

Amplituden- und Phasenmodulation
von ultrakurzen Lichtimpulsen mit einer Flüssigkristallmaske
und ihre Anwendung
zur Kontrolle von Photonenübergängen in Na

Thomas Hornung

MPQ-Report

MPQ 247 247

Juli 1999

MAX-PLANCK-INSTITUT FÜR QUANTENOPTIK

Amplituden- und Phasenmodulation
von ultrakurzen Lichtimpulsen mit einer Flüssigkristallmaske
und ihre Anwendung
zur Kontrolle von Photonenübergängen in Na

Thomas Hornung

Dieser MPQ-Bericht ist als Manuskript des Autors gedruckt
Alle Rechte vorbehalten

This MPQ-Report has been printed as author's manuscript
All rights reserved

Max-Planck-Institut für Quantenoptik
85740 Garching, Bundesrepublik Deutschland

Abstract

Theoretical models which were corroborated by successful experiments suggest the possibility of actively controlling the wavepacket dynamics in photoexcited molecular systems. To this end the initiating light pulses of femtosecond duration must be shaped in a complicated and non-intuitive fashion. The scientific literature refers to this concept as “optimal control” [1-5]. This diploma thesis describes the design principles and the characteristic properties of a pulse shaper which affords the required pulse tailoring.

Pulse forming is effected by a controllable element – a stack of two strip-segmented liquid crystal modulators – mounted in the Fourier plane of a so-called 4f-setup. This liquid crystal unit is sandwiched between mutually parallel polarizers, such that phase as well as amplitude of the incident spectrum may separately be affected. The method hence works in the frequency domain and is based on the selective retardance and attenuation of individual frequency components of the incident Gaussian spectrum. The modified spectrum is back-transformed to the time domain and emerges as a sequence of amplitude- and phase-modulated incident pulses with a minimum temporal separation of 40 fs.

The actuation of the spatial light modulator (SLM) is accomplished by a PC-based routine developed during the diploma thesis which rests on a concept formulated by Wefers *et al.*[6]. It allows to pre-define the amplitudes and phases of the desired output pulse at each point of time within a finite control window and computes the appropriate SLM supply voltages to yield this structure. In excellent agreement with the theoretical postulate the algorithm produces the desired pulse shape within approximately one second. The structured pulses were characterized in phase and amplitude by frequency resolved optical gating (FROG) [7] and analyzed with respect to beam profile by a CCD camera.

TIME MODULATION

- Output pulse = linear superposition of individually controllable incident pulses. Phase and amplitude of the shaped pulse at each time $n \cdot \tau$ within the control window can be set ($E_{out}(t) = \sum_n a_n e^{i\phi_n} e_{in}(t + n\tau)$). This comb-like time-structure is a consequence of the discrete nature of pulse shaping.
- Shortest time separation: $\tau \approx 40$ fs. As a rule of thumb this value is nearly half the incident pulse duration (100 fs).

- Maximum width of control window: ≈ 5 ps (pulses of longer duration can not be shaped). This value represents the product of the number of strips, n , times the shortest time separation, τ . (i.e. $128 \cdot 40$ fs).

PHASE MODULATION

- Control of the phase between 0 and 2π by each strip permits a sufficient retardance of the frequency component by one light period.
- The slope of phase function to be impressed should not exceed π , else the pulseshaping quality is severely reduced.

FURTHER CHARACTERISTICS

- Linear space-time coupling always occurs in passive pulse shaping. It was experimentally determined to be 0.2 mm/ps.
- The damage threshold of the thin sheet polarizers which sandwich the liquid crystal mask is $28 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ in the visible spectral range.
- Orientation of the liquid crystals requires approximately 100 ms, provided the operating point is in the upper voltage region.

The above summarized results show, that the setup meets the demands of coherent control experiments.

In a first demonstration the population of the 3p-level of sodium by one-photon pumping from its 3s ground state has been controlled by applying phase-correlated double pulses. The described setup permits continuous tuning of the phase relationship between the two pulses, evidenced by an oscillatory behaviour of the induced population in the atom.

In a likewise successful follow-up experiment, again in sodium, the pulse shaper could be utilized to control the two-photon 3s - 5s transition. To this end an evolutionary algorithm [9] which reads the experimental signal acts upon the SLM within a feedback loop and iteratively attempts to either maximize, or minimize the 5s population. Without any a-priori constraints the algorithm met either goal within five generations.

These demonstrations convincingly illustrate the potential of the described feedback-controlled pulse-shaper as an appropriate tool to steer chemical reactions. Recent developments in what has become known as "optimal control theory" provide the necessary underpinning for such ambitious experiments. Tailored pulses are calculated which supposedly manoeuvre a quantum mechanical system from an initial to a desired final state [2, 3]. In future experiments the theoretical solutions will serve as a starting guess for the algorithm and thus speed up the achievement of convergence.

Zusammenfassung der Diplomarbeit

Theoretische Modellvorstellungen und erfolgreiche Experimente weisen auf die Möglichkeit einer aktiven Kontrolle der Wellenpaketdynamik in molekularen Systemen hin, in der Literatur mit dem Begriff „Optimal Control Theory“ bezeichnet [1–5]. Dazu müssen die anregenden fs-Lichtimpulse in einer komplizierten, intuitiv nicht vorher-sagbaren Weise moduliert sein. Durch Aufbau und Charakterisierung eines Pulsformers in dieser Diplomarbeit wurde dazu die Voraussetzung geschaffen.

Hier wird die geforderte Pulsgestaltung durch ein kontrollierendes Element - ein Sandwich aus zwei segmentierten Flüssigkristallmodulatoren (je 128 Streifen) - in einem 4-f-Aufbau realisiert. Das Paket der Flüssigkristallschichten ist zwischen parallel orientierten Polarisatoren angeordnet, so daß sowohl Phase als auch Amplitude des anliegenden Spektrums beeinflußt werden können. Die in der Frequenzdomäne arbeitende Methode beruht auf einer gezielten Verzögerung bzw. Abschwächung einzelner spektraler Komponenten des Gauß'schen Eingangsimpulses. Das veränderte Spektrum entspricht in der Zeitdomäne einer Pulsfolge aus amplituden- und phasenmodulierten Eingangspulsen mit einem kleinsten Zeitabstand von 40 fs.

Die Ansteuerung des Spatial Light Modulators (SLM) erfolgt mit einem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Programm, das auf einem von Wefers et al. [6] angegebenen Konzept fußt. Damit wird es erst möglich, eine konkrete Pulsform in Amplitude und Phase zu jedem Zeitpunkt innerhalb eines endlichen Kontrollfensters vorzugeben. In exzellenter Übereinstimmung mit der theoretischen Vorhersage wird dann auch innerhalb von einer Sekunde diese gewünschte Pulsform erzeugt. Die Eigenschaften des „Pulse-Shapings“ wurden mittels Frequency Resolved Optical Gating (FROG) [7] und einer Kamera zur Strahlprofilanalyse getestet.

So konnte eine Charakterisierung des modulierten Pulses in Phase, Amplitude und Strahlprofil vorgenommen werden:

Zeitliche Modulation

- Ausgangspuls = lineare Superposition von individuell kontrollierbaren Eingangspulsen. Die Phase und Amplitude der geformten Pulsfolge zu jedem Zeitpunkt $n \cdot \tau$ innerhalb des Kontrollfensters kann festgelegt werden ($E_{out}(t) = \sum_n a_n e^{i\phi_n} e_{in}(t+n\tau)$). Diese kammförmige Zeitstruktur ist Konsequenz der diskreten Natur der Pulsformung.

- Kleinster Zeitabstand $\tau = 40$ fs. Als Faustregel ist dieser Wert stets in etwa die halbe Eingangspulsdauer (hier 100 fs).
- Maximales Modulations-Zeitfenster = 5 ps. Dieser Wert ergibt sich aus dem Produkt der Streifenanzahl mit dem kleinsten Zeitabstand. Hier sind das $128 \cdot 40$ fs.

Phasenmodulation

- Kontrolle der Phase zwischen 0 und 2π erlaubt eine ausreichende Verzögerung der Frequenzkomponenten um eine Lichtperiode.
- Die Steigung der aufzuprägenden Phasenfunktion darf π nicht überschreiten, sonst leidet die Pulsformungsqualität.

Weitere Merkmale

- Lineare Ort-Zeit-Kopplung tritt aufgrund der passiven Pulsformung immer auf und wurde experimentell zu 0,2 mm/ps bestimmt.
- Zerstörschwelle der Dünnschichtpolarisatoren in der Flüssigkristall-Maske liegt bei $28 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ im sichtbaren spektralen Bereich (VIS).
- Orientierungszeit der Flüssigkristalle beträgt ungefähr 100 ms, wenn der Arbeitspunkt im oberen Spannungsbereich liegt.

Die in Stichpunkten aufgeführten Ergebnisse zeigen, daß der Aufbau den Anforderungen zur Anwendung in der kohärenten Kontrolle genügt.

So konnte in einer ersten Anwendung die Besetzung der 3p-Zustände aus dem 3s-Grundzustand im Natrium durch Modulation von zeitlich phasenkorrelierten Doppelpulsen gesteuert werden. War es zuvor mit sehr viel Aufwand verbunden, eine Phasenkopplung herzustellen [8], so ist es mit diesem Aufbau möglich, die Phasenbeziehung beider Pulse kontinuierlich durchzustimmen. Das führt in diesem Fall zu einer im Atom induzierten Besetzung mit oszillatorischem Verhalten.

Darüberhinaus konnte der Pulse-Shaper zur Kontrolle eines Zwei-Photonenübergangs im Natrium erfolgreich eingesetzt werden. Dazu wurde eine Feedback-Schleife bestehend aus dem Pulsformer und einem genetischen Algorithmus aufgebaut [9]. Anhand eines Rückkopplungssignals bewertet der Algorithmus nach einem biologischen Auswahlverfahren, ob er dem Optimierungsziel nähergekommen ist und trifft eine entsprechende Entscheidung: Die Laserpulse werden dadurch Schritt für Schritt verbessert [10]. Der Algorithmus fand selbständig innerhalb von fünf Generationen ohne jegliche theoretische Vorkenntnis sogenannte „dark pulses“, die keinen 2-Photonenübergang induzieren, sowie auch solche Pulse, die das 2-Photonen-Signal maximieren.

Diese ersten Anwendungen zeigen bereits, wie reichhaltig das künftige Anwendungsgebiet des Pulse-Shapers in der Kontrolle chemischer Reaktionen sein wird.

Theoretische Bestrebungen unter dem Namen Kontrolltheorie beschäftigen sich ebenfalls mit dieser Problematik: Es werden geformte Pulse berechnet, die ein quantenmechanisches

System von einem Anfangs- in einen gewünschten Endzustand zu steuern vermögen [2,3]. In Zukunft könnte man dem genetischen Algorithmus theoretisch berechnete Lösungen als Startwert vorgeben, um die Konvergenzgeschwindigkeit zu erhöhen, und Abweichungen zwischen Theorie und Experiment zu verstehen.

Inhaltsverzeichnis

Abstract	1
Zusammenfassung	3
Einführung und Motivation	9
1 Theoretische Grundlagen der Pulsformung	13
1.1 Grundlagen der Modulation	13
1.2 Modulatortypen	17
1.3 Der Spatial Light Modulator	20
1.3.1 Die Kopplung von Ort und Zeit	24
1.4 Pulsformung bei diskreter Filterung	29
1.4.1 Lineare Struktur des modulierten Pulses	31
1.4.2 Weitere Strukturen des modulierten Pulses	33
1.4.3 Räumliche und zeitliche Form des modulierten Pulses	35
1.4.4 Grenzen der Phasenkompensation mit einem SLM	36
1.4.5 Abhängigkeit des geformten Pulses von der Maskenposition	39
2 Experimentelle Realisierung	41
2.1 Das Lasersystem	41
2.2 4-f Aufbau mit einem SLM	42
2.3 Der Spatial Light Modulator	45
2.3.1 Die Funktionsweise	46
2.3.2 Die Kennlinie des SLM	48
2.3.3 Die Einstellzeit der Maske	51

2.4	Programme der Benutzerschnittstelle	53
2.4.1	Programm 1: Berechnung der Pulsfolge	54
2.4.2	Programm 2: Berechnung der SLM-Einstellung	55
2.4.3	Programm 3: Ansteuerung des SLM	57
2.4.4	Beispielrechnungen	59
3	Vermessung der modulierten Pulse	63
3.1	Verfahren zur Charakterisierung geformter Pulse	63
3.1.1	Korrelationsverfahren	63
3.1.2	Das FROG Verfahren	64
3.2	Messdaten	67
3.2.1	Charakterisierung der zeitlichen Struktur	68
3.2.2	Charakterisierung der Ort-Zeit-Kopplung	70
3.2.3	Charakterisierung der Modulationsstruktur	73
3.2.4	Einfache Modulation der spektralen Phase	78
3.2.5	Einfache Modulation der zeitlichen Phase	80
4	Kontrolle von Photonenübergängen in Na	83
4.1	Kontrolle eines 1-Photon-Übergangs	83
4.1.1	Theoretische Grundlagen	84
4.1.2	Der experimentelle Aufbau	87
4.1.3	Ergebnisse	89
4.2	Kontrolle eines 2-Photonen-Übergangs	92
4.2.1	Theoretische Grundlagen	92
4.2.2	Der experimentelle Aufbau	94
4.2.3	Ergebnisse	95
4.3	Bemerkungen und Ausblick	99
A	Kompressoren	101
B	Der 4-f-Aufbau	107

Einführung und Motivation

Ultrakurze Impulse ermöglichen pump-probe Experimente zur Untersuchung ultraschneller chemischer und biologischer Prozesse [11,12]. Diese Femtosekunden-Impulse sind entsprechend breitbandig und erzeugen durch kohärente Anregung eine Superposition von Energieeigenzuständen E_n , die Eigenschaften eines nuklearen Wellenpaketes aufweisen. Da in einer solchen Superposition die Phase entscheidend beiträgt, kann das amplituden- und phasenmodulierte Laserfeld Einfluß auf die Besetzungsverteilung a_n nehmen und damit ein Wellenpaket nach Wunsch erzeugen [13]. Diese gezielte Präparation hat jedoch Konsequenzen für die weitere zeitliche Entwicklung des Wellenpaketes: Es wird entlang eines bestimmten Weges auf der Potentialfläche gezwungen. Dadurch erreicht man eine passive Steuerung chemischer Reaktionen in gewünschte Ausgangskanäle mit hoher Effizienz [4,5]. Ebenso ist eine aktive Kontrolle denkbar, bei der das modulierte Laserfeld mit dem sich entwickelnden Wellenpaket ständig wechselwirkt und es so zu steuern vermag [14–16].

Diese Kontrollmöglichkeiten lassen das langersehnte Ziel der Chemie, die relativen Ausbeuten der Produkte gezielt festlegen zu können, ein großes Stück näherrücken [17]. Waren bisher einige wenige Reaktionen in geringem Maße steuerbar durch Einflußnahme auf globale Umgebungsparameter wie Druck, Temperatur und die Verwendung von Katalysatoren, so öffnet sich nun der Weg zur modenselektiven Chemie. In das molekulare Geschehen direkt eingreifen zu können durch das gezielte Aufbrechen einer bestimmten chemischen Bindung, ermöglicht eine sehr präzise Steuerung von bisher unkontrollierbaren Phänomenen. Es ist nunmehr vorstellbar, chemische Reaktionen umweltfreundlicher ablaufen zu lassen einfach durch Unterdrückung unerwünschter Nebenprodukte oder die Nutzung der Sonnenenergie mit höherer Effizienz zu betreiben.

Diese Kontrollphänomene basieren auf dem Prinzip der quantenmechanischen Interferenz, die immer zwischen ununterscheidbaren Wegen auftritt [18]. Wird ein Schirm mit zwei parallelen Schlitzen durch eine Laserquelle beleuchtet, so entsteht ein Interferenzmuster, welches sensitiv ist auf den Phasenunterschied zwischen Photonen, die durch Spalt 1 und solchen, die durch Spalt 2 gelaufen sind. Man sagt, die zwei Wege – jeweils durch einen Schlitz – interferierten miteinander. Dazu muß die Beleuchtungsquelle kohärent sein, eine grundlegende Eigenschaft jedes Lasers.

Genau dieses Prinzip ist auch auf molekulare Systeme übertragbar. Meistens gibt es endlich viele, sogenannte interferenzfähige Wege von einem Anfangs- in einen Endzustand. Als interferenzfähig werden chemische Reaktionswege bezeichnet, die zwar über unterschiedliche Zwischenzustände verlaufen, jedoch in denselben erwünschten Endzustand münden. Jeder Pfad verläuft über einen individuellen Zwischenzustand und ist damit

auch unabhängig vom Nachbarnpfad experimentell kontrollierbar. Ein Beispiel ist die Anregung in einen energetisch höherliegenden Zustand. Der erste Weg könnte mittels eines 3-Photonenprozesses mit kohärenten Laserquellen von je einem Drittel der Anregungsenergie verlaufen, der zweite mit einer Ein-Photonenanregung mit Photonen der Anregungsenergie. Die Wahrscheinlichkeit, daß nach der Reaktion dieses Endprodukt auftritt, ist durch die Summe der Pfade dorthin gegeben: $P(\text{Endprodukt}) = |\psi_1 + \psi_2|^2$. Dies ist wiederum ein Ausdruck, in den kritisch die relativen Phasen der unterschiedlichen Wege eingehen, analog zum oben beschriebenen Doppelspaltexperiment. Mit experimentellen Methoden, die eine Phasenkopplung erlauben ist somit die Kontrolle der Phase der Reaktionswege, und deshalb auch eine Einflußnahme auf das Endprodukt direkt möglich. Die Kontrolle dieser Interferenzen ist ein mathematisch sehr komplexes Problem. Oft müssen komplizierte, nichtlineare Gleichungen für das elektrische Feld des Laserlichts gelöst werden. Das Problem der kohärenten Kontrolle stellt zwei grundlegende Fragen:

1. Wie kann man Femtosekundenimpulse in Phase und Amplitude formen ?
 2. Kann man den aufwendigen Weg über die Theorie umgehen um kohärente Kontrolle zu erzielen ?
- Besonders bei komplexen Molekülen, wo die Theorie mit vielen Näherungen arbeitet, spielt dieser Gesichtspunkt eine wichtige Rolle.

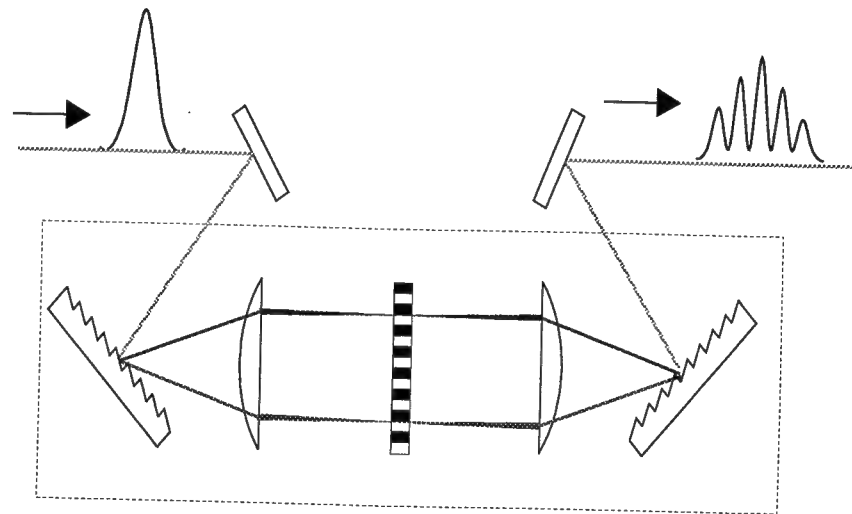


Abbildung 1: Aufbau eines passiven Pulsformers [6, 19, 20].

Die vorliegende Arbeit soll eine mögliche Antwort auf diese Fragen geben. Aufgabenstellung dieser Diplomarbeit war der Aufbau und die Charakterisierung einer passiven Pulsformung, basierend auf einer 4-f-Konstruktion und einem

Flüssigkristallmodulator [6, 19]. Der Modulator wurde von der Firma Cambridge Research in Zusammenarbeit mit Wefers et al. [20] entwickelt und ermöglicht die Modulation des Spektrums in Phase und Amplitude. Die Fouriertransformierte des so modulierten Spektrums ist ein Puls, der durch „Aneinanderkleben“ von Eingangspulsen entsteht, die zuvor in Amplitude als auch Phase beliebig gewählt wurden. Der typische Aufbau eines fs-Pulsformers ist in Abb. 1 dargestellt und ausführlich in Kap. 1 und 2 beschrieben.

Ist es das Ziel den Pulsformer im Experiment einzusetzen, so verlangt dies eine gute Übereinstimmung zwischen gewünschter und tatsächlich experimentell realisierter Pulsform. In Kapitel 3 wird diese Diskussion aufgenommen und festgestellt, daß hohe Pulsformungsqualität erreicht wird. Es konnten deswegen zwei erfolgreiche Experimente an Natrium durchgeführt werden [21]. Sie sind in Kapitel 4 beschrieben.

Kapitel 1

Theoretische Grundlagen der Pulsformung

Passive Pulsformung wird durch einen 4-f-Aufbau erreicht, in dessen Fourierebene sich ein Flüssigkristall-Modulator befindet [6, 19, 20]. Der 4-f-Aufbau ist im wesentlichen ein Kompressor (siehe Anhang B), dessen Aufgabe es ist, die Materialdispersion des Modulators zu kompensieren, damit der fs-Puls keine zeitliche Verbreiterung, bei inaktivem Modulator, erfährt (siehe Abb. 1).

Das erste Gitter und die erste Linse bilden zusammen ein Spektrometer, welches das Spektrum des Pulses in der Fourierebene auflöst. Dieses besitzt eine intrinsische Phase und einen charakteristischen Intensitätsverlauf. Der Modulator vermag nun eine zusätzliche Phasenverzögerung aufzuprägen (er addiert eine Phase zur intrinsischen dazu) und die Intensität des Spektrums mit einer Transmissionsfunktion zu multiplizieren. Die Phasenverzögerung und Transmissionsmodulation sind jeweils lineare Prozesse. Sie sind grundlegend für das Verständnis der Pulsformung und werden deshalb im ersten Abschnitt 1.1 beschrieben.

Das modulierte Spektrum wird schließlich wieder über die zweite Linse und das zweite Gitter (inverses Spektrometer) zur Interferenz gebracht. Die Form des sich so ergebenden modulierten Pulses ist sehr komplex und wird ausführlich in Abschnitt 1.3 beschrieben. Dieser Abschnitt ist noch allgemein gehalten, um alle wichtigen Aspekte der passiven Modulation herauszuarbeiten. Eine Spezialisierung auf den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Flüssigkristallmodulator erfolgt erst in Abschnitt 1.4.

1.1 Grundlagen der Modulation

Das elektrische Feld eines fs-Pulses wird durch eine reelle Funktion $e(\vec{x}, t)$ dargestellt. Im folgenden beschränkt man sich zunächst nur auf die Zeitabhängigkeit $e(t)$. Das Spektrum des Laserpulses berechnet sich über die komplexe Fouriertransformation aus dem reellen elektrischen Feld zu :

$$E(\omega) = F\{e(t)\} \equiv \int_{-\infty}^{\infty} dt \quad e(t)e^{-i\omega t} = |E(\omega)|e^{i\phi(\omega)} \quad (1.1)$$

$\phi(\omega)$ ist die Phasenfunktion im Frequenzraum. Die Einführung des Spektrums als eine komplexe Größe erfolgte nur aus rechentechnischen Gründen. Da $e(t)$ reell ist, gilt für die Fourierkoeffizienten $E(\omega) = E^*(-\omega)$. Ist hingegen das Spektrum vorgegeben, so errechnet sich die Zeitabhängigkeit des elektrischen Feldes über die inverse Fouriertransformation:

$$e(t) = F^{-1}\{E(\omega)\} \equiv \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \quad E(\omega)e^{i\omega t} \quad (1.2)$$

Somit ist es nun möglich, den Puls in der Zeitdomäne zu erfassen (siehe Gl. 1.2), also vor und nach dem Modulationsaufbau, als auch in dessen Fourierebene durch eine Beschreibung im Frequenzraum (siehe Gl. 1.1). Die Umrechnung zwischen diesen beiden Darstellungen erfolgt über die Fouriertransformation.

Alle optischen Komponenten des Modulatoraufbaus können mathematisch durch lineare Elemente $M(\omega)$ beschrieben werden [22]. $M(\omega)$ wird auch als Transferfunktion eines optischen Elementes bezeichnet. Diese Elemente haben die Eigenschaft, mit dem Puls linear zu wechselwirken. In der Zeitdomäne drückt sich dies durch eine Faltung

$$e_{out}(t) = (e_{in} * m)(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \quad e_{in}(\tau)M(t - \tau) \quad , \quad (1.3)$$

im Frequenzraum durch ein Produkt

$$E_{out}(\omega) = E_{in}(\omega)M(\omega) \quad (1.4)$$

aus. $E_{in}(\omega)$ ist das Pulsspektrum vor und $E_{out}(\omega)$ das Spektrum nach dem linearen Element. Diese Pulsveränderung läßt sich jetzt leicht mit Gleichungen 1.4 und 1.3 berechnen, wenn man die mathematische Form der Funktion $M(\omega)$ für jedes optische Element kennt. In diesem Abschnitt soll $M(\omega)$ zunächst noch sehr allgemein durch eine komplexe Funktion dargestellt werden:

$$M(\omega) = |M(\omega)| \cdot e^{-i\phi(\omega)} \quad (1.5)$$

Der Betrag $|M(\omega)|$ stellt einen Frequenzfilter, der Imaginärteil $e^{-i\phi(\omega)}$ eine Phasenverzögerung um den Betrag $\phi(\omega)$ dar.

Die in diesem Kapitel 1 beschriebene Mathematik wird sich auf die in Abbildung 1.1 dargestellten Operationen beschränken: Umrechnungen von Frequenz- in Zeitdomäne und Berechnung der Pulspropagation durch optische Elemente unter Verwendung ihrer Transferfunktionen $M(\omega)$.

Diese sehr allgemeine Beschreibung läßt dennoch eine Berechnung der Pulsveränderung durch reine Phasenverzögerungen zu. Eine Amplituden- und Phasenmodulation des Spektrums findet in diesem Abschnitt nur kurz Erwähnung und wird erst im Abschnitt 1.3 ausführlich behandelt.

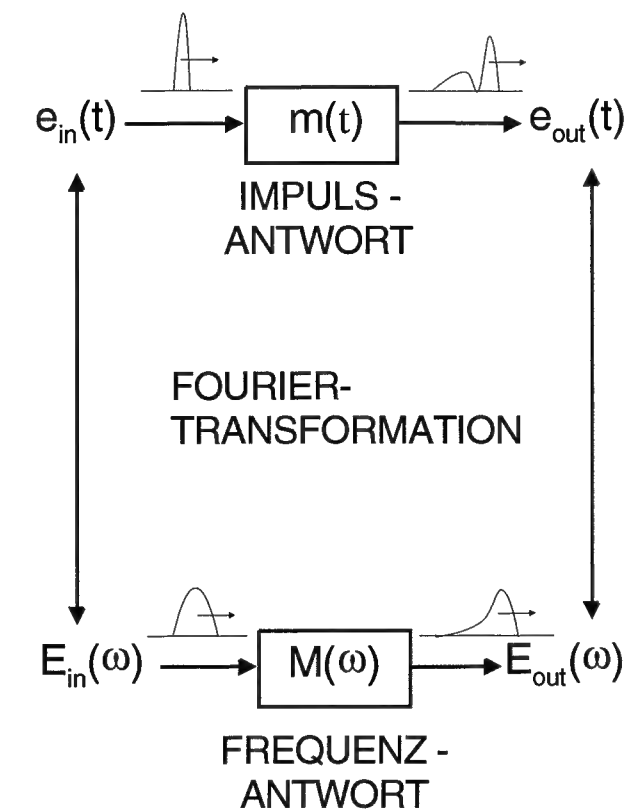


Abbildung 1.1: Die Wechselwirkung eines linearen Elementes (Rechteck) mit einem ultrakurzen Puls. Diese lineare Wechselwirkung kann sowohl in der Frequenz- als auch in der Zeitdomäne ausgedrückt werden [23].

Pulsveränderung aufgrund einer reinen Phasenmodulation

Hier werden solche lineare Elemente besprochen, die dem Pulsspektrum eine Phasenfunktion aufprägen können, in deren Taylorentwicklung alle Ordnungen berücksichtigt werden. Sie können jedoch die spektrale Amplitude nicht beeinflussen.

In diesem Fall setzt man in Gleichung 1.5 $|M(\omega)| = 1$, so daß man für das lineare Element $M(\omega) = 1 \cdot e^{-i\phi(\omega)}$ erhält. Eingesetzt in Gl. 1.4 und Fouriertransformiert in die Zeitdomäne ergibt dies

$$e(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \quad E_{in}(\omega)e^{-i\phi(\omega)}e^{i\omega t} \quad (1.6)$$

Taylorentwicklung von $\phi(\omega)$ um die Zentralfrequenz $\bar{\omega}$ liefert:

$$\phi(\omega) = \sum_{n=0}^{\infty} b_n(\omega - \bar{\omega})^n \quad , \quad (1.7)$$

mit den Koeffizienten $b_n = \frac{1}{n!} \frac{d^n \phi}{d\omega^n} \Big|_{\bar{\omega}}$. Eingesetzt in Gleichung 1.6 ermöglicht diese Entwicklung eine Zuordnung zwischen den einzelnen Taylorkoeffizienten (indiziert mit b_n)

und deren jeweiliger Auswirkung auf die Pulsform:

$$e(t) = \frac{1}{2\pi} e^{ib_0} e^{i\bar{\omega}t} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega E_{in}(\omega) \exp\left(-i \sum_{n=2}^{\infty} b_n (\omega - \bar{\omega})^n\right) e^{i(\omega - \bar{\omega}) \cdot (t - b_1)} \quad (1.8)$$

Die ersten drei Koeffizienten b_n aus Gleichung 1.8 werden in Tabelle 1.1 benannt und kurz erläutert.

Ordnung der Phase	Frequenzdomäne	Zeitdomäne
b_0	e^{ib_0}	kein Effekt auf das zeitliche Verhalten des Pulses
b_1	$e^{ib_1(\omega - \bar{\omega})}$	$\delta(t - b_1)$ entspricht einer zeitlichen Verschiebung des Pulses (Puls-Positions-Modulation)
b_2	$e^{i\frac{b_2}{4}(\omega - \bar{\omega})^2}$	$e^{i\sqrt{\frac{\tau_{gauss}^2}{2b_2} - 1} \left(\frac{t}{\tau_{gauss}}\right)^2}$ entspricht einem linearen Chirp

Tabelle 1.1: Auswirkung der Phase auf Frequenz- und Zeitdomäne

Umgekehrt ist es nun möglich, Eingangspulse mit einer bestimmten Phasenfunktion $\phi_{in}(\omega)$ gezielt so zu verändern, daß der Ausgangspuls eine Phasenfunktion $\phi_{out}(\omega) = \text{const}$ besitzt. Damit erreicht man eine Kompensation der Phasenfunktion des Pulses und somit effektive Kompression bis zur Fourierbegrenzung. Im Zeit-Bandbreite-Produkt gilt dann das Gleichheitszeichen ($\Delta\omega \cdot \Delta t = 2\pi c_b$ siehe Fußnote¹), somit erhält man die kürzest mögliche Pulsdauer zu dieser Bandbreite.

Die Frage lautet nun: Wie ist die Phasenfunktion des linearen Elementes $\phi(\omega)$ zu wählen, um diese effektive Kompression eines Pulses $E_{in}(\omega) = |E_{in}(\omega)| \exp(i\phi_{in}(\omega))$ zu erreichen? Dazu setze man den Eingangspuls in Gleichung 1.8 ein und betrachte nur die Phase des Ausgangspulses:

$$\phi_{out}(\omega) = \phi_{in}(\omega) - \sum_{n=2}^{\infty} b_n (\omega - \bar{\omega})^n \quad (1.9)$$

Wählt man demnach ein lineares Element, für dessen sämtliche Taylorkoeffizienten gilt: $b_n \equiv \frac{1}{n!} \frac{d^n \phi_{in}}{d\omega^n} \Big|_{\bar{\omega}}$, so wird jede Ordnung der im Eingangspuls enthaltenen Phasenstörung

¹ c_b ist eine von der Pulsform abhängige numerische Konstante.

durch das lineare Medium kompensiert. Der Ausgangspuls besitzt in diesem Fall die Phase $\phi_{out}(\omega) = \text{const}$ und ist somit frei von jeder Phasenmodulation.

Mit Kompressoren kann man b_2 so anpassen, daß ein linearer Chirp kompensiert wird; eine Aneinanderreihung von zwei Kompressorstufen, jede bestehend aus Gittern oder Prismen, ermöglicht Kompensation bis zur dritten Ordnung (b_3). Eine Kompensation in höheren Ordnungen ist erst mit einem programmierbaren linearen Element (siehe Abschnitt 1.3) möglich.

Pulsveränderung aufgrund einer Phasen- und Amplitudenmodulation des Spektrums

Der im Rahmen dieser Diplomarbeit untersuchte LC-SLM² vermag die Transmission und die Phasenverzögerung einzelner Frequenzkomponenten getrennt einzustellen. Pulse können mit einer zeitlichen, kammförmigen Einhüllenden und beliebiger zeitlicher Phasenfunktion erzeugt werden. Aufgrund der Programmierbarkeit von spektralen Phasenfunktionen hoher Ordnung ist eine Kompression eines Pulses nicht mehr auf quadratische und kubische Phasenfehler beschränkt. Die Theorie wird in Abschnitt 1.3 behandelt.

1.2 Modulatortypen

Es sollte ein Pulsformer aufgebaut werden, an den folgende Anforderungen gestellt wurden:

1. Der modulierte Puls sollte höchstens eine um 80 % geringere Intensität als der Eingangspuls besitzen.
2. Beliebige Pulsformen sollten mit diesem Aufbau realisierbar sein. Getrennter Einfluß auf Phase und Amplitude des Pulses sollte möglich sein.
3. Die kürzeste Zeitstruktur im geformten Puls sollte im Bereich der Pulsdauer des Eingangspulses liegen (100 fs) – wenn möglich – noch kürzer.

Eine Übersicht über die bisherige Entwicklung der Konzepte zur Pulsformung [23] wird im folgenden gegeben und es wird erklärt, warum für die obigen Anforderungen nur die Pulsformung mit einem Flüssigkristallmodulator geeignet schien.

Die Pulsformung ist ein linearer Prozeß, der sich sowohl in der Frequenz- als auch in der Zeitdomäne realisieren läßt. Man führt zur Charakterisierung der Pulsformung zwei wichtige Zeiten ein:

1. die Reprogrammierzeit τ_p , welche die Wartezeit angibt, bevor eine neue Pulsform durch den Modulator erzeugt werden kann.
2. die kürzeste Anstiegszeit τ_r , die in der Pulsform auftreten kann.

²Liquid Crystal Spatial Light Modulator

Pulsformungsverfahren können somit in zwei Gruppen unterteilt werden:

- Direkte Methoden für die gilt: $\tau_r \approx \tau_p$. Diese arbeiten ausschließlich in der Zeitdomäne.
- Indirekte Verfahren, die die Bedingung: $\tau_r \ll \tau_p$ erfüllen und die über dispersive Elemente sowohl in der Zeit- als auch in der Frequenzdomäne verfügen.

Direkte Methoden werden realisiert durch schnelles optisches Schalten des zu modulierenden Pulses mit einem kürzeren Puls in einem Kerr-Medium, wodurch ungewünschte Bereiche des Pulses einfach ausgeblendet werden. Dieses Verfahren eignet sich nur für einfache Modulationen, da die Komplexität des Ausgangspulses durch die Struktur des Schaltimpulses gegeben ist. Es zeichnet sich durch schnelle Reprogrammierzeiten von einigen 100 ps aus. Allerdings kann Anforderung 2 nicht erfüllt werden.

Die indirekte Methode der Pulsformung in der Zeitdomäne wird durch Strecken des zu modulierenden Pulses in einer Glasfaser, anschließend „Zerhacken“ durch einen elektrooptischen Schalter und abschließend Komprimieren erreicht. Die Verluste eines solchen Aufbaus sind sehr hoch, und es kann deshalb nicht die Anforderung 1 erfüllt werden [23].

Die indirekte Methode in der Frequenzdomäne wird realisiert durch spektrale Aufspaltung des Eingangspulses und Abbildung des Spektrums auf einen Modulator, der Einfluß nimmt auf Phase und Amplitude. Das veränderte Spektrum wird nun wieder durch Kollimation zur Interferenz gebracht und ergibt somit einen modulierten Puls. Den gesamten Aufbau nennt man 4-f-Aufbau. Eine theoretische Beschreibung findet man im Anhang B. Es können verschiedene Typen von Modulatoren innerhalb des 4-f-Aufbaus verwendet werden:

- Flüssigkristallmatrizen (SLM)
- Akusto-optische Modulatoren (AOM)
- Holographische Muster. Sie setzen einen geformten Puls voraus und müssen daher als reines Pulsform-Speicherelement angesehen werden.
- Bewegliche Spiegel in der Fourierebene.

Nur die beiden ersten Modulatoren in dieser Liste erlauben eine beliebige, vom Benutzer programmierbare Pulsformung. Die Vor- und Nachteile des akusto-optischen Modulators gegenüber dem Flüssigkristallmodulator sind in Tabelle 1.2 zusammengefaßt.

Die Funktionsweise des AOM ist in Abb. 1.2 schematisch dargestellt [24, 25]. Eine beliebige amplituden- und frequenzmodulierte akustische Welle im AOM-Material wird durch einen Piezoelektrischen Kristall erzeugt, der an einen Wellenform-Generator angeschlossen ist. Synchronisiert man die Erzeugung der akustischen Welle mit dem einfallenden Laserpuls, so wird er nach dem Bragg-Gesetz an ihr gebrochen und übernimmt ihre Phase

Eigenschaft	AO Deflektor	LC-SLM
τ_p	10 μ s	200 ms
Transmission	5%	80%
Pulsformungsqualität. (Letztendlich jedoch durch den endlichen Durchmesser der spektralen Komponenten gegeben.)	kontinuierlich. (Lichtwellenstreuung an einer akustischen Welle.)	diskret. (Endliche Anzahl von Modulationsstreifen.)
Kosten	ungefähr gleich	
Elektronik	HF-Bausteine, 40 Mhz Wellenformgenerator.	Kommerzielles Gesamtsystem über GPIB ansteuerbar.

Tabelle 1.2: Vergleichstabelle AOM vs. LC-SLM

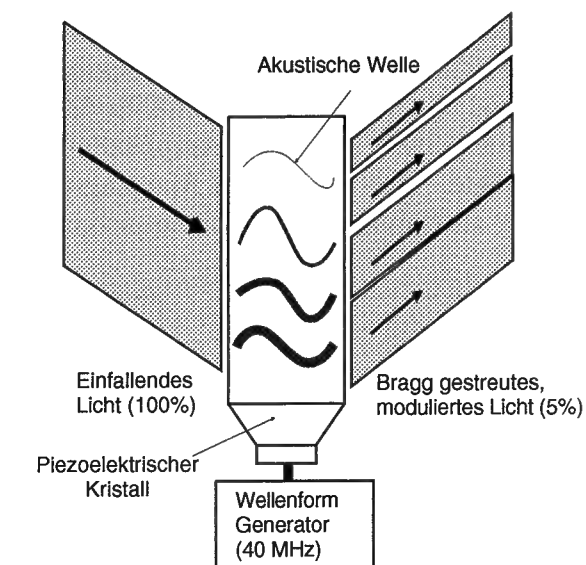


Abbildung 1.2: Funktionsweise des akusto-optischen Modulators.

und Amplitude. Man erhält phasen- und amplitudenmoduliertes Licht mit einer Effizienz von typischerweise 5%.

Allein wegen dieser niedrigen Effizienz akusto-optischer Modulatoren wurde die Pulsformung mittels einem Flüssigkristall-SLM (LC-SLM) realisiert. Dabei mußten Kompromisse hinsichtlich der Reprogrammierzeit τ_p und der Modulationsgüte eingegangen werden. Die Funktionsweise und der Aufbau des segmentierten Flüssigkristallmodulators sind in Abschnitt 2.3 beschrieben. Eine Spezialisierung der allgemeinen Theorie (Abschnitt 1.3) auf den Flüssigkristallmodulator erfolgt in Abschnitt 1.4.

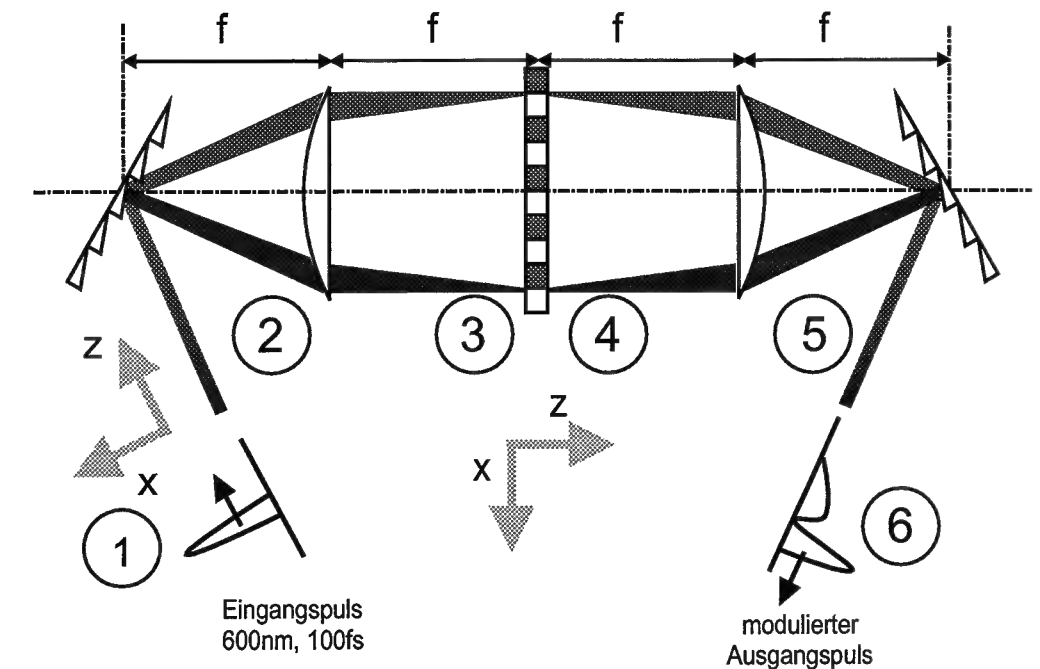
1.3 Der Spatial Light Modulator

Die hier vorgenommene theoretische Modellierung des 4-f-Aufbaus mit Modulator (Abb. 1.3) ist ein Erläuterungsversuch der indirekten Pulsformung im Frequenzraum. Dabei wird nicht zwischen AOM und LC-SLM unterschieden. Die Theorie folgt einer Veröffentlichung von Wefers et. al. [26]. Es wird eine geschlossene Lösung berechnet, die den geformten Puls darstellt. Dabei wird auch die Veränderung des Strahlprofils in der Näherung der Gauß'schen Optik berücksichtigt.

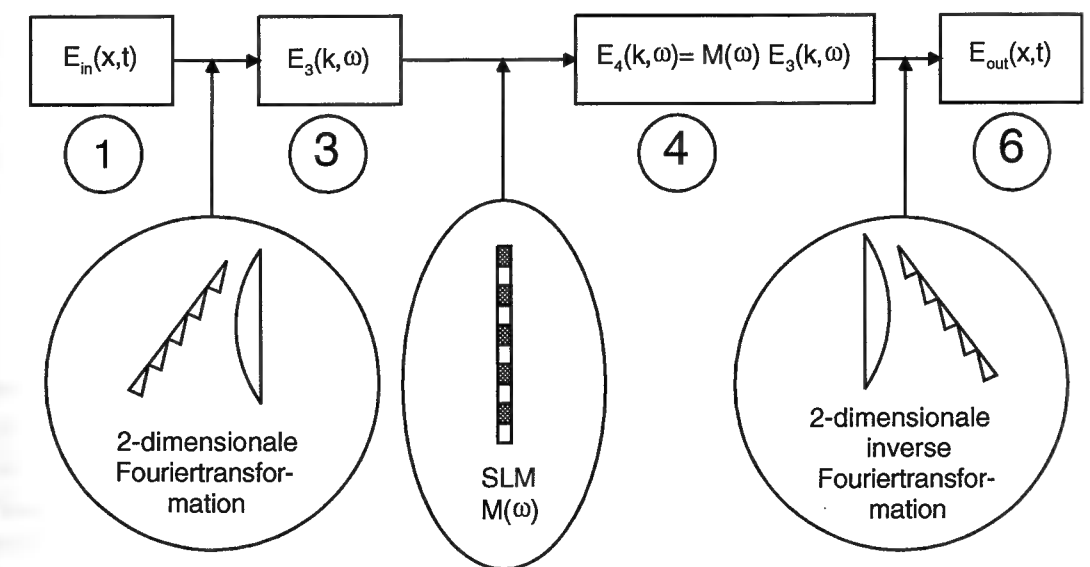
Die Berechnung erfolgt schrittweise gemäß der Numerierung 1 - 6 in Abbildung 1.3 a. Gitter, Linse und Modulator stellen lineare Elemente dar, so daß bei Kenntnis ihrer Transferfunktionen und Einsetzen dieser in die linearen Wechselwirkungsgleichungen 1.3, 1.4 eine Berechnung der Pulsformung möglich wird. Dabei wird zwischen Orts-, Zeitkoordinaten und Wellenvektor-, Frequenzkoordinaten mit der zweidimensionalen Fouriertransformation umgerechnet.

Dann läßt sich die Pulsformung durch wenige mathematische Operationen erklären: Gitter und Linse wirken wie eine zweidimensionale Fouriertransformation auf den Puls, wobei das Spektrum mit der Filterfunktion des SLM multipliziert wird (siehe Abb. 1.3 b). Das zweite Gitter und die zweite Linse sind in ihrer Wirkung der inversen Fouriertransformation des durch Beugung und Amplituden- und Phasenmodulation veränderten Spektrums äquivalent. Man erhält den Ausgangspuls, der sich aufgrund der Linearität der Wechselwirkung als Superposition von Impulsantworten³ darstellen läßt.

³Eine Impulsantwort ist der Ausgangspuls nach einem linearen Element, wenn als Eingangspuls eine δ -Funktion gegeben ist. Sie ist auch als Green'sche Funktion bekannt.



(a) Experimenteller Aufbau



(b) Mathematische Übersetzung

Abbildung 1.3: Aufbau eines Pulsformers der in der Frequenzdomäne arbeitet, bestehend aus SLM und einer Gitter- und Linsen-Anordnung, auch als 4-f bezeichnet [19, 20, 23, 26, 27].

Eine detaillierte Rechnung folgt nun. Dazu werden folgende Definitionen getroffen.

- Einführung eines Koordinatensystems (Orthonormalsystem). Die z-Achse zeigt immer in Richtung der Ausbreitungsrichtung des Pulses und ist damit stets mit der Zeitachse äquivalent; die x-Richtung liegt in der Dispersionsebene der Gitter und stets senkrecht zur z-Richtung. Die y-Richtung steht senkrecht auf den beiden anderen. Die Änderungen des Stahlprofils in y-Richtung können während der Rechnung vernachlässigt werden und lassen sich im Endergebnis leicht nachtragen. Die y-Richtung erfährt nur eine Veränderung aufgrund der Pulsfortpflanzung in Luft, welche durch das Fresnel-Integral beschrieben wird.
- Abkürzungen

f	Brennweite
λ	Zentralwellenlänge
m	Gitterordnung (meist $m = 1$)
d	(Strichzahl des Gitters) $^{-1}$ = Gitterkonstante
θ_i, θ_d	Ein- und Ausfallswinkel. Es gilt $\sin(\theta_i) + \sin(\theta_d) = \frac{m\lambda}{d}$
- Konventionen zur Schreibweise

Schreibweise	Darstellungsraum des elektrischen Feldes
$e(x, t)$	Orts- und Zeitdarstellung
$E(x, \omega)$	Orts- und Frequenzdarstellung
$\bar{e}(k, t)$	Impuls- und Zeitdarstellung
$\bar{E}(k, \omega)$	Impuls- und Frequenzdarstellung
- $\Omega = \omega - \bar{\omega}$ ist die Abweichung von der Zentralfrequenz $\bar{\omega}$

Definitionen zur Fouriertransformation (FFT):

$$F(k, \omega) = (2\pi)^{-1} \int \int f(x, t) e^{-i(kx - \omega t)} dx dt$$

$$f(x, t) = (2\pi)^{-1} \int \int F(k, \omega) e^{i(kx - \omega t)} dk d\omega$$

Zusätzlich werden die mathematischen Beschreibungen der im Pulsformungsaufbau befindlichen optischen Komponenten benötigt:

- Maske
 $m(x)$
- örtliche FFT der Maske
 $M(k)$

- Linse. Bei der Linse sind die elektrischen Felder in den Brennpunkten über eine Fouriertransformation verknüpft :
 $E(x, z = -f) \doteq E(x) \rightarrow E(x, z = f) = \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda f}} \bar{E}\left(\frac{2\pi x}{\lambda f}\right)$
- freie Propagation durch Luft wird durch das Fresnel-Integral berechnet:
 $\bar{E}(k, z) = \bar{E}(k, z_0) \exp\left[-i \frac{(z - z_0) \lambda k^2}{4\pi}\right]$
- Gitter [57]
 $E(x, \omega) = \sqrt{\beta} E_{in}(\beta x, \Omega) \exp(i\gamma \Omega x)$
- Inverses Gitter (d.h. antiparallel zum ersten ausgerichtet)
 $E(x, \omega) = \sqrt{\frac{1}{\beta}} E_{in}\left(\frac{x}{\beta}, \omega\right) \exp\left(\frac{i\gamma \Omega x}{\beta}\right)$

wobei $\beta = \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_d}$; $\gamma = \frac{2\pi}{\bar{\omega} d \cos \theta_d}$

Nimmt man an, daß die Skala für die zeitliche Variation der Einhüllenden $e_{in}(x, t)$ viel größer ist als ein optischer Zyklus $2\pi/\bar{\omega}$ (für 100 fs-Pulse mit etwa 38 Oszillationen in der Einhüllenden ist dieser Ansatz gerechtfertigt), läßt sich der Eingangspuls sehr allgemein folgendermaßen formulieren:

$$\hat{e}_{in}(x, t) = e_{in}(x, t) \exp(i\bar{\omega} t) \quad (1.10)$$

Dieser Puls trifft nun auf das erste Gitter. Dessen Wirkung auf den Puls berechnet man mit dem obigen Gitter-Propagator $E(x, \omega) = \sqrt{\beta} E_{in}(\beta x, \Omega) \exp(i\gamma \Omega x)$. Dazu berechnet man zunächst die zeitliche Fouriertransformation des Pulses. Analog verfährt man mathematisch auch mit den anderen optischen Komponenten des 4-f-Aufbaus, die der Puls durchläuft und erhält als Endresultat

$$e_{out}(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\gamma \lambda f} \exp(i\bar{\omega} t) \int dt' e_{in}[\underbrace{(x + \beta t'/\gamma)}_{\text{Kopplung}}, t - t'] M(-2\pi t'/\gamma \lambda f) \quad (1.11)$$

Dieses Ergebnis besteht aus einem linearen Funktional, der Integration. Der geformte Puls ist demnach – wie in der Einleitung zu diesem Kapitel beschrieben – aus dem Eingangspuls in einer linearen Weise zu berechnen. Die Gesamtantwort des Pulsformers auf eine Folge von identischen Eingangspulsen ist die Summe der einzelnen Antworten, von denen jede einem bestimmten Eingangspuls zugeordnet werden kann.

Der mit „Kopplung“ bezeichnete Term der Gleichung koppelt die zeitliche Form des Pulses mit dem Strahlprofil. Im nächsten Abschnitt soll dieser Effekt besprochen werden.

1.3.1 Die Kopplung von Ort und Zeit

Das Endresultat (Gleichung 1.11) läßt sich nicht auftrennen in einen nur von räumlichen und einen nur von zeitlichen Variablen abhängigen Teil. Orts- und Zeitverhalten sind über den Parameter $\frac{\beta}{\gamma} = \frac{cd \cos(\theta_i)}{\lambda} = \frac{c}{\lambda D}$ gekoppelt, und somit ist der Wert dieser Kopplung im wesentlichen bestimmt durch die experimentelle Größe $D = \frac{1}{d \cos(\theta_i)}$, die der Dispersion der Gitter entspricht.

Eine Diskretisierung des Integrals ermöglicht es, ein Verständnis zum Ursprung der Kopplung zu liefern. Statt des Integrals erhält man eine Summe über t' . Es genügt, die ersten 2 Summenglieder $t' = 1, 2$ zu betrachten:

$$e_{in}(-x - 1\beta/\gamma, t - 1)M(t' = 1) + e_{in}(-x - 2\beta/\gamma, t - 2)M(t' = 2)$$

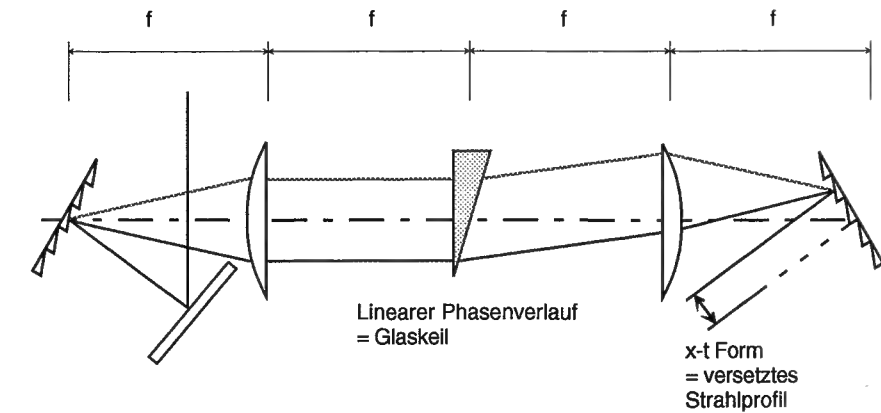
Man bemerkt, daß der Ausgangspuls durch eine mit $M(t)$ gewichtete Integration über die Ort-Zeit Struktur des Eingangspulses $e_{in}(x, t)$ entsteht. Dabei trägt der Eingangspuls erst nach Gewichtung mit der SLM-Funktion M zum Ausgangspuls bei. M gewichtet sowohl die Orts- als auch die Zeitabhängigkeit des Eingangspulses. Das führt dazu, daß weder die Zeit- noch die x-Abhängigkeit des geformten Pulses mit der Zeit- bzw. x-Abhängigkeit des Eingangspulses übereinstimmt. Aus dem Eingangspuls entsteht ein ganz neu geformter Puls mit komplizierter Orts(x)- und Zeit(t)-Modulation.

Ein anschaulicher Erklärungsversuch dieser Kopplung von Ort und Zeit in jeder Pulsformung soll mit Abb. 1.4 gegeben werden. Der SLM mit aufgeprägter Phasenfunktion wird ersetzt durch ein Glasstück, welches auf einer Seite entsprechend dem Verlauf der angelegten Phasenfunktion geschliffen ist. Diesem anschaulichen Bild liegt die Annahme zugrunde, daß die Dicke des Glases die Größe der Phasenverzögerung von Licht festlegt. Im folgenden denke man sich das auf das Glas einfallende Spektrum in seine spektralen Komponenten zerlegt. Jede dieser Frequenzkomponenten hat einen endlichen Durchmesser und „sieht“ Bereiche unterschiedlicher optischer Dicke. Dadurch werden Teile des Strahlprofils einer Frequenzkomponente in ganz unterschiedliche Richtungen gebrochen. Mithin wird jede Frequenzkomponente nicht nur verzögert, sondern es wird auch deren Strahlprofil verformt (Abb. 1.5). Diese Modulation der einzelnen Frequenzkomponenten in Ort (durch Streuung) und Zeit (durch Verzögerung) überträgt sich dann durch die Fouriertransformation auf den Ausgangspuls.

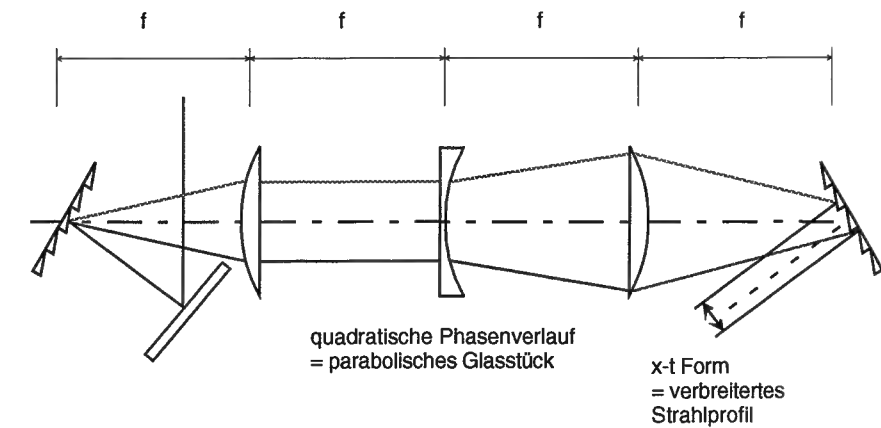
Es stellt sich nun die Frage, ob es denn überhaupt noch möglich ist, allein auf den zeitlichen Verlauf der Einhüllenden eines Pulses Einfluß zu nehmen, ohne dabei das Strahlprofil zu verändern. Dazu betrachte man folgende zwei Grenzfälle:

1. $\beta/\gamma \rightarrow \infty$:

Dieser Grenzfall führt zu einer Pulsformung nur im Ort, denn im Integral der Gleichung 1.11 werden im wesentlichen innerhalb eines sehr kleinen Zeitfensters schon alle $E_{in}(x)$ verändert. Für größere t' verschwindet das Integral, da das Strahlprofil von E_{in} nur eine endliche Ausdehnung hat. Dieser Grenzfall entspricht dem Ersetzen der Gitter durch Spiegel. An dem SLM liegt dann nicht das Spektrum des Pulses,



(a) Lineare Phasenfunktion = Glaskeil



(b) Parabolische Phasenfunktion = Glas mit einer parabolischen Oberfläche

Abbildung 1.4: Ersatzbilder zur Verdeutlichung der Kopplung zwischen zeitlicher Modulation des Pulses und Veränderung seines Strahlprofils. (a) führt zu einem Versatz des Strahlprofils. (b) führt zu einem verbreiterten Strahlprofil und räumlichen Chirp.

sondern einfach dessen Strahlprofil an. Die Antwort des Pulsformers auf einen in Ort und Zeit separierbaren Eingangspuls $E_{in}(x, t) = f_{in}(x)h_{in}(t)$ ist ein separierbarer Puls, dessen Strahlprofil (ortsabhängiger Teil) moduliert ist. Um das einzusehen setze man diesen separierten Ansatz in Gleichung 1.11 ein und substituiere den Integrationsparameter t mit Hilfe von $x = \beta/\gamma t$:

$$e_{out}(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\beta\gamma f} \exp(i\omega t) h_{in}(t) \int dx' f_{in}(-(x - x')) M(2\pi x'/\beta\lambda f) \quad (1.12)$$

Nur $f_{in}(x)$ tritt im Integral auf, wie behauptet.

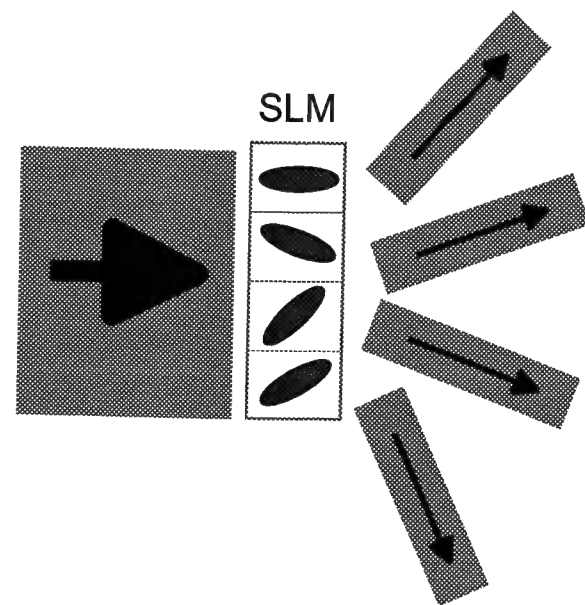


Abbildung 1.5: Jede einzelne Frequenzkomponente „sieht“ Bereiche des SLM mit unterschiedlicher optischer Beschaffenheit. Dadurch kommt es nicht nur zur gewünschten Verzögerung jeder einzelnen Frequenzkomponente, sondern auch zu einer Verformung ihres Strahlprofils.

2. $\beta/\gamma \rightarrow 0$.

Bei diesem Grenzfall hochdispersiver Gitter ($D \rightarrow \infty$) wird nur das zeitliche Profil $h_{in}(t)$ moduliert. Es entspricht dem Fall unendlicher Dispersion D , in dem nur noch eine einzige spektrale Komponente (unendlich kleiner spektraler Breite) auf den Modulator trifft

$$e_{out}(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\beta\gamma f} \exp(i\omega t) f_{in}(-x) \int dt' h_{in}((t - t')) M(-2\pi t'/\gamma\lambda f) \quad (1.13)$$

Führt man nun die Pulsdauer $\tau_{in} = \max\{t - t'\}$ und die kleinste örtliche Modulation des Eingangspulses χ_{in} ein mit der Annahme, daß $\chi_{in} \gg \tau_{in}\beta/\gamma$ (siehe Fußnote⁴), so kann im Integral das t' im Ortsargument von E_{in} vernachlässigt werden, denn $E(x + \beta/\gamma t) \approx E(x + \beta/\gamma t')$ für alle $t' \in [t - \tau_{in}, t + \tau_{in}]$ aufgrund der gemachten Annahme. In der Realität liegt man also dem Grenzfall der reinen Zeitmodulation ($\beta/\gamma \rightarrow 0$) näher, hat jedoch noch eine schwache Kopplung zwischen Raum und Zeit. Man erhält demnach aus Formel 1.11

$$e_{out}(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\gamma\lambda f} \exp(i\omega t) \int dt' e_{in}[-\underbrace{(x + \beta t/\gamma)}_{\text{Kopplung}}, t - t'] \cdot M(-2\pi t'/\gamma\lambda f) \quad (1.14)$$

In dem hier betrachteten realistischen Grenzfall entsteht der geformte Puls ebenfalls durch Integration über den Eingangspuls, gewichtet mit der SLM-Funktion M . Diese gewichtet

⁴dies ist eine berechnete Annahme, denn typischerweise ist $\beta/\gamma \approx 0,2$ mm/ps. Bei einer Pulsdauer von 100 fs dürfte sich das Strahlprofil demnach über einen Bereich von 0,02 mm nicht merklich ändern.

jetzt jedoch nur die Zeitabhängigkeit des Eingangspulses $e_{in}(t)$, die Ortsabhängigkeit $e_{in}(x)$ des Eingangspulses überträgt sich direkt auf den Ausgangspuls. Hier liegt der Unterschied zur Gleichung 1.11, und er läßt sich am deutlichsten erkennen, wenn man die x-Abhängigkeit des geformten Pulses zu einem festen Zeitpunkt $n \cdot t_0$ betrachtet. Dann gilt $e(x, n \cdot t_0) \propto \int dt' e_{in}[-(x + \beta n \cdot t_0), n \cdot t_0 - t'] M(t')$. Zur Interpretation dieser Terme denke man sich die Zeit diskretisiert $t_n = n \cdot t_0$, so daß sich das Ort-Zeit-Profil des Eingangspulses aus Ortsscheiben der Breite t_0 aufgebaut darstellt (siehe Abb. 1.6). Die raum-zeitliche Einhüllende des Ausgangspulses ergibt sich dann durch Verschieben der Ortsscheiben in x-Richtung um den Betrag $x = \beta \cdot t_0$, wobei die Verschiebung linear mit der Zeit (z-Richtung) anwächst. Zusätzlich wird jede Scheibe zeitlich moduliert, das Ortsprofil jeder Scheibe jedoch bleibt erhalten. Anschaulich ist der Puls zeitlich moduliert, wobei jedoch diese Modulationsstruktur gegen die Ausbreitungsrichtung (Zeitachse) innerhalb der x-z-Ebene um den Winkel $-\beta/\gamma$ verkippt ist.

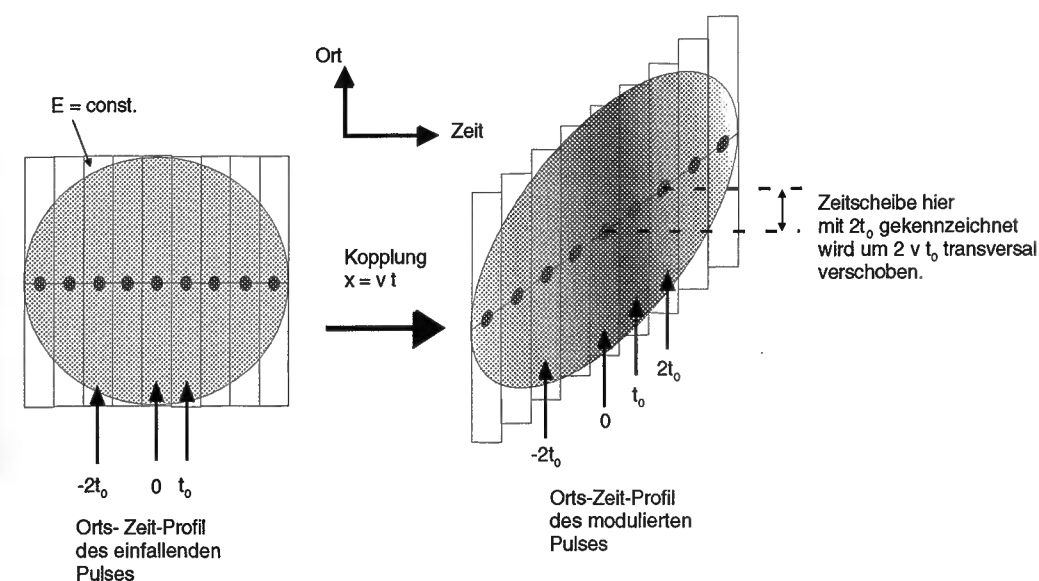


Abbildung 1.6: Schematische Darstellung, wie sich das Ort-Zeit-Profil des geformten Pulses im Fall schwacher Kopplung aus dem des Eingangspulses im Fall der diskreten Pulsformung ergibt.

Der diskrete Fall stellt eine Vereinfachung des allgemeinen dar, in dem ja die x-Abhängigkeit des geformten Pulses nicht direkt im Zusammenhang steht mit dem Eingangspuls (siehe Diskussion zur Gl. 1.11).

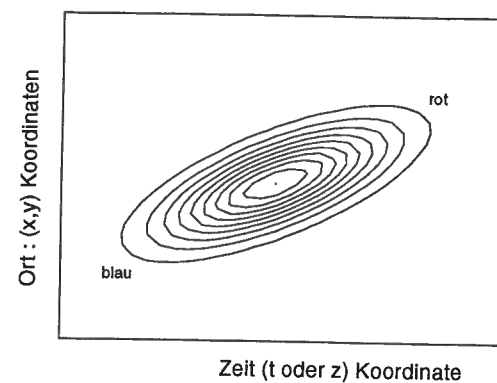
Um ein intuitives Verständnis der Gleichung 1.14 zu bekommen, setze man wiederum den Eingangspuls als separierbar an, $E_{in}(x, t) = f_{in}(x) h_{in}(t)$. Man erhält:

$$e_{out}(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\beta\gamma f} \exp(i\omega t) \underbrace{f_{in}(-(x + \beta/\gamma t))}_{\text{Verkipfung}} \int dt' \underbrace{h_{in}((t - t')) M(-2\pi t'/\gamma\lambda f)}_{\text{Modulierte Zeitstruktur}} \quad (1.15)$$

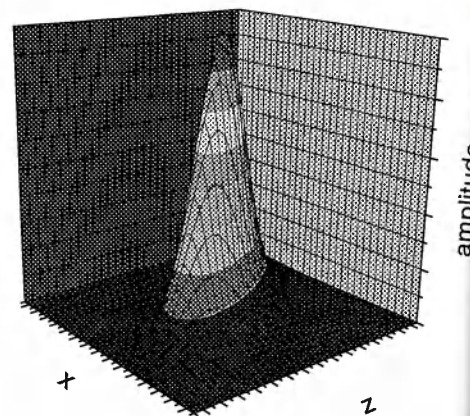
Mit dem erworbenen Verständnis ist es nun möglich, ein realistisches Beispiel zu behandeln.

Dazu stelle man sich vor, an den SLM sei eine quadratische Phasenfunktion angelegt (siehe Abb. 1.4). Ein mit parabelförmiger Phase modulierter Puls besitzt einen linearen Chirp (siehe Kap. 1.1). Man nehme an, die niederfrequenten Anteile des Spektrums kämen deshalb früher im Puls als die hochfrequenten. Die Pulsdauer wird dadurch zusätzlich verbreitert⁵. Nimmt man weiter an, der Eingangspuls werde durch eine Gaußfunktion in der Zeit und im Strahlprofil beschrieben, so erhält man aufgrund der Pulsdauerverbreiterung eine in der z- Richtung gestreckte Ellipse. Schließlich beachte man noch die Orts - Zeit Kopplung, die bei jedem Pulsformungsprozeß im Frequenzraum auftritt (siehe Gleichung 1.15). Dazu muß man die Ellipse innerhalb der x-z-Ebene um den Winkel $\frac{\beta}{\gamma}$ aus der z-Achse herausdrehen.

Die niederfrequenten Anteile des Spektrums erscheinen zu früheren Zeiten und zusätzlich nur auf einer Seite des Strahlprofils (Analoges gilt für die hochfrequenten Anteile). Man erhält einen räumlich und zeitlich „gechirpten“ Puls (siehe Abb. 1.7).



(a) Puls Contour-Plot des Pulses



(b) 3 dimensionale Darstellung eines Pulses

Abbildung 1.7: Die Einhüllende eines mit einer parabolischen Phasenfunktion modulierten Laserpulses $E(x, t)$ nach theoretischer Rechnung (adaptiert von Wefers et al. [26])

⁵Ein quadratischer Phasenverlauf ist auch möglich durch Verschieben eines Gitters im 4-f Aufbau.

1.4 Pulsformung bei diskreter Filterung

Im Experiment wurde zur Filterung des Spektrums eine Flüssigkristallmaske mit 128 Streifen verwendet. Die optischen Eigenschaften jedes Streifens können extern vorgegeben werden (siehe dazu Kapitel 2.3, [31]). Zwischen den Streifen befinden sich transmittierende, nicht ansteuerbare Streifen der Breite w_g . Der mathematische Formalismus für einen derartigen Pulsmodulator wird im folgenden vorgestellt. Dabei gelten folgende Definitionen (die Definition des Koordinatensystems erfolgt wie unter Kap. 1.3)

(x_0, z_0)	Position des Zentrums der Maske relativ zum Zentrum der Fourierebene $(0, 0)$
N	Anzahl der Streifen auf der Maske ($= 128$)
n	Indiziert die Streifen: $n = -N/2 \dots N/2$ $n = 0$ ist das zentrale Pixel.
w	Streifenbreite + gap-Breite ($w = w_s + w_g = 97 \mu\text{m} + 3 \mu\text{m} = 100 \mu\text{m}$)
L	Breite der Flüssigkristallschicht $= N \cdot w = 1,28\text{cm}$
r	Streifenbreite/(Streifenbreite+gap Breite) $r = \frac{w_s}{w_s + w_g} = 97/100$
$\text{rect}(x) =$	$\begin{cases} 1 & x \leq 1/2 \\ 0 & x > 1/2 \end{cases}$
B_g	Filterfunktion der Lücke ($=1$)
B_n	Filterfunktion der Streifen.
A_n	$\text{FFT}\{B_n\}$: Fouriertransformation
f	Brennweite der Linsen
λ	Zentralwellenlänge des Pulses
d	$(\text{Strichzahl des Gitters})^{-1} = \text{Gitterkonstante}$
a_0	Strahldurchmesser des Eingangspulses
a	Fokusbereich der spektralen Komponenten $a = \frac{\gamma f \lambda}{\pi a_0}$
θ_i, θ_d	Ein- und Ausfallwinkel. Es gilt $\sin(\theta_i) + \sin(\theta_d) = \frac{m \lambda}{d}$

Den gesamten SLM beschreibt man mathematisch durch eine komplexwertige Stufenfunktion (siehe Abb. 1.8). Sie besteht aus Stufen der Streifenbreite w_s , zentriert um die Orte $x_n = n \cdot w$, und Stufen der Breite w_g (gaps), zentriert um $x_n = (n + 1/2)w$. Jeder Streifen kann die an ihm anliegende Frequenzkomponente um eine Phase verzögern oder abschwächen. Die Wechselwirkung ist linear; somit läßt sich jeder Streifen n durch ein lineares Element $B_n = |B_n|e^{i\phi_n}$ beschreiben. Die Blindbereiche sind nicht ansteuerbar und teildurchlässig und besitzen deshalb eine gemeinsame mathematische Beschreibung durch $B_g = |B_g|$. Die Mitte des gesamten Streifenmusters wird mit x_0 bezeichnet. Man kann also den SLM darstellen durch eine Summe von Faltungen dargestellt, wobei die δ -Funktionen die Aufgabe der Zentrierung übernehmen und die rect -Funktion eine Rechteckfunktion

(= Stufe) definiert mit der Stufenbreite, die im Nenner des Arguments angegeben ist:

$$m(x) = \underbrace{\delta(x - x_0)}_{\text{Zentrum bei } x_0} * \sum_{-N/2}^{N/2} \left\{ \underbrace{[B_n \delta(x - nw)] * \text{rect}\left(\frac{x}{rw}\right)}_{\text{Streifen der Breite } w_s=rw} + \underbrace{B_g \delta[x - (n + 1/2)w] * \text{rect}\left[\frac{x}{(1-r)w}\right]}_{\text{Gap der Breite } w_g=(1-r)w} \right\} \quad (1.16)$$

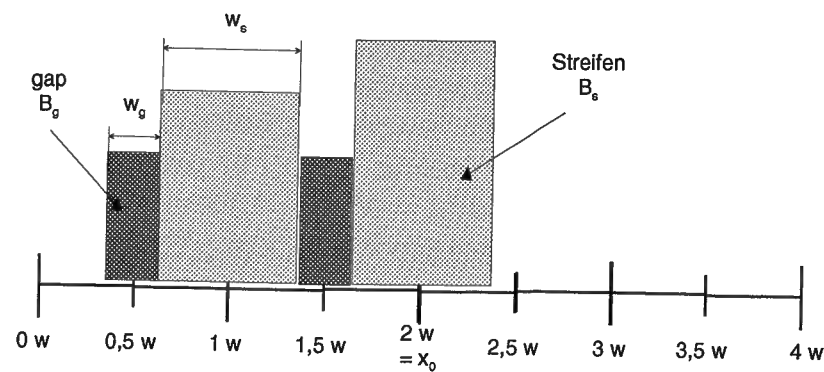


Abbildung 1.8: Veranschaulichung von Streifen und Gaps des SLM

Rechnet man nun die Fouriertransformation von 1.16 aus und setzt sie in die allgemeine Lösung 1.11 ein, so erhält man

$$e_{out}(x, t) \propto \exp(i\bar{\omega}t) \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left\{ c_n e_{in}(t + n\tau) \exp\left[-i\pi \frac{z_0 \lambda}{w^2} \left(\frac{n}{N}\right)^2\right] \exp\left[-\frac{(x - n\chi)^2}{a^2}\right] \times \underbrace{\exp\left[i2\pi \frac{z_0}{\delta f w} \left(\frac{n}{N}\right) x\right]}_{\text{Divergenz}} \right\} \quad (1.17)$$

Das ist das diskrete Endresultat mit

$$\gamma = \frac{2\pi}{\bar{\omega} d \cos(\theta_d)} \quad (1.18)$$

$$\delta = \frac{\cos(\theta_i)}{\cos(\theta_d)} \quad (1.19)$$

$$\tau = \frac{\gamma \lambda f}{Nw} = \frac{2\pi\alpha}{L} \quad (1.20)$$

$$\chi = \frac{\delta \lambda f}{Nw} \quad (1.21)$$

Nimmt man weiter an, das Zentrum des SLM sitze genau im Ursprung der Fourierebene $(x_0, z_0) = (0, 0)$ (idealer Aufbau), so vereinfacht sich das Ergebnis noch weiter zu

$$e_{out}(x, t) \propto \exp(i\bar{\omega}t) \sum_{n=-\infty}^{\infty} \underbrace{c_n e_{in}(t + n\tau)}_{\text{Linear}} \exp\left[-\frac{(x - n\chi)^2}{a^2}\right]_{x-z \text{ Form}} \quad (1.22)$$

$$\text{mit } c_n = \underbrace{\exp\left(i\frac{2\pi x_0 n}{Nw}\right)}_{\text{Phasenkopplung}} \underbrace{\exp\left[-\left(\frac{\pi a n}{Nw}\right)^2 / 2\right]}_{\text{Gauß}} \left\{ \underbrace{A_{rem(n, N)} \frac{\sin\left(\frac{r\pi n}{N}\right)}{\frac{\pi n}{N}}}_{\text{Sinc}} + \underbrace{\delta_{0, rem(n, N)} B_g (-1)^{n/N} \frac{\sin\left[\frac{(1-r)\pi n}{N}\right]}{\frac{\pi n}{N}}}_{T=0} \right\} \quad (1.23)$$

Die Koeffizienten A_n der Gleichung 1.23 sind komplexe Größen $A_n = a_n e^{i\phi_n}$, die die Amplitude und Phase des Pulses zu der Zeit $n \cdot \tau$ innerhalb der modulierten Pulsfolge festlegen. Diese Koeffizienten sind direkt über eine komplexe Fouriertransformation mit den Koeffizienten B_n verknüpft, die die Einstellung des SLM betreffen.

In den nun folgenden Abschnitten sollen die physikalischen Aussagen der Gleichung 1.22 beschrieben werden. Die Verschiebung des SLM aus seiner Idealposition hat Konsequenzen, die in Abschnitt 1.4.5 besprochen werden.

1.4.1 Lineare Struktur des modulierten Pulses

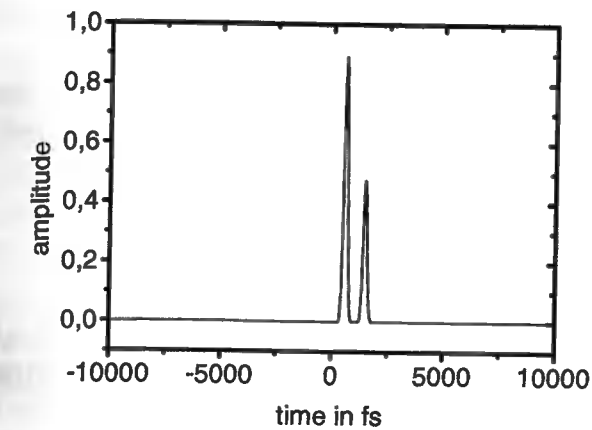
Die Linearität der Theorie (siehe Gl. 1.4) spiegelt sich in dem mit „linear“ gekennzeichneten Term der Gleichung 1.22 wieder. Betrachtet man die Struktur der in dieser Gleichung auftretenden Summe so zeigt sich, daß der Ausgangspuls eine lineare Superposition von Eingangspulsen (gewichtet mit komplexen Koeffizienten c_n) ist. Das impliziert, daß die kleinste zeitliche Struktur des geformten Pulses durch die zeitliche Breite des Eingangspulses gegeben ist. Diese Aussage gilt, solange man keine Energie aus der Mitte des Spektrums entnimmt, womit man ein Spektrum größerer Halbwertsbreite mit Hilfe der Amplitudenmaske künstlich erzeugen würde (siehe Kap. 3.2.5).

Weiterhin kann man der Summe entnehmen, daß der kleinste zeitliche Abstand zwischen zwei Summengliedern τ beträgt. Man stelle sich deshalb den geformten Puls in der Zeit wie einen Kamm vor, dessen Zinken die Breite des Eingangspulses und den Abstand τ voneinander besitzen.

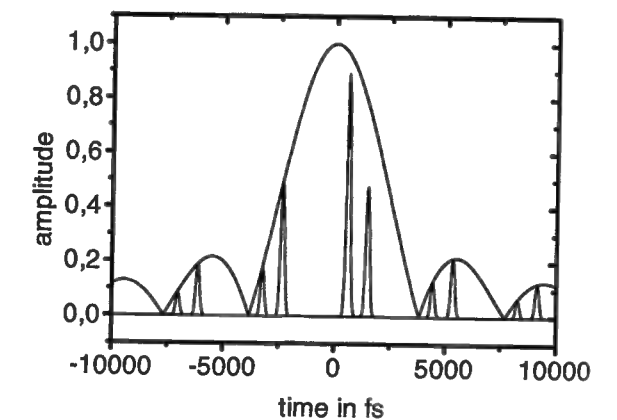
Interessant ist es jetzt, τ ins Verhältnis zur Pulsdauer zu setzen. Nach Definition ist $\tau = 2\pi\alpha/L$. Die Dispersion von Gitter und Linse des 4-f. Aufbaus, $\alpha = \frac{\partial x}{\partial \omega} \doteq L/\Delta\omega$, wird so gewählt, daß $\Delta\omega \approx 2\Delta\omega_{fwhm}$ erfüllt ist. Dann wird auf der Gesamtlänge L des SLM die doppelte Halbwertsbreite des Spektrums des Pulses (Δ_{fwhm}) abgebildet. Setzt man nun das so gewählte $\alpha = \frac{L}{2\Delta\omega_{fwhm}}$ in die Definition von τ ein, so ergibt sich eine Abschätzung

zu $\tau \approx t_{puls}/2$. Annäherungsweise ist τ also die halbe Pulsbreite des Eingangspulses. Für einen Puls der Dauer von $t_{puls} = 100$ fs erhält man so $\tau = 50$ fs. Somit können die Eingangspulse im geformten Puls zeitlich so kurz hintereinander folgen, daß sie effektiv miteinander interferieren können. Die Interferenz wird von der Phase der Koeffizienten c_n festgelegt.

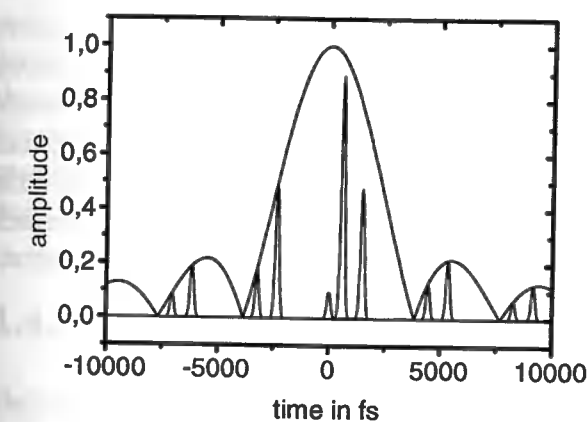
1.4.2 Weitere Strukturen des modulierten Pulses



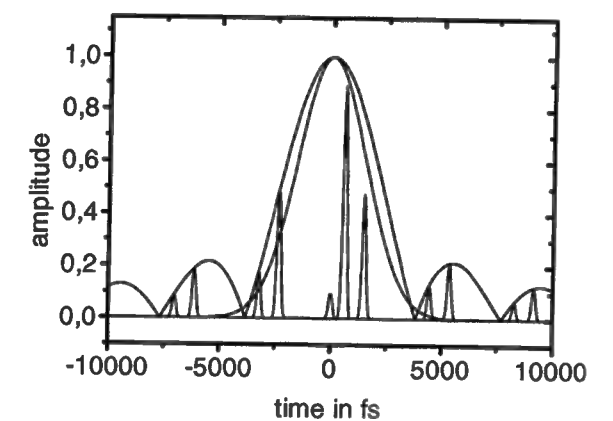
(a) Zeitliche Struktur einer gewünschten Pulsform



(b) Auswirkung der diskreten Streifen auf die Pulsform. „Sinc“-Modulation.



(c) „ $t=0$ “-Replica entsteht durch die Anteile des Spektrums, die von den Gaps unverzögert transmittiert werden



(d) Endlicher Fokus der spektralen Komponenten. „Gauß“-Modulation.

Abbildung 1.9: Die zeitliche Pulsform moduliert mit einem diskreten SLM nach theoretischen Überlegungen [26].

Die in Abb. 1.9 a gewünschte Pulsform ist infolge der diskreten Natur des SLM nicht exakt erzeugbar. Mathematisch ist dies in den Koeffizienten c_n von Gleichung 1.23 enthalten und soll nun diskutiert werden.

Der mit „Sinc“ gekennzeichnete Term (siehe Abb. 1.9 b)

Die in Gleichung 1.22 auftretende Summe erstreckt sich von $-\infty$ bis $+\infty$. Daher

könnte man erwarten, daß sich der Ausgangspuls bis in unendliche Zeiten erstrecken kann. Diesem Verhalten jedoch wirkt gerade die Gewichtung der Eingangspulse mit den Koeffizienten c_n entgegen. In der Gleichung für die Koeffizienten 1.23 tritt eine sinc-Funktion auf, die sehr schnell mit steigendem n (großen Zeiten) abfällt. Bereits das erste Nebenmaximum hat eine um den Faktor 10 geringere Amplitude.

Die Modulation des Ausgangspulses mit einer sinc-Funktion ist auf Beugungseffekte des Pulsspektrums an dem Streifenmuster des SLM zurückzuführen. Beugung am Spalt führt, wie bekannt, zu dem typischen sinc-Verlauf.

Wie groß ist jedoch das Zeitfenster, in dem man die Pulsformung kontrollieren kann?

Zunächst stellt man fest, daß die ersten Nullstellen der sinc-Funktion bei $n_{1/2} = \pm N/r$ liegen, also bei $t_{1/2} = \pm \tau N/r \approx \pm 5$ ps. Das Kontrollfenster selbst ist jedoch nur halb so groß und erstreckt sich von $-N\tau/2 \leq t < N\tau/2 \approx 5$ ps für 100 fs-Pulse und einen SLM mit 128 Streifen. Dies läßt sich anhand der Formel 1.23 folgendermaßen einsehen:

Experimentell können die $N = 128$ Filter B_n des SLM beliebig gewählt werden. Die Koeffizienten A_n sind die diskrete Fouriertransformation der B_n , somit sind auch nur N dieser Koeffizienten unter experimentellem Einfluß. Diese treten in der Gleichung für die c_n auf und legen wiederum nur N dieser Koeffizienten eindeutig fest. Somit ergibt sich die Dauer des längsten modulierbaren Pulses zu $N \cdot \tau = 5$ ps.

Nun bleibt die Frage offen, wie der geformte Puls außerhalb dieses Kontroll-Zeitfensters gestaltet ist. Die Antwort findet man wiederum in dem mit „sinc“ gekennzeichneten Term. Bestimmt werden die c_n durch $A_{rem(n,N)}$. Dabei ist $rem(n,N)$ der verbleibende Rest nach der Modulo-Division $n \div N$. Daraus folgt, daß Indexwerte mit $n > N$ immer wieder auf $n \in \{-\frac{N}{2} \dots \frac{N}{2}\}$ zurückgeführt werden, die wiederum experimentell eindeutig bestimmt sind (siehe oben). Somit ist die Pulsform außerhalb des 5 ps-Fensters einfach ein Abbild dieses Kontrollfensters, wobei dieses Replica eine geringere Amplitude besitzt, da die sinc-Funktion zu großen Zeiten (d.h. für große n) stark abfällt.

Der mit „T = 0“ gekennzeichnete Term (siehe Abb. 1.9 c)

Im zeitlichen Zentrum des geformten Pulses, als Zeitursprung ($t = 0$) definiert, befindet sich ein Abbild des Eingangspulses mit verringerter Amplitude. Dieses Abbild findet man auch außerhalb des Kontrollfensters jeweils zu Zeitpunkten $k \cdot N\tau$ ($k \in \mathbb{Z}$) aufgrund der Zurückspiegelung $\delta_{0,rem(n,N)}$. Die Intensität dieses Abbilds wird bestimmt durch das Verhältnis r (siehe Definitionen auf Seite 29) und die Transmission der Blindbereiche. Im Fall von transmittierenden Blindbereichen $B_g = 1$ geht das am SLM anliegende Spektrum an diesen Stellen unmoduliert durch. Da die Blindbereiche über das gesamte Spektrum verteilt sind, werden alle Frequenzkomponenten des Eingangspulses aufgrund des endlichen Fokaldurchmessers in diesem transmittierten Linienspektrum enthalten sein. Am zweiten Gitter interferieren die spektralen Komponenten dieses diskreten, jedoch vollständigen, Linienspektrums miteinander, und man erhält ein Abbild des Eingangsspektrums. Durch Verwendung von absorbierenden Blindbereichen kann man verhindern, daß der Eingangspuls durch nicht kontrollierbare Bereiche der Maske dringt.

Der mit „Gauß“ gekennzeichnete Term (siehe Abb. 1.9 d)

Dieser Term der Gleichung beschreibt die Abhängigkeit der modulierten Pulsform von der Fokussierung der spektralen Komponenten. Bei einem unendlich kleinen Fokaldurchmesser der spektralen Komponenten, d.h. $a \rightarrow 0$, gibt dieser Term keinen Beitrag, und die Diskussion der Gleichung 1.23 wäre mit den Punkten 1 und 2 abgeschlossen. Im Experiment jedoch haben die spektralen Komponenten in der Fourierebene einen Durchmesser, der gegenüber der Streifenbreite nicht zu vernachlässigen ist (typischerweise $80 \mu\text{m}$). Somit liefert dieser Term zusätzlich zur sinc-Funktion eine Amplitudenmodulation in Form einer Gauß-Funktion. Allerdings fällt die Gauß-Funktion für große Zeiten schneller als die sinc-Funktion ab. Ihre Halbwertsbreite ist $2\frac{wN}{\pi a} \approx 10$ ps.

Damit ergibt sich ein positiver Effekt: Die Replicas zu großen Zeiten werden komplett unterdrückt. Nur noch jene sind relevant, die direkt an das Kontrollfenster anschließen. Durch geeignete Wahl des Fokaldurchmessers der spektralen Komponenten ist es möglich, auch diese naheliegenden Replicas noch leicht zu unterdrücken, ohne dabei den geformten Puls zu beschneiden. Dieser Argumentation ist zu entnehmen, daß es einen optimalen Wert für die Fokusaussdehnung gibt. Dieser sollte etwas kleiner als die Streifenbreite gewählt werden ($80 \mu\text{m}$ bei $100 \mu\text{m}$ Streifenbreite).

Anschaulich kann man sich die Notwendigkeit dieses Terms folgendermaßen erklären [28]: Der SLM stellt eine Phasen- und Amplitudenstruktur im Raum dar, beschrieben durch eine komplexe Funktion $M(x)$. Die Struktur, die letztlich jedoch das Spektrum des Pulses moduliert, ist eine Filterfunktion in der Frequenzdomäne, die aufgrund der endlichen Fokalsgröße der spektralen Komponenten ein „verschwommenes“ Abbild der SLM-Struktur darstellt. In erster Näherung würde man eine Faltung des Gauß'schen Strahlprofils der Frequenzkomponenten mit der Ortsstruktur des SLM ansetzen⁶. Da die Fouriertransformation einer Gaußfunktion wiederum eine Gaußfunktion mit veränderter Halbwertsbreite ergibt, erscheint das Zeitfenster gaußmoduliert.

1.4.3 Räumliche und zeitliche Form des modulierten Pulses

Der in Gleichung 1.22 mit „x-z Form“ bezeichnete Term enthält die Pulsfrontverkipfung. In der allgemeinen Pulsformungs-Theorie (Kap. 1.3.1) wurde gezeigt, daß die Pulsfront von modulierten Pulsen gegen die Zeitachse verkippt ist. Die Modulationsstruktur der geformten Pulse in der Zeit weist keine kleinste Zeiteinheit auf. Das liegt in der Integralstruktur (siehe Gl. 1.15) begründet; demzufolge wird die kleinste Zeitstruktur von der kontinuierlichen SLM-Funktion bestimmt. Da diese jedoch eine kontinuierliche Funktion ist, ist eine beliebig kleine Modulation möglich (auch Modulationen von einer Femtosekunde oder geringer sind möglich).

Im Spezialfall der diskreten Theorie hingegen ist diese Superposition diskret. Die Eingangspulse können nur im Abstand τ zeitlich aufeinander folgen: es existiert eine kleinste zeitliche Modulation. In Abb. 1.10 ist ein solcher geformter Puls dargestellt. Die Pulsfrontverkipfung führt dazu, daß die Eingangspulse noch zusätzlich transversal zur Strahlrichtung verschoben erscheinen. Man bemerkt, daß das Strahlprofil der Eingangspulse

⁶Eine genaue mathematische Rechnung unter Beachtung nur des niedrigsten Terms der Entwicklung der Strahlprofilstreuung in Hermite-Polynome bestätigt diese Annahme

erhalten bleibt, ihr Zentrum jedoch innerhalb des geformten Ausgangspulses transversal verschoben sein kann. Dabei gilt: je größer die Verschiebung in der Zeit, desto größer die Verschiebung im Ort. Im Ort-Zeit Bild kann man demnach eine Steigung definieren. Sie wird bestimmt zu $\frac{\partial x}{\partial t} = \chi/\tau = -cd \cos(\theta_i)/\lambda \approx 0,2 \text{ mm/ps}$ und ist durch die Dispersion der verwendeten Gitter bestimmt (siehe auch Abschnitt 1.3.1).

Die maximale transversale Verschiebung⁷, in der die Eingangspulse als Bestandteile des Ausgangspulses auftreten können, berechnet sich zu: $\chi_{max} = N\tau \left| \frac{\partial x}{\partial t} \right| = \delta\lambda F/w \approx 1,6 \text{ mm}$. Hier ist allein die Tatsache eingegangen, daß der zeitlich längste modulierte Puls sich über eine Zeit $t \in [-N\tau/2; N\tau/2]$ erstreckt (Abschnitt 1.4.2). Die Replicas liegen im Kranz des Strahlprofils transversal verschoben um einen Betrag $> \chi/2$ und können mittels einer Lochblende ausgeblendet werden.

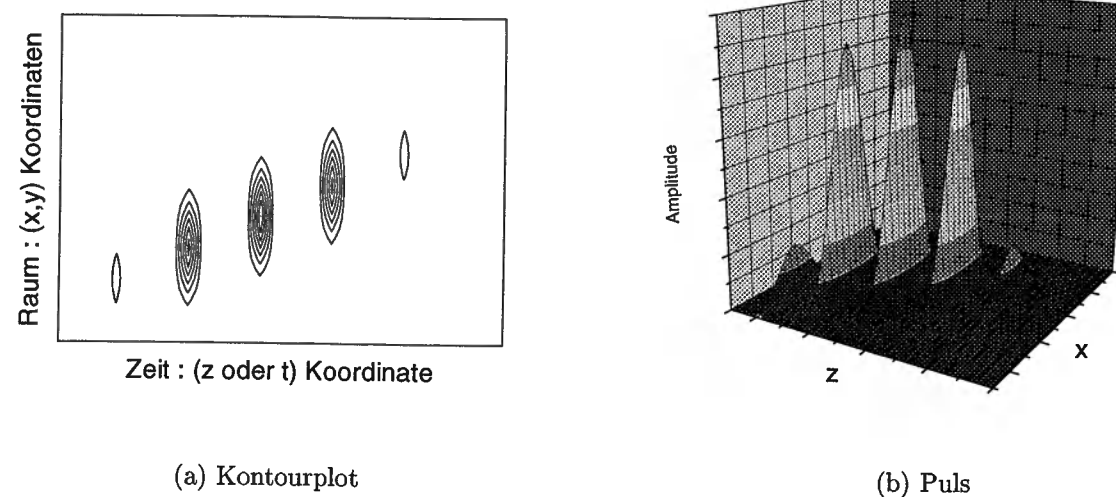


Abbildung 1.10: Einfluß der Raum-Zeit-Kopplung auf eine Pulssequenz [26].

1.4.4 Grenzen der Phasenkompensation mit einem SLM

Der in den vorangehenden Kapiteln theoretisch beschriebene SLM ist ein lineares, programmierbares Element. Deshalb eignet sich der Pulsformer besonders zur Kompensation von Phasenstörungen innerhalb eines Pulses. Typische Phasendistorsionen entstehen bei Propagation von Pulsen durch lineare optische Elemente (siehe Kap. 1.1). Es stellt sich nun die Frage, wo die Grenzen der Phasenkompensation mit einem SLM liegen.

Weil der SLM aus einer endlichen Anzahl von Streifen einer bestimmten Dicke besteht kann man nicht erwarten, beliebige Ordnungen im Phasenverlauf $\phi(\omega)$ des Pulses kompensieren zu können.

Jede Phasenfunktion ist mit dem SLM nur durch eine Stufenfunktion mit einer Stufenbreite von $97 \mu\text{m}$ ⁸ annäherbar. Es handelt sich also hierbei um ein Problem des Abtastens

⁷Dies ist gleichzeitig die Breite des Strahlprofils des modulierten Pulses. Replicas liegen noch weiter am Rande des Strahlprofils und können durch eine Apertur entfernt werden.

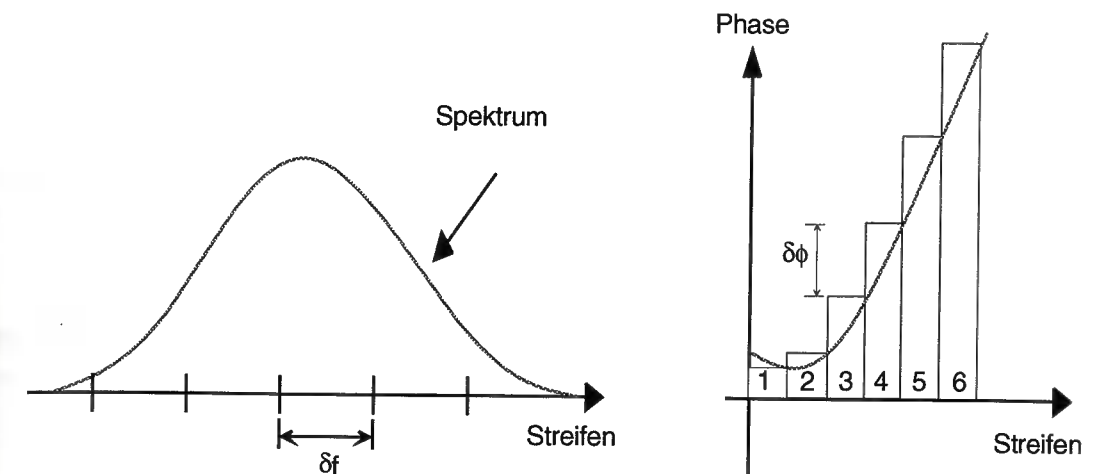


Abbildung 1.11: Zur Auswirkung der Segmentierung des SLM's auf die Kompensation von Phasendistorsionen. Man denke sich die Phasenfunktion und das anliegende Spektrum auf dem SLM diskretisiert in $97 \mu\text{m}$ -Stufen.

einer beliebigen Funktion durch Stützstellen. Das Nyquist-Theorem besagt, daß die Abtastfrequenz mindestens doppelt so groß sein muß wie die größte Frequenz, die in der abzutastenden Funktion auftritt. Erst dann wird die Funktion mindestens einmal pro Periode abgetastet.

Um dieses allgemeine Theorem auf die diskrete Pulsformung anzuwenden, denke man sich die auf der Maske einzustellende Phasenfunktion stufenweise approximiert (siehe Abb. 1.11). Das Nyquist-Theorem besagt nun, daß nur Phasenfunktionen mit einer maximalen Steigung $< \pi$ durch den SLM korrekt aufgeprägt werden können. Dann ist die diskrete Fouriertransformation in die Zeit auch fehlerfrei⁹.

$$\delta\phi \ll \pi, \quad (1.24)$$

wobei $\delta\phi$ die Phasenänderung zwischen zwei benachbarten Streifen darstellt. Es können folglich nur Phasenfunktionen $\phi(\omega)$ kompensiert werden, deren Steigung $\frac{d\phi}{d\omega} \ll \pi$ erfüllt. Eine konkrete Abschätzung bis zur 3. Ordnung wird jetzt berechnet.

Man diskretisiert das Spektrum des Pulses (Abb. 1.11). Die Zentralfrequenz liegt an der Mitte des SLM an und beträgt

$$\bar{\omega} = \frac{N}{2} \cdot \delta f \cdot 2\pi. \quad (1.25)$$

Die am Streifen n anliegende Frequenz ist

$$\omega = n \cdot \delta f \cdot 2\pi. \quad (1.26)$$

⁸entspricht der Breite eines Streifens

⁹Es ist bemerkenswert, daß in der allgemeinen Theorie das Nyquist-Theorem durch das Auftreten von Fouriertransformationen bereits enthalten ist. Verletzung der Bedingung 1.24 führt zu einem Anwachsen der Replica-Intensität, so daß Replica und der eigentlich geformte Puls dann gleiche Intensität besitzen. Das Nyquist Theorem ist nicht mehr erfüllt, und die Fouriertransformation liefert falsche Werte.

Somit ist die Grenze der Phasenkompensation durch eine diskrete Maske für eine

- lineare Phase: $\phi(\omega) = b_1(\omega - \bar{\omega})$.
Diskretisiert man diesen Ausdruck mit Gleichung 1.25 und 1.26, so lautet die Lösung $\phi(n) = \underbrace{2\pi\delta f b_1}_{\delta\phi}(n - N/2)$. Setzt man nun die Einschränkung 1.24 in diese Gleichung ein, so erhält man die maximal mögliche Verschiebung eines Pulses innerhalb des Zeitfensters. Diese errechnet sich bei einem 128 Streifen-SLM unter der Annahme, daß das Spektrum auf dem SLM $2 \cdot \omega_{fwhm}$ beträgt, zu

$$b_1^{max} = \frac{1}{2\delta f} \propto N t_{fwhm} \approx 5 \text{ ps} \quad (1.27)$$

- quadratische Phase: $\phi(\omega) = \frac{b_2}{2!}(\omega - \bar{\omega})^2 \xrightarrow{1.25, 1.26} \phi(n) = \underbrace{\frac{(2\pi\delta f)^2}{4}}_{\delta\phi} b_2(n - N/2)^2$

Mit der Bedingung 1.27 (man fordert $\frac{\partial\phi(\omega)}{\partial\omega} \leq \frac{1}{2\delta f}$) ergibt sich

$$b_2^{max} = \frac{1}{N\pi\delta f^2} \propto \frac{N}{\Delta f^2\pi} \propto N t_{fwhm}^2 \approx 4 \cdot 10^4 \text{ fs}^2 \quad (1.28)$$

- kubische Phase: Die Rechnung erfolgt analog wie in den anderen Fällen. Man erhält

$$b_3^{max} = \frac{1}{(N\pi)^2\delta f^3} \propto N t_{fwhm}^3 \approx 100 \text{ fs}^3 \quad (1.29)$$

Was kann man nun aus diesen oberen Grenzen für die Taylorkoeffizienten folgern?

Dazu ein Beispiel: Ein Fourierlimitierter Puls mit anfänglich 100 fs Dauer sei aufgrund eines linearen Chirps auf 400 fs verbreitert. Demnach besitzt der Puls eine rein quadratische Phasenfunktion der Form $\phi(\omega) = b\omega^2$. Die Frage ist nun, ob dieser Puls durch den SLM kompensierbar ist.

Um sie zu beantworten setze man den Chirp-Parameter b_2^{max} in die Gleichung der Pulsverbreiterung durch einen linearen Chirp ein (siehe dazu Tabelle 1.4.4). Diese lautet $t = t_{fwhm} \sqrt{1 + \frac{(4 \ln(2) b_2)^2}{t_{fwhm}^4}}$ und man erhält als maximale Pulsverbreiterung 1 ps (siehe Fußnoten^{10,11}). Somit ist der Puls tatsächlich rekomprimierbar bis zur Fourierbegrenzung. Ein linearer Chirp, der eine Pulsverbreiterung bis zu 1 ps hervorruft, kann im Grenzfall noch aufgehoben werden.

¹⁰Pulse einer Dauer von 20 fs lassen sich durch einen linearen Chirp maximal bis zu einer Pulsdauer von 200 fs verbreitern.

¹¹In die Rechnung eingegangen ist die Annahme eines 100 fs-Eingangspulses bei 600 nm und damit ein $\Delta f = 33 \text{ THz}$, außerdem $b_2 = b_2^{max}$.

Ordnung der Phase	100 fs	20 fs
linear	5 ps	1 ps
quadratisch	$4 \cdot 10^4 \text{ fs}^2$	$1.6 \cdot 10^3 \text{ fs}^2$
kubisch	100 fs^3	0.0125 fs^3

Tabelle 1.3: Vergleich der Kompensation für unterschiedliche Pulsdauern

Die obigen maximalen Werte für die Taylorkoeffizienten hängen alle linear von der Anzahl der Streifen des SLM ab. Nimmt man ein gleichbleibendes Pulsspektrum an, so können größere Pulsverbreiterungen durch Chirps von größerem Betrag kompensiert werden. Mit kürzeren Eingangspulsen verringern sich die maximalen Chirp-Parameter. Allerdings erlauben erst kürzere Eingangspulse modulierte Pulse mit besserer Zeitauflösung.

1.4.5 Abhängigkeit des geformten Pulses von der Maskenposition

Verschiebung des SLM aus seiner idealen Position¹² führt zu zusätzlichen Effekten im geformten Puls [6]. Eine Translation des SLM innerhalb der Fourierebene in x-Richtung um den Betrag x_0 führt zu einem festen Phasenverhalten (Phasenkopplung) zwischen den Eingangspulsen, die die „kammförmige“ Zeitstruktur des Ausgangspulses bilden. Die Phase wächst mit der Zeitverschiebung linear an. Die Steigung dieser Geraden ist proportional zu x_0 (siehe Term „Phasenkopplung“ in Gleichung 1.23).

Verschiebt man dagegen den SLM entlang der Ausbreitungsrichtung um einen Betrag z_0 , so führt dies zum Anwachsen der transversalen Komponenten der Wellenvektoren¹³ $k^{trans}(z_0) \propto z_0$ (siehe Term „Divergenz“ in Gleichung 1.17). Eine Vektoraddition des Wellenvektors in Richtung z und x ergibt somit die tatsächliche Ausbreitungsrichtung der einzelnen Frequenzkomponenten. Der modulierte Strahl ist divergent mit einem halben Öffnungswinkel ρ , der gegeben ist durch folgenden Ausdruck: $\tan(\rho) = \frac{\Delta k_x}{k_z} = \frac{z_0 \lambda}{\delta f w} \approx 200 \mu\text{rad}$. Diesen Wert erhält man bei einer Verschiebung von $z_0 = 5 \text{ mm}$.

¹²Die ideale Position wurde als (0,0) definiert und liegt dort, wo z-Achse und Fourierebene des 4-f Aufbaus sich schneiden. Siehe auch Abb. 1.3.

¹³Dieser Ausdruck beschreibt eine ebene Welle, die sich mit Wellenvektor k^{trans} senkrecht zur Ausbreitungsrichtung bewegt.

Kapitel 2

Experimentelle Realisierung

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels wird der Aufbau des Lasersystems skizziert, dessen Laserpulse mit einem 4-f-Aufbau (siehe Abschnitt B) moduliert wurden. In Abschnitt 2.3 wird die Funktionsweise und der Aufbau des Flüssigkristall-Spatial Light Modulators (SLM) der Firma Cambridge Research erläutert und dessen Charakterisierung vorgenommen. Ein wichtiger Bestandteil dieser Diplomarbeit lag in der Entwicklung von Programmen, die zu einer gewünschten Pulsform die zugehörige SLM-Einstellung berechnen und die Maske entsprechend ansteuern (Abschnitt 2.4).

2.1 Das Lasersystem

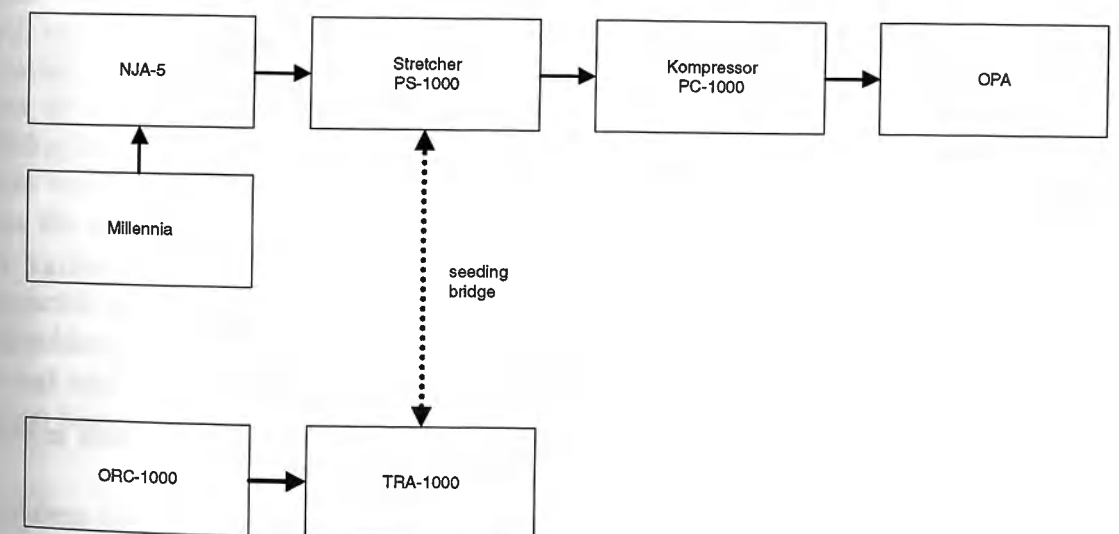


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau des Lasersystems.

In den Experimenten wurde ein kommerzielles Lasersystem der Firma Clark MXR eingesetzt (CPA-1000). Die Laserpulse werden mit einem Kerr-lens modengekoppelten Ti:Sa-Oszillator (NJA-5) erzeugt. Als Pumpquelle dient ein bei 2,5 W, $\lambda = 532$ nm betriebener

diodengepumpter Nd:YAG-Laser (Millennia) der Firma Spectra Physics. Die so erzeugten Pulse (3 nJ, 70 fs, 80 Mhz Repetitionsrate) werden in einem regenerativen Ti:Saphir-Verstärker (TRA-1000) bei einer Repetitionsrate von 1 kHz auf 1 mJ pro Puls verstärkt. Dazu müssen die Pulse zunächst in einem Stretcher (PS-1000) auf mehrere hundert Pikosekunden gestreckt werden. Als Pumpquelle (8 mJ, 532 nm) des Verstärker-Kristalls dient ein Blitzlampengepumpter Nd:YAG-Laser (ORC-1000). Nach der Verstärkung werden die Pulse mit einem Gitterkompressor auf 100 fs komprimiert. Mit diesen Pulsen wiederum wird ein optisch parametrischer Verstärker (OPA) betrieben, der nach einer Verdopplerstufe Laserpulse verfügbar macht, welche im sichtbaren Spektralbereich weit abstimmbar sind. Für die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurde der OPA im Bereich um 600 nm bei etwa 5-10 μ J Pulsenergie und 100 fs Pulsdauer betrieben.

2.2 4-f Aufbau mit einem SLM

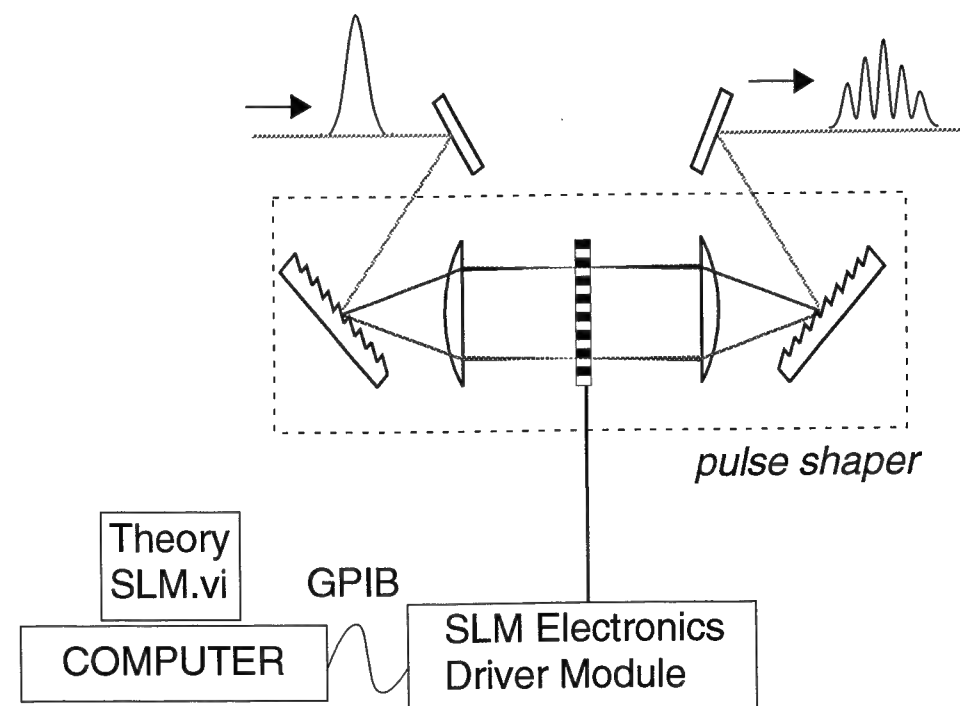


Abbildung 2.2: Der Aufbau des Pulsformers. Der segmentierte SLM befindet sich in einem 4-f Aufbau und moduliert das Eingangspulsspektrum [6, 19, 20, 23].

Die Funktionsweise des Modulator-Aufbaus wurde schon im Abschnitt 1.3 behandelt und soll im folgenden nur kurz skizziert werden.

Der Eingangspuls besitzt eine Zeitdauer von ≈ 100 fs bei einer Zentralwellenlänge von 600 nm. Das erste Gitter und die nachfolgende Zylinderlinse bilden das Spektrum auf den SLM ab. Dabei wurde darauf geachtet, kleine Winkel zwischen Ein- und Ausfallswinkel

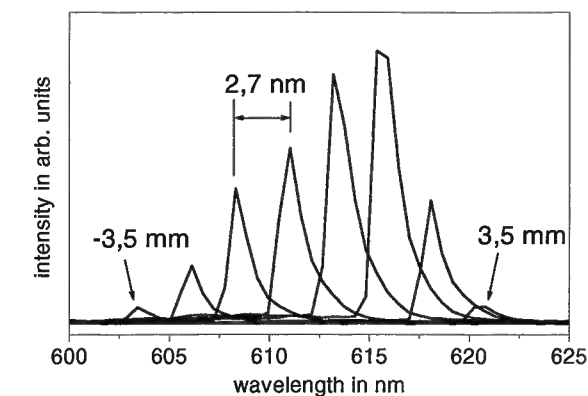


Abbildung 2.3: Das Spektrum als Funktion der transversalen Position innerhalb der Fourierebene. Es ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Ort und Frequenz mit der Dispersion von 0,37 mm/nm.

des Gitters einzuhalten (Littrow-Anordnung), um höhere Effizienz (erste Ordnung) zu gewährleisten. Der 4-f Aufbau entspricht einer Kopplung von zwei Spektrometern. Dabei verläuft der Strahlengang durch das zweite Spektrometer invers zum „Normalbetrieb“ und somit wird das Spektrum wieder zu einem Puls zusammengesetzt.

Aus dem Zeit-Bandbreite Produkt ergibt sich für Fourierlimitierte Pulse mit einer Pulsdauer von 100 fs eine spektrale Halbwertsbreite von etwa 7 nm. An dem SLM soll jedoch ein Bereich des Pulsspektrums anliegen, der entscheidend ist für die korrekte Modulation. Deshalb nimmt man bei der Dimensionierung großzügig ein Spektrum von etwa 40 nm an. Die zu erreichende Dispersion beträgt somit: Breite der aktiven SLM Fläche/Pulsspektrum = 1,28 cm / 40 nm = 0,32 mm/nm. Verwendet man eine Brennweite von $f = 150$ mm und Gitter mit einer Strichzahl von 1800 Linien/mm, so erreicht man die gewünschte lineare Dispersion $\frac{dx}{d\lambda} = \frac{mf}{d \cos \theta_d}$ (für die Definitionen der verwendeten Variablen siehe Abschnitt 1.4). Die Linearität der Dispersion konnte experimentell überprüft werden. Dazu wurde eine Glasfaser, die am anderen Ende an ein Spektrometer angeschlossen ist, in 1 mm-Schritten transversal durch die Fourierebene des 4-f-Aufbaus bewegt und somit das Spektrum an 7 verschiedenen Orten aufgenommen (siehe Abb. 2.3). Die so bestimmte Dispersion des Aufbaus beträgt gemessene 0,37 mm/nm.

Nachdem Gitter und Linse entsprechend der gewünschten Dispersion ausgewählt wurden, muß der Fokus der spektralen Komponenten in der Fourierebene des 4-f-Aufbaus an die Breite der Streifen des SLM (100 μ m) angepaßt werden. Dies geschieht durch geeignete Wahl des Eingangstrahldurchmessers a . Eine spektrale Komponente des Durchmessers a durchläuft das erste Gitter und wird dann mit der Linse auf einen Durchmesser a_0 fokussiert, der gegeben ist durch $a_0 = \left(\frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_d} \frac{f\lambda}{\pi} \right) \cdot \frac{1}{a}$. Der Fokussdurchmesser a_0 beträgt bei dem in dieser Diplomarbeit realisierten Aufbau 80 μ m, der Eingangstrahldurchmesser

a beträgt 3 mm (erzielt durch einen Teleskopaufbau). Die Wahl des Fokusbereichs mit 80 μm reduziert die Replicas, ohne das kontrollierbare Zeitfenster einzuschränken (zur Wahl des richtigen Strahldurchmessers siehe Abschnitt 1.4.2). Vermessen wurde der Strahldurchmesser mit Hilfe einer im Fokus befindlichen Kamera und Drehung der Zylinderlinse um die optische Achse um 90° .

Da nur die Breite der spektralen Komponenten eine Anpassung erfahren muß, kann der 4-f-Aufbau sowohl mit Zylinder- als auch mit sphärischer Optik aufgebaut werden. Damit jedoch OPA-Pulse (typischerweise 5 μJ) nicht zur Zerstörung der Dünnschichtpolarisatoren (Zerstörschwelle 28 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$, siehe Abschnitt 2.3.3.1) im SLM führen, wurden Zylinderlinsen gewählt. Dadurch konnte die Leistungsdichte auf dem SLM um einen Faktor 60 gegenüber einem Aufbau mit sphärischen Linsen herabgesetzt werden. Nachteilig wirkt sich jedoch die im Vergleich zu sphärischer Optik höhere chromatische Aberration aus.

Abschließend ist noch zu bemerken, daß bei Pulsen in der Größenordnung von 20 fs eine gezielte Pulsformung nur unter Verwendung von reflektiver Optik sinnvoll möglich ist [27, 29, 30].

Zur Justage des 4-f-Aufbaus sind folgende Punkte zu beachten (sie sind außerdem zum Teil in Kapitel B erwähnt). Der Eingangspuls wird als Fourierlimitiert angenommen.

1. Nulldispersion

In diesem Fall propagiert der Puls unverändert durch den Pulsformer. Dazu charakterisiert man den Ausgangspuls mit Hilfe der Frequency-Resolved-Optical-Gating (FROG)-Technik (siehe Abschnitt 3.1.2). Durch Translation der Gitter kann eine quadratische Phasenfunktion kompensiert werden; die Zeit-Halbachse des elliptischen SHG-FROG Bildes sollte bei diesem Prozess auf den kürzest möglichen Wert gebracht werden. Die dritte Ordnung der Phase zeigt sich durch ein unsymmetrisches SHG-FROG Bild bezüglich der Frequenzachse und kann durch Drehen der Gitter kompensiert werden. Ein korrekt justierter 4-f-Aufbau sollte spiegelsymmetrisch bezüglich der Fourierebene sein.

2. Gaußförmiges, rundes Ausgangsstrahlprofil ohne räumlichen Chirp

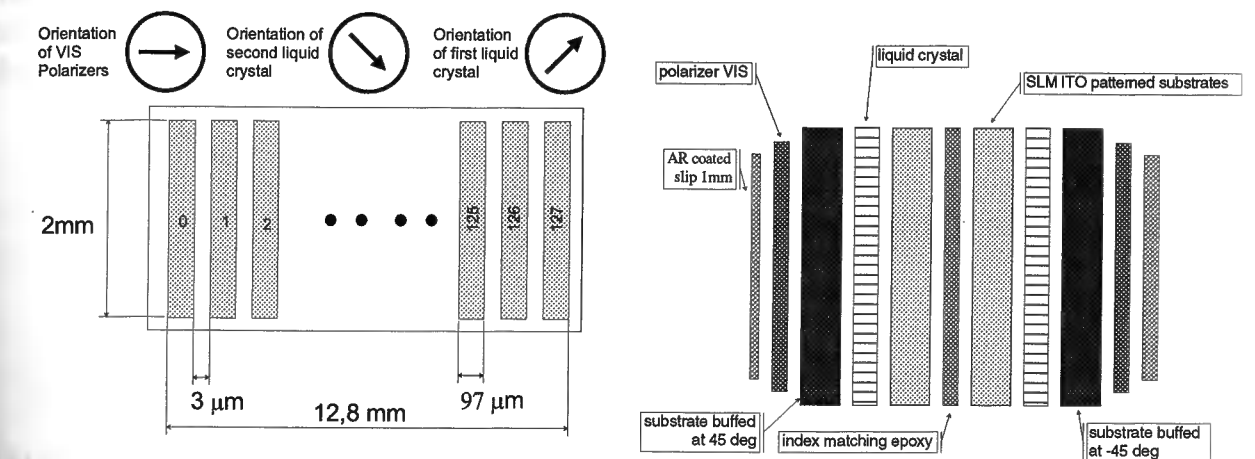
Dazu bildet man das Strahlprofil auf eine weit entfernte Fläche ab; dabei sollte kein räumlicher Chirp erkennbar sein. Ein eventuell auftretendes Spektrum in vertikaler Richtung kann durch Drehen der Zylinderlinsen um ihre optische Achse kompensiert werden. Ein räumlicher Chirp in horizontaler Richtung deutet darauf hin, daß der Aufbau sich nicht in Nulldispersion befindet.

Da die Pulse aus dem OPA meist nicht Fourierlimitiert sind, müssen sie mit Hilfe eines Prismenaufbaus vorkomprimiert werden. Dann sollte auch der Ausgangspuls nach der Justage des Pulsformers Fourierlimitiert sein.

2.3 Der Spatial Light Modulator

Im folgenden werden die einzelnen Komponenten des Spatial Light Modulators (SLM) beschrieben. Es wird erläutert wie diese Komponenten zusammenwirken, um eine effektive Formung des anliegenden Spektrums sowohl in Phase als auch in Amplitude zu ermöglichen (Abschnitt 2.3.1).

Messungen zur Charakterisierung des eingesetzten SLM wurden im Rahmen dieser Diplomarbeit ebenfalls durchgeführt. Unter anderem wurde die Reprogrammierzeit τ_p und die Zerstörschwelle der im SLM befindlichen Dünnschichtpolarisatoren gemessen (siehe Abschnitt 2.3.3.1). Diese beiden Eigenschaften wirken sich auf den Einsatzbereich des Modulators einschränkend aus.



(a) Frontansicht des SLM. Ebenfalls dargestellt ist die Orientierung von Polarisator- und Flüssigkristallschicht-1 und -2.

(b) Seitenansicht des SLM.

Abbildung 2.4: Die einzelnen optischen Komponenten des SLM.

Für die folgende Beschreibung gilt das Koordinatensystem, das im Theoriekapitel 1.3 eingeführt wurde. z ist demnach die Ausbreitungsrichtung.

Der SLM ist in Abb. 2.4 schematisch dargestellt. Er wurde von Wefers et al. [20] in Zusammenarbeit mit Cambridge Research [31] entwickelt und besteht aus zwei Polarisatoren (in x -Richtung orientiert) und zwei Substratschichten. Dabei besitzt eine der Substratschichten um -45° und die andere um $+45^\circ$ gegen die Horizontale (x -Richtung) orientierte Furchen, auf denen sich Flüssigkristalle in der Ruhelage befinden. In der Mitte befinden sich schließlich zwei leitende, transmittierende ITO (Indium-Tin-Oxide Legierung)-Schichten. Die zwei ITO-Schichten und die weiter außen befindlichen Substrate bilden zwei Plattenkondensatoren mit Flüssigkristalldielektrikum (im folgenden Flüssigkristallschicht-1 und Flüssigkristallschicht-2 genannt). Legt man zwischen der ITO-Schicht und dem Substrat eine Spannung an (0 – 10 V), so werden die Flüssigkristallmoleküle aus ihrer Ruhelage ($+45^\circ$) in Richtung der z -Achse gedreht. Aufgrund der doppelbrechenden Eigenschaft

dieser Moleküle ändert sich der Brechungsindex für Licht, welches in derselben Richtung ($+45^\circ$ gegen die x-Achse) linear polarisiert ist. Das führt zu einer Verzögerung um den Betrag $\phi(V) = \frac{\omega \cdot \ell \cdot \Delta n(V)}{c}$, wobei V die angelegte Spannung, n der außerordentliche Brechungsindex und ℓ die Dicke der Flüssigkristallschicht ist. Da die Ruhelage der Moleküle beider Flüssigkristallschichten gegeneinander senkrecht ausgerichtet ist, können zueinander senkrecht polarisierte Lichtkomponenten unabhängig voneinander verzögert werden. Die ITO-Schichten bestehen aus $97 \mu\text{m}$ breiten leitenden Streifen, zwischen denen sich nicht ansteuerbare, $3 \mu\text{m}$ breite Trennbereiche befinden (siehe Abb. 2.4 a). Innerhalb dieser Blindzonen verlaufen die Spannungszuleitungen zu den leitenden Streifen. Diese Spannungszuleitungen sind an das Gehäuse des SLM geführt und von dort mittels Flachbandkabeln mit der Ansteuerelektronik verbunden. Diese kommuniziert über eine GPIB-Schnittstelle mit einem Computer (siehe Kap. 2.4.3). Die ITO-Schichten besitzen zusätzlich einen 2 mm breiten Streifen, der für die Kalibrierung des SLM vorgesehen ist. Der Kalibrierstreifen der Flüssigkristallschicht-1(-2) wird im folgenden mit Kalibrierstreifen-1(-2) bezeichnet. Die beiden Kalibrierstreifen der Flüssigkristallschicht-1 und -2 sind mit ihren jeweiligen Nachbarstreifen (127. Streifen) über eine Lötbrücke verbunden.

2.3.1 Die Funktionsweise

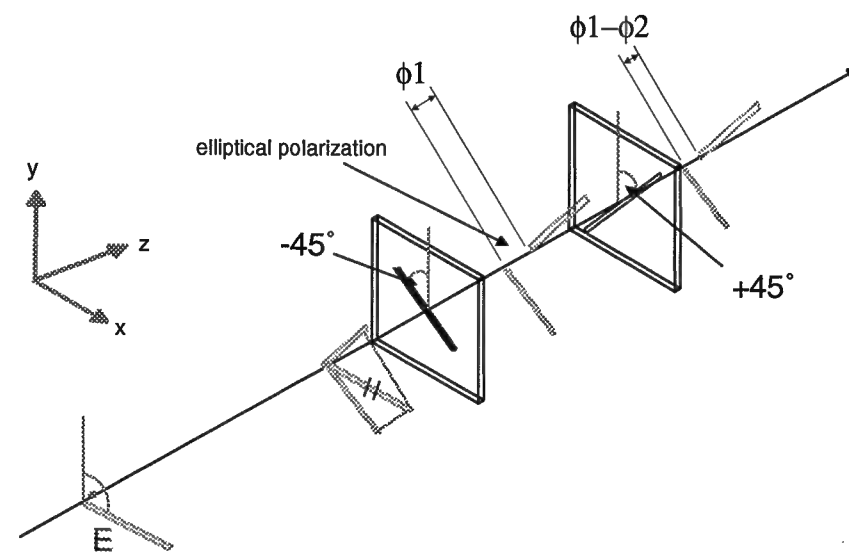


Abbildung 2.5: Wirkungsweise zweier senkrecht zueinander orientierter Flüssigkristallschichten (SLM ohne Polarisatoren).

Wie wirken nun die beiden Flüssigkristallschichten und die Polarisatoren so zusammen, daß eine getrennte Modulation von Phase und Amplitude möglich ist?

Dazu nehme man an, der Eingangspuls sei bereits in x-Richtung (horizontal) linear polarisiert. Der erste Polarisator hat in diesem Fall keine Wirkung. Der Einfachheit halber

denke man sich zunächst den zweiten Polarisator entfernt (siehe Abb. 2.5). Das horizontal polarisierte Licht zerlege man nun in zwei Komponenten, die parallel zu den Vorzugsrichtungen der beiden Flüssigkristallschichten polarisiert sind ($\pm 45^\circ$). Die erste Flüssigkristallschicht vermag nun die zu ihr parallele Lichtkomponente um einen Betrag ϕ_1 zu verzögern, ohne die senkrecht dazu liegende Komponente zu beeinflussen. Letztere wird erst durch die zweite Flüssigkristallschicht um den Betrag ϕ_2 verzögert. Somit ist das Licht nach den beiden Schichten im Fall $\phi_1 \neq \phi_2$ elliptisch und nur in dem Spezialfall $\phi_1 = \phi_2$ linear polarisiert. Die effektive Verzögerung¹ ist gegeben durch $\phi = \frac{\phi_1 + \phi_2}{2}$. Im Fall $\phi_1 = \phi_2$ ergibt sich also eine Verzögerung des Pulses um $\phi = \phi_1 = \phi_2$.

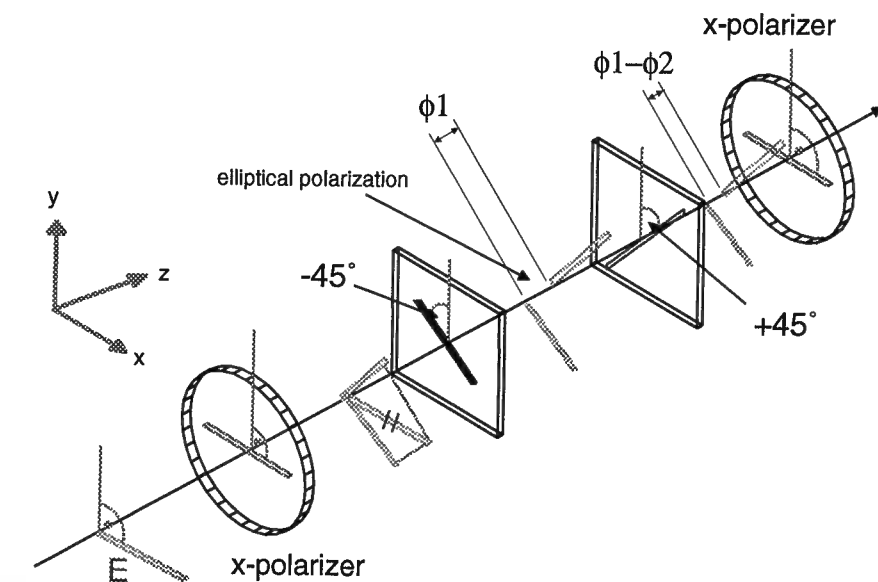


Abbildung 2.6: Vollständiger SLM: Transmissions- und Phasenmodulation sind voneinander unabhängig.

Im allgemeinen Fall jedoch ($\phi_1 \neq \phi_2$) ist das Ausgangslicht elliptisch polarisiert. Fügt man nun den zweiten Polarisator hinzu, so wird allein die x-polarisierte Komponente transmittiert gemäß $T = \cos^2 \left(\frac{\phi_1 - \phi_2}{2} \right)$ (siehe Abb. 2.6 und Abb. 2.8). Zusammengefaßt wird die Phasen- und Amplitudenmodulation durch folgende Ausdrücke beschrieben:

$$\phi(V_1, V_2) = \frac{\phi_1(V_1) + \phi_2(V_2)}{2}, \quad (2.1)$$

$$T(V_1, V_2) = \cos^2 \left\{ \frac{\phi_1(V_1) - \phi_2(V_2)}{2} \right\}. \quad (2.2)$$

¹Unter dieser Verzögerung versteht man die Phasenverzögerung der x-Komponente des Lichtes. Deshalb ergibt sich ein Faktor $\frac{1}{2}$ für die effektive Phasenverzögerung ϕ .

Diesen Ergebnissen kann man nun entnehmen, daß durch geeignete Wahl der Spannungen an den Flüssigkristallschichten für jeden der 128 Doppelstreifen einzeln die Transmission T und die Gesamtphasenverzögerung ϕ unabhängig voneinander eingestellt werden können. Zwei Betriebsarten des SLM sind von besonderem praktischen Interesse:

- **Phasenmaske, keine Absorptionsverluste**

In diesem Fall werden nur die einzelnen spektralen Komponenten des Pulses gegeneinander phasenverschoben. Man wähle die Spannungen V_1 und V_2 so, daß $\phi_1 = \phi_2$ gilt. Die Transmission des SLM wird für alle Streifen $T = 1$ (siehe Formel 2.2).

- **Amplitudenmaske, keine Phasenverzögerung**

In diesem Fall werden die einzelnen spektralen Komponenten des Pulses unterschiedlich stark absorbiert. Man wähle für diesen Fall die Spannungen V_1 und V_2 so, daß $\phi_1 = -\phi_2$. Die Phasenverzögerung des Pulses durch den SLM ist Null (siehe Formel 2.1).

2.3.2 Die Kennlinie des SLM

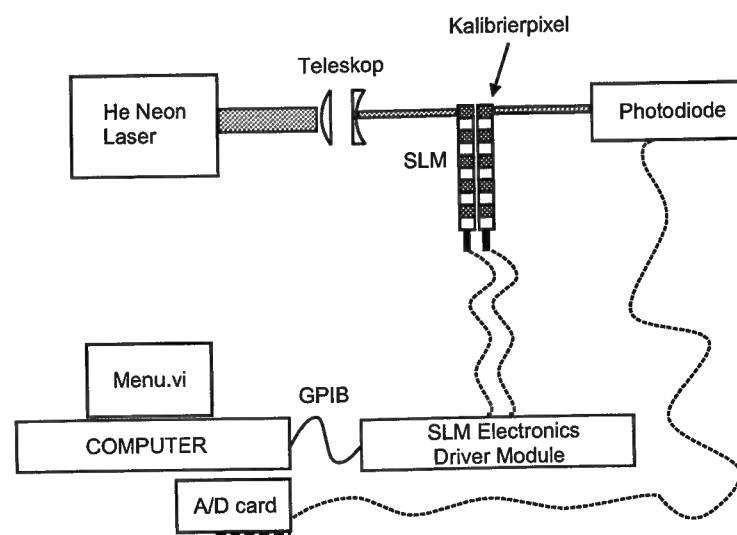


Abbildung 2.7: Der experimentelle Aufbau zur Bestimmung der Kennlinie $\phi(V)$.

Die Berechnung der Transmission und der Gesamt-Phasenverzögerung eines jeden Streifens gemäß Gleichungen 2.1, 2.2 ist nur möglich, wenn die Kalibrierungskurven $\phi_1(V_1)$ und $\phi_2(V_2)$ beider Flüssigkristallschichten bekannt ist. Wie im folgenden gezeigt wird, können diese Kalibrierungsdaten aus einer reinen Transmissionmessung (Abbildung 2.7) erhalten werden.

Nimmt man an, daß alle 127 Streifen dieselbe Schichtdicke ℓ und denselben Brechungsindex n wie der Kalibrierstreifen besitzen, so reicht es aus, die Eichkurven $\phi_1(V_1)$ nur für

letzteren zu bestimmen.

Die Transmission der SLM-Doppelstreifen in Abhängigkeit von der angelegten Spannung wurde mit Hilfe eines Helium-Neon Lasers bei 632.1 nm und einer Photodiode bestimmt. Der Durchmesser des Strahlprofils wurde auf die Breite des Kalibrierstreifens abgestimmt.

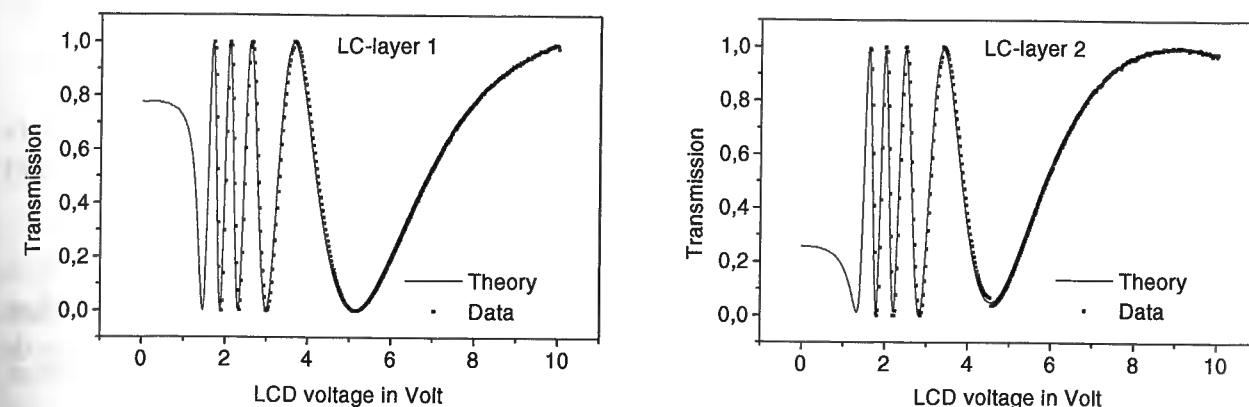


Abbildung 2.8: Messpunkte der Transmission T des Kalibrierstreifens in Abhängigkeit der angelegten Spannung. Die gefitteten Eichkurven $\phi_1(V_1)$ und $\phi_2(V_2)$ eingesetzt in Gleichung 2.2 liefern die durchgezogene Linie.

Ein im Rahmen dieser Diplomarbeit entwickeltes Computerprogramm stellt zunächst auf Kalibrierstreifen-1 die maximale Spannung ein (10 V) und läßt dann die Spannung am Kalibrierstreifen-2 von 0 bis 10 V in Schritten von 0,244 V anwachsen. Gleichzeitig liest das Programm über einen A/D-Wandler das Signal der Photodiode aus, welche die transmittierte Intensität des He-Ne Lasers mißt. Der gleiche Prozeß wird nun wiederholt, wobei diesmal jedoch die Spannung von Kalibrierstreifen-2 auf 10 V gesetzt und die Spannung von Kalibrierstreifen-1 mit ansteigender Rampe durchgeföhren wird. Man erhält so zwei Transmissionskurven

$$T(V_1, V_2 = 10 \text{ V}) = \cos^2 \left[\frac{\phi_1(V_1) - \text{const}_2}{2} \right] \quad (2.3)$$

$$T(V_1 = 10 \text{ V}, V_2) = \cos^2 \left[\frac{\text{const}_1 - \phi_2(V_2)}{2} \right], \quad (2.4)$$

wobei $\text{const}_1 = \phi_1(10 \text{ V})$ und $\text{const}_2 = \phi_2(10 \text{ V})$. Die entsprechenden Kurven sind in Abb. 2.8 dargestellt.

Es bleibt nun das mathematische Problem, die durch Gl. 2.3 beschriebenen Transmissionsdaten zu invertieren, um endgültig $\phi_{1,2}$ zu erhalten. Es existieren 4 mögliche Lösungen modulo 2π , also unendlich viele Lösungen:

$$\phi_i(V_i) - \text{const}_j = \pm 2 \arccos \left[\sqrt{T(V_i, V_j = 10 \text{ V})} \right] \quad 1, 2 = i \neq j = 1, 2 \quad (2.5)$$

Die Ausrichtung der Flüssigkristalle erfolgt stetig (keine Sprünge), und die maximale Ausrichtung (bei 10 V) entspricht der kleinsten Verzögerung des Lichtes. Somit ist die Verzögerung des Lichtes bei Spannung 0 V (ungedrehte Moleküle) maximal und fällt mit wachsender Spannung stetig ab. Die Phasenverzögerung ist stets positiv, da Licht beim Durchgang durch den SLM nicht beschleunigt wird. Somit müssen $\phi_1(V_1)$ und $\phi_2(V_2)$ stetige, monoton fallende und stets positive Funktionen² sein. Dadurch wird aus dem Invertierungsproblem eine eindeutige Abbildung. Unter den obigen Annahmen stellt sich ein schrittweises Verfahren zur Inversion folgendermaßen dar:

1. Aus der $T(V_1, V_2 = 10 \text{ V})$ Kurve hat man den Wert $T(V_1 = 10 \text{ V}, V_2 = 10 \text{ V})$ in Gleichung 2.5 einzusetzen und die kleinste positive Lösung als den letzten Punkt der Kurve $\phi_1(V_1 = 10 \text{ V}) - \text{const}_2$ festzulegen.
2. Aus der $T(V_1, V_2 = 10 \text{ V})$ Kurve wird nun der nächste Wert $T(V_1 = 9,756 \text{ V}, V_2 = 10 \text{ V})$ entnommen, wiederum in Gleichung 2.5 eingesetzt, und von allen möglichen Ergebnissen jenes gewählt, das stetig und monoton wachsend an das vorangehende $\phi_1(10 \text{ V})$ anschließt.
3. Ebenso verfährt man nacheinander von $T(V_1 = 9,512 \text{ V}, V_2 = 10 \text{ V})$ bis $T(V_1 = 0 \text{ V}, V_2 = 10 \text{ V})$ und wählt immer diejenige Lösung, die stetig und monoton wachsend an die vorhergehende anschließt³.

Das Ergebnis ist nun eine Funktion $\phi_1(V_1) - \text{const}_2$ die monoton bis zu einem Wert nahe Null fällt (nach Konstruktion).

Analog verfährt man mit den Daten $T(V_1 = 10 \text{ V}, V_2)$; man erhält $\text{const}_1 - \phi_2(V_2)$. Im folgenden Schritt müssen die Konstanten festgelegt werden. Man ist nun frei, eine der beiden Konstanten, z.B. $\text{const}_1 = 0$ zu setzen, da eine Konstante in der Kalibrierung sich für alle Streifen des SLM gleich auswirkt, eine gleichmäßige Phasenverzögerung aller Frequenzkomponenten jedoch keinerlei Auswirkung auf die Pulsform hat. Die übriggebliebene Konstante const_2 wählt man nun so, daß $T(V_1 = 10 \text{ V}, V_2 = 10 \text{ V}) = \cos^2 \left[\frac{\phi_1(10 \text{ V}) - \phi_2(10 \text{ V}) - \text{const}_2}{2} \right]$ gilt.

Hierdurch hat man endgültig die absoluten Kalibrierungskurven $\phi_1(V_1)$ und $\phi_2(V_2)$ gewonnen (siehe Abb. 2.9a). Die inversen Funktionen $V_1(\phi_1)$ und $V_2(\phi_2)$ (Transienten 2.9b) werden benötigt, um die anzulegenden Spannungswerte V_i für eine gewünschte Transmission und Gesamtphasenverzögerung eines Doppelstreifens zu ermitteln. Diese Kalibrierkurven $\phi_i(V_i)$ sind mit einem konstantem Faktor r zu multiplizieren, wenn die im Experiment verwendete Zentralwellenlänge von derjenigen des He-Ne Lasers abweicht. Diese Korrekturmaßnahme ist aufgrund der Wellenlängenabhängigkeit der Flüssigkristallschichten $n(\lambda)$ zu treffen, ist jedoch für eine Zentralwellenlänge von 600 nm unwesentlich (der Faktor beträgt ≈ 1). Siehe dazu Abb. 4 im Handbuch des SLM [31].

²Das negative Vorzeichen in Gl. 2.5 scheidet demnach aus

³Das Verfahren gleicht einer Drehung des komplexen Zeigers wobei das Argument des Zeigers (= Phase) stetig anwächst, so daß Phase = $\arg\{\exp(i\phi)\} + \text{Umdrehung} \cdot 2\pi$

Die Funktionen $\phi_i(V_i)$ spiegeln den physikalischen Prozeß einer Ausrichtung von Molekülen (hier die Flüssigkristalle) im homogenen elektrischen Feld eines Kondensators wider. Deshalb wurden die Daten mit einer Summe zweier Exponentialfunktionen unterschiedlicher Zerfallsdauer gefittet. Es wurde eine gute Übereinstimmung gefunden. Die zu Abbildung 2.9 gehörenden Fitparameter sind in Tabelle 2.1 zusammengefaßt. Zur Überprüfung des Fits wurden die Eichkurven in Gleichung 2.2 eingesetzt und mit den gemessenen Transmissionsdaten verglichen (siehe Abb. 2.8).

	x_0	y_0	a_1	a_2	t_1	t_2
$\phi_1(V)$	547	-0.3	9	26	1362.0	367.7
$\phi_2(V)$	57	-0.4	92	11	384	1387
$V(\phi_1)$	0	528	2349	1535	1.7	12.1
$V(\phi_2)$	0	396	2268	1481	1.69	15

Tabelle 2.1: Ermittelte Parameter zur Fit-Funktion $y = y_0 + a_1 \exp \left[-\frac{(x-x_0)}{t_1} \right] + a_2 \exp \left[-\frac{(x-x_0)}{t_2} \right]$

2.3.3 Die Einstellzeit der Maske

Für Programme, die darauf angewiesen sind, wiederholt neue Maskeneinstellungen zu generieren und auf den SLM zu übertragen (z.B. genetische Algorithmen), stellt die Einstellzeit der Maske eine wesentliche Begrenzung in der Ablaufgeschwindigkeit dar. Diese Einstellzeit entspricht der Ausrichtungszeit aller Flüssigkristalle. Um diese Meßgröße zu bestimmen, wurde wieder der in Abb. 2.7 beschriebene Aufbau verwendet, allerdings wurde hier das Signal der Photodiode direkt auf einem Oszilloskop dargestellt.

Ein eigens dafür geschriebenes Computerprogramm bewirkt ein wiederholtes Umschalten (wählbarer Frequenz) zwischen kompletter Transmission und kompletter Absorption der Kalibrierstreifen. Können nun die Flüssigkristalle dieser Umschaltfrequenz folgen, erscheint ein Rechteckpuls auf dem Oszilloskop mit einem maximalen und einem minimalen Spannungswert. Diese sind proportional zur Intensität des He-Ne Lasers, die sich jeweils bei transmittierenden und absorbierenden Kalibrierstreifen ergibt. Können sich die Flüssigkristalle nicht mehr so schnell ausrichten, wie es die externe Frequenz vorschreibt, so sinkt auf dem Oszilloskop der maximal erreichte Spannungswert und der minimale steigt. Das ist gleichbedeutend mit der Aussage, daß der Kontrast zwischen Transmission und Absorption abnimmt. Bei dieser Frequenz darf der SLM nicht mehr betrieben werden.

Mit diesem Kriterium wurde die Reaktionszeit der Maske bei Ausnutzung des gesamten Spannungsbereiches 0...10 V zu 500ms bestimmt. Den gesamten Spannungsbereich auszunutzen ist jedoch nicht nötig, da nur eine Phasenverzögerung von $0...2\pi$ ⁴ benötigt wird. Für den entsprechenden Spannungsbereich von 3,66V...10V (siehe Abb. 2.9) ergibt sich eine Reaktionszeit von 100ms.

⁴entsprechend einer Periode des elektrischen Feldes einer monochromatischen Lichtwelle

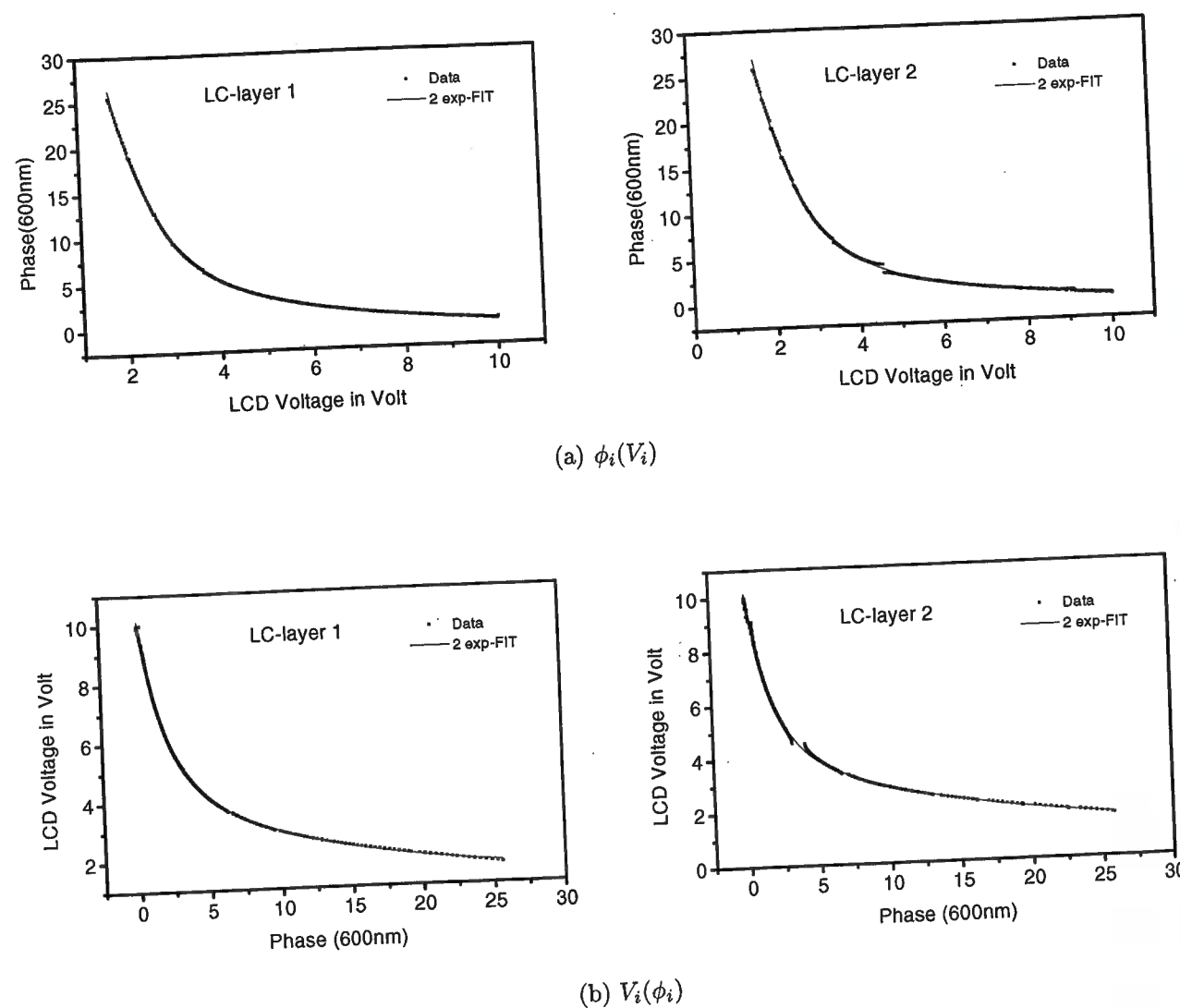


Abbildung 2.9: Die Eichkurven der beiden Flüssigkristallschichten. Die durchgezogene Linie symbolisiert Fitfunktionen, die jeweils aus zwei Exponentialfunktionen (siehe Tabelle 2.1) zusammengesetzt sind.

2.3.3.1 Die Zerstörschwelle der Polarisatoren

Der SLM erlaubt nur die Modulation von Laserpulsen bis zu einer bestimmten Intensitätsschwelle. Leistungsdichten in der Fourierebene am Ort des SLM oberhalb von $28 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ führen zu einer Zerstörung der intensitätsempfindlichsten Komponenten, der integrierten Dünnschichtpolarisatoren. Diese befinden sich 1 mm vor und hinter der Fokalebene.

Bestimmt wird diese Zerstörschwelle mit dem Aufbau, der in Abb. 2.10 skizziert ist. Die Pulse aus dem OPA mit einer Energie von $5 \mu\text{J}$ werden linear polarisiert und der Strahldurchmesser mit einem Teleskop auf 1.2 mm reduziert. Mit einer CCD Kamera

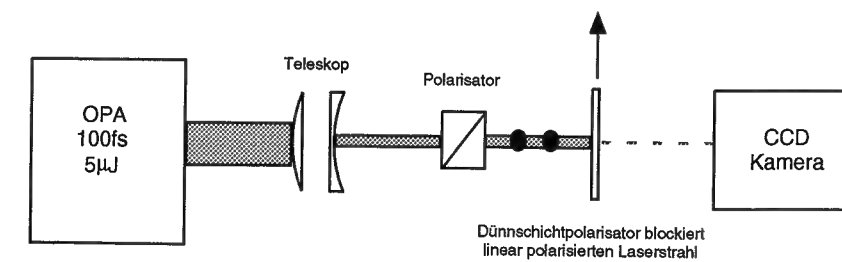


Abbildung 2.10: Der experimentelle Aufbau zur Bestimmung der Zerstörschwelle der Polarisatoren.

wird das gaußförmige Strahlprofil vermessen. Von der Firma L.O.T. Oriel wurde eine Dünnschichtpolarisatormuster zur Verfügung gestellt, das dem im SLM integrierten Typ entspricht.

Dieses wird senkrecht zur Lichtpolarisation in den Strahl eingebracht um das Laserlicht maximal zu absorbieren. Nach einer bestimmten Wartezeit entsteht aufgrund der Absorption ein Wärmeschaden in der Polarisationschicht. Im nächsten Schritt wird dann die Energie weiter abgeschwächt und wiederum der Schaden protokolliert. Stellt sich nach 90 Minuten immer noch kein Schaden ein, so wird dies als die Zerstörschwelle der Polarisatoren interpretiert.

Aufgrund der relativ niedrigen Zerstörschwelle wurden im 4-f-Aufbau Zylinderlinsen verwendet, um dadurch die gesamte aktive Rechteckfläche des SLM auszuleuchten und somit die Leistungsdichte auf den Polarisatoren möglichst zu verringern. Unter Verwendung zylindrischer Optik ist es möglich, 100 fs-Pulse bis zu einer Energie von $5 \mu\text{J}$ zu modulieren.

2.4 Programme der Benutzerschnittstelle

Die im folgenden beschriebenen Programme wurden mit der graphischen Programmiersprache LabView erstellt.

Es wurden drei unterschiedliche Programme entwickelt, die die folgenden Aufgaben übernehmen (siehe Abb. 2.11):

- Berechnung der Pulsform bei Vorgabe der Streifen-Einstellungen des SLM (siehe 1 in Abb. 2.11).
- Berechnung der Streifen-Einstellungen des SLM bei Vorgabe einer gewünschten Pulsform (siehe 2 in Abb. 2.11).
- Ansteuerung des SLM über die GPIB-Schnittstelle (siehe Pfeil 3 in Abb. 2.11). Dazu werden die Eichfunktionen $V_i(\phi_i)$ aus Abschnitt 2.3.2 benötigt.

Die Berechnung und die entsprechende Ansteuerung des SLM findet innerhalb von 1 Sekunde statt. Dann kann die gewünschte Pulsform im Experiment genutzt werden.

In den folgenden Abschnitten wird näher auf die einzelnen Programme eingegangen. Es wird dort unter anderem erklärt, daß es ausreicht 2 Sätze von je 128 komplexen Koeffizienten zu kennen. Diese sind über die diskrete Fouriertransformation miteinander verknüpft⁵ und bilden eine reduzierte Darstellung für jeweils modulierte Pulsform und SLM-Einstellung.

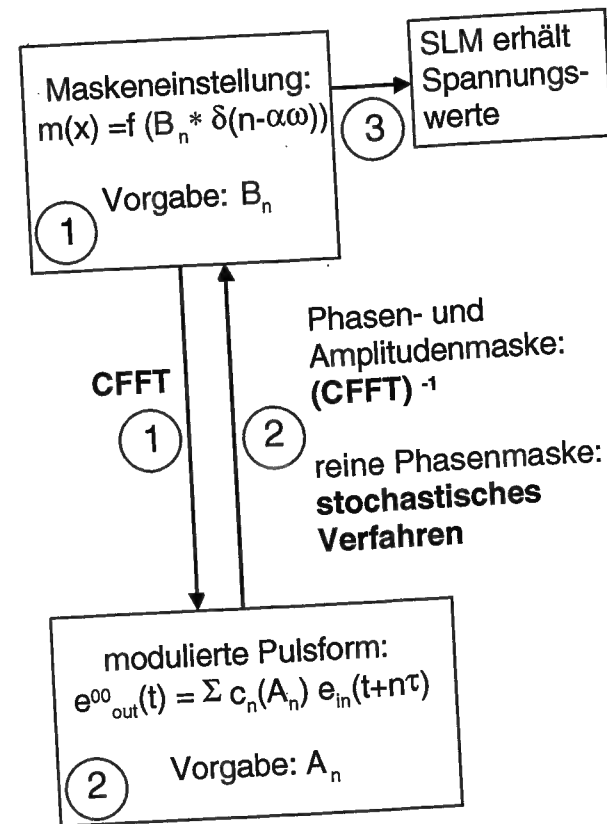


Abbildung 2.11: Die Programmstruktur der Benutzerschnittstelle.

2.4.1 Programm 1: Berechnung der Pulsfolge (siehe Box 1 in Abb. 2.11)

Dieses Programm berechnet aus der SLM-Einstellung $m(x)$ die sich ergebende modulierte Pulsform (Pfeilrichtung 1 in Abb. 2.11). Dazu müssen zunächst die komplexen Größen B_n ⁶ vorgegeben werden. Sie legen $m(x) = f(B_n * \delta(n - \alpha\omega))$ fest. f ist eine Funktion, die Summenstruktur besitzt (siehe Gleichung 1.16 in Abschnitt 1.4). Die 128 komplexen Größen $B_n = b_n e^{i\phi_n^\omega}$ beschreiben Transmission b_n und Phasenverzögerung ϕ_n^ω jeder spektralen Komponente des Eingangspulses. Aus diesem vom Benutzer spezifizierten komplexen Vektor $\vec{B} \equiv (B_1, \dots, B_{128})$ berechnet das

⁵Gitter und Linse des 4-f-Aufbaus führen eine Fouriertransformation des Pulses von der Zeit- in die Frequenzdomäne und umgekehrt aus.

⁶Der Streifenindex ist n und nimmt Werte zwischen 1 und 128 an.

Programm über eine komplexe diskrete Fouriertransformation den komplexen Vektor $\vec{A} = CFFT(\vec{B})$ (Pfeil 1 in Abb. 2.11). Dieser Vektor legt die modulierte Pulsform eindeutig fest.

2.4.2 Programm 2: Berechnung der SLM-Einstellung (siehe Box 2 in Abb. 2.11)

Die gewünschte Pulsform wird durch Vorgabe einer Matrix der Form (a_n, ϕ_n^t) mit zwei Spalten und 128 Zeilen vollständig bestimmt. Diese Matrix wird zu komplexen Zahlen $A_n = a_n e^{i\phi_n^t}$ zusammengefaßt und bestimmt so vollständig den geformten Puls: $e_{out}(x, t) \propto \sum c_n(A_n) e_{in}(t + n\tau)$ (siehe Gleichung 1.22 aus Abschnitt 1.4). Der komplexe Vektor $\vec{A} \equiv (A_1, \dots, A_{128})$ legt somit die Amplitude und Phase des Eingangspulses $e_{in}(t)$ zur Zeit $n \cdot \tau$ fest. Die so vorgegebenen Eingangspulse zu den verschiedenen Zeiten bilden zusammen dann die modulierte Pulsfolge (siehe zeitliche Kammstruktur in Abschnitt 1.4).

Dieses Programm beschreitet die inverse Richtung des zuvor beschriebenen und rechnet die zur Modulation der gewünschten Pulsform nötige SLM-Einstellung aus (Pfeilrichtung 2). Hierbei werden zwei Fälle unterschieden:

- **Amplituden und Phasenmaske**

Der im Rahmen dieser Diplomarbeit verwendete Flüssigkristallmodulator vermag das Pulsspektrum sowohl in Phase als auch Amplitude zu verändern. In diesem Fall werden die komplexen Größen B_n direkt über die inverse, komplexe Fouriertransformation aus den vorgegebenen Werten A_n bestimmt [6] ($\vec{B} = CFFT^{-1}(\vec{A})$ siehe Pfeil 2 in Abb. 2.11).

- **reine Phasenmaske**

Eine Modulation ohne Transmissionsverluste ist dann möglich, wenn nur die Phase des Pulsspektrums durch den SLM beeinflusst wird. Da in Experimenten meist modulierte Pulse mit hoher Leistung benötigt werden, ist die reine Phasenmodulation ein wichtiger Spezialfall.

Die Koeffizienten B_n müssen dann die Form

$$B_n = 1 \cdot e^{i\phi_n^\omega} \quad (2.6)$$

besitzen, so daß die Transmission jedes Doppelstreifens stets 1 ist. ϕ_n^ω ist die effektive Phasenverzögerung. Rechnet man nun aus der vorgegebenen Pulsform $\vec{A}$ durch inverse Fouriertransformation $\vec{B} = CFFT^{-1}(\vec{A})$ aus so ist 2.6 nicht notwendigerweise erfüllt. Somit wäre die gewünschte Pulsform im allgemeinen nicht durch eine reine Phasenmodulation generierbar. Es besteht jedoch die Hoffnung auf Pulsformen, die der gewünschten in Phase und Amplitude sehr ähnlich sind und deren SLM-Einstellung 2.6 erfüllen.

Es stellt sich nun die Aufgabe jene Phasenwerte ϕ_n^ω zu finden, die eine Pulsfolge generieren, welche sich am besten an die Vorgabe annähert. Um ein Maß für diese

Annäherung zu besitzen, führt man die sogenannte Kostenfunktion ein. Der Wert der Kostenfunktion K an jedem n -dimensionalen Parameterpunkt $\vec{\phi}^\omega \equiv (\phi_1^\omega, \dots, \phi_{128}^\omega)$ berechnet sich aus der quadratischen Standardabweichung der durch $\vec{\phi}^\omega$ generierten Pulsfolge von der Gewünschten:

$$K(\vec{\phi}^\omega) = g(\vec{A}^{Wunsch} - \vec{A}(\vec{\phi}^\omega)) \quad (2.7)$$

Die Kostenfunktion ist somit eine Funktion g der SLM-Einstellung $\vec{B}$ (äquivalent zu $\vec{\phi}^\omega$ da $|B_n| \equiv 1 \quad \forall n$) und stellt eine Hyperfläche im $128+1$ -dimensionalen Raum dar. Sie besitzt ein Minimum im Parameterraum dort wo die Abweichung minimal ist. Das Optimierungsproblem stellt sich jetzt als ein Minimierungsproblem dar. Erreicht man das Minimum, so hat man auch die optimalen Phasenwerte ϕ_n^ω gefunden.

Im folgenden werden zwei Verfahren vorgeschlagen, die das Minimum finden können. Die dazu benötigte Rechenzeit nimmt mit der Anzahl der Phasenstufen zwischen $0 \dots 2\pi$ dramatisch zu. Deswegen wird der Wertebereich der Phasen $0 \dots 2\pi$ in 64 diskrete Schritte unterteilt. Eine feinere Diskretisierung würde die Rechenzeit weiter erhöhen ohne sichtliche Verbesserung der Pulsformung.

1. Berechnung der gesamten Kostenfunktion

$\vec{A}^{Wunsch}$ ist bekannt und man rechnet den Wert der Kostenfunktion für jeden Punkt im Parameterraum $\vec{\phi}^\omega$ nach Formel 2.7 aus. Jede Phase ϕ_n^ω kann 64 Werte zwischen 0 und 2π annehmen. Die SLM-Einstellung wird durch 128 dieser Phasenwerte festgelegt ($B_n = e^{i\phi_n^\omega}$). Somit ist die Kostenfunktion im $128+1$ -dimensionaler Raum eine Hyperfläche, die an $(64)^{128}$ Stellen ausgewertet werden muß. Dies ist eine sehr aufwendige Rechnung.

2. Verwendung von stochastischen Verfahren, wie Simulated Annealing (siehe Abb. 2.12)

Dieses Verfahren nutzt stets nur die lokale Umgebung auf der Kostenfunktion aus ist damit viel weniger rechenintensiv. Es handelt sich um ein iteratives Verfahren [32–34]. Jede neue Iteration startet mit zufällig, leicht⁷ veränderten Phasenwerten ϕ_n^ω und rechnet daraus dann die Kostenfunktion K an dieser Stelle $\vec{\phi}^\omega$ aus (siehe Gl. 2.7). Jetzt wertet der Algorithmus die Differenz zwischen dem neuen Wert der Kostenfunktion und dem der vorangehenden Iteration aus. Ist diese Differenz negativ, so führen die neuen Phasenwerte zu einer Abnahme der Kostenfunktion und sind deshalb als Startwert der nächsten Iteration zu wählen. Fällt die Differenz dagegen positiv aus, so geht der Algorithmus auf der Kostenfunktion den Weg nach oben.

Die Eigenheit des Simulated Annealings ist jedoch, daß diese Zunahme der Kostenfunktion mit einer boltzmannverteilten, temperaturabhängigen Wahrscheinlichkeit $P = \exp(-\frac{\Delta K}{T})$ erlaubt ist. Dadurch vermeidet der Algorithmus, sich in ein lokales und nicht in das globale Minimum der

⁷damit wird gewährleistet, daß die Kostenfunktion stets an zwei benachbarten Punkten verglichen wird

Kostenfunktion zu begeben. Mit der Zeit wird die „Temperatur“ immer weiter erniedrigt, so daß nach endlicher Zeit der Algorithmus nur noch den Weg zu kleineren Kosten einschlagen kann und irgendwann im Parameterraum festfriert. Ist er konvergiert, so sollte dieser Punkt das gesuchte globale Minimum sein.

Die Kostenfunktion 2.7 wurde bisher nur allgemein mit einer Funktion g definiert. Die in das Programm letztendlich implementierte Kostenfunktion setzt sich additiv zusammen $K = K_{Amplitude} + K_{Phase}$, und die Funktion g ist eine Norm (die Standardabweichung):

$$K_{Amplitude} = \frac{1}{128} \times \sqrt{\sum_{n=1}^{128} (Re\{A_n^{Wunsch}\} - Re\{\underbrace{CFFT(\vec{B})}_{=\vec{A}(\vec{\phi}^\omega)}\})^2} \quad (2.8)$$

$$K_{Phase} = \frac{\eta}{|\mathcal{G}|} \times \sqrt{\sum_{n \in \mathcal{G}} (Im\{A_n^{Wunsch}\} - Im\{\underbrace{CFFT(\vec{B})}_{=\vec{A}(\vec{\phi}^\omega)}\})^2} \quad (2.9)$$

$$(2.10)$$

Der erste Summand (Gl. 2.8) ermittelt die mittlere quadratische Abweichung zwischen der Zielamplitude und der derzeitigen Pulsamplitude über das gesamte modulierbare Zeitfenster ($128 \cdot \tau$). Der zweite Summand ermittelt die quadratische Abweichung der angestrebten Phasenfunktion von der derzeitigen berechneten, aber nur zu denjenigen Zeiten $n \cdot \tau$, für die die Zielamplitude größer ist als ein vorgegebener Minimalwert. $\mathcal{G}$ ist die Menge der Zeitpunkte $n \cdot \tau$, für die diese Bedingung erfüllt ist ($|\mathcal{G}|$ ist die Mächtigkeit dieser Menge). Es wurde ein Gewichtungsfaktor η eingeführt, der garantiert, daß Phasen- und Amplitudenabweichungen während der Optimierung gleich stark gewertet werden. Man erreicht dadurch schnellere Konvergenz.

2.4.3 Programm 3: Ansteuerung des SLM

Der SLM ist mit einer Ansteuerungselektronik ausgestattet, die über eine GPIB-Schnittstelle mit dem Computer kommuniziert [35]. Die Kommunikation basiert auf einem Talker - Listener System: das Programm übernimmt die Kontrolle als Talker und schickt Befehle an die Ansteuerungselektronik (Listener). Daraufhin sendet es einen Abfragebefehl, um die erfolgreiche Datenübermittlung zu verifizieren. Diese wirkt nun als Talker und sendet eine Rückmeldung an das Programm. Somit ist eine Fehlerprotokollierung möglich.

Der Datenfluß besteht aus ASCII-Zeichen und binären Daten, die in Paketen von 256 Bytes gesendet werden. Die ASCII-Zeichen beinhalten die Steuerbefehle, welche aus dem Handbuch [35] zu entnehmen sind. Die binären Daten stellen die Spannungswerte für die

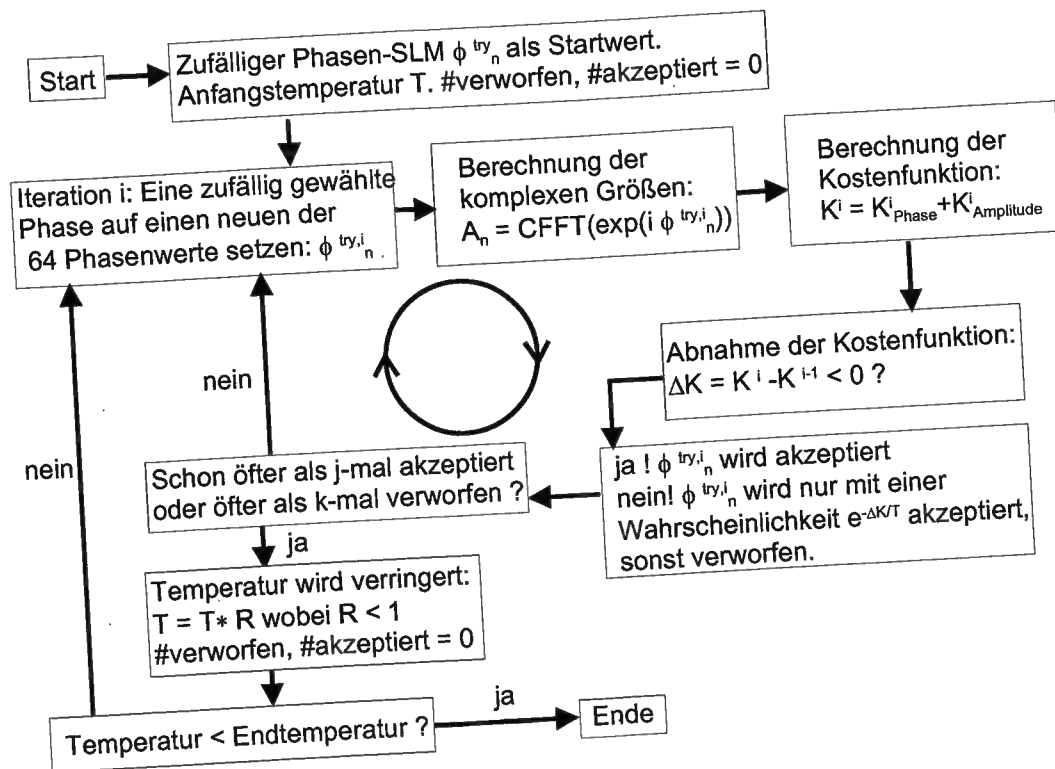


Abbildung 2.12: Simulated Annealing Algorithmus zur Berechnung einer reinen Phasenmaske.

SLM - Einstellung dar. Die Ansteuerungselektronik besitzt einen Speicher, der bis zu 48 dieser Datenpakete speichern kann. Die 48 Speicherplätze werden auch frames genannt, da jeder Speicherplatz einer SLM-Einstellung (und damit Pulsform) entspricht. Der Speicher wird als FIFO (first in first out) verwendet, wobei der Rechner die 256 Spannungswerte für die gewünschte SLM-Einstellung errechnet und auf den Speicher des Treibers lädt, während gleichzeitig einzelne frames bereits zum SLM übertragen werden können. Die Berechnung der Spannungswerte geschieht folgendermaßen:
Das Programm rechnet die Phasenwerte $\phi_n^{\omega,1}$, $\phi_n^{\omega,2}$ für Flüssigkristallschicht-1 und -2 durch Inversion der Formel⁸

$$B_n = \cos\left(\frac{\phi_n^{\omega,1} - \phi_n^{\omega,2}}{2}\right) \cdot \exp\left(\frac{\phi_n^{\omega,1} + \phi_n^{\omega,2}}{2}\right) \quad (2.11)$$

aus. Man erhält die 256 Phasenwerte

$$\phi_n^{\omega,1} = \arccos(|B_n|) + \phi_n^{\omega} \quad (2.12)$$

$$\phi_n^{\omega,2} = \phi_n^{\omega} - \arccos(|B_n|) \quad (2.13)$$

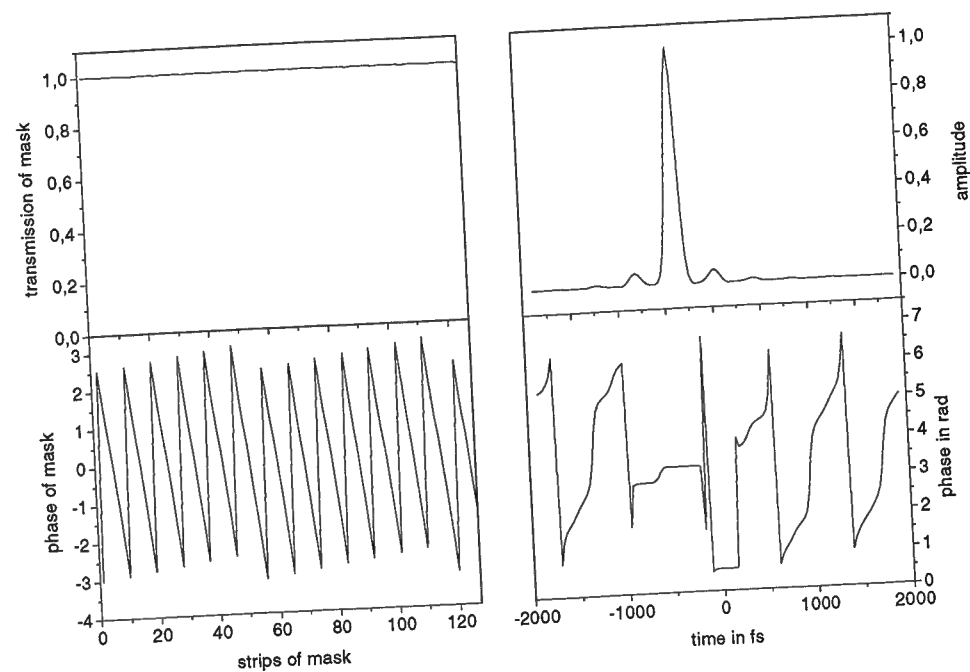
und kann nun mit Hilfe der Eichfunktionen $V_i(\phi_i)$ die 256 Spannungswerte berechnen.

⁸Diese Formel entsteht einfach durch explizite Anschrift der komplexen Größen $B_n = |B_n| \exp(i\phi_n^{\omega})$. Der Betrag $|B_n|$ beschreibt die Amplitude (siehe Gleichung 2.2) und ϕ_n^{ω} die Gesamtphasenverzögerung (siehe Gleichung 2.1) der spektralen Komponente.

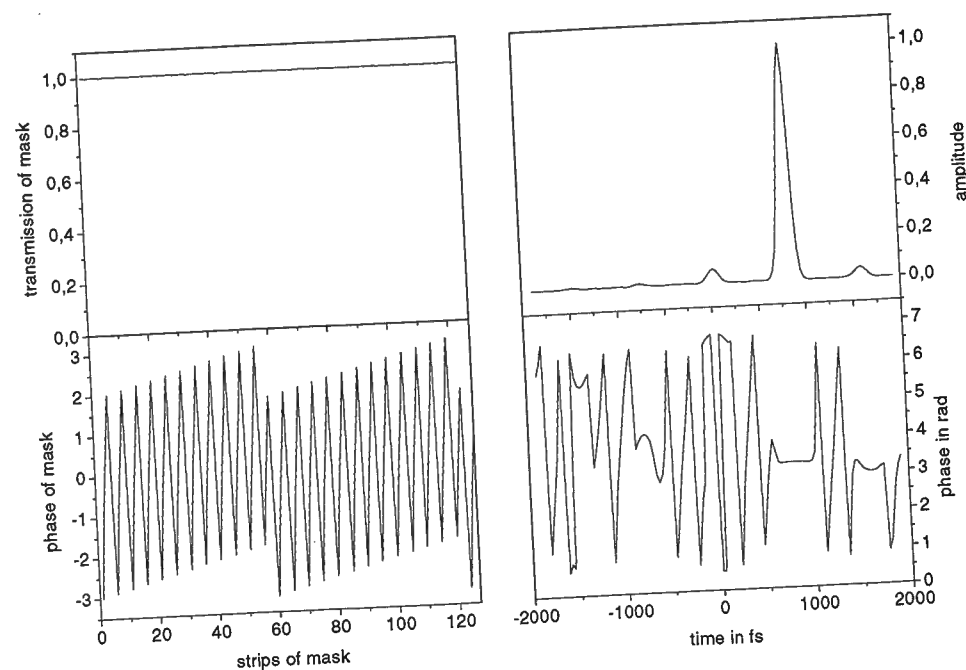
2.4.4 Beispielrechnungen

Die in den folgenden Abbildungen (2.13 und 2.14) dargestellten Beispiele verdeutlichen den möglichen Einsatzbereich einer reinen Phasenmaske und dessen Grenzen. Links ist jeweils die Transmission (oben) und die Phaseneinstellung (unten) des SLM dargestellt, rechts der zeitliche Verlauf des Pulses (oben) und die Phase in Abhängigkeit von der Zeit (unten).

Abb. 2.13 stellt einen zu positiven (b) und negativen (a) Zeiten verschobenen Puls dar. Um diesen Puls zu erhalten, ist eine reine Phasenmodulation des Spektrums hinreichend. Ist jedoch ein zeitlicher Doppelpuls mit fester Phasenbeziehung erwünscht, so ist bereits eine Modulation des Spektrums in Phase und Amplitude notwendig (siehe Abb. 2.14 a). Ebenfalls erkennbar ist das replica bei $t = 0$. Moduliert man nur die Phase des Spektrums, so ist die Generierung eines Doppelpulses nur möglich, wenn man zusätzliche Störampplituden in Kauf nimmt. In Abb. 2.14 b) ist die mit Simulated Annealing berechnete Pulsfolge gezeigt, die sich der gewünschten Doppelpulsfolge am besten annähert.

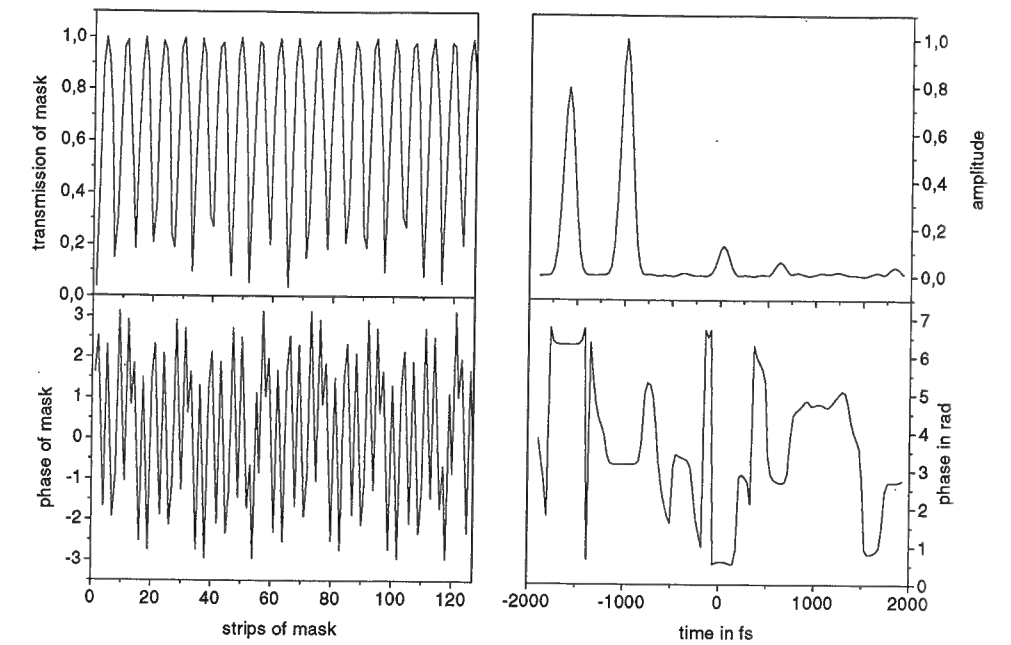


(a) PPM zu negativen Zeiten.

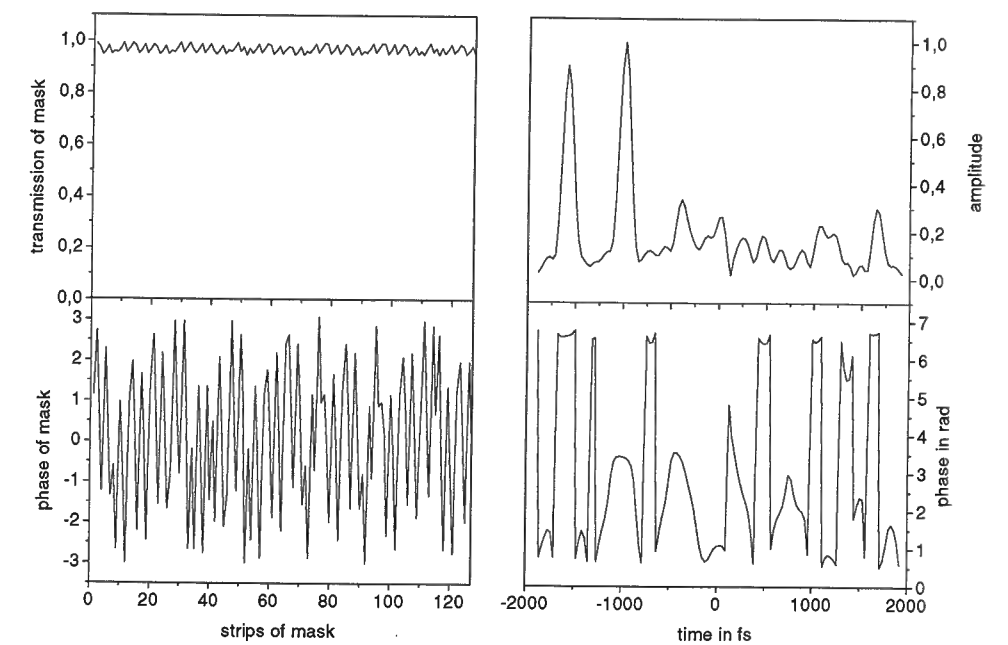


(b) PPM zu positiven Zeiten

Abbildung 2.13: Puls-Positions-Modulation (PPM) (rechts) und die zugehörige SLM Einstellung (links).



(a) Phasenkorrelierter Doppelpuls mit Phasen- und Amplitudenmodulation des Spektrums



(b) Phasenkorrelierter Doppelpuls mit reiner Phasenmaske

Abbildung 2.14: Phasenkorrelierte Doppelpulse (rechts) und zugehörige SLM-Einstellung (links).

Kapitel 3

Vermessung der modulierten Pulse

Meßverfahren zur Charakterisierung der komplizierten Struktur modulierter Pulse werden vorgestellt. Die Qualität der Pulsformung wird diskutiert durch Vergleiche von theoretisch vorausgesagten Pulsen mit experimentell vermessenen. Die Kopplung von Ort und Zeit bei der Pulsmodulation wird untersucht.

3.1 Verfahren zur Charakterisierung geformter Pulse

3.1.1 Korrelationsverfahren

Korrelations-Messungen werden verwendet, um das Zeitverhalten von energiearmen ultrakurzen Impulsen eindeutig zu bestimmen. Der zu vermessende Puls wird zusammen mit einem Schaltimpuls, dessen Zeitverlauf bekannt ist, in einen nichtlinearen Kristall fokussiert, in dem sie die gemeinsame Summenfrequenz erzeugen. Dieser nichtlineare Prozeß zweiter Ordnung ist stark abhängig von der räumlichen und zeitlichen Überlappung der beiden Pulse im Kristall. Dabei muß die Phasenanpassung erfüllt sein. Die Empfindlichkeit dieses Verfahrens ist sehr groß; es können Pulse von wenigen nJ vermessen werden.

Wie im Kapitel 1 dargelegt weisen Pulse, die mit einem diskreten SLM geformt werden, neben dem eigentlich gewünschten Zeitverhalten noch einige zusätzliche Nebenpulse auf. Die Replicas können bis zu 10% der Intensität des eigentlich zu modulierenden Pulses besitzen. Darüberhinaus sind die modulierten Pulse nicht notwendig symmetrisch in der Zeit. Bei einer Autokorrelationsmessung wird der zu vermessende Puls durch einen Strahlteiler zerlegt, wodurch zu vermessender Puls und schaltender Puls identisch sind. Daher lassen sich aus einer Autokorrelation keine unsymmetrischen Pulse rekonstruieren; Autokorrelationsmessungen sind für die Charakterisierung geformter Pulse also nicht geeignet. Verwendet man dagegen einen ungeformten Fourierlimitierten Puls als Referenz, so heißt das Verfahren Kreuzkorrelation (Abb. 3.1). Es ermöglicht die Vermessung unsymmetrischer Pulse. Die Zeitverzögerung kann – wie im Falle der Autokorrelation – über mehrere Pikosekunden verstellt werden. Durch eine hohe Leistung des Referenzpulses ($5 \mu\text{J}$, 100 fs) wird es jetzt möglich, auch Anteile des geformten Pulses mit niedriger Intensität zu

vermessen. Insgesamt muß allerdings darauf geachtet werden, den nichtlinearen Kristall nicht zu sättigen.

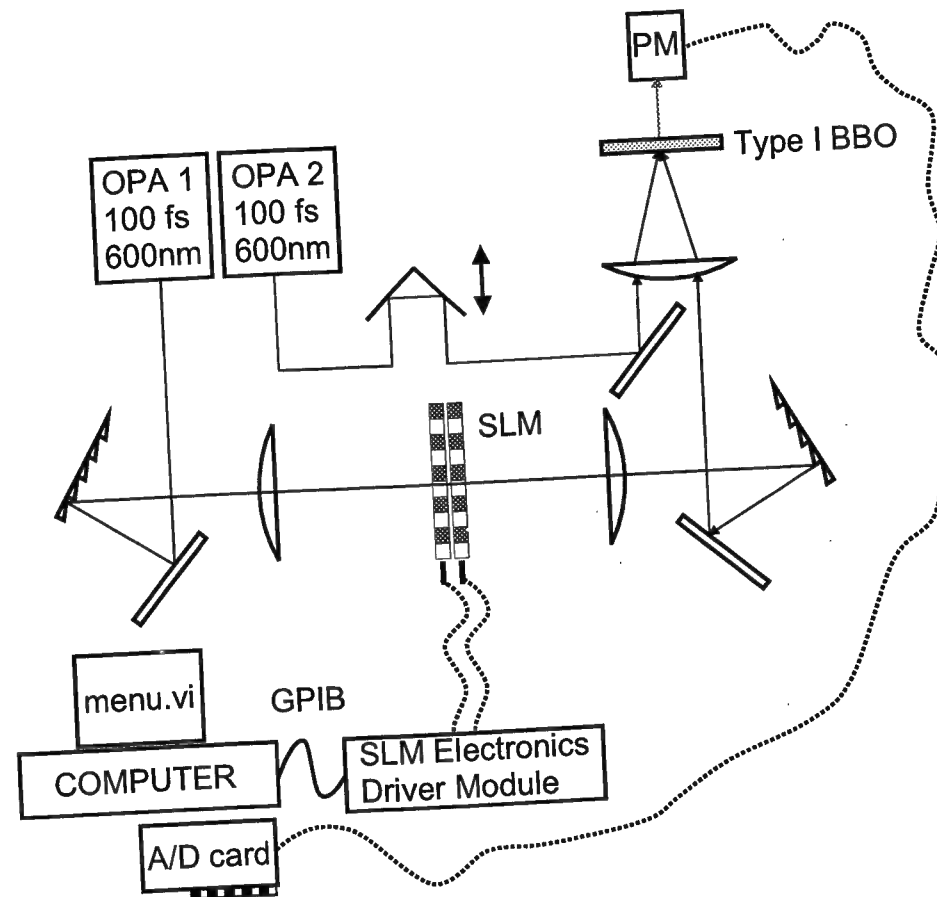


Abbildung 3.1: Der Kreuzkorrelationsaufbau. Der geformte Puls wird mit einem zweiten OPA-Puls vermessen, der über die Translationsstufe beliebig verzögert werden kann.

3.1.2 Das FROG Verfahren

Die mathematische Beschreibung eines Laserpulses lautet

$$E(t) = \text{Re}\{\sqrt{I(t)} \cdot \exp(i\omega_0 t - i\phi(t))\} \quad (3.1)$$

Somit ist ein Puls erst dann vollständig charakterisiert, wenn sowohl seine Phase $\phi(t)$ als auch Intensität $I(t)$ gemessen wurden. Dies ist mit folgenden Verfahren möglich: FROG¹, STRUT² und TADPOLE³.

¹Frequency Resolved Optical Gating [7]

²Spectrally and Temporally Resolved Upconversion Technique [36]

³Temporal Analysis by Dispersing a Pair Of Light E fields [37]

Das FROG-Verfahren liefert als Ergebnis der Messung ein zweidimensionales Array (Intensität über Zeit und Wellenlänge), das von einem Algorithmus weiterverarbeitet wird und schließlich Phase und Amplitude des Pulses als Funktion der Zeit ergibt. Da es sich um ein stark überbestimmtes Problem handelt ($N \times N$ Datenpunkte liefern $2N$ Punkte Information), ist das FROG-Verfahren sehr unempfindlich gegen Rauschen. Dennoch können systematische Fehler⁴ die Messung verfälschen. Besonders sollte auf eine korrekte Eichung der Zeit- und Frequenzachse geachtet werden.

Ein FROG besteht aus folgenden zwei Komponenten:

- einem Interferometer, welches in Verbindung mit einem nichtlinearen Medium als zeitaufösendes Element (Autokorrelator) fungiert. Hierbei hat das nichtlineare Element die Funktion eines optischen Schalters, der von dem zu vermessenden Puls selbst geschaltet wird. Mathematisch wird dies durch einen Schaltkern $E_{sig}(t, \tau)$ beschrieben. Er beschreibt die Wechselwirkung der beiden Teilpulse im verwendeten Medium. Der dabei auftretende nichtlineare Prozeß liefert die Zeitinformation (danach unterscheidet man verschiedene FROG-Typen [7]). Die Schaltkerne einiger wichtiger FROG-Typen sind in folgender Übersicht zusammengestellt.

$$E_{sig}(t, \tau) \propto \begin{cases} E(t) |E(t - \tau)|^2 & \text{für (CC)-PG FROG} \\ E(t)^2 E^*(t - \tau) & \text{für (CC)-SD FROG} \\ E(t) E(t - \tau) & \text{für SHG FROG} \\ E(t)^2 E(t - \tau) & \text{für THG FROG} \end{cases} \quad (3.2)$$

Zuverlässig ist diese Meßmethode bei Pulsdauern von bis zu 5 fs [40], begrenzt allein durch die Verfügbarkeit von Materialien, die eine spektral breite Phasenanpassung erlauben.

- einem Spektrometer. Mathematisch wird dieses durch eine Fouriertransformation in den Frequenzraum beschrieben

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(t, \dots) \exp(-i\omega t) dt \quad (3.3)$$

Bei einem FROG sind diese beiden Elemente hintereinandergeschaltet.

In einer Raumrichtung wird das Spektrum und senkrecht dazu die Zeitinformation abgebildet. Dieses Intensitätsmuster wird mit einer CCD-Kamera aufgenommen. Seine mathematische Beschreibung ergibt sich aus dem jeweiligen Kern und Gleichung 3.3 zu

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \tau) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (3.4)$$

Hier ist die gesamte Information des zu diagnostizierenden Pulses enthalten. Ein Beispiel für ein FROG-Bild eines Fourierlimitierten Pulses ist in Abb. 3.2 dargestellt.

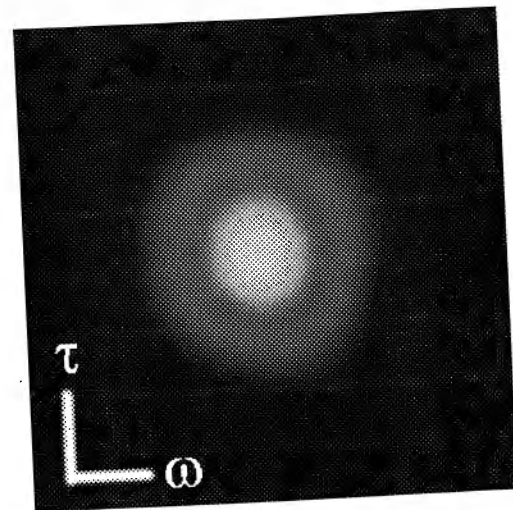


Abbildung 3.2: Ein FROG Bild eines Fourierlimitierten Pulses der Dauer 100 fs.

Das CCD- Bild wird nun von einem Bildverarbeitungsprogramm weiter behandelt. Dabei wird aus dem CCD-Bild der Bereich entnommen (im folgenden N·N Muster genannt), in dem die Intensität am Rand noch 10^{-4} der Maximalintensität beträgt. Der Algorithmus operiert auf diesem N·N Muster (N ist die Anzahl der Pixel des entnommenen Bereiches) und errechnet daraus die N Phasenpunkte und N Intensitätspunkte, also insgesamt 2·N Punkte.

Dieses mathematische Problem ist stark überbestimmt, was zur Folge hat, daß nur eine sehr kleine Untergruppe der FROG-Spuren tatsächlich einen Puls repräsentiert. Nur für FROG-Spuren dieser Untergruppe kann man die Hoffnung haben, daß der Algorithmus nach endlicher Zeit konvergiert. Aufgrund dieser Tatsache kann man weiter aus statistischen Argumenten folgern, daß eine verrauschte FROG-Spur niemals zu einer Konvergenz des Algorithmus führen wird (die Wahrscheinlichkeit, daß das Rauschen nicht aus dieser Untergruppe hinausführt, ist sehr gering). Somit ist FROG ein zuverlässiges Verfahren zur Charakterisierung kurzer Pulse [41].

Der Algorithmus hat nun die Aufgabe $E_{sig}(t, \tau)$ zu finden, wobei dieses Signalfeld stets konsistent sein muß mit dem aufgenommenen Intensitätsbild

$$I_{FROG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \tau) \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (3.5)$$

und dem Schaltkern des jeweiligen FROG-Typs [7]. Hat er einmal das Signalfeld errechnet, so ist es eine leichte Aufgabe, daraus das elektrische Feld zu erhalten.

Zur Charakterisierung der modulierten Laserpulse wurde ein Second-Harmonic-FROG [38] (SHG-FROG) verwendet (siehe Abb. 3.3). Die Zeitauflösung wird durch die Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem Typ I BBO realisiert. Der Winkel zwischen den Teilstrahlen im Autokorrelator wurde zu 22° gewählt. Dadurch wirkt sich der Kristall nicht als Frequenzfilter aus, da die Projektion der Gruppengeschwindigkeiten in Richtung

⁴z.B. unzureichende Verdopplungsbandbreite des verwendeten nichtlinearen Kristalls [38, 39]

der gemeinsamen 2. Harmonischen identisch sind (eine Diskussion dieses Effektes findet man in [39, 41, 42]).

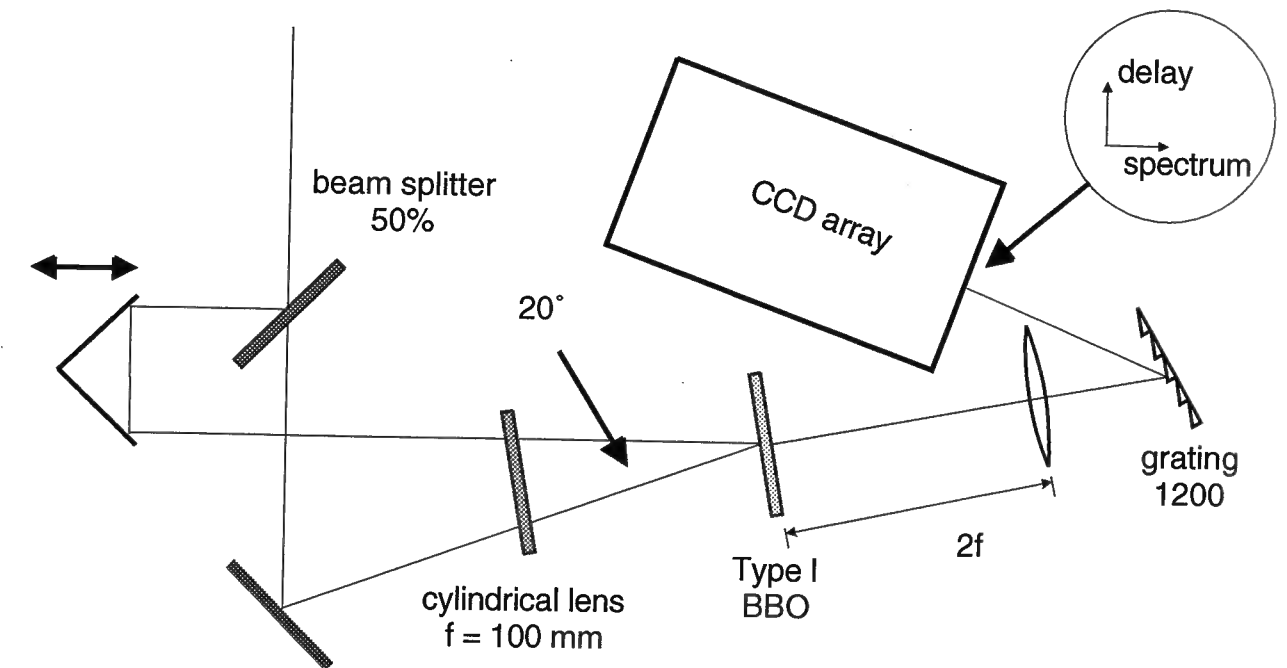


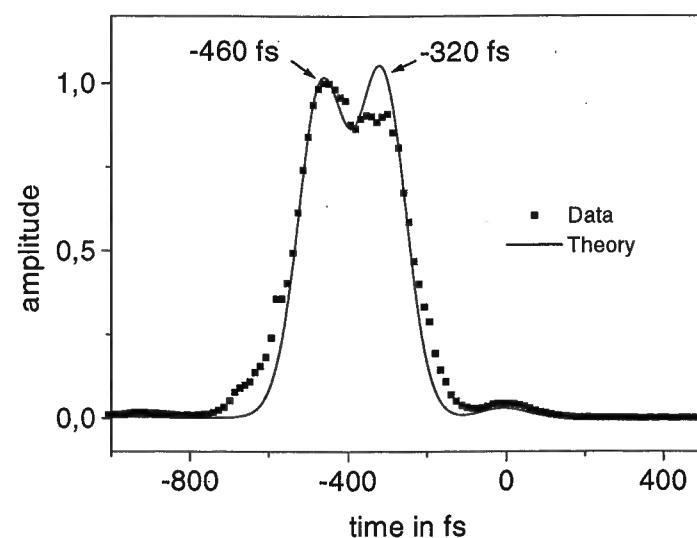
Abbildung 3.3: Single Shot Second-Harmonic-FROG [38].

3.2 Messdaten

Durchgeführt wurden Messungen zur Charakterisierung des Modulator-Aufbaus. Das theoretische Wissen sollte überprüft und die Güte der Pulsformung festgestellt werden. Die Messungen sollten über folgende Punkte Aufschluss geben:

1. zeitliche Struktur
2. Ort-Zeit-Kopplung
3. einfache Phasenmodulation und ihre Einschränkungen
4. Übereinstimmung der tatsächlichen Pulsformen mit den theoretischen
5. zeitlich phasenkorrelierte Pulse

Für die Messungen wurde sowohl der selbstaufgebaute als auch ein kommerzieller SHG-FROG (Femtos, Firma Polytec) verwendet.

Abbildung 3.4: Beide Pulse befinden sich um $4 \cdot \tau$ zeitlich auseinander.

3.2.1 Charakterisierung der zeitlichen Struktur

Die mit einem diskreten SLM modulierte Pulsfolge weist einen kürzesten Zeitabstand τ auf (siehe Kap. 1.4). Moduliert man nun einen Doppelpuls mit einem Zeitabstand von $5 \cdot \tau$ und bestimmt mit Hilfe einer Kreuzkorrelation den entsprechenden Zeitabstand in fs (siehe Abb 3.4), so läßt sich daraus die kleinste Zeiteinheit zu $\tau = \frac{2\pi\alpha}{L} \approx 40$ fs bestimmen. α ist die Dispersion des 4-f-Aufbaus (siehe Anhang 2.2).

Zwei Pulse mit einer Dauer von jeweils 100 fs und einem Zeitabstand von 40 fs bilden einen zeitlich breiteren Puls, in dem jeder Teilpuls nur als leichte Schulter erkennbar ist. Es ist jedoch möglich, Pulse mit einer um π verschiedenen zeitliche Phase zu erzeugen. Dadurch würden jetzt die 100 fs-Pulse mit Zeitabstand τ im Bereich ihrer zeitlichen Überlappung destruktiv interferieren und die Doppelpulsstruktur wäre dann wieder deutlich erkennbar.

Aus dem Ergebnis für τ läßt sich sofort das maximale Zeitfenster ausrechnen zu $T = N \cdot \tau \approx 5$ ps (siehe Kap. 1.4). Durch eine Puls-Positions-Modulation (PPM), also eine Verzögerung des Eingangspulses, ist diese Größe auch experimentell zugänglich. PPM erreicht man durch eine lineare Phasenmodulation des Spektrums⁵, wobei die Steigung der Phasenfunktion proportional zur erzeugten Pulsverzögerung ist. Die Steigung der Phasenfunktion darf jedoch π /Streifenzahl nicht überschreiten, damit sie noch durch die begrenzte Anzahl der Streifen korrekt abgetastet wird (Nyquist-Theorem). Ein Überschreiten dieser Grenze führt zum Anwachsen der Amplitude eines unerwünschten Replica. Also ist eine noch größere Pulsverzögerung nicht mehr sinnvoll. Die Amplitude des Replica ist identisch mit der des bis zum Rande des Zeitfensters verzögerten Eingangspulses (siehe

⁵man umgeht damit optische Verzögerungsstrecken

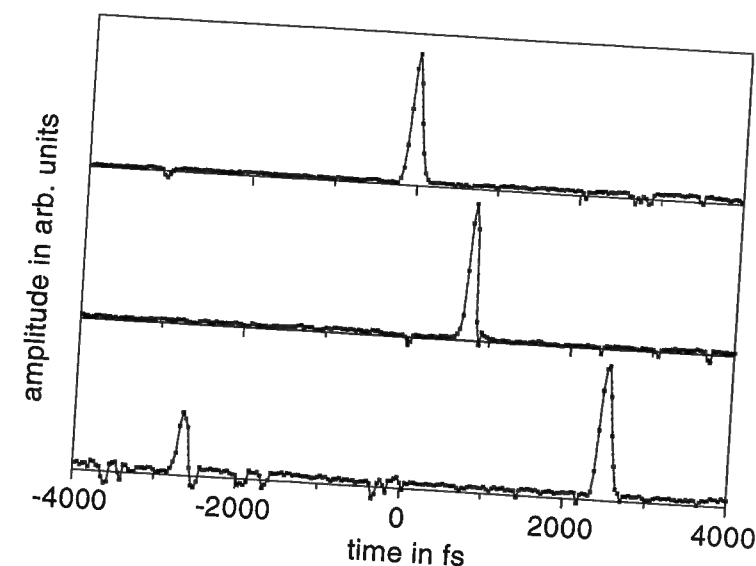


Abbildung 3.5: Bestimmung des Kontrollfensters zu 5 ps.

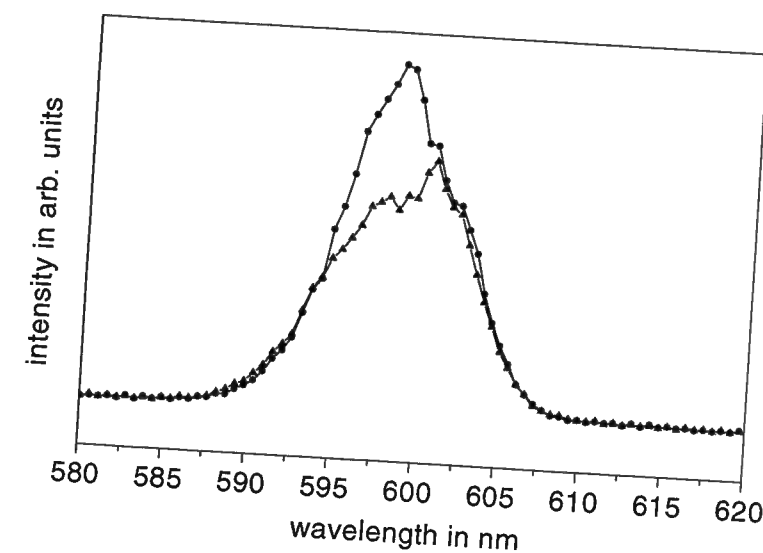


Abbildung 3.6: Spektren der Pulse in der geformten Pulssequenz.

Abb. 3.5). Der Zeitabstand beider Pulse ist gleich dem maximalen Zeitfenster $T = 5$ ps.

Die bisherige Diskussion bestätigt die theoretische Vorhersage, daß der geformte Puls eigentlich eine zeitliche Aneinanderreihung von Eingangspulsen ist. Das bedeutet weiter, daß das Spektrum der einzelnen Teilpulse identisch mit dem Eingangsspektrum sein muß. Dies bestätigen die in Abbildung 3.6 dargestellten Spektren der zwei Teilpulse eines

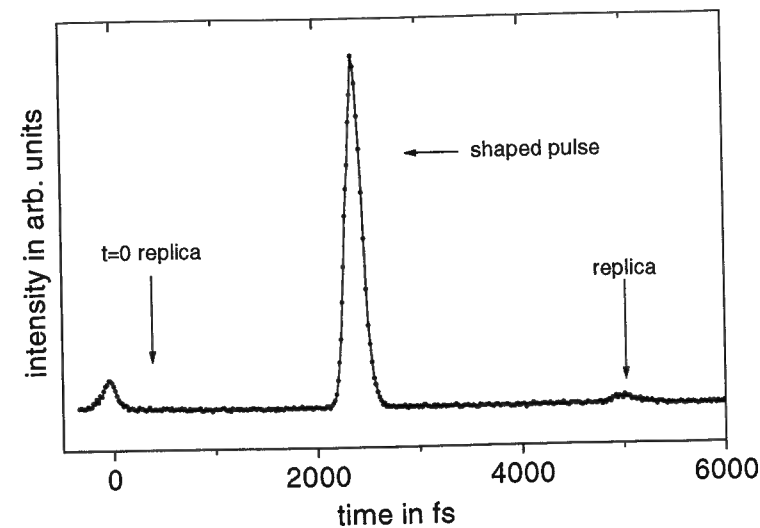


Abbildung 3.7: An dieser Messung ist das Intensitätsverhältnis zwischen Replica, „t=0“-Replica und dem eigentlich geformten Puls zu erkennen (ungefähr 1:10).

modulierten Doppelpulses.

Eine Abschätzung der Intensität der Replica ist wichtig, wenn man die geformte Pulsfolge im Experiment anwenden möchte. Die Frage ist, ob die Replica einen störenden Effekt auf das molekulare System haben können. Abb. 3.7 zeigt die Intensitätsverhältnisse. Das „t = 0“-Replica entsteht aus den spektralen Anteilen, die von den Blindbereichen des SLM transmittiert werden. Das Replica außerhalb des Zeitfensters entsteht infolge der diskreten SLM-Struktur; es wurde durch eine Gaußsche Amplitudenmodulation stark unterdrückt (siehe Diskussion in 1.4.2). Durch eine Lochblende kann es wegen der Ort-Zeit-Kopplung von dem geformten Puls abgetrennt werden.

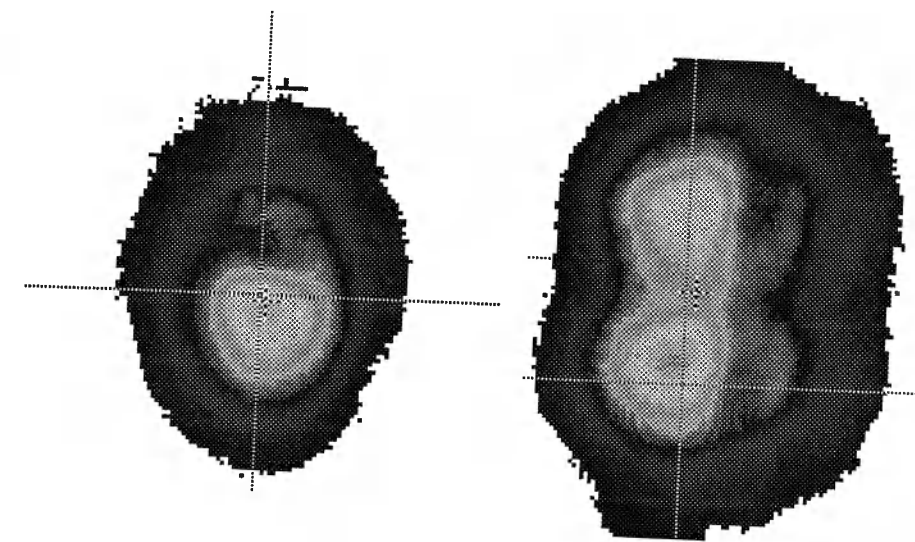
3.2.2 Charakterisierung der Ort-Zeit-Kopplung

Passive Pulsformung ist durch Beugung der spektralen Komponenten am optischen Material in der Fourierebene des 4-f-Aufbaus gekennzeichnet. Dadurch wird nicht nur die Zeitstruktur des Pulses (sie entspricht der Verzögerung von Frequenzkomponenten), sondern auch das Strahlprofil jeder einzelnen spektralen Komponente moduliert. Das führt zur Ort-Zeit-Kopplung (Abschnitt 1.3.1).

Stellt man am Pulsformer eine maximale Puls-Positionsmodulation ein (Abb. 3.9 a), so entsteht aus dem Eingangsstrahlprofil (Abb. 3.8 a) das Profil aus Abbildung 3.8 b. Deutlich erkennbar sind die beiden Teilstrahlen der zeitlich gegeneinander verzögerten Pulse. Abblenden eines Teilstrahles und Messung einer Kreuzkorrelation ermöglicht die Zuordnung der Strahlwege zu den Impulsen (vergleiche Abb. 3.8 b,c).

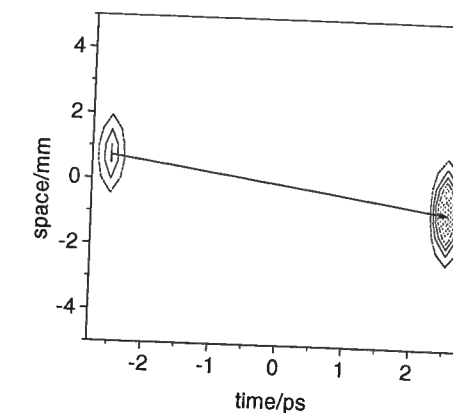
Man kann ein Ort-Zeit-Bild des Pulses skizzieren, wie es in Abb. 3.8(c) geschehen ist.

Aus der Theorie ist bekannt, daß ein linearer Zusammenhang zwischen dem Zeitabstand beider Pulse und dem Abstand beider Maxima im Strahlprofil besteht (eine genauere Diskussion der Pulsfrontverkipfung findet man in Abschnitt 1.4). Die Verbindungslinie im Raum-Zeit Diagramm ist eine Gerade mit der Steigung $m = \beta/\gamma = c \cdot d \cdot \cos(\theta_i)/\lambda = 0,2 \text{ mm/ps}$.



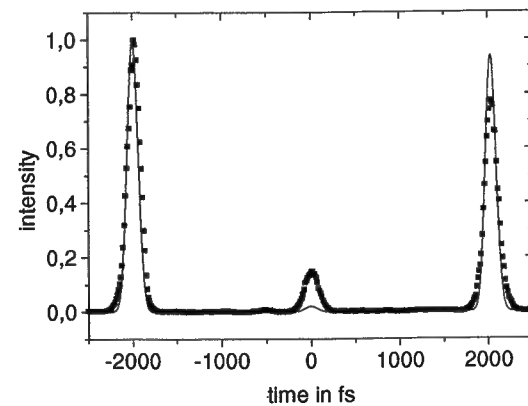
(a) Strahlprofil des Eingangspulses

(b) Strahlprofil des modulierten Pulses

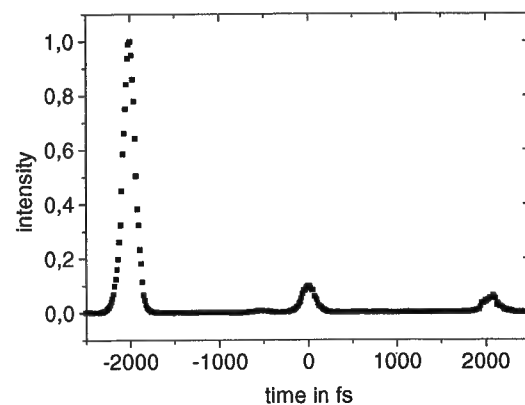


(c) Ort-Zeit-Diagramm des Pulses

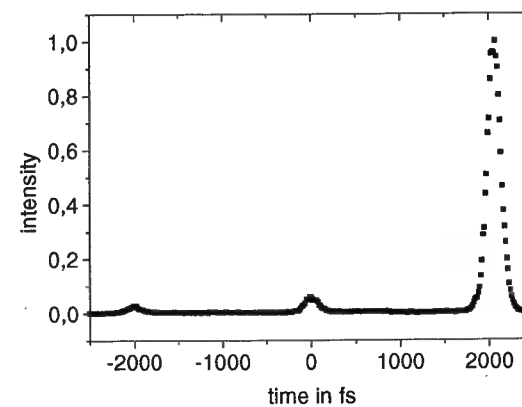
Abbildung 3.8: Links oben das Strahlprofil des Eingangspulses. Rechts daneben das Strahlprofil des Ausgangspulses. Trägt man die zeitliche Struktur des Pulses über dem Strahlprofil auf, so erhält man das unten abgebildete Raum-Zeit Diagramm (c). Die Pulsfrontverkipfung beträgt 0,2 mm/ps.



(a) Zeitstruktur des gesamten Strahlprofils



(b) Zeitstruktur der einen Hälfte des Strahlprofils



(c) Zeitstruktur der anderen Hälfte des Strahlprofils

Abbildung 3.9: Kreuzkorrelationsmessungen des gesamten Strahlprofils (a) sowie der einzelnen Teilprofile (b,c).

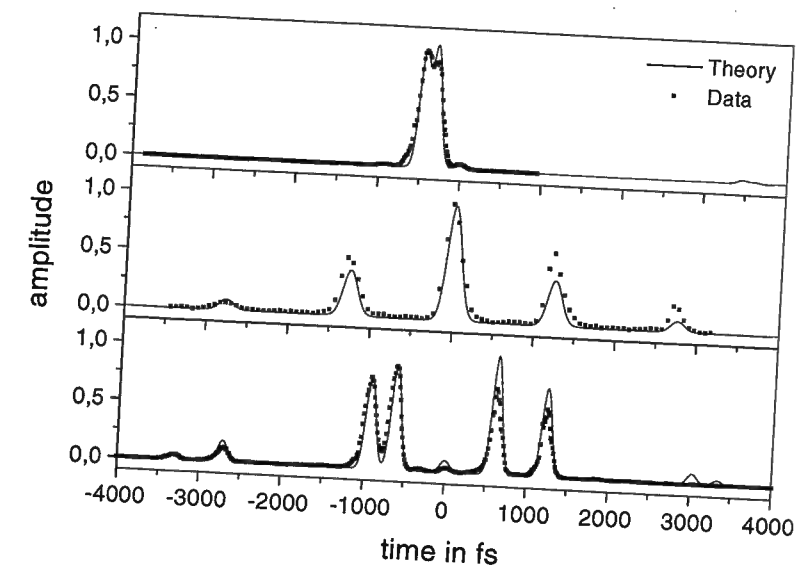


Abbildung 3.10: Mit dem Pulsformer modulierbare Pulse (Kreuzkorrelationsmessung). Durchgezogene Linie : Theorie.

3.2.3 Charakterisierung der Modulationsstruktur

In Abb. 3.10 sind einige Pulsfolgen dargestellt, die durch Amplituden- und Phasenmodulation erzeugt werden können; sie sollen nur exemplarisch die Möglichkeiten des entwickelten Aufbaus aufzeigen. Die Trennung von Phasen- und Amplitudenmodulation des Pulsspektrums ermöglicht jede Art von Pulsform, die durch folgende Summe

$$e_{out}(t) = \sum_{-N/2}^{N/2} a_n \cdot e^{i\phi_n} \cdot e_{in}(t + n \cdot \tau) \quad (3.6)$$

darstellbar ist. Anschaulich stellt das eine Kammstruktur von Eingangspulsen dar. Durch die Wahl der Parameter a_n und ϕ_n zu den Zeitpunkten $n \cdot \tau$ kann man die Form der Kammstruktur beeinflussen. Da der Parameter τ kleiner als die Pulsdauer ist, kann man Pulsformen generieren, deren Teilpulse überlappen, und somit je nach Phasenbeziehung entsprechend interferieren werden.

Ist man experimentell auf hohe Effizienzen bei der Pulsformung angewiesen so ist es möglich, mit einer reinen Phasenmodulation des Spektrums Pulse zu formen (siehe Abb. 3.11). In diesem Fall jedoch kann eine beliebige Pulsfolge nur annäherungsweise erreicht werden. Ein stochastischer Algorithmus (siehe Abschnitt 2.4.2) sucht die SLM-Einstellung, die zu einer Pulsfolge führt, die der Wunschvorstellung des zu modulierenden Pulses möglichst nah kommt. In Abb. 3.11 sind diese Pulsfolgen dargestellt. Gewünscht wurden Pulssequenzen gleicher Amplitude, bestehend aus zwei, drei und vier Pulsen. Man bemerkt, daß der Versuch, vier Pulse gleicher Amplitude mit einer reinen Phasenmaske zu modulieren, nicht mehr mit hoher Qualität gelingt. Die Messung in Abb.

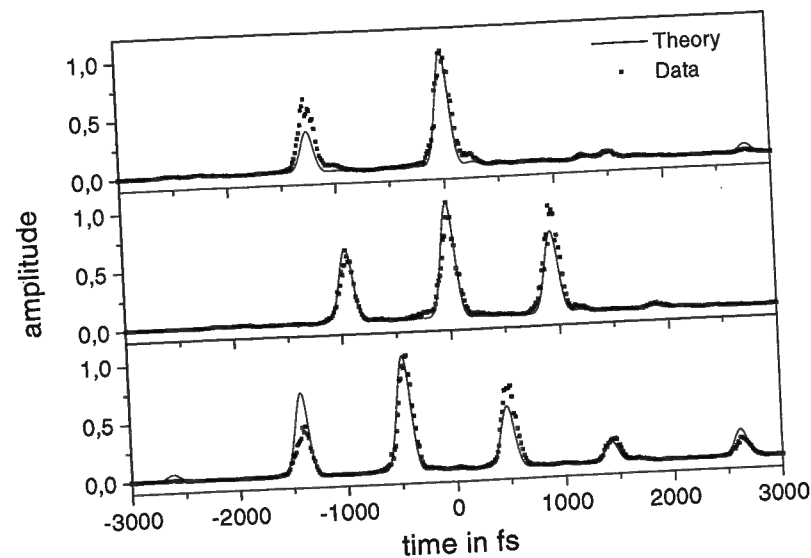


Abbildung 3.11: Pulsformen moduliert mit einer reinen Phasenmaske.

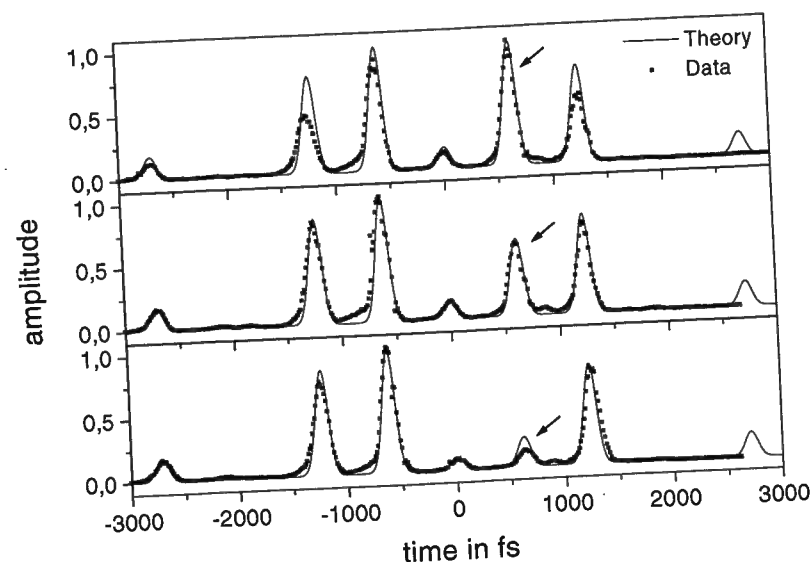


Abbildung 3.12: In dieser Meßreihe wurde die Amplitude des dritten Pulses zunächst von 1 auf 0.8 und schließlich auf 0.5 reduziert.

3.12 zeigt die Möglichkeit, jeden einzelnen der Pulse innerhalb der modulierten Pulsfolge zu beeinflussen. In der dargestellten Meßreihe wurde die Amplitude des dritten Pulses durchgestimmt, ohne eine Veränderung an den übrigen Pulsen vorzunehmen.

Kreuzkorrelations-Messungen zu verschiedenartig geformten Pulsen, erzeugt sowohl durch reine Phasen-, als auch Phasen- und Amplitudenmodulation des Spektrums, zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit den theoretischen Rechnungen. Somit ist es möglich, eine gewünschte Pulsform mit großer Zuverlässigkeit nach einer Sekunde im Experiment einzusetzen. Eine besonders vielversprechende Vorgabe sind dabei Formen, die von der „Optimal Control Theory“ berechnet wurden [2,3,43]. Sind die theoretischen Ergebnisse korrekt, so erreicht man das gewünschte Kontrollziel mit einem Knopfdruck.

Abweichungen in der Modulationsstruktur zwischen Vorgabe und Messung sind auf mehrere Ursachen zurückzuführen:

- Fehlpositionierung des SLM innerhalb des 4-f-Aufbaus.
Besonders eine Verkippung der SLM Fläche gegenüber der Fourierebene verschlechtert deutlich die Pulsformungsqualität (siehe Abb. 3.13 a). In diesem Fall durchlaufen einige Frequenzkomponenten des Pulsspektrums in Flüssigkristallschicht-1 einen anders adressierten Streifen als in Flüssigkristallschicht-2. In den theoretischen Rechnungen wird angenommen, daß jede Frequenzkomponente jeweils den jeweils gleich adressierten Streifen der Flüssigkristallschicht-1 und -2 passiert. Eine Verschiebung des SLM um wenige Millimeter in Ausbreitungsrichtung (Abb. 3.13 b) und senkrecht dazu (Abb. 3.13 c) erzeugt unwesentliche Fehler in der Intensitätsmodulation des Pulses.
- Der 4-f-Aufbau befindet sich nicht im Nulldurchgang.
Somit wird aus einem anfangs Fourierlimitierten Puls einer, dessen Phasenverhalten quadratische und kubische Ordnungen enthalten wird (siehe Abb. 3.14 a). Einen richtig justierten Pulsformungsaufbau erkennt man am runden Strahlprofil des Ausgangspulses und am FROG-Bild des Ausgangspulses (siehe Abb. 3.14 b), welches wie das des Eingangspulses aussehen sollte.

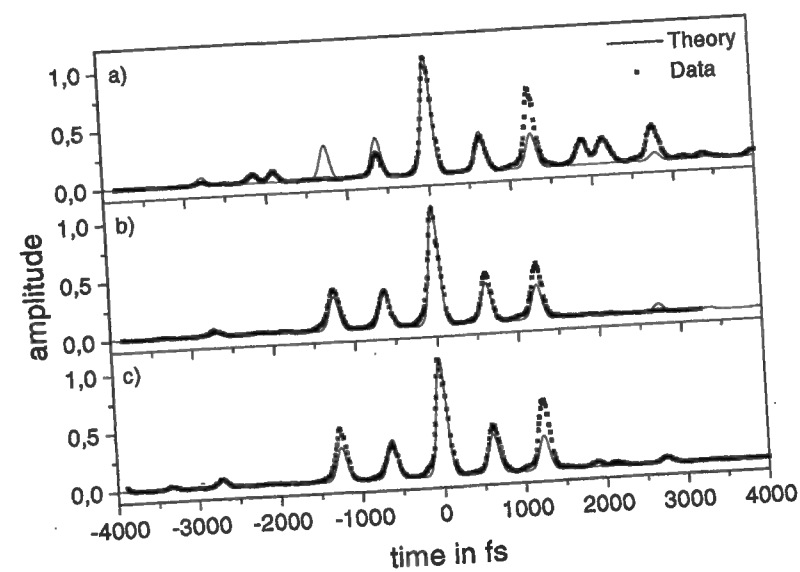
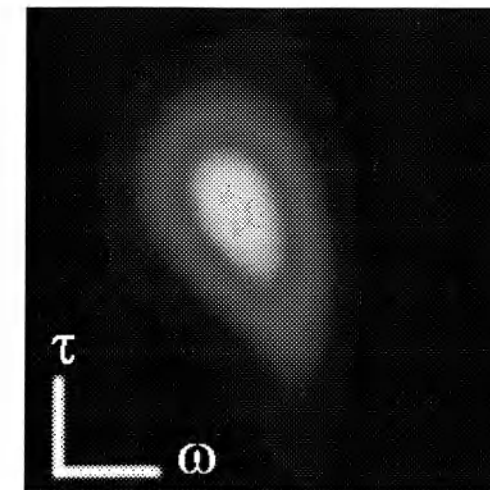
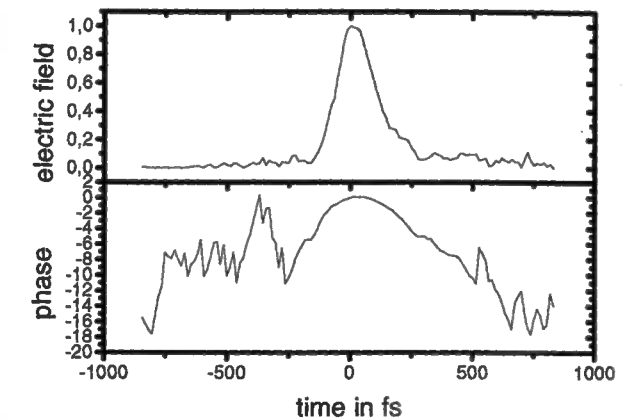


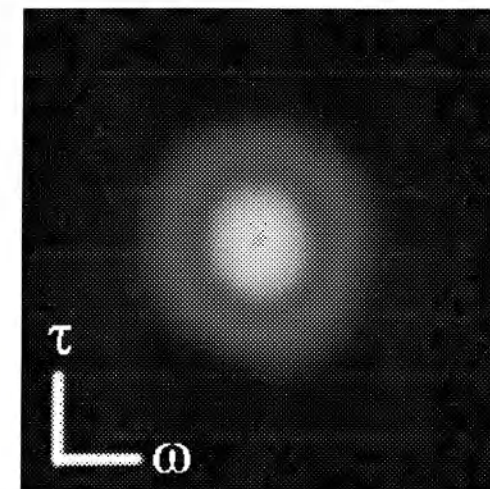
Abbildung 3.13: Die Auswirkungen der SLM Positionierung innerhalb des 4-f-Aufbaus auf die Pulsform. Ein gegen die Fourierebene verkippter SLM verändert die Pulsform gemäß (a). Ein vor der Fourierebene befindlicher (b) und ein aus ihr transversal verschobener SLM (c) führt nur zu geringen Abweichung der Pulsform von der gewünschten.



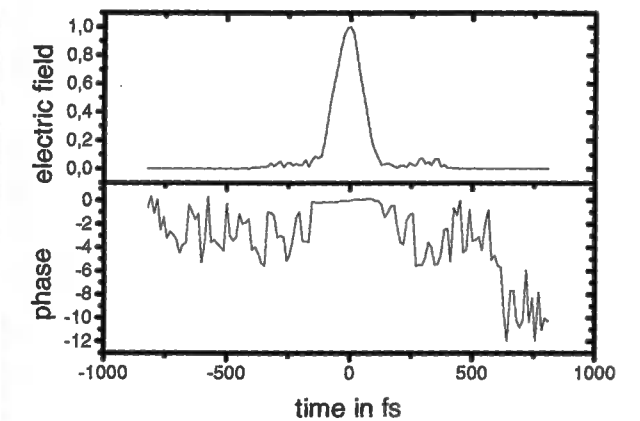
(a) FROG Bild : 4f Aufbau nicht im Nulldurchgang



(b) Berechnung der Phase und Amplitude des in (a) gezeigten Pulses



(c) FROG Bild : 4f Aufbau im Nulldurchgang



(d) Berechnung der Phase und Amplitude des in (c) gezeigten Pulses

Abbildung 3.14: Justage des Pulsformungsaufbaus in Bezug auf den Nulldurchgang.

3.2.4 Einfache Modulation der spektralen Phase

Zur Kompression von fs-Pulsen sind besonders polynomiale Phasenfunktionen geeignet. Diese kann man in eine Taylorreihe bezüglich der Frequenz entwickeln: $\phi(\omega) = \sum_{n=0} a_n(\omega - \bar{\omega})^n$. Aufgrund des Nyquist-Theorems (Steigung der Phasenfunktion $\ll \pi$ siehe Abschnitt 1.4.4) genügen die Taylorkoeffizienten der Einschränkung:

$$a_n < \frac{1}{(2\Delta f)^n (\pi N)^{n-1}} \quad (3.7)$$

Überschreitet man diese obere Grenze, so zeigt die zeitliche Einhüllende des Pulses eine unregelmäßige Form. Beispielhaft sind im folgenden Pulse vermessen worden, auf deren Spektrum eine quadratische (kubische) Phasenfunktion aufgeprägt wurde.

Moduliert man das Spektrum des Pulses mit einer Phasenfunktion quadratischer Ordnung, so ergibt sich ein zeitlich gestreckter Puls (siehe Abb. 3.15). Aus den Fouriertransformierten der FROG-Daten kann man die Phase in Abhängigkeit von der Frequenz erhalten und den SLM auf entgegengesetzte Phase einstellen, um genau diese Phasenordnung zu kompensieren.

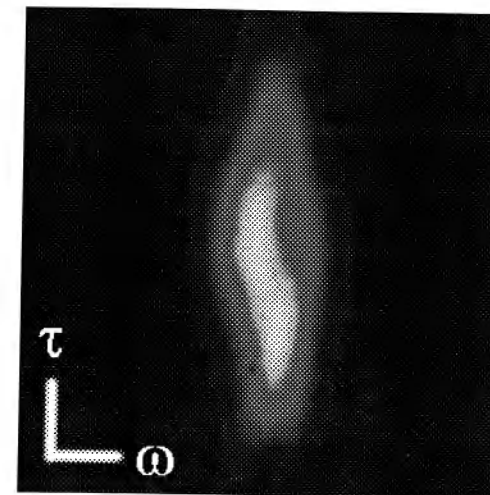
Kubische Ordnungen im Spektrum des Pulses äußern sich zeitlich in einem Puls, dessen eine Flanke steil anwächst, die zweite jedoch langsam ausläuft (siehe Abb. 3.16). Die FROG-Daten zeigen, daß eine Phasenfunktion unter einer Fouriertransformation zwischen Frequenz und Zeit nicht notwendigerweise erhalten bleibt. Nur eine quadratische Phasenfunktion in der Zeit wird auf eine quadratische Funktion in der Frequenz transformiert (die Gaußfunktion $e^{-\phi^2}$ ist invariant unter Fouriertransformation). In Abbildung 3.16 ist das FROG-Bild eines Pulses dargestellt, der durch eine kubische spektrale Phasenfunktion moduliert wurde. Die errechnete Phase in der Zeit ist jedoch annäherungsweise durch eine quadratische Ordnung bestimmt.

Pulse mit quadratisch spektraler Phasenfunktion können einen molekularen π -Impuls darstellen [14–16]. Das kann man folgendermaßen einsehen: Ein breitbandiger Puls erzeugt ein Wellenpaket auf der angeregten Potentialfläche. Da das Minimum der angeregten Potentialfläche bei größerem interatomaren Abstand liegt als das des Grundzustandes, laufen die Potentialflächen zunächst mit wachsendem interatomaren Abstand energetisch zusammen.

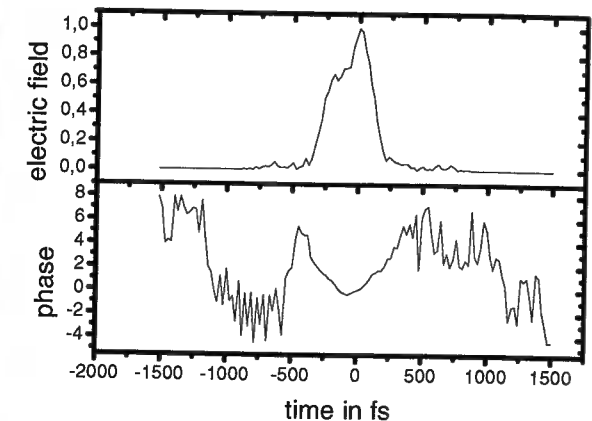
Ein Wellenpaket, welches vom Grundzustand angeregt wird, entwickelt sich demnach zeitlich zunächst entlang eines abnehmenden Differenzpotentials. Sind die Frequenzen des Laserfeldes zeitlich so geordnet, daß sie dem abnehmenden Differenzpotential folgen (negativer Chirp), so wird das Laserfeld stets resonant zwischen Grund- und angeregtem Zustand sein. Dadurch kann das Wellenpaket wieder von der angeregten Potentialfläche heruntergeholt werden. Ein negativ gechirpter Puls maximiert somit den pump-dump Mechanismus. Ein bestimmter positiv gechirpter Puls dagegen maximiert den Populationstransfer in die angeregte Potentialfläche und wird deshalb in Anlehnung an ein Zwei-Niveau-System, molekularer π -Puls genannt. Beide Chirp-Einstellungen sind in ihrem erwünschten Effekt sehr empfindlich auf das Differenzpotential, welches wiederum bei großen Molekülen von deren chemischen Umgebung abhängt [44]. Ein Pulsformer könnte

somit als „Umgebungstester“ eingesetzt werden.

Eine weitere Anwendung der polynomialen Phasenmodulation wurde von Zeidler et al. [30] realisiert. Dabei handelt es sich um einen nichtkollinearen Kurzpuls-OPA, dessen Pulse an beliebiger Stelle eines Experiments 15 fs aufweisen. Das Prinzip beruht auf einer automatisierten Kompression der durch verschiedene Materialien induzierten Dispersion.

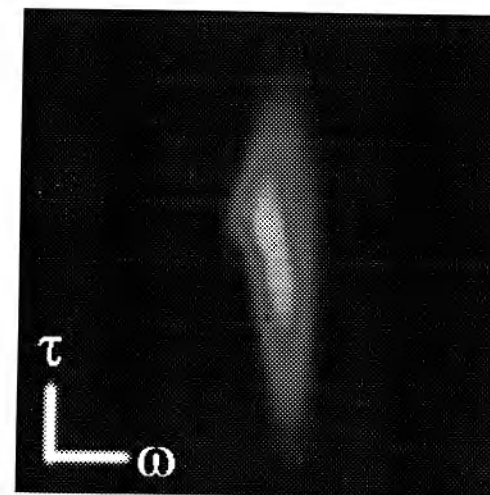


(a) SHG FROG Bild eines Pulses mit quadratischer Phasenfunktion

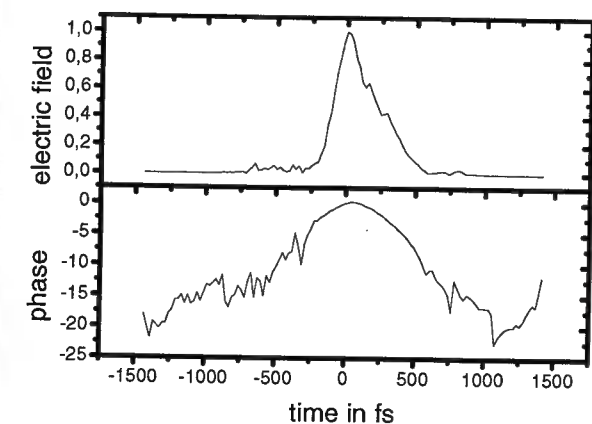


(b) Die errechnete Amplitude und Phase in der Zeit

Abbildung 3.15: Mit einer quadratischen Phase modulierte Pulse



(a) SHG FROG Bild eines Pulses mit kubischer Phasenfunktion



(b) Die errechnete Amplitude und Phase in der Zeit

Abbildung 3.16: Mit einer kubischen Phase modulierte Pulse

3.2.5 Einfache Modulation der zeitlichen Phase

Die zeitabhängige Phase jedes Teilpulses kann man vorgeben und so ein zeitliches Phasenverhältnis innerhalb einer Pulsfolge festlegen. Eine wichtige Anwendung finden diese Pulse in der kohärenten Kontrolle eines atomaren Systems. Ein Experiment am Natrium wurde hierzu durchgeführt und ist in Kap. 4 beschrieben. Das Phasenverhalten der Pulsfolgen wurde mit einem SHG-FROG überprüft. Die zeitliche Struktur wurde mittels Kreuz-Korrelation (phasenunempfindlich) vermessen (siehe Abb. 3.17). Die entsprechende SLM-Einstellung zur Generierung dieser Pulse findet man in Abschnitt 2.4.2.

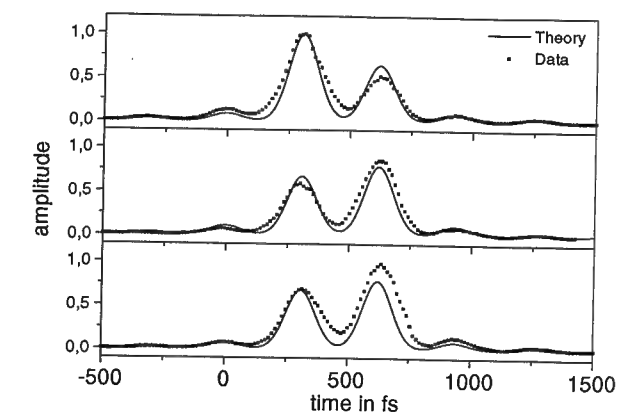
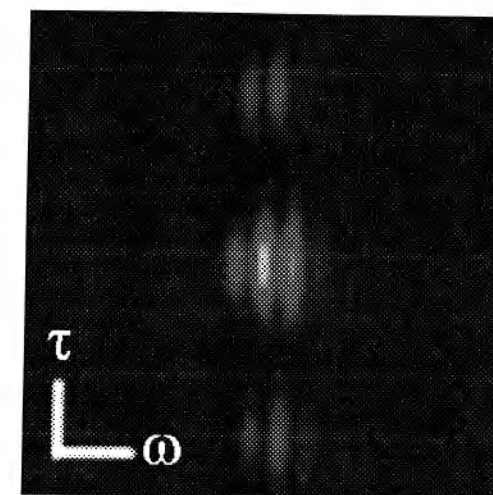
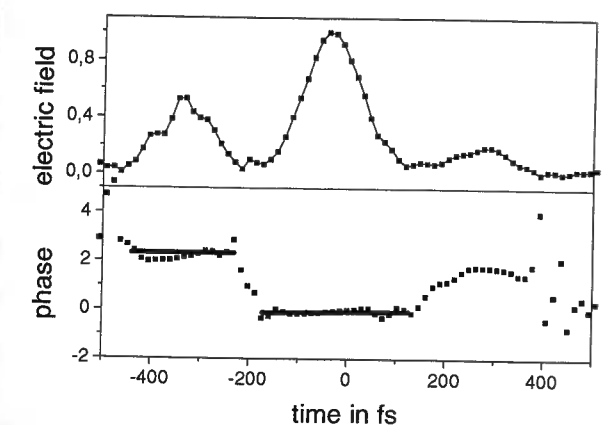


Abbildung 3.17: Mit reiner Phasenmaske modulierte Pulse, die eine feste Phasenbeziehung zueinander haben. Die theoretischen Daten sind zum Vergleich ebenfalls dargestellt.



(a) SHG FROG Bild eines Doppelpulses mit konstanter Phasenbeziehung.



(b) Die errechnete Amplitude und Phase

Abbildung 3.18: SHG-FROG Bild eines phasenmodulierten Pulses (reine Phasenmaske).

Kapitel 4

Kohärente Kontrolle der Anregung einzelner Natriumzustände

Laserpulse im Femtosekundenbereich ermöglichen eine Messung molekularer Dynamik in hoher Zeitauflösung. Zudem können sie aufgrund ihres breiten Spektrums ein nukleares Wellenpaket präparieren, also eine kohärente Anregung aller Energie-Eigenzustände mit Resonanz innerhalb der Bandbreite. Es scheint zunächst, als ob dabei die Selektivität der Besetzung verlorengehe. Neueste Entwicklungen, basierend auf der Möglichkeit Pulse speziell zu formen, zeigen wie solche Systeme dennoch gesteuert werden können. Diese Bestrebungen werden unter dem Begriff der kohärenten Quantenkontrolle [3] zusammengefaßt.

In dieser Diplomarbeit konnte gezeigt werden, wie im atomaren Natrium gezielt eine beliebige Besetzungsverteilung der 3p-Niveaus eingestellt werden kann. Insbesondere war die Selektivität so hoch, daß sie vergleichbar mit der des Adiabatic Rapid Passage (ARP)-Verfahrens [45] (ps-Bereich) ist.

Eine weitere Eigenschaft von fs-Impulsen ist die hohe Leistungsdichte, die selbst bei moderaten Energien zum Problem ungewollter Mehrphotonenprozesse führt. Zwei-Photonen-Anregungen konnten wir durch geschickte Phasenmodulation des Pulsspektrums vollständig unterdrücken, so daß die Besetzung im Grundzustand 'gefangen' blieb („Population Trapping“ [46]). Dazu mußte nichts über das molekulare System bekannt sein, da ein genetischer Algorithmus diese Aufgabe iterativ löste.

4.1 Kontrolle eines 1-Photon-Übergangs

In dem ersten Experiment wird gezeigt, wie durch zeitlich phasenkorrelierte Doppelpulse eine gezielte Besetzung der $3p_{\frac{1}{2}}$ - oder $3p_{\frac{3}{2}}$ -Natriumzustände erreicht werden kann. Die Gruppe von Kawashima [47] hat dies an Kalium für die Niveaus $4p_{\frac{1}{2}}$ und $4p_{\frac{3}{2}}$ durchgeführt. Dabei diente das Fluoreszenzsignal aus spezifisch angeregten höheren Zuständen als Nachweis der erzielten Kontrolle.

4.1.1 Theoretische Grundlagen

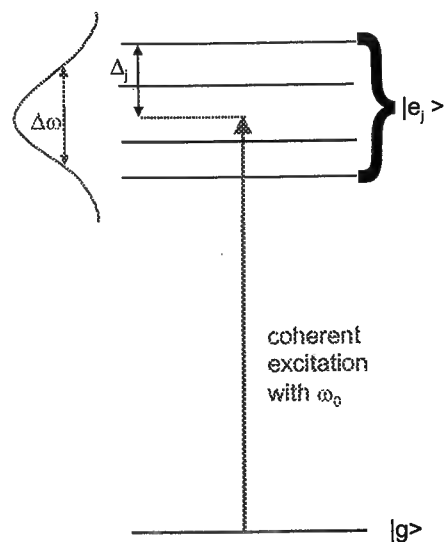


Abbildung 4.1: Kohärente Anregung mehrerer Niveaus mit einem ultrakurzen Impuls.

Durch breitbandige fs-Impulse ist es möglich, mehrere atomare Niveaus gleichzeitig kohärent zu besetzen. Dazu müssen die interessierenden Resonanzen innerhalb des Pulsspektrums der Zentralfrequenz ω_0 liegen. Kohärenzen sind sehr stark abhängig vom Phasenverhalten des anregenden Pulses. Um dies einzusehen, betrachte man den Hamiltonoperator H eines molekularen Systems mit Grundzustand $|g\rangle$ und mehreren angeregten Zuständen $|e_j\rangle$ [47] in Matrixdarstellung:

$$H = 0 \cdot |g\rangle\langle g| + \sum_j (\omega_0 + \Delta_j) \cdot |e_j\rangle\langle e_j| \quad (4.1)$$

Der angeregte Zustand j besitzt demnach die Energie $\omega_0 + \Delta_j$, wobei Δ_j das „Detuning“ der Laserzentralfrequenz angibt. Im Fall schwacher Laserfelder läßt sich die Besetzung der angeregten Zustände in erster Ordnung approximieren¹. Die Projektion des kohärenten Zustands $\Psi(t)$ (eine Superposition der angeregten Zustände) auf den Eigenzustand $|e_j\rangle$ liefert in dieser Näherung

$$\langle e_j | \Psi(t) \rangle = (i) e^{i\omega_0(t-t_0)} \mu_j \int_{t_0}^t dt_1 e^{i\Delta_j(t-t_1)} \epsilon(t_1) \quad (4.2)$$

wobei das elektrische Feld durch einen Separationsansatz als Produkt aus Einhüllender $\epsilon(t)$ und einem nur mit der Zentralfrequenz oszillierenden Term dargestellt wird. Das

¹Es wird angenommen, daß das Laserfeld nur einmal mit dem atomaren System wechselwirkt.

jeweilige Übergangsdipolmoment ist μ_j .

Die Formel 4.2 zeigt, daß alle angeregten Zustände signifikante kohärente Amplituden $c_j \equiv \langle e_j | \Psi(t) \rangle$ besitzen, die alle mit derselben anfänglichen Phase durch den breitbandigen Puls in Schwingung versetzt werden. Bisher wurde keine Annahme über die Einhüllende des elektrischen Feldes gemacht und das Resultat 4.2 gilt allgemein. Wie kann man das System nun kontrollieren?

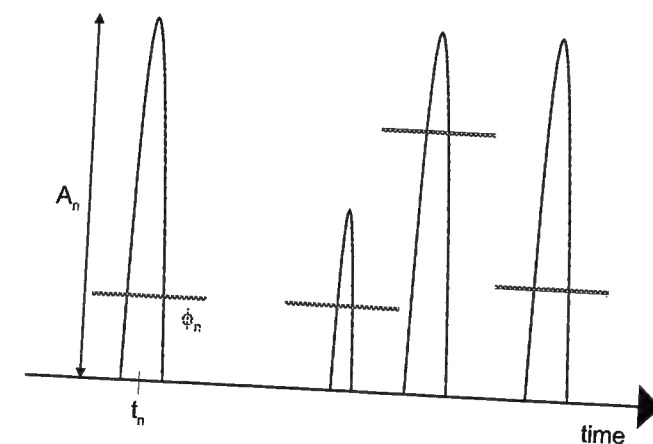


Abbildung 4.2: Die zeitliche Struktur eines modulierten Beispield-Pulses.

Der diskrete SLM kann Pulse mit folgender zeitlicher Struktur modulieren (siehe auch Abb. 4.2):

$$E_i(t) = \epsilon_i(t) e^{i\omega_0 t} + c.c. \quad \text{mit} \quad (4.3)$$

$$\epsilon_i(t) = \sum_n A_n e^{i\phi_n} u(t - t_n) \quad (4.4)$$

wobei $E_i(t)$ den geformten Impuls aus mehreren Eingangspulsen $u(t)$ der Zentralfrequenz ω_0 darstellt. Deren Amplitude A_n , Phase ϕ_n und zeitliche Verschiebung t_n können nun einzeln eingestellt werden (siehe Abschnitt 1.4). Mit dieser Pulsfolge erfolgt nun eine 1-Photonen Anregung vom elektronischen Grundzustand ($3s$) in angeregte j Zustände (in unserem Fall $3p_{1/2}$ und $3p_{3/2}$). Setzt man dieses Laserfeld in das Ergebnis 4.2 ein, so reduzieren sich die komplexen Amplituden c_j zu

$$c_j \propto (i) e^{i\omega_0(t-t_0)} \mu_j \sum_n A_n e^{i(\Delta_j t_n + \phi_n)} \quad (4.5)$$

Gleichung 4.5 beinhaltet, daß die kohärenten Amplituden durch Festlegung der Zeitpunkte t_n und optischen Phasen ϕ_n der aufeinanderfolgenden Anregungspulse kontrolliert

werden können. Im folgenden wird nur der im Experiment realisierte Spezialfall eines Doppelpulses ($n = 1, 2$) behandelt, der einen kohärenten Zustand aus der Superposition der Na 3p-Niveaus ($j = 1, 2$) erzeugt.

Ein symmetrischer Doppelpuls induziert nach 4.5 eine Besetzung des Zustands j mit der Amplitude

$$|c_j(t)|^2 \propto |\mu_j|^2 \{1 + \cos[\Delta_j \tau + \Phi]\} \quad (4.6)$$

wobei $\tau = t_2 - t_1$ der Zeitabstand und $\Phi = \phi_1 - \phi_2$ die relative Phase zwischen den beiden Pulsen bedeutet. Mittels dieser beiden Parameter erzielt man eine Kontrolle über die Besetzung der Zustände j . Diese werden in unserem Experiment über transiente Absorption abgefragt. Bei Natrium, als atomares 2-Niveau System, vereinfacht sich 4.6

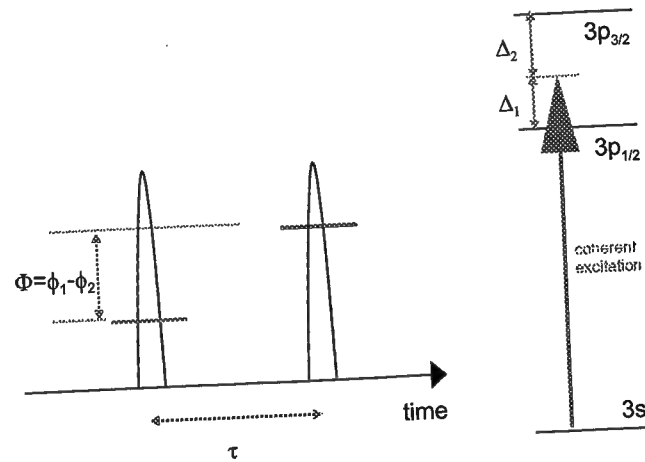


Abbildung 4.3: Doppelpulse fester zeitlicher Phasenbeziehung kontrollieren einen kohärenten Zustand im Natrium, der sich aus den beiden 3p-Niveaus zusammensetzt.

weiter und für die Besetzung der Zustände erhält man explizit

$$|c_1(t)|^2 \propto 1 + \cos(\Delta_1 \cdot \tau + \Phi) \quad (4.7)$$

$$|c_2(t)|^2 \propto 1 + \cos(\Delta_2 \cdot \tau + \Phi) \quad (4.8)$$

Variiert man also nur die relative Phase ϕ zwischen den beiden Teilpulsen, so zeigt die Besetzung beider Zustände jeweils eine cos-Modulation. Aus der Phasenverschiebung $\Delta_j \cdot \tau$ kann man das Detuning der Zentralfrequenz des Lasers von den beiden j Zuständen bestimmen².

Die relative Phasenverschiebung $\Delta_1 \tau - \Delta_2 \tau$ läßt sich durch geeignete Festlegung von τ auf $\pi/2$ einstellen. In diesem Fall schwingen die Besetzungen genau außer Phase. Wenn der Doppelpuls also die Besetzung des einen Zustands maximiert, ist die des anderen minimal. Der Zeitabstand τ beträgt dann eine halbe Beat-Periode, und man erhält die

²leider ist das Ergebnis aufgrund der Periodizität des cos nicht eindeutig

Möglichkeit vollständiger Selektivität.

Auch bezüglich des Zeitabstandes τ zeigen die Besetzungen eine cos-Modulation mit der Frequenz $\Delta_j/(2\pi)$. Diese sind um die konstante Phase Φ gegeneinander verschoben.

4.1.2 Der experimentelle Aufbau

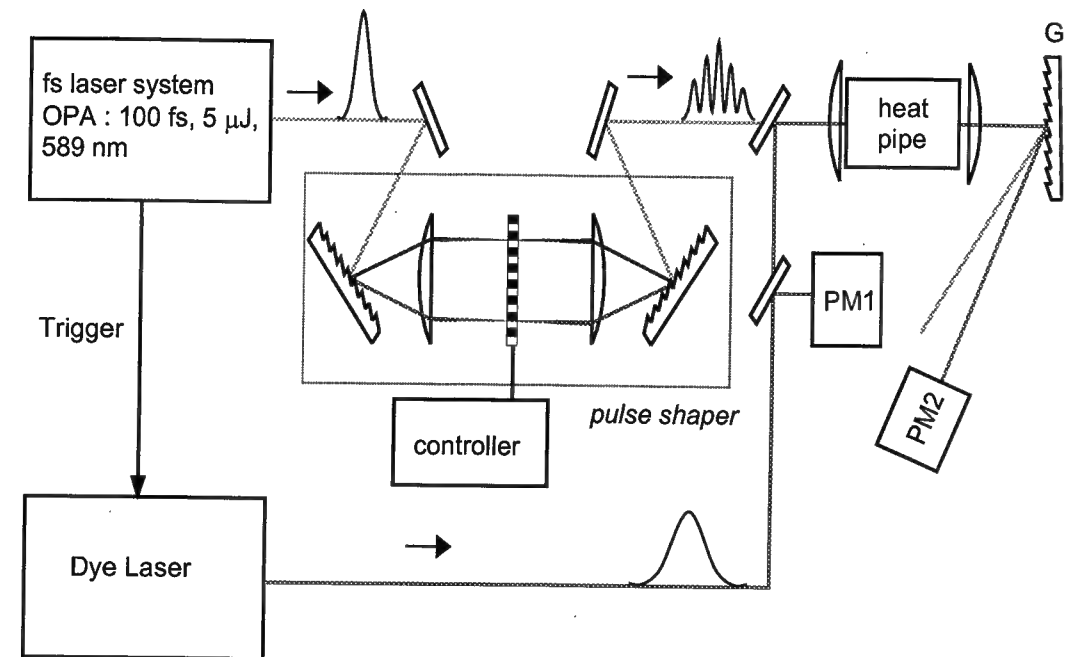


Abbildung 4.4: Experimenteller Aufbau zur Kontrolle des 1-Photonübergangs im Natrium.

Die Laserpulse (Dauer 100 fs, Energie 5 μJ) bei der resonanten Zentralwellenlänge von 589 nm wurden mit Hilfe des Pulsformers in einen Doppelpuls mit festem zeitlichen Phasenverhalten moduliert (siehe Abb. 4.3). Dieser Doppelpuls wird in eine Heatpipe [48] fokussiert, in dem Na-Dampf bei einer Temperatur von 520 K vorliegt. Diese Temperatur wurde so gewählt, daß einerseits die Teilchendichte über der Nachweisgrenze dieses Aufbaus lag und andererseits die Form des modulierten Pulses beim Durchlaufen des Ofens nahezu erhalten blieb. Als Puffergas wurde Argon bei 10 mbar Partialdruck verwendet.

Die durch den Pump-Puls induzierte Besetzung in $3p_{1/2}$ und $3p_{3/2}$ wurde mit Hilfe transientser Absorption abgefragt. Die Probepulse wurden durch den Photomultiplier PM1 (siehe Abb. 4.4) bewertet. Das Signal wurde durch das Gitter G spektral von der Pumpwellenlänge getrennt und mit PM2 nachgewiesen. Das ns-Farbstofflasersystem wurde dabei wahlweise auf den Übergang $3p_{1/2} \rightarrow 5s$ oder $3p_{3/2} \rightarrow 5s$ abgestimmt. Die Vakuumwellenlänge dieser Übergänge erscheint im Na-Dampf zu kleineren Wellenlängen

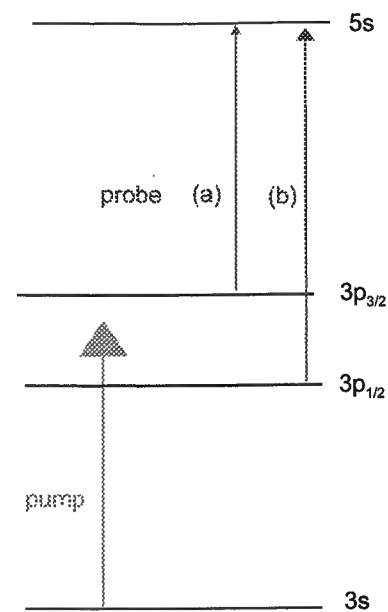


Abbildung 4.5: Der realisierte fs-Pump und ns-Probe Mechanismus.

Übergang	Vakuumwellenlänge	Gaswellenlänge T=520K
$3p_{1/2} \rightarrow 5s$	615.592 nm	615.425 nm
$3p_{3/2} \rightarrow 5s$	616.245 nm	616.069 nm

Tabelle 4.1: Umrechnungstabelle

verschoben, da der Brechungsindex temperaturabhängig ist und somit von 1 abweicht (siehe Tabelle 4.1). Das zeitliche Delay von 5ns zwischen Pump und Probe wurde durch externe Triggerung des Farbstofflasers auf den Nd-YAG Laser erzielt. Die Einstellung der Delaygeneratoren wurde mit Hilfe einer Photodiode überprüft. Der zeitliche Jitter betrug weniger als 500 ps.

Pump- und Probepuls verliefen kollinear. Somit war es möglich, die Lage beider Strahlen in der Zelle mit einer 2-dimensionalen CCD Kamera zu überprüfen. Erreicht wurde ein Überlappbereich von circa 8 cm, in dem der Pumpstrahldurchmesser größer als der des Abtaststrahls war. In diesem Fall befinden sich alle angeregten Atome im Probelaservolumen. Das Überlappgebiet bestimmt kritisch das Signal- zu Rauschverhältnis.

Pump	Probe
$I(\nu) \approx 2 \cdot 10^8 \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ pm})$	$I(\nu) \approx 1 \cdot 10^7 \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ pm})$

Tabelle 4.2: Leistungsdichte im Fokusbereich

Der Energieaustausch zwischen dem resonanten Laserfeld und dem molekularen System wird durch „Fermis goldene Regel“ beschrieben. Sie gibt die Wahrscheinlichkeit W dafür

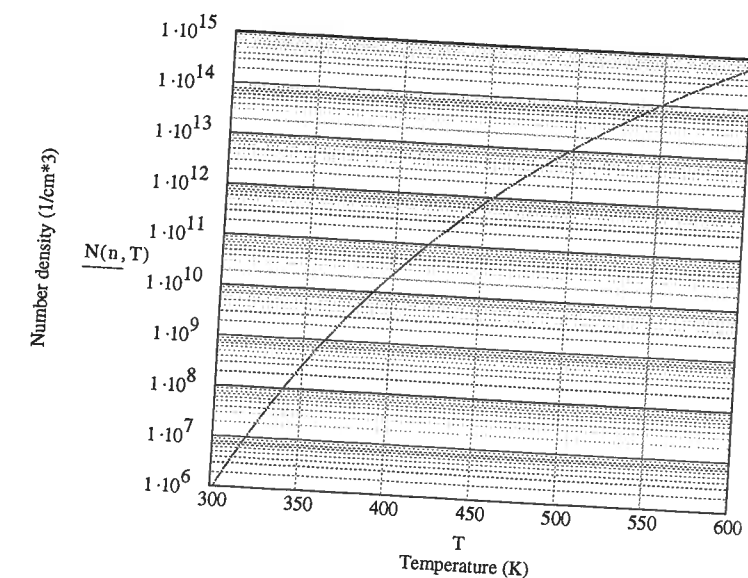
an, daß das Na-Atom mit einem Laserphoton wechselwirkt.

$$W = 2\pi\hbar|V_{fi}|^2\rho(E_{fi}), \quad (4.9)$$

wobei die Störung $|V_{fi}|^2$ proportional zur Intensität $I(\nu)$ der einfallenden Laserstrahlung ist (es gilt $V_{fi} = -\mu E$). Zudem ist die Übergangsrate proportional zur Zustandsdichte $\rho(E_{fi})$.

Diese ist im atomaren Na-Gas allein durch die Teilchendichte n gegeben. Sie kann aus der Gleichgewichtsbedingung (Clausius-Clapeyron-Gleichung) zwischen gasförmiger und flüssiger Phase bestimmt werden. Jedes Photon, das mit einer Wahrscheinlichkeit W (siehe Gl. 4.9) einen Übergang induziert und absorbiert wird, geht dem Laserfeld verloren. Somit ergibt sich die Absorption aus W zu

$$-dI \propto W \propto n \cdot I \quad (4.10)$$

Abbildung 4.6: Teilchendichte in $1/\text{cm}^3$ von Na in Abhängigkeit der Temperatur

Die Teilchenzahldichte von Natrium im Zentrum der „heat-pipe“ Zelle läßt sich aus Abb. 4.6 ablesen. Für eine Temperatur von 520 K erhält man eine Teilchendichte von $5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$. Die Pump-Leistungsdichte liest man aus Tabelle 4.2 zu $2 \cdot 10^8 \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ pm})$ ab. Die zum Nachweis nötige Teilchendichte ist also fast doppelt so groß wie die vom Laserfeld bereitgestellte Photonendichte. Man erhält so eine Abschätzung der Nachweisempfindlichkeit des Aufbaus.

4.1.3 Ergebnisse

Die experimentellen Ergebnisse zeigen die erfolgreiche Kontrolle der 3p-Besetzung im Natrium durch phasenkorrelierte Doppelpulse. Darüberhinaus kann aus den Meßdaten

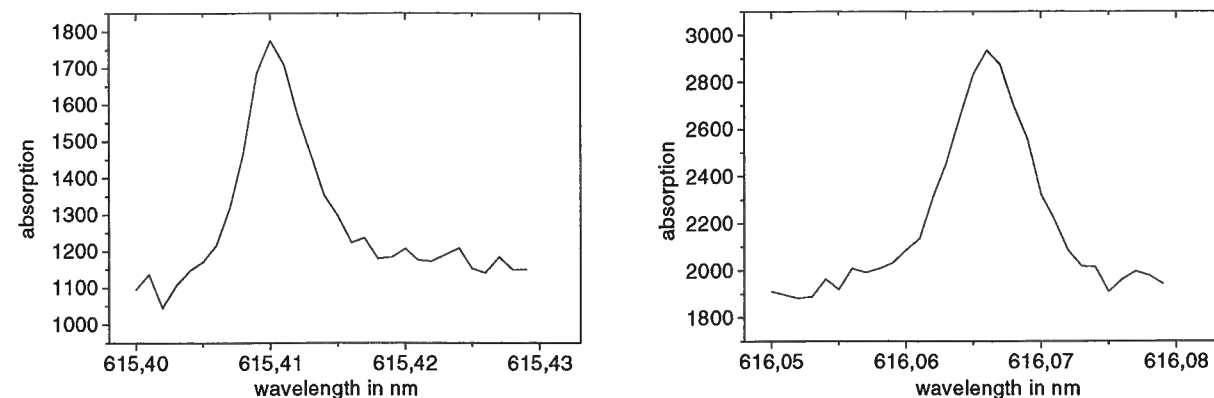


Abbildung 4.7: Die Referenz-Besetzung des $3p_{1/2}$ und des $3p_{3/2}$ Niveaus im Natrium.

das Detuning des Lasers von den resonanten Zuständen bestimmt werden. Für jede der folgenden Messungen wurden 48 verschiedene Pulspaare generiert³, die sich entweder in der relativen Phase oder in ihrem Zeitabstand unterscheiden. Im ersten Abschnitt sind die Ergebnisse mit einer Doppelpulsfolge mit festem Zeitabstand τ und variabler Phasenbeziehung Φ dargestellt. Dann wurden Doppelpulse mit konstanter Phase Φ und variablem Zeitabstand τ erzeugt.

Um die einzelnen Messungen vergleichen zu können, wird eine Referenzmessung durchgeführt. Dazu wird ein Fourierlimitierter 100 fs Pump-Puls mit einer Zentralwellenlänge von 589 nm zur Besetzung der beiden Natrium-Niveaus eingestrahlt. Der Probelaser wird auf die Übergänge $3p \rightarrow 5s$ abgestimmt um die Besetzung von $3p_{1/2}$ oder wahlweise von $3p_{3/2}$ zu bestimmen (siehe Spektren 4.7).

Doppelpuls mit variierter Phasendifferenz

Moduliert man den Pump-Puls in die Form eines Doppelpulses mit festem Zeitabstand τ und mit relativer Phasenbeziehung $\Phi = \Phi_1 - \Phi_2$, die man äquidistant von $\Phi = -\pi \dots 3\pi$ variiert, so erhält man die erwartete cos-Modulation der Besetzung in beiden Na-D-Niveaus mit Maxima bei $\Delta_1 \cdot \tau + \Phi = 0$. Nimmt man zu verschiedenen Pulsabständen (in unserem Fall für $\tau = 1200, 1600$ und 2000 fs) Transienten auf (Siehe Abb. 4.8a,b,c), so läßt sich aus der Steigung der Verbindungslinie der Extrema das Detuning Δ_1 bestimmen. Es ergibt sich zu $\Delta_1 \approx \frac{\pi}{c \cdot 800 \text{ fs}} = 131 \text{ cm}^{-1}$. Die Zentralfrequenz des Lasers liegt folglich in der Nähe der $3p$ -Resonanzen, deren Aufspaltung nur 17 cm^{-1} beträgt.

³Die Anzahl ergibt sich aus der Tatsache, daß der Speicher des Modulators für 48 verschiedene Einstellungen konfiguriert ist (siehe Abschnitt 2.4.3).

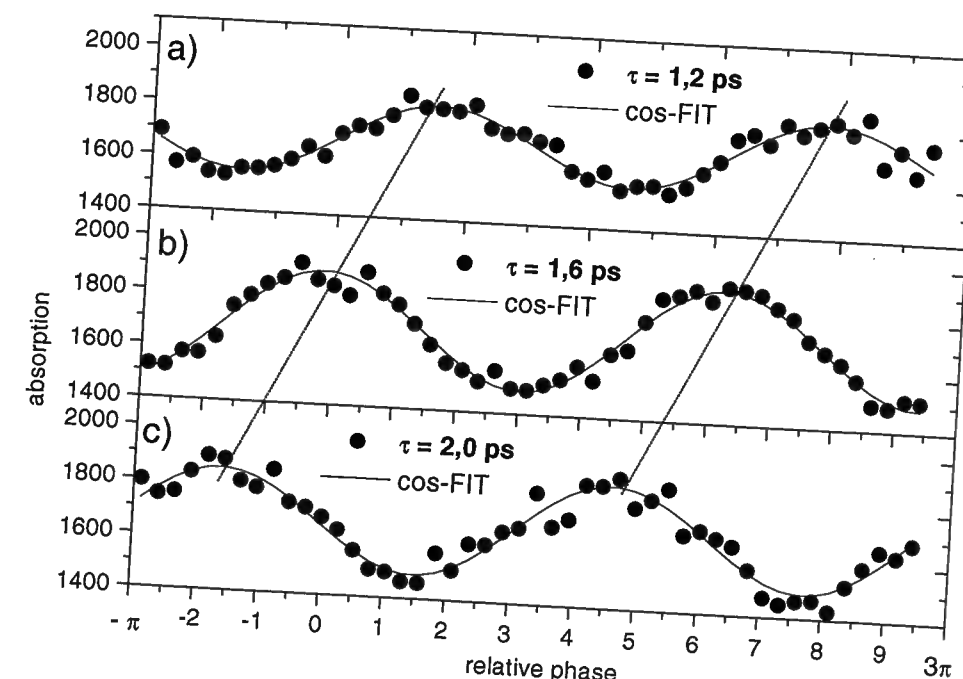
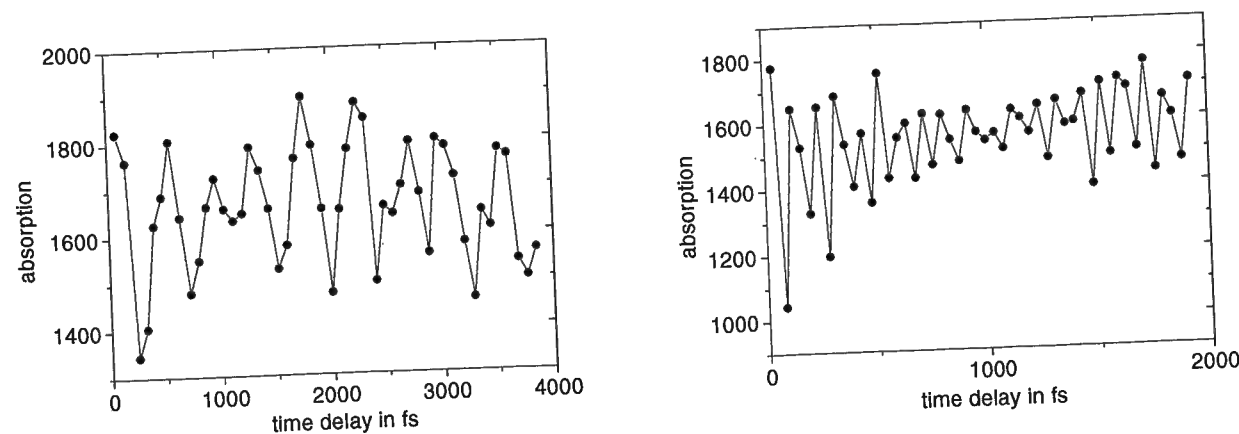


Abbildung 4.8: Besetzung des $3p_{1/2}$ Niveaus im Natrium nach Anregung mit Doppelpulsen, deren relative Phase zwischen $-\pi \dots 3\pi$ rad variiert wurde.

Doppelpuls mit variiertem Zeitabstand

Es ist auch möglich phasengleiche Doppelpulse zu erzeugen und deren Zeitabstand zu verändern. Die Besetzung in Abhängigkeit des Zeitdelays der beiden Pulse zeigt eine hochfrequente Schwingung und eine langsame Modulation (siehe Abb. 4.9 a und b). Blanchet et al. [49–51] konnten zeigen, daß die hochfrequente Schwingung der Besetzung eine Periode aufweist, die der Energiedifferenz zwischen Grund- und angeregtem Zustand entspricht. Die Wellenlänge zwischen $3s$ und $3p$ im Natrium beträgt 589.3 nm , woraus sich eine Schwingungsdauer von $T = 1.97 \text{ fs}$ errechnet. Die kleinste zeitliche Schrittweite, die der Pulsformer realisieren kann, beträgt $\tau = 40 \text{ fs}$ (siehe Abschnitt 1.4). Diese modulierten Einhüllende, deren Frequenz durch das Detuning Δ_j von den beiden Na- $3p$ -Niveaus gegeben sein sollte (siehe Abschnitt 4.1.1), aus den Daten nicht entnehmen. Die Reproduzierbarkeit der Messungen bescheinigt jedoch dem Pulsformungsaufbau eine hohe Präzision bei der Zeitabstandskontrolle.



(a) Schrittweite des zeitlichen delays 80 fs

(b) Schrittweite des zeitlichen delays 40 fs

Abbildung 4.9: Besetzung des $3p_{1/2}$ Niveaus im Natrium nach Anregung mit einem Doppelpuls, dessen relativer Zeitabstand variiert wurde.

4.2 Kontrolle eines 2-Photonen-Übergangs

Speziell geformte Pulse finden Anwendung in der Kontrolle quantenmechanischer Interferenzerscheinungen. So konnten Meshulach et al. [52] durch eine reine Phasenmodulation des Spektrums eine 2-Photonenanregung an Caesiumatomen kontrollieren. Voraussetzung hierfür war jedoch eine theoretische Modellierung des Prozesses (siehe Unterkapitel 4.2.1) im Vorfeld des Versuches. Diese Anstrengung erübrigt sich, wenn ein evolutionärer Algorithmus den SLM intelligent steuert. Am Natrium konnte dies im Rahmen dieser Diplomarbeit auf beeindruckende Weise demonstriert werden.

4.2.1 Theoretische Grundlagen

Die Wahrscheinlichkeit, eine nicht-resonante 2-Photonen-Anregung (Übergang ohne Zwischenzustände) in einem 2-Niveau System zu induzieren, kann durch folgende Überlegung abgeleitet werden: Jedes Paar von 1-Photonenübergängen (ω_1, ω_2), die Überlegung abgeleitet werden: Jedes Paar von 1-Photonenübergängen ($\omega_1, \omega_2 \in \text{Spektrum}$) und zusammen die Energie des 2-Photonenüberganges aufbringen ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_0$), tragen zur 2-Photonenübergangsamplitude bei (siehe Abb. 4.10). Eine Integration über alle diese

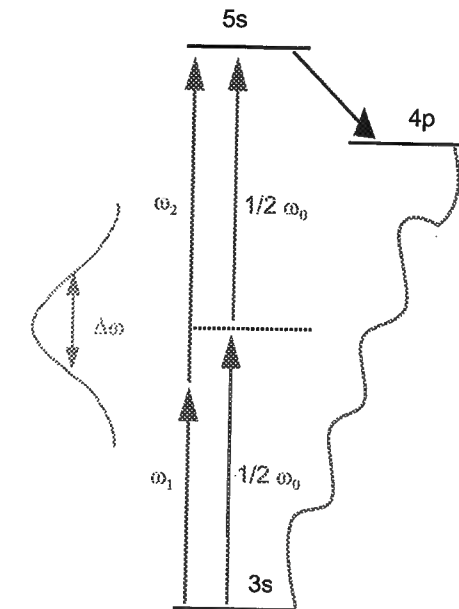


Abbildung 4.10: Schematisch dargestellt ist die kohärente Anregung mit einem breitbandigen fs Puls.

Wege ergibt die 2-Photonen-Übergangswahrscheinlichkeit

$$S_2 = \left| \int d\Omega E(\omega_0/2 + \Omega) E(\omega_0/2 - \Omega) \right|^2$$

$$= \left| \int d\Omega A(\omega_0/2 + \Omega) A(\omega_0/2 - \Omega) \exp \left\{ i \underbrace{\left[\Phi\left(\frac{\omega_0}{2} + \Omega\right) + \Phi\left(\frac{\omega_0}{2} - \Omega\right) \right]}_{\text{Phasenterm}} \right\} \right|^2, \quad (4.11)$$

wobei $E(\omega) = A(\omega)e^{-i\Phi(\omega)}$ die Fouriertransformierte von $e(t)$ ist und somit $A(\omega)$ die spektrale Amplitude und $\Phi(\omega)$ die spektrale Phase des Pulses bedeutet. Ω ist die Abweichung von der Zentralfrequenz des Lasers $\frac{\omega_0}{2}$. Kontrolle kann durch Beeinflussung des Phasenterms erfolgen (siehe Gleichung 4.11):

Maximierung von S_2

Sowohl Fourierlimitierte Pulse mit $\Phi(\omega) = 0$ als auch Pulse mit antisymmetrischer Phase $\Phi(\omega_0/2 + \Omega) = -\Phi(\omega_0/2 - \Omega)$ optimieren den 2-Photonenübergang (dies kann durch Einsetzen in Gleichung 4.11 verifiziert werden). Bemerkenswert ist, daß der 2-Photonen-Übergang unabhängig von der Amplitude des elektrischen Feldes ist: Fourierlimitierte Pulse sind zeitlich komprimiert und besitzen daher die größtmögliche Amplitude. Pulse mit antisymmetrischer Phasenfunktion können jedoch beliebig gestreckt sein und besitzen daher eine geringere Amplitude.

Minimierung von S_2

Meshulach et al. [52] errechneten numerisch aus Gleichung 4.11 Lösungen, die keinen 2-Photonen-Übergang induzieren. Diese Pulse besitzen eine spektrale Phase $\Phi = \cos(\beta\Omega)$ und unterscheiden sich nur durch den Parameter β . Sie sind somit alle symmetrisch bezüglich der Zentralfrequenz $\omega_0/2$. In der Literatur werden sie aufgrund ihrer ungewöhnlichen Anregungseigenschaft auch als „dark pulses“ bezeichnet.

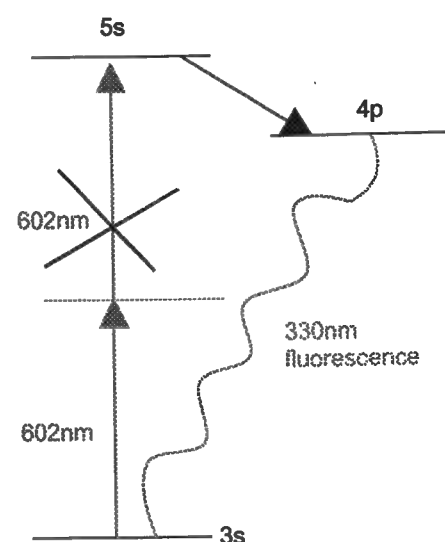
4.2.2 Der experimentelle Aufbau

Abbildung 4.11: Der gewählte 2 Photonenübergang am Natrium und seine Fluoreszenz.

Die Laserpulse (100 fs, 5 μ J) werden vom SLM moduliert und dann in eine Zelle mit Natrium fokussiert (siehe Abb. 4.12). Aufgrund der hohen Leistungsdichte wird Besetzung über einen Zwei-Photonen-Prozess von 3s nach 5s transferiert. Die Besetzung von 5s relaxiert über Stöße zu 4p, welche dann unter Fluoreszenz in den Grundzustand zurückkehrt (siehe Abb. 4.11). Es wird durch einen Schmalbandfilter gewährleistet, daß nur die 330 nm Fluoreszenz den Photomultiplier erreicht. Bei einer Ofentemperatur von 520 K erhält man ein Signal von einigen 100 ns Dauer, was der Lebensdauer von 4p entspricht. Außerdem zeigt es die erwartete exponentielle Abhängigkeit von der Temperatur (Clausius-Clapeyron), sowie die quadratische von der Pump-Intensität.

Das Fluoreszenzsignal ist direkt proportional zur Besetzung des angeregten Zustandes und dient daher dem evolutionären Algorithmus als Rückkopplung. Dieser hat die Aufgabe, die 5s Besetzung zu maximieren oder zu minimieren. Dazu bewertet er 48 verschiedene SLM-Einstellungen bezüglich der Zielsetzung und

verwirft die weniger erfolgreichen, ähnlich der biologischen Selektion. Aus den besten SLM-Einstellungen wird eine neue Generation durch Rekombination, Cross-over, Mutation und Übernahme erzeugt, die wiederum auf den SLM gespielt und über das Rückkopplungssignal bewertet werden [9, 10, 53]. Es handelt sich somit um eine aus der Elektrotechnik bekannte Rückkopplungsschleife mit biologischer Anpassung, die die instantane Antwort des chemischen Systems berücksichtigt. Erst dies ermöglicht dem Pulsformer – ohne theoretische Vorkenntnis – das Laserfeld zielgerichtet zu modulieren.

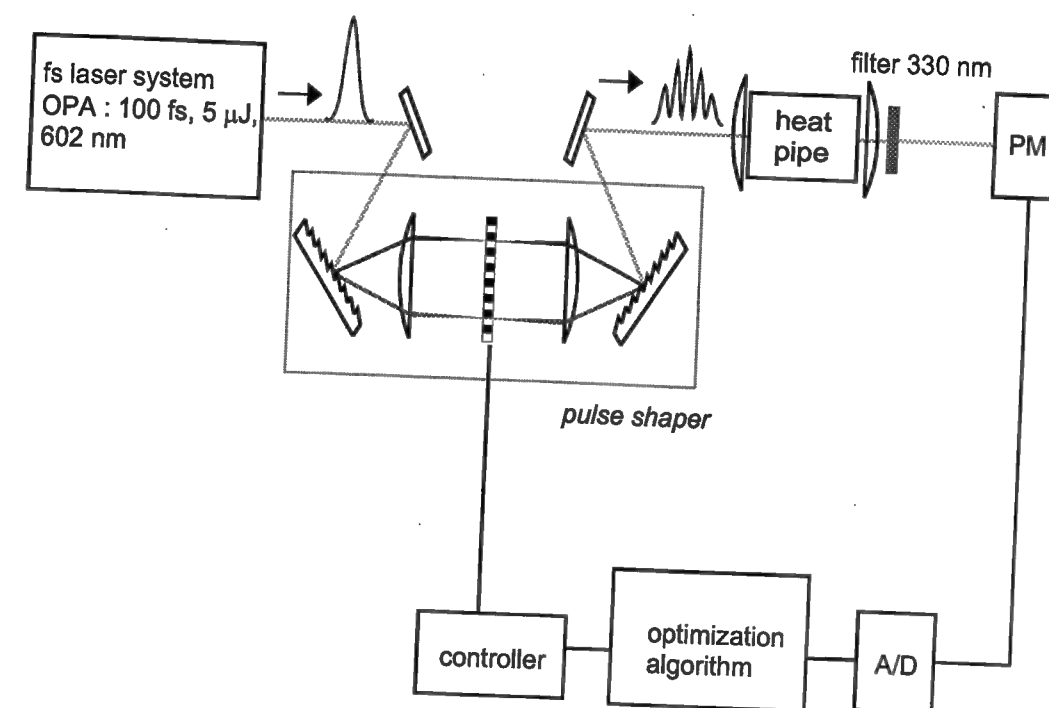


Abbildung 4.12: Der experimentelle Aufbau zur Kontrolle der 2-Photonenresonanz.

4.2.3 Ergebnisse

Die folgenden Meßdaten zur Kontrolle der 5s Besetzung entstanden durch reine Phasenmodulation des Spektrums. Sie spiegeln die Theorie sehr gut wieder, weisen jedoch noch auf zusätzliche Lösungen hin, die in bisherigen Veröffentlichungen keine Erwähnung fanden.

Kontrolle der 5s Besetzung durch periodische Phasenfunktionen

Zunächst sollte das lernende System anhand der 2-Photonen-Absorption getestet werden. Dieser Prozeß bietet sich an, da Eigenschaften des chemischen Systems nicht einfließen. Das Optimierungsproblem wurde möglichst einfach gehalten und darum eine Parametrisierung vom Typ $\Phi(n) = a \cdot \cos[b \cdot (n - 64) + c]$ gewählt, mit Streifenindex $n = 0 \dots 127$. Einerseits hat sie den Vorteil einer geringen Anzahl von Optimierungsparametern (a,b,c),

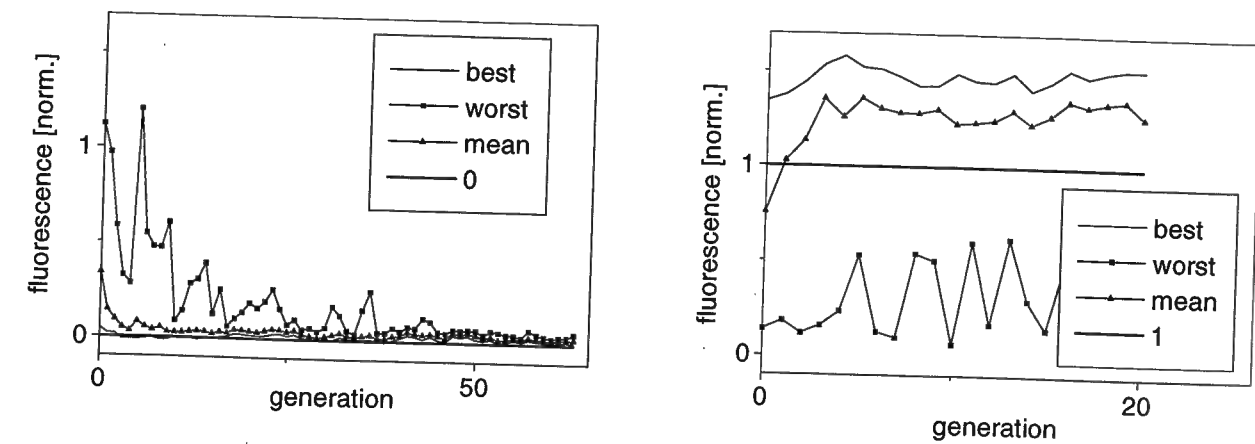
besitzt aber andererseits dennoch die ausreichende Allgemeinheit, um die Lösungen von Meshulach et al. als Spezialfall zu beinhalten. Für $c = 0$ erhält man die zur Vernichtung führende cos-Phasenfunktion, für $c = \pi/2$ die den Übergang optimierende mit sin-Verhalten. Die entsprechende Symmetrie gilt bezüglich der Zentralfrequenz (Streifen 64 des SLM).

In Abb. 4.13 sind die Optimierungs- (rechts) und die Vernichtungsmeßdaten (links) im Vergleich dargestellt. Die Abbildungen in (a) zeigen typische, normierte Konvergenzdaten des genetischen Algorithmus. Drei Kurven sind dargestellt: die Fluoreszenzausbeute der schlechtesten Individuen einer Generation (worst), die der besten Individuen (best) und die Mittelwerte aller (mean). Konvergenz für die Problemstellung ist dann erreicht, wenn die Fluoreszenz einem Endwert zuläuft, der besser oder gleich dem Referenzwert ist. Die Endwerte sind für Vernichtung 0 und für Optimierung 1,5; also jeweils eine komplette Auslöschung des Überganges und eine eineinhalbfach stärkere Fluoreszenzausbeute als der unmodulierte Referenzpuls⁴. Konvergenz stellt sich bereits nach 5 Generationen ein. Die dabei gefundenen Phasenfunktionen sind in (b) dargestellt. Für die Vernichtung wurden zwei, für die Optimierung drei Messungen durchgeführt. Stets zeigen die Lösungen eindeutig die theoretisch vorhergesagte Symmetrie bezüglich der Zentralfrequenz (Streifen 64): symmetrische Lösungen vernichten und antisymmetrische optimieren. Somit wird stets die richtige Phasenfunktion gefunden, unabhängig vom Startpunkt innerhalb des Parameterraumes.

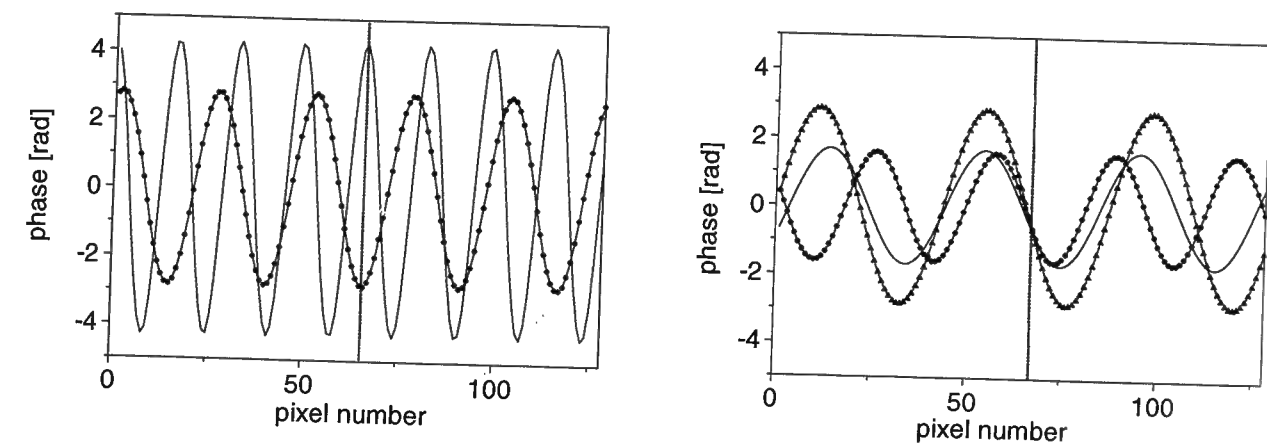
Kontrolle der 5s Besetzung mit linear interpolierten Phasenfunktionen

Der Algorithmus findet die theoretisch vorhergesagten Phasenfunktionen innerhalb weniger Generationen. Dabei ist interessant ob noch weitere Lösungen zu obiger Problemstellung existieren. Dazu erweitert man den Parameterraum durch eine allgemeinere Nebenbedingung: die Phasenfunktion soll nun eine lineare Interpolation zwischen diskretisierten Phasenwerten an vorgegebenen Stützstellen sein. Demzufolge erhöht sich auch die Anzahl der zu optimierenden Parameter von drei auf (Anzahl Stützstellen) $\times$ (Anzahl diskretisierter Phasenwerte). Die Konvergenzdaten sind in Abb. 4.14 dargestellt; die linke Spalte enthält wiederum die Vernichtungs- und die rechte die Optimierungsdaten. Konvergenz stellt sich für beide Fälle nach ca. 10 Generationen ein und erreicht Endwerte der Fluoreszenzausbeute, die vergleichbar sind mit dem Fall von drei freien Parametern. Somit sind die jetzt gefundenen Phasenfilter (b) ebenso erfolgreich in der Kontrolle wie die periodischen. Die theoretisch berechnete Phase und Amplitude der von (b) modulierten Laserfelder ist in (c) dargestellt. In den Ergebnissen zur Optimierung ist noch eine gewisse Antisymmetrie der Phasenfunktion erkennbar, während in der Vernichtung offensichtlich keine Symmetrie vorhanden ist. Bemerkenswert ist, daß vernichtende und optimierende Pulse (Abb. 4.14c) ungefähr gleiche Dauer und somit Leistung besitzen. Allein die Unterschiede in der komplexen Pulsstruktur führen zu den ganz konträren Kontrollergebnissen.

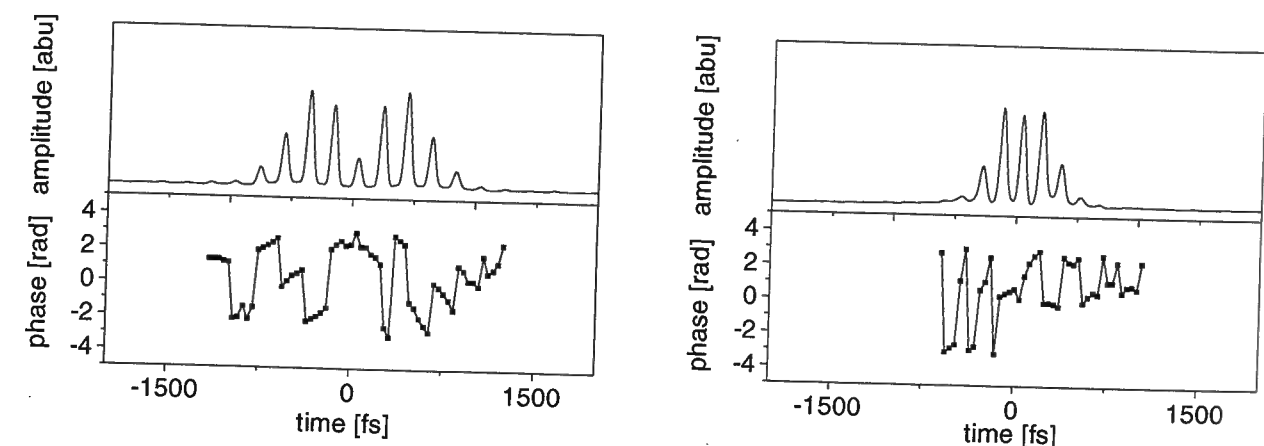
⁴Dieser war demnach am Ort der Zelle nicht mehr Fourierlimitiert, denn nach theoretischer Vorhersage sollte ein Puls mit $\phi(\omega) = 0$ maximalen 2-Photonen-Übergang induzieren.



(a) Konvergenz

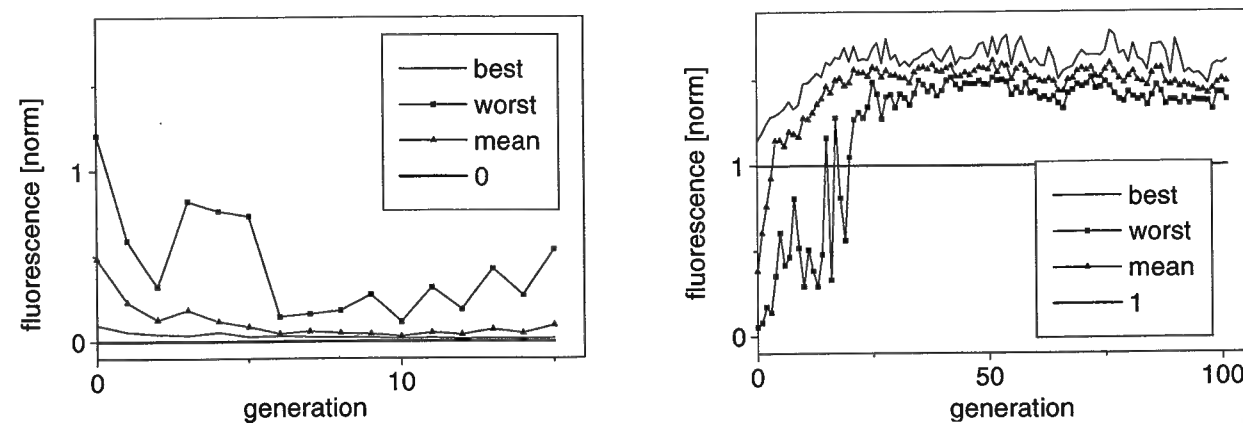


(b) Phasenmodulation des Spektrums und Symmetrieachse

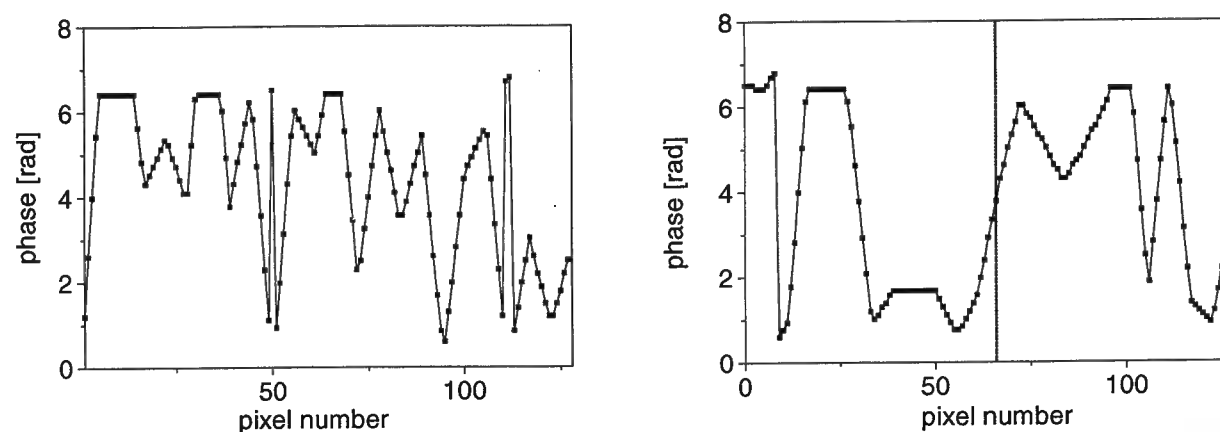


(c) Die errechnete Amplitude und Phase in der Zeit

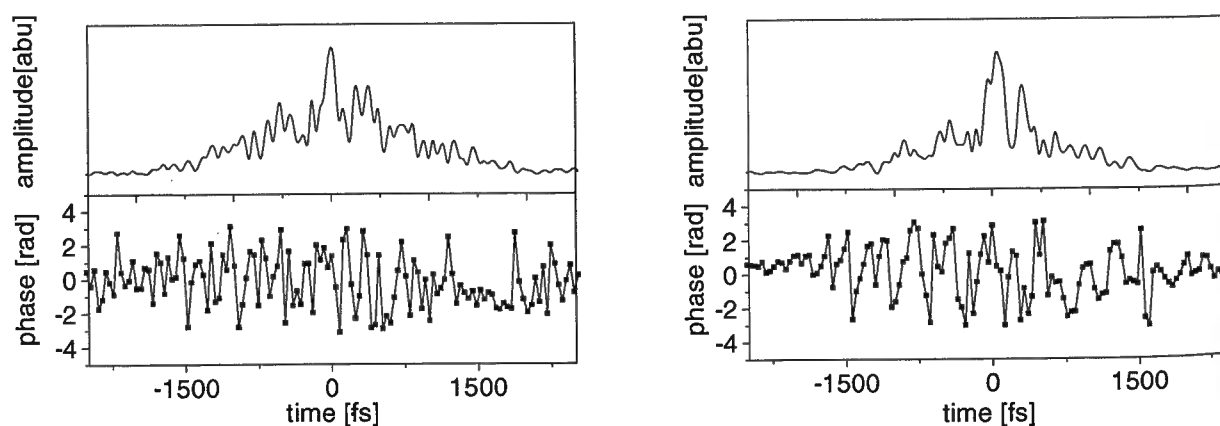
Abbildung 4.13: Links jeweils die Vernichtung der Fluoreszenz und rechts die Daten die deren Optimierung zeigen. Nur Lösungen vom Typ $\Phi(n) = a \cdot \cos[b \cdot (n - 64) + c]$ werden zugelassen.



(a) Konvergenz



(b) Phasenmodulation des Spektrums und Symmetrieachse

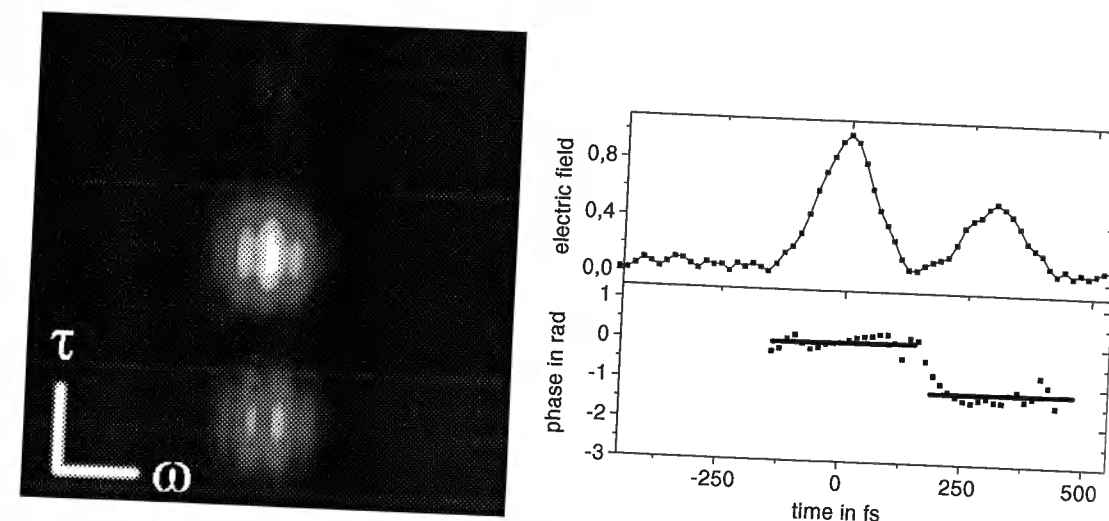


(c) Die errechnete Amplitude und Phase in der Zeit

Abbildung 4.14: Links jeweils die Vernichtung der Fluoreszenz und rechts die Daten die deren Optimierung zeigen. Der Suchraum sind alle linear interpolierten Phasenfunktionen mit einer vorgegebenen Anzahl von Stützpunkten.

4.3 Bemerkungen und Ausblick

Die erfolgreiche Kontrolle an Natrium bestätigt, daß mit dem Pulsformungsaufbau phasenkorrelierte Doppelpulse hoher Qualität erzeugt werden können. Der experimentell verifizierte cos-Verlauf der Besetzung bezüglich der Phasendifferenz 4.1.1 zeigt, daß der Zeitabstand der phasenmodulierten Doppelpulse mit einer sehr hohen Genauigkeit konstant bleibt. Wäre dies nicht der Fall, so könnte man aufgrund der 1,4 fs-Oszillationen zwischen 3s und 3p die Transienten 4.8 nicht messen. Wegen dieser guten Übereinstimmung kann man nun umgekehrt den verwendeten FROG (siehe Abschnitt 3.1.2) bewerten. Es liefert die korrekte Charakterisierung der generierten Doppelpulse. Deutlich zu erkennen ist die feste Phasenbeziehung der beiden Teilpulse in der Zeit (siehe Abb. 4.15).



(a) FROG trace

(b) Die errechnete Amplitude und Phase in der Zeit

Abbildung 4.15: Die Charakterisierung eines Doppelpulses mit der FROG Methode.

Die in dieser Diplomarbeit erreichte Kontrolle eines atomaren Übergangs mit Hilfe eines selbstoptimierenden Systems, bestehend aus genetischem Algorithmus und Pulsformer, läßt sich künftig auf kompliziertere Quantensysteme ausdehnen. Pionierarbeit in diesem Bereich leisteten Weinacht et al., denen erst kürzlich das „Bildhauen von Wellenpaketen“ mittels kohärenter Quantenkontrolle in einem molekularen System gelang [13]. Andere richtungsweisende Experimente wurden von Bardeen et al. [5] und Assion et al. [4] durchgeführt, denen die Kontrolle von großen Molekülen gelang.

Der Begriff „Coherent Control“ [55] umfaßt diese Bestrebungen auf experimenteller und theoretischer Seite, mit Hilfe von geformten Laserfeldern chemische Reaktionen zu steuern. Es zeichnet sich dabei eine enge Zusammenarbeit zwischen Theorie und Experiment ab:

Ab-initio Berechnungen der Potentialflächen und die Verwendung der „Rabitz-Control-Theory“ ermöglicht Theoretikern [2] die Berechnung von komplex modulierten Laserfeldern, die die Propagation von Wellenpaketen in die gewünschte Richtung steuern. Auf experimenteller Seite können diese Pulse bisher nur mit Pulsformungsverfahren im Frequenzraum, real erzeugt werden. Dabei erlaubt es die Verbindung von SLM und Algorithmus, über eine Rückkopplungsschleife, den experimentellen Gegebenheiten Rechnung zu tragen und die theoretische Pulsform so lange zu verändern, bis das gewünschte Kontrollziel schließlich erreicht wird.

Anhang A

Kompressoren

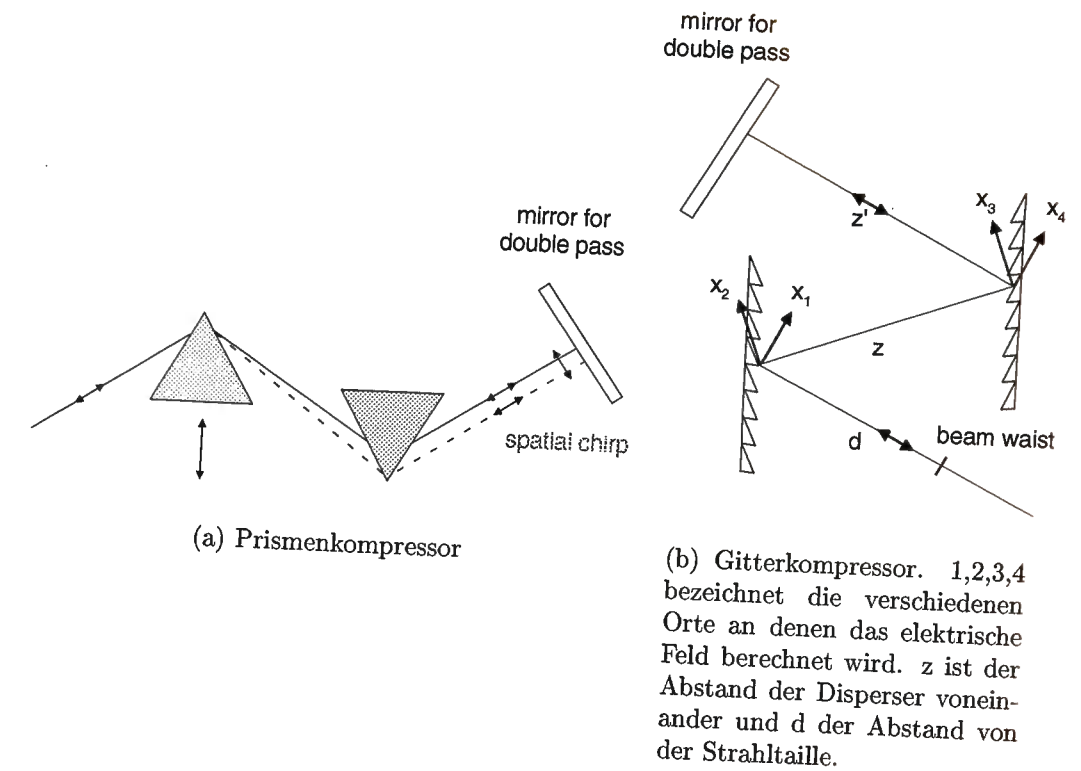


Abbildung A.1: Der Aufbau eines Prismen- und Gitterkompressors [56].

Der Pulsformungsaufbau besteht aus einem sogenannten 4-f-Aufbau, in dessen Fourier-ebene sich ein Modulator (SLM) befindet. Es handelt sich dabei im wesentlichen um einen Kompressoraufbau innerhalb eines Teleskops, der jedoch gegenüber den Kompressoren aus Abb. A.1 den großen Vorteil besitzt, die hohe Dispersion der Gitter für das Aufprägen von positiver Dispersion (GVD) zu verwenden [57]. Außerdem ist es möglich, mit diesem Aufbau (siehe Abb. B.1) die Dispersion noch weiter durch geeignete Wahl

der Linsenbrennweiten zu vergrößern. Gitterkompressoren wie in Abb. A.1b können nur negative GVD erzeugen, da sie allein auf Dispersion der Frequenzen beruhen und kein optisches Material durchlaufen wird [58]. Prismenkompressoren können zwar dem Puls positive GVD aufgrund des durchlaufenen optischen Materials aufprägen, besitzen jedoch den Nachteil niedriger Dispersion. Es werden daher meterlange Kompressorstrecken nötig, um den Chirp eines Pulses zu kompensieren. Da ein 4-f-Aufbau eine Erweiterung üblicher Kompressoren darstellt, werden zunächst letztere behandelt.

Die theoretische Behandlung stammt aus einer Veröffentlichung von Martinez [56].

- „Disperser“ steht zusammenfassend für Prisma oder Gitter. Diese zusammenfassende Beschreibung ist möglich aufgrund des physikalischen Gesetzes, daß jede Winkeldispersion zu negativer Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) führt [58]. Der Ausfallswinkel θ hängt dabei ab von dem Einfallswinkel γ und der Frequenz ω . Berücksichtigt man nur die linearen Terme der Entwicklung von $\theta(\gamma, \omega)$ nach γ und ω , so erfüllt der Disperser folgende Gleichung:

$$\Delta\theta(\Delta\gamma, \Omega) = \alpha\Delta\gamma + \beta\Omega \quad (\text{A.1})$$

wobei $\Omega = \omega - \bar{\omega}$ die Abweichung von der Zentralfrequenz bedeutet. Die lineare Näherung impliziert das Modell des idealen Kompressors. Eine Entwicklung in höhere Ordnungen betrachtet den Effekt von nichtlinearen Chirps. $\Delta\gamma$ ist die Divergenz des einkommenden Strahles. $\alpha = \frac{\partial\theta}{\partial\gamma}$ und $\beta = \frac{\partial\theta}{\partial\omega}$ sind Eigenschaften des Dispersers.

Für Prismen gilt (bei Brewsteranordnung) :

$$\alpha = 1 \quad (\text{A.2})$$

$$\beta = -\frac{\lambda^2}{\pi c} \frac{dn}{d\lambda} \quad (\text{A.3})$$

Für Gitter ergeben sich diese Größen zu (partielle Ableitung der Gitterformel):

$$\alpha = -\frac{\cos\gamma_0}{\cos\theta_0} \quad (\text{A.4})$$

$$\beta = -\frac{m}{2\pi c d \cos\theta_0} \quad (\text{A.5})$$

- Es wird ein Koordinatensystem eingeführt dessen z-Richtung identisch ist mit der Ausbreitungsrichtung des Pulses. Die x-Richtung steht stets senkrecht zur z-Richtung und liegt in der Dispersionsebene der „Disperser“. Die y-Richtung steht senkrecht auf den beiden anderen.

Die Theorie ermöglicht die Berechnung der Amplitude jeder spektralen Komponente auf der Ebene senkrecht zu z und des Verhaltens bei der Propagation dieser Lösung zu einer

parallelen Ebene (senkrecht zu $z' \neq z$). Es werden deshalb die Propagatoren von Gitter¹ und freier Ausbreitung in Luft (Fresnel-Kirchhoff Integral) benötigt, die in [56] zu finden sind. Der Eingangsstrahl mit Gauß'schem Profil wird beschrieben durch :

$$a(x, y, \omega) = a_{\text{ein}}(\omega) \exp \left[-i \frac{k(x^2 + y^2)}{2q(d)} \right] \quad (\text{A.6})$$

mit

$$q(z) = z + i\pi\sigma^2/\lambda \quad (\text{A.7})$$

wobei k die Wellenzahl ist, σ der Radius im Strahlengürtel. z ist positiv, wenn die Position des Strahlengürtels vor dem ersten „Disperser“ liegt. In y-Richtung ändert sich das Feld nur durch die Propagation in Luft. Das Feld nach dem ersten „Disperser“ in der x_3, y -Ebene ergibt sich zu (für die Bezeichnungen siehe Abb. A.1 b):

$$a(x_3, \Omega) \propto a_{\text{ein}} \exp \left(-i \frac{kx_3^2}{2z} \right) \exp \left[i \frac{kzq(d)}{2q(d + \alpha^2 z)} \left(\frac{x_2}{z^2} + \underbrace{\beta^2 \Omega^2}_{\text{GVD}} + \underbrace{\frac{2x_3 \beta \Omega}{z}}_{\text{TILT}} \right) \right] \quad (\text{A.8})$$

Die in dieser Formel auftretenden Terme lassen sich physikalisch interpretieren :

- Der TILT-Term beschreibt eine Pulsfrontverkipfung. Ein linearer Term in der Frequenz $\exp(i\tau\omega)$ erzeugt eine Verzögerung des Pulses in der Zeit um den Betrag τ (siehe Tabelle 1.1). In dem mit TILT bezeichneten Term jedoch ist die Verzögerung von x abhängig, und folglich werden weiter außen liegende Anteile des Strahlprofils stärker verzögert als die im Zentrum.
- Der GVD-Term. Aufgrund der Winkeldispersion wird negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion (group-velocity dispersion: GVD) induziert, die linear mit dem Abstand z ansteigt.

Durchläuft der Puls jetzt den zweiten Disperser invers² zum ersten, so wird die induzierte GVD am Ort des zweiten Dispersers eingefroren und die Pulsfrontverkipfung aufgehoben.

Unter den experimentellen Annahmen

- Kompressor mit $\alpha^2 = 1$. Diese Forderung ist nur erfüllt für Gitter in Littrow- und Prismen in Brewster-Anordnung. Ist diese Bedingung nicht erfüllt, weist der komprimierte Strahl einen Astigmatismus auf: die Strahltaile in y-Richtung ist nicht an derselben Stelle wie die in x-Richtung.

¹Die Propagatoren von Prismen und Gittern werden im folgenden nicht mehr hergeleitet; sie werden mit der sogenannten „Disperser“-Theorie [56] ausgerechnet.

²Bei einem invers orientierte Gitter werden die unter verschiedenen Winkeln auf die Gitteroberfläche einlaufenden spektralen Komponenten wieder kollimiert in einer Richtung und dadurch zur Interferenz gebracht.

- Gut kollimierter Eingangsstrahl, dessen konfokaler Parameter viel größer ist als der Abstand der Disperser ($\frac{\pi\sigma^2}{\lambda} \gg z$).

berechnet man die endgültige Form des Pulses im Abstand z' hinter dem zweiten Disperser zu :

$$a(x, y, \Omega) \propto a_{\text{ein}} \underbrace{\exp(ik\beta^2\Omega^2 z/2)}_{\text{GVD}} \underbrace{\exp\{-(x + \beta\Omega z)^2 + y^2/\chi^2\}}_{\text{Filter}} \quad (\text{A.9})$$

- Aus dem Term GVD errechnet sich die durch den Kompressor induzierte negative GVD zu

$$\frac{d^2\phi}{d\Omega^2} = -k\beta^2 z \quad . \quad (\text{A.10})$$

Diese Disperion steigt (im Betrag) deshalb linear mit dem Abstand der beiden Gitter an und ist wie erwartet proportional zur Dispersion. Gitterkompressoren können nur negative GVD erzeugen !

Bei Prismenkompressoren ist die durch den durchlaufenen Glasweg induzierte positive Dispersion zu addieren. Es ist also möglich, durch Verschieben der Prismen den Strahlweg durch Material zu verändern und zwischen negativer und positiver GVD zu wählen.

- Der mit „Filter“ bezeichnete Term stellt einen lateralen (in x-Richtung) räumlichen Chirp dar : jede Frequenzkomponente Ω erscheint transversal linear entlang der x-Richtung des Strahlprofils verschoben (lateraler spektraler walk-off). Dies hat zwei Konsequenzen:
 1. Effekt: Nicht mehr alle Frequenzkomponenten des Pulses können miteinander interferieren. Das führt zu einer effektiven Pulsdauerverbreiterung. Außerdem ist das Strahlprofil elliptisch.
 2. Effekt: Bei Fokussierung werden die Frequenzkomponenten unter unterschiedlichen Winkeln fokussiert. Das führt zu wiederum zu einer Winkeldispersion, die immer mit negativer GVD und Pulsfrontverkipfung verbunden ist.

Diese beiden Effekte lassen sich nun quantitativ bestimmen.

Dazu nehme man an, der Kompressor kompensiere den linearen Chirp eines verbreiterten Eingangspulses, der Fourierlimitiert die Pulsdauer τ_0 besitze. Man erwartet nun am Ausgang des Kompressors die Pulsdauer, die sich im Fourierlimitierten Grenzfall ergibt. Aufgrund des ersten Effektes läßt sich der Puls nur bis zu einer Dauer von $\tau_f = \tau_0(1+u)^{1/2}$ mit $u = \frac{4\beta^2 z^2}{\tau_0^2 \sigma^2}$ komprimieren. An der Elliptizität des Strahlprofils läßt sich die erreichte Kompression ablesen; es gilt $\frac{\tau_f}{\tau_0} = \frac{\sigma_x}{\sigma_y}$. Ein rundes Strahlprofil, und demnach Kompression bis zur Fourierlimitierten Pulsbreite lassen sich nie erreichen.

Die Messung der Pulsdauer durch Fokussierung des komprimierten Pulses liefert aufgrund des zweiten Effektes falsche Werte. Ein Detektor im Fokus einer Linse würde eine

Pulsdauer $\Delta t = \frac{4\beta z}{\sigma} = 2\tau_0\sqrt{u}$ messen, die der transversalen Verzögerung innerhalb des Punktfokus entspricht. Erst ein Verkippen des Detektors um denselben Betrag wie die Pulsfrontverkipfung im Fokus, $\tan \Phi = \frac{\omega\beta z}{f}$, ergäbe die Fourierlimitierte Pulsdauer τ_0 . Wird der Kompressoraufbau zweimal durchlaufen, so verdoppelt sich zwar die GVD, aber dafür tritt kein lateraler-spektraler walk-off mehr auf, und die experimentelle Bedingung der guten Kollimierung muß nicht erfüllt werden. Dieser aus vier Dispersern aufgebaute Kompressor führt nur bei Prismen zu geringen Verlusten mit allen oben aufgeführten Vorteilen.

Anhang B

Der 4-f-Aufbau

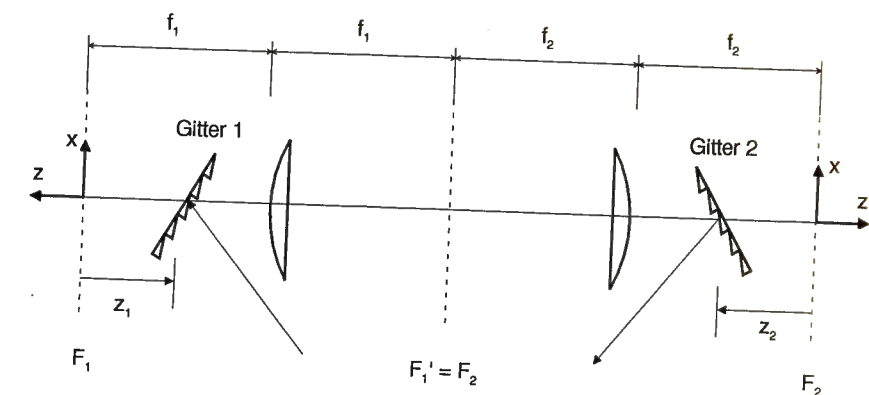


Abbildung B.1: Der Aufbau mit Disperser und Teleskop wird als 4-f-Aufbau bezeichnet. Durch das Teleskop ist es möglich, die Dispersion von Gittern um den Vergrößerungsfaktor $M = \frac{f_1}{f_2}$ zu erhöhen [57].

Die positive Dispersion des Aufbaus ist folgendermaßen zu erklären [57]: Zwischen den beiden Fokalebene F_1 und F_2' ist die optische Weglänge für alle unter verschiedenen Winkeln propagierenden Frequenzen gleich lang¹. Somit wird auf dieser Strecke keine Dispersion durch Winkeldispersion induziert. Man stelle sich nun vor, Gitter 1 befindet sich genau auf der Fokalebene F_1 , also $z_1 = 0$. Somit hätte der Puls in der Fokalebene F_2 dieselbe Dispersion wie der Eingangspuls. Der Eingangspuls sei Fourierlimitiert und habe deshalb die Dispersion 0. Nun wird dieser jedoch bereits vorher von Gitter 2 ausgekoppelt. Dadurch erhält der Puls positive Dispersion, die vom Betrag her genau der negativen Dispersion durch die Propagation um z_2 entspricht. Auch die negative Dispersion kann man plausibel erklären, siehe dazu Abb. B.2.

Der vorgeschlagene Aufbau weist eine Inversion auf; ein aufrechtstehender Gegenstand wird durch das Teleskop als kopfstehendes Bild abgebildet. Es ergeben sich folgende Möglichkeiten, den Aufbau zu vereinfachen (unter Beachtung der Inversion) :

¹Angenommen werden aberrationsfreie Linsen

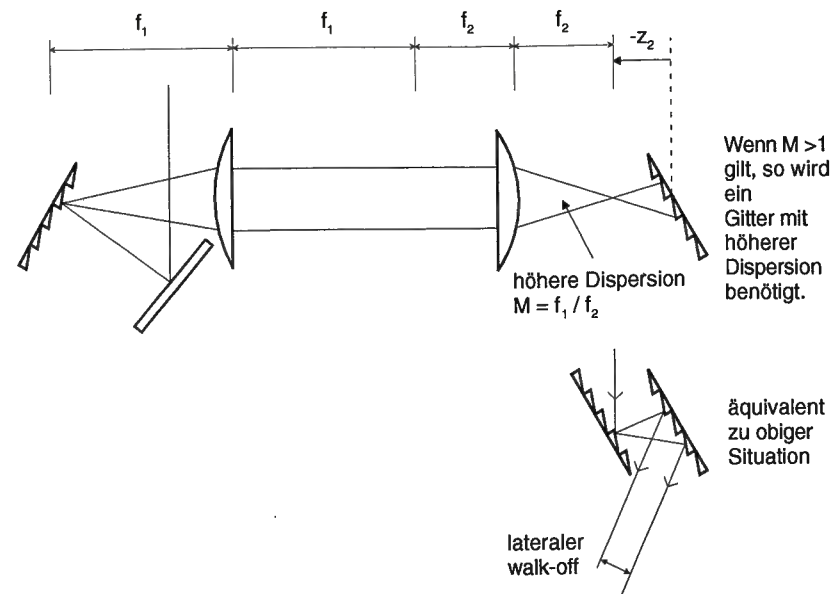


Abbildung B.2: Verschieben des Gitter weg von Brennebene in negative z - Richtung induziert negative GVD. Ein Ersatzbild, indem das erste Gitter an die Position der zweiten Brennebene rückt, zeigt die Äquivalenz zu einem Gitterkompressoraufbau.

- $M=1$ - Aufbau. Statt zweiter Linse und Gitter: Aufstellen eines Spiegels in der Ebene F'_1 .
- $M>1$ - Aufbau. Dazu muß das zweite Gitter eine höhere Strichzahl (Dispersion) besitzen. Es besteht die Möglichkeit, dieses als erstes Gitter zu verwenden und den zuvor erwähnten Aufbau mit $M=1$ zu realisieren. Möchte man dennoch einen Aufbau mit Vergrößerung M , so ist es möglich, den Strahlengang durch ein Dachprisma hinter der zweiten Linse zu falten. Dadurch bleibt die Anzahl der Inversionen ungeradzahlig, und das Spektrum wird auf das erste Gitter zurückreflektiert.

Die mit diesem Aufbau erreichbare GVD wird durch Formel A.10 gegeben; dazu setze man lediglich $z = z_2 + z_1/M^2$. Man erhält damit weiter

$$\frac{d^2\phi}{d\Omega^2} = k\beta^2(z_1 + M^2z_2) \quad (B.1)$$

Zusammenfassend treten folgende Effekte auf (siehe Abschnitt B):

- Einmaliges Durchlaufen des 4-f Aufbaus, wie es im Pulsformer realisiert ist.

1. Forderung nach guter Strahlkollimierung : $d \ll k\sigma^2/2$ und $\alpha^2z \ll k\sigma^2/2$
2. Verbreiterung der Pulsdauer durch spektralen, lateralen walk-off : $\tau^2 = (1 + u)\tau_0^2$
3. Tilt der Pulsfront bei Fokussierung : $\tan \Phi = \frac{\omega\beta z}{f}$

4. Zeitverzögerung aufgrund des Tilts : $\Delta t = 2\tau_0\sqrt{u}$

5. GVD = $k\beta^2(z_1 + M^2z_2)$

- Zweimaliges Durchlaufen des gesamten 4-f Aufbaus durch Anbringen eines Spiegels hinter Gitter 2. Keiner der Effekte des einmaligen Durchlaufens treten auf, man erhält sogar die doppelte GVD.
- Der Durchmesser der Linsen des Teleskopaufbaus muß so groß sein, daß das gesamte Spektrum des Pulses die Linsenapertur passieren kann.

Der im Kapitel 1.3 beschriebener Pulsformer basiert auf dem 4-f-Aufbau. Deshalb sind alle hier beschriebenen Effekte auch dort zu beachten. Um die Justage des 4-f-Aufbaus zu überprüfen, sollten die obigen Punkte des einmaligen Durchlaufens beachtet werden. Der rechte Teil des Pulsformers ist in Abbildung B.3 gezeigt und belegt, daß die besprochenen Effekte auch dort auftreten.

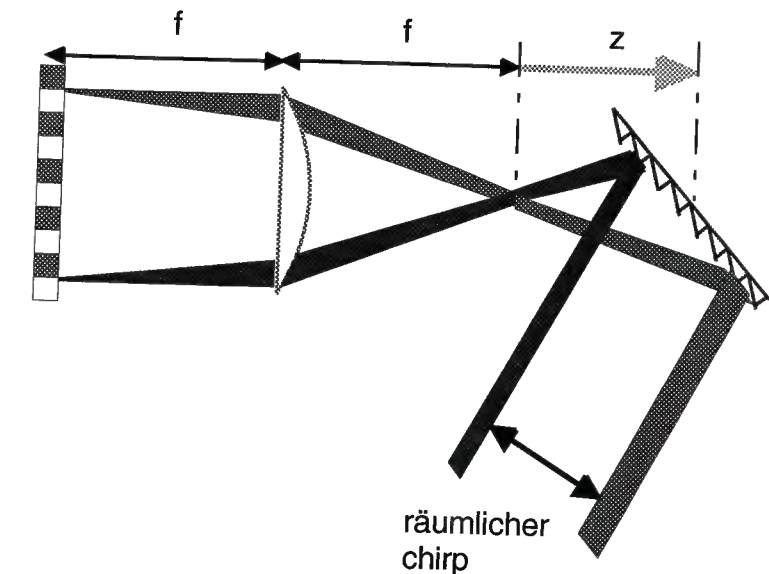


Abbildung B.3: Lateraler walk-off bei eingestellter negativer GVD tritt auch im hier dargestellten Pulsformeraufbau auf.

Literaturverzeichnis

- [1] P. Gaspard, I. Burghardt (Eds.), *Advances in Chemical Physics: Chemical Reactions and Their Control on the Femtosecond Time Scale. XXth Solvay Conference on Chemistry*; John Wiley & Sons, United States of America 101 (1997)
- [2] J. Manz, K. Sundermann, R. de Vivie-Riedle; *Chem. Phys. Lett.* 290 (1998) 415-422
- [3] R. S. Judson, H. Rabitz; *Phys. Rev. Lett.* 68 (1992) 1500-1503
- [4] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber; *Science* 282 (1998) 919-922
- [5] C. J. Bardeen, V. Y. Yakovlev, K. R. Wilson, S. D. Carpenter, P. M. Weber, W. S. Warren; *Chem. Phys. Lett.* 280 (1997) 151-158
- [6] M. M. Wefers, K. A. Nelson; *J. Opt. Soc. B* 12 (1995) 1343-1362
- [7] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman; D. J. Kane; *Rev. Sci. Instrum.* 68 (1997) 3277-3295
- [8] N. F. Scherer, A. J. Ruggiero, M. Du, G. R. Fleming; *J. Chem. Phys.* 93 (1990) 856
- [9] H.-P. Schwefel, *Evolution and Optimum Seeking*; John Wiley & Sons, United States of America (1995)
- [10] D. Yelin, D. Meshulach, Y. Silberberg; *Opt. Lett.* 22 (1997) 1793
- [11] A. H. Zewail, *Femtochemistry: Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond*; World Scientific Series in 20th Century, Singapore 1 (1994)
- [12] J. Manz, L. Wöste (Eds.), *Femtosecond Chemistry*; VCH, Weinheim (Germany) 1 (1995)
- [13] T. C. Weinacht, J. Ahn, P. H. Bucksbaum; *Nature* 397 (1999) 233-235
- [14] C. J. Bardeen, Q. Wang, C. V. Shank; *Phys. Rev. Lett.* 75 (1995) 3410-3413
- [15] G. Cerullo, C.J. Bardeen, Q. Wang, C. V. Shank; *Chem. Phys. Lett.* 262 362-368
- [16] S. Ruhman, R. Kosloff; *J. Opt. Soc. Am. B* 7 (1990) 1748-1752

- [17] W. S. Warren, H. Rabitz, M. Dahleh; *Science* **259** (1993) 1581-1589
- [18] D.J. Tannor, S.A. Rice; *J Chem. Phys.* **83** (1985) 5013
- [19] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, J. R. Wullert; *IEEE J. Quant. Electron.* **28** (1992) 908-920
- [20] M. M. Wefers, K. A. Nelson; *Opt. Lett.* **20** (1995) 1047-1049
- [21] T. Hornung, D. Zeidler, K.-L. Kompa, M. Motzkus; *Verhandlungen der 63. Physikertagung (DPG) in Heidelberg Q 4.5* (1999) 381
- [22] J.-C. Diels, W. Rudolph, In P. F. Liao, P. L. Kelley, I. Kaminow (Eds.), *Optics and Phonics: Ultrashort Laser Pulse Phenomena*; Academic Press, United States of America (1996)
- [23] A. M. Weiner; *Prog. Quant. Electr.* **19** (1995) 161-237
- [24] J. X. Tull, M. A. Dugan, W. S. Warren; *Advances in Magnetic and Optical Resonance*, **20** (1997) 1-65
- [25] M. A. Dugan, J. X. Tull, W. S. Warren; *J. Opt. Soc. Am. B* **14** (1997) 2348-2358
- [26] M. M. Wefers, K. A. Nelson; *IEEE J. Quant. Electron.* **32** (1996) 161-172
- [27] D. H. Reitze, A. M. Weiner, D. E. Leaird; *Appl. Phys. Lett.* **61** (1992) 1260
- [28] R. N. Thurston, J. P. Heritage, A. M. Weiner, W. J. Tomlinson; *IEEE J. Quant. Electron.* **22** (1986) 682-696
- [29] A. Efimov, C. Schaffer, D. H. Reitze; *J. Opt. Soc. Am. B.* **12** (1995) 1968-1980
- [30] D. Zeidler, K.-L. Kompa, M. Motzkus; *Verhandlungen der 63. Physikertagung (DPG) in Heidelberg Q 45.6* (1999) 424
- [31] CRI *Spatial Light Modulator Optics. User's Manual*
- [32] A. M. Weiner, S. Oudin, D. E. Leaird, D. H. Reitze; *J. Opt. Soc. Am. B* **10** (1993) 1112-1120
- [33] K. Takasago, T. Itoh, M. Takekawa, K. Utoh, F. Kannari; *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** (1996) 624-629
- [34] K. Takasago, M. Takekawa, M. Suzuki, K. Komori, F. Kannari; *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.* **4** (1998) 346-352
- [35] CRI *Spatial Light Modulator Electronics Driver. User's Manual*
- [36] J.-K. Rhee, T. S. Sosnowski, A.-C. Tien, T. B. Norris; *J. Opt. Soc. Am. B.* **13** (1996) 1780-1785

- [37] D. N. Fittinghoff, J. L. Bowie, J. N. Sweetser, R. T. Jennings, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, R. Trebino; *Opt. Lett.* **21** (1996) 884-886
- [38] K. W. DeLong, R. Trebino; J. Hunter, W. E. White; *J. Opt. Soc. Am. B* **11** (1994) 2206-2215
- [39] A. M. Weiner; *IEEE J. Quant. Electron.* **19** (1983) 1276-1283
- [40] Z. Cheng, A. Furbach, S. Sartania, M. Lenzner, C. Spielmann, F. Krausz; *Opt. Lett.* **24** (1999) 247-249
- [41] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, R. Trebino; *IEEE J. Quant. Electron.* **32** (1996) 1253-1263
- [42] C. Radzewicz, Y. B. Band, G.W. Pearson, J. S. Kransinsky; *Opt. Comm.* **117** (1995) 295-302
- [43] C. J. Bardeen, J. Che, K. R. Wilson, V. V. Yakovlev; P. Cong; B. Kohler, J. L. Krause; M. Messina; *J. Phys. Chem. A* **101** (1997) 3815-3822
- [44] A. H. Buist, M. Müller, R. I. Ghauharali, G. J. Brakenhoff; J. A. Squier; C. J. Bardeen, J. Che, V. J. Yakovlev; *Opt. Lett.* **24** (1999) 244-246
- [45] J. S. Melinger, S. R. Gandhi, A. Hariharan, D. Goswami, W. S. Warren; *J. Chem. Phys.* **101** (1994) 6439-6454
- [46] V. S. Malinkovsky, C. Meier, D. J. Tannor; *Chem. Phys.* **221** (1997) 67-76
- [47] H. Kawashima, M. M. Wefers, K. A. Nelson; *Annu. Rev. Phys. Chem.* **46** (1995) 627-656
- [48] C. R. Vidal; *Physik in unserer Zeit* **6** (1972) 174-183
- [49] V. Blanchet, C. Nicole, M.-A. Bouchene, B. Girard; *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 2716-2719
- [50] V. Blanchet, M.-A. Bouchene, O. Cabrol, B. Girard; *Chem. Phys. Lett.* **233** (1995) 491-499
- [51] V. Blanchet, M.-A. Bouchene, B. Girard; *J. Chem. Phys.* **108** (1998) 4862-4875
- [52] D. Meshulach, Y. Silberberg; *Nature* **396** (1998) 239-242
- [53] D. Zeidler, T. Hornung, M. Motzkus; *Verhandlungen der 63. Physikertagung (DPG) in Heidelberg Q 36.4* (1999) 412
- [54] C. J. Bardeen, J. Che, K. R. Wilson, V. J. Yakovlev; *J. Chem. Phys.* **106** (1997) 8486-8503
- [55] R. N. Zare; *Science* **279** (1998) 1875-1878

- [56] O. E. Martinez; J. Opt. Soc. Am. B. 3 (1986) 929-934
- [57] O. E. Martinez; IEEE J. Quant. Electron. 23 (1987) 59-64
- [58] O. E. Martinez, R. L. Fork, J. P. Gordon; J. Opt. Soc. Am. B. 1 (1984) 1003-1006

Auf dieser Seite meiner Diplomarbeit möchte ich mich bei folgenden Personen bedanken:

Herrn Prof. Dr. Dr. h.c. K.-L. Kompa, der das Projekt großzügig unterstützt hat und mir jetzt die weitere Laufbahn am MPQ ermöglichte. Für dieses Vertrauen bin ich ihm sehr dankbar.

Herrn Prof. Dr. A. Laubereau, der sich trotz seines engen Terminplanes bereit erklärte die Funktion als Zweitgutachter zu übernehmen. Er bekundete besonderes Interesse für meine Diplomarbeit und konnte mir gute Ratschläge geben, aufgrund seiner Erfahrung als Korrektor.

Herrn Dr. M. Motzkus, der mich über diese eineinhalb Jahre sehr gut betreut hat und der stets offen war für ein Gespräch. Er bot mir viele Möglichkeiten meine Arbeit in der Öffentlichkeit zu präsentieren, wobei er engagiert half meinen Vortragsstil zu verbessern. Nicht vergessen werde ich die Zeit, die er mir gab, um eigene experimentelle Vorschläge zu verwirklichen.

Herrn Dr. D. Proch, der minuziös diese Diplomarbeit korrigiert hat und dessen Anregungen zum Fortschritt der Diplomarbeit viel beigetragen haben.

Herrn H. Bauer, dem ich jegliche technische Probleme anvertrauen konnte. Er löste sie stets auf elegante Weise mit unermüdlichen Eifer und Gewissenhaftigkeit.

Dirk Zeidler, Tobias Lang und Richard Meier, die mir mit guten Ideen immer zur Seite standen und sehr hilfsbereit waren, so daß eine sehr angenehme Zusammenarbeit entstand. Ihnen danke ich besonders, daß sie sich die Korrektur so zu Herzen genommen haben, ohne der diese Diplomarbeit nur sehr langsam zu einem Abschluß gekommen wäre.

Dann möchte ich noch Lukas Kurtz und Peter Hornung danken, die ebenfalls eifrig Korrektur gelesen haben, und Armin Dobner, der mir ausgiebig mit $\text{\LaTeX}$ geholfen hat.

Meinen Eltern bin ich für die finanzielle Unterstützung und meiner Irina Neyla für die entgegengebrachte Liebe während dieser Zeit sehr verbunden.



