im folgenden soll die Bestimmung der Impulsdauer von fs-Laserimpulsen besprochen werden.

Die Problematik ergibt sich aus der Tatsache, daß keine Elektronik zur Verfügung steht, die Zeitfenster im Femtosekundenbereich auflösen kann. Die Untergrenze hierfür liegt bei rund 10 ps [13]. Eine sehr nützliche Methode ist die Auto- bzw. Kreuzkorrelation. Dabei wird ausgenutzt, daß die Dauer t_L eines Laserimpulses einer Länge l in seiner Ausbreitungsrichtung entspricht. Sie ist durch $l = ct_L$ definiert, wobei c die Lichtgeschwindigkeit in Luft ist. Ein 100 fs-Impuls entspricht einer Länge von $30 \mu\text{m}$. Ein Laserimpuls mit der Feldstärke E_1 wird mit

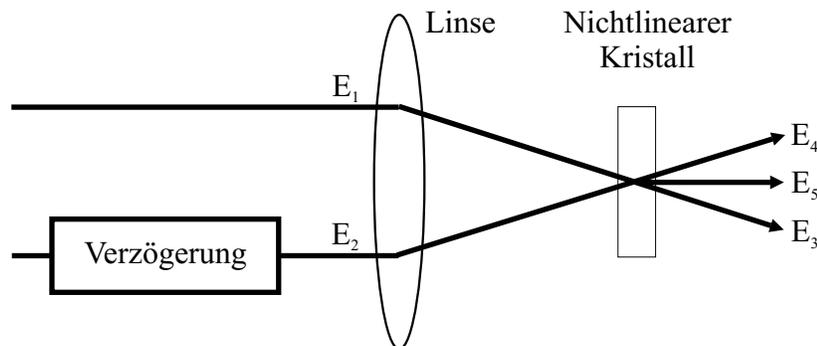


Abb. 3.1: Schema einer Korrelationsmessung [13].

einem zweiten Impuls (E_2), der über eine Verzögerungseinheit läuft, in einem nichtlinearen Medium überlagert. Als Korrelationssignal dient das Signal E_5 eines nichtlinearen Effektes, wobei die Dauer der Systemantwort des nichtlinearen Effektes klein gegenüber der Impulsdauer sein muß (Abb. 3.1). Die Ordnung des nichtlinearen Effektes bestimmt die Ordnung der Korrelation. Stammen E_1 und E_2 von demselben Impuls, spricht man von einer Autokorrelation. Wird einer der Impulse vor der nichtlinearen Wechselwirkung verändert (z.B. frequenzverdoppelt) oder stammen sie von verschiedenen Quellen, dann spricht man von Kreuzkorrelation.

Nun kommen die verschiedensten nichtlinearen Effekte in Frage, um das Korrelationssignal zu erzeugen. So kann die Summen- und Differenzfrequenzerzeugung in nichtlinearen, anisotropen Kristallen wie BBO oder KDP ausgenutzt werden. Die einfachste Variante ist die SHG-Autokorrelation [14], welche jedoch nur für die Charakterisierung von Impulsen mit Zentralwellenlängen über 400 nm verwendbar ist, da unterhalb dieser Grenze keine Kristalle existieren, in denen die Phasenanpassung für den Erzeugungsprozeß realisiert werden kann. Die Zweiphotonenabsorption wurde schon sehr früh zu Autokorrelationsmessungen verwendet [15, 16]. Inzwischen gibt es verschiedene Photodiodenmaterialien, welche die Zweiphotonenabsorption auch bis in den ultravioletten Bereich ermöglichen [17, 18, 19]. Der Nachteil dieser Methode ist das Hintergrundsignal, das eine hohe Dynamik des Autokorrelators verhindert.

Eine weitere Möglichkeit für eine Autokorrelation von Pulsen unter 400 nm ist die Ausnutzung von nichtlinearen Effekten dritter Ordnung. Dazu gehören beispielsweise der Kerr-Autokorrelator [20, 21, 22] und der SD-Autokorrelator (Self Diffraction) [23]. Ihr Vorteil gegenüber den Autokorrelatoren zweiter Ordnung besteht darin, daß sie die Impulsform widerspiegeln. Allerdings hat das Signal in diesen beiden Fällen die gleiche Wellenlänge wie der zu charakterisierende Impuls, so daß eine Separation schwierig ist. Dieser Fakt wirkt sich wiederum zu Ungunsten der Dynamik aus.

Die Kreuzkorrelation des frequenzverdoppelten Laserimpulses mit der Fundamentalen bietet eine einfache Möglichkeit, die Impulsdauer der SHG zu bestim-

men und gleichzeitig eine hohe Dynamik zu sichern. Auf diese Methode soll im folgenden Abschnitt eingegangen werden.

3.1 Die Kreuzkorrelation

Die Frequenzverdopplung des Fundamentalimpulses geschieht im parallelen Strahl. Hinter dem Kristall müssen der geschwächte Fundamentalimpuls (E_1 in Abb. 3.1) und die zweite Harmonische (E_2) voneinander getrennt werden. Die Kreuzkorrelation erfolgt wie in Abb. 3.1 skizziert. Das nichtlineare Medium ist in diesem Fall ein dünner BBO-Kristall (100 μm), in dem die Summenfrequenz aus den beiden Eingangsimpulsen, also die dritte Harmonische der Fundamentalen, erzeugt wird. Dieses Signal dient als Korrelationssignal $A(\tau)$ und genügt der Beziehung

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{2\omega}(t) I_{\omega}(t - \tau) dt \quad , \quad (3.1)$$

wenn der Prozeß der Summenfrequenzmischung nicht gesättigt ist, die Intensität der dritten Harmonischen also viel kleiner als die der Fundamentalen und der SHG ist. $I_{2\omega}(t)$ bezeichnet die Intensität der zweiten Harmonischen und $I_{\omega}(t)$ die des Fundamentalimpulses. Ist $I_{\omega}(t)$ bekannt, ist es möglich, aus der gemessenen Korrelationskurve $A(\tau)$ den zeitlichen Intensitätsverlauf $I_{2\omega}(t)$ zu rekonstruieren. Das Ergebnis wird umso genauer, je kürzer die Zeitdauer von $I_{\omega}(t)$ gegenüber der von $I_{2\omega}(t)$ ist. Wendet man auf (3.1) die Fouriertransformation an, so ergibt sich

$$\underline{A}(\omega) = \underline{I}_{2\omega}(\omega) \cdot \underline{I}_{\omega}(\omega) \quad , \quad (3.2)$$

wobei die unterstrichenen Größen die fouriertransformierten Größen darstellen. Der zeitliche Verlauf der Intensität der zweiten Harmonischen kann nun durch inverse Fouriertransformation von $\underline{I}_{2\omega}(\omega)$ bestimmt werden, falls sowohl die Amplitude als auch die Phase von A und I_{ω} vollständig bekannt sind. Man kann leicht zeigen, daß für Impulse, die durch eine Gaußfunktion beschrieben werden, die Beziehung

$$\tau_{2\omega} = \sqrt{\tau_A^2 - \tau_{\omega}^2} \quad (3.3)$$

gilt. Dabei stehen τ_ω , $\tau_{2\omega}$ und τ_A für die vollen Halbwertsbreiten der Fundamentalen, der zweiten Harmonischen bzw. des Korrelations-signalen.

Kapitel 4

Experimente

In Abbildung 4.1 ist der Aufbau des Jenaer Multi-Terawatt-Titan-Saphir-Lasersystems dargestellt. Der Femtosekundenoszillator liefert Laserimpulse mit einer spektralen Breite von 20 nm, einer Wiederholrate von 83 MHz und einer Energie von rund 10 nJ pro Impuls. Mit einer darauffolgenden Pockelszelle wird die Rate auf 10 Hz reduziert. Als nächstes werden die Femtosekundenimpulse im Strecker auf 129 ps verlängert, damit sie bei der weiteren Verstärkung keine Schäden in den optischen Elementen verursachen. Die erste Stufe bildet der regenerative Verstärker, den die Impulse mit einer Energie von ca. 2 bis 3 mJ verlassen. Hiernach besteht die Möglichkeit, die Impulse auszukoppeln und in einem Zwei-Gitter-Kompressor auf 67 fs [24] zu komprimieren. An dieser Stelle wurden die ersten Experimente zur Frequenzverdopplung von Femtosekundenlaserimpulsen durchgeführt und der Kreuzkorrelator ausführlich getestet.

Nach dem regenerativen Verstärker befindet sich eine Vorpulseinheit [25], die es ermöglicht, definierte Vorimpulse im Abständen von 0 bis 300 ps zu erzeugen. Im folgenden 4-Paß-Verstärker wird die Energie pro Impuls auf 400 mJ erhöht. Optional kann zusätzlich der 2-Paß-Verstärker zum Einsatz kommen, wodurch die Ausgangsenergie die 1 J-Marke erreicht. Dieser Verstärker wurde aber in der vorliegenden Arbeit nicht verwendet.

Danach wird der Impuls im Gitterkompressor auf 90 fs verkürzt. Dieser sowie der restliche Strahlweg befinden sich im Vakuum, wodurch nichtlineare Wechselwirkungen des Laserimpulses in Luft verhindert werden. Hinter dem Kompressor

Jenaer Multi - 15 TW - Ti:Saphir - Lasersystem

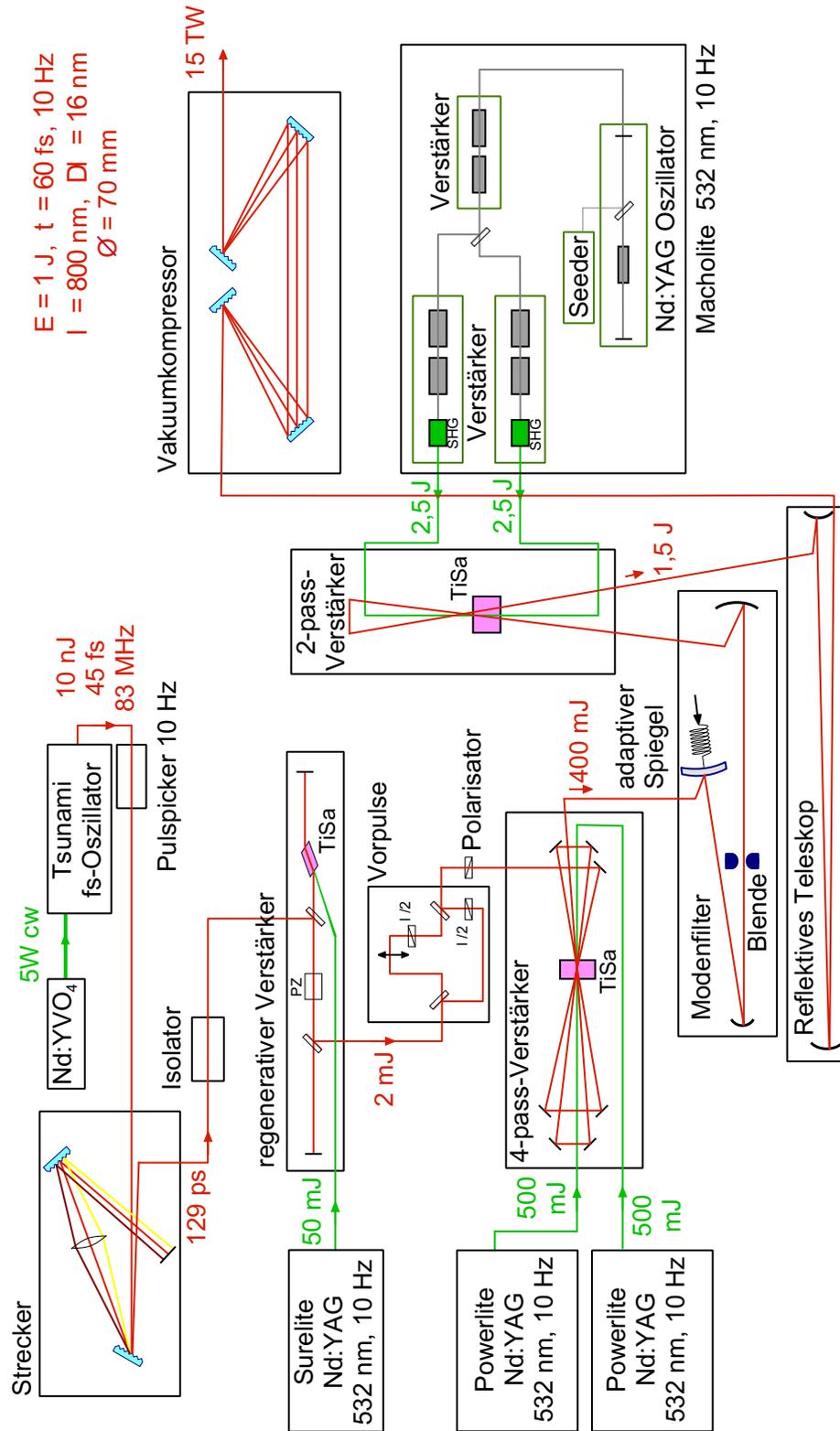


Abb. 4.1: Aufbau des Jenaer Multi-Terawatt-Titan-Saphir-Lasersystems.

kann der Impuls durch eine THG-Autokorrelation charakterisiert werden. THG bezeichnet die Erzeugung der dritten Harmonischen, im Englischen „third harmonic generation“. Anschließend an die Diagnosekammer wurde eine zusätzliche Vakuumkammer integriert, in der die SHG-Experimente mit dem voll verstärkten Impuls durchgeführt wurden.

4.1 Experimente mit 1 mJ-Impulsen

Die ersten Experimente zur Verdopplung des Titan-Saphir-Femtosekunden-Laserimpulses wurden hinter dem regenerativen Verstärker durchgeführt. Dafür wurde der Impuls aus dem Strahlweg ausgekoppelt und in einem separaten Gitterkompressor auf etwa 100 fs komprimiert. In den Messungen wurden die Energie, das Strahlprofil, das Spektrum und die Impulsdauer der Fundamentalen bestimmt. Desweiteren wurden die Konversionseffizienz für unterschiedliche Energien und Kristalle sowie das Spektrum der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit vom Phasenanpassungswinkel gemessen. Im letzten Teil dieser vorbereitenden Messungen wurde ein Kreuzkorrelator zur Bestimmung der Impulsdauer der zweiten Harmonischen aufgebaut.

4.1.1 Charakterisierung des Fundamentalimpulses

Nach dem regenerativen Verstärker besaß der Impuls eine Energie von 2,5 mJ. Am Experimentierplatz stand eine Energie von rund 0,6 mJ zur Verfügung. Die restliche Energie ging an Spiegeln, Strahlteilern und den Kompressorgittern verloren.

Das Strahlprofil war leicht elliptisch und wurde entlang der großen und kleinen Hauptachse als gaußförmig angenommen. Abbildung 4.2 zeigt die Messung des Strahlprofils mittels der Schneiden-Methode. Die Anpassung der Gaußschen Fehlerfunktion ergibt volle Halbwertsbreiten von 4,2 mm und 3,9 mm.

Nach dem Kompressor wurde mit Hilfe eines SHG-Einzelschußkorrelators die Impulsdauer bestimmt. Abbildung 4.3 zeigt eine gemessene Autokorrelationskurve (Kreuze) zusammen mit einer angepaßten Gaußfunktion (durchgezogene Li-

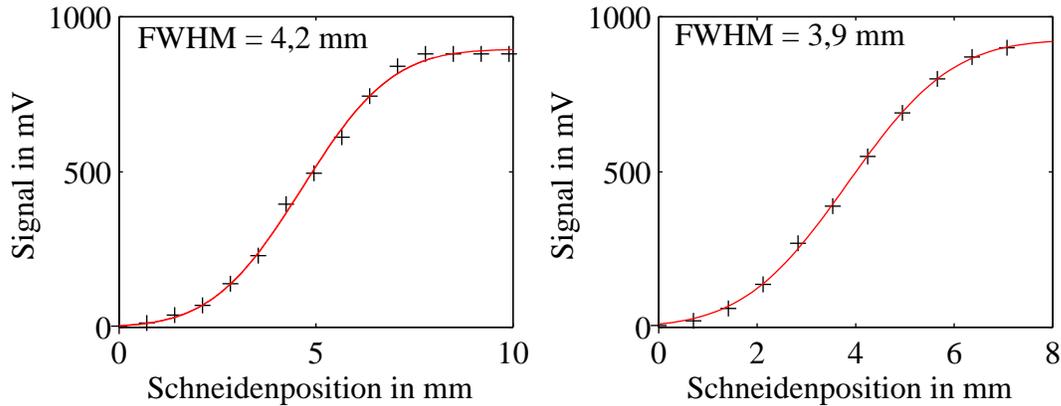


Abb. 4.2: Messung des elliptischen Strahlprofils nach dem regenerativen Verstärker.

nie), deren volle Halbwertsbreite 188 fs beträgt. Daraus ergibt sich eine Impulsdauer von 133 fs.

Zusätzlich wurde das Spektrum der Fundamentalen mit einem Spektrographen (POC4M2, Bestec GmbH) aufgenommen (siehe Abb. 4.6). Eine Fouriertransformation des Spektrums zeigt, daß bei optimaler Kompression eine Impulsdauer von 45 fs erreichbar sein sollte. Die Diskrepanz zu dem mit Hilfe der Autokorrelation bestimmten Wert ist auf eine unzureichende Justage des Kompressors zurückzuführen.

4.1.2 Charakterisierung der zweiten Harmonischen

Für die Charakterisierung der zweiten Harmonischen wurde der Aufbau aus Abbildung 4.4 verwendet. Die Photodiode wurde mit einem Energiemeßkopf (ED100a, GENTEC) kalibriert, mit dem auch die Energie der Fundamentalen gemessen wurde. Auf diese Weise konnte die Energie der SHG in Abhängigkeit von der Energie bzw. der Intensität der Fundamentalen gemessen werden (Abb. 4.5). Die Konversionseffizienz η , definiert als das Verhältnis der beiden Impulsenergien $E_{2\omega}$ und E_{ω} , entspricht bei der Annahme konstanter Flächen und Impulsdauern dem Verhältnis der beiden Intensitäten. Für kleine Intensitäten der Fundamentalen erwartet man ein lineares Ansteigen der Konversionseffizienz, da die Intensität der zweiten Harmonischen quadratisch anwächst.

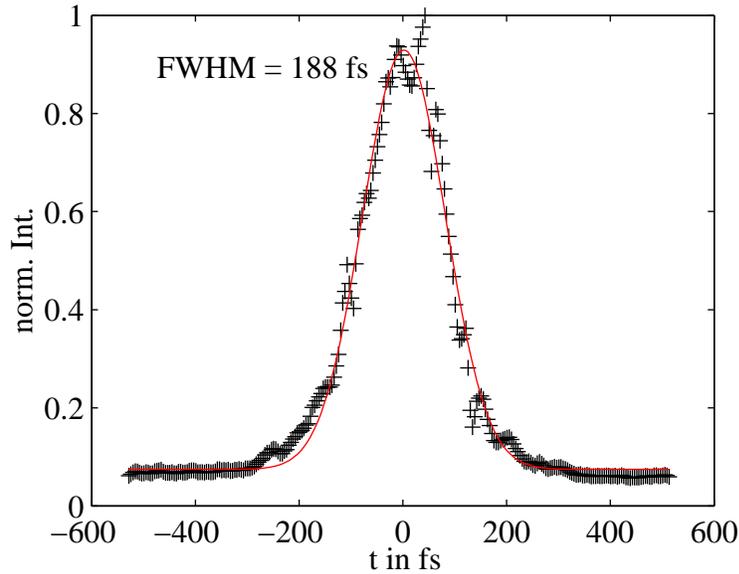


Abb. 4.3: SHG-Einzelschußautokorrelation der Fundamentalen nach dem separaten Gitterkompressor.

Anhand der Meßwerte wird bereits deutlich, daß die Effizienzkurven des 500 μm dicken BBO-Kristalles sowie des KDP-Kristalles von einem linearen Anstieg mit der Intensität abweichen. Dies deutet auf eine Sättigung in der Frequenzverdopplung hin. Die beiden dünnen BBO-Kristalle zeigten dieses Verhalten bei den zur Verfügung stehenden Intensitäten nicht, was bei dem Aufbau und der Justage des Kreuzkorrelators noch eine Rolle spielt.

In einer weiteren Messung wurde das Spektrum der zweiten Harmonischen aufgenommen. Hierfür wurde der KDP-Kristall verwendet, da dieser auch in der Frequenzverdopplung mit voller Energie zum Einsatz kommen sollte. Zunächst wurde die Kristallposition anhand des Photodiodensignales optimiert, was zu dem in Abb. 4.6a gezeigten Spektrum führte. Die spektrale Auflösung des Gitterspektrometers betrug 0,1 nm für die zweite Harmonische und 0,2 nm für die Fundamentale. Dargestellt sind auch die Spektren der Fundamentale vor (gepunktete Kurve) und hinter dem Kristall (ausgezogene Kurve). Integriert man die Kurven über die Wellenlänge, so erhält man die jeweilige Fluenz des Laserimpulses, angegeben in Energie pro Flächeneinheit.

Das Spektrum der Fundamentale wurde durch den Umwandlungsprozeß deut-

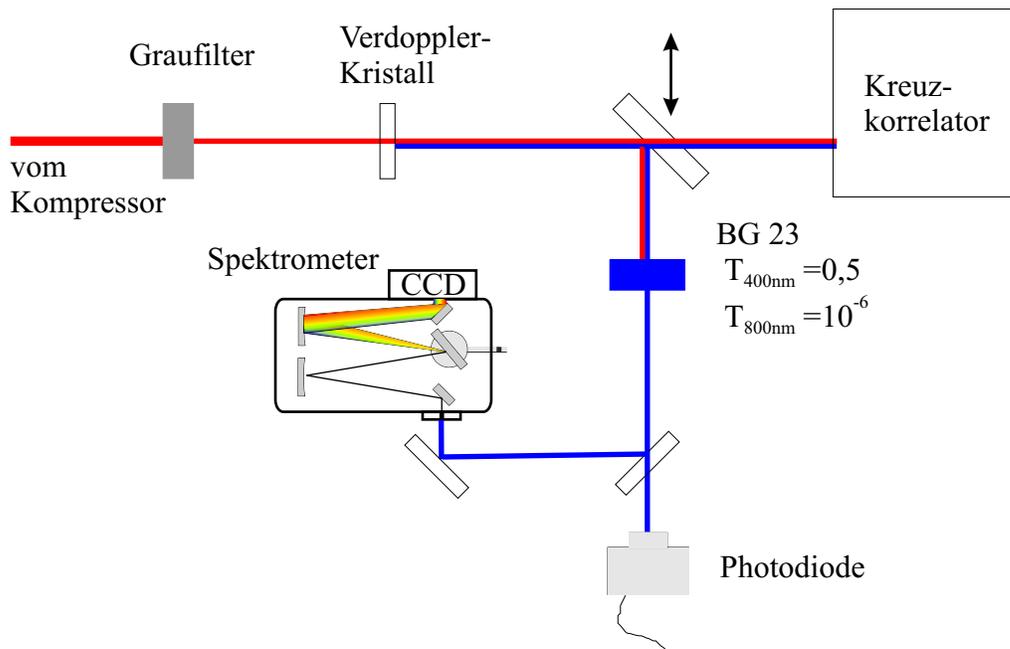


Abb. 4.4: Schema des Meßaufbaus zur Charakterisierung der zweiten Harmonischen hinter dem regenerativen Verstärker.

lich reduziert, und zwar in dem Wellenlängenbereich, für den die Phasenanpassung optimal war. Außerdem fällt auf, daß sich die Form des Fundamentalspektrums nicht ändert, was auf die Abwesenheit nichtlinearer Effekte höherer Ordnung während des Umwandlungsprozesses bzw. beim Durchgang durch den Kristall schließen läßt. Zu kürzeren Wellenlängen zeigt sich ebenfalls ein Abbau der Fundamentalen, obwohl dort scheinbar keine Frequenzverdopplung stattfindet. Dies ist auf die Empfindlichkeit des Detektors zurückzuführen, die unter 400 nm stark abnimmt (Abb. 4.7). Leider konnte der Hersteller keine detaillierteren Angaben machen, die eine genauere Aussage über das Verhalten unterhalb von 400 nm zugelassen hätten.

Das Spektrum der zweiten Harmonischen würde im Idealfall eine Halbwertsbreite besitzen, die einem Viertel der Halbwertsbreite der Fundamentalen (17 nm) entspricht. Anhand der Meßergebnisse wird aber bereits deutlich, daß der Kristall dem Spektrum der zweiten Harmonischen seine sinc^2 -Akzeptanzfunktion aufzwingt, was sich als Einengung manifestiert (2 nm).

Im nächsten Schritt wurde der Kristallwinkel variiert (Abb. 4.8). Die Varia-

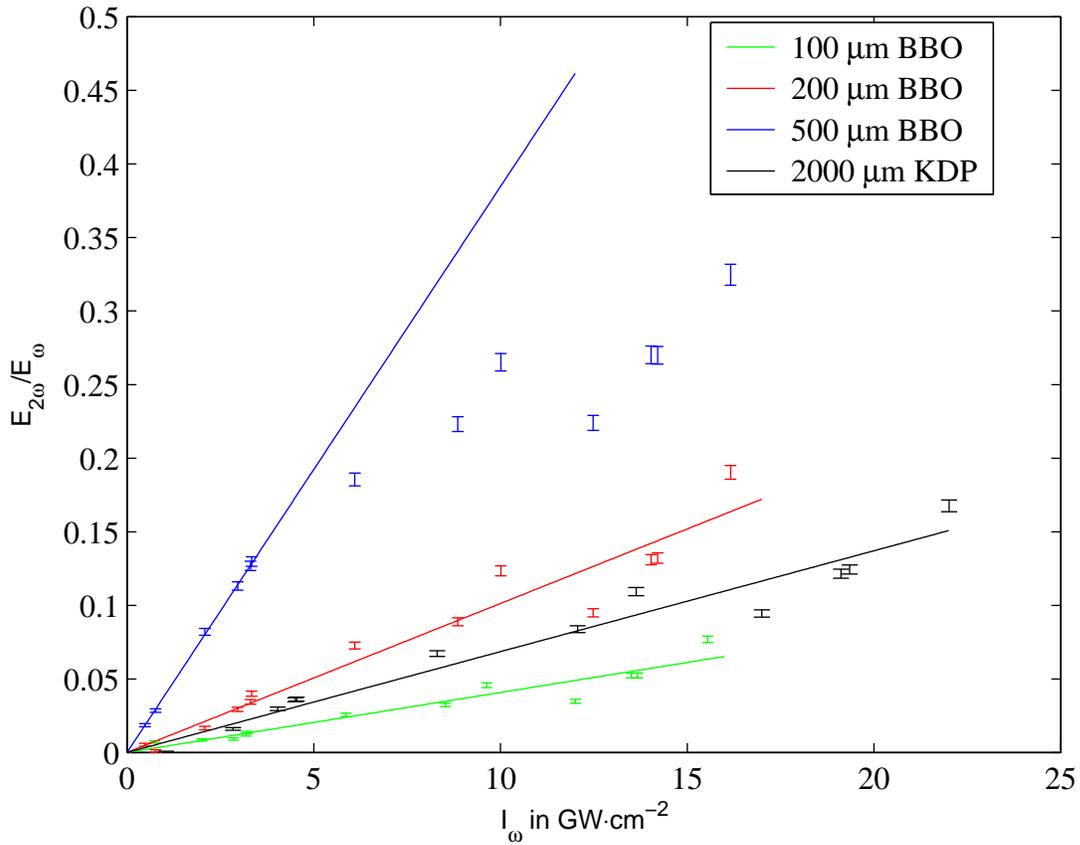


Abb. 4.5: Meßwerte zur Konversionseffizienz $E_{2\omega}/E_\omega$ in Abhängigkeit von der Intensität der Fundamentalen für verschiedene Verdopplerkristalle. Verwendet wurden die Materialien BBO mit den Dicken 100 μm , 200 μm und 500 μm sowie KDP mit einer Dicke von 2 mm.

tion des Winkels ist gleichzusetzen mit der Änderung der Wellenlänge, für die die Phasenanpassung realisiert ist. Diese wird dann in nullter Näherung optimal umgewandelt, was sich in der Verschiebung der Mittenwellenlänge der zweiten Harmonischen mit dem Winkel ausdrückt. Die Abnahme der Amplitude zu beiden Seiten wird durch die Form des Fundamentalspektrums erklärt. Entfernt man sich weiter von der Phasenanpassung der Mittenwellenlänge, werden die Nebenmaxima der sinc^2 -Akzeptanzfunktion sichtbar.

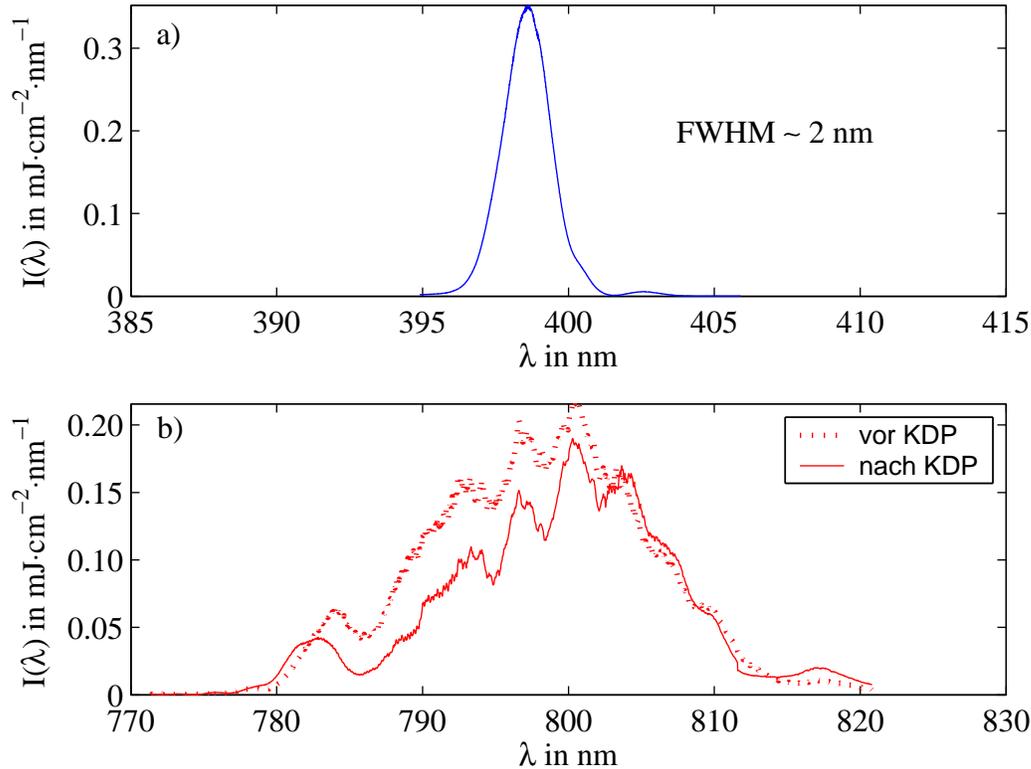


Abb. 4.6: Spektrum der zweiten Harmonischen für optimale Phasenanpassung (a). Außerdem ist das Spektrum der Fundamentalen vor (gepunktete Kurve) und nach dem Kristall (durchgezogene Kurve) dargestellt (b). Die Intensität der Fundamentalen betrug $\sim 22 \text{ GW}\cdot\text{cm}^{-2}$. Das spektrale Auflösungsvermögen betrug 0,2 nm für die Fundamentale und 0,1 nm für die zweite Harmonische.

4.1.3 Aufbau und Justage des Kreuzkorrelators

Abbildung 4.9 zeigt den Aufbau des Kreuzkorrelators, der zur Charakterisierung der zweiten Harmonischen aufgebaut wurde. Der Strahlteiler am Eingang des Korrelators reflektiert die zweite Harmonische mit rund 99 %. Die Fundamentale passiert mit rund 94 %. Der Fundamentalimpuls läßt sich durch den motorisierten Verschiebetisch zeitlich gegenüber dem frequenzverdoppelten Impuls verzögern. Mit dem sphärischen Spiegel werden die Impulse in einen dünnen BBO-Kristall ($100 \mu\text{m}$) fokussiert, wo sie die dritte Harmonische in eoe-Wechselwirkung als Korrelationssignal erzeugen, das mit einer SiC-Photodiode gemessen wird.

Um dieses Signal zu finden, müssen die beiden zu korrelierenden Impulse in dem nichtlinearen Kristall räumlich und zeitlich überlappen. Für den räumlichen

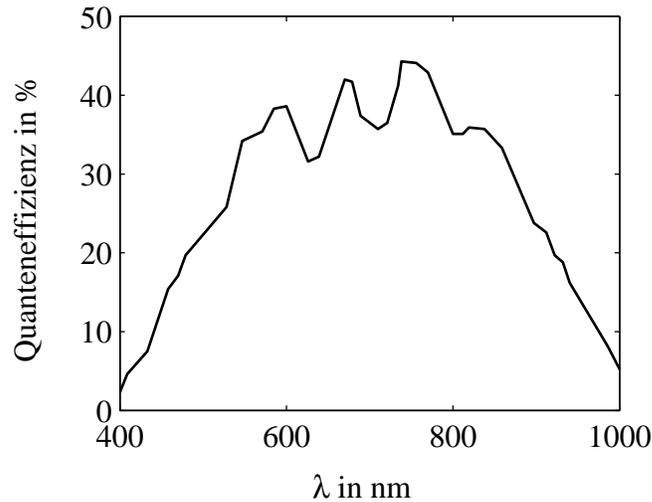


Abb. 4.7: Empfindlichkeit des im Spektrometer eingebauten CCD-Chips (Kodak, KAF 1600) in Abhängigkeit von der Wellenlänge (Herstellerangabe von Eastman Kodak Company).

Überlapp wurde eine Blende mit einem Durchmesser von ungefähr $30\ \mu\text{m}$ in den Fokus des sphärischen Spiegels gestellt, auf welche die beiden Impulse justiert wurden. Als Blende eignet sich auch ein festes Papier, welches durch einen der beiden Impulse „durchbohrt“ wird. Auf diese Weise findet man den Fokus nach Gehör. Der andere Impuls wird durch diese entstandene Blende gelegt. Damit ist der Überlapp der beiden Strahlen garantiert. Als nächstes wird eine feine Spitze verwendet, um die Position der Blende zu markieren, die sogleich entfernt wird. Nun stellt man den Kristall an die markierte Stelle, und hat somit den räumlichen Überlapp der beiden Impulse im Kristall sichergestellt. Da ein sehr dünner Kristall verwendet wird, ist der Akzeptanzwinkel für die 3ω -Erzeugung relativ groß (1,7 Grad). Deshalb ist es nicht entscheidend, den Phasenanpassungswinkel von Beginn an zu optimieren. Ist der Kristall für den zugehörigen Phasenanpassungswinkel geschnitten (55,5 Grad), so genügt es, ihn senkrecht in den Strahlengang zu stellen. Die Optimierung erfolgt später mit Hilfe einer Photodiode.

Im nächsten Schritt gilt es, den zeitlichen Nullpunkt zu finden, in dem das Korrelationssignal maximal bzw. überhaupt erst sichtbar wird. Für einen 100 fs-Impuls ist der Bereich, in dem das dritte Harmonische-Signal zu sehen ist, ledig-

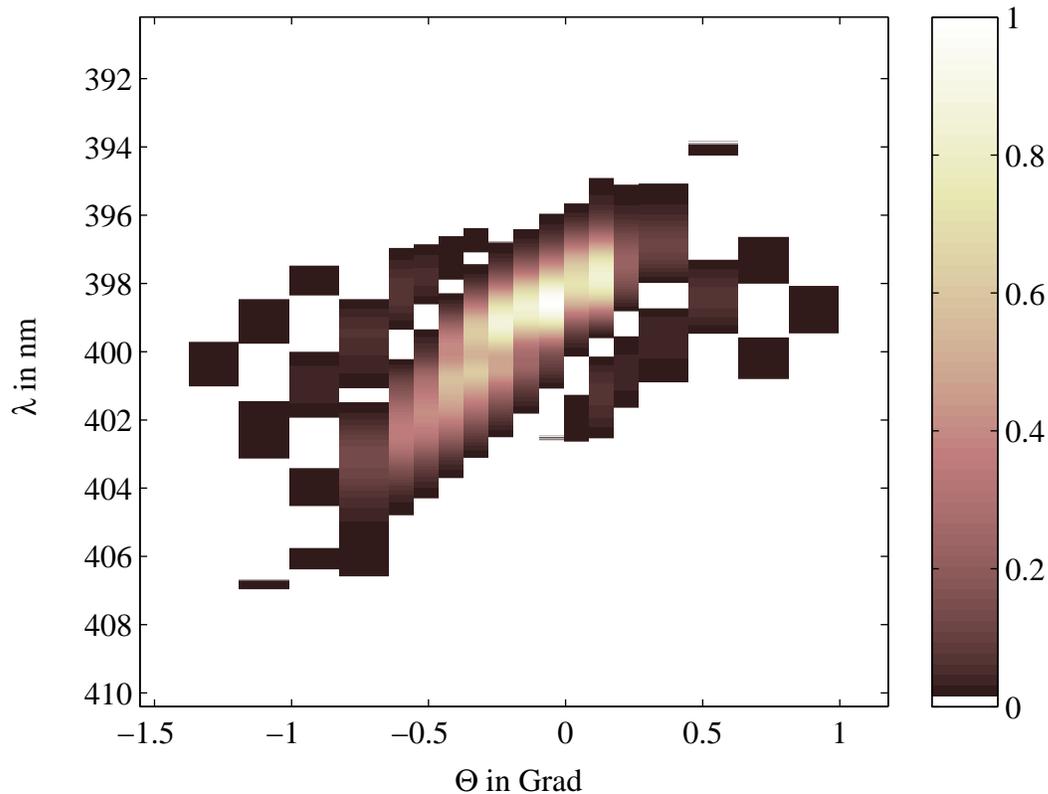


Abb. 4.8: Spektrum der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit vom Kristallwinkel. Die Winkelstellung 0 Grad wurde in den folgenden Experimenten verwendet. Die Intensität der Fundamentalen betrug $\sim 22 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$.

lich $30 \mu\text{m}$ groß, was eine gewisse Geduld beim Durchsuchen erfordert. Wurde das Signal gefunden, wird es vom restlichen Streulicht separiert und auf eine Photodiode fokussiert. Zur Anwendung kam eine SiC-Diode, die für Wellenlängen unter 400 nm ein lineares Verhalten aufweist, so daß Streulicht der Fundamentalen keinen Untergrund liefert. Letztendlich wurde anhand des Signals die Phasenanpassung im Kristall sowie der räumliche Überlapp optimiert.

Die Ansteuerung des motorisierten Verschiebetisches erfolgt über ein LabView-Programm, das von Laszlo Veisz geschrieben wurde. Das Signal der Photodiode wird in eine „Sample&Hold“-Box eingespeist, die vom Programm über eine Analog-Digital-Karte im PC ausgelesen wird. Auf diese Art ist die Korrelationsmessung automatisiert und benötigt nur wenige Minuten.

Um die Funktionalität des Korrelators zu überprüfen, muß sichergestellt wer-

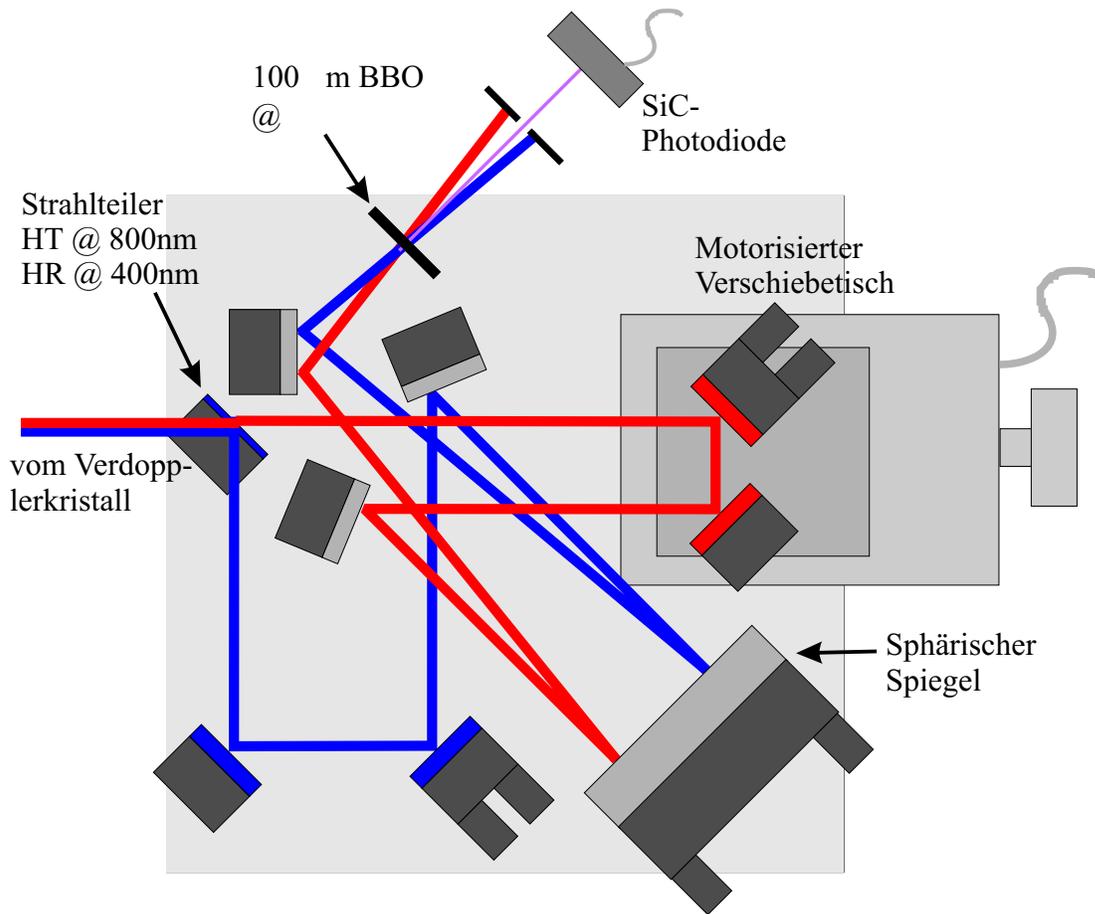


Abb. 4.9: Kreuzkorrelator zur Charakterisierung des frequenzverdoppelten Impulses.

den, daß die Erzeugung der dritten Harmonischen ungesättigt ist, denn nur dann ist das Korrelationssignal so auswertbar, wie es in Abschnitt 3.1 beschrieben wurde. Dafür mißt man das Signal der Photodiode in Abhängigkeit vom Produkt der Intensitäten der zweiten Harmonischen und der Fundamentalen. Diese Abhängigkeit muß linear sein. Ist dies nicht der Fall, würde man größere Korrelationsbreiten messen und die Bestimmung der Impulsdauer nach oben verfälschen.

Zur Kontrolle der Funktionalität des Korrelators ist ein Vergleich der Ergebnisse mit denen anderer Meßmethoden erforderlich. Dies bot sich im Falle des Kreuzkorrelators an. Stellt man einen dünnen Verdopplerkristall in den Strahlengang vor den Korrelator, so wird dieser zu einem THG-Autokorrelator (Third Harmonic Generation) für den Fundamentalimpuls, wenn die Erzeugung der zwei-

ten Harmonischen ungesättigt ist. Das Korrelationssignal genügt dann der Beziehung

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\omega}(t) I_{\omega}^2(t - \tau) dt \quad . \quad (4.1)$$

Im Falle gaußförmiger Impulse erhält man die Impulsdauer durch Multiplikation der Halbwertsbreite von $A(\tau)$ mit $\sqrt{2/3}$. Die Ergebnisse konnten mit denen des SHG-Einzelschuß-Autokorrelators verglichen werden.

4.1.4 Messungen mit dem Korrelator

Der Korrelator wurde, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, aufgebaut. Als Verdopplerkristall vor dem Korrelator kam ein 100 μm dünner BBO-Kristall zum Einsatz. Mit der Effizienzmessung aus Abschnitt 4.1.2 (Abb. 4.5) konnte gezeigt werden, daß bei den verwendeten Intensitäten in diesem Kristall keine Sättigung auftritt, die Intensität der zweiten Harmonischen demnach quadratisch von der der Fundamentalen abhängt. Mit diesen Voraussetzungen war es nun möglich, den Korrelator als Multischuß-THG-Autokorrelator für die Fundamentale zu betreiben.

Die erste Messung bestand darin, den kubischen Zusammenhang zwischen dem Maximum des Korrelationssignals und der Fundamentalenintensität nachzuweisen (Abb. 4.10). In einer doppelt logarithmischen Darstellung ergibt sich bei kubischen Zusammenhängen eine Gerade mit dem Anstieg 3, was durch die Messung hinreichend bestätigt werden konnte.

Im folgenden wurde eine Autokorrelationskurve aufgenommen (Abb. 4.11). Die daraus resultierende Impulsdauer beträgt 136 fs. Dieser Wert stimmt mit dem aus der SHG-Einzelschuß-Autokorrelation gewonnenen Wert von 133 fs gut überein (4.1.1).

4.2 Experimente im 100 mJ-Bereich

Die Messungen hinter dem regenerativen Verstärker dienten dem Sammeln von Erfahrungen und der Charakterisierung der Frequenzverdopplung mit einem we-

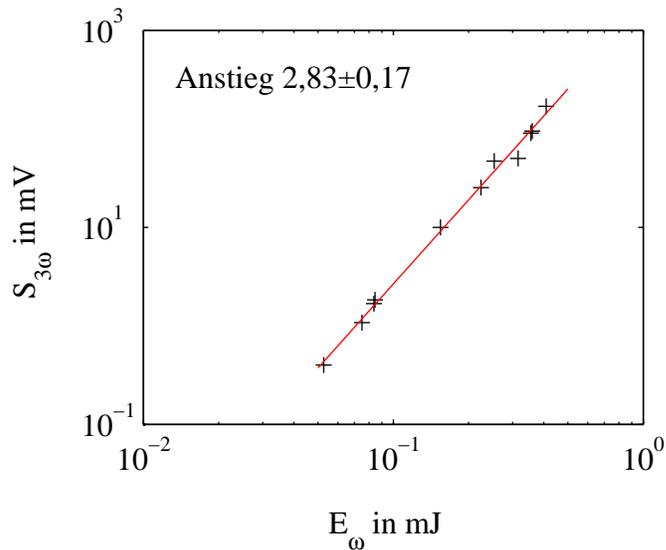


Abb. 4.10: Abhängigkeit des Korrelationssignalmaximums von der Energie der Fundamentalen (bei konstanter Fläche und Impulsdauer äquivalent zur Intensität). Der Anstieg der Geraden beträgt $2,83 \pm 0,07$.

nig intensiven Fundamentalimpuls. Desweiteren wurde der Kreuzkorrelator aufgebaut und getestet. Das Hauptaugenmerk lag auf der Frequenzverdopplung mit dem vollverstärkten Femtosekunden-Titan-Saphir-Laserimpuls. Die Vorgehensweise ist jedoch vergleichbar mit der in Abschnitt 4.1. Zu Beginn wurde die Fundamentale charakterisiert, was wiederum durch die Bestimmung des Strahlquerschnittes, der Energie und der Impulsdauer sowie des Spektrums erfolgte. Im Anschluß daran wurden die Umwandlungseffizienzen und die Spektren für verschiedene Energien bzw. Kristallwinkel gemessen. Im letzten Teil wurden Kreuzkorrelationen zwischen dem Fundamentalimpuls und der zweiten Harmonischen aufgenommen. Im Rahmen dieser Messungen wurde nochmals die Energie der Fundamentalen variiert.

4.2.1 Charakterisierung des Fundamentalimpulses

Nach der letzten Verstärkereinheit besteht die Möglichkeit, die Impulsenergie mit einem Energiemeßkopf zu bestimmen. Danach wird der Impuls ins Vakuum geführt und komprimiert. An den Kompressorgittern gibt es Reflexionsverluste.

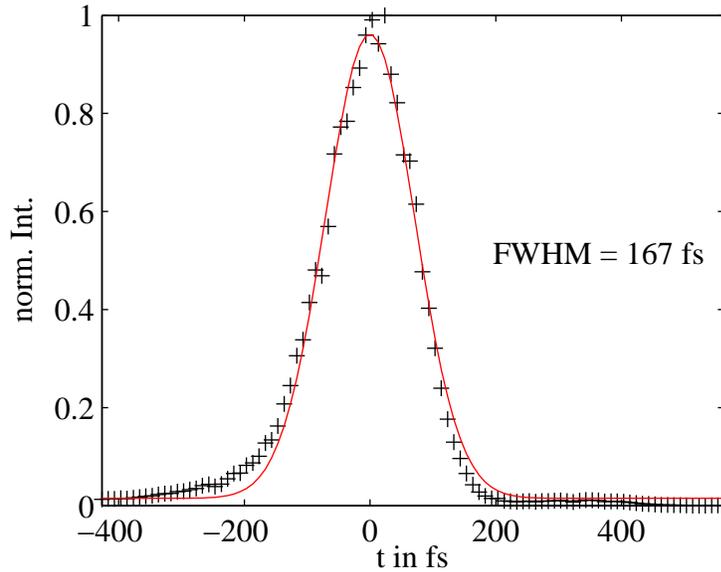


Abb. 4.11: THG-Autokorrelationskurve des Ti:Sa-Laserimpulses nach dem Kompressor hinter dem regenerativen Verstärker. Der Impuls wurde als gaußförmig angenommen. Die Halbwertsbreite beträgt 167 fs.

Dadurch besteht die Notwendigkeit, die Transmission des Kompressors zu bestimmen.

Dafür wurde die Energie hinter dem Kompressor in Abhängigkeit von der Energie vor dem Kompressor gemessen (Abb. 4.12). Die Variation der Energie erfolgte in der Vorpulseinheit hinter dem regenerativen Verstärker durch Drehung der Polarisationsrichtung des linear polarisierten Strahls mit Hilfe einer $\lambda/2$ -Platte. Im darauffolgenden linearen Polarisator wird je nach Winkel der $\lambda/2$ -Platte mehr oder weniger Energie ausgekoppelt.

Die Messung wurde in Luft durchgeführt. Um die Kompressorgitter nicht zu beschädigen, wurde der letzte Verstärkerkristall nur mit einem Pump laser betrieben, so daß nur eine maximale Energie von ~ 50 mJ vor dem Kompressor zur Verfügung stand. Die Meßreihe führte zu einer Transmission von 39 %, was relativ gering erscheint, da dies auf eine Beugungseffizienz in die -1. Ordnung von nur knapp 80 % pro Gitter führt. Eine Verbesserung auf (56 ± 3) % brachte das Evakuieren des Kompressors, was durch eine einfache Referenzmessung in Luft sowie in Vakuum nachgewiesen wurde. Auch dieser Wert liegt deutlich unterhalb

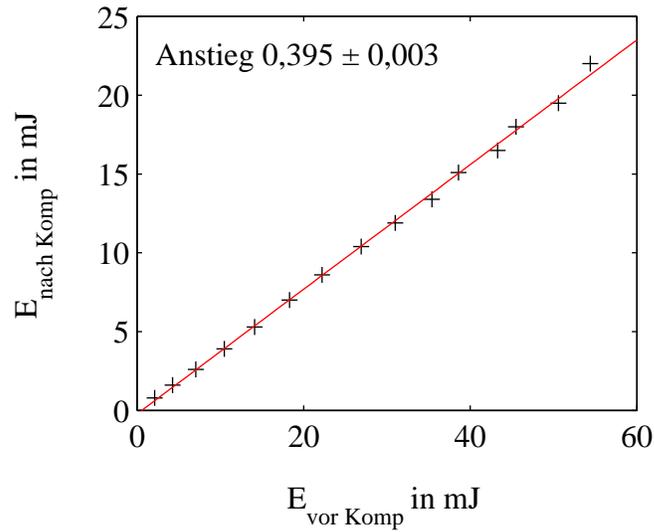


Abb. 4.12: Messung der Transmission des Kompressors in Luft. Sie beträgt rund 39 %.

den zu erwartenden 70 %. Das weist auf eine Beschädigung des letzten Gitters hin, womit eine Verringerung seiner Beugungseffizienz verbunden ist (72 %).

Das Strahlprofil des durch einen dielektrischen HR-Spiegel transmittierten Titan-Saphir-Laserimpulses wurde mit Hilfe einer CCD-Kamera aufgenommen. Ein Achromat befand sich vor der CCD und kollimierte den Strahl, so daß das Profil den CCD-Chip gut ausfüllte (Abb. 4.13). Zur Kalibrierung diente eine Blende bekannten Durchmessers (25 mm), die im Strahl vor den Achromaten positio-

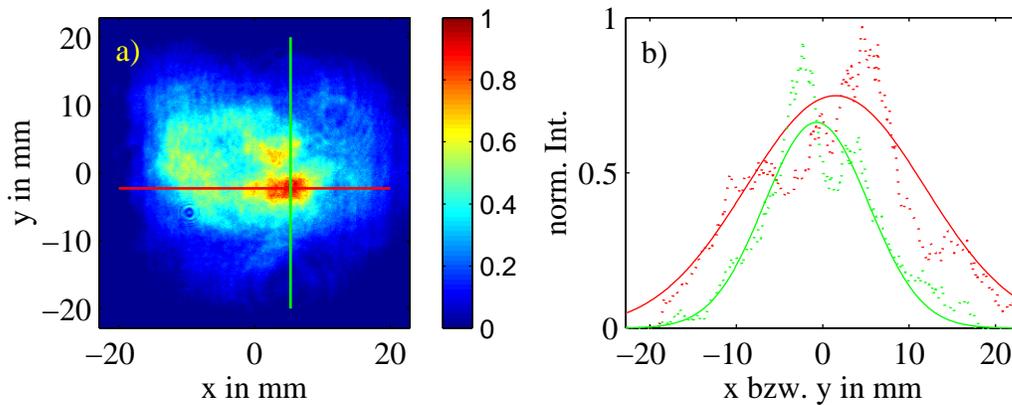


Abb. 4.13: Dargestellt sind das Strahlprofil nach dem Kompressor (a) sowie Schnitte in x-Richtung (rot) und y-Richtung (blau) (b).

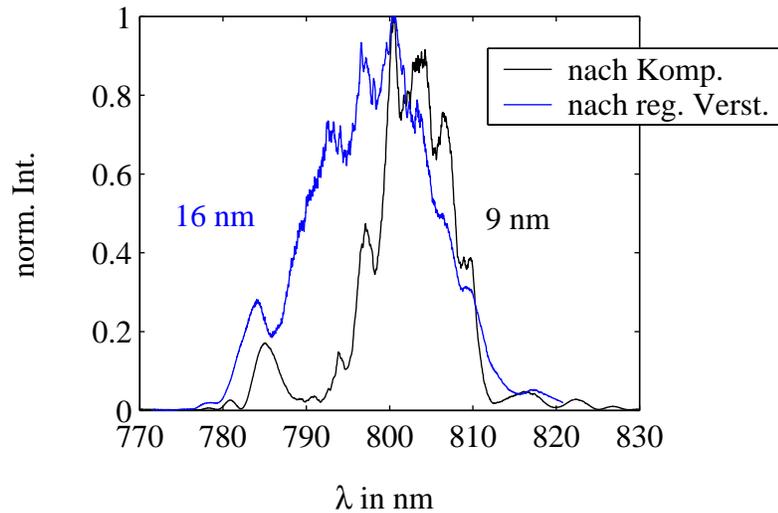


Abb. 4.14: Spektrum des Titan-Saphir-Laserimpulses nach dem Kompressor (schwarz) und nach dem regenerativen Verstärker (blau). Das Auflösungsvermögen des Spektrometers betrug 0,2 nm.

niert wurde. Ihr Schatten konnte aufgenommen und anschließend ausgemessen werden.

Nähert man eine Gaußsche Glockenkurve an das Profil an, so ergeben sich Halbwertsbreiten von 25 mm in x- und 17 mm in y-Richtung, woraus die Fluenz berechnet werden kann. Abbildung 4.13b zeigt, daß die Näherung einer Gaußfunktion nicht ideal ist, was auch den Fehler der Intensitätsangaben dominiert.

Im einer weiteren Messung wurde das Spektrum des Titan-Saphir-Laserimpulses hinter dem Vakuum-Kompressor aufgenommen (Abb. 4.14, schwarz). Das nach dem regenerativen Verstärker gemessene Spektrum ist zum Vergleich mit eingetragen (blau). Die Amplitudenmodulationen bleiben weitgehend erhalten. Deutlich sichtbar ist jedoch eine Einengung des Spektrums von rund 16 nm auf 9 nm. Diese ist nicht verständlich und wahrscheinlich auf eine schlechte Justage im Vierpaßverstärker bzw. im Kompressor zurückzuführen. Frühere Messungen [25] zeigten, daß sich das Spektrum des Titan-Saphir-Laserimpulses nach dem regenerativen Verstärker nicht mehr signifikant ändert.

Um die Dauer des Laserimpulses zu bestimmen, steht ein weiterer THG-Autokorrektor zur Verfügung. Dieser ist in der Diagnosekammer hinter dem

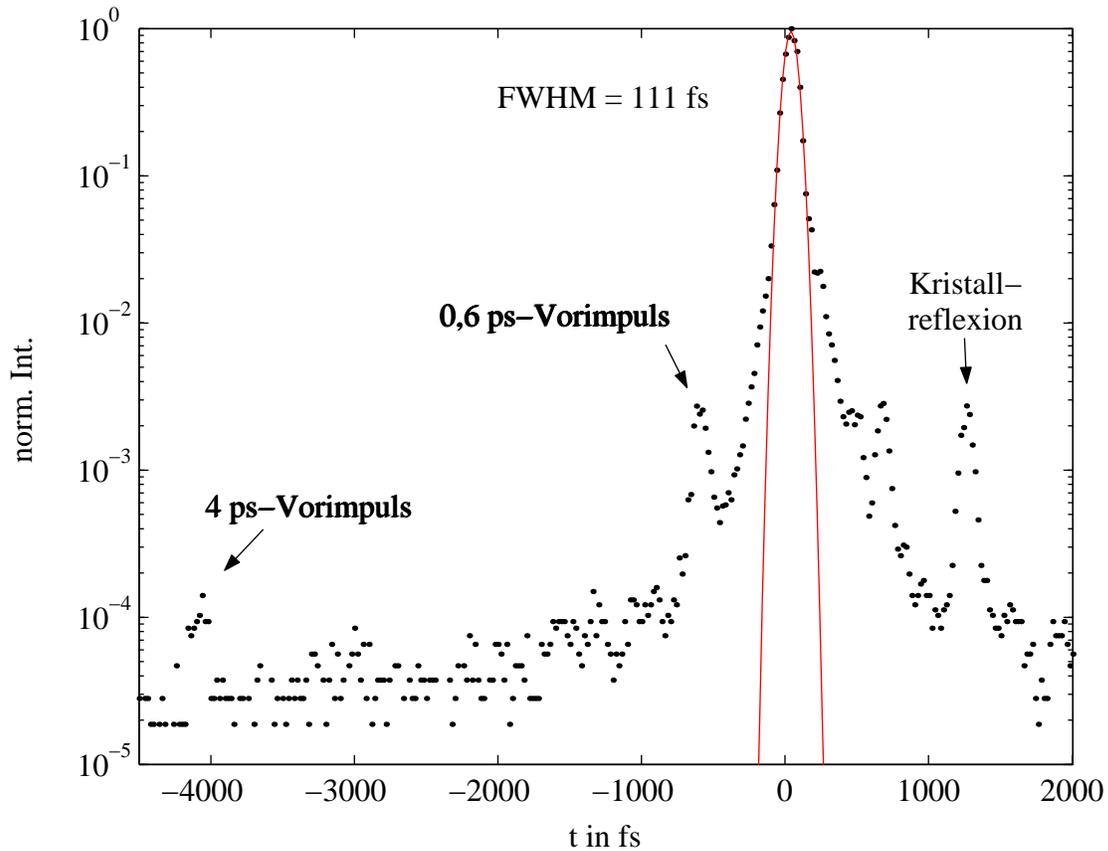


Abb. 4.15: THG-Autokorrelationskurve des Titan-Saphir-Laserimpulses nach dem Kompressor. Nimmt man eine gaußförmigen Impuls an, ergibt sich eine volle Halbwertsbreite von 111 fs, was einer Impulsdauer von 91 fs entspricht.

Kompressor installiert. Abbildung 4.15 zeigt eine typische Autokorrelationskurve. Die volle Halbwertsbreite der angenäherten Gaußkurve beträgt 111 fs, was einer Impulsdauer von 91 fs entspricht.

4.2.2 Charakterisierung der zweiten Harmonischen

Für die SHG-Experimente wurde ein KDP-Kristall mit einem Durchmesser von 70 mm und einer Dicke von 2 mm verwendet (Firma Eksma, Litauen, Abb. 4.16). Die erste Messung bestand in der Aufnahme des Spektrums der zweiten Harmonischen. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 4.17 schematisch dargestellt. Ein Aluminiumspiegel koppelt beide Impulse aus dem Strahlengang in das Spektrometer ein. So konnte mit Hilfe der jeweiligen Filter das Spektrum der Funda-

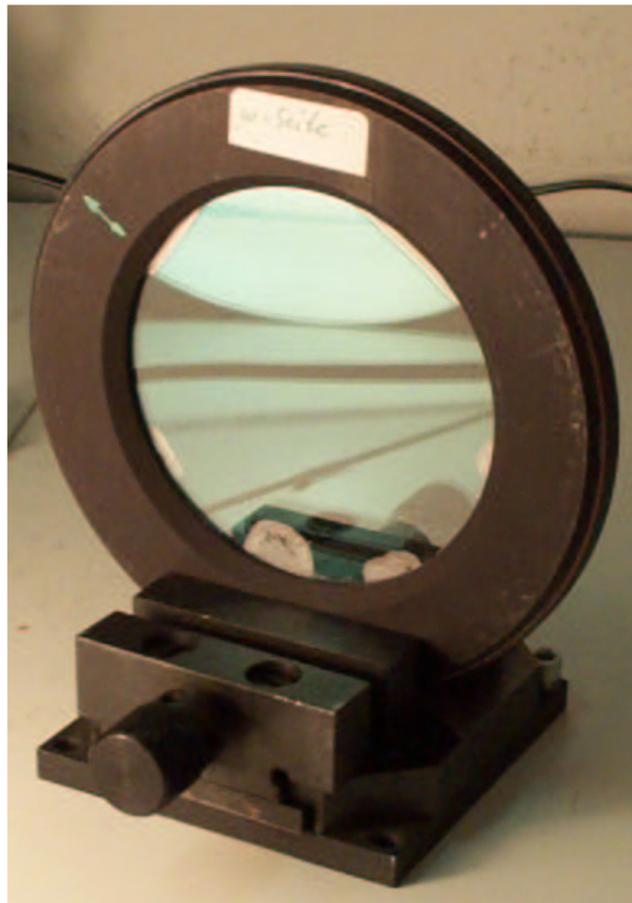


Abb. 4.16: Bild des KDP-Kristalles mit einem Durchmesser von 70 mm und einer Dicke von 2 mm. Deutlich sichtbar sind die Schäden im unteren Teil des Kristalles.

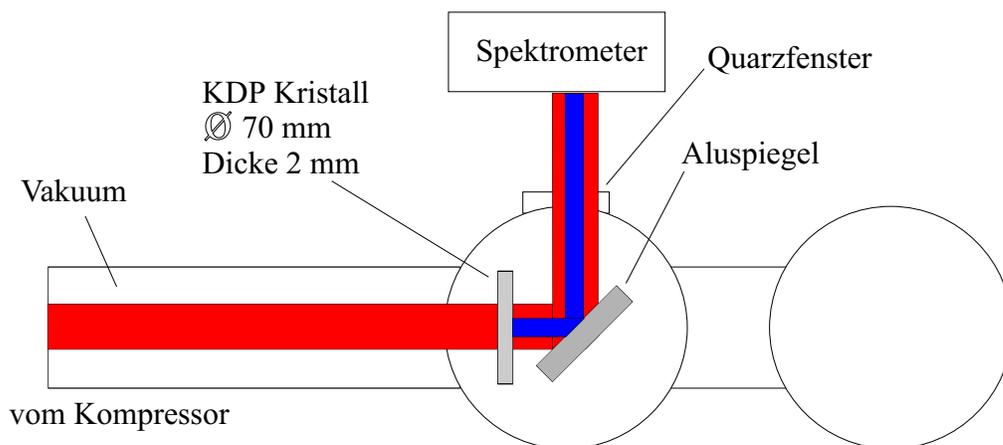


Abb. 4.17: Experimenteller Aufbau zur Messung des Spektrums der zweiten Harmonischen und der Fundamentalen.

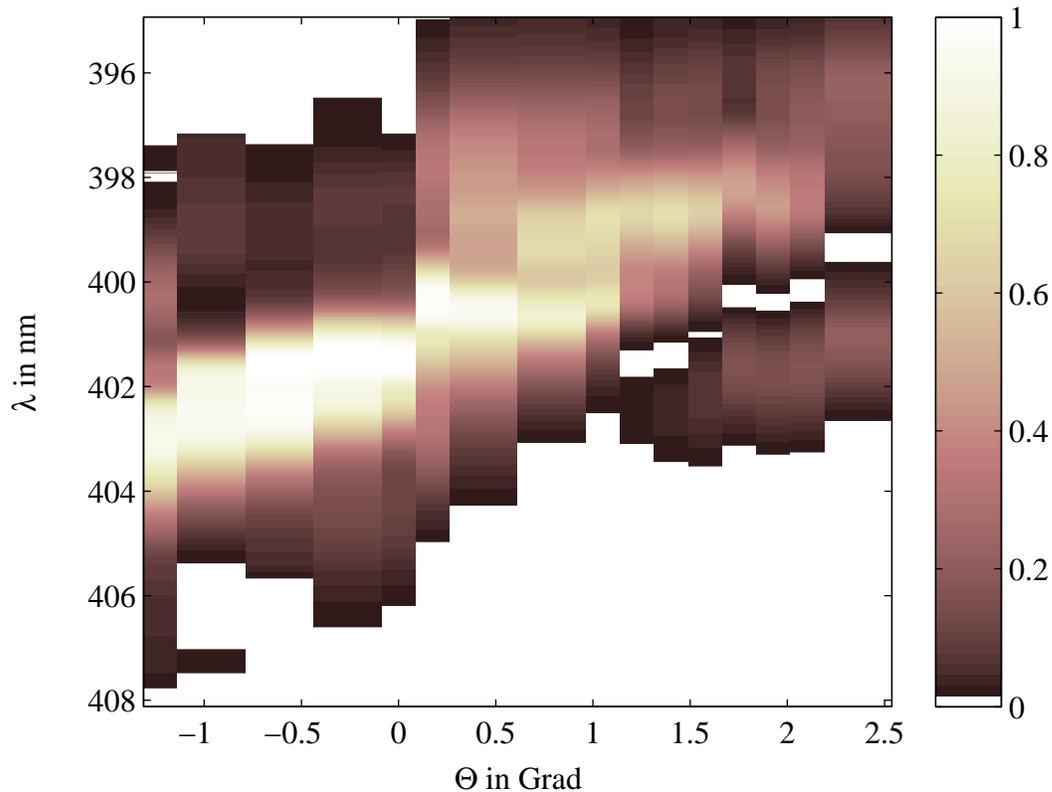


Abb. 4.18: Spektrum der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit vom Kristallwinkel. Die Winkelstellung 0 entspricht der Winkelstellung, mit der im weiteren Verlauf experimentiert wurde. Die Intensität der Fundamentals betrug $333 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$

mentalen und der zweiten Harmonischen nach dem Kristall gemessen werden.

Zu Beginn wurde das Spektrum der zweiten Harmonischen für verschiedene Phasenanpassungswinkel aufgenommen (Abb. 4.18). Dies stellt eine gute Möglichkeit dar, den Kristallwinkel zu optimieren. Die Winkelstellung 0 wurde für die folgenden Messungen beibehalten.

Abbildung 4.19a zeigt das Spektrum der zweiten Harmonischen bei optimaler Phasenanpassung. Zum Vergleich wurde das Fundamentalspektrum vor (gepunktete Linie) und nach dem KDP-Kristall (durchgezogene Linie) gemessen (Abb. 4.19b). Die Fundamentale wurde in dem Wellenlängenbereich, in dem Phasenanpassung vorlag und die Frequenzverdopplung stattfand, abgebaut.

Nun stellte sich die Frage, wie die Effizienz der Umwandlung von der Inten-

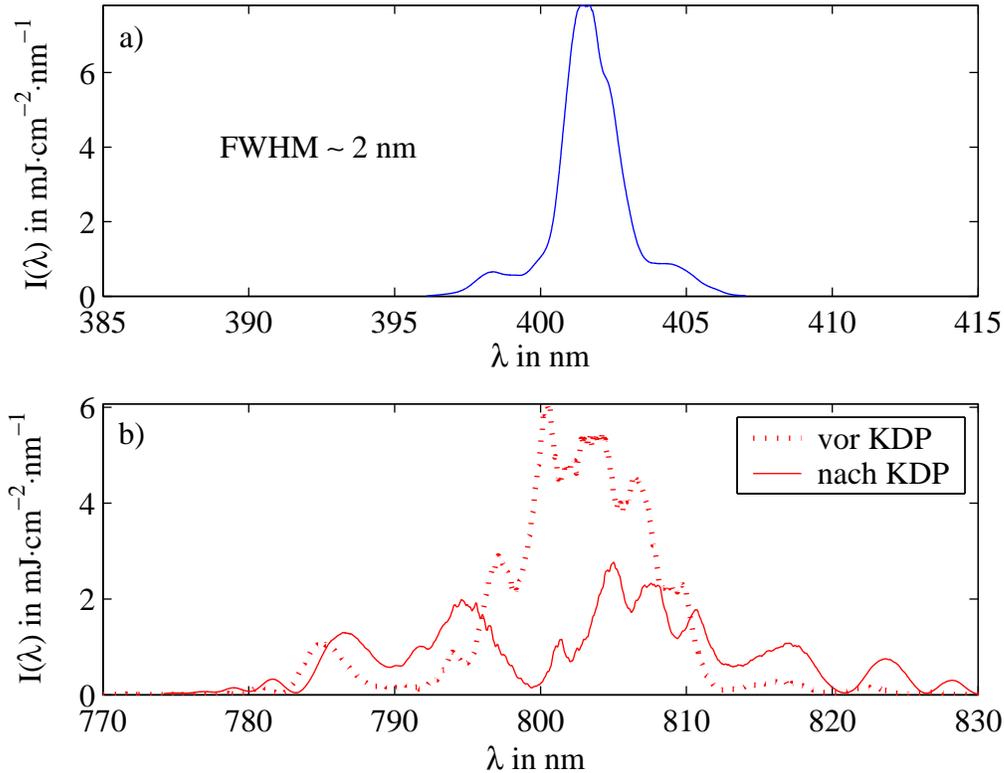


Abb. 4.19: Spektrum der zweiten Harmonischen für optimale Phasenanpassung (a). Außerdem ist das Spektrum der Fundamentalen vor (gepunktet) und nach dem Kristall (durchgezogene Kurve) in (b) dargestellt. Das spektrale Auflösungsvermögen betrug 0,2 nm für die Fundamentale und 0,1 nm für die zweite Harmonische.

sität der Fundamentalen abhängt. Dazu wurde deren Energie variiert und die Energie der zweiten Harmonischen gemessen. Ein dielektrischer Spiegel wirkt als Filter und reflektiert über 99 % der SHG, während 94 % der im Strahl nach dem Kristall verbliebenen Fundamentalen durch den Spiegel transmittieren und anschließend auf einen Energiemeßkopf fallen. Die Filtertransmission wurde mit Hilfe eines Spektrometers (Speccord) zwischen 350 nm und 850 nm bestimmt (Abb. 4.20) und mit der den Herstellerangaben verglichen. Die Messung der nicht umgewandelten Fundamentalen ermöglicht damit auf einfache Weise, die Energie des SHG-Strahls zu bestimmen.

Der in Abb. 4.21 dargestellte Aufbau ließ sich sehr gut in den evakuierten Strahlengang integrieren. Der dielektrische Spiegel hatte eine ausreichende Größe,

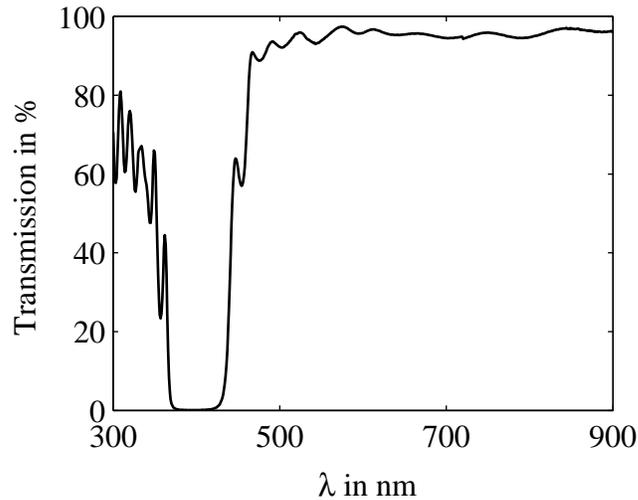


Abb. 4.20: Gemessene Transmissionskurve des dielektrischen Spiegels, der als Filter in der Effizienzmessung zum Einsatz kam.

so daß der Strahl nicht zusätzlich fokussiert werden mußte. Die direkte Messung der SHG birgt besonders bei niedrigen Intensitäten und geringen Umwandlungsraten die Gefahr, daß mit dem Energiemeßkopf in der Nähe der Nachweisgrenze gearbeitet werden muß. Durch die Messung der Fundamentalwellen nach dem dielektrischen Spiegel in Abb. 4.21 wurde dieses Problem vermieden. Die Messung wurde einmal mit und einmal ohne Kristall für verschiedene Energien der Fundamentalwellen durchgeführt. Die Differenz der Meßwerte ergibt die Energie der zweiten Harmonischen (Abb. 4.22).

Für kleine Fundamentalwellenintensitäten ergibt sich ein lineares Anwachsen der Konversionseffizienz, was mit einem quadratischen Anwachsen der SHG-Intensität mit der der Fundamentalwellen gleichzusetzen ist. Das entspricht dem Spezialfall kleiner Umwandlungseffizienzen bzw. ungeschwächter Fundamentalwellen [5]. Die schwarze Linie markiert dieses Verhalten, von dem die Meßkurve oberhalb von $50 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ deutlich abweicht. Bei $160 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ erreicht die Umwandlungseffizienz ein Maximum, für höhere Intensitäten ist sogar ein Rückgang zu verzeichnen. Die Effizienzkurve nähert sich also nicht der 100 %-Marke, wie es die Theorie für monochromatische SHG unter optimaler Phasenanpassung voraussagt [5, 26], sondern einem weit geringeren Wert.

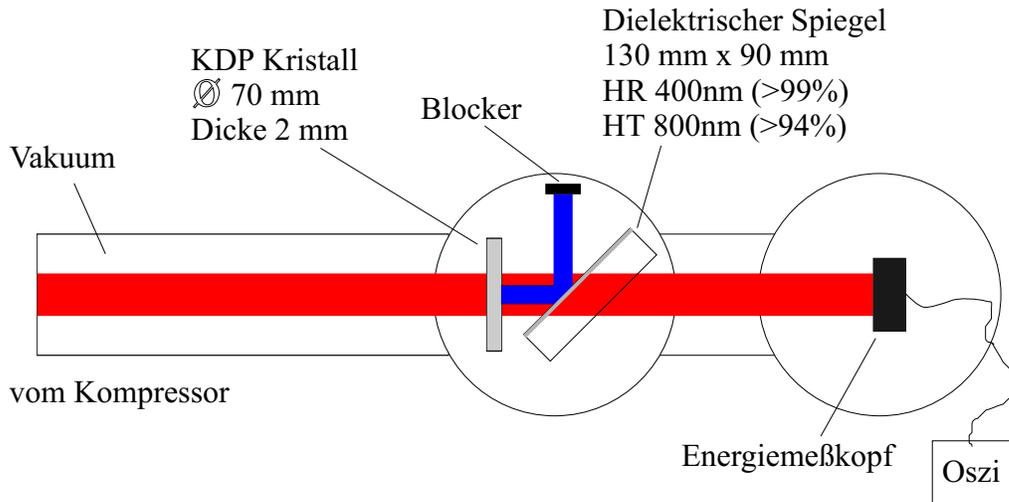


Abb. 4.21: Experimenteller Aufbau zur Messung der Effizienz der Frequenzverdopplung.

Der Wert $d_{\text{eff}} = 0,1 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ entspricht in etwa den in der Literatur angegebenen $0,3 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ [9, 27]. Die Abweichungen lassen sich durch das Alter des verwendeten KDP-Kristalles und vereinzelte Schäden erklären (Abb. 4.16).

Vergleichbare Messungen wurden von Jing-yuan Zhang *et al.* mit 150 fs-Titan-Saphir-Laserimpulsen hinter einem regenerativen Verstärker durchgeführt [28]. Sie verwendeten BBO- und LBO-Kristalle unterschiedlicher Dicken zur Frequenzverdopplung. Die gemessenen Konversionseffizienzen zeigen ein ähnliches Verhalten mit einem Maximum von 38 % in einem 0,5 mm starken BBO-Kristall. Dieses Maximum wird schon bei $40 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ erreicht, was mit der höheren effektiven Nichtlinearität zu begründen ist. Diese beträgt für BBO $2 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ und für LBO $-1,65 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ [9, 27]. KDP besitzt dagegen mit $0,3 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ [9, 27] eine vom Betrag her deutlich geringere Effektivität, was sich in einem flacheren Anstieg der Effizienzkurve auswirkt.

Die Sättigung sowie das Absinken der Effizienz für hohe Intensitäten ($> 100 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-1}$) wurde in [28] durch die einsetzende Rückumwandlung und andere nichtlineare Prozesse, wie parametrische Superfluoreszenz, erklärt. Die Rückumwandlung der SHG in die Fundamentale geschieht durch Differenzfrequenzmischung, die mit zunehmender SHG-Intensität effektiver wird. Das erklärt jedoch

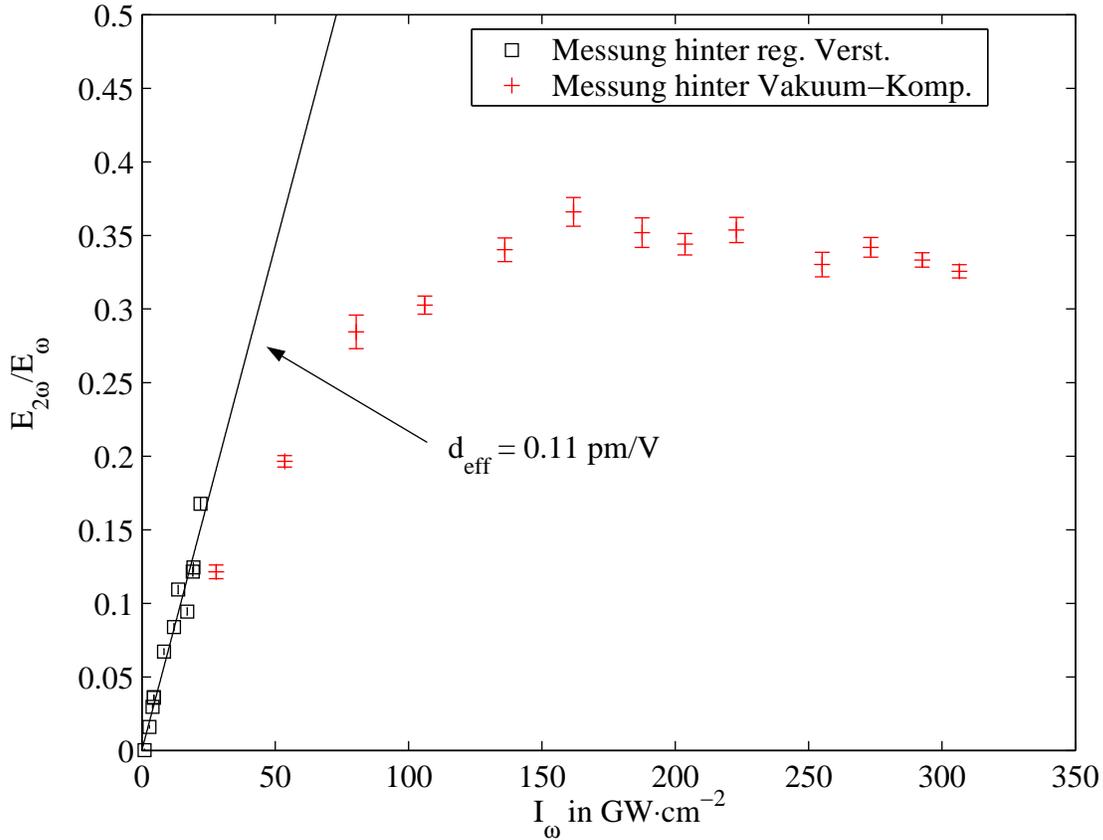


Abb. 4.22: Meßwerte zur Konversionseffizienz $E_{2\omega}/E_\omega$ in Abhängigkeit von der Intensität der Fundamentalen für den KDP-Kristall. Dargestellt sind die Messungen hinter dem regenerativen Verstärker (schwarze Quadrate) und mit dem voll verstärkten Impuls (rote Kreuze). Die schwarze Gerade kennzeichnet die ungesättigte Konversion, aus deren Anstieg die nichtlineare Effektivität $d_{\text{eff}} = 0,11 \text{ pm} \cdot \text{V}^{-1}$ bestimmt wurde.

nicht den Fakt, daß die Effizienz bei 35 % stagniert und für höhere Intensitäten wieder abnimmt. Der Grund hierfür muß in der Tatsache liegen, daß es sich bei der Fundamentalen nicht um eine monochromatische Welle handelt. Dies bedeutet, daß perfekte Phasenanpassung nur für die Mittenwellenlänge realisiert werden kann. Alle benachbarten Wellenlängen sind somit mehr oder weniger phasenfehlangepaßt und werden nicht optimal umgewandelt. Eine Möglichkeit der Beschreibung bietet die Phasenanpassungs- bzw. die Akzeptanzfunktion η^* , deren Form von der Art und der Länge l des Kristalles sowie der Eingangsfeldstärke der Fundamentalen E_1 abhängt (siehe auch Abschnitt 2.4).

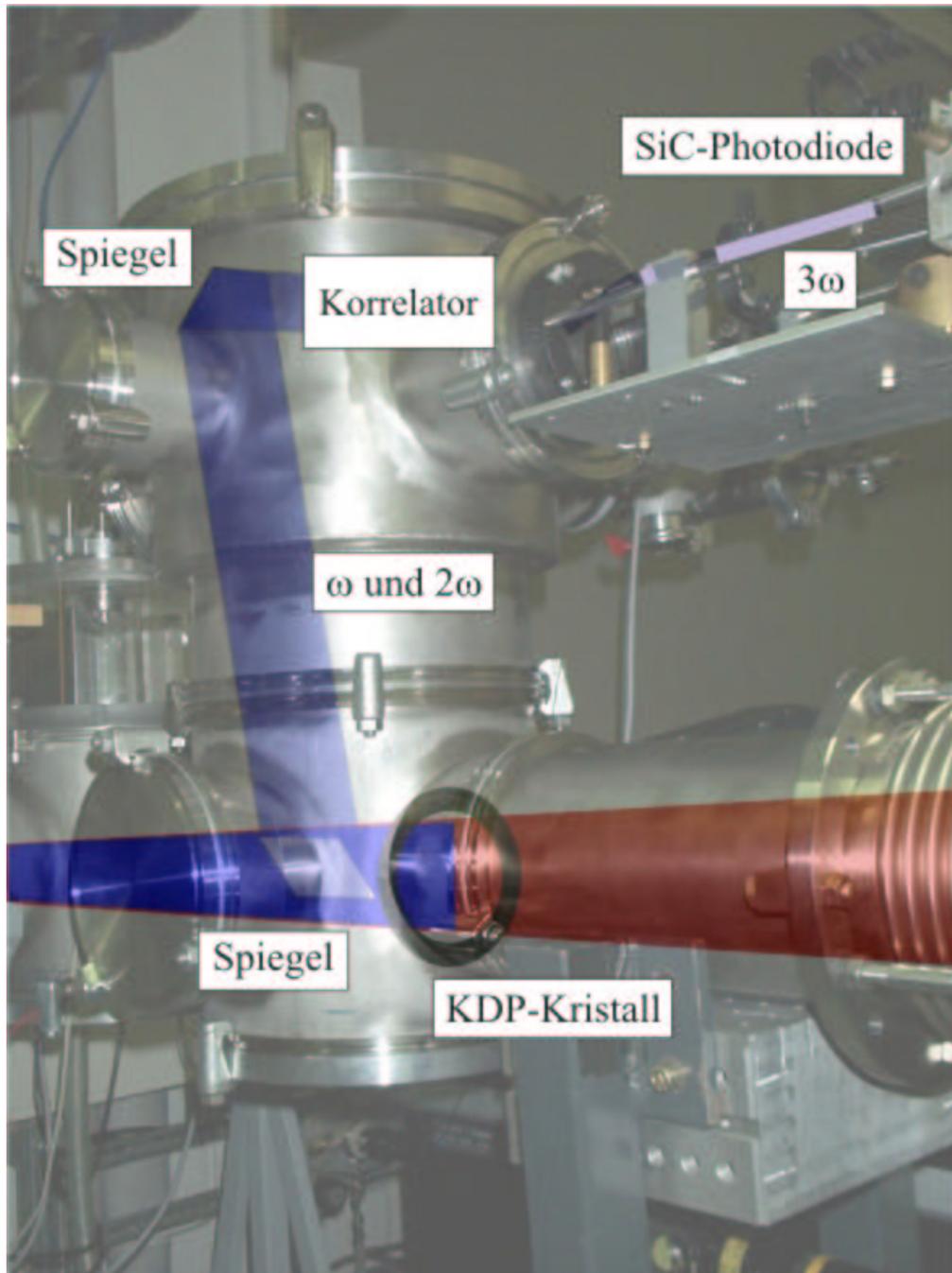


Abb. 4.23: Vakuumtopf mit Verdopplerkristall und der darüberliegende Korrelator.

4.2.3 Messungen mit dem Korrelator

Im letzten Teil der Experimente wurde die Impulsdauer der zweiten Harmonischen bestimmt. Desweiteren wurde die Veränderung des Kontrastverhältnisses untersucht. Hier kam der Kreuzkorrelator zum Einsatz, der auch für zukünftige Messungen genutzt werden soll. Aus diesem Grund wurde er in einen zusätzlichen Vakuumentopf über dem Verdopplerkristall eingebaut (Abb. 4.23). Hinter dem Verdopplerkristall wurde ein Aluminiumspiegel bzw. eine Glasplatte auf einer Dreipunktaufgabe eingesetzt, um die beiden Laserimpulse nach oben in Richtung des Einkoppelspiegels zu leiten. Der obere Aluminiumspiegel wurde fest installiert, so daß er von außen zu justieren war.

Um das Korrelationssignal wiederzufinden, mußte die gesamte Vakuumanlage belüftet werden, weshalb der Impuls nur auf 40 mJ verstärkt werden konnte. Ein dielektrischen Spiegel mit hoher Reflektivität bei 265 nm leitete die dritte Harmonische durch ein Quarzfenster aus dem Vakuum heraus, wo sie auf einer Plattform mit einer Quarzlinse auf die SiC-Photodiode fokussiert wurde. Aufgrund des langen Weges bis zur Linse (~ 30 cm) wird der Streulichtanteil stark minimiert.

Bestimmung der Impulsdauer der zweiten Harmonischen

Die ersten Korrelationsmessungen erfolgten vorerst noch in Luft und daher mit einem Zehntel der Maximalenergie (Abb. 4.24). Von besonderem Interesse war das Verhalten der Impulsdauer der zweiten Harmonischen bei sehr hohen Fundamentalenenergien. Um nicht zu viel Energie in den Korrelator einzukoppeln, wurde der Auskoppelspiegel durch eine Glasplatte ersetzt. Danach konnte der Kompressor sowie der restliche Strahlweg evakuiert werden. Bei diesem Vorgang kommt es zu kleinen Richtungsänderungen, da das Material starken Kräften ausgesetzt ist. Dies zeigte sich bereits in der Kalibrationsmessung zur Bestimmung der Transmission des Kompressors (Abschnitt 4.2.1). Mit Hilfe des Einkoppelspiegels vor dem Korrelator konnten diese Änderungen ausgeglichen und das Korrelationssignal maximiert werden.

Im folgenden wurden Korrelationsmessungen durchgeführt, bei denen die Ener-

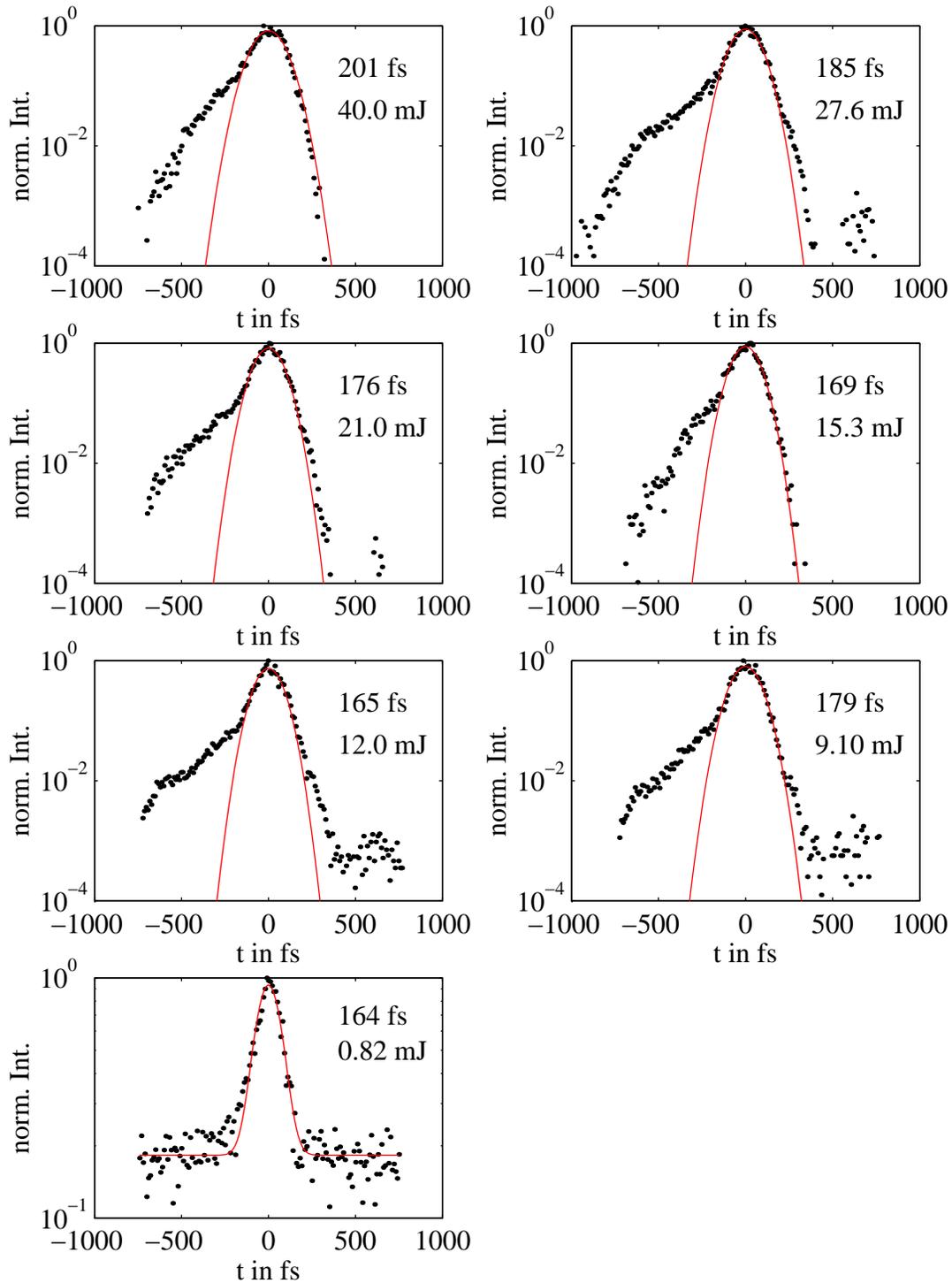


Abb. 4.24: Kreuzkorrelationen mit unterschiedlichen Energien des Ti:Sa- Laserimpulses in Luft. Die Energien wurden vor dem Kompressor gemessen. Angegeben sind auch die Halbwertsbreiten der angenäherten Gaußkurven.

gie des Titan-Saphir-Laserimpulses zwischen 77 mJ und 280 mJ variiert wurde (Abb. 4.25). An die Korrelationskurven wurden Gaußfunktionen angenähert. Es wird deutlich, daß die Korrelationsbreiten mit zunehmender Energie ansteigen.

Um zu überprüfen, ob diese Zunahme auf Sättigungseffekte im Korrelator zurückzuführen ist, wurden die Maxima des Korrelationssignales über dem Produkt aus den Energien bzw. den Leistungen der Fundamentalen und der zugehörigen zweiten Harmonischen aufgetragen (Abb. 4.26). Dieser Zusammenhang ist linear, falls die Erzeugung der dritten Harmonischen ungesättigt war. In der doppelt logarithmischen Darstellung des Korrelationssignales in Abhängigkeit von dem Produkt der Energien ergibt sich eine Gerade mit dem Anstieg 0,9 (Abb. 4.26a). Verwendet man außerdem die Halbwertsbreiten der Korrelationskurven, um das Produkt der Leistungen der beiden korrelierten Laserimpulse zu berechnen, ergibt sich der in Abbildung 4.26b dargestellte Zusammenhang, der bestätigt, daß die 3ω -Erzeugung wie erwartet nicht gesättigt ist.

Aus den Abbildungen 4.24 und 4.25 wird deutlich, daß die Halbwertsbreiten der Korrelationskurven mit der Energie der Fundamentalen ansteigen. Dieses Ergebnis ist noch einmal in Abb. 4.27 veranschaulicht. Die Quadrate repräsentieren die gemessenen Korrelationsbreiten. Unter der Annahme, daß sich die zeitliche Form der Fundamentalen während des Durchgangs durch den Verdopplerkristall und infolge des Umwandlungsprozesses nicht signifikant geändert hat, kann man mit Hilfe von (3.3) die Impulsdauer der zweiten Harmonischen berechnen (Abb. 4.27, Kreise). Die THG-Autokorrelation der Fundamentalen ergab eine Impulsdauer von 91 fs.

Zur Bestimmung der Korrelationsbreiten wurde die Annahme gemacht, daß die beiden Impulse gaußförmig waren. Auf der linken Seite des Hauptmaximums weichen die gemessenen Werte vor allem bei hohen Energien von den Gaußfunktionen ab. Negative Zeiten entsprechen Zeiten vor dem frequenzverdoppelten Impuls. Es kann demnach geschlußfolgert werden, daß die Anstiegsflanke der zweiten Harmonischen flacher als die eines Gaußimpulses verläuft. Dieser Effekt ist durch den auftretenden Gruppengeschwindigkeitsunterschied zwischen dem Fundamentenimpuls und der zweiten Harmonischen zu erklären und konnte in

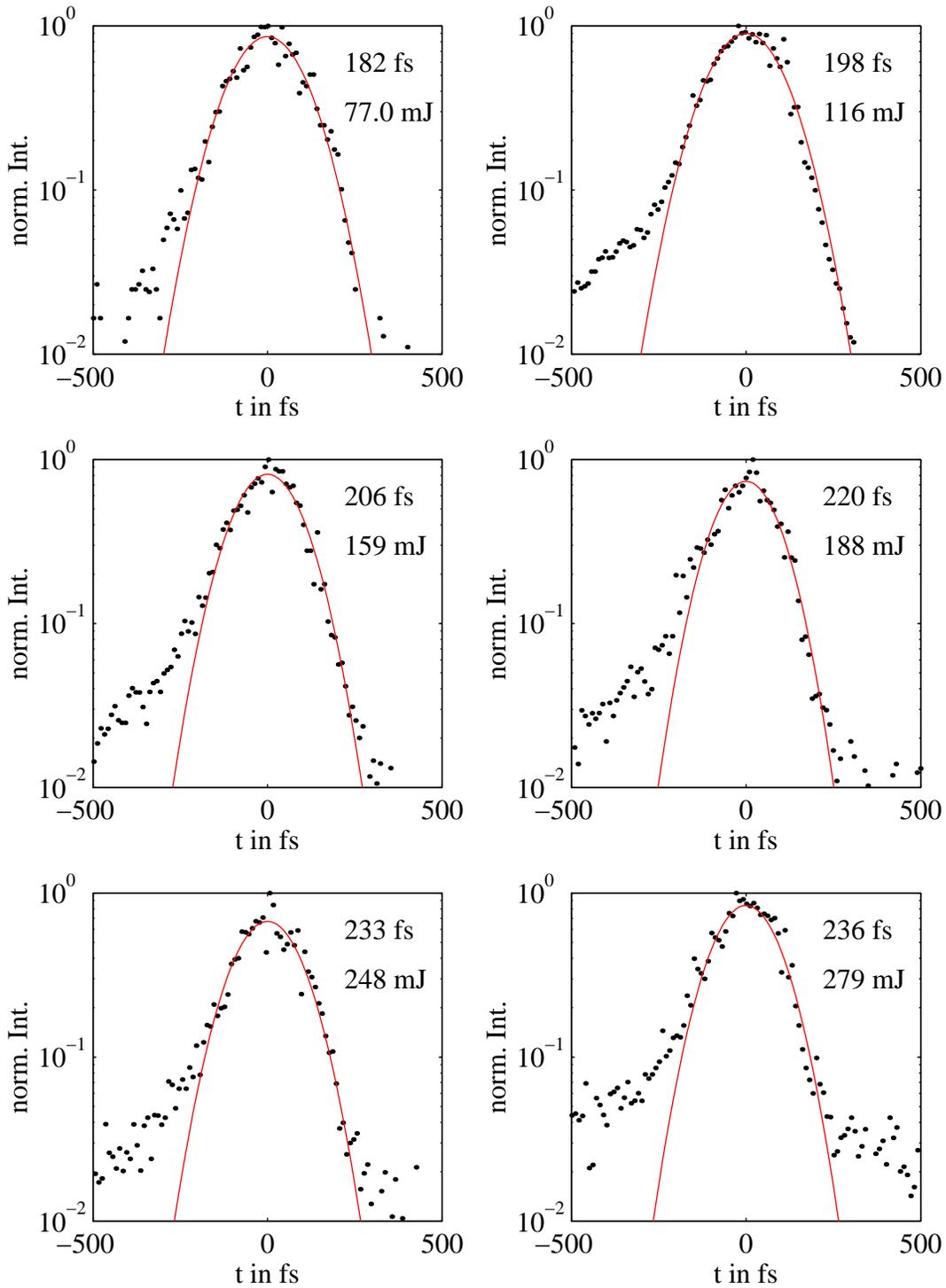


Abb. 4.25: Kreuzkorrelationen mit unterschiedlichen Energien des Ti:Sa- Lase-rimpulses in Vakuum. Die Energien wurden vor dem Kompressor gemessen. An-gegeben sind auch die Halbwertsbreiten der angenäherten Gaußkurven.

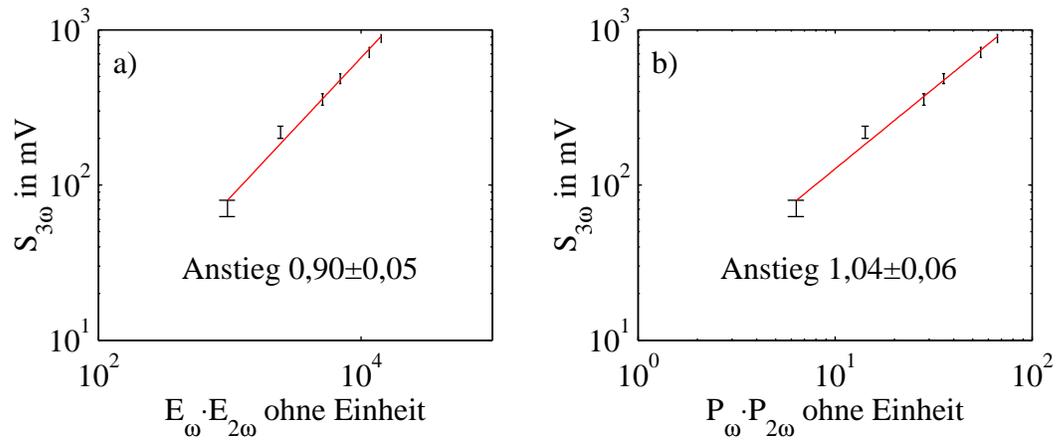


Abb. 4.26: Abhängigkeit des Korrelationssignalmaximums vom Produkt der Energie der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen (a). Im rechten Diagramm wurden die Energien durch die zugehörigen Leistungen ersetzt (b).

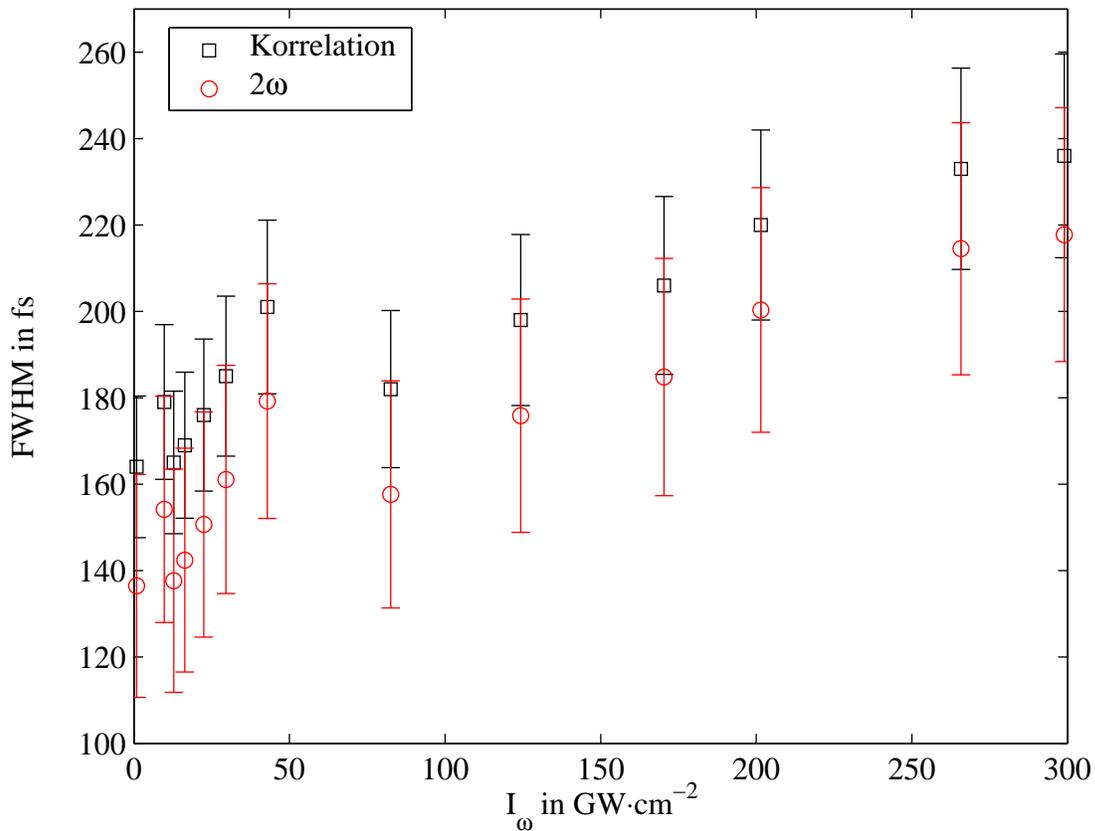


Abb. 4.27: Abhängigkeit der Halbwertsbreiten der Korrelationskurven (Quadrate) bzw. SHG-Impulsdauern (Kreise) von der Intensität der Fundamentalen. Die Impulsdauer der Fundamentalen betrug 91 fs.

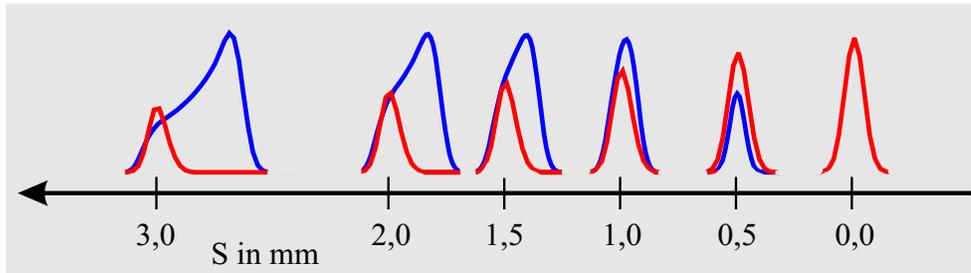


Abb. 4.28: Veranschaulichung des Effektes der Gruppengeschwindigkeitsfehlanpassung. Der frequenzverdoppelte Impuls (blau) bewegt sich langsamer durch den Kristall als der Fundamentalimpuls (rot). Die Rechnungen wurden mit dem LabII-Paket für LabView durchgeführt [29].

Simulationsrechnungen zur SHG mit Hilfe des LabII-Paketes in LabView [29] gezeigt werden (Abb. 4.28). Die Intensität der Fundamentalen nimmt während des Umwandlungsprozesses auf ihrem Weg durch den Kristall ab. Da der blaue Impuls hinter dem roten zurückbleibt, wandelt sich die Fundamentale in die Vorderflanke der zweiten Harmonischen um, aber aufgrund der sinkenden Intensität weniger effektiv.

Messungen zum Kontrastverhältnis zwischen Vor- und Hauptimpuls

Ein zusätzliches Ziel der Korrelationsmessungen war die Bestimmung des Kontrastverhältnisses zwischen Vor- und Hauptimpulsen in der zweiten Harmonischen. Da die natürlichen Nebenimpulse aufgrund von Modulationen im Spektrum der Fundamentalen symmetrisch auftreten, z.B. der 4 ps-Vorimpuls ein Äquivalent 4 ps nach dem Hauptimpuls besitzt, ist es fast unmöglich, Informationen über ihr Verhalten bei der Frequenzverdopplung aus der Kreuzkorrelationskurve zu gewinnen. Aus diesem Grund wurde mit Hilfe der Vorpulseinheit ein künstlicher Nachimpuls mit 2 % der Energie des Hauptimpulses erzeugt. Abbildung 4.29 zeigt eine typische Korrelationskurve. Das Hauptmaximum der Korrelationskurve wird im wesentlichen von den beiden Hauptimpulsen der SHG bzw. der Fundamentalen erzeugt. Setzt man die Maxima der Gaußkurven in Relation, so liegt das linke Maximum bei 1,9 % in Übereinstimmung mit den erwarteten 2 %. Hier korreliert der SHG-Hauptimpuls mit dem Fundamentalen-Nachimpuls.

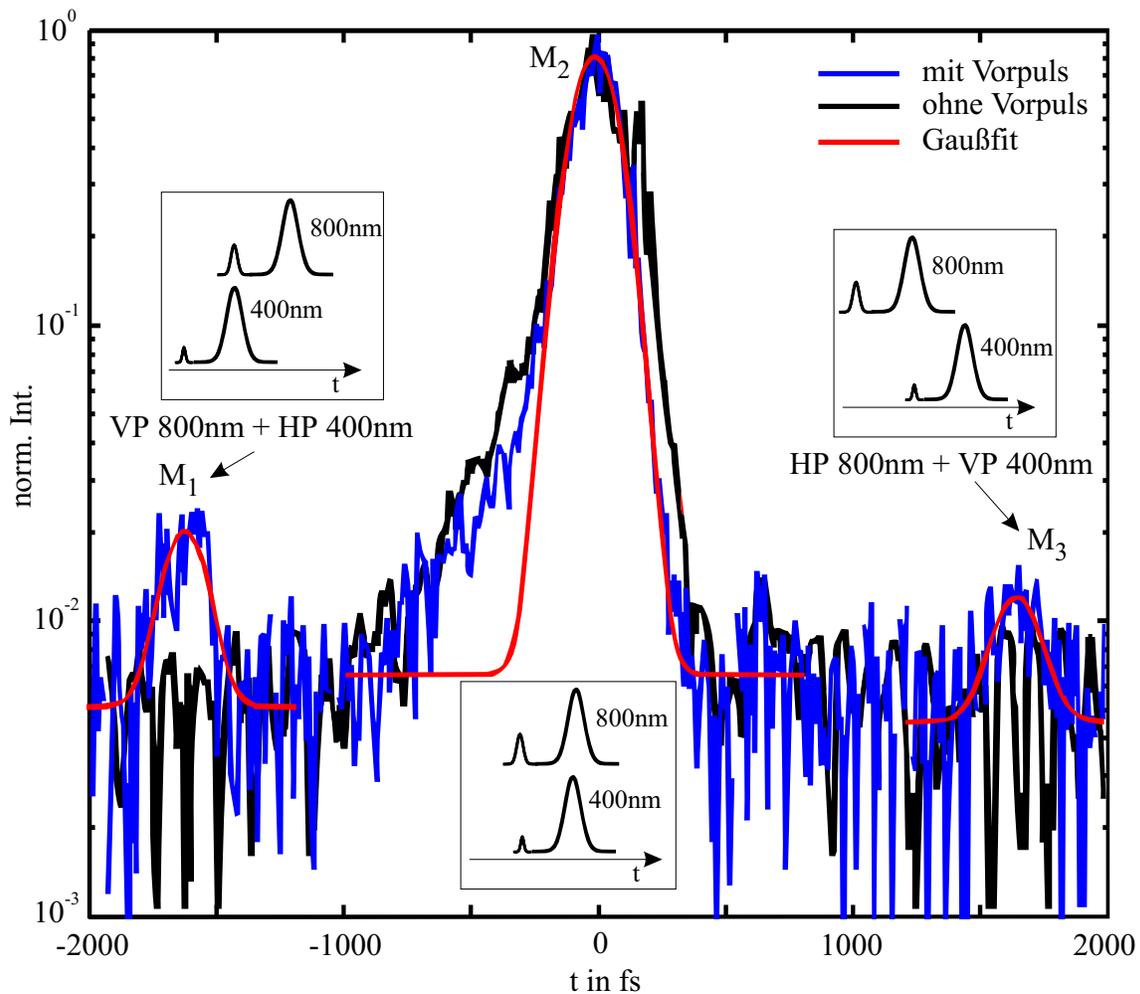


Abb. 4.29: Kreuzkorrelationskurve mit (blau) und ohne künstlich erzeugtem Vorpuls (schwarz). Die roten Kurven stellen Gaußkurven dar, die an die Korrelationen angenähert wurden. Die Intensität der Fundamentalen vor dem SHG-Kristall betrug $300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$. M_1 , M_2 und M_3 sind die Maxima der Gaußkurven.

Die Erhöhung auf der rechten Seite mit dem Maximum bei 0,9 % kommt demnach aus der Korrelation des Hauptimpulses der Fundamentalen mit dem Nachimpuls der SHG zustande. Damit ergibt sich ein Kontrastverhältnis von 0,9 % für die zweite Harmonische.

Wäre die Frequenzverdopplung des Hauptimpulses nicht gesättigt, so würde man das Maximum der rechten Korrelationsspitze bei $0,02^2 = 4 \cdot 10^{-4}$ (0,04 %) erwarten. Die Maxima der Korrelationsspitzen M_1 , M_2 und M_3 sind proportional

zu den Produkten der jeweiligen Intensitäten der Impulse

$$M_1 \propto I_{VP\omega} \cdot I_{HP2\omega}, M_2 \propto I_{HP\omega} \cdot I_{HP2\omega}, M_3 \propto I_{HP\omega} \cdot I_{VP2\omega} \quad . \quad (4.2)$$

Daraus kann geschlußfolgert werden, daß das Verhältnis zwischen Vor- und Hauptimpuls in der SHG der Beziehung $I_{VP2\omega}/I_{HP2\omega} = M_3$ genügt. Aus den vorangegangenen Effizienzmessungen (Abb. 4.22) und unter Einbeziehung der intensitätsabhängigen SHG-Impulsdauer (Abb. 4.27) läßt sich das Kontrastverhältnis

$$M_3 = \frac{I_{VP2\omega}}{I_{HP2\omega}} = \frac{\eta(0,019I_{HP\omega})}{\eta(I_{HP\omega})} \cdot \frac{FWHM_{2\omega}(I_{HP\omega})}{FWHM_{2\omega}(0,019I_{HP\omega})} \quad (4.3)$$

schätzen. Dabei bezeichnen $\eta(0,019I_{HP\omega})$ und $\eta(I_{HP\omega})$ die Konversionseffizienzen bei den Intensitäten $I_{VP\omega}$ und $I_{HP\omega}$, die entsprechend der Messung in Abb. 4.22 bestimmt werden können. $FWHM_{2\omega}(I_{HP\omega})$ und $FWHM_{2\omega}(0,019I_{HP\omega})$ sind die Impulsdauern der SHG bei den Intensitäten $I_{HP\omega}$ und $I_{VP\omega}$ (Abb. 4.27). Die Intensität des Hauptimpulses der Fundamentalen $I_{HP\omega}$ betrug $300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$, der Nachimpuls $0,019 \cdot 300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$. Somit ergibt sich $I_{VP2\omega}/I_{HP2\omega} = 0,003$, das sich vom Meßwert $M_3 = 0,009$ um einen Faktor 3 unterscheidet, aber durchaus die richtige Größenordnung widerspiegelt. Die Diskrepanz kann hier nicht vollständig geklärt werden, da für eine genauere Analyse zu wenig Meßwerte vorliegen. Die Messung zeigte jedoch, daß sich das Kontrastverhältnis bei der SHG nur verdoppelt, was auf die starke Sättigung des Hauptimpulses und die Impulsverlängerung zurückzuführen ist.

Kapitel 5

Diskussion der Ergebnisse

Es wurden Messungen zur Frequenzverdopplung von Terawatt-Titan- Saphir-Laserimpulsen im 100 fs-Bereich durchgeführt. Dafür stand ein KDP-Kristall mit einer Dicke von 2 mm und einer freien Apertur von 7 cm zur Verfügung. Für die zeitliche Charakterisierung wurde ein Multischuß-Kreuzkorrelator aufgebaut. Dieser wurde zusammen mit dem Verdopplerkristall in das Jenaer Lasersystem integriert und ermöglicht Messungen zur Bestimmung der SHG-Impulsdauer sowie des Kontrastverhältnisses zwischen den Vor- und Hauptimpulsen der zweiten Harmonischen. Ein weiterer Schwerpunkt war die Untersuchung der Effizienz der Frequenzverdopplung.

Es konnte gezeigt werden, daß das Maximum der Konversionseffizienz bei 36 % lag, wozu eine Fundamentalintensität von $162 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ notwendig war. Dies entsprach einer Energie von 150 mJ vor dem Kompressor. Die Erhöhung der Intensität bis auf $300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ zeigte eine leichte Abnahme der SHG-Effizienz auf 33 %, welche auch in [28, 12] nachgewiesen wurde. Erste Sättigungserscheinungen zeigten sich bereits bei Intensitäten über $70 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$.

Die Impulsdauer der zweiten Harmonischen wurde durch Kreuzkorrelation mit dem Titan-Saphir-Laserimpuls nach dem Verdopplerkristall bestimmt. Es konnte ein Ansteigen der Korrelationsbreiten mit der Intensität der Fundamental beobachtet werden. Für weitere Auswertungen wurde angenommen, daß sich die zeitliche Form des Fundamentalimpulses während und nach der Passage des Kristalles nicht änderte ($FWHM = 91 \text{ fs}$). Daraus resultierte eine Impulsdauer der

zweiten Harmonischen von 150 fs bei niedrigen Intensitäten von $30 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$, die auf 180 fs bei maximaler Konversionseffizienz ($I_\omega = 160 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$) ansteigt und bei maximaler Fundamentalintensität ($300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$) einen Wert von 220 fs erreicht. Dieses Resultat ist nicht ganz im Einklang mit Rechnungen und Messungen anderer Gruppen [28, 29]. Eine mögliche Erklärung ist, daß die Annahme einer konstanten Impulsform und Dauer der Fundamentalen mit wachsender Intensität nicht mehr zutrifft. Beispielsweise könnten bei hohen Intensitäten nichtlineare Effekte während der Propagation durch den Kristall (z.B. Selbstphasenmodulation) zu einer Änderung der Impulsform führen, was in den Rechnungen nicht berücksichtigt wurde. Es ergibt sich daraus die Notwendigkeit, den Fundamentalimpuls nach dem Prozeß der Frequenzverdopplung zeitlich zu charakterisieren, um diesen Punkt näher zu untersuchen. Dies gestaltete sich jedoch schwierig und war in der verfügbaren Meßzeit nicht möglich. Die dargestellten Ergebnisse können jedoch in jedem Fall als eine Abschätzung nach oben angesehen werden.

Erste Messungen zur Bestimmung des Kontrastverhältnisses zwischen Vor- und Hauptimpuls in der zweiten Harmonischen wurden durchgeführt. Dafür wurde zusätzlich ein Vorimpuls in der Fundamentalen erzeugt, der 2 % der Hauptimpulsintensität ($300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$) besaß. In der SHG konnte das Kontrastverhältnis auf 0,9 % verringert werden, was allerdings nicht dem erhofften Wert von 0,04 % entsprach. Eine mögliche Erklärung ist die starke Sättigung des SHG-Hauptimpulses bei hohen Intensitäten. Es ist anzunehmen, daß sich der Kontrast bei der Anwendung von Fundamentalintensitäten im ungesättigten Bereich ($< 100 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$) deutlich verbessert.

Im Rahmen der vorliegenden Diplomarbeit wurde der Titan-Saphir-Laserimpuls mit einer Energie von nahezu 160 mJ und einer Dauer von 90 fs mit Hilfe eines 2 mm dicken KDP-Kristalles frequenzverdoppelt. Die Energie der zweiten Harmonischen betrug 60 mJ und ihre Impulsdauer lag bei 220 fs. Das Kontrastverhältnis konnte verdoppelt werden.

Für zukünftige Anwendungen der SHG gibt es einige Möglichkeiten der Verbesserung, auf die hier noch kurz eingegangen werden soll.

Die Konversionseffizienz ist deutlich verbesserungsfähig. So sollte die Sättigung der Konversionseffizienz bei der Verwendung transformationslimitierter Fundamentalenimpulse deutlich später einsetzen [28]. In den durchgeführten Messungen betrug die Impulsdauer der Fundamentalen 91 fs, was nicht dem bestmöglichen Wert von 60 fs entspricht. Der Laserimpuls war also phasenmoduliert, was den Prozeß der Rückumwandlung der zweiten Harmonischen begünstigt und zu Ungunsten der Umwandlung ausfällt. Eine Möglichkeit, diese Phasenmodulationen auszugleichen, bietet der Einsatz eines Impulsformers [30].

Desweiteren bietet ein dünnerer Kristall (1-1,5 mm) Vorteile gegenüber dem 2 mm-Kristall. In diesem Fall tritt die Sättigung erst bei höheren Intensitäten auf. Außerdem führt die Gruppengeschwindigkeitsfehlانpassung zu einer kleineren Impulsverlängerung, und das Spektrum der zweiten Harmonischen wird aufgrund einer breiteren Akzeptanzfunktion des Kristalles weniger stark eingengt.

Die vertiefte Untersuchung des Kontrastverhältnisses zwischen Vor- und Hauptimpulsen in der zweiten Harmonischen bedarf weiterer Messungen, für die im Rahmen dieser Arbeit nicht genug Zeit war. Dabei besteht die Möglichkeit, die Glasplatte, welche die Impulse zur Kreuzkorrelation auskoppelt, durch einen Aluminiumspiegel zu ersetzen. Dann ist das Korrelationssignal der beiden Hauptimpulse zwar gesättigt, die Korrelationsspitzen mit Beteiligung der Vor- bzw. Nachimpulse werden jedoch deutlich meßbar, die Dynamik des Korrelators wird also verbessert.

Ein wichtiger Punkt ist die Bestimmung der Dauer des Fundamentalimpulses nach der Frequenzverdopplung. Dafür könnte man einen einfachen SHG-Autokorrelator verwenden. Eine raffinierte Möglichkeit bietet der Kreuzkorrelator selbst.

Abbildung 5.1 gibt einen Ausblick, wie dieser Aufbau aussehen kann. In dem Kreuzkorrelator müßten die dielektrischen Spiegel im Strahlweg der zweiten Harmonischen durch Aluminiumspiegel ersetzt werden. Dadurch kann der vom Strahlteiler transmittierte 800 nm-Impuls nicht nur mit dem 400 nm-Impuls aus dem zweiten Korrelatorarm, sondern auch mit dem darin mitlaufenden roten

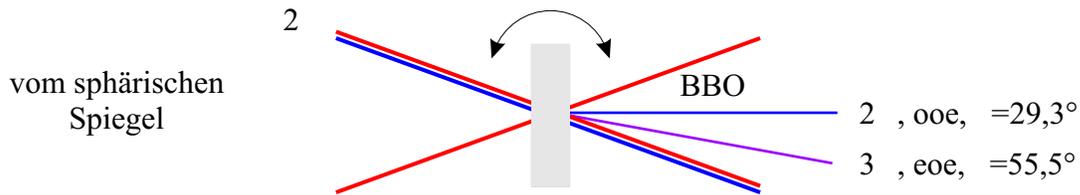


Abb. 5.1: Schematischer Aufbau zur Verwendung des Kreuzkorrelators als SHG-Autokorrelator zur Charakterisierung der Fundamentalen nach der Frequenzverdopplung.

Impuls im BBO-Kristall überlagert werden. Der Kreuzkorrelator könnte somit auch zur Multischuß-SHG-Autokorrelation der Fundamentalen verwendet werden, wenn der BBO-Kristall derart verdreht würde, daß die Phasenanpassung für nicht kolleare SHG erfüllt wäre (29,3 Grad).

Gelänge es, den Fundamentalimpuls nach der Frequenzverdopplung im großen Kristall zu separieren (z.B. durch HR-Spiegel für 800 nm), so könnte der Kreuzkorrelator auch als THG-Autokorrelator für den Fundamentalimpuls arbeiten. Es müßte lediglich ein dünner BBO-Kristall ($\leq 100 \mu\text{m}$) vor dem Strahlteiler des Korrelators eingebaut werden. Die THG-Autokorrelationsmessungen hinter dem regenerativen Verstärker (Abschnitt 4.1.4) haben gezeigt, daß dies funktioniert.

Bevor die zweite Harmonische in Experimenten zum Einsatz kommen kann, muß noch ihre Fokussierbarkeit überprüft werden, die stark von der Qualität des Kristalles abhängt. Diese Messung konnte im Rahmen der Messungen nicht durchgeführt werden und steht demnach noch aus.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Das Ziel der Diplomarbeit war die Frequenzverdopplung des 100 fs-TW-Titan-Saphir-Laserimpulses am Jenaer Terawatt-Lasersystem des Instituts für Optik und Quantenelektronik zur Verbesserung des Kontrastverhältnisses sowie die Charakterisierung der zweiten Harmonischen.

Die Konversionseffizienz wurde für Fundamentalintensitäten bis zu $300 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ gemessen, was einer Energie von 160 mJ hinter dem Vakuumkompressor entsprach. Das Maximum von 36 % wurde bei einer Fundamentalintensität von $160 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ erreicht. Die höchste SHG-Energie betrug 60 mJ.

Für die Bestimmung der SHG-Impulsdauer wurde ein Kreuzkorrelator entworfen und aufgebaut, der im Verlauf der Arbeit zusammen mit dem Verdopplerkristall (KDP) in das Jenaer Lasersystem hinter dem Vakuumkompressor integriert wurde. Es konnten Korrelationen aufgenommen werden, aus denen die Impulsdauer und das Kontrastverhältnis der SHG bestimmt wurden. Bei Anwendung der maximalen Fundamentalenergie betrug die Impulsdauer der SHG 220 fs, woraus eine Spitzenleistung von 0,26 TW resultiert. Das Kontrastverhältnis konnte für diesen Fall nur verdoppelt werden.

Abschließend ist zu sagen, daß die zweite Harmonische eine Möglichkeit bietet, das Kontrastverhältnis zu verbessern. Um dies optimal umzusetzen, darf jedoch nicht im stark gesättigten Bereich $> 100 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ gearbeitet werden, was sich wiederum zu Ungunsten der SHG-Energie auswirkt. Für jede spezielle Anwendung müssen demnach die optimalen Parameter eingestellt werden.

Literaturverzeichnis

- [1] PERRY, M.D., D. PENNINGTON, B.C. STUART, G. TIETBOHL, J.A. BRITTEN, C. BROWN, S. HERMAN, B. GOLICK, M. KARTZ, J. MILLER, H.T. POWELL, M. VERGINO und V. YANOVSKY: *Petawatt laser pulses*. Opt. Lett., 24(3):160–162, 1999.
- [2] STRICKLAND, D. und G. MOUROU: *Compression of amplified chirped optical pulses*. Optics Communications, 56(3):219, 1985.
- [3] NIEDRIG, H. (Herausgeber): *Optik*, Band 3 der Reihe *Lehrbuch der Experimentalphysik / Bergmann Schäfer*. Walter de Gruyter Berlin New York, 1993.
- [4] BRONSTEIN, I.N., K.A. SEMENDJAJEW, G. MUSIOL und H. MÜHLIG: *Taschenbuch der Mathematik*. Harry Deutsch, Thun, Frankfurt am Main, 2. Auflage, 1995. S. 179f.
- [5] SCHUBERT, M. und B. WILHELMI: *Nonlinear optics and quantum electronics*. John Wiley & Sons, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 1986.
- [6] DIELS, J.-C. und W. RUDOLPH: *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic Press, San Diego, New York, Boston, London, Sydney, Tokyo, Toronto, 1996.
- [7] BLOEMBERGEN, N.: *Nonlinear optics*. Benjamin, New York, Amsterdam, 1965.

- [8] ETRICH, C., F. LEDERER, B.A. MALOMED, T. PESCHEL und U. PESCHEL: *Optical solutions in media with a quadratic nonlinearity*. In: WOLF, E. (Herausgeber): *Progress in Optics*, Band 41. Elsevier Science B.V., 2000.
- [9] DMITRIEV, V.G., G.G. GURZADYAN und D.N. NIKOGOSYAN: *Handbook of nonlinear optical crystals*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1997.
- [10] ABRAMOWITZ, M. und I. STEGUN: *Handbook of mathematical functions with formulas, graphs and mathematical tables*. United States Department of Commerce, 10. Auflage, 1972.
- [11] ECKARDT, R.C. und J. REINTJES: *Phase matching limitations of high efficiency second harmonic generation*. IEEE J. Quant. Electron., QE-20(10):1178–1187, Okt. 1984.
- [12] KÜHLKE, D. und U. HERPERS: *Limitation of the second harmonic conversion of intense femtosecond pulses*. Opt. Comm., 69(1):75–78, Dez. 1988.
- [13] FEURER, T. und R. SAUERBREY: *Characterization of short laser pulses*. In: DUNNING, F.B. und R.G. HULET (Herausgeber): *Atomic, Molecular, and Optical Physics: Electromagnetic Radiation*, Band 29C. Academic Press San Diego New York Boston Sydney Tokyo Toronto, 1997.
- [14] SALIN, F., P. GEORGES, G. ROGER und A. BRUN: *Single-shot measurement of a 52-fs pulse*. Appl. Opt., 26(21):4528–4531, 1987.
- [15] GIORDMAINE, J.A., P.M. RENTZEPIS, S.L. SHAPIRO und K.W. WECHT: *Two photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses*. Appl. Phys. Lett., 11(7):216–218, 1967.
- [16] KLAUDER, J.R., M.A. DUGNAY, J.A. GIORDMAINE und S.L. SHAPIRO: *Correlation effects in the display of picosecond pulses by two-photon techniques*. Appl. Phys. Lett., 13(5):174–176, 1968.

- [17] FEURER, T., A. GLASS und R. SAUERBREY: *Two-photon photoconductivity in SiC photodiodes and its application to autocorrelation measurements of femtosecond optical pulses*. Appl. Phys. B, 65:295–297, 1997.
- [18] LI, Y.M. und R. FEDOSEJEVS: *Visible single-shot autocorrelator in BaF₂ for subpicosecond KrF laser pulses*. Appl. Opt., 35(15):2583–2586, 1996.
- [19] BLANC, S.P. LE, G. SZABO und R. SAUERBREY: *Femtosecond single-shot phase-sensitive autocorrelator for the ultraviolet*. Opt. Lett., 16(19):1508–1510, 1991.
- [20] ALBRECHT, H.-S.: *Untersuchungen zur ultraschnellen, lichtinduzierten Brechzahländerung und deren Nutzung für die Messung von fs-Lichtimpulsen*. Diplomarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 1992.
- [21] ALBRECHT, H.-S., P. HEIST, J. KLEINSCHMIDT, D. VAN LAP und T. SCHRÖDER: *Measurement of ultraviolet femtosecond pulses using the optical Kerr effect*. Appl. Phys. B, 55:362–364, 1992.
- [22] ALBRECHT, H.-S., P. HEIST, J. KLEINSCHMIDT, D.V. LAP und T. SCHRÖDER: *Single-shot measurement of ultraviolet and visible femtosecond pulses using the optical Kerr effect*. Appl. Opt., 32(33):6659–6663, 1993.
- [23] HEIST, P. und J. KLEINSCHMIDT: *Measurement of ultraviolet subpicosecond pulses based on ultrafast beam deflection*. Opt. Lett., 19(23):1961–1963, 1994.
- [24] SANSONE, G.: *Costruzione e caratterizzazione di un PG FROG*. Diplomarbeit, Università degli Studi di Napoli, 1999.
- [25] ZIENER, C.: *Aufbau eines 12 Terawatt Titan:Saphir-Lasers zur effizienten Erzeugung charakteristischer Röntgenstrahlung*. Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2001.

- [26] ARMSTRONG, J.A., N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING und P.S. PERSHAN: *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*. Phys. Rev., 127(6):1918–1939, Sep. 1962.
- [27] SMITH, A.: *SNLO*. Sandia national laboratories, Albuquerque, New Mexico, <http://www.sandia.gov/imrl/XWEB1128/xxtal.htm> Auflage, 2002.
- [28] ZHANG, J. Y., J.Y. HUANG, H. WANG, K.S. WONG und G.K. WONG: *Second-harmonic generation from regeneratively amplified femtosecond laser pulses in BBO and LBO crystals*. J. Opt. Soc. Am. B, 15(1):200–209, Jan. 1998.
- [29] FEURER, T., M. HACKER, B. SCHMIDT und G. STOBRAWA: *Das virtuelle Femtosekunden-Laser-Labor*. Institut für Optik und Quantenelektronik, Universität Jena, <http://www.lab2.de> Auflage, 1999.
- [30] BURGHOFF, J.: *Formung eines Multi-Terawatt-Laserimpulses*. Diplomarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2002.

Danksagung

Mein Dank gilt allen, die mich bei der Durchführung dieser Arbeit unterstützt haben, im besonderen

Herrn Prof. Sauerbrey für die Vergabe des Themas und motivierende Gespräche,

Herrn Dr. Wolfgang Theobald für die Betreuung, Unterstützung und Beratung bei der Anfertigung dieser Arbeit,

Herrn Laszlo Veisz für zahlreiche Gespräche und seine Hilfe, wenn Not am Mann war,

den Herren Dr. Thomas Feurer, Gregor Stobrawa und Martin Hacker für viele Diskussionen und hilfreiche Tips sowie

Dr. Heinrich Schwörer, Falk Ronneberger, Wolfgang Ziegler und den Mitarbeitern des Bereichs Quantenelektronik.

Desweiteren möchte ich an dieser Stelle all denjenigen danken, die ein offenes Ohr für meine Probleme hatten und mich seelisch und moralisch unterstützt haben.

Besonders danken möchte ich meinen Eltern für ihre Unterstützung, ihre Geduld und die vielen schönen Wochenenden während meines gesamten Studiums.