

# Parametrische Verstärkung von Einzyklen-Pulsen und deren kohärente Wechselwirkung mit einem Zwei-Niveau-System

Von der Fakultät für Mathematik und Physik  
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover  
zur Erlangung des Grades

**Doktor der Naturwissenschaften**

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

von

**Dipl.-Phys. Anne Harth**

geboren am 08.08.1982 in Frankfurt (Main)

2013

Referent: Prof. Dr. Uwe Morgner  
Korreferent: Prof. Dr. Luis Santos  
Korreferent: Prof. Dr. Franz Kärtner

Prüfungsvorsitz: Prof. Dr. Manfred Lein  
Prüfer: Prof. Dr. Uwe Morgner  
Prüfer: Prof. Dr. Luis Santos  
Prüfer: Prof. Dr. Franz Kärtner

Tag der Promotion: 3. Mai 2013

# Kurzfassung

Anne Harth

## Parametrische Verstärkung von Einzyklen-Pulsen und deren kohärente Wechselwirkung mit einem Zwei-Niveau-System

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuartiges Konzept entwickelt, um Einzyklen-Pulse im sichtbaren Spektralbereich zu verstärken, da gewöhnliche Verstärkersysteme die dafür nötige Bandbreite nicht unterstützen. Es basiert auf der seriellen Pulssynthese zweier breitbandiger optisch-parametrischer Verstärker mit einer integrierten Superkontinuumserzeugung, welche das Spektrum für den Einzyklen-Puls bereitstellt.

Da die parametrischen Verstärker für die Synthese jeweils mit einer unterschiedlichen Pumpwellenlänge betrieben werden, liegen die Verstärkungsspektren in benachbarten Spektralbereichen, so dass die Synthese zu einem breiten kohärenten Spektrum führt, das vom sichtbaren bis hin zum nahinfraroten Spektralbereich reicht.

Das verstärkte Spektrum hinter den beiden Verstärkerstufen hat eine Pulsenergie von  $1 \mu\text{J}$  bei einer Pulswiederholrate von  $200 \text{ kHz}$  und unterstützt Pulsdauern unter  $3 \text{ fs}$ . Dies entspricht im sichtbaren Spektralbereich einem Puls mit nahezu einer einzigen Träger-Oszillation unter der Intensitätseinhüllenden.

Zusammen mit der in dieser Arbeit vorgeschlagenen Pulskompression, die auf einem geeigneten Pulsformer basiert, und einer Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase des Pulses, ist dieses neuartige Verstärker-Konzept in der Lage Einzyklen-Pulse zu verstärken und damit eine geeignete Quelle für spektroskopische Studien im Bereich der extrem kurzen Pulsdauern.

Diesbezüglich wurde in dieser Arbeit ebenfalls die Abhängigkeit der Populationswahrscheinlichkeit eines atomaren Systems von der Träger-Einhüllenden-Phase eines Einzyklen-Pulses untersucht. Es wurde eine bestimmte Quantenpfadinterferenz identifiziert, die aufgrund der spektralen Eigenschaften des in dieser Arbeit erzeugten Spektrums geeignet ist die von der Träger-Einhüllenden-Phase abhängige Zustandsbesetzung zum ersten Mal experimentell über einen optischen Übergang nachzuweisen.

**Schlagerworte:** Einzyklen-Puls, Parametrische Verstärkung, Superkontinuumserzeugung, Quantenpfadinterferenz



# Abstract

Anne Harth

## Parametric amplification of single-cycle pulses for the coherent control of atomic systems

Within the scope of this thesis, a novel concept for the amplification of single-cycle laser pulses in the visible spectral range has been developed, since commonly used amplifiers do not support the required amplification bandwidth. It is based on the serial pulse synthesis of two broadband optical parametric amplifiers with an integrated supercontinuum generation, providing the spectrum for the single-cycle pulse.

Given the different pump wavelength of the parametric amplifiers used for the pulse synthesis, the amplified spectra are located in different spectral regions, hence the synthesis leads to a broadband spectrum, spanning from the visible to the near infra-red.

The amplified spectrum after the two amplification stages contains a pulse energy of 1  $\mu\text{J}$  at a repetition rate of 200 kHz and supports a pulse duration below 3 fs. In the visible spectral range this corresponds to a pulse with nearly one carrier oscillation under the pulse envelope.

Along with the pulse compression proposed in this thesis, which is based on a suitable pulse-shaper setup in combination with a stabilisation of the carrier-envelope phase of the pulse, this novel amplification concept is capable of single-cycle pulse generation and is therefore an appropriate source for spectroscopic studies in the regime of extreme short pulse durations.

In this respect the dependency of the population probability of an atomic system on the carrier-envelope phase has been studied. A specific quantum path interference was identified, suited to verify experimentally the carrier-envelope phase dependent state population with an optical transition for the first time.

**Key words:** single-cycle pulse, optical parametric amplification, supercontinuum generation, quantum path interference



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung</b>	<b>5</b>
2.1. Zeitliche Entwicklung atomarer Zustände . . . . .	7
2.2. Parametrische Verstärkung . . . . .	14
<b>3. Kohärente Kontrolle mit Einzyklen-Pulsen</b>	<b>25</b>
3.1. Populationsdynamik in einem Zwei-Niveau-System . . . . .	26
3.2. Numerische Untersuchung der Quantenpfadinterferenzpunkte . . . . .	32
3.3. Analytische Untersuchung der Quantenpfadinterferenzpunkte . . . . .	36
3.4. Breitbandige Anregung eines Zwei-Niveau-Systems . . . . .	38
<b>4. Der parametrische Verstärker für Einzyklen-Pulse</b>	<b>43</b>
4.1. Konzept . . . . .	43
4.2. Titan-Saphir-Oszillator . . . . .	45
4.3. Regenerativer Verstärker . . . . .	47
4.4. Frequenzkonversion: $2\omega$ und $3\omega$ . . . . .	49
4.5. Verstärker im NIR . . . . .	51
4.5.1. Spektrale Amplitude und Ausgangsleistung . . . . .	52
4.5.2. Spektrale Phase und zeitliches Pulsprofil . . . . .	54
4.6. Superkontinuum-Erzeugung . . . . .	56
4.7. Verstärker im VIS . . . . .	60
4.7.1. Spektrale Amplitude und Ausgangsleistung . . . . .	60
4.7.2. Spektrale Phase und zeitliches Pulsprofil . . . . .	62
<b>5. Ausblick: Pulskompression, Anwendung und Weiterentwicklung</b>	<b>67</b>
5.1. Skalierung der Pulsenergie . . . . .	67
5.2. Pulskompression und Charakterisierung . . . . .	70

5.3. Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase . . . . .	75
5.4. Kohärente Kontrolle . . . . .	79
<b>6. Zusammenfassung</b>	<b>83</b>
<b>A. Simulationsparameter</b>	<b>87</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>91</b>
<b>Danksagung</b>	<b>103</b>
<b>Lebenslauf</b>	<b>105</b>
<b>Publikationen</b>	<b>107</b>



# Einleitung

Die Wechselwirkung von Licht mit Materie ist Gegenstand vieler aktueller Forschungsarbeiten. Um diese Wechselwirkung gezielt zu untersuchen, kommt u.a. kohärente Laserstrahlung zum Einsatz. Mit gepulsten Lasersystemen werden aufgrund der hohen Spitzenleistung auch nichtlineare Effekte wie z. B. die Erzeugung von neuen Frequenzanteilen beobachtbar. Mittlerweile sind auch Pulsintensitäten verfügbar, die es ermöglichen atomar gebundene Elektronen aus ihrem Zustand zu lösen.

Neben der Entwicklung von Hochleistungs-Lasersystemen gehen die Bestrebungen zur Erzeugung immer kürzerer Pulsdauern. Erreicht die Pulsdauer die Zeitspanne weniger oder sogar einer einzigen Träger-Oszillation des Pulses, dann eröffnet sich das neue Forschungsgebiet der „phase sensitiv nonlinear optics“ [Sch03b] oder auch „carrier wave nonlinear optics“ [Weg05]. In diesem Bereich zeigt sich der direkte Einfluss der Position der Träger-Oszillation unter der Intensitätseinhüllenden, die Träger-Einhüllenden-Phase (CEP), eines elektromagnetischen Feldes auf die Wechselwirkung z.B. in der Starkfeldphysik im „cut-off“-Bereich eines Harmonischen-Spektrums [Bal03, Gou08]. Aber auch mit Pulsen im nJ-Bereich kann der Einfluss der CEP beobachtet werden, z.B. durch Quantenpfadinterferenz in einem Halbleitermaterial [For04], die Multi-Photon induzierte Photonemission an einer Metalloberfläche [Apo04] oder durch die Interferenz von zwei Mollow-Seitenbändern aufgrund von „Rabi flopping“-Effekten [Muc04]. Darüber hinaus hängt die Zustandsbesetzung atomar gebundener Elektronen bei diesen Pulsdauern ebenfalls von der CEP des Pulses ab, was bisher vielfach theoretisch vorhergesagt [Chu11, Jir05, Nak06a] und für Anregungspulse im Radiofrequenz-Bereich auch experimentell bestätigt wurde [Li10].

Pulse mit wenigen optischen Zyklen konnten bereits direkt aus einem Titan-Saphir Oszillator erzeugt werden [Rau08]. Bei der Verstärkung solcher Pulse wird die Pulsdauer allerdings wieder erhöht, da das Spektrum in Multipassverstärkern eingeschnürt wird. Daher wird häufig nach der Verstärkung eine spektrale Verbreiterung

durch z.B. Hohlkernfasern oder durch Filamentation genutzt, um den Puls nachträglich auf kurze Pulsdauern zu komprimieren [Sch03a, Ste09].

Die Erzeugung oder Verstärkung von Einzyklen-Pulsen erfordert allerdings eine spektrale Bandbreite, die mit üblichen Laserkristallen oder Verstärkersystemen nicht mehr erreichbar ist. Eine Abhilfe schafft das Konzept der Pulssynthese, wobei zwei verschiedene Spektralbereiche kohärent zu einem einzigen Spektrum kombiniert werden (siehe z. B. [Mor10]). So wurden 2010 erfolgreich zwei komplementäre Spektren zu einem Einzyklen-Puls synthetisiert [Kra10]. Dieses Konzept findet nun auch Anwendung in den Hochenergie-Lasersystemen mit Pulsenergien im  $\mu\text{J}$ -Bereich [Wir11]. Auch die Synthese zweier optisch-parametrischer Verstärker wurde erfolgreich gezeigt [Hua11, Man12]. Die Synthese der Spektren (bzw. der Pulse) erfordert in allen Systemen eine präzise Kontrolle des zeitlichen Abstands der Pulse zueinander und die Kontrolle der CEP jedes einzelnen Pulses (siehe z.B. [Cox12, Kra10, Man12]).

In dieser Arbeit wird ein neues Verstärker-Konzept vorgestellt, das die nötige Bandbreite für die Verstärkung von Einzyklen-Pulsen im sichtbaren Spektralbereich unterstützt. Dieses Konzept basiert auf der Kombination von zwei breitbandigen optisch-parametrischen Verstärkern mit einer integrierten Superkontinuumserzeugung. Dadurch, dass jeder Verstärker mit einer unterschiedlichen Pumpwellenlänge betrieben wird, liegen die Verstärkungsspektren der beiden Verstärker in benachbarten Spektralbereichen, so dass die Synthese zu einem breiten, kohärenten Spektrum führt [Her10]. Die beiden Verstärker-Stufen werden direkt hintereinander gereiht, so dass dieses Konzept auch als „serielle“-Pulssynthese bezeichnet werden kann.

Ein breitbandiger Titan-Saphir-Oszillator stellt das Seed-Spektrum für die erste Verstärkerstufe bereit. Für die zweite Verstärkerstufe wird der Seed mittels eines Festkörperfilaments erzeugt. Das Filament mit einem bereits kurzen Puls zu generieren führt dazu, dass das gesamte Superkontinuum-Spektrum zur Erzeugung eines Einzyklen-Pulses genutzt werden kann.

Das verstärkte Spektrum hat eine Energie von  $1 \mu\text{J}$  und unterstützt Pulsdauern unter  $3 \text{ fs}$  bei einer Pulswiederholrate von  $200 \text{ kHz}$  [Har12]. Im sichtbaren Spektralbereich entspricht dieser Puls einem 1,2-Zyklen-Puls. Mit einem geeigneten Pulsformer und einer Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase des Pulses ist dieses neuartige Verstärker-Konzept mit der seriellen Pulssynthese eine geeignete Einzyklen-Pulsquelle für z.B. spektroskopische Studien im Bereich der extrem kurzen Pulsdauern.

---

Eine mögliche Anwendung für diesen Puls ist der experimentelle Nachweis der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung atomar gebundener Elektronen. Dies wird ebenfalls in dieser Arbeit untersucht. Insbesondere wird dabei auf die Quantenpfadinterferenz verschiedener Anregungspfade eingegangen, um schließlich eine Konfiguration für eine mögliche Messung mittels einer optischen Anregung vorzustellen.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert. Im zweiten Kapitel werden einige Grundlagen sowohl für die theoretische Untersuchung der Abhängigkeit eines atomaren Zustands von der Träger-Einhüllenden-Phase als auch für die breitbandige parametrische Verstärkung für Einzyklen-Pulse wiederholt und diskutiert. So werden u.a. die Gleichungen für die Beschreibung der Wechselwirkung von Einzyklen-Pulsen mit einem atomaren Zwei-Niveau-System eingeführt, auf denen die Berechnungen im Kapitel 3 beruhen. Der zweite Teil des ersten Kapitels diskutiert insbesondere die Bandbreite parametrischer Verstärker, wobei in dieser Betrachtung auch räumliche und zeitliche Effekte mitberücksichtigt werden.

Das dritte Kapitel untersucht numerisch und analytisch mögliche Quantenpfadinterferenzen, die mit einem über-oktavbreiten Spektrum von Bedeutung sind, um den Effekt der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung in einem Zwei-Niveau-System nachweisen zu können.

Im vierten Kapitel wird zu Beginn das Konzept der Erzeugung und Verstärkung von Einzyklen-Pulsen vorgestellt. Danach wird detailliert auf die einzelnen Komponenten eingegangen, insbesondere auf die Erzeugung des Superkontinuum-Spektrums und die beiden parametrischen Verstärkerstufen.

Anschließend folgt im fünften Kapitel eine Diskussion und ein Ausblick bzgl. der Energieskalierung des Systems, der Pulskompression, der Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase und eine erste Abschätzungen in Hinblick auf die experimentelle Durchführbarkeit der in Kapitel 3 vorgestellten Quantenpfadinterferenz-Experimente, bevor diese Arbeit mit einer Zusammenfassung endet.



# Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung eines elektromagnetischen Feldes mit Materie kann mit einem semiklassischen Formalismus beschrieben werden, wobei das Feld klassisch und die Materie quantenmechanisch behandelt wird. So wird z.B. das klassische elektromagnetische Feld mathematisch mit einer Einhüllenden  $A(t)$  und einer schnell oszillierenden Schwingung  $\omega$  beschrieben:

$$E(t) = A(t) \cdot \cos(\omega t + \varphi_0) \quad (2.1)$$

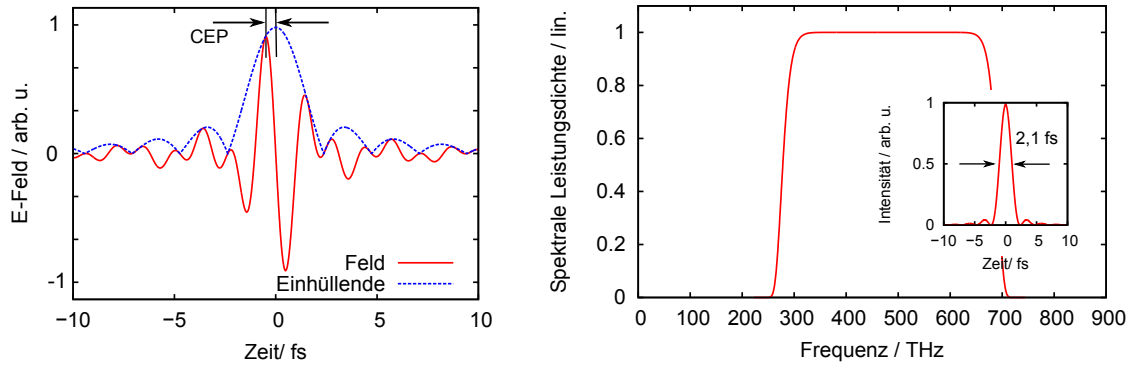
wobei  $\varphi_0$  die Träger-Einhüllenden-Phasen (CEP) bestimmt<sup>1</sup>. Gl. 2.1 gilt sowohl für kontinuierliche Felder mit schmalbandigen Spektren, als auch für breitbandige Spektren, die Pulse mit einer fourierlimitierten Pulsdauer im fs-Bereich unterstützen. Abb. 2.1 zeigt ein Beispiel für einen Einzyklen-Puls im sichtbaren Spektralbereich mit einer Zentralfrequenz von 483 THz bzw. 620 nm im Zeit- und Frequenzbereich. Der Puls hat eine Dauer von 2,1 fs und das zugehörige Spektrum überspannt mehr als eine optische Oktave von 250 THz bis 700 THz (siehe Abb. 2.1 (b)).

In der semiklassischen Beschreibung der Wechselwirkung berücksichtigen die Bloch-Gleichungen die zeitliche Entwicklung der Materie, während das Feld selbst als konstant angenommen wird. Die wesentlichen physikalischen Größen, wie die Zustandsbesetzung  $|c_j|^2$  eines Energieniveaus  $j$  und die „Antwort“ der Materie auf das Feld, die optische Polarisation  $P \propto \sum_{ij} 2 \Re(c_i c_j^*)$ , können aus den Bloch-Gleichungen berechnet werden.

Die Wirkung der Materie auf das Feld wird mit den Maxwell-Gleichungen be-

---

<sup>1</sup>Für ein physikalisches Feld muss außerdem gelten, dass das Feld bzw. der Puls keinen DC-Anteil besitzt. Daher muss  $\int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) = 0$  (bzw.  $|E(\omega = 0)| = 0$ ) erfüllt sein [Che02, Dcvac06].



**Abbildung 2.1.:** (a) Darstellung eines Einzyklen-Pulses im Zeitbereich mit einer schnell oszillierenden Zentralfrequenz von 483 THz (rot), der Puls-Einhüllenden (blau) und der Definition der Träger-Einhüllenden-Phase (CEP). In (b) ist das zugehörige Spektrum des Pulses gezeigt.

rechnet. Dort taucht die Polarisation  $P$  als Quellterm u.a. für die Erzeugung neuer Frequenzkomponenten auf. Sie wird in der nichtlinearen Optik mittels einer Potenzreihenentwicklung  $P(\omega) = \chi^{(1)}(\omega)E(\omega) + \chi^{(2)}E(\omega)E(\omega) + \dots$  beschrieben und definiert dadurch die Suszeptibilitäten  $n$ -ter Ordnung  $\chi^{(n)}$ . Anhand der verschiedenen Ordnungen der Suszeptibilität werden die linearen und nichtlinearen Prozesse wie z.B. die Dispersion ( $\chi^{(1)}$ ), die parametrische Verstärkung (DFG) ( $\chi^{(2)}$ ), der Kerr-Effekt ( $\chi^{(3)}$ ), usw. sortiert.

Mit den Maxwell-Gleichungen und den Bloch-Gleichungen (siehe z. B. [Hug98]) kann sowohl die Zeitabhängigkeit des Feldes als auch die der Materie berücksichtigt werden; sie stellen damit eine vollständige Beschreibung der Wechselwirkung bereit.

Üblicherweise werden für die Lösung dieser Gleichungen Näherungen verwendet, wie die „slowly-varying-envelope approximation“ (SVEA), bei der die zeitliche Änderung der Einhüllenden des elektromagnetischen Feldes gegenüber der schnellen Oszillation vernachlässigt werden kann ( $\frac{\partial |A|}{\partial t} \ll \omega E(t)$ ), oder die „rotating-wave approximation“ (RWA), bei der das zeitliche Integral über eine schnelle Oszillation ( $\int dt A(t) \exp(i(\omega_a + \omega_L)t) \approx 0$ , wobei  $\omega_A$  die Frequenz eines optischen Übergangs und  $\omega_L$  die Zentralfrequenz des elektromagnetischen Feldes ist) vernachlässigt werden kann.

Für die Beschreibung von Einzyklen-Pulsen sind diese Näherungen nicht mehr akzeptabel [Bra97, Hug98, Zio95], da die genaue Position des elektromagnetischen Feldes in der Pulseinhüllenden an Bedeutung gewinnt.

In diesem Kapitel werden grundlegende mathematische und physikalische Zusammenhänge erläutert, die für die kohärente Wechselwirkung atomarer Systeme mit

Einzyklen-Pulsen und für die parametrische Verstärkung im Rahmen dieser Arbeit relevant sind. Daher wird zunächst die zeitabhängige Populationsdynamik an einfachen atomaren Systemen, wie z.B. in einem Zwei-Niveau-System, vorgestellt. Hier wird insbesondere die mathematische Beschreibung der Wechselwirkung mit einem Einzyklen-Puls eingeführt. Zusätzlich wird die störungstheoretische Beschreibung der Wechselwirkung berücksichtigt, um die kohärente Anregung über verschiedene Quantenpfade besser beschreiben zu können.

Nach der Einführung der theoretischen Grundlagen, die für die Simulationen in Kapitel 3 notwendig sind, wird ausführlich auf die parametrische Verstärkung eingegangen, da mit dieser Methode erfolgreich breitbandige Spektren verstärkt werden können (siehe Kapitel 4). In diesem Abschnitt wird insbesondere die Bandbreite der parametrischen Verstärkung in Hinblick auf zeitliche und räumliche Propagationseffekte untersucht.

## 2.1. Zeitliche Entwicklung atomarer Zustände

Die semiklassische Beschreibung der Wechselwirkung behandelt das elektromagnetische Feld klassisch und die Materie, bzw. das Atom, quantenmechanisch [Bra00, Man95, Ran10, Rie06, Sch90]. Ein quantenmechanischer Zustand wird beschrieben durch die Superposition der einzelnen Eigenzustände des Systems  $|j(t)\rangle$  und deren zeitabhängigen Wahrscheinlichkeitsamplituden  $c_j(t)$ . Mit der Schrödingergleichung wird die zeitliche Entwicklung eines Zustands berechnet, wobei sich der Hamiltonoperator aus einem ungestörten Operator und einem Dipol-Wechselwirkungsoperator zusammensetzt. Daraus folgt die zeitabhängige Wahrscheinlichkeitsamplitude für das  $i$ -te Energieniveau eines einzelnen Atoms, welches mit dem Niveau  $|j\rangle$  koppelt:

$$\dot{c}_i(t) = i \sum_j \Omega_{ij}(t) e^{-i\omega_{ij}t} c_j(t), \quad (2.2)$$

wobei  $\omega_{ij} = \omega_j - \omega_i$  die Übergangsfrequenz vom Eigenzustand  $|i\rangle$  nach  $|j\rangle$  ist und  $\Omega_{ij} = \mu_{ij}E(t)/\hbar$ , mit dem Dipolmatrixelement  $\mu_{ij}$ <sup>1</sup> und dem elektrischen Feld  $E(t)$  die Rabi-Frequenz beschreibt.

---

<sup>1</sup>Das Dipolmoment  $\mu_{ij}$  ist direkt mit dem Einstein- $A_{ij}$ -Koeffizienten verknüpft:

$$A_{ij} = \frac{2\omega_{ij}^3}{3\epsilon_0\hbar c^3} |\mu_{ij}|^2,$$

mit der Übergangsfrequenz  $\omega_{ij}$  [Dem07]. Aus Paritätsgründen ist  $\mu_{ii} = 0$ .

Wird ein Atom-Ensemble betrachtet, können dissipative Effekte, wie die Lebensdauer der Zustandsbesetzung  $T_1$  und die Dekohärenzzeit  $T_2$  in die Gleichungen eingefügt werden. Bei einer Anregung mit einer Pulsdauer im fs-Bereich können sie allerdings vernachlässigt werden, da  $T_1$  und  $T_2$  üblicherweise im ps-ns-Bereich liegen. Diese Gleichung beschreibt somit die vollständige Dipol-Wechselwirkung inklusive nichtlinearer Prozesse zwischen einem klassischen Feld und den atomaren Niveaus  $|i\rangle$  und  $|j\rangle$ . Sie gilt insbesondere auch für die Anregung mit einem Einzyklen-Puls, da die RWA nicht angewendet wurde. Dies wird nun am Beispiel eines Zwei-Niveau-Systems kurz dargestellt.

### Zwei-Niveau-System

In einem Zwei-Niveau-System existieren nur zwei Zustände: der Grundzustand  $|g\rangle$  und ein oberer Zustand  $|e\rangle$ . Der Abstand der beiden Energie-Niveaus sei  $\hbar\omega_A$  und für das Dipolmatixelement gilt:  $\mu_{eg} = \mu_{ge} = \mu$ . Somit folgen aus Gl. (2.2) die gekoppelten Differentialgleichungen:

$$\dot{c}_g(t) = i\Omega(t) e^{-i\omega_A t} c_e(t), \quad (2.3a)$$

$$\dot{c}_e(t) = i\Omega(t) e^{i\omega_A t} c_g(t), \quad (2.3b)$$

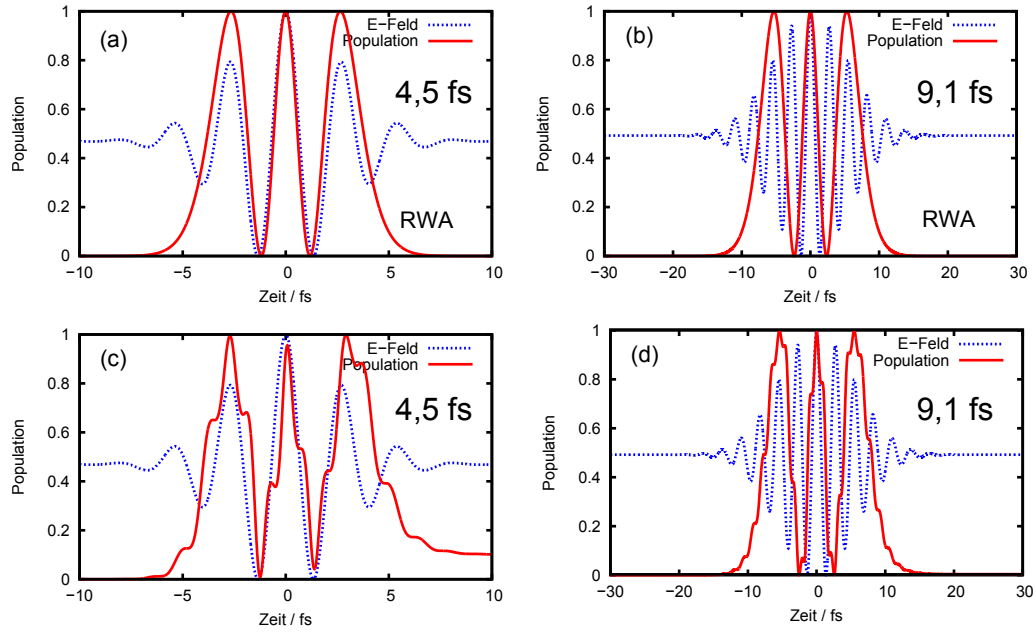
mit  $\Omega(t) = \mu E(t)/\hbar$ . Ohne eine Anregung befindet sich das Atom im Grundzustand, d.h.  $|c_g|^2 = 1$  und  $|c_e|^2 = 0$ . Wechselwirkt ein Puls mit einer Pulsfläche  $\mathfrak{A} = 2\pi$ , wobei

$$\mathfrak{A} = \frac{\mu}{\hbar} \int dt |A(t)| \quad (2.4)$$

über die Pulseinhüllende definiert wird, resonant mit einem Zwei-Niveau-System, dann invertiert das Feld zunächst die Zustandsbesetzung, d.h.  $|c_g|^2 = 0$  und  $|c_e|^2 = 1$ , und geht dann wieder in den Ausgangszustand zurück. Diese einzelne Oszillation wird Rabiflop genannt.

Wird die Pulsfläche erhöht, dann oszilliert die Population innerhalb der Pulswechselwirkungszeit mehrmals. Dies ist in Abb. 2.2 dargestellt, indem die Gl. (2.3) numerisch einmal mit RWA ((a) und (b)) und ohne RWA ((c) und (d)) gelöst wurden. Zusätzlich ist das Populationsverhalten für zwei unterschiedliche Pulsdauern (4,5 fs und 9,1 fs) gezeigt. Aus dieser Darstellung werden zwei wesentliche Punkte





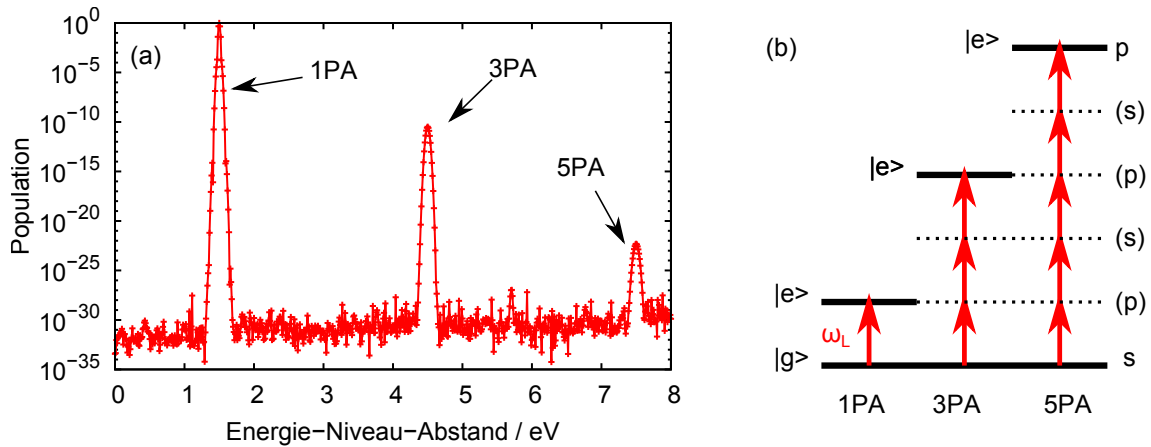
**Abbildung 2.2.:** Vergleich einer Rabioszillation durch die numerische Lösung der Gleichung (2.3) mit RWA ((a) und (b)) und ohne die RWA ((c) und (d)) für zwei unterschiedliche Pulsdauern 4,5 fs und 9,1 fs. Die Pulse wurden auf eine Pulsfläche von  $\mathfrak{A} = 6\pi$  normiert. Wird die RWA angewendet, sind keine Feld-Effekte der Träger-Oszillation sichtbar. In (c) und (d) wird deutlich, dass das elektrische Feld die Zustandsbesetzung treibt, und dass bei kurzen Pulsdauern die Rabioszillation nicht wie erwartet beendet wird. Die Zentralfrequenz des Pulses entspricht 1,5 eV, das Spektrum hat eine Gauss-Einhüllende der Breite entsprechend eines 4,5-fs- und eines 9,1-fs-Pulses; das Dipolmatrixelement ist  $\mu = 0,5 \cdot 10^{-28}$  Cm und  $\omega_A$  entspricht 1,5eV.

deutlich, wenn die RWA nicht angewendet wird (siehe auch [Hug98, Zio95]):

- Die Zustandsbesetzung wird direkt vom elektromagnetische Feld getrieben (siehe z.B. Abb. 2.2 (c)). Ist die Feldstärke z.B.  $E(t) = 0$ , dann sorgt die Ableitung des Feldes  $\frac{\partial E(t)}{\partial t}$  für die weitere Dynamik. Erst wenn  $E(t) = 0$  und  $\frac{\partial E(t)}{\partial t} = 0$  kommt die Oszillation zum Erliegen.
- Die Zustandsdynamik wird bei der Anregung von Pulsen mit wenigen optischen Zyklen nicht mehr korrekt durch die Pulsfläche bzw. die Pulsenergie wiedergegeben (siehe Abb. 2.2 (c), der Rabiflop wurde nicht beendet).

Somit macht die RWA Feldeffekte unsichtbar und die Gleichungen (2.3) sind geeignet Effekte zu beschreiben, die nur für kurze Pulsdauern sichtbar und relevant werden.

Die Differentialgleichungen (2.3) beschreiben nicht nur die lineare Ein-Photon-Absorption, sondern beinhalten auch die nichtlineare Optik, wie die Drei-Photonen-, die 5-Photonen- und die höheren ungeraden Ordnungen der Absorption. Dies ist direkt



**Abbildung 2.3.:** (a) Population (log.) des oberen Zustands eines Zwei-Niveau-Systems in Abhängigkeit des Niveau-Abstands. Neben der 1PA ist auch die 3PA und die 5PA zu erkennen. Bei einem Level von etwa  $1 \cdot 10^{-30}$  ist die Grenze zum numerischen Rauschen. (b) Darstellung der Mehrphotonen-Absorption im Energie-Niveau-Diagramm. Auch den virtuellen Energie-Niveaus wird eine Parität zugeordnet. Die spektrale Bandbreite des Pulses entspricht  $0,02\text{eV}$  bei  $1,5\text{eV}$  Zentralfrequenz und einer Pulsfläche von  $\mathfrak{A}=\pi$ .

an einem Beispiel in Abb. 2.3 (a) zu erkennen. Hier wurde ein Puls mit  $\mathfrak{A} = \pi$  bei einer Zentralfrequenz, die einer Energie von  $1,5\text{eV}$  entspricht, angenommen. Der Energie-Niveau-Abstand des Zwei-Niveau-Systems wurde von  $0\text{eV}$  bis  $8\text{eV}$  durchgestimmt und die Population des oberen Energie-Niveaus  $|c_e|^2$  berechnet.

Die Population zeigt ein erstes Maximum bei einem Energie-Niveau-Abstand von  $1,5\text{eV}$ , welches der 1-Photon-Absorption (1PA) entspricht. Zusätzlich sind auch Maxima bei  $4,5\text{eV}$  und  $7,5\text{eV}$  sichtbar, die der 3-Photonen- (3PA) und 5-Photonen-Absorption (5PA) zugeordnet werden können (siehe hierzu auch [Pen10]).

Aus Paritätsgründen besitzen die beiden Zustände eines Zwei-Niveau-Systems unterschiedliche Symmetrien. Entspricht z.B. der Grundzustand einem s-Orbital (dies entspricht einer symmetrischen Ortswellenfunktion), dann stellt das obere Niveau ein p-Orbital dar (ungerade Funktion). In einem solchen Zwei-Niveau-System ist eine Zwei-Photonen-Absorption (2PA)<sup>1</sup> verboten. Deshalb sind auch in Abb. 2.3 keine 2PA oder 4PA Prozesse zu sehen. Abb. 2.3 (b) zeigt die Ein- und Mehr-Photonen-Absorption über virtuelle Niveaus in einem Energie-Niveau-Diagramm. Virtuelle Niveaus können nicht bevölkert werden. Die Lebensdauer solcher Niveaus ist über den Energieabstand zum nächsten passenden (bezogen auf die Parität) reellen Niveau gegeben. Sie ist ein wichtiger Parameter für die Berechnung der Populationswahrscheinlichkeit über einen bestimmten Anregungspfad.

<sup>1</sup>In einem Drei-Niveau-System (z.B. s-p-s) ist eine Zwei-Photonen-Absorption von s→s aufgrund des mittleren Energie-Niveaus erlaubt.

Um dies zu verdeutlichen, wird im Folgenden mit Hilfe der störungstheoretischen Beschreibung der Wechselwirkung die Übergangsrate von Ein- und Drei-Photonen-Übergängen beschrieben. Damit wird es möglich sein verschiedene Anregungspfade zu bewerten.

### Störungstheoretische Beschreibung

Mittels einer störungstheoretischen Darstellung können die zeitabhängigen Wahrscheinlichkeitsamplituden aus Gleichung (2.3) auch analytisch berechnet werden. Diese Beschreibung ist unter der Annahme gültig, dass sich die Population des Grundzustands kaum ändert  $|c_0|^2 \approx 1$ . Sie ist hilfreich, um sowohl lineare und nicht-lineare Prozesse wie die Ein- und Mehr-Photonen-Absorption strukturiert zu untersuchen, als auch Interferenzphänomene anschaulich zu diskutieren.

Um die Betrachtung so einfach wie möglich zu halten, wird im Folgenden das elektromagnetische Feld vereinfacht als monochromatische Welle mit einer zeitunabhängigen Pulseinhüllenden angenommen. Aus Gleichung (2.2) folgt (siehe auch [Boy92, Bra00, Ran10, Sch90]):

$$c_i(t) = c_i(0) - i \int_0^t dt' \sum_j \Omega_{ij}(t') e^{-i\omega_{ij}t'} c_j(t'). \quad (2.5)$$

Die Störung des Atoms durch das elektromagnetische Feld  $E$  soll mit dem Parameter  $\epsilon$  ein- und auch ausgeschaltet werden können, so dass für den Dipoloperator gilt:  $\mu_{ij}\epsilon E = \epsilon \cdot V_{ij}$ . Die Zustände und somit auch die Wahrscheinlichkeitsamplituden werden dann durch eine Potenzreihenentwicklung beschrieben:  $c_i = c_i^{(0)} + \epsilon c_i^{(1)} + \epsilon^2 c_i^{(2)} + \epsilon^3 c_i^{(3)} + \dots$ . Daraus folgt:

$$c_i^{(N)}(t) = c_i^{(N)}(0) - i \int_0^t dt' \sum_j \Omega_{ij}(t') e^{-i\omega_{ij}t'} c_j^{(N-1)}(t'), \quad (2.6)$$

mit  $\Omega_{ii} = 0$  und  $\omega_{ij} = \omega_j - \omega_i$ .

Nun kann der Einfluss der „Störung“ verschiedenen Störungsordnungen  $c_i^{(N)}$  und unterschiedlichen Prozessen zugeordnet werden. Dies wird im Folgenden am Beispiel eines Zwei-Niveau-Systems gezeigt.

Wie oben erwähnt, existieren in einem Zwei-Niveau-System nur die Zustände  $|g\rangle$  und  $|e\rangle$  mit einem Niveau-Abstand von  $\hbar\omega_A$  und einem Dipolmatrixelement  $\mu$ ; außerdem gelte  $c_e^{(N)}(0) = 0$ .

Für die Wahrscheinlichkeitsamplitude nullter Ordnung, die den stärksten Term in der Entwicklung darstellt, gilt:  $c_g^{(0)} = 1$  und  $c_e^{(0)} = 0$ . Das heißt, das System verbleibt größtenteils von der Anregung ungestört. Aus Gleichung (2.6) und mit  $c_e^{(0)} = 0$  folgt, dass für den Grundzustand alle geraden Ordnungen und für den angeregten Zustand alle ungerade Ordnungen ungleich Null sind. Es gilt also:  $c_g = c_g^{(0)} + c_g^{(2)} + c_g^{(4)} + \dots$  und  $c_e = c_e^{(1)} + c_e^{(3)} + c_e^{(5)} + \dots$ .

**Erste Störungsordnung:** Die erste Störungsordnung bezieht sich somit nur auf den oberen Zustand  $|e\rangle$  und mit  $c_g^{(0)} = 1$  folgt:

$$c_e^{(1)} = -i \int dt' \Omega(t') e^{i\omega_A t'}. \quad (2.7)$$

Sie beschreibt die Absorption eines einzelnen Photons. Trifft ein elektromagnetisches Feld  $E(t) = A \frac{1}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$  in Resonanz ( $\omega_A = \omega$ ) auf das System, so folgt:

$$c_e^{(1)} = -i \frac{\Omega_{1P}}{2} \int dt' (e^{i(\omega_A + \omega)t'} + e^{i(\omega_A - \omega)t'}) \quad (2.8)$$

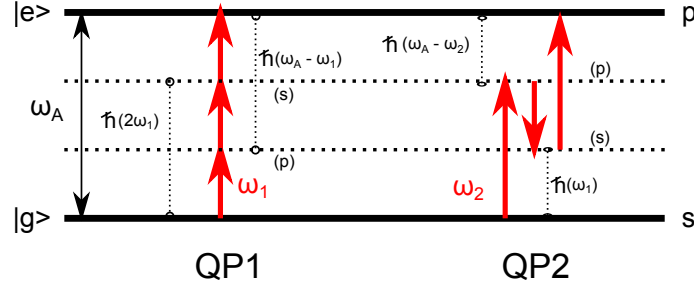
mit  $\Omega_{1P} = \frac{\mu A}{\hbar}$ . Hier kann der schnell oszillierende Phasenterm mit  $(\omega_A + \omega)$ , vernachlässigt werden (RWA); nur der Term mit  $(\omega_A - \omega) \approx 0$  liefert einen nennenswerten Beitrag zum Integral. Daraus folgt für die Populationswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus:  $|c_e^{(1)}|^2 \approx \sin^2((\omega_A - \omega) \cdot t/2) / ((\omega_A - \omega)/2)^2$  [Ran10].

**Dritte Störungsordnung:** Die nächste relevante Ordnung für das obere Energie-Niveau ist die dritte Störungsordnung. Mit dieser Ordnung werden 3-Photonen-Prozesse, wie z.B. die 3-Photonen-Absorption (3PA), beschrieben. Für eine 3PA wird ein elektromagnetisches Feld angenommen, dessen Zentralfrequenz  $\omega = \omega_A/3$  und  $\Omega(t) = \Omega_1 \frac{1}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$  ist. Die RWA vernachlässigt in diesem Fall alle Phasenterme, für die nicht  $(\omega_A - 3\omega) \approx 0$  gilt. Somit folgt:

$$c_e^{(3)} = -i^3 \frac{1}{2^3} \frac{\Omega_1^3}{(-2\omega)(\omega_A - \omega)} \int dt' e^{i(\omega_A - 3\omega)t'} \quad (2.9)$$

$$= -i \frac{\Omega_{3P}}{2} \int dt' e^{i(\omega_A - 3\omega)t'}, \quad (2.10)$$

mit  $\Omega_{3P} = i^2 \frac{1}{2^2} \frac{\Omega_1^3}{(-2\omega)(\omega_A - \omega)}$ . Der Ausdruck dieser effektiven Rabi-Frequenz enthält die Lebensdauern der zwei virtuellen Niveaus, die direkt abgelesen werden können. Für



**Abbildung 2.4.:** Vergleich zweier Quantenpfade QP1 und QP2. Die Lebensdauer der verwendeten virtuellen Niveaus ist in QP1 kürzer als im QP2, da der Abstand der virtuellen Niveaus zum nächst passenden reellen Niveau größer ist. Daraus folgt, dass QP2 wahrscheinlicher ist als QP1. Die vertikal gestrichelten Linien zeigen die Verbindung der virtuellen Niveaus mit den zugehörigen reellen Niveaus an.

das erste virtuelle Niveau gilt  $\tau_{1N} = 1/(\omega_A - \omega)$  und für das zweite  $\tau_{2N} = 1/(-2\omega)$ . Diese 3PA ist in Abb. 2.4 als Quantenpfad QP1 dargestellt.

Wechselwirken nun z. B. zwei monochromatische Felder  $E = E_1(\omega_1) + E_2(\omega_2)$  ( $\omega_2 = 2\omega_1$ ) mit dem System, kann das obere Niveau mittels verschiedener Anregungspfade bevölkert werden (siehe Abb. 2.4). Zum Quantenpfad QP2 gehört die effektive Rabi-Frequenz:  $\Omega_{QP2} = i^2 \frac{1}{2^2} \frac{\Omega_2^2 \Omega_1}{(\omega_1)(\omega_A - \omega_2)}$ , wobei  $\Omega_1 = \mu A_1(\omega_1)/\hbar$  und  $\Omega_2 = \mu A_2(\omega_2)/\hbar$ . Die Lebensdauer der virtuellen Niveaus, die direkt in der effektiven Rabi-Frequenz enthalten sind, gewichtet die verschiedenen Quantenpfade. So ist z. B. der Quantenpfad QP2 in Abb. 2.4 wahrscheinlicher als QP1, da der Abstand der virtuellen Niveaus zu den passenden reellen Niveaus kleiner ist.

**Fazit:** In diesem Abschnitt wurde gezeigt, dass die Differentialgleichungen (2.3) geeignet sind Einzyklen-Pulse in der Dipolwechselwirkung mit einem atomaren System korrekt zu beschreiben. Es wurde gezeigt, dass nicht nur lineare sondern auch nichtlineare Absorption in diesen Gleichungen enthalten ist. Somit ist dieses Modell geeignet die Interferenz verschiedener Quantenpfade zu berechnen (siehe Kapitel 3).

Außerdem wurde die störungstheoretische Darstellung der Mehrphotonen-Absorption eingeführt, die sehr anschaulich die einzelnen Anregungspfade ordnet und eine einfache Abschätzung der Gewichtung der Quantenpfade erlaubt.

## 2.2. Parametrische Verstärkung

Die parametrische Verstärkung ist, bezogen auf die Potenzreihen-Entwicklung der nichtlinearen Polarisation  $P_{nl} = \chi^{(2)} E_1 E_2 + \dots$ , ein nichtlineare Prozess zweiter Ordnung. Die Polarisation beschreibt die Bewegung der im Material gebundenen Elektronen und ist der Quellterm für die Erzeugung neuer Frequenzanteile. Die Suszeptibilität zweiter Ordnung  $\chi^{(2)}$  ist nur ungleich Null für nicht zentrosymmetrische Kristalle [Fly75], so dass die wichtigen Prozesse wie z.B. die Erzeugung der zweiten Harmonischen Strahlung (SHG), die Summenfrequenz-Erzeugung (SFG) und auch die Differenzfrequenz-Erzeugung (DFG) nur in solchen Kristallen realisierbar sind.

In diesem Abschnitt wird die parametrische Verstärkung insbesondere im Hinblick auf die breitbandige Verstärkung für Einzyklen-Pulsen beschrieben. Da ein parametrischer Prozess die Wechselwirkung eines elektromagnetischen Feldes mit Materie beschreibt ohne dabei den Zustand der Materie zu ändern (z.B. durch Absorption), ist die parametrische Verstärkung in Hinblick auf die Pulsenergie skalierbar. Dies ist ein großer Vorteil gegenüber Verstärkersystemen, die z.B. über eine Absorption optisch gepumpt werden müssen.

### Differentialgleichungen

Am Prozess der optisch-parametrischen Verstärkung (OPA) sind drei Frequenzen beteiligt: die Pumpfrequenz  $\omega_p$ , Signalfrequenz  $\omega_s$  und Idlerfrequenz  $\omega_i$ . Wie bei allen parametrischen Prozessen gilt die Energieerhaltung  $\hbar\omega_p = \hbar(\omega_s + \omega_i)$ .

Mathematisch wird die parametrische Verstärkung üblicherweise mit drei gekoppelten Differentialgleichungen beschrieben. Sie lauten (z. B. [Cer03, Sut03]):

$$\frac{\partial A_p(t, \vec{r})}{\partial z} = -i \kappa_p A_s(t, \vec{r}) A_i(t, \vec{r}) \exp(i\Delta k z), \quad (2.11)$$

$$\frac{\partial A_s(t, \vec{r})}{\partial z} = -i \kappa_s A_i^*(t, \vec{r}) A_p(t, \vec{r}) \exp(-i\Delta k z), \quad (2.12)$$

$$\frac{\partial A_i(t, \vec{r})}{\partial z} = -i \kappa_i A_s^*(t, \vec{r}) A_p(t, \vec{r}) \exp(-i\Delta k z). \quad (2.13)$$

Hier wurden die Felder für einen Pumpimpuls  $A_p(t, \vec{r})$ , Signalimpuls  $A_s(t, \vec{r})$  und einen Idlerimpuls  $A_i(t, \vec{r})$  eingeführt;  $A_j$  ist die Einhüllende des Pulses  $j$  ( $j \in \{p, s, i\}$ ); und

$\Delta k = |\vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i|^1$  die Bedingung für Phasenanpassung. Der Vorfaktor  $\kappa_j$  ist gegeben durch  $\kappa_j = \frac{\omega_j}{2n_j c_0} d_{eff}$  mit  $d_{eff} = \frac{1}{2}\chi^{(2)}$ . Unter der Annahme, dass das Pumpfeld während der Wechselwirkung nicht abgebaut wird, lässt sich aus diesen Differentialgleichungen sehr leicht eine Verstärkungscharakteristik von parametrischen Verstärkern herleiten (siehe dazu z.B. [Cer03]).

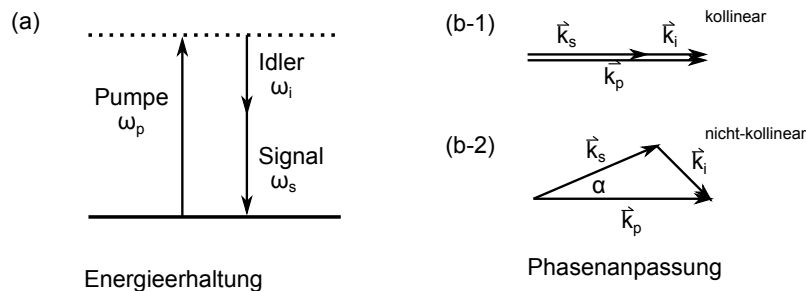
Aus den Differentialgleichungen folgt, dass der Energieübertrag zwischen den Feldern nur dann optimal ist,

- wenn Phasenanpassung gegeben ist, also  $\Delta k = 0$ , und
- wenn die beteiligten Felder zeitlich und räumlich überlappen.

Auf diese Bedingungen wird im Folgenden im Detail eingegangen, wobei insbesondere die Verstärkungsbandbreite im Mittelpunkt steht.

### Phasenanpassung und Superfluoreszenzring

Phasenanpassung oder Impulserhaltung  $\hbar\vec{k}_p = \hbar(\vec{k}_s + \vec{k}_i)$ , bedeutet in der kollinearen Geometrie (siehe Abb. 2.5 (b-1))  $\omega_p n_p = \omega_s n_s + \omega_i n_i$ . In normal dispersiven Medien kann diese Anforderung nicht trivialerweise erfüllt werden [Cer03]. Um dieser Bedingung dennoch gerecht zu werden, werden daher doppelbrechende Kristalle verwendet, wie z.B. ein neg. uniaxialer  $\beta$ -Barium Borat (BBO). Doppelbrechende Kristalle besitzen in zwei Raumrichtungen einen ordentlichen Brechungsindex  $n_o$  und in der dritten Raumrichtung einen außerordentlichen Brechungsindex  $n_e$ . Mit einem solchen Kristall kann der Brechungsindex für einen außerordentlichen Strahl



**Abbildung 2.5.:** (a) Darstellung der Energieerhaltung in einem parametrischen Prozess über ein Energie-Niveau-Diagramm. Der Grundzustand ist ein reelles, der obere Zustand ein virtuelles Niveau. (b) Skizze der kollinearen und der nicht-kollinearen Phasenanpassung mit Hilfe der Vektoraddition.

<sup>1</sup>mit  $k = \frac{\omega_j}{c_0} n_j$ ; mit der Lichtgeschwindigkeit  $c_0$ , und dem Brechungsindex  $n_j$  bei  $\omega_j$ .

(z.B. die Pumpe) über einen Winkel  $\theta_p$ , wobei  $\theta_p$  der Winkel zwischen  $\vec{k}_p$  und der Optischen Achse (OA) des Kristalls ist, eingestellt werden:  $\omega_p \cdot n_{ep}(\theta_p) = \omega_s n_{os} + \omega_i n_{oi}$ . Sind des Weiteren Signal und Idler ordentlich polarisiert, dann wird diese Methode Typ-I Phasenanpassung genannt. Eine Übersicht über die verschiedenen Methoden der Phasenanpassung ist in [Dmi99] gegeben.

Wird nun berücksichtigt, dass das Signal- und Idlerfeld eine spektrale Bandbreite aufweisen, so hat die Gruppenverzögerung (GD)  $\partial k / \partial \omega \cdot z = z/v_g$  der einzelnen Felder Einfluss auf die Bandbreite der Verstärkung (z.B. [Cer03]). Die größte Bandbreite wird erreicht, wenn die Gruppenverzögerungen für Signal und Idler identisch sind<sup>1</sup>. Dies ist in einer kollinearen Geometrie nur im Entartungspunkt  $\omega_s = \omega_i$  möglich. In der nicht-kollinearen Geometrie (siehe Abb. 2.5 (b-2)), in der Signal und Pumpe einen Winkel  $\alpha$  zueinander besitzen und somit auch aufgrund der Impulserhaltung Signal und Idler einen Winkel zueinander haben, wird das zeitliche Auseinanderlaufen von Signal und Idler reduziert, da die Richtungsvektoren von Signal  $\vec{k}_s$  und Idler  $\vec{k}_i$  auf eine Achse projiziert werden. Entlang dieser Projektionsachse können die Gruppengeschwindigkeiten gleich sein und eine breitbandige Verstärkung ist möglich [Cer03].

Dies kann experimentell direkt über die parametrische Superfluoreszenz [Sut03] beobachtet werden. Wird nämlich in einen nichtlinearen Kristall eine Pumpe unter einem Winkel  $\theta_p$  eingestrahlt, dann erscheint hinter dem Kristall ein Lichtkegel mit einem winkeldispersiven Frequenzspektrum, wie in Abb. 2.6(b) gezeigt. Die verschiedenen Frequenzen werden genau in die Richtung abgestrahlt, für die  $\Delta k = 0$  gilt (z.B. [Dan96]). Für verschiedene Winkel  $\theta_p$  folgen unterschiedliche Frequenzverteilungen. Es ist deutlich zu sehen, dass bei dem optimalen Phasenanpassungswinkel  $\theta_{p2}$  die sichtbaren Frequenzen in einem einzigen Ring überlagert sind. Der Öffnungswinkel dieses Lichtkegels entspricht genau  $2\alpha_m$ , wobei  $\alpha_m$  als „magic angle“ bezeichnet wird, weil dieser die Richtung für die größtmögliche Verstärkungsbandbreite vorgibt.

Die Phasenanpassungskurve für einen bestimmten Phasenanpassungswinkel  $\theta_p$  über das Frequenzspektrum ist in Abb. 2.7 (die blau-orange Kurven) zu sehen. Bei einem bestimmten Winkel  $\theta_p$  gibt es einen Winkel  $\alpha_m$ , bei dem viele Spektralanteile in

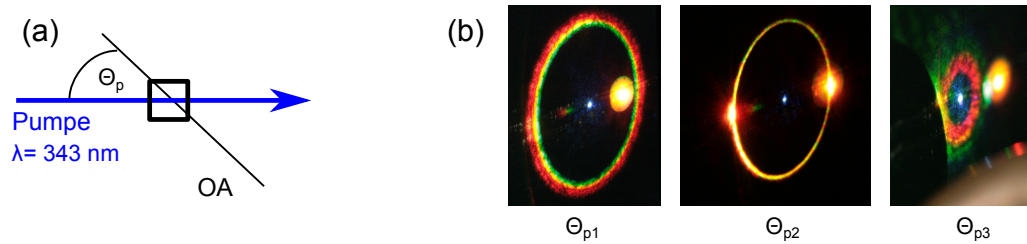
---

<sup>1</sup>Dann gilt:

$$\Delta k = k_p - \left( k_s + \frac{\partial k_s}{\partial \omega} \Big|_{\omega_s} \Delta \omega + \dots \right) - \left( k_i - \frac{\partial k_i}{\partial \omega} \Big|_{\omega_i} \Delta \omega + \dots \right) = 0,$$

wobei ein schmalbandiger Pumpimpuls angenommen wurden.





**Abbildung 2.6.:** (a) Eine Pumpe bei 343 nm wird in einen 5 mm langen BBO-Kristall fokussiert. (b) Hinter dem Kristall ist ein Lichtkegel sichtbar, dessen Frequenzen winkeldispersiv aufgespalten sind. Für verschiedene Winkel  $\theta_p$  ist die Winkeldispersion verschieden. So gibt es einen Winkel  $\theta_{p2}$ , bei dem das sichtbare Spektrum in einem einzigen Ring lokalisiert ist. Der Öffnungswinkel des Kegels entspricht gerade  $2\alpha_m$ . (Für die Fotografien wurde zusätzlich ein breitbandiger Weißlicht-Seed (rechts neben der Pumpe) in den Kristall fokussiert, um den Ring deutlicher sehen zu können. Daher ist auch ein Idler (links neben der Pumpe) sichtbar.)

derselben Raumrichtung phasenangepasst sind.

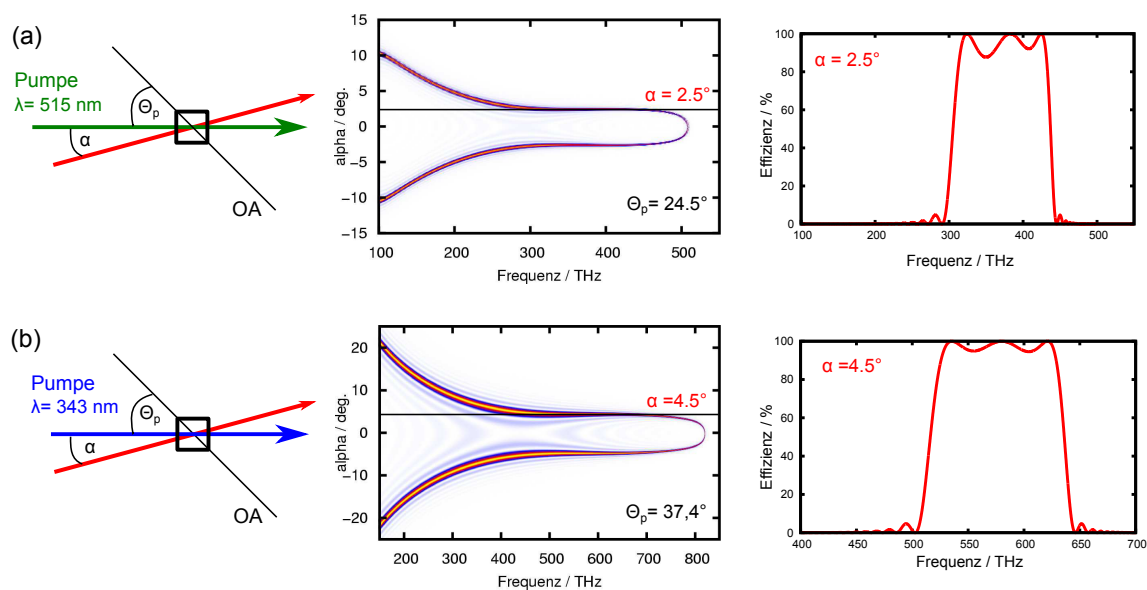
So ist bei einer Pumpwellenlänge von 515 nm und einem 2 mm langen BBO-Kristall eine Verstärkungsbandbreite von 300 THz bis 450 THz möglich, siehe Abb. 2.7 (a)<sup>1</sup>. Der Frequenzbereich der Verstärkung kann mit einer anderen Pumpwellenlänge und der Anpassung der Winkel  $\theta_p$  und  $\alpha$  in benachbarte Spektralbereiche verschoben werden. Wird z.B. eine Pumpwellenlänge von 343 nm gewählt mit  $\theta_p = 37,4^\circ$ ,  $\alpha_m = 4,6^\circ$ , ist eine Verstärkung von 500 THz bis 650 THz möglich (Abb. 2.7 (b)).

Die Darstellung der spektralen Bandbreite der relativen Konversionseffizienz in Abb. 2.7, die von der Propagationslänge  $L$  abhängt, wurde anhand des Zusammenhangs  $\text{sinc}(\Delta k \cdot \frac{L}{2})$  berechnet. Diese Abschätzung gilt nur für den Fall, dass der Abbau des Pumpfeldes vernachlässigt werden kann (e.g. [Sut03]), und dass während der gesamten Propagation alle drei beteiligten Strahlen (Signal, Idler und Pumpe) ständig miteinander interagieren können. Dies ist besonders in der nicht-kollinearen Geometrie und bei kleinen Strahldurchmessern nicht der Fall. Daher werden im Folgenden zusätzlich räumliche Effekte wie Beugung und „walk-off“, aber auch zeitliche und parasitäre Effekte mit in die Betrachtung der parametrischen Verstärkung einbezogen.

### Berücksichtigung von räumlichen, zeitlichen und parasitären Effekten

Bevor in diesem Abschnitt nun die Ergebnisse einer komplexen Simulation diskutiert werden, die sowohl räumliche und zeitliche als auch parasitäre Effekte während des

<sup>1</sup>Zum Vergleich: in der kollinearen Geometrie ( $\alpha = 0$ ) sind es nur etwa 10 THz (bei etwa 350 THz).

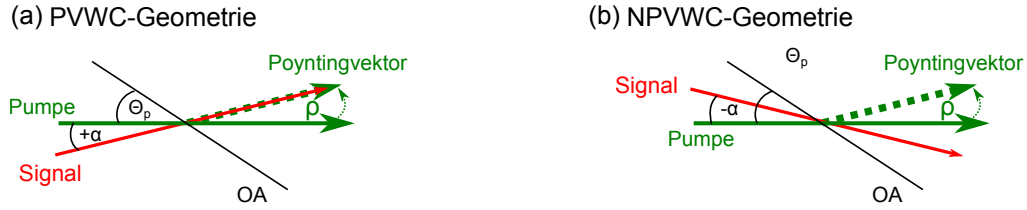


**Abbildung 2.7.:** Darstellung der Phasenanpassungskurve für verschieden Pumpwellenlängen. (a) Bei einer Pumpwellenlänge von 515 nm und einem Phasenanpassungswinkel von  $\theta_p = 24,5^\circ$  ist bei einem Winkel von  $\alpha = 2,5^\circ$  eine Verstärkungsbandbreite allein aufgrund von Phasenanpassung von etwa 300 THz bis etwa 450 THz möglich (2 mm BBO-Kristall). Der Verlauf der Phasenanpassungskurve bei einer Pumpwellenlänge von 343 nm ist ähnlich zur vorherigen. Bei einem  $\theta_p = 37,4^\circ$  und einem Winkel  $\alpha = 4,5^\circ$  ist die Verstärkungsbandbreite von 150 THz vergleichbar. Allerdings liegt die Verstärkung im sichtbaren Spektralbereich von 500 THz bis 650 THz (b).

Verstärkungsprozesses berücksichtigt, wird der Einfluss des Poynting-Vektors auf die nicht-kollineare Strahlgeometrie beschrieben.

**Poynting-Vektor:** Einen wichtigen Hinweis, warum räumliche Effekte berücksichtigt werden müssen, gibt die Ablenkung eines außerordentlichen Strahls in einem doppelbrechenden Kristall. Ist z. B. die Pumpe eines parametrischen Verstärkes in einem BBO gemäß Typ-I-Phasenanpassung außerordentlich polarisiert, so zeigt der Poynting-Vektor, also der Energiefluss, nicht in die Propagations-Richtung  $\vec{k}_p$ . Der Winkel zwischen  $\vec{k}_p$  und dem Poynting-Vektor ist der walk-off-Winkel  $\rho$ . Es macht daher durchaus einen Unterschied, ob der Winkel<sup>1</sup>  $\alpha = +\alpha_m$  oder  $\alpha = -\alpha_m$  des Signals zur Pumpe als Verstärkungsgeometrie gewählt wird (siehe Abb. 2.8 und z. B. [Bro11]). Die Geometrie in Abb. 2.8 (a) wird „Poynting vector walk-off compensation“ (PVWC)-Geometrie genannt ( $\alpha = +\alpha_m$ ), da das Signal mit dem Poynting-Vektor kopropagiert. Dies erhöht die Wechselwirkungslänge zwischen Signal und Pumpe. In dieser Geometrie ist zusätzlich zum Differenzfrequenz-Prozess u.a. die Erzeugung

<sup>1</sup>Der Winkel  $\alpha_m$  ist der „magic angle“.



**Abbildung 2.8.:** (a) In der „Poynting vector walk-off compensation“ (PVWC)-Geometrie propagieren Signal und Poynting-Vektor der Pumpe nahezu in die gleiche Richtung und propagieren dadurch räumlich länger miteinander. (b) In der „non Poynting vector walk-off compensation“ (NPVWC)-Geometrie ist das Gegenteil der Fall. Allerdings kopropagiert hier ein Frequenzanteil des dispersiv aufgespalteten Idlers mit dem Poynting-Vektor.

der zweiten Harmonischen einer Signalwellenlänge phasenangepasst<sup>1</sup>. Dies ist bei  $\alpha = -\alpha_m$ , der „non Poynting vector walk-off compensation“ (NPVWC)-Geometrie nicht der Fall, so dass kein Energieverlust durch parasitäre Prozesse für den Signalpuls vorhanden ist. In dieser Geometrie propagiert eine Frequenzkomponente des dispersiv aufgespannten Idlers in Richtung des Poynting-Vektors.

Wie in der Veröffentlichung von Lang et al. [Lan12] beschrieben, werden in den folgenden Simulationen der parametrischen Verstärkung räumliche und zeitliche und auch parasitäre Prozesse mit berücksichtigt. Dabei werden die ordentlich polarisierten Felder, wie Signal und Idler, in dem Feld  $E_o$  und alle außerordentlich polarisierten Felder, wie u.a. die Pumpe, in  $E_e$  zusammengefasst.

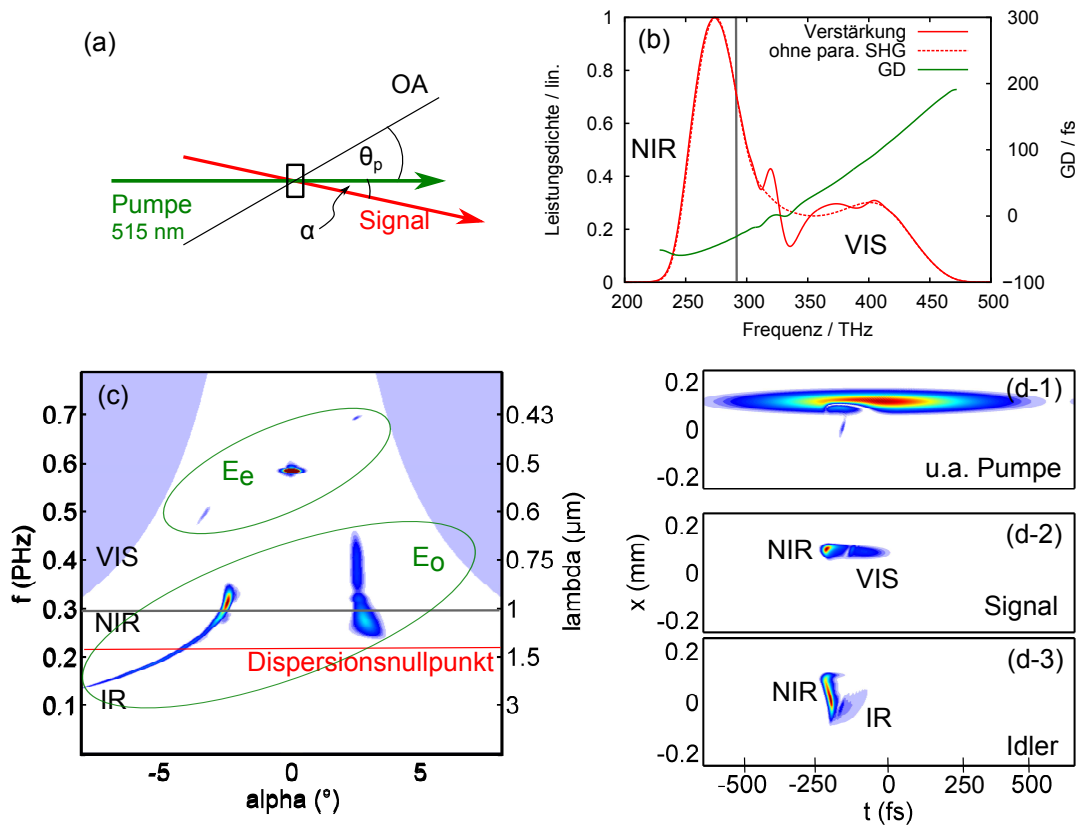
**Ergebnis der Simulation eines NIR-NOPA:** Abb. 2.9 zeigt das Resultat einer Simulation eines mit 515 nm gepumpten OPA in der nicht-kollinearen PVWC-Geometrie. In (a) werden die dargestellten Winkel  $\theta_p$  und  $\alpha$  definiert. Die Simulation berechnet die Propagation in einem 2 mm langen Typ-I BBO-Kristall bei einer Pumpenergie von 5  $\mu\text{J}$  und einem Pumpstrahlradius von 0,05 mm. Als Seed wurde ein fourierlimitiertes Supergaußspektrum angenommen, das ein Spektrum von 200 THz bis 500 THz abdeckt<sup>2</sup>.

Das verstärkte Signalspektrum ist in Abb. 2.9 (b) dargestellt (rote Kurve: Signalspektrum, rot-gepunktete Kurve: Signalspektrum ohne parasitäre SHG, grüne Kurve: Gruppenverzögerung (GD)).

Die dargestellte GD resultiert aus der positiven Dispersion des BBO und einer parametrischen Phase [Dem12, Ros02]. Die spektrale Bandbreite der Verstärkung

<sup>1</sup>Bei einer Pumpwellenlänge von 515 nm und  $\theta \approx 24,5^\circ$  liegt die parasitäre SHG etwa bei 850 nm.

<sup>2</sup>Die genauen Parameter der Simulation sind im Anhang A vermerkt.



**Abbildung 2.9.:** Ergebnis der Simulation des NIR-NOPAs: (a) Beschreibung der Winkel  $\theta_p$  und  $\alpha$  in der PVWC-Geometrie. (b) Verstärktes Signalspektrum (rot), Verstärktes Signalspektrum ohne Berücksichtigung der parasitären SHG (rot gepunktet), und die GD (grün). Die graue Linie markiert den Entartungspunkt des mit 515 nm gepumpten NOPAs. (c) Darstellung der spektralen Verteilung der Felder  $E_o$  und  $E_e$  über den Winkel  $\alpha$ . (d) Darstellung der räumlichen Verteilung des Feldes  $E_e$  (d-1), des Signalfelds aus  $E_o$  (d-2) und Idlerfelds aus  $E_o$  (d-3) über der Zeit.

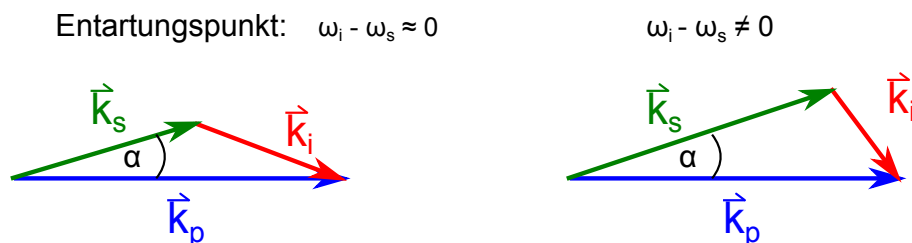
reicht von 250 THz bis 450 THz und ist etwa doppelt so breit wie die in Abb. 2.6 dargestellte Verstärkungskurve, die nur aufgrund der Phasenfehlانpassung berechnet wurde. Auch die spektrale Form weicht deutlich von der einfachen Abschätzung ab. Die charakteristische Modulation aus Abb. 2.6 ist im Ergebnis der komplexen Simulation nicht wiederzuerkennen. Hier ist die Verstärkung im sichtbaren Bereich (VIS) eher homogen flach und weist im nahen infraroten Bereich (NIR) einen deutlichen Peak auf (der Entartungspunkt dieses NOPAs liegt bei 290 THz). Der spektrale Einbruch um 340 THz folgt aus der ebenfalls phasenangepassten parasitären SHG.

Abb. 2.9 (c) und (d) erlauben einen tiefen Einblick in die zeitliche und räumliche Charakteristik der wechselwirkenden Felder. So zeigt Abb. 2.9 (c) die Winkelver-

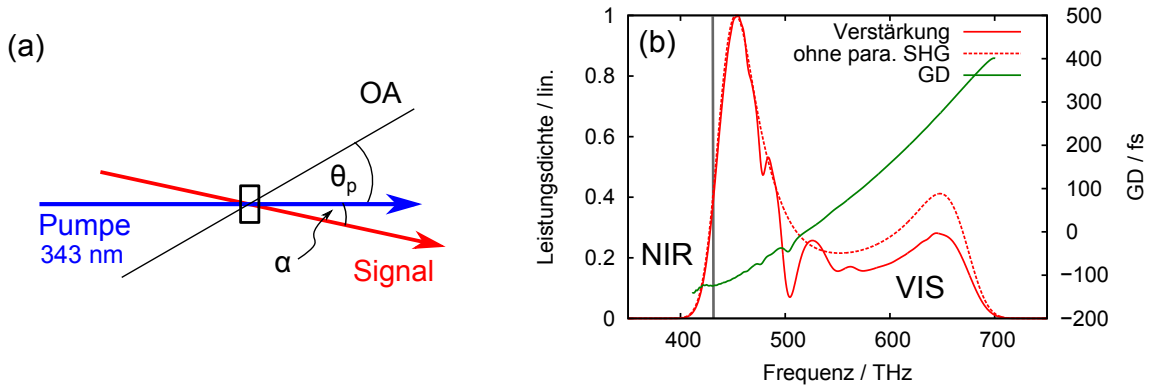
teilung der einzelnen Spektralanteile. Das gesamte Signalspektrum befindet sich bei etwa  $2,5^\circ$ . Der Idler hingegen verteilt sich, wie zu erwarten, dispersiv in den Winkelraum. Die mit  $E_o$  markierten Spektralanteile gehören zum ordentlich polarisierten Feld und die mit  $E_e$  markierten zum außerordentlichen Feld. Damit wird deutlich, dass die Frequenzen im außerordentlichen Feld  $E_e$  neben der Pumpe zu den parasitär phasenangepassten Frequenzverdoppelten des Signals und des Idlers gehören. Zusätzlich sind der Entartungspunkt des OPAs und auch die Position der Dispersionsnullstelle von BBO eingezeichnet. Das Signal erfährt eine positive Dispersion während der Propagation durch den Kristall und erzeugt somit einen Idler mit einer negativen Dispersion. Folglich wird der Idler im nahinfraroten Bereich oberhalb des Dispersionsnullpunkts von BBO bei  $1,5\ \mu\text{m}$  zeitlich komprimiert, im infraroten Bereich weiter gestreckt.

Dieses komplexe Verhalten ist auch gut in Abb. 2.9 (d) zu erkennen, in der die Felder räumlich (x-Richtung) und zeitlich dargestellt werden. In Abb. 2.9 (d-1) ist das gesamte  $E_e$ -Feld, also der Pumpimpuls bei  $515\ \text{nm}$  zusammen mit der parasitären Idler-SHG und Signal-SHG gezeigt. In (d-2) ist nur das Signal ( $E_o$  für  $\alpha > 0$ ) und in (d-3) nur der Idler ( $E_o$  für  $\alpha < 0$ ) zu sehen. Der Idler ist bei etwa  $t = -200\ \text{fs}$  zeitlich komprimiert und enthält die NIR-Spektralanteile. Bei  $t = -200\ \text{fs}$  ist auch die Verstärkung des Signals sehr gut, da das Signal positiv dispersiv gestreckt ist und gerade der NIR-Teil des Signals mit dem komprimierten Idler zeitlich überlagert. Dies ist eine Erklärung für den Peak im Verstärkungsprofil um  $290\ \text{THz}$ , siehe Abb. 2.9 (b).

Eine weitere Ursache für diesen Peak liegt darin, dass im Entartungspunkt ( $\omega_s - \omega_i \approx 0$ ) Signal und Idler bestmöglich räumlich überlappen. Wird die Frequenzdifferenz von Idler und Signal allerdings größer, nähert sich der Winkel zwischen  $\vec{k}_s$



**Abbildung 2.10.:** Darstellung der Richtungsvektoren von Signal  $k_s$  und Idler  $k_i$  und Pumpe  $k_p$  in der nicht-kollinearen Geometrie. Im Entartungspunkt ist die größtmögliche Wechselwirkungslänge von Signal, Idler und Pumpe möglich.



**Abbildung 2.11.:** Ergebnis der Simulation des VIS-NOPAs. (a) Beschreibung der Winkel  $\theta_p$  und  $\alpha$  in der PVWC Geometrie. (b) Verstärktes Signalspektrum (rot), verstärktes Signalspektrum ohne Berücksichtigung der parasitären SHG (rot gepunktet), und die GD (Grün). Die graue Linie markiert den Entartungspunkt des mit 343 nm gepumpten NOPA.

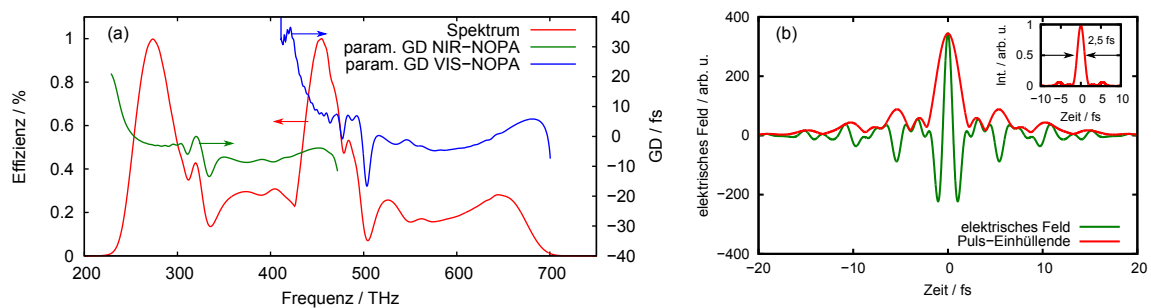
und  $\vec{k}_i$   $90^\circ$  und Signal und Idler laufen schneller aus ihrem Wechselwirkungsbereich heraus (siehe Abb. 2.10).

**Ergebnis der Simulation eines VIS-NOPA:** Eine ganz ähnliche Simulation, allerdings diesmal für eine Pumpwellenlänge von 343 nm (mit  $\theta_p = 37,2^\circ$  und  $\alpha = 4,51^\circ$ ), ist in Abb. 2.11 zu sehen. Deutlich ist wieder ein Peak in der Nähe des Entartungspunkts des NOPAs bei 437 THz zu erkennen und auch der spektrale Einbruch bei 500 THz resultiert aus der ebenfalls phasenangepassten parasitären SHG. Hier reicht die Verstärkungsbandbreite von etwa 400 THz bis 700 THz. Dies ist ebenfalls wieder mehr als das doppelte der in Abb. 2.6 vorgestellten Bandbreite, die allein aufgrund der Phasenanpassungsbedingung berechnet wurde.

**Fazit:** Die Berücksichtigung von räumlichen und zeitlichen Prozessen in Hinblick auf die Verstärkungsbandbreite optisch-parametrischer Verstärker führt zu deutlich komplexeren Ergebnissen, als die einfache Abschätzung allein aufgrund der Phasenanpassungsbedingung. Allerdings stimmen diese Berechnungen auch weitaus besser mit experimentellen Ergebnissen überein (siehe [Lan12]). Zudem ist die spektrale Form des komplexen Verstärkungsspektrums größtenteils erklärbar. Wie z. B. die ausgeprägte Verstärkung im Entartungspunkt des NOPA, aber auch die enorm breite Verstärkungsbandbreite, da durch räumliche Effekte die effektive Kristalllänge verkürzt wird und somit daraus eine breitere Verstärkung resultiert.

### Erhöhung der Bandbreite durch zwei Verstärkerstufen

Die bisher vorgestellte maximale Verstärkungsbandbreite ist für Einzyklen-Pulse nicht geeignet. Die Kombination zweier parametrischer Verstärker allerdings führt zu einem sehr breiten Verstärkungsspektrum. Zum Beispiel umfasst das Spektrum bei der Synthese eines mit 515 nm gepumpten NOPA und eines mit 343 nm gepumpten NOPA den Bereich von 250 THz bis 700 THz (siehe Abb. 2.12). Dieses Spektrum unterstützt eine fourierlimitierte Pulsdauer von etwa 2,5 fs, was bei einer Zentralwellenlänge von 714 nm einem Einzyklen-Puls entspricht.



**Abbildung 2.12.:** Synthese der Verstärkungsbandbreite zweier parametrischer Verstärker. (a) Der eine Verstärker wird mit 515 nm gepumpt, der zweite mit 343 nm. Das kombinierte Spektrum reicht von 220 THz bis 680 THz und unterstützt ein Fourierlimit von 2 fs. (b) Mit einer Zentralwellenlänge um 714 nm folgt aus diesem Spektrum ein Einzyklen-Puls.

In Abb. 2.12 (a) sind zusätzlich zum Spektrum auch die Gruppenverzögerungsbeiträge (GD), die nur allein aus dem parametrischen Prozess resultieren, dargestellt. Die parametrische GD (para.-GD) ist sowohl bei 340 THz und als auch bei 500 THz aufgrund der parasitären SHG leicht moduliert. Sonst zeigt die para.-GD bis zu den Randbereichen der jeweiligen NOPA-Spektren einen eher flachen Verlauf. Im Überlapp-Bereich der beiden Spektren bei 450 THz zeigt der Verlauf der VIS-NOPA-GD eine Tendenz zu positiven GD-Werten, der Verlauf der NIR-NOPA-GD allerdings zu negativen Werten und es ist nicht ganz eindeutig, wie sich dieser GD-Verlauf bei einer Synthese der Spektren experimentell auswirkt. Laut Herrmann et al. [Her10] soll dieser Bereich allerdings unkritisch sein.

Somit ist die Kombination zweier NOPA-Stufen, die jeweils unterschiedliche Spektralbereiche verstärken, geeignet auch das Spektrum eines Einzyklen-Pulses im sichtbaren Bereich zu verstärken (siehe Kapitel 4). Eine Kompensation der positiven Dispersion, die auf das Spektrum aufgeprägt ist, wird mit üblichen Methoden (Gitterkompressor, Prismenkompressor oder dispersive Spiegel) aufgrund der spektralen Bandbreite nicht möglich sein. Allerdings wird in Kapitel 5.2 ein breitbandiger pris-

menbasierter Pulsformer vorgestellt, mit dem die spektrale Phase über das gesamte Spektrum hinweg manipuliert werden kann, um dadurch dann auch komplexe Phasenverläufe, die z. B. im Überlapp-Bereich zweier NOPA-Stufen auftreten könnten, kontrollieren zu können.



# Kohärente Kontrolle mit Einzyklen-Pulsen

Die gezielte Manipulation des Endzustands eines atomaren Systems durch die Wechselwirkung von Licht wird kohärente Kontrolle genannt. Unter diesem Oberbegriff werden verschiedene Methoden zusammengefasst [Ric92]. Darunter gehört u.a. die zeitliche kohärente Kontrolle, bei der der temporale Abstand zweier oder mehrerer Pulse den Endzustand definiert (siehe z. B. [Bla98, Fel01, Fel03, Heb95, Wit05]). Im Fall der Kontrolle über die Interferenz verschiedener Quantenpfade bestimmt die relative Phase der Pfade das Endergebnis [Dud01, Mes98, Prä04, Ser05, Sto08, Xia07].

Besteht zusätzlich der Anregungspuls aus nur wenigen optischen Zyklen, gewinnt der Einfluss des elektrischen Feldes gegenüber der Pulseinhüllenden an Bedeutung (wie schon in Kapitel 2 und in [Bra97, Zio95] gezeigt), so dass sogar die absolute Phase des Feldes einen Kontrollparameter für die kohärente Kontrolle darstellt.

Beispiele in der Starkfeldphysik ( $\hat{I} > 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) zeigen, dass das Spektrum der hohen Harmonischen eines nahezu Einzyklen-Pulses von der Träger-Einhüllenden-Phase (CEP) des treibenden Feldes abhängt [Bal03]. Auch im störungstheoretischen Bereich ( $\hat{I} < 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), d.h. ohne die Elektronen im Medium aus ihrem atomgebundenen Zustand zu lösen, ist der Einfluss der CEP bedeutsam [Chu11, Dcvac06, Jir05, Nak06a, Wu07]. Allerdings sind in diesem Intensitätsbereich die Nichtlinearitäten deutlich geringer und somit der Einfluss der Träger-Einhüllenden-Phase experimentell schwerer zugänglich. Erst im Jahr 2010 wurden die ersten Messungen einer CEP-abhängigen Zustandsbesetzung an atomar gebundenen Elektronen in Rubidium durchgeführt [Jha11, Jha11, Li10]. Dieser Übergang wurde zum Einen mit einem Wenige-Zyklen-Puls und zum Anderen mit einem bichromatischen Puls im Radiofrequenzbereiche getrieben. Ein Nachweis über eine optische Anregung mittels eines

Einzyklen-Pulsen steht noch aus. Dies würde die Messung der CEP eines Pulses bei moderaten Intensitäten erlauben.

Das in dieser Arbeit erzeugte Spektrum des parametrischen Verstärkers unterstützt einen Einzyklen-Puls im sichtbaren Spektralbereich und ist somit geeignet die CEP-Abhängigkeit atomarer gebundener Zustände zu untersuchen. In diesem Kapitel wird daher zunächst auf die physikalischen Ursachen der CEP-Abhängigkeit atomarer Zustände eingegangen, um dann in einem Zwei-Niveau-System mögliche Anregungspfade für eine experimentelle Realisierung zu identifizieren.

## 3.1. Populationsdynamik in einem Zwei-Niveau-System

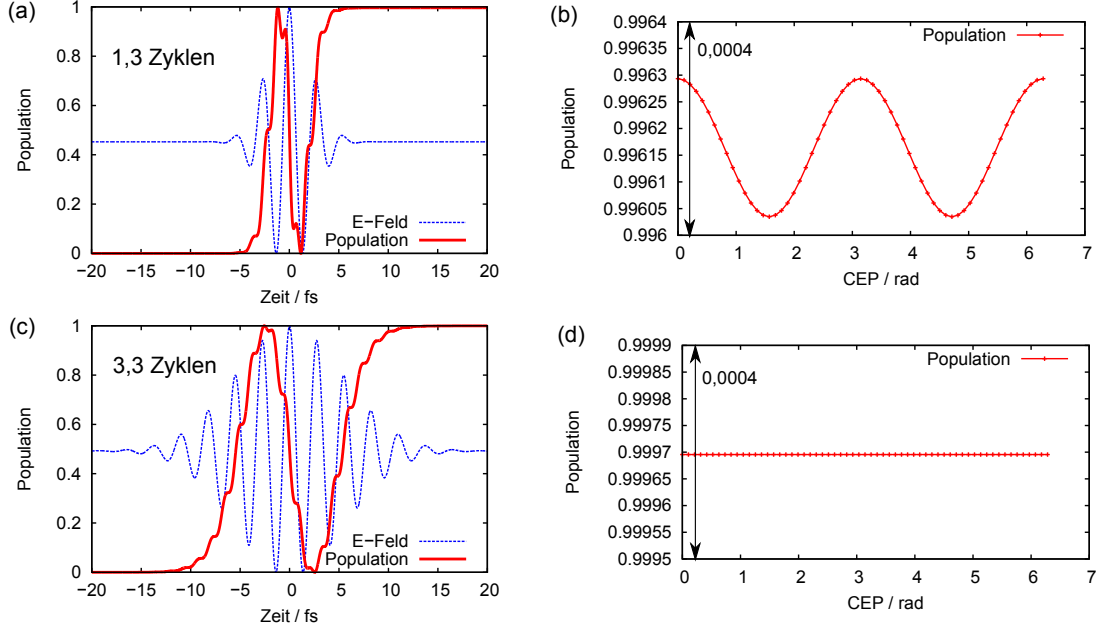
Bei Wenigen-Zyklen-Pulsen ist die Zustandsbesetzung eines atomaren Systems sensitiv auf das elektrische Feld [Hug98, Zio95]. Dies hat zur Folge, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit nicht nur von der Pulseinhüllenden, der Zentralfrequenz und der Pulsfläche abhängt, sondern auch von der Träger-Einhüllenden-Phase  $\varphi_0$  des Anregungspulses.

Aufbauend auf den theoretischen Betrachtungen in Kapitel 2, vergleicht Abb. 3.1 die Populationswahrscheinlichkeit  $P(\varphi) = |c_e(\varphi)|^2$  des oberen Niveaus in einem Zwei-Niveau-System während der Wechselwirkung mit z. B. einem 1,3-Zyklen-Puls und einem 3,3-Zyklen-Puls (Abb. 3.1 (a) und (c)). Wird nun die Träger-Einhüllenden-Phase  $\varphi_0$  des Pulses variiert, oszilliert der Endzustand der Population des oberen Zustands mit  $2\varphi_0$ . Dies ist besonders ausgeprägt bei der Wechselwirkung mit dem 1,3-Zyklen-Puls (Abb. 3.1 (b)), im anderen Fall ist die Oszillation kaum sichtbar<sup>1</sup> (Abb. 3.1 (d)). Dieses Beispiel zeigt, dass z. B. die Pulsdauer die Modulationstiefe eines CEP-Effekts entscheidend beeinflusst.

**Kontrast, Population und Qualität:** Um im Folgenden die Abhängigkeit der Zustandsbesetzung von der Träger-Einhüllenden-Phase qualitativ beschreiben zu kön-

---

<sup>1</sup>Bei der Berechnung der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung sollten die Beziehungen:  $\int_{-\infty}^{\infty} dt E(t) \approx 0$  und  $(|c_e|^2 + |c_g|^2 - 1) \approx 0$  jeweils mit überprüft werden, um die Simulationsergebnisse einschätzen zu können. Ist die Modulationstiefe der CEP-Abhängigkeit größer als der Wert des Integrals oder dessen Modulation, dann ist der CEP-Effekt realistisch und kein numerisches Artefakt. Das Gleiche gilt für den Fehler der Summe der Populationswahrscheinlichkeiten.



**Abbildung 3.1.:** Vergleich der Populationsdynamik während der Wechselwirkung mit einem 1,3-Zyklus-Puls (a) und einem 3,3-Zyklus-Puls (c) (Pulsfläche  $\mathfrak{A} = 3\pi$ , Zentralfrequenz entspricht 1,5 eV, Niveau-Abstand 1,5 eV). Wird die Träger-Einhüllenden-Phase  $\varphi$  des Pulses verstimmt, oszilliert der Endzustand der Population mit  $2\varphi$  (b). Bei größeren Pulsdauern ist dieser Effekt verschwindend gering (d).

nen, wird die mittlere Population  $\bar{P}$  und der Kontrast  $K$  eingeführt:

$$\bar{P} = \frac{P_{\max} + P_{\min}}{2}, \quad (3.1)$$

$$K = \frac{P_{\max} - P_{\min}}{P_{\max} + P_{\min}}. \quad (3.2)$$

Der Kontrast  $K$  ist maximal für eine große Populationsdifferenz ( $P_{\max} - P_{\min}$ ), aber auch bei kleiner mittlerer Population. Für einen experimentellen Nachweis einer CEP-abhängigen Zustandsbesetzung müssen beide Größen messbare Werte annehmen. So ist ein großer Kontrast bei sehr kleiner Population experimentell schwer zu messen, da oft sehr lange Messzeiten erforderlich sind. Aber auch eine große Population mit sehr kleinem Kontrast birgt die Herausforderung in sich, das eigentliche CEP-abhängige Signal von einem hohen Signaluntergrund zu separieren. Daher wird zusätzlich der Qualitätsparameter  $Q = \bar{P} \cdot K$  eingeführt.

In der Literatur werden verschiedene Modelle genutzt, um die physikalischen Ursachen der CEP-abhängigen Populationswahrscheinlichkeit zu beschreiben. Im Fol-

genden wird eine Erklärung unter der Berücksichtigung negativer Frequenz Übergänge (siehe z.B. [Zha12]) beschrieben und das Modell der Quantenpfad-Interferenz vorgestellt.

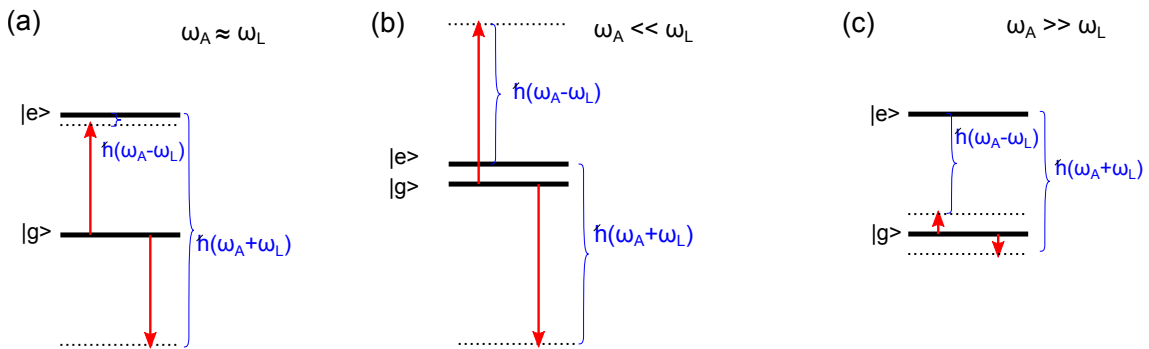
### Berücksichtigung negativer Frequenz Übergänge

Nakajima et al. [Nak06b] begründen die CEP-abhängige Besetzungswahrscheinlichkeit  $|c_e|^2$  darüber, dass bei einem Einzyklen-Puls die sonst aufgrund der RWA vernachlässigten Terme in  $|c_e|^2$  berücksichtigt werden müssen<sup>1</sup>. Dies wird nun am Beispiel eines Zwei-Niveau-Systems beschrieben.

Wie in Kapitel 2 mit Gl. (2.8) schon vorgestellt, wird die Ein-Photonen-Absorption in einem Zwei-Niveau-System störungstheoretisch beschrieben durch:

$$c_e^{(1)} = -i \frac{\mu}{2\hbar} \int_{-\infty}^t dt' A(t') (e^{i(\omega_A + \omega_L)t'} + e^{i(\omega_A - \omega_L)t'}). \quad (3.3)$$

Ist das elektrische Feld resonant zum atomaren Übergang ( $\omega_L = \omega_A$ ), dann kann der Term mit  $(\omega_A + \omega_L) \approx 2\omega_L$  (der Übergang mit einer „negativen“-Frequenz) vernachlässigt werden; nur der Term mit  $(\omega_A - \omega_L) \approx 0$  führt zu einem signifikanten Beitrag (siehe auch Abb. 3.2 (a)). Dies ist die RWA. Der Phasenterm mit  $(\omega_A + \omega_L)$  in Gl. 3.3 bezieht sich in der voll-quantenmechanischen Lösung<sup>2</sup> der Licht-Materie-Wechselwirkung auf einen Übergang, der die Zustandsänderung der Materie vom



**Abbildung 3.2.:** Darstellung von Ein-Photon-Übergängen in einem Zwei-Niveau-System, die durch die Phasenterme mit  $(\omega_A + \omega_L)$  und  $(\omega_A - \omega_L)$  beschrieben werden für verschiedene Verstimmungen ( $\omega_A \approx \omega_L$ ), ( $\omega_A \ll \omega_L$ ), ( $\omega_A \gg \omega_L$ ).

<sup>1</sup>Nakajima et al. [Nak06b] beziehen sich in ihrer Argumentation auf ein Drei-Niveau-System und eine Zwei-Photon-Absorption in einem Cäsium-Atom (Cs).

<sup>2</sup>In der voll-quantenmechanischen Beschreibung ist auch das elektromagnetische Feld quantisiert. Die Erzeugung oder Vernichtung (bzw. die Emission oder Absorption) von einem Lichtteilchen wird durch Operatoren  $\hat{a}^\dagger, \hat{a}$  und die Erzeugung oder Vernichtung eines

Grundzustand in den oberen Zustand beschreibt, wobei ein Photon emittiert wird. Dieser Übergang ist in Abb. 3.2 dargestellt.

Für Pulsdauern im Bereich weniger fs gewinnt der Term mit der negativen Frequenz an Bedeutung, da die Bandbreite groß genug ist, um auch Übergänge wie in Abb. 3.2 (b) und (c) zu treiben [Nak06b, Zha12]. Dies führt zu einer Abhängigkeit der Populationswahrscheinlichkeit von der Träger-Einhüllenden-Phase  $\varphi_0$  (wobei A und B Amplitudenterme für den jeweiligen Phasenbeitrag darstellen):

$$|c_e|^2 \propto |Ae^{-i\varphi_0} + Be^{i\varphi_0}|^2 = |A + Be^{i2\varphi_0}|^2. \quad (3.4)$$

Diese Abhängigkeit ist stärker für nicht-resonante Anregungen [Nak06b, Pen10], was zu einer niedrigen Populationswahrscheinlichkeit führt, da bei einer resonanten Anregung die RWA greift (siehe oben) und die CEP-Abhängigkeit verschwindet.

### Quantenpfadinterferenz

Eine andere Erklärung der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung beruht auf der Quantenpfadinterferenz, bei der verschiedene Quantenpfade vom selben Ausgangszustand über unterschiedliche Wege gemeinsam zur Wahrscheinlichkeitsamplitude eines Endzustands beitragen [Pen10]. Roudnev et al. [Rou07] nutzten die zeitabhängige Schrödingergleichung und eine Floquet-Darstellung, in der die atomaren Zustände als eine Superposition von Emission und Absorption beschrieben werden, und kommt zu dem Schluss, dass jede CEP-Abhängigkeit als Interferenz von n-Photon-Kanälen beschrieben werden kann.

Bei der Interferenz verschiedener Quantenpfade ist die relative Phase der verschiedenen Wege von großer Bedeutung. Ein einfaches Beispiel ist die Interferenz einer resonanten Ein-Photonen-Absorption (1PA) mit der resonanten Drei-Photonen-Absorption (3PA) (siehe auch Abb. 3.4 Punkt A). Entspricht die Energiedifferenz eines Zwei-Niveau-Systems  $3\omega$  und die beiden elektromagnetischen Felder  $E_{1P}(3\omega)$  und  $E_{3P}(\omega)$  haben die gleiche Phase  $\varphi_0$ , dann folgt für die Wahrscheinlichkeitsamplitude:

$$|c_e|^2 \propto |A_{3P} e^{i3\varphi_0} + A_{1P} e^{i\varphi_0}|^2 = |e^{i2\varphi_0} A_{3P} + A_{1P}|^2. \quad (3.5)$$

---

Quantenzustand durch  $\hat{b}^\dagger, \hat{b}$  beschrieben. Für die beiden Übergänge folgt:

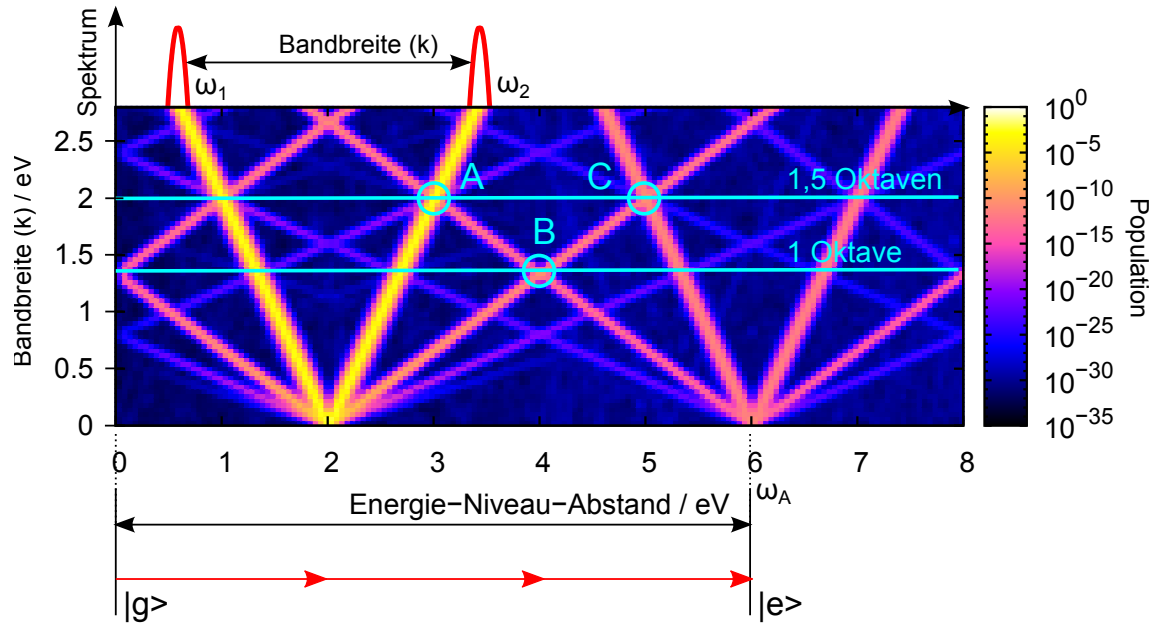
$$\hat{b}_e^\dagger \hat{b}_g \hat{a} e^{i(\omega_A - \omega)t}, \quad \hat{b}_e^\dagger \hat{b}_g \hat{a}^\dagger e^{i(\omega_A + \omega)t}.$$

Das bedeutet, dass die Population eine Modulation mit  $2\varphi_0$  aufweisen wird. Stammen beide Frequenzanteile aus dem selben Puls, dann ist die Modulation von der Träger-Einhüllenden-Phase abhängig.

Mittels der resonanten Quantenpfadinterferenz könnte es also möglich sein, eine CEP-abhängige Zustandsbesetzung nachzuweisen, ohne die Population durch eine nichtresonante Anregung, wie im Fall der energetisch ungünstigen Absorption (siehe Abb. 3.2 (b)), zu verringern.

**Quantenpfadinterferenz mit überoktavbreiten Spektren:** Eine Anregung mit einem fs-Puls stellt ein breites Spektrum zur Verfügung, so dass verschiedene Quantenpfade zur Population eines Niveaus beitragen können. Abb. 3.3 verdeutlicht die Quantenpfade, die in einem Zwei-Niveau-System allein aufgrund der äußeren Randbereiche eines Spektrums möglich sind. Daher wurde für diese Darstellung ein Zwei-Farben-Spektrum mit den beiden Zentralfrequenzen  $\omega_1=2\text{ eV}-k/2$  und  $\omega_2=2\text{ eV}+k/2$  ( $k$  ist die Bandbreite in Abb. 3.3) verwendet, mit jeweils einer spektralen Bandbreite von  $0,02\text{ eV}$  und einer Gaussform. Die Pulsfläche wurde auf  $\mathfrak{A} = \pi$  gesetzt, das Dipolmatrixelement ist  $\mu = 0,2 \cdot 10^{-28}\text{ C m}$ . In Abb. 3.3 wird zum Einen der Energie-Niveau-Abstand des Zwei-Niveau-Systems variiert und zum Anderen der Abstand  $k$  der beiden spektralen Anteile, was der Bandbreite des Spektrums entspricht. Jede einzelne Spur repräsentiert einen Quantenpfad, der entweder nur aus einem Spektralanteil besteht oder durch eine Mischung beider Spektralanteile zum oberen Energie-Niveau führt. Die Pfade, bei der die Population  $P = |c_e|^2 \approx 1$  ist (gelbe Spuren), entsprechen einem Ein-Photonen-Übergang (1PT), die Pfade bei  $P = |c_e|^2 \approx 10^{-10}$  (violette Spuren), entsprechen einem Drei-Photonen-Übergang (3PT), usw.. Eine Kreuzung zweier Quantenpfade ist ein Quantenpfadinterferenzpunkt, bei dem verschiedene Anregungspfade auf das gleiche Zielniveau treffen. In der folgenden Betrachtung werden nur 1PT und 3PT berücksichtigt, da die 5PT und höhere  $n$ -Photonen Übergänge sehr unwahrscheinlich gegenüber den 1PT und den 3PT sind.

Steht z. B. ein oktavbreites Spektrum für die Anregung zur Verfügung, ist der Quantenpfadinterferenzpunkt B für eine mögliche Messung der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung geeignet, da dort zwei Drei-Photonen-Übergänge (3PT) interferieren. Das Spektrum eines Einzyklen-Pulses mit einer Zentralwellenlänge von  $620\text{ nm}$  ist knapp  $1,5$  Oktaven breit (siehe Abb. 2.1) und beinhaltet somit gerade noch die Frequenzen  $\omega$  und  $3\omega$  an den Randbereichen. Für solch ein Spektrum sind zusätz-

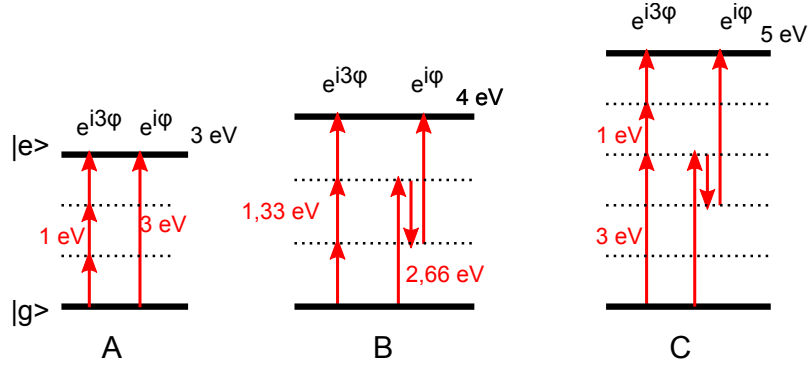


**Abbildung 3.3.:** Übersicht der verschiedenen möglichen Quantenpfade über der spektralen Bandbreite des elektromagnetischen Feldes und dem Energieniveau-Abstand eines Zwei-Niveau-Systems. Jeder Kreuzungspunkt entspricht einem Quantenpfadinterferenzpunkt. Der Punkt B kann mit einem oktavbreiten Spektrum erreicht werden, die Punkte A und C werden erst mit einem 1,5 Oktaven breiten Spektrum relevant. Im Punkt A interferieren ein Ein-Photonen-Übergang mit einem Drei-Photonen-Übergang. In den Punkten B und C interferieren zwei Drei-Photonen-Übergänge.

lich zum Quantenpfadinterferenzpunkt B auch die Punkte A und insbesondere C interessant<sup>1</sup>. Die Hauptanregungswege der Quantenpfadinterferenzpunkte A, B und C sind in Abb. 3.4 in einem Energie-Niveau-Diagramm dargestellt.

Ganz allgemein wird an dieser Darstellung deutlich, dass je größer die spektralen Randbereiche eines Spektrums ist, desto mehr Quantenpfadinterferenzpunkte stehen für eine Messung zur Verfügung. Im Folgenden werden die drei Quantenpfadinterferenzpunkte A, B und C im Detail numerisch und analytisch bzgl. einer von der Träger-Einhüllenden-Phase abhängigen Zustandsbesetzung in einem Zwei-Niveau-System untersucht.

<sup>1</sup>Der Quantenpfadinterferenzpunkt bei  $\Delta E = 1\text{eV}$  und  $k=2$ , ist sehr ähnlich zu Punkt A und wird daher hier nicht zusätzlich diskutiert.



**Abbildung 3.4.:** Darstellung der wichtigsten Anregungspfade der Quantenpfadinterferenzpunkte A, B und C aus Abb. 3.3 in einem Energie-Niveau-Diagramm. Die Interferenz in allen drei Punkten führt zu einer modulierten Zustandsbesetzung von  $\Delta\varphi = 2\varphi$ .

## 3.2. Numerische Untersuchung der Quantenpfadinterferenzpunkte

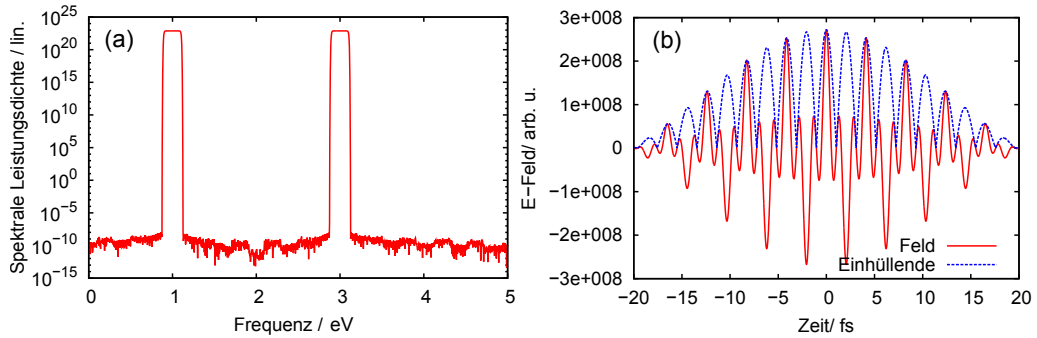
Für die numerische Untersuchung der oben vorgestellten Quantenpfadinterferenzpunkte A, B und C werden die Gleichungen (2.2) mit der Runge-Kutta-Methode gelöst. Dabei wird besonders auf die Maximierung des Kontrastes und der Population Wert gelegt.

**Quantenpfadinterferenzpunkt C:** Ein 1,5-oktavbreites Spektrum beinhaltet die Frequenz  $\omega$  und  $3\omega$ . Somit ist es möglich die Interferenz zweier 3PT in einem geeigneten atomaren System zu untersuchen (siehe Abb. 3.4 Punkt C).

Daher wird zunächst ein Zwei-Farben-Spektrum für den Anregungspuls angenommen:  $E(\omega) = (E_{\omega_1} + E_{\omega_2})e^{i\varphi_0}$  mit  $\omega_1 = 1 \text{ eV}/\hbar$  und  $\omega_2 = 3 \text{ eV}/\hbar$  und der gemeinsamen Phase  $\varphi_0$ . Die Einhüllende der Spektren ist ein Supergauß der Ordnung 20 (siehe Abb. 3.5 (a)). Das zeitliche Profil eines solchen Spektrums ist in Abb. 3.5 (b) dargestellt. Es besteht aus einem „Pulszug“ aus Einzyklen-Pulsen, wobei jeweils jeder zweite Puls die gleiche CEP besitzt. Das Feld wurde für die Simulation auf eine Pulsfläche von  $\mathfrak{A} = \pi$  normiert<sup>1</sup>. Abb. 3.6 (a) zeigt das Ergebnis einer Simulation, in der sowohl die Träger-Einhüllenden-Phase als auch der Energie-Niveau-Abstand  $\Delta E$  variiert werden. Das Verhältnis  $\gamma$  der beiden Feldstärke-Amplituden  $E_{\omega_1}/E_{\omega_2}$  ist eins. In Abb. 3.6 (a-1) ist das Spektrum schematisch über der Energie dargestellt. Zusätzlich sind zwei mögliche Quantenpfade, die zu einem oberen Niveau bei 5 eV führen, skizziert. Die CEP-Abhängigkeit des oberen Energie-Niveaus ist in Abb. 3.6 (a-2) zu

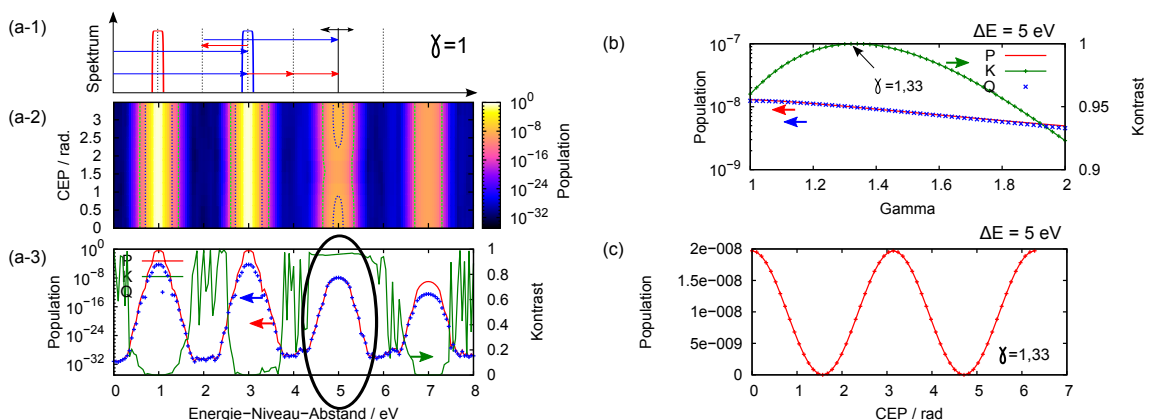
<sup>1</sup>Dies entspricht allerdings nicht wie bei einem Gauß'schen Spektrum einem Puls, der in Resonanz die Zustandsbesetzung invertiert.





**Abbildung 3.5.:** (a) Zwei-Farben Supergauss-Spektrum mit den Zentralfrequenzen 1 eV und 3 eV. (b) Das zeitliche Pulsprofile des Zwei-Farben-Pulses besteht aus einem Einzyklen-Pulszug, wobei jeder zweite „Puls“ bzgl. der CEP identisch ist.

sehen. Dort ist die Populationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der CEP und des Energie-Niveau-Abstands dargestellt. Nur bei einem Energie-Niveau-Abstand von 5 eV ist eine „Insel-Struktur“ zu erkennen, die auf eine CEP-Abhängigkeit hinweist. Für eine qualitative Beurteilung dieses Effekts, sind in Abb. 3.6 (a-3) die mittlere Population, der Kontrast und die Qualität gezeigt. Die mittlere Population deutet auf die resonanten 1PT, 3PT und 5PT hin. Wie zu erwarten ist der Kontrast an den Positionen, bei denen die Population gering ist, relativ groß. Allerdings hat bei  $\Delta E = 5$  eV sowohl die Population als auch der Kontrast ein lokales Maximum, weil dort verschiedene resonante Quantenpfade je nach Träger-Einhüllenden-Phase konstruktiv oder destruktiv interferieren. Dies ist der Quantenpfadinterferenzpunkt C.



**Abbildung 3.6.:** Quantenpfadinterferenzpunkt C: (a) Darstellung der CEP-Abhängigkeit aufgrund der Interferenz von zwei verschiedenen Drei-Photonen-Übergängen ( $\gamma = 1$ ). (b) Mit einem  $\gamma = 1,33$  wird der Kontrast bei  $\Delta E = 5$  eV maximal. (c) Darstellung der aufgrund der Änderung der CEP modulierten Zustandsbesetzung mit maximalem Kontrast.

Der Kontrast kann bei  $\Delta E = 5 \text{ eV}$  weiter erhöht werden, indem das Verhältnis  $\gamma$  der spektralen Anteile angepasst wird. Abb. 3.6 (b) zeigt das Ergebnis der numerischen Variation des Amplitudenverhältnisses  $\gamma = E_{\omega_1}/E_{\omega_2}$  bei einem Energieniveau-Abstand von  $\Delta E = 5 \text{ eV}$ . Der Kontrast wird maximal bei einem Wert  $\gamma = 1,33$ . Der Wert für die mittlere Population sinkt nur unwesentlich.

Mit diesem Verhältnis ist in Abb. 3.6 (c) die Modulation der Zustandsbesetzung im Quantenpfadinterferenzpunkt C über der Träger-Einhüllenden-Phase dargestellt. Die beiden Quantenpfade (siehe Abb. 3.4 Punkt C) liefern einen Phasenbeitrag von  $\varphi$  und  $3\varphi$ , so dass die Interferenz folglich zu einer CEP-Abhängigkeit von  $2\varphi$  führt.

**Quantenpfadinterferenzpunkt A und B:** Eine analoge Untersuchung kann für die Quantenpfadinterferenzpunkte A und B durchgeführt werden. Das Ergebnis ist in Abb. 3.7 zu sehen. Für den Quantenpfadinterferenzpunkt A ist das treibende Feld das gleiche wie im Punkt C, allerdings wird ein anderes Zielniveau gewählt, nämlich  $\Delta E = 3 \text{ eV}$ . Hier interferieren die resonante 3PT und 1PT, folglich ist das optimale Verhältnis in diesem Beispiel mit  $\gamma = 7000$  um Größenordnungen größer als im Punkt C. In Abb. 3.7 (b-2) bei  $\Delta E = 3 \text{ eV}$  ist deutlich die resultierende „Insel“-Struktur aufgrund der CEP-Abhängigkeit zu erkennen. Auch der Kontrast und die Population an dieser Position weisen beide ein Maximum auf (Abb. 3.7 (b-3)).

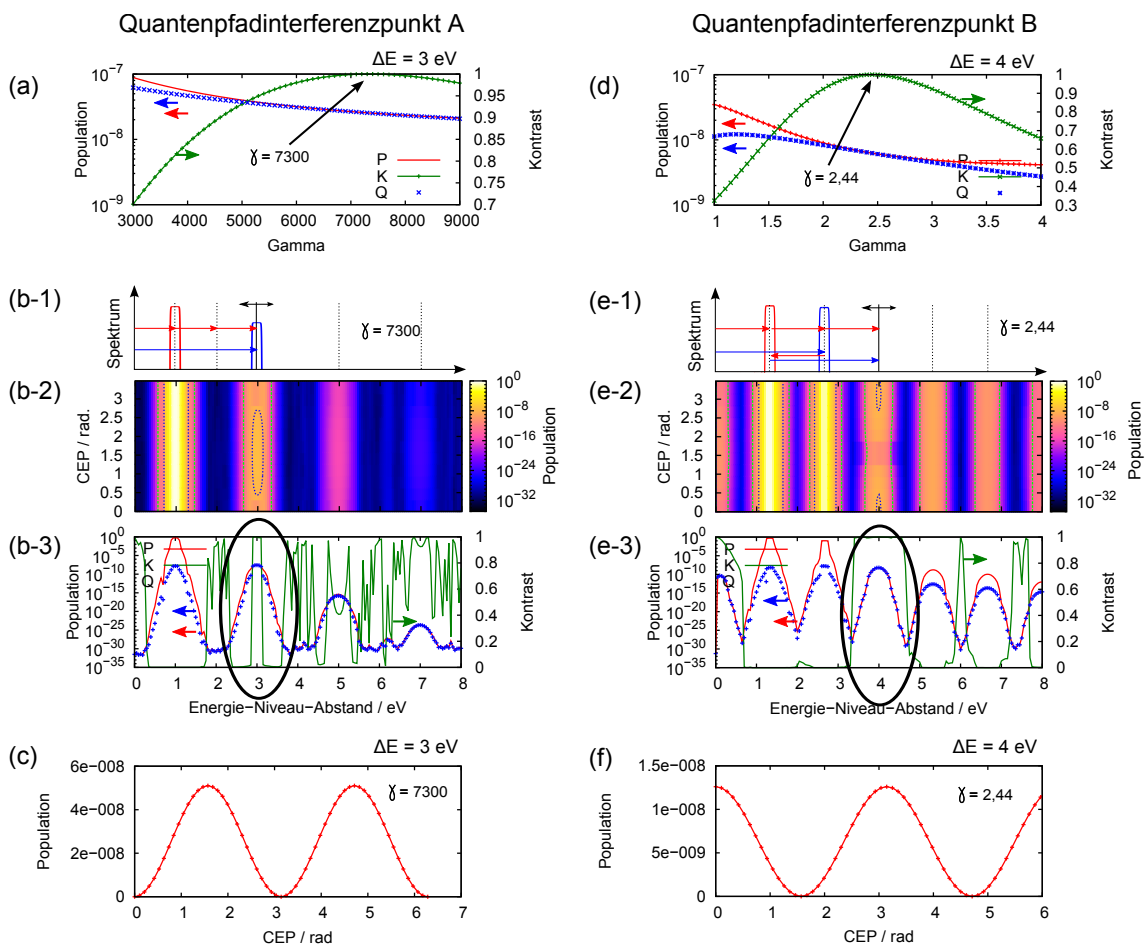
Der Quantenpfadinterferenzpunkt B erfordert ein oktavbreites Spektrum:  $E(\omega) = E_{\omega_1} + E_{\omega_2}$  mit  $\omega_1 = 1,33 \text{ eV}/\hbar$  und  $\omega_2 = 2,66 \text{ eV}/\hbar$ <sup>1</sup>. Auch hier kann numerisch ein Verhältnis  $\gamma$  gefunden werden, für das der Kontrast bei  $\Delta E = 3 \text{ eV}$  maximal wird. Mit  $\gamma = 2,44$  folgt das Ergebnis in Abb. 3.7 (e). Bei einem Energieniveau-Abstand von  $4 \text{ eV}$  ist die Population und der Kontrast maximal.

**Fazit:** In Hinblick auf einen experimentellen Nachweis einer CEP-abhängigen Zustandsbesetzung mit einem Einzyklen-Puls im sichtbaren Spektralbereich sollten die Quantenpfadinterferenzpunkte A, B und C aufgrund des Spektrums erreichbar sein. Da im Punkt A ein 1PT und ein 3PT interferieren, ist das Verhältnis  $\gamma \gg 1$ , so dass für eine ausgeglichene Interferenz nur eine sehr geringe spektrale Leistung bei  $3\omega$  nötig ist. Für die Punkte B und C sind nahezu gleiche spektrale Leistungen in den spektralen Randbereichen erforderlich ( $\gamma \approx 1$ ). Ist das Spektrum nicht breit genug, könnte der Quantenpfadinterferenzpunkt B geeignet sein.

---

<sup>1</sup>Aus diesem Spektrum resultiert ein fourierlimitierter Pulszug mit Einzyklenpulsen, bei dem allerdings jeder Einzyklenpuls die gleiche CEP besitzt.

Die Energie-Niveaus der Punkte A, B und C werden jeweils durch eine Vielfalt von verschiedene Anregungspfaden bevölkert. Der Übersicht halber sind in Abb. 3.4 nur repräsentativ zwei Quantenpfade für jeden Quantenpfadinterferenzpunkt dargestellt. Welche Quantenpfade wirklich einen Beitrag für die Population leisten und welche Quantenpfade vernachlässigt werden können, kann mit einer störungstheoretischen Beschreibung abgeschätzt werden, die im folgenden Abschnitt durchgeführt wird.



**Abbildung 3.7.:** Übersicht über die Ergebnisse der numerischen Simulation der Quantenpfadinterferenzpunkte A und B. (a) und (d) zeigen das numerische Ergebnis für das optimale Verhältnis  $\gamma$  der spektralen Amplituden eines Zwei-Farben-Pulses, (b) und (e) stellen die CEP-abhängige Zustandsbesetzung wie in Abb. 3.6 dar, (c) und (f) zeigen die Modulation der Zustandsbesetzung.

### 3.3. Analytische Untersuchung der Quantenpfadinterferenzpunkte

In diesem Abschnitt wird mit Hilfe der störungstheoretischen Beschreibung der Wechselwirkung das Verhältnis  $\gamma$  für die Quantenpfadinterferenzpunkte B und C analytisch berechnet.  $\gamma$  gibt das Verhältnis der Feldamplituden  $E_1/E_2$  an, wenn die Anregung aus zwei monochromatischen Feldern  $E = E_1 + E_2$  besteht, für das der Kontrast einer CEP-abhängige Zustandsbesetzung maximal wird. Für die analytische Berechnung werden verschiedene Anregungspfade berücksichtigt. Wenn der numerisch bestimmte Wert mit dem analytisch berechneten Wert gut übereinstimmt, wurden alle für den Quantenpfadinterferenzpunkt notwendigen Anregungspfade berücksichtigt. Somit ist dieses Verfahren geeignet, die relevanten Quantenpfade eines Interferenzpunkts mit Sicherheit zu identifizieren.

Ähnlich wie in Kapitel 2.2 wird hier zunächst kurz die allgemeine effektive Rabifrequenz für einen Drei-Photonen-Übergang hergeleitet. Das Zwei-Niveau-System besteht aus dem Grundzustand  $|g\rangle$  und dem oberen Zustand  $|e\rangle$  mit einem Energie-Abstand von  $\Delta E = \hbar\omega_{eg}$  und das elektrische Feld  $E(t)$  soll drei monochromatische Frequenzen enthalten:

$$E(t) = \Re\{ |E_{\omega'}(t)| e^{i(\omega't + \varphi_0)} + |E_{\omega''}(t)| e^{i(\omega''t + \varphi_0)} + |E_{\omega'''}(t)| e^{i(\omega'''t + \varphi_0)} \}. \quad (3.6)$$

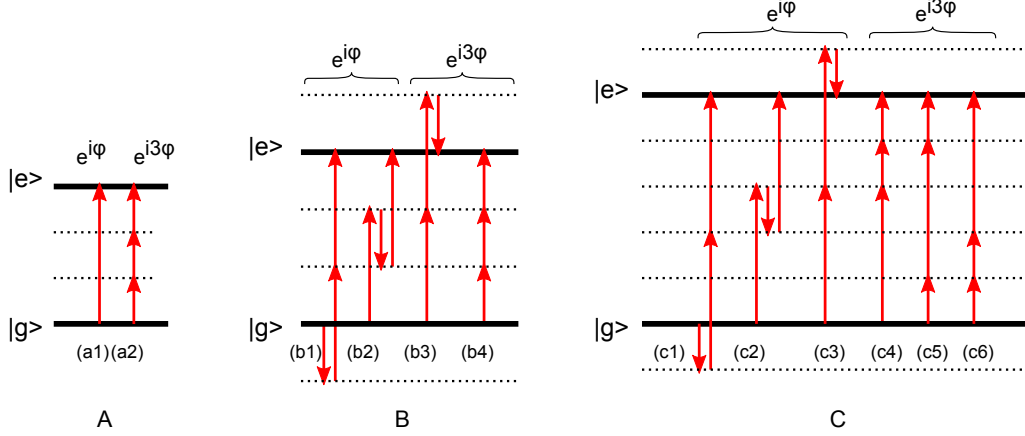
Aus der zeitabhängigen Störungstheorie (siehe Kapitel 2 Gl. (2.10)) folgt für die 3. Störungsordnung  $c_e^{(3)}$ :

$$c_e^{(3)} = -\frac{i}{2} \int_{-\infty}^t dt' \Omega_{3P} e^{i\omega_{eg}t'} \cdot e^{-i(\omega't' + \varphi_0)} e^{-i(\omega''t' + \varphi_0)} e^{-i(\omega'''t' + \varphi_0)}, \quad (3.7)$$

mit der 3P-Rabifrequenz:

$$\Omega_{3P} = \frac{i^2 \mu_{eg}^3}{2^2 \hbar^3} \cdot \frac{|E_{\omega'}(t)| |E_{\omega''}(t)| |E_{\omega'''}(t)|}{(\omega_{eg} - \omega')(\omega' + \omega'')}. \quad (3.8)$$

Dies ist eine allgemeine Rabifrequenz für einen Pfad in das obere Energie-Niveau, bei dem drei Photonen benötigt werden. Wird auf einem Pfad ein Photon absorbiert (z. B.  $\omega'$ ), muss das Vorzeichen für den entsprechenden Term in Gleichung (3.7) gewechselt werden ( $-\omega'$ ). Dies gilt natürlich auch für Gleichung (3.8). Die Lebensdauer der verwendeten virtuellen Energieniveaus kann im Quotienten der 3P-Rabifrequenz



**Abbildung 3.8.:** Mögliche Anregungspfade der Quantenpfadinterferenzpunkte A, B und C in einem Zwei-Niveau-System. Punkte A und C erfordern ein 1,5-Oktaven breites Spektrum, Punkt B hingegen nur eine einzelne Oktave.

direkt abgelesen werden. Für das erste Niveau gilt:  $\tau = 1/(\omega_{eg} - \omega')$ ; und für das zweite:  $\tau = 1/(\omega' + \omega'')$ . Die Lebensdauern der virtuellen Niveaus gewichten die verschiedenen Quantenpfade.

Zur Beschreibung des Quantenpfadinterferenzpunktes C werden nur die zwei Frequenzen  $\omega$  und  $\tilde{\omega} = 3\omega/\hbar$  bei einem Energie-Niveau-Abstand  $\Delta E = 5\hbar\omega$  angenommen. Dies führt zu sechs möglichen Quantenpfaden vom Grundzustand in den oberen Zustand, wie sie in Abb. 3.8 (c) dargestellt sind, mit jeweils unterschiedlichen Rabi-Frequenzen  $\Omega_{3P}^i$ :

$$\Omega_{3P}^{(c1)} = \frac{i^2 \mu_{eg}^3}{2^2 \hbar^3} \cdot \frac{|E_{\tilde{\omega}}(t)| |E_{\omega}(t)|^2}{(\omega_{eg} + \omega)(-\omega + \tilde{\omega})} \quad (3.9a)$$

$$\Omega_{3P}^{(c2)} = \frac{i^2 \mu_{eg}^3}{2^2 \hbar^3} \cdot \frac{|E_{\tilde{\omega}}(t)| |E_{\omega}(t)|^2}{(\omega_{eg} - \tilde{\omega})(\tilde{\omega} - \omega)} \quad (3.9b)$$

⋮

$$\Omega_{3P}^{(c6)} = \frac{i^2 \mu_{eg}^3}{2^2 \hbar^3} \cdot \frac{|E_{\tilde{\omega}}(t)|^2 |E_{\omega}(t)|}{(\omega_{eg} - \omega)(\omega + \omega)} \quad (3.9g)$$

Die Quantenpfade (c1), (c2) und (c3) führen zu einem Träger-Einhüllenden-Phasen-Beitrag von  $\varphi_0$ ; (c4), (c5) und (c6) von  $3\varphi_0$ . Die Interferenz all dieser Quantenpfade ist daher mit  $2\varphi_0$  moduliert.

Die Zustandsbesetzung des oberen Niveaus hängt von den oben genannten Rabi-Frequenzen und der CEP ab:

$$P_e(\varphi_0) = |c_e^{(3)}|^2 \propto \left| e^{-i2\varphi_0} \sum_i \Omega_i + \sum_j \Omega_j \right|^2, \quad (3.10)$$

wobei  $i \in \{(c4), (c5), (c6)\}$  und  $j \in \{(c1), (c2), (c3)\}$ . Der Kontrast der CEP-Abhängigkeit ist genau dann maximal, wenn  $\sum_i \Omega_i = \sum_j \Omega_j$ . Dies wird erfüllt, wenn das Verhältnis der Feldamplituden des Zwei-Farbenspektrums:

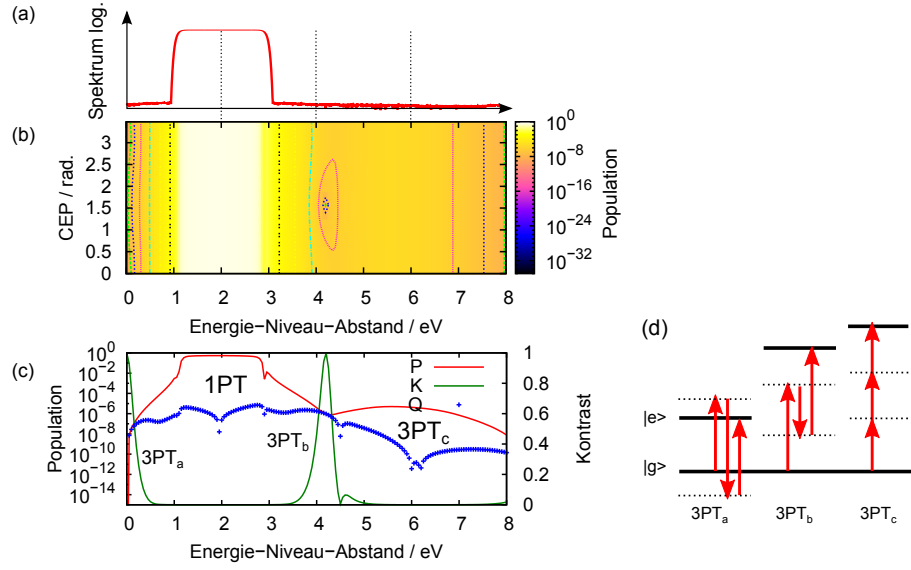
$$\gamma = \frac{|E_\omega(t)|}{|E_{\tilde{\omega}}(t)|} = \frac{6}{5} = 1,2 \quad (3.11)$$

ist. Dieser analytisch berechnete Wert passt gut mit dem in vorherigen Abschnitt numerisch ermittelten Wert  $\gamma = 1,33$  überein. Dies bestätigt, dass in der obigen analytischen Berechnung alle nötigen Quantenpfade für diesen Prozess berücksichtigt wurden. Es wird deutlich, dass die 5PT vernachlässigt werden können (sie sind in der numerischen Lösung enthalten, wurden aber hier nicht berücksichtigt). Somit sind nun alle für den Quantenpfadinterferenzpunkt C relevanten Anregungspfade identifiziert worden.

Auf die gleiche Weise kann mit dem Quantenpfadinterferenzpunkt B verfahren werden. Für den Punkt B werden die Quantenpfade, die in Abb. 3.8 (b) skizziert sind, berücksichtigt. Daraus folgt für das Verhältnis ein Wert von  $\gamma = 2,44$ , was genau mit der numerischen Lösung (siehe Abb. 3.7) übereinstimmt. Auch hier bedeutet dieses Ergebnis, dass die in Abb. 3.8 dargestellten Quantenpfade alle für diesen Quantenpfadinterferenzpunkt wichtigen Anregungspfade zusammenfassen.

## 3.4. Breitbandige Anregung eines Zwei-Niveau-Systems

Nach dieser ausführlichen Betrachtung verschiedener Quantenpfade eines über-oktaven breiten Spektrums, bei dem nur die spektralen Randbereiche berücksichtigt wurden, wird nun die Wechselwirkung in einem Zwei-Niveau-System mit einem vollen Spektrum untersucht. Dies ist gleichbedeutend mit der Anregung eines einzelnen Einzyklen-Pulses, da nur die Betrachtung des vollen Spektrums zu einem solchen Puls führt.

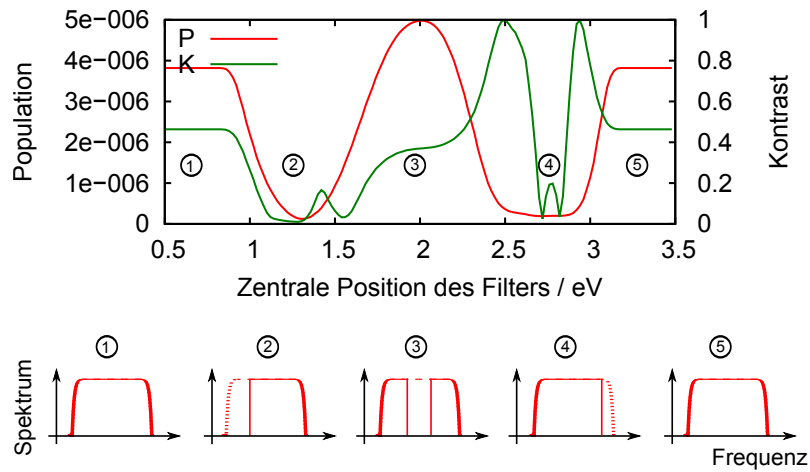


**Abbildung 3.9.:** CEP-abhängige Zustandsbesetzung eines Zwei-Niveau-Systems nach der Anregung mit einem einzelnen Einzyklen-Puls. (a) zeigt die spektrale Bandbreite des Spektrums, (b) die Population des oberen Niveaus über dem Energie-Niveau-Abstand  $\Delta E$  in Abhängigkeit der CEP, (c) stellt die mittlere Population  $P$ , den Kontrast  $K$  und die Qualität aus der Darstellung in (b) dar. Bei 4 eV hat der Kontrast ein Maximum, da dort verschiedene Quantenpfade interferieren (siehe Text). (d) Darstellung der verschiedenen Drei-Photonen-Übergänge (3PT) aus (c).

Der Einzyklen-Puls für die Anregung habe eine Zentralfrequenz die 2 eV entspricht und eine Bandbreite von etwa 1,5 optischen Oktaven (siehe Abb. 2.1). Er wurde auf eine Pulsfläche von  $\mathfrak{A} = \pi$  normiert. Eine Untersuchung der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung des Zwei-Niveau-Systems mit diesem Puls in Abhängigkeit des Energie-Niveau-Abstands ist in Abb. 3.9 gezeigt. Das Spektrum über der Energie ist in Abb. 3.9 (a) dargestellt. Die Population über dem Energie-Niveau-Abstand  $\Delta E$  und der Träger-Einhüllenden-Phase  $\varphi_0$  (Abb. 3.9 (b)) zeigt bei etwa 4 eV eine Inselstruktur, die auf einen CEP-Effekt hinweist. In Abb. 3.9 (c) sind die zugehörigen Werte für den Kontrast, die mittlere Population und die Qualität zu sehen.

Die mittlere Population zeigt über der gesamten Bandbreite des anregenden Pulses einen starken Ein-Photonen-Übergang (1PT) (von 1 eV bis 3 eV). Der „entartete“ Drei-Photonen-Übergang (3PT<sub>c</sub>) (siehe auch Abb. 3.9 (d)) erstreckt sich somit von etwa 3 eV bis 9 eV. Neben diesen prominenten Strukturen in der Form der mittleren Population sind besonders der rechte und der linke Randbereich direkt neben dem 1PT interessant. Diese entsprechen den Drei-Photonen-Übergängen, die sich aus der Mischung von verschiedenen im Spektrum befindlichen Frequenzen ergeben<sup>1</sup>. Bei einem

<sup>1</sup>Sie sind auch in der Übersicht der verschiedenen Quantenpfade (Abb. 3.3 auf Seite 31) als die



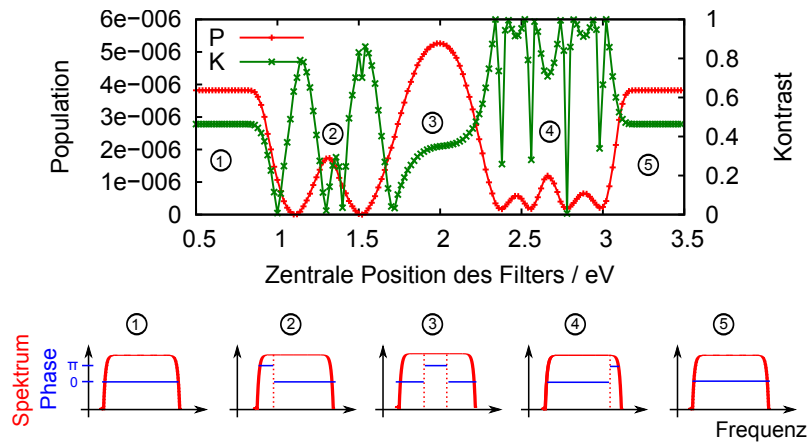
**Abbildung 3.10.:** Berechnung der Zustandsbesetzung in einem Zwei-Niveau-System  $\Delta E = 4 \text{ eV}$  nach der Anregung mit einem etwa 1,5 Oktaven breiten Spektrum (Zentralfrequenz  $2 \text{ eV}$ ), über das ein Amplitudenfilter ( $E(\omega) = 0$ ) verfahren wird. Wird die Zentralfrequenz des Spektrums herausgenommen, erreicht die mittlere Population ein globales Maximum.

Energie-Niveau-Abstand von  $4 \text{ eV}$  überlappen die  $3PT_c$  und die  $3PT_b$  Quantenpfade. Genau an dieser Stelle hat der Kontrast ein ausgeprägtes Maximum und die Population ein lokales Minimum. Mit den Erkenntnissen aus dem vorhergehenden Abschnitt, kann das Maximum des Kontrastes bei  $4 \text{ eV}$  dem Quantenpfadinterferenzpunkt B zugeordnet werden.

Die Quantenpfade aus Punkt B benötigen nur die spektralen Randbereiche für den Übergang, die Zentralfrequenz bei  $2 \text{ eV}$  sollte keinen Beitrag leisten, da eine Zwei-Photonen-Absorption der Frequenz  $2 \text{ eV}$  in das Niveau bei  $4 \text{ eV}$  aus Paritätsgründen verboten ist. Dies kann mittels einer Amplituden- oder Phasen-Pulsformung überprüft werden, indem der mittlere Spektralbereich entweder herausgenommen wird oder mit einem Phasensprung von  $\pi$  versehen wird. Für diese Simulation wurde das Spektrum zu Beginn auf eine Pulsfläche von  $\mathfrak{A} = \pi$  normiert. Anschließend wird die Amplituden- oder Phasenmaske über den Puls gesetzt, so dass ein Leistungsverlust aufgrund der Pulsformung mit berücksichtigt wird.

Abb. 3.10 zeigt die mittlere Population und den Kontrast bei einem Energie-Niveau-Abstand von  $4 \text{ eV}$ , wobei über das Spektrum hinweg ein Amplitudenfilter der Bandbreite  $0,4 \text{ eV}$  verfahren wurde. Zu Beginn erreicht das Filter noch nicht das Spektrum (Position 1) und die Population und der Kontrast haben die gleichen Werte wie bei der ungefilterten Anregung des vollen Spektrums. Bei der Position 2 wird der linke Randbereich des Spektrums abgeschnitten und die Population fällt  $3PT$  Spuren, die direkt neben der Ein-Photonen-Absorptions-Spur aufgehen, sichtbar.





**Abbildung 3.11.:** Berechnung der Zustandsbesetzung in einem Zwei-Niveau-System  $\Delta E = 4 \text{ eV}$  nach der Anregung mit einem etwa 1,5 Oktaven breiten Spektrum (Zentralfrequenz  $2 \text{ eV}$ ), über das ein Phasenfilter ( $\Delta\varphi(\omega) = \pi$ ) der Breite  $0,4 \text{ eV}$  verfahren wird. Dargestellt ist die mittlere Population und der Kontrast über der Zentralposition des Filters.

von etwa  $4 \cdot 10^{-6}$  auf Null. Erreicht das Filter die Zentralfrequenz bei  $2 \text{ eV}$  (Position 3) steigt die Population wieder an und erreicht sogar ein globales Maximum von  $5 \cdot 10^{-6}$ . Die Population sinkt wieder, wenn der rechte spektrale Randbereich abgeschnitten wird (Position 4).

Dies ist ein eindeutiger Hinweis darauf, dass die Randbereiche des Spektrums für die Population bei  $4 \text{ eV}$  entscheidend sind und somit dieser CEP-Effekt dem Quantenpfadinterferenzpunkt B zugeordnet werden kann.

Das globale Maximum bei Position 3 weist zusätzlich darauf hin, dass die Mitte des Spektrums das obere Niveau entvölkert. Dies würde bedeuten, dass für eine maximale Population des oberen Zustands eines Zwei-Niveau-Systems nicht das volle Spektrum, sondern das gefilterte Spektrum an Position 3 in Abb. 3.10 bestmöglich geeignet wäre.

Eine ähnliche Situation resultiert, wenn der Amplitudenfilter durch einen Phasenfilter ersetzt wird. Der Phasenfilter setzt in einem Spektralbereich der Bandbreite  $0,4 \text{ eV}$  die Phase auf den Werte  $\pi$ . Das Ergebnis ist in Abb. 3.11 (b) zu sehen. Zusätzlich zu dem Maximum um  $2 \text{ eV}$  sind zwei lokale Maxima um  $1,33 \text{ eV}$  und  $2,66 \text{ eV}$  sichtbar. Diese sind genau die Zentralfrequenzen, die für den Quantenpfadinterferenzpunkt B verantwortlich sind.

**Fazit:** Ein 1,1-Zyklus-Puls im sichtbaren Spektralbereich bei  $2 \text{ eV}$  zeigt bei einem Energie-Niveau-Abstand von  $4 \text{ eV}$  eines Zwei-Niveau-Systems eine deutliche CEP-Abhängigkeit der Zustandsbesetzung. Diese resultiert aus dem oben vorgestellten

Quantenpfadinterferenzpunkt B. Mit einem Phasen- oder Amplituden-Filter kann an dieser Stelle die Population sogar erhöht werden. Obwohl die spektrale Bandbreite etwa 1,5 Oktaven erreicht, sind die Quantenpfadinterferenzpunkte A und C nicht beobachtbar, da zu wenig spektrale Leistung in den Randbereichen zur Verfügung steht.

Soll ein Einzyklen-Puls für einen experimentellen Nachweis einer CEP-abhängigen Zustandsbesetzung in einem Zwei-Niveau-System genutzt werden, ist der Quantenpfadinterferenzpunkt B gut geeignet. Im folgenden Kapitel wird die Erzeugung und Verstärkung eines (für einen Einzyklen-Puls nötigen) breitbandigen Spektrums mittels eines optisch-parametrischen Verstärkers im sichtbaren Spektralbereich beschrieben. Aufgrund der spektralen Bandbreite wird ein Pulsformer zur Pulskompression nötig sein. Somit könnte mit diesem Puls nicht nur die CEP-abhängige Zustandsbesetzung gebundener Elektronen, sondern auch der in Abb. 3.11 gezeigte Verlauf der mittleren Population experimentell zugänglich werden.

# Der parametrische Verstärker für Einzyklen-Pulse

Die Erzeugung und Verstärkung von Einzyklen-Pulsen im sichtbaren Spektralbereich erfordert ein Verstärkersystem, welches eine Bandbreite von etwa 400 THz unterstützt (siehe Abb. 2.1). Dies ist gegenwärtig mit den üblichen Verstärkermaterialien nicht möglich. Daher beginnt dieses Kapitel mit der Beschreibung des in dieser Arbeit verwendeten Verstärkerkonzepts und dessen Umsetzung, bevor dann im Detail auf die einzelnen Komponenten des Verstärkers eingegangen wird.

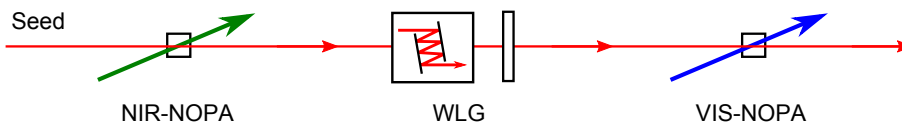
## 4.1. Konzept

Die Verstärkungsbandbreite von klassischen Laserverstärkern, in denen eine Besetzungsinversion in einem Kristall durch z.B. optisches Pumpen erzeugt wird, hängt von der Emissionsbandbreite des Kristalls ab. Zum Beispiel unterstützt ein Ti:Saphir-Kristall eine Bandbreite von etwa 150 THz. Dieses Material ermöglicht die Erzeugung von Pulsen mit unter 4 fs Pulsdauer direkt aus einem Laseroszillator bei 800 nm [Rau08]. Allerdings liegt die Pulsenergie im nJ-Bereich. Bei einer anschließenden Nachverstärkung wird die spektrale Breite durch das sog. „Gain-narrowing“ reduziert, so dass aktuelle Titan-Saphir Verstärker nur durch anschließende Hohlkernfasern oder Filamentation breitbandige Spektren im mJ-Bereich erzeugen können (z. B. [Sch03a, Ste09]). Eine alternative Methode beruht auf der parametrischen Verstärkung, die in Kapitel 2.2 eingeführt wurde. In der nicht-kollinearen Geometrie erlaubt sie die Verstärkung von Pulsen weniger optischer Zyklen im mJ-Bereich (siehe z. B. [Ada08]). Für die Verstärkung von Einzyklen-Pulsen ist diese Methode allein allerdings auch nicht mehr ausreichend.

Ein vielversprechendes Konzept ist die Pulssynthese, bei der zwei oder mehr komplementäre Spektralbereiche, die unabhängig voneinander verstärkt werden können, zu einem einzigen breiten kohärenten Spektrum zusammengesetzt werden [Cox12, Hua11, Kra10, Man12, Mor10, Wir11]. Dies erfordert eine präzise Stabilisierung des zeitlichen Abstands und der absoluten Phase (CEP) der Pulse.

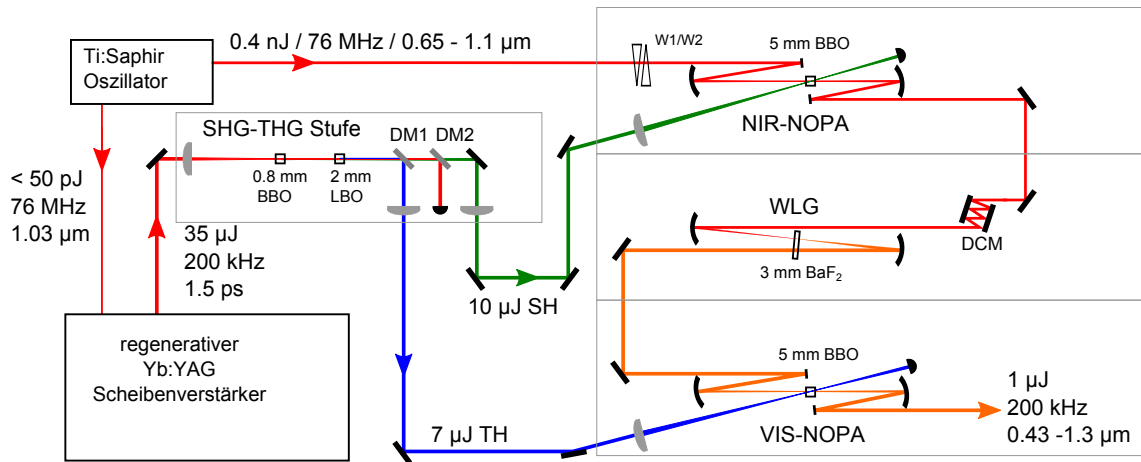
In dieser Arbeit werden zwei Spektren von zwei verschiedenen NOPA-Stufen zu einem breitbandigen Gesamtspektrum kombiniert (ähnlich zu [Her10]). Da die beiden NOPA-Stufen hintereinander gereiht werden, kann dieses Konzept auch als „serielle“ Pulssynthese bezeichnet werden. Dies hat den Vorteil, dass alle Spektralanteile gemeinsam durch den Verstärker propagieren, ohne räumlich oder zeitlich getrennt zu werden, so dass eine as-präzise Stabilisierung der Spektren zueinander entfällt.

Das breitbandige Seed-Spektrum für einen optischen parametrischen Verstärker wird häufig über ein zuvor erzeugtes Superkontinuum bereitgestellt (z.B. [Cer11, Emo10]). Allerdings wird dabei der Spektralanteil des Pumpimpulses für die Weißlichterzeugung experimentell nicht weiter verwendet. Im Unterschied dazu wird in dieser Arbeit das gesamte Superkontinuums-Spektrum verwendet, um die nötige Bandbreite für einen Einzyklen-Puls bereitzustellen.



**Abbildung 4.1.:** Konzept des zweifarben-gepumpten optisch-parametrischen Verstärkers. Ein breitbandiger NIR-Seedpuls wird im „NIR-NOPA“ zunächst verstärkt; ein dispersives Spiegelpaar komprimiert das verstärkte Signal und der kurze Puls erzeugt in einem BaF<sub>2</sub>-Plättchen ein Superkontinuum („WLG“); der letzte „VIS-NOPA“ verstärkt nun die sichtbaren Spektralanteile.

Das in dieser Arbeit verwendete Verstärkerkonzept ist an Abb. 4.1 skizziert. Ein breitbandiger Ti:Saphir-Puls dient als Seed für die erste Verstärkerstufe, „NIR-NOPA“. Dieser wird mit der zweiten Harmonischen (SH) eines Yb:YAG-Verstärkers gepumpt. Das nun verstärkte Signal besitzt nach der zeitlichen Kompression mit einem dispersiven Spiegelpaar genügend Spitzenleistung, um in einem Festkörper das Spektrum via Filamentation sowohl in den sichtbaren, als auch in den infraroten Spektralbereich zu verbreitern („WLG“). Der gesamte Puls wird dann in einen zweiten parametrischen Verstärker fokussiert, der mit der dritten Harmonischen (TH) des Yb:YAG-Verstärkers gepumpt wird. Hierbei wird nur der sichtbare Spektralbereich verstärkt; der infrarote Bereich passiert diese Stufe unverstärkt.



**Abbildung 4.2.:** Aufbau des zweifarben-gepumpten optisch-parametrischen Verstärkers. W1/W2: BK7-Keile; DM1, DM2: dichroitische Spiegel; DCM: dispersives Spiegelpaar.

Abb. 4.2 zeigt die experimentelle Umsetzung dieses Konzepts. Wie schon oben erwähnt, ist der Seed für den NIR-NOPA das Spektrum eines breitbandigen Ti:Saphir-Oszillator. Dieser stellt darüber hinaus auch einen spektral schmalbandigen IR-Puls als Seed für einen Yb:YAG Verstärker bereit, so dass die Verstärkerpulse und die Oszillatorpulse zeitlich synchronisiert sind. Mit einer SHG-THG Stufe werden effizient die Pumpfrequenzen für die parametrischen Verstärker erzeugt. Die SH pumpt den NIR-NOPA und die TH den VIS-NOPA. Zwischen diesen beiden Stufen wird in einem BaF<sub>2</sub>-Plättchen ein Superkontinuum erzeugt.

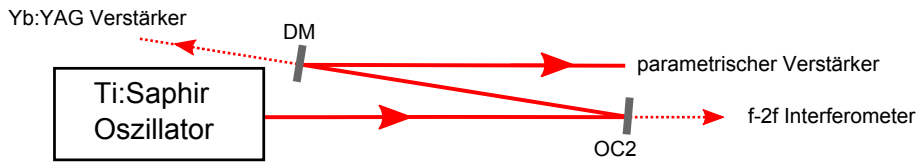
Im Folgenden wird das Gesamtsystem im Detail beschrieben. Zunächst werden der Oszillator und der Yb:YAG-Verstärker vorgestellt, bevor dann näher auf die Frequenzkonversion des IR-Pumpstrahls eingegangen wird. Nachdem der NIR-NOPA beschrieben wurde, wird auf die Erzeugung des Superkontinuums eingegangen, welches dann als VIS-Seed für die letzte Verstärkerstufe (VIS-NOPA) dient.

## 4.2. Titan-Saphir-Oszillator

Zu Beginn des optisch-parametrischen Verstärkers steht ein Titan-Saphir (Ti:Saphir)-Oszillator. Da sein Spektrum genutzt wird, um sowohl den Seedpuls für den parametrischen Verstärker als auch einen Seed für den Yb:YAG-Verstärker bereitzustellen, werden hohe Anforderungen an den Oszillator gestellt, was die Bandbreite und die Stabilität betrifft.

#### 4. Der parametrische Verstärker für Einzyklen-Pulse

---



**Abbildung 4.3.:** Übersicht über die Aufteilung des Ti:Saphir-Spektrums. OC2: multichroitischer Strahlteiler zur Trennung der spektralen Flanken für die Messung der Träger-Einhüllenden-Frequenz; DM: dichroitischer Strahlteiler zur Separation des Spektralanteils um 1030 nm als Seed für den Yb:YAG-Verstärker.

Der verwendete Oszillator<sup>1</sup> besitzt ein oktavbreites Ausgangsspektrum (siehe Abb. 4.4 (a)) und unterstützt eine fourierlimitierte Pulsdauer von unter 5 fs. Die Pulse haben eine mittlere Ausgangsleistung von 110 mW bei einer Pulswiederholrate von 75 MHz.

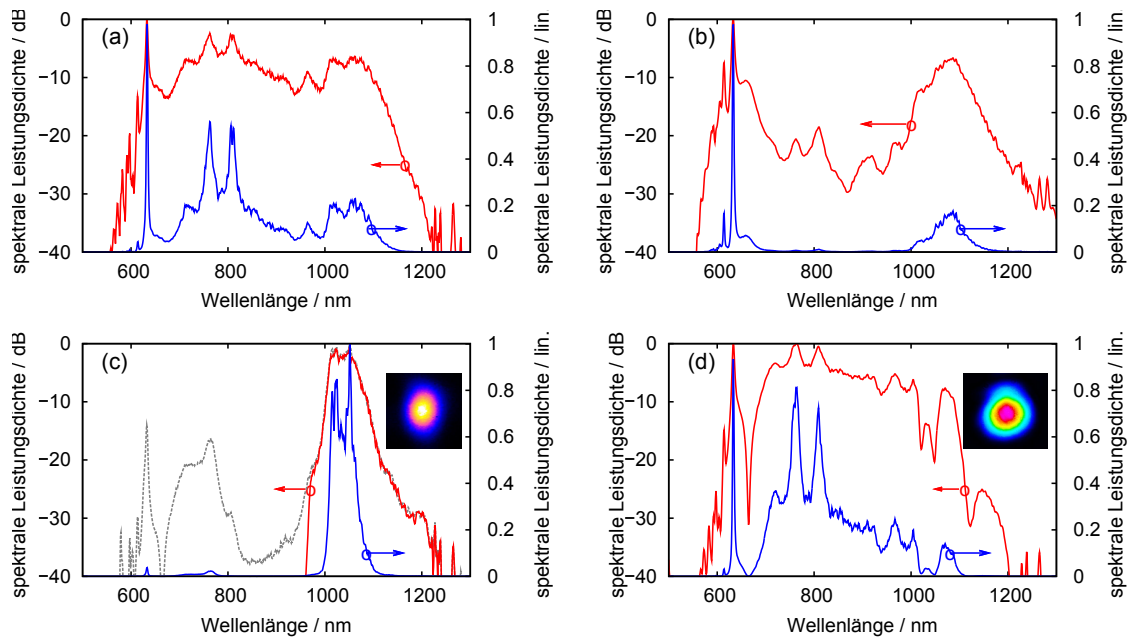
Die beiden Flanken des Spektrums (Abb. 4.4 (b)) besitzen genügend Leistung, um nach der Separation vom Hauptspektrum mittels eines multichroitischen Transmissionsfilter in einem f-2f-Interferometer die Träger-Einhüllenden-Frequenz zu messen und als Fehlersignal für eine Stabilisierung des Oszillators zu nutzen. Dies ist ein großer Vorteil, da eine nachträgliche Verbreiterung des Spektrums mit Hilfe von photonischen Kristallfasern mühsam und justageaufwendig ist. Das transmittierte Spektrum hat eine mittlere Leistung von etwa 26 mW.

Das durch dieses erste Filter reduzierte Spektrum des Ti:Saphir-Oszillators wird durch ein zweites chroitisches Transmissionsfilter weiter modifiziert, um den spektralen Anteil um 1030 nm vom Hauptspektrum zu trennen, der dann als Seed für den Yb:YAG-Verstärker genutzt wird. Nach der Transmission durch ein zusätzliches RG1000-Filter, hat das Seed-Spektrum (dargestellt in Abb.4.4 (c)) eine Pulsenergie von 100 pJ. Diese Pulsenergie ist ausreichend, um den Verstärker direkt, also ohne einen zusätzlichen Vorverstärker, zu betreiben [Sch12]. Auch dies ist gegenüber vergleichbaren Systemen ein großer Vorteil, der den Aufbau des Systems kompakt und einfach hält. Das nun reduzierte Hauptspektrum des Oszillators (siehe Abb. 4.4 (d)) hat eine mittlere Leistung von etwa 65 mW und dient als Seed für den optisch-parametrischen Verstärkungsprozess.

Somit stellt dieser Oszillator aufgrund seines bereits breiten Spektrums eine geeignete Ausgangsbasis für den folgenden parametrischen Verstärker bereit.

---

<sup>1</sup>Venteon, PulseOne UB



**Abbildung 4.4.:** (a) Oktavbreites Ausgangsspektrum des Ti:Saphir-Oszillators. (b) Separiertes Spektrum für die Messung der Träger-Einhüllenden-Frequenz. (c) Seed-Spektrum für den Yb:YAG-Verstärker mit Strahlprofil. (d) Seed-Spektrum für den optisch-parametrischen Verstärker mit Strahlprofil.

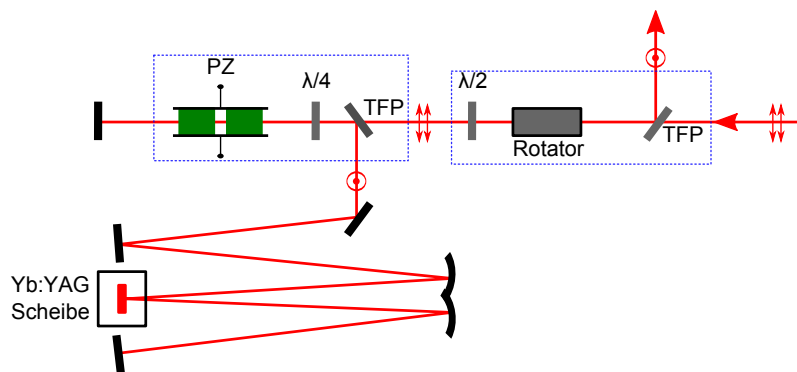
### 4.3. Regenerativer Verstärker

Die Qualität und Stabilität eines optisch-parametrischen Verstärkers hängt größtenteils von der verwendeten Pumpquelle ab, denn jede kleinste Störung in der Pumpe überträgt sich direkt auf den Verstärkungsprozess.

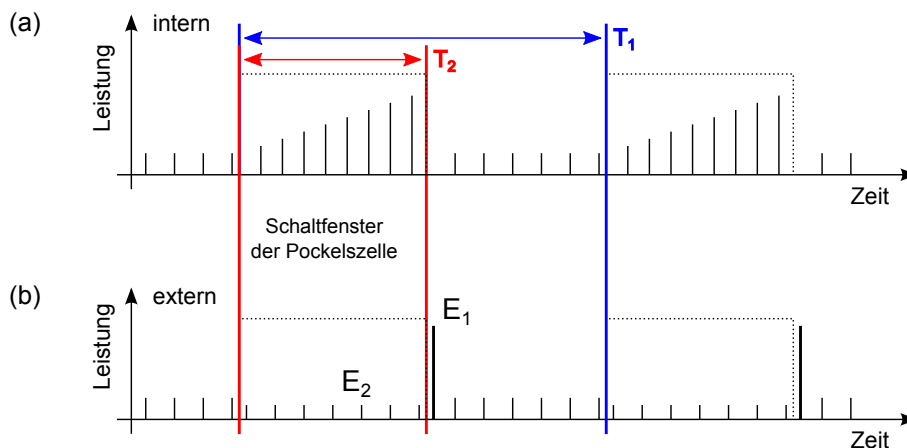
In dieser Arbeit wird ein regenerativer Yb:YAG-Scheiben-Verstärker verwendet, dessen 2. und 3. Harmonische als Pumpe für den parametrischen Verstärker dienen. Der Yb:YAG-Verstärker ist in [Sch12] ausführlich beschrieben, daher wird im Folgenden nur kurz die Funktionsweise des Verstärkers anhand des in Abb. 4.5 skizzierten Aufbaus erläutert.

Die Yb:YAG-Verstärkerscheibe wird mit ca. 120 W bei 940 nm gepumpt. Zum Ein- und Auskoppeln der Pulse aus dem Resonator wird eine Pockelszelle in Kombination mit einer  $\lambda/4$ -Platte und einem Dünnschichtpolarisator genutzt. Die hin- und rücklaufenden Pulse werden mit Hilfe eines Isolators, hier bestehend aus einer  $\lambda/2$ -Platte, einem Faradayrotator und dem Dünnschichtpolarisator, getrennt. Die Pockelszelle erfüllt beim Anlegen einer Hochspannung die Funktion einer schaltbaren  $\lambda/4$ -Platte. Die Schaltzeiten der Pockelszelle sind in Abb. 4.6 (a) und (b) zusammen mit der internen Leistung und der Ausgangsleistung schematisch dargestellt. Die Zeit  $T_2$

#### 4. Der parametrische Verstärker für Einzyklen-Pulse



**Abbildung 4.5.:** Skizze des regenerativen Yb:YAG-Scheibenverstärkers. PZ: Pockelszelle;  $\lambda/2$ ,  $\lambda/4$ : Verzögerungsplatte, TFP: Dünnschichtpolarisator, Rotator: Faradayrotator; nach [Sch12].



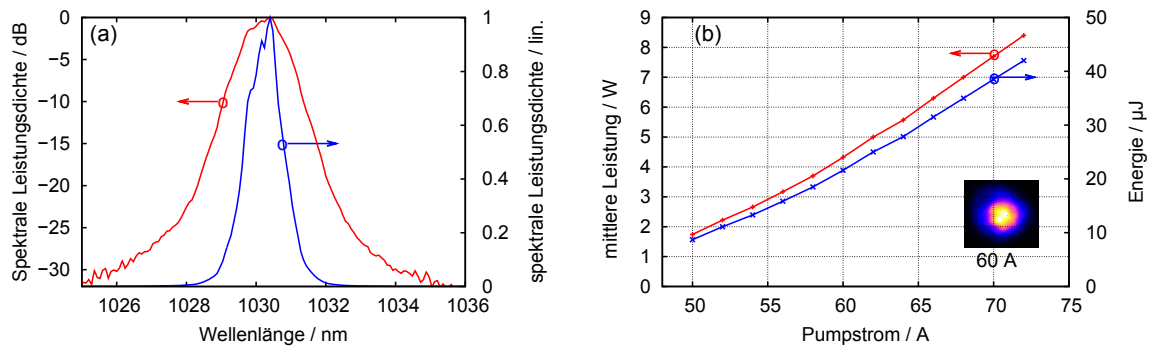
**Abbildung 4.6.:** Vereinfachte Darstellung der internen Leistung (a) und der Ausgangsleistung (b) des Verstärkers inklusive der Schaltzeiten für die Pockelszelle. Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu. Die Verstärkung beträgt etwa  $E_1/E_2 \approx 40 \mu\text{J}/100 \text{ pJ} \approx 10^6$ .

bestimmt die Anzahl der Umläufe im regenerativen Verstärker und die Zeit  $T_1$  die Pulswiederholrate. Prinzipiell kann die Pulswiederholrate des Systems von 100 kHz bis 500 kHz eingestellt werden. Alle Messergebnisse dieser Arbeit wurden allerdings mit einer Pulswiederholrate von 200 kHz aufgenommen.

Das Spektrum und die mittlere Ausgangsleistung des Verstärkers sind in Abb. 4.7 dargestellt. Das Spektrum unterstützt eine fourierlimitierte Pulsdauer von 920 fs. Die gemessene Autokorrelations-FWHM bei einer Ausgangsleistung von ca. 2 W beträgt 2,1 ps (Gauss'scher Formfaktor), was zu einer Pulsdauer von 1,47 ps führt. Die mittlere Ausgangsleistung (Abb. 4.7 (b)) erreicht bei einem Pumpstrom von  $I = 70 \text{ A}$  einen Wert von 8 W, was einer Pulsenergie von 40  $\mu\text{J}$  entspricht.

Mit diesen Spezifikationen ist der regenerative Yb:YAG-Verstärker sehr gut als





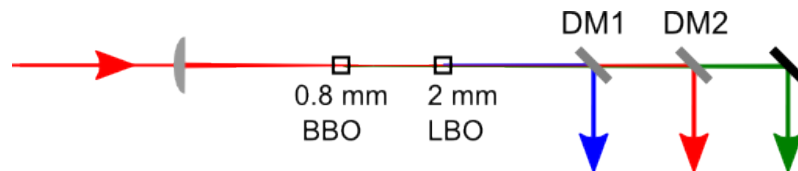
**Abbildung 4.7.:** (a) Spektrum des regenerativen Verstärkers. (b) Mittlere Ausgangsleistung und Pulsenergie des regenerativen Verstärkers mit Strahlprofil.

Pumpquelle für einen optisch-parametrischen Verstärker geeignet. Da der Seed für den Yb:YAG-Verstärker und der Seed für den folgenden parametrischen Verstärker aus derselben Quelle kommen, sind der Seedpuls und der Pumpimpuls intrinsisch zeitlich synchronisiert.

#### 4.4. Frequenzkonversion: $2\omega$ und $3\omega$

Der zweistufige optisch-parametrische Verstärker wird mit zwei Pumpenstrahlen unterschiedlicher Frequenz betrieben, um in den beiden Stufen jeweils verschiedene Spektralanteile zu verstärken. Hierfür werden die zweite Harmonische (SH: 515 nm) und die dritte Harmonische (TH: 343 nm) der fundamentalen Ausgangsstrahlung des Yb:YAG-Verstärkers (F: 1030 nm) genutzt (ähnlich wie in [Her10]).

Für die Erzeugung der SH und TH wird eine kollineare Geometrie mit Kombination von Typ-I- und Typ-II-Kristallen gewählt, weil sie sehr kompakt, effizient und stabil die gewünschten Frequenzen erzeugen kann [Hom08].



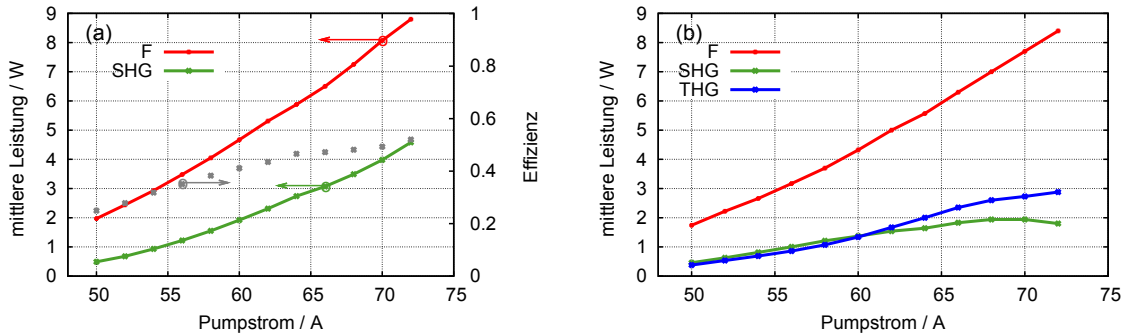
**Abbildung 4.8.:** Aufbau der SHG- und THG-Stufe.

Der Aufbau ist in Abb. 4.8 dargestellt. Mit einer Linse ( $f=500$  mm) wird der fundamentale IR-Strahl fokussiert. Ca. 7 cm vor dem Fokus steht ein 800  $\mu$ m langer Typ-I BBO Kristall<sup>1</sup> für die Erzeugung der zweiten Harmonischen. Mit einem

<sup>1</sup> $\theta = 23.4^\circ$ ,  $d_{eff} = 2,01$  pm/V [Smi].

#### 4. Der parametrische Verstärker für Einzyklen-Pulse

Strahlradius von etwa  $300\ \mu\text{m}$  ist dort die Intensität bei ungefähr  $20\ \text{GW}/\text{cm}^2$ . Die Leistung der zweiten Harmonischen, ohne den folgenden LBO-Kristall, ist in Abb. 4.9 (a) dargestellt. Bei einem Pumpstrom von  $70\ \text{A}$  werden aus  $8\ \text{W}$  der Fundamentalen  $4\ \text{W}$  SH. Somit wird die Hälfte aller F-Photonen in SH-Photonen konvertiert, was einer Konversionseffizienz von  $50\%$  entspricht.



**Abbildung 4.9.:** (a) Leistungskurven der Fundamentalen (F) und der zweiten Harmonischen (SH) über dem Pumpstrom des Yb:YAG-Verstärkers (ohne den LBO-Kristall). (b) Leistungskurven für die zweite Harmonische (SH) und die dritte Harmonische (TH) in Abhängigkeit des Pumpstroms.

Für die Summenfrequenz zur Erzeugung der dritten Harmonischen steht ein  $2\ \text{mm}$  langer Typ-II-LBO-Kristall<sup>1</sup> etwa  $3\ \text{cm}$  hinter dem Fokus. Hier ist der Strahlradius etwa  $150\ \mu\text{m}$  groß. Eine typische Leistungskurve über den Pumpstrom des Yb:YAG-Verstärkers für die SH und die TH ist in Abb. 4.9 (b) dargestellt. Bei einem Pumpstrom von  $I=70\ \text{A}$  können aus  $8,7\ \text{W}$  der Fundamentalen (F)  $1,8\ \text{W}$  SH und  $2,7\ \text{W}$  TH erzeugt werden.

Anhand dieser Werte kann auch für die dritte Harmonische eine Konversionseffizienz von  $50\%$  angegeben werden, da hier die Hälfte aller SH-Photonen in TH-Photonen umgewandelt werden. Somit ist die Photonenzahl für die zweite Harmonische und die dritte Harmonische gleich.

Das Leistungsverhältnis der zweiten Harmonischen zur dritten Harmonischen kann durch den relativen Abstand der nichtlinearen Kristalle zueinander eingestellt werden [Hom08]. Für die in dieser Arbeit präsentierten Messungen wird überwiegend mit ca.  $2\ \text{W}$  der SH und mit  $1,4\ \text{W}$  der TH gearbeitet.

Die Pulsdauer der zweiten Harmonischen und der dritten Harmonischen kann über die gemessene Pulsdauer der Fundamentalen abgeschätzt werden<sup>2</sup>. So ergibt sich für

<sup>1</sup> $\theta = 50.1^\circ, \phi = 90^\circ; d_{eff} = 0,469\ \text{pm}/\text{V}$  [Smi].

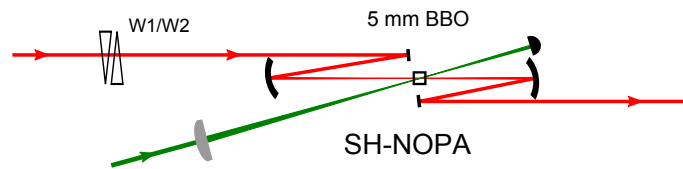
<sup>2</sup>Die Pulsdauer der Fundamentalen ist  $\tau_F$ . Die Pulsdauer für die SH und die TH können wie folgt abgeschätzt werden:  $\tau_{SH} = \tau_F/\sqrt{2}, \tau_{TH} = \tau_F/\sqrt{3}$ .

die zweite Harmonische eine Dauer von etwa 1 ps und für die dritte Harmonische etwa 0,8 ps. Die Verwendung von ps-Pulsen hat den Vorteil, dass die Gruppenlaufzeit-Verzögerung der einzelnen beteiligten Pulse noch keine großen Auswirkungen auf die Effizienz der Konversion hat [Hom08].

Für den optisch-parametrischen Verstärker werden nun diese Harmonischen des Yb:YAG-Verstärkers sequentiell als Pumpe verwendet.

## 4.5. Verstärker im NIR

Die erste parametrische Verstärkerstufe (NIR-NOPA) soll das Ti:Saphir-Seed-Spektrum möglichst breitbandig verstärken. Deshalb wird für den Aufbau dieser Stufe die nicht kollineare PVWC-Geometrie gewählt (siehe Grundlagenkapitel 2.2 und [Lan12]). Eine Skizze des Aufbaus ist in Abb. 4.10 zu sehen.



**Abbildung 4.10.:** Skizze des NIR-NOPA. Dieser Verstärker wird mit 515 nm gepumpt und verstärkt den zuvor gestreckten Ti:Saphir-Seed breitbandig. W1/W2: BK7-Keilpaar.

Der Pumpimpuls für diese Stufe ist die zweite Harmonische (SH) des Yb:YAG-Verstärkers bei 515 nm mit einer Pulsdauer von etwa einer ps. Um die gesamte Pulsenergie des Pumpimpulses während der Verstärkung so effektiv wie möglich zu nutzen, wird der Ti:Saphir-Seed mit einem BK7-Keilpaar zunächst zeitlich gestreckt. Zusammen mit der Dispersion des folgenden 5 mm-BBO-Kristalls ist dies ausreichend, um die Pulsdauer von Seed und Pumpe anzugleichen.

Der Seed wird mit einem Hohlspiegel ( $\text{ROC} = -500 \text{ mm}$ ) und die Pumpe mit einer Linse ( $f = 500 \text{ mm}$ ) in den nichtlinearen Kristall fokussiert, so dass der Strahldurchmesser für beide Strahlen im Kristall etwa  $100 \mu\text{m}$  beträgt. Mit einer Pulsenergie der Pumpe von  $10 \mu\text{J}$  liegt die Spitzenintensität von etwa  $30 \text{ GW/cm}^2$  noch unterhalb der experimentell beobachteten Zerstörschwelle des verwendeten Kristalls.

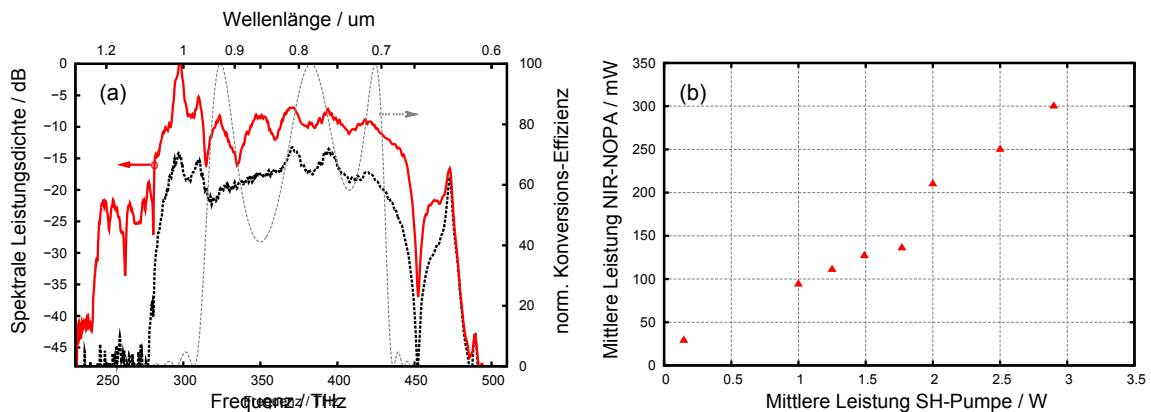
Für eine breitbandige Phasenanpassung werden die Winkel für Pumpe und Seed im Typ-I-BBO-Kristall wie folgt gewählt:  $\theta_P \approx 24,4^\circ$  und  $\alpha \approx 2,5^\circ$ . Die daraus resultierende Verstärkungsbandbreite allein aufgrund der Phasenanpassung ist in Abb. 4.11 (a) in grau dargestellt und hat eine Bandbreite von etwa 120 THz.

### 4.5.1. Spektrale Amplitude und Ausgangsleistung

Das verstärkte Signal-Spektrum (rot) zusammen mit einer typischen Messung des Ti:Saphir-Seed-Spektrums (schwarz) ist in Abb. 4.11 (a) gezeigt<sup>1</sup>.

Es ist deutlich zu erkennen, dass das verstärkte Signal-Spektrum eine Bandbreite von etwa 200 THz bei  $-30$  dB erreicht und somit dieser NOPA das gesamte Spektrum des Seeds unterstützt. Dies ist eine wesentlich breitere Verstärkung, als die einfach berechnete Phasenfehlankpassungskurve (grau) angibt. Das liegt daran, dass die Berechnung allein aufgrund der Phasenanpassung keine räumlichen und zeitlichen Effekte, wie Beugung, Dispersion und „walk-off“ sowie parasitäre Effekte, wie die phasenangepasste zweite Harmonische des Signals, berücksichtigt (siehe Kapitel 2.2).

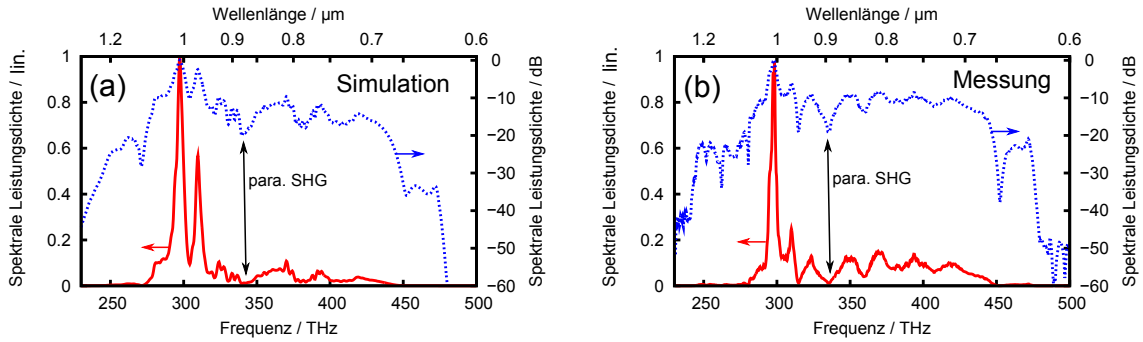
Um den Einfluss dieser Effekte bezogen auf den NIR-NOPA mit zu berücksichtigen, wurde eine 2D+1-Simulation<sup>2</sup>, wie sie in Lang et al. [Lan12] vorgestellt wird,



**Abbildung 4.11.:** (a) Gemessenes Seed-Spektrum (schwarz) und verstärktes Signal-Spektrum (rot) des NIR-NOPA in logarithmischer Darstellung (auch unter 270 THz sind im Seed-Spektrum Photonen enthalten.). Die experimentell ermittelte Verstärkungsbandbreite ist ca. 80 THz breiter als die einfach berechnete Phasenfehlankpassungskurve (grau) ( $\theta_P = 24,42^\circ$  und  $\alpha = 2,5^\circ$ , linear dargestellt). (b) Mittlere Ausgangsleistung des NIR-NOPA über der Pumpleistung der SH.

<sup>1</sup>Bei dieser Darstellung muss beachtet werden, dass das Seed-Spektrum bei einer Pulswiederholrate von 75 MHz gemessen wurde, das verstärkte Spektrum aber eine Pulswiederholrate von 200 kHz besitzt. Dies bedeutet, dass in der Messung des verstärkten Signal-Spektrums ein 75 MHz Untergrund von den unverstärkten Seedpulsen abgezogen werden muss, um eine saubere Darstellung des verstärkten Spektrums zu erhalten. In einer logarithmischen Darstellung ist der Unterschied allerdings so gering, weshalb hier auf diese Korrektur verzichtet wird.

<sup>2</sup>Die Simulationsparameter wurden auf die im Experiment vorliegende Situation angepasst.



**Abbildung 4.12.:** Vergleich der 2D+1 Simulation (a) mit der Messung (b) des verstärkten Signal-Spektrums der ersten NOPA-Stufe. Die Bandbreite und die spektrale Form zeigen die gleichen Charakteristika.

durchgeführt (siehe Abb. 4.12 (a)). Die Messung (b) und die Simulation (a) zeigen eine gute Übereinstimmung, was die spektrale Form und Verstärkungsbandbreite angeht. Wie auch im Grundlagenkapitel beschrieben (siehe Kapitel 2.2 auf Seite 19), ist die Verstärkung im Bereich von 350 THz–450 THz eher homogen flach, so dass die spektrale Modulation in diesem Bereich direkt aus der Form des Seed-Spektrums folgt. Der spektrale Einbruch bei etwa 340 THz, der sowohl in der Simulation als auch in der Messung deutlich zu erkennen ist, folgt aus der parasitär phasenangepassten SH des Signals (paras. SHG). Im Bereich unter 320 THz ist die Verstärkung sehr hoch, da dort sowohl räumliche als auch zeitliche Effekte den Prozess unterstützen. Im Entartungspunkt  $\omega_s - \omega_i \approx 0$  des NOPA bei 290 THz ist der räumliche Überlapp von Signal, Idler und Pumpe bestmöglich vorhanden, so dass die Verstärkung aufgrund der langen gemeinsamen Propagation sehr effizient ist. Außerdem wird der Idler bei Frequenzen oberhalb von etwa 200 THz (hier nicht gezeigt, siehe dazu Kapitel 2.2 Abb. 2.9 auf Seite 20) zeitlich komprimiert, da dort die Materialdispersion für den negativ dispersiv erzeugten Idler positive Werte hat. Zeitlich ist der komprimierte Idler mit den nahinfraroten Spektralanteilen des Signals überlagert, so dass auch aus diesem Grund die Verstärkung unter 320 THz effizient ist.

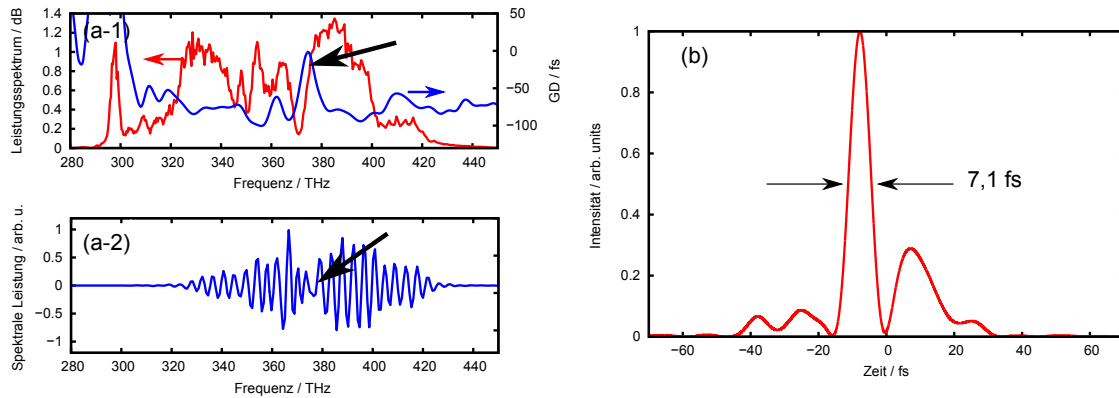
Die mittlere Ausgangsleistung des breitbandigen NIR-NOPA ist in Abb. 4.11 (b) über der SH-Pumpleistung dargestellt. Bei einer SH-Pumpenergie von 10  $\mu\text{J}$  (2 W) haben die Signalepulse des NIR-NOPA eine Pulsenergie von 1  $\mu\text{J}$ . Bei einer Seedpuls-Energie von 0,4 nJ ist der parametrische Verstärkungsfaktor somit größer als  $10^3$ .

---

Die genauen Parameter sind im Anhang A notiert.

### 4.5.2. Spektrale Phase und zeitliches Pulsprofil

Mit einem SPIDER-Apparat<sup>1</sup> ist es möglich, aufgrund der spektralen Interferenz zweier Summenfrequenzen, die Gruppenverzögerung (GD) des Pulses zu messen und das zeitliche Pulsprofil aus der Form des Spektrums und der GD zu rekonstruieren. Abb. 4.13 (b) zeigt das zeitliche Pulsprofil des komprimierten<sup>2</sup> NIR-NOPA-Pulses.



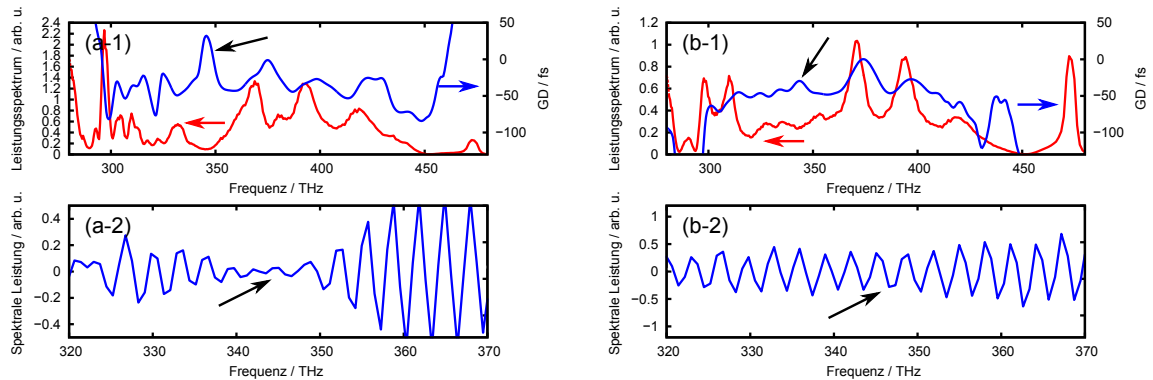
**Abbildung 4.13.:** SPIDER-Messung des NIR-NOPA. (a-1) Gemessenes Signal-Spektrum und Gruppenverzögerung (GD). (a-2) gefiltertes SPIDER-Signal ohne DC-Anteil und abzüglich des SPIDER-Shifts. (b) Rekonstruiertes zeitliches Pulsprofil mit einer Pulsdauer von 7,1 fs.

Die FWHM-Pulsdauer beträgt 7,1 fs, was 10 % oberhalb des Fourierlimits von 6,4 fs liegt. Dies zeigt, dass der Puls allgemein gut komprimierbar ist. Dies führt bei einer Pulsenergie von 1  $\mu$ J zu einer Pulsspitzenleistung von 140 MW.

In Abb. 4.13 (a) ist das zur Messung gehörende gefilterte SPIDER-Signal und das Spektrum des Pulses dargestellt. Die GD zeigt bei 375 THz einen Ausreißer (Pfeil in Abb. 4.13 (a-1)). An dieser Stelle hat auch die spektrale Interferenz des SPIDER-Signals ein Minimum (siehe Abb. 4.13 (a-2)), da das Spektrum dort aufgrund der parasitären SHG ebenfalls ein Minimum aufweist. Dies könnte zunächst auf einen Messartefakt hinweisen. Allerdings zeigen die durchgeführten Simulationen, dass der nichtlineare Prozess tatsächlich einen Einfluss auf die spektrale Phase im Spektralbereich der parasitären SHG hat (siehe z. B. Abb. 2.12 auf Seite 23 (a)). Um diesen Effekt genauer zu untersuchen, wurden SPIDER-Messungen bei verschiedenen Pumpleistungen durchgeführt. Von dieser Messreihe sind exemplarisch zwei

<sup>1</sup>Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction (SPIDER) (siehe z. B. [Iac98, Iac99]).

<sup>2</sup>Zur Komprimierung sind 16 Reflektionen auf einem dispersiven Spiegelpaar (DCM7; Venteon, Bandbreite: 600 nm- 1200 nm) nötig.



**Abbildung 4.14.:** Einfluss der parasitären Harmonischen-Erzeugung in der PVWC-Geometrie des NIR-NOPA. Messung (a-1) und (a-2) wurden bei einer Pumpenergie von  $6 \mu\text{J}$  aufgenommen, (b-1) und (b-2) bei  $2 \mu\text{J}$ . (a-1) und (b-1) zeigen das Signal-Spektrum und die gemessene Gruppenverzögerung (GD), (a-2) und (b-2) stellt die dazugehörigen SPIDER-Signale dar (abzüglich des DC-Anteils und des SPIDER-Shifts). Der parasitäre Prozess sorgt demnach für eine Modulation der spektralen Phase an der Stelle des spektralen Einbruchs.

Messungen in Abb. 4.14 gezeigt.

Für die Messung in Abb. 4.14 (a-1) und (a-2) wurde der NIR-NOPA mit  $1,9 \text{ W}$  gepumpt; die mittlere Ausgangsleistung betrug etwa  $180 \text{ mW}$ . In der Gruppenverzögerung ist wieder ein lokales Maximum im spektralen Einbruchsbereich der parasitären SHG zu sehen. Diesmal kann in diesem Bereich ein zuverlässiges SPIDER-Signal gemessen werden, womit das lokale Maximum in der GD kein Messartefakt ist. Wird die Pumpleistung nun reduziert, verringert sich die Ausgangsleistung und somit auch die parasitäre SHG. In Abb. 4.14 (b-1) und (b-2) ist eine Messung gezeigt, in der der NIR-NOPA nur noch mit  $400 \text{ mW}$  gepumpt wurde. Hier ist keine parasitäre SHG im verstärkten Spektrum erkennbar und auch die GD hat in diesem Bereich (verglichen zur vorherigen Messung) einen flachen Verlauf.

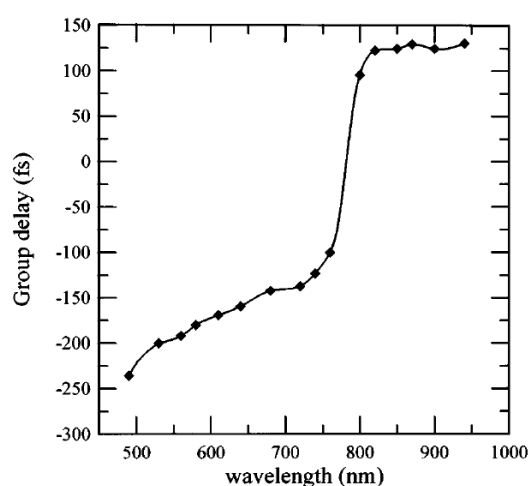
Dies zeigt, dass die parasitäre SHG im Signalspektrum die spektrale Phase an dieser Stelle moduliert. Dieser Effekt ist konsistent mit den Simulationen aus dem Grundlagenkapitel 2.2 und wurde ebenfalls in anderen Experimenten beobachtet [DeS92, Fly75, Gal98]. Auch wenn die parasitäre SHG des Signals im Bereich um den spektralen Einbruch eine Phasenmodulation aufweist, ist dies nur ein lokaler Effekt, der das eigentliche zeitliche Pulsprofil kaum stört, da ohnehin wenig Leistung in diesem Spektralbereich vorhanden ist.

Mit einer Spitzenleistung im Bereich von  $140 \text{ MW}$  bei einer Pulsdauer von etwa  $7 \text{ fs}$  ist das verstärkte Signal des NIR-NOPA gut geeignet, um in einem Festkörper

durch eine Superkontinuums-Erzeugung die spektrale Bandbreite in den sichtbaren Bereich zu erweitern, damit für die darauf folgende zweite Verstärkerstufe genügend Seed-Photonen vorhanden sind.

### 4.6. Superkontinuum-Erzeugung

Die folgende Superkontinuum-Erzeugung ist in diesem System von zentraler Bedeutung, denn in dieser Stufe wird das Spektrum des NIR-NOPA sowohl in den VIS- als auch in den IR-Bereiche verbreitert, um schließlich die spektrale Bandbreite für einen Einzyklen-Puls bereitzustellen. Daher muss die Erzeugung die Kohärenz des gesamten Spektrums erhalten und sollte keine ausgeprägten nichtlinearen Phasensprünge verursachen.



**Abbildung 4.15.:** Messung der Gruppenverzögerung eines Superkontinuum-Spektrums, erzeugt aus einem Puls mit einer Dauer von 150 fs bei einer Zentralwellenlänge von 780 nm. Entnommen aus [Cer97].

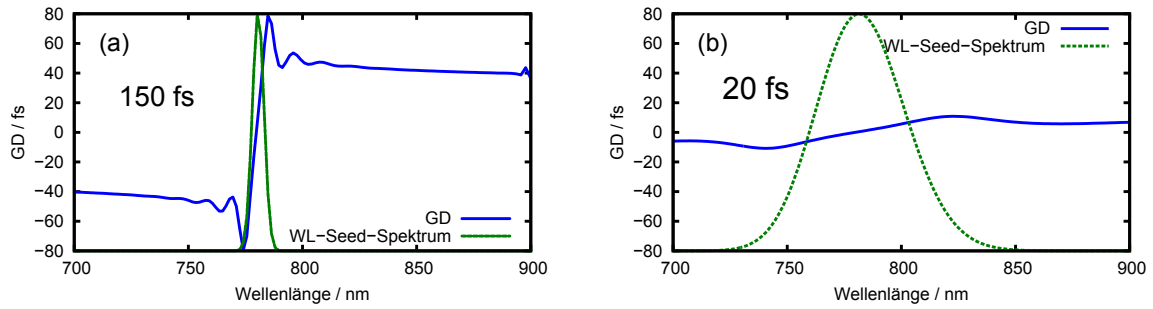
üblicherweise nur die Randbereiche des Superkontinuums für weitere Experimente verwendet werden, der spektrale Bereich um den WL-Seed allerdings nicht weiter genutzt wird [Ant11, Rie00, Sid09].

Der Gruppenverzögerungsverlauf aus Abb. 4.15 kann mit Hilfe einer einfachen Betrachtung <sup>1</sup> allein aufgrund von Selbstphasenmodulation (SPM) charakteristisch

---

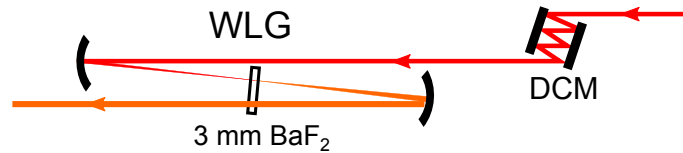
<sup>1</sup>Die Filamentation ist ein hoch nichtlinearer Prozess, indem u.a. die Selbstphasenmodulation, die Selbstaufsteilung des Pulses und auch die Bildung eines Plasmas zum Prozess der spektralen Verbreiterung beitragen. Um den genauen Phasen- oder GD-Verlauf berechnen zu wollen, ist eine





**Abbildung 4.16.:** Berechnung der Gruppenverzögerung (GD) eines durch SPM verbreiterten Spektrums (dargestellt ist nur das WL-Seed-Spektrum), Berücksichtigt wurde ein 1 mm langes Saphir-Plättchen ( $n_2 = 3,1 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) und eine Pulsspitzenleistung von 1,8 W. In (a) ist die WL-Seedpulsdauer 150 fs, in (b) 20 fs.

reproduziert werden (siehe Abb. 4.16). Für diese Berechnung wurde ein Gausspuls bei einer Zentralwellenlänge von 780 nm und einer Pulsdauer von 150 fs angenommen. Abb. 4.16 (b) zeigt den GD-Verlauf, der für einen treibenden Puls, dessen Pulsdauer nur 20 fs beträgt, resultiert. Die GD ist deutlich flacher im Bereich des WL-Seed-Spektrums als in (a). Dies ist ein großer Vorteil, da nun alle Bereiche eines solchen Superkontinuum-Spektrums für weitere Experimente genutzt werden können, insbesondere zur Erzeugung von Einzyklen-Pulsen.



**Abbildung 4.17.:** Skizze des Aufbaus zur Erzeugung eines Superkontinuums in einem Festkörper. Der verstärkte Signal-Puls des NIR-NOPA wird mit dispersiven Spiegeln (DCM) komprimiert und in ein BaF<sub>2</sub>-Plättchen fokussiert.

Der Aufbau zur Superkontinuums-Erzeugung ist in Abb. 4.17 skizziert. Der verstärkte Signal-Puls der ersten NIR-NOPA-Stufe wird mit dispersiven Spiegeln<sup>1</sup> auf eine Pulsdauer von unter 20 fs komprimiert. Anschließend wird das Signal mit einem Hohlspiegel (ROC= -200 mm) in ein 3 mm langes Bariumfluorid-Plättchen fokussiert. Die Ausbildung eines Filaments im Material führt dazu, dass zum Einen das elektromagnetische Feld in einem selbstgebildeten nichtlinearen Kanal geführt wird,

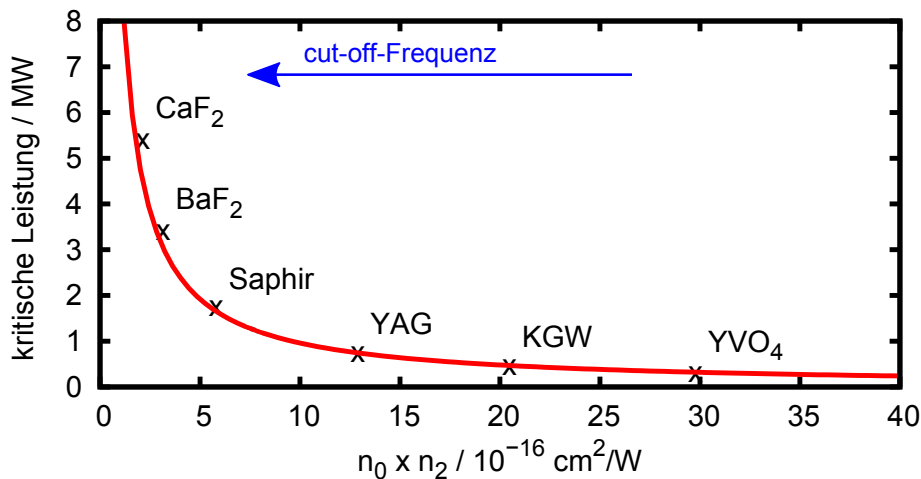
komplexe mehr-dim. Simulation erforderlich. An dieser Stelle soll allerdings eine einfache Abschätzung der GD allein aufgrund von SPM genügen, da qualitativ der Verlauf der GD aus der Messung wiedergegeben werden kann. Die Berechnung der GD der Selbstphasenmodulation beruht auf dem Zusammenhang:  $\tilde{E}(t) = E(t) \exp(i\gamma|E(t)|^2 \cdot L)$ , mit  $\gamma = 2\pi \cdot n_2/\lambda/A_{eff}$  und  $A_{eff} = \pi (10 \mu\text{m})^2$  siehe [Agr01, Boy92, Mor05]

<sup>1</sup>15 Reflektionen auf einem DCM7-Spiegelpaar (Venteon; Bandbreite 600 nm bis 1200 nm).

#### 4. Der parametrische Verstärker für Einzyklen-Pulse

dessen Radius im Bereich von etwa  $10\ \mu\text{m}$  bis  $20\ \mu\text{m}$  liegt [Bra09], und dass zum Anderen das Spektrum stark verbreitert wird. Aufgrund des kleinen nichtlinearen Fokus des Filaments besitzt der spektral verbreiterte Puls beim Austritt aus dem Plättchen eine große Divergenz, so dass zur Kollimierung ein Hohlspiegel mit  $\text{ROC} = -100\ \text{mm}$  verwendet wird, um einen moderaten Strahldurchmesser von etwa  $1\ \text{mm}$  zu erhalten.

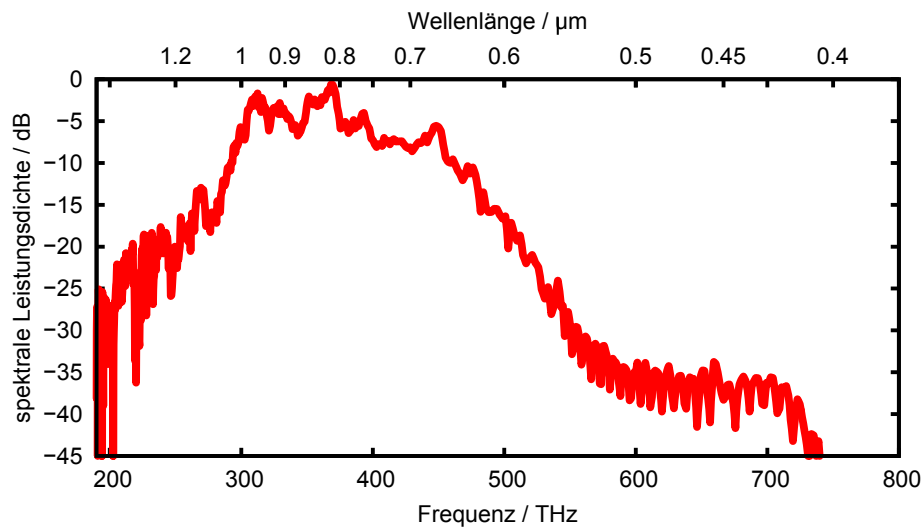
Da das Spektrum möglichst weit in den sichtbaren Spektralbereich reichen soll, wird für die Erzeugung des Weißlichts Bariumfluorid ( $\text{BaF}_2$ ) gewählt. Bariumfluorid liegt bzgl. der kritischen Leistung für Selbstfokussierung zwischen Calciumfluorid ( $\text{CaF}_2$ ) und Saphir, die üblicherweise auch für die Erzeugung eines Superkontinuums genutzt werden (siehe Abb. 4.18). In Abb. 4.18 wurde jeweils die kritische Leistung



**Abbildung 4.18.:** Verlauf der kritischen Leistung  $P_{SF}$  über das Produkt des linearen und nichtlinearen Brechungsindex  $n_0 n_2$ . Zusätzlich sind Werte für verschiedener Materialien zur Weißlichterzeugung markiert (siehe auch [Bra09]).

zur Selbstfokussierung  $P_{SF} = \frac{0.15 \cdot \lambda_0^2}{n_0 n_2}$  für die einzelnen Materialien berechnet und über den Materialparameter  $n_0 n_2$  aufgetragen. Die kritische Leistung ist ein gutes Maß, um abzuschätzen, ab welcher Pulsspitzenleistung der Filamentations-Prozess beginnt [Bro99].

Die Superkontinuum-Spektren der verschiedenen Materialien in Abb. 4.18 unterscheiden sich bzgl. der „cut-off“-Frequenz des Weißlichts. Materialien mit niedrigem nichtlinearem Brechungsindex  $n_2$  (wie z.B.  $\text{CaF}_2$  mit  $1,24\ \text{cm}^2/\text{W}$ ) haben eine „cut-off“-Frequenz, die weit ins sichtbare Spektrum reicht. Hingegen erreicht die Filamentation in Saphir mit einem höheren  $n_2$  mit  $3,1\ \text{cm}^2/\text{W}$  eine niedrigere „cut-off“-Frequenz, führen aber zu einer deutlich stabileren Superkontinuums-Erzeugung.



**Abbildung 4.19.:** Spektrum eines in einem 3 mm langem BaF<sub>2</sub>-Plättchen erzeugten Superkontinuums. Das Spektrum ist aus zwei Einzelmessungen zusammengesetzt, um den Dynamikbereich der Messung zu erhöhen: aus einer Messung des NIR-Bereichs von 200 THz–550 THz und einer Messung des VIS-Bereiches (hier wurden mit einem BG-Filter die NIR-Spektralanteile unterdrückt).

Ein typisches Spektrum eines in BaF<sub>2</sub> erzeugten Superkontinuums zeigt Abb. 4.19. Es reicht von 200 THz–700 THz (bzw. von 430 nm–1400 nm) bei –40 dB. Für eine bessere Stabilität der Superkontinuumserzeugung wird das Plättchen mit etwa 10 Hz senkrecht zur Strahlrichtung etwa 1 mm bewegt.

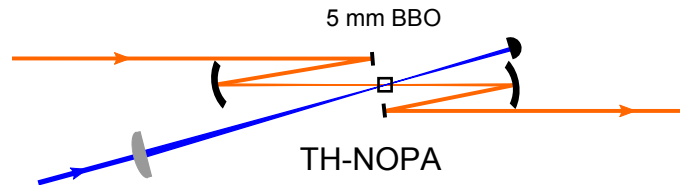
Die Stabilität und Qualität des Weißlichts hängen natürlich auch von der Qualität des Pumpstrahls für die Erzeugung ab. Mit einer Blende kann daher der WL-Seed (verstärktes Signal des NIR-NOPA) vor der Fokussierung räumlich geformt werden, wodurch natürlich die Pulsleistung reduziert wird, aber auch ein stabileres Einzel-Filament generiert werden kann.

Die spektrale Amplitude im mittleren Spektralbereich weist keine großen Modulationen auf, die für ein rein durch Selbstphasenmodulation verbreitertes Spektrum typisch wären. Dies deutet auf einen eher flachen Verlauf der spektralen Phasen hin. Allgemein spiegelt die spektrale Amplitude des Weißlichtspektrums den typischen Verlauf eines in einem Festkörper erzeugten Superkontinuums wider. Es zeigt ein spektrales Plateau im sichtbaren Spektralbereich und eine abfallende Flanke im infraroten Bereich [Bra09].

Das in diesem Prozess erweiterte Spektrum enthält nun die für den Seed der zweiten NOPA-Stufe notwendigen Spektralanteile.

## 4.7. Verstärker im VIS

Die zweite parametrische Verstärkerstufe (VIS-NOPA) verstärkt den sichtbaren Spektralanteil des im BaF<sub>2</sub> erzeugten Superkontinuums von etwa 420 THz–700 THz. Auch hier wird für eine breitbandige Verstärkung die nicht-kollineare PVWC-Geometrie gewählt (siehe Abb. 4.20).



**Abbildung 4.20.:** Skizze des VIS-NOPA. Diese NOPA-Stufe wird mit der dritten Harmonischen (TH) des Yb:YAG-Verstärkers gepumpt. Das zuvor generierte Superkontinuum dient als Seed.

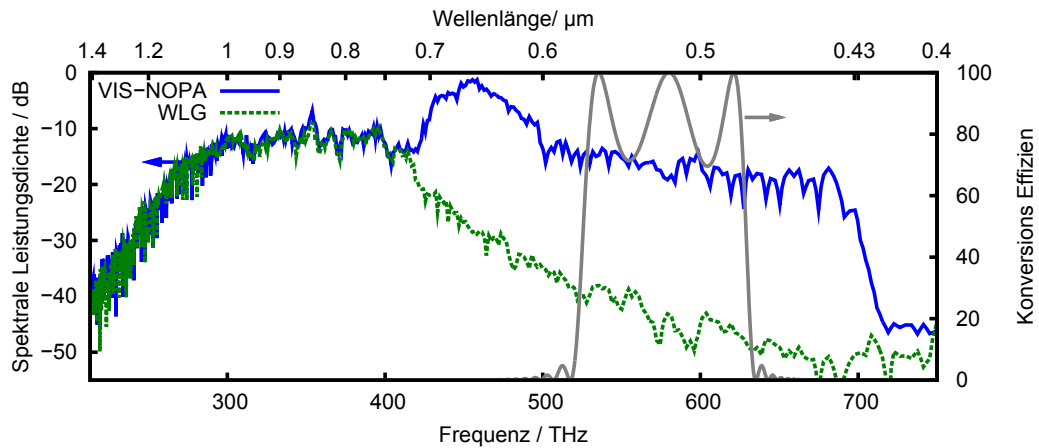
Der Pumpimpuls für diese Stufe ist die dritte Harmonische (TH) des Yb:YAG-Verstärkers bei 343 nm mit einer Pulsdauer von ca. 0,8 ps. Mit einer Linse ( $f=500$  mm) werden die Pulse der TH bei einer Pulsenergie von etwa 7  $\mu$ J in einen 5 mm langen Typ-I-BBO-Kristall auf einen Strahlradius von etwa 100  $\mu$ m fokussiert, was in einer Spitzenintensität von 23 GW/cm<sup>2</sup> resultiert. Der gesamte Superkontinuum-Seed wird mit einem Hohlspiegel (ROC = -800 mm) unter dem Winkel  $\alpha = 4,5^\circ$  zum Pumpstrahl in den nichtlinearen Kristall fokussiert.

### 4.7.1. Spektrale Amplitude und Ausgangsleistung

Das Seed-Spektrum und das verstärkte Spektrum des VIS-NOPA ist in Abb. 4.21 gezeigt. Es reicht von 250 THz–700 THz. Ebenfalls ist in dieser Abbildung in grau eine berechnete Verstärkungskurve gezeigt, die sich allein aufgrund der Phasenanpassung ergibt. Auch in diesem NOPA repräsentiert die Phasenanpassungskurve in keiner Weise die gemessene spektrale Form des verstärkten Signals. Sie erklärt ebenfalls nicht den prominenten Peak um 450 THz und auch nicht die große Verstärkungsbandbreite von etwa 250 THz.

Eine Simulation der parametrischen Verstärkung unter Berücksichtigung räumlicher, zeitlicher und parasitärer Prozesse aus [Lan12] ist in Abb. 4.22 gezeigt und kann die spektrale Form der Verstärkung erklären (siehe auch Kapitel 2.2).

So ist die enorme Verstärkungsbandbreite auf eine Reduzierung der effektiven Kristalllänge zurückzuführen, da in der nicht-kollinearen Geometrie und den re-

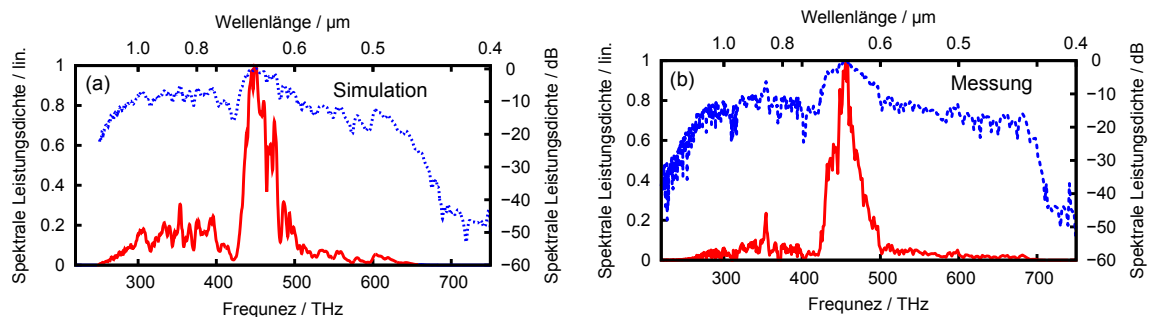


**Abbildung 4.21.:** Messung der spektralen Amplitude des VIS-NOPA (blau) mit WL-Seed-Spektrum (grün) und berechneter Phasenanpassung (grau). Die Pulsenergie des gesamten Ausgangsspektrums (blau) beträgt  $1 \mu\text{J}$ .

lativ kleinen Strahldurchmessern im Bereich von  $100 \mu\text{m}$  die Strahlen von Signal, Pumpe und Idler nach kurzer Propagationslänge nicht mehr optimal räumlich überlappen. Der prominente Peak um  $450 \text{ THz}$  resultiert zum Einen aus dem starken Seed-Spektrum in diesem Bereich und zum Anderen aus einer sehr effizienten Verstärkung, da dort sowohl der Entartungspunkt des VIS-NOPA liegt und somit der räumliche Überlapp der drei Strahlen bestmöglich gegeben ist, als auch der zeitlich komprimierte Idler mit dem Spektralanteil des Seed-Spektrums um  $450 \text{ THz}$  zeitlich überlagert ist (siehe Kapitel 2.2).

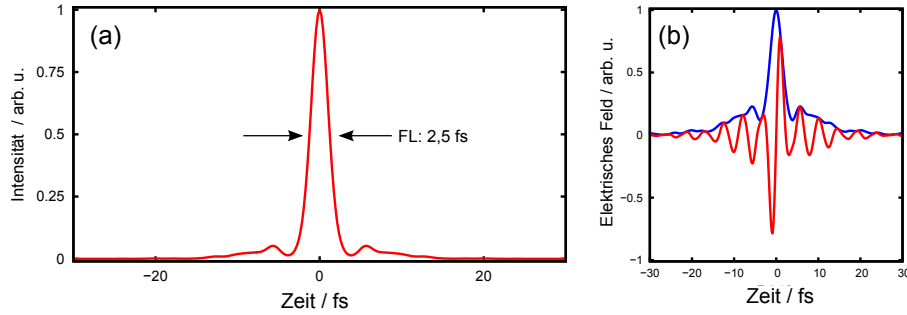
Somit zeigt die Simulation der parametrischen Verstärkung aus [Lan12] eine sehr gute Übereinstimmung der spektralen Amplitude mit der Messung. Sowohl die spektrale Bandbreite als auch der Peak um  $450 \text{ THz}$  werden durch die Simulation gut wiedergegeben.

Das gesamte überoktavbreite Spektrum von  $430 \text{ nm}$ – $1300 \text{ nm}$  (bei  $-30 \text{ dB}$ ) hat



**Abbildung 4.22.:** (a) Simulation der spektralen Amplitude des in dieser Arbeit aufgebauten VIS-NOPA (aus [Lan12]), (b) gemessenes Spektrum des VIS-NOPA [Har12].

eine Pulsenergie von  $1 \mu\text{J}$  bei  $200 \text{ kHz}$  Pulswiederholrate. Es unterstützt eine fourierlimitierte Pulsdauer von  $2,5 \text{ fs}$ , was bei einer Zentralwellenlänge von  $650 \text{ nm}$  einem 1,2-Zyklus-Puls entspricht [Har12]. Obwohl das Spektrum einen prominenten Peak



**Abbildung 4.23.:** (a) fourierlimitierter Puls mit einer FWHM-Pulsdauer von  $2,5 \text{ fs}$ . (b) Darstellung des elektrischen Feldes mit einer Träger-Einhüllenden-Phase von  $\varphi = \pi/2$ . Dieser Puls entspricht einem 1,2-Zyklus-Puls.

um die Zentralfrequenz bei  $650 \text{ nm}$  aufweist, zeigt der fourierlimitierte Puls nur ein schwach ausgeprägtes Podest (siehe Abb. 4.23 (a)), so dass  $83 \%$  der Pulsenergie im Hauptpuls liegt. Somit könnten bei einer Pulsenergie von  $1 \mu\text{J}$  Intensitäten im Bereich von  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  erreicht werden (mit  $10 \mu\text{m}$  Strahldurchmesser).

Um dieses Spektrum zur Erzeugung eines 1,2-Zyklus-Pulses nutzen zu können, müssen alle Phasenbeiträge über den gesamten Spektralbereich für die Kompression berücksichtigt werden.

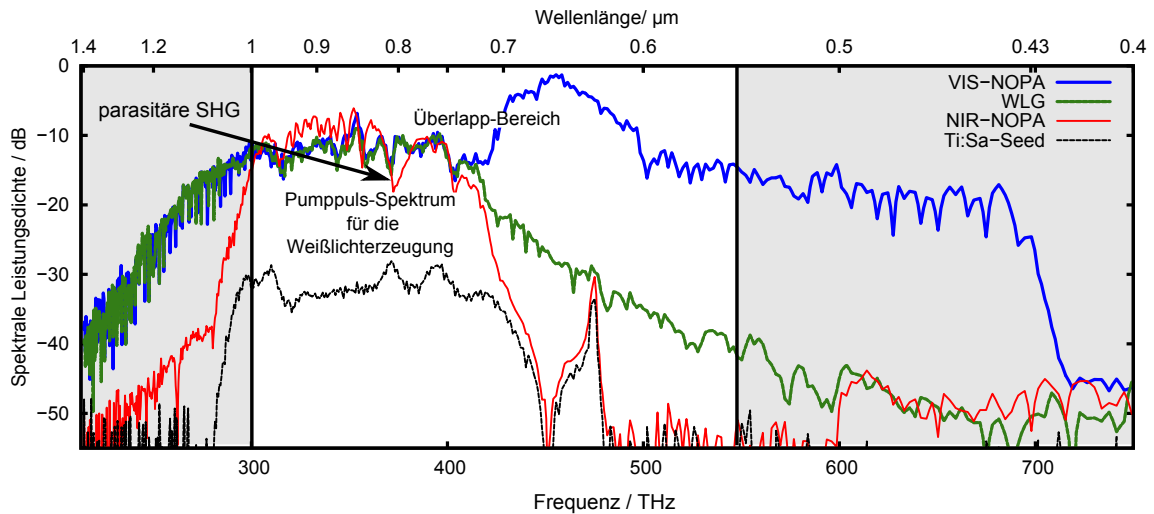
#### 4.7.2. Spektrale Phase und zeitliches Pulsprofil

Eine vorläufige Pulskompression mit breitbandigen dispersiven Spiegeln<sup>1</sup> beschränkt das Spektrum auf einen Bereich von  $550 \text{ nm}$ – $1000 \text{ nm}$  (bzw.  $300 \text{ THz}$ – $550 \text{ THz}$ , siehe Abb. 4.24) und folglich erhöht sich die fourierlimitierte Pulsdauer von  $2,5 \text{ fs}$  auf  $4 \text{ fs}$ .

Die spektrale Phase in diesem Bereich setzt sich neben den linearen Beiträgen auch aus nichtlinearen Phasenbeiträgen zusammen. So beinhaltet der Bereich den spektralen Überlapp des NIR- und des VIS-NOPAs und das Pumppulsspektrum für die Superkontinuumserzeugung (oder Weißlichterzeugung (WLG)). Dies ist in Abb. 4.24 dargestellt.

Da sich die parametrische Phase des NIR-NOPA nur auf den Bereich von  $250 \text{ THz}$  bis  $450 \text{ THz}$  und im Fall des VIS-NOPA nur von  $400 \text{ THz}$  bis  $700 \text{ THz}$  auswirkt (siehe

<sup>1</sup>23 Reflexionen auf DCM9 (Venteon, Bandbreite  $550 \text{ nm}$  bis  $1000 \text{ nm}$ ) und variable Glas-Keile.

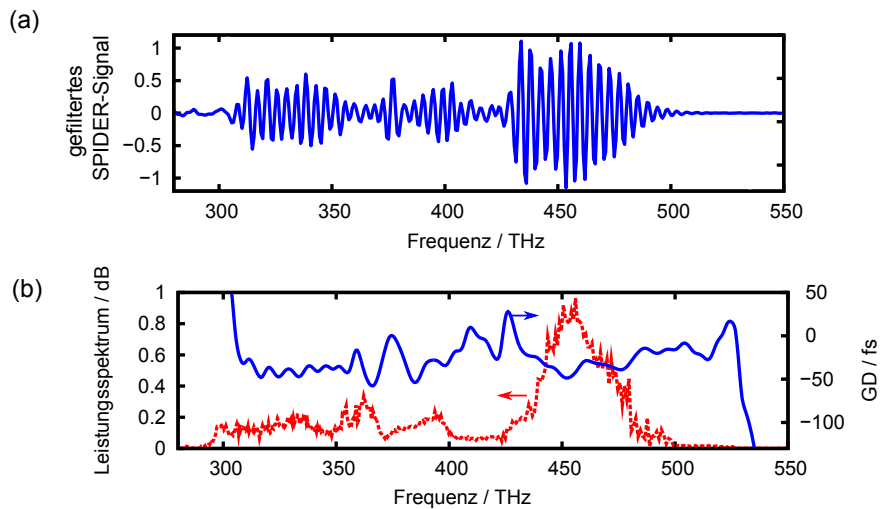


**Abbildung 4.24.:** Darstellung der Entwicklung der spektralen Bandbreite: Ti:Saphir-Seed-Spektrum (schwarze-Kurve), NIR-NOPA Spektrum (rote Kurve), Superkontinuum-Spektrum (grüne Kurve), VIS-NOPA Spektrum (blaue Kurve). Die beiden schwarzen Striche markieren den Bereich, der bei einer vorläufigen Pulskompression mit einem dispersiven Spiegelpaar berücksichtigt wurde.

auch Abschnitt 2.2), ist nicht sofort klar, wie sich die Phase im spektralen Überlapp-Bereich der beiden Verstärker verhalten wird. Eine Messung von Herrmann et al. [Her10] zeigt allerdings, dass dieser Bereich unkritisch sein sollte. Somit ist die spektrale Phase über das gesamte Spektrum hinweg wohl definiert. Zusätzlich geht aus der Diskussion von Abschnitt 4.6 hervor, dass der Phasenbeitrag aufgrund der Weißlichterzeugung keine großen Nichtlinearitäten aufweisen wird.

Der mit den dispersiven Spiegeln komprimierte Puls wurde mit einem SPIDER-Apparat charakterisiert. Das gefilterte SPIDER-Signal in Abb. 4.25 (a) ist über das gesamte Spektrum hinweg deutlich moduliert, und die zugehörige Gruppenverzögerung (GD) (Abb. 4.25 (b)) führt zu der in Abb. 4.26 (a) dargestellten spektralen Phase. Sie hat eine leichte Reststruktur im Bereich von  $-2$  rad bis etwa  $3$  rad. Die zugehörige rekonstruierte Pulsform ist in Abb. 4.25 (b) zu sehen und zeigt neben einem Hauptpuls kleine Satellitenpulse (aufgrund der leicht modulierten Phase). Die FWHM-Pulsdauer beträgt  $4,6$  fs und liegt nur  $15\%$  über dem Fourierlimit ( $4$  fs).

Diese Messung zeigt, dass es möglich ist, die komplexe Phase im Bereich von  $300$  THz– $550$  THz allein mit einem dispersiven Spiegelpaar zu kontrollieren. Der Phasenbeitrag aufgrund der Superkontinuums-Erzeugung kann daher keine großen unkomprimierbaren Nichtlinearitäten beinhalten, und auch die Phase im Überlapp-

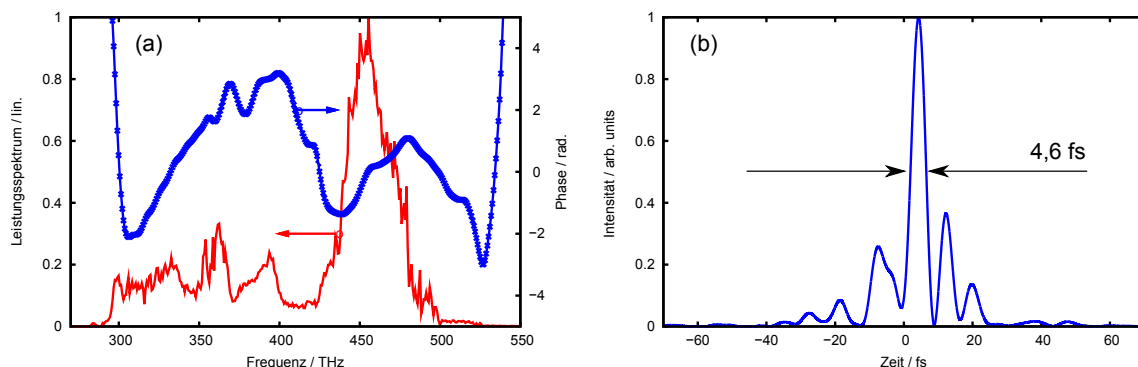


**Abbildung 4.25.:** SPIDER-Messung des spektral reduzierten Spektrums: (a) SPIDER-Signal abzüglich des DC-Anteils und des SPIDER-Shifts. (b) Spektrum der SPIDER-Messung und die Gruppenverzögerung (GD) für zwei unterschiedliche Messungen (blau und grün).

Bereich der beiden NOPA-Stufen ist wohldefiniert.

Mit dieser Messung wird somit auch gezeigt, dass die Methode der seriellen Synthese zweier nicht-kollinear parametrischer Verstärkerstufen zur kohärenten Verstärkung eines 450 THz breiten Spektrums geeignet ist. Der Vorteil dieses Konzepts gegenüber den anderen Pulssynthese-Konzepten (z.B. [Cox12, Kra10, Man12]) ist, dass dieses Konzept ganz ohne eine präzise Stabilisierung der zeitlichen Überlagerung und der absoluten Phase zweier Pulse mit unterschiedlichen Spektren auskommt.

Zwar driften in diesem System aufgrund von thermischen Effekten im Laufe des Tages der Pumpuls und der Signalpuls zeitlich auseinander, was zu einer Instabi-



**Abbildung 4.26.:** (a) Spektrum der SPIDER-Messung (rot) und die gemessene spektrale Phase des VIS-NOPA nach der Kompression mit einem dispersiven Spiegelpaar. (b) Rekonstruierte Pulsdauer aus den Phasenmessungen. Die FWHM-Pulsdauer beträgt 4,6 fs.



lität des Systems führt, dies kann aber durch eine langsame Regelung ausgeglichen werden. Zusätzlich kann die Langzeitstabilität des Systems auch durch eine Strahlagenstabilität verbessert werden, da auch räumliche Schwankungen der Strahlpositionen von Signal und Pumpe zu Instabilitäten führt.

Das gesamte verstärkte Spektrum hat eine Pulsenergie von  $1 \mu\text{J}$  bei einer Wiederholrate von  $200 \text{ kHz}$ . Mit einer Zentralwellenlänge von  $650 \text{ nm}$  und einem Fourierlimit von unter  $3 \text{ fs}$  führt dies zu einem 1,2-Zyklus Puls. Eine vorläufige Pulskompression mit einem breitbandigen dispersiven Spiegelpaar, wobei der zentrale Teil des Spektrums auf unter  $5 \text{ fs}$  komprimiert werden konnte, bestätigt die Kohärenz des Spektrums.

In Kombination mit einem breitbandigen Pulsformer (siehe Abschnitt 5.2) zur Pulskompression und einer Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Frequenz (siehe Abschnitt 5.3) ist diese Laserquelle ideal geeignet, sowohl Pulse mit nahezu einem optischen Zyklus im sichtbaren Spektralbereich zu erzeugen, als auch komplexe interferometrische Untersuchungen im Rahmen der „phase sensitiv nonlinear optics“ [Sch03b] z.B. an atomaren Systemen, wie in Kapitel 3 vorgeschlagen, durchzuführen.



# Ausblick: Pulskompression, Anwendung und Weiterentwicklung

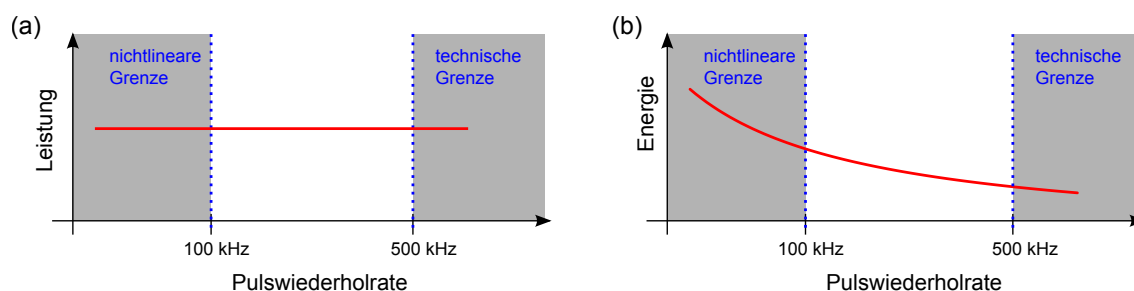
Das in dieser Arbeit vorgestellte System hat das Potential Einzyklen-Pulse im sichtbaren Spektralbereich bei hohen Pulswiederholraten und Pulsenergien im  $\mu\text{J}$ -Bereich zu erzeugen. In dieser Arbeit wurde erfolgreich gezeigt, dass eine über-oktavbreite Verstärkung allein durch ein Aneinanderreihen von verschiedenen Verstärkerstufen möglich ist. Dabei ist die Phasenbeziehung der einzelnen Spektralanteile immer fest definiert und somit bleibt die Kohärenz des Spektrums erhalten [Har12].

Im Folgenden wird dieses System unter den Aspekten der Energieskalierung, der Pulskompression, der Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase und einer möglichen Anwendung in der kohärenten Kontrolle atomarer Systeme untersucht.

## 5.1. Skalierung der Pulsenergie

Optisch parametrische Verstärker sind aufgrund des verschwindenden Quantendefekts in der Pulsenergie skalierbar. Daher findet dieses Konzept auch immer mehr Einzug in Hochenergie-Lasersystemen (wie z.B. [Ada08, Gu09, Voz07]). Für die Skalierung eines parametrischen Verstärkers ist insbesondere die Skalierung der Pump-pulseenergie wichtig. Darüber hinaus ist in diesem System die Superkontinuums-Erzeugung zwischen den beiden NOPA-Stufen ein zentrales Element, das bzgl. der Energieskalierung diskutiert werden muss.

**Skalierung der Pump-pulsenergie:** Die Skalierung der Pump-pulsenergie der beiden parametrischen Verstärker, ist eine Frage der Energieskalierung des Yb:YAG-Verstärkers. Die Ausgangsleistung dieses Verstärkers ist im 100 kHz-Bereich nahezu konstant gegenüber der Pulswiederholrate, wenn die Anzahl der Umläufe im Reso-



**Abbildung 5.1.:** Darstellung des Energie- und Leistungsverlaufs des Yb:YAG-Verstärkers in Abhängigkeit der Pulswiederholrate. Die mittlere Leistung bleibt nahezu konstant über der Pulswiederholrate (a), die Pulsenergie sinkt folglich invers zur Pulswiederholrate (b).

nator des Verstärkers konstant gehalten werden (siehe Abb. 5.1 (a)) [Sch12]. Die Pulsenergie skaliert somit folglich invers zur Pulswiederholrate, d.h. bei niedrigeren Pulswiederholraten steigt die Pulsenergie (siehe Abb. 5.1 (b)).

Bisher ist es möglich die Wiederholrate beliebig zwischen 100 kHz und 500 kHz einzustellen. Zu größeren Werten ist die Wiederholrate aus technischen Gründen (zum Einen durch die verwendete Elektronik und zum Anderen durch piezoelektrische Effekte in der BBO-Pockelszelle) begrenzt. Zu kleineren Werten ist sie durch nichtlineare Prozesse limitiert, denn obwohl die Strahlgröße im Verstärker besonders in den beiden BBO-Kristallen der Pockelszelle relativ groß gewählt wurde (im mm-Bereich), um den nichtlinearen Phasenbeitrag pro Umlauf gering zu halten, werden die Effekte wie Selbstphasenmodulation oder Selbstfokussierung bei geringeren Pulswiederholraten nicht mehr vernachlässigbar sein. Eine Abhilfe würde das sog. „chirped pulse amplification“ (CPA)- Konzept bieten [Str85], bei dem vor der Verstärkung der Seed-Puls des Verstärkers zunächst zeitlich gestreckt wird, um die Pulsspitzenleistung während der Verstärkung gering zu halten, siehe z.B. [Met09, Str85]. Nachträglich wird der Puls wieder komprimiert. Als Pulsstrecke und Kompressor könnten hier ein Chirped-Volume-Bragg-Grating (CVBG) wie in [Cal09] Verwendung finden oder auch Gitterstrecke und -kompressoren wie in [Met09] sind denkbar.

Soll allerdings nicht auf die hohe Pulswiederholrate im 100 kHz-Bereich bei möglichst hoher Pulsenergie verzichtet werden, können andere Pumpquellen für die NOPA-Stufen in Betracht gezogen werden, wie z.B. ein faserbasierter Verstärker, welcher aufgrund seiner längeren Verstärkungsstrecke hohe mittlere Ausgangsleistungen ermöglichen. In [Rot11] konnte in der Vergangenheit ein faserbasierter Verstärker mit einer Pulswiederholrate von 1 MHz und einer Pulsenergie von 200  $\mu$ J erzeugt werden.

Eine Skalierung der Pumpulsenergie ermöglicht neben einer deutlichen Steigerung der Ausgangsenergie zudem die Verwendung von größeren Strahlradien in den nichtlinearen Kristallen. Dies hat zur Folge, dass Effekte wie der „walk-off“ der Pumpe in einem Typ-I Kristall und die parasitäre Erzeugung der zweiten Harmonischen von Signal und Idler im NOPA-Prozess keinen großen Einfluss mehr auf die spektrale Form und die Phase des verstärkten Signalspektrums besitzen [Dem12, Lan12].

**Superkontinuumserzeugung:** Der Prozess der Superkontinuumserzeugung z.B. in einem Festkörper erfordert die Balance von nichtlinearen Prozessen wie z.B. die Selbstfokussierung und Plasmabildung und ist daher nur bedingt bzgl. der Ausgangsleistung skalierbar (siehe z.B. [Alf06, Bra09]). Dadurch ist die maximale Signal-Pulsenergie des NIR-NOPA unter der Verwendung von BaF<sub>2</sub> als Festkörper für die Weißlichterzeugung bisher auf ca. 1  $\mu$ J beschränkt. Eine Erhöhung der Pulsenergie des NIR-NOPA führt zu Ausbildung von Multifilamenten und zur Zerstörung des Festkörpers. Um daher die Superkontinuumserzeugung für höhere Pulsenergien anzupassen, könnten Festkörpermateriale verwendet werden, die eine höhere kritische Leistung  $\hat{P}$  für die Selbstfokussierung benötigen. Wie in Abschnitt 4.6 erwähnt, ist die Selbstfokussierung der Startprozess für die Superkontinuums-Erzeugung. BaF<sub>2</sub> besitzt eine kritische Leistung von etwa 3,5 MW, somit könnten CaF<sub>2</sub> oder auch LiF oder MaF<sub>2</sub> mit jeweils einer kritischen Leistung von etwa 7,4 MW, 8,8 MW und 9 MW verwendet werden [Ada89, Bro99]. Soll ein Verstärker mit Pulsenergien im Bereich von etwa 500  $\mu$ J aufgebaut werden, könnte auch die Superkontinuumserzeugung in Gasen (z.B. in Xenon [Akt07]) geeignet sein.

Die naheliegendste Methode die Energieskalierung der Superkontinuumserzeugung zu umgehen, ist nach der Weißlichterzeugung eine zusätzliche NIR-NOPA Stufe zu setzen, um den Spektralanteil im IR-Bereich weiter verstärken zu können.

Eine andere Methode wäre, das Superkontinuumspektrum schon direkt hinter dem Seed-Oszillator zu erzeugen, so dass bereits vor der ersten NOPA-Stufe das gesamte Endspektrum vorhanden ist. Dieses erfordert allerdings eine Superkontinuums-Erzeugung z.B. mittels einer photonischen Kristallfaser (PCF) [Dem11, Hei11]. Die Erzeugung des Weißlichts mit einer PCF ist aber zum Einen aufgrund des geringen Kerndurchmessers der Faser von unter 5  $\mu$ m justageaufwendig und zum Anderen ist das Spektrum gewöhnlich durch Rauschen geprägt [Cor03, Hil04, Hoo11, Was04], was ein Nachteil der Verwendung von PCFs ist.

Zusätzlich ist es sinnvoll den Pulsformer, der bisher am Ende des gesamten Aufbaus für die Pulskompression vorgesehen ist, direkt hinter die Superkontinuum-Erzeugung zu setzen, da die Transmissionsverluste des Pulsformers (ca. 30 %) durch die nachfolgenden Verstärkerstufen kompensiert werden könnten.

### 5.2. Pulskompression und Charakterisierung

Erst mit einer geeigneten Pulskompression und einer Charakterisierung des überoktavbreiten Spektrums ist die Erzeugung des 1,2-Zyklus-Pulses abgeschlossen.

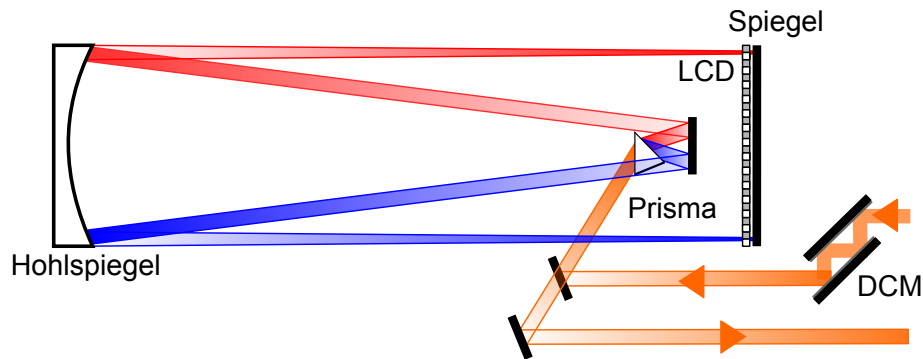
**Pulskompression** Wie schon in Abschnitt 4.7 gezeigt, kann der zentrale Teil des Spektrums von 300 THz–550 THz allein mit dispersiven Spiegeln komprimiert werden. Wenn es geeignete breitbandige Spiegel für das gesamte Spektrum geben würde, wäre dies sicher die einfachste Methode der Pulskompression. Allerdings ist die Herstellung und das Design für solche Bandbreiten äußerst schwierig, da sowohl eine hohe Reflektivität als auch eine passende negative GDD über die gesamte Bandbreite gefordert wird. Trotz dieser Herausforderung wurden 2001 dispersive Spiegel für oktavbreite [Kär01] und 2007 für über-oktavbreite Spektren [Per07] vorgestellt. Die dispersiven Spiegel aus [Per07] sind für einen Wellenlängenbereich von 400 nm–1200 nm gefertigt und würden somit knapp die hier erforderliche Bandbreite abdecken.

Andere Methoden der Dispersionskompensation wie z.B. Gitterkompressoren oder Prismenkompressoren sind ebenfalls für diese Bandbreite ungeeignet, da zum Einen ein Gitter in der Anwendung auf eine optische Oktave beschränkt ist und zum Anderen ein standard Prismenkompressor keine negative Dispersion über den gesamten Spektralbereich hinweg bereitstellen kann.

Im Gegensatz zu den oben vorgestellten Methoden kann ein Flüssigkeitskristall-Display-basierter 4f-Pulsformer<sup>1</sup> zur Kompensation verschiedenster Phasenverläufe eingesetzt werden und ist somit in der Lage auch Pulse mit einem komplexen Phasenverlauf zu komprimieren. Da bereits mit einem derartigen 4f-Pulsformer erfolgreich oktavbreite Spektren komprimiert und manipuliert werden konnten (siehe [Bin05, Bin06, Rau08]), wird auch für das in dieser Arbeit verstärkte Spektrum ein 4f-Pulsformer aufgebaut werden, der das gesamte Spektrum von 430 nm–1300 nm unterstützen wird.

---

<sup>1</sup>Übersichtsartikel zu 4f-Pulsformern sind z.B. [Mon10, Wei00].

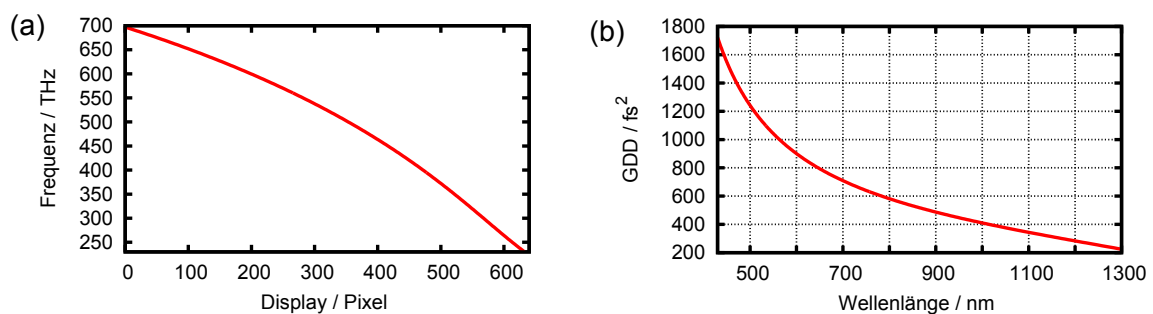


**Abbildung 5.2.:** Skizze des Pulsformeraufbaus. Der Strahlengang ist nur für die beiden spektralen Randbereiche des Spektrums dargestellt. LCD: „liquid crystal display“, DCM: „double chirped mirror“.

**Pulsformer für 1,5 optische Oktaven** Der Aufbau des geplanten 4f-Pulsformers ist in Abb. 5.2 zu sehen. Er basiert auf einem Flüssigkeitskristall-Display (LCD) mit 640 Pixeln und einer gesamten Apertur von 63,7 mm [Jen06]. An jedes Pixel kann unabhängig eine Spannung angelegt werden, um die Optische Achse der Flüssigkeitskristalle pro Pixel gezielt auszurichten. Dies führt dazu, dass der effektive Brechungsindex für jedes einzelne Pixel individuell angesteuert werden kann.

Das LCD ist für einen Wellenlängenbereich von 430 nm–1600 nm spezifiziert und somit ideal für das in dieser Arbeit erzeugte Ausgangsspektrum geeignet.

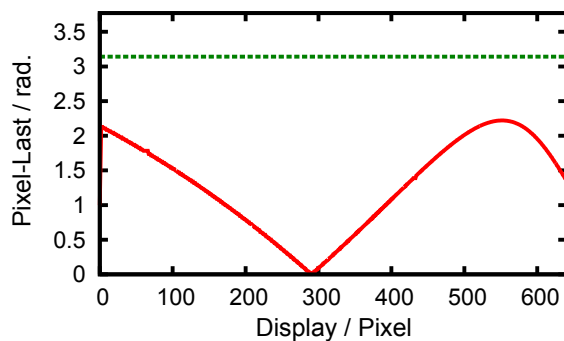
Aufgrund des überoktavbreiten Spektrums können keine Gitter verwendet werden, um das Spektrum räumlich dispersiv aufzuspalten. Stattdessen wird ein F2-Prisma verwendet (siehe Abb. 5.2). Bei einem Abstand von 660 mm sind die Frequenzkomponenten von 250 THz–700 THz räumlich auf einen Bereich von 6,3 cm separiert, was der Apertur des LCDs entspricht. Ein Hohlspiegel ( $f=660$  mm) fokussiert die Fre-



**Abbildung 5.3.:** (a) Frequenzverteilung über das LCD. Die gesamte Bandbreite des Spektrums von 250 THz–700 THz wird auf das Display abgebildet. (b) Gruppengeschwindigkeitsdispersion aufgrund der Propagation durch 4,2 mm im F2-Prisma.

quenzanteile auf das LCD, wobei ein Planspiegel direkt hinter dem Display steht, um einen doppelten Durchgang durch das LCD zu ermöglichen. Abb. 5.3 (a) zeigt die resultierende Frequenzverteilung am LCD. Wie in [Bin05] ausführlich beschrieben wird, ist die Entscheidung für eine Fokusgröße der einzelnen Frequenzkomponenten am Display immer ein Kompromiss zwischen räumlichen und zeitlichen Nebeneffekten. Dazu gehört die Ausbildung von zeitlichen Pulsreplika oder der Verlust von Spektralkomponenten durch räumliche Beugung an der Maske des Pulsformers. Um zum Einen diese Verluste zu minimieren, wenn der Strahldurchmesser am LCD über mehrere Pixel verteilt ist, und zum Anderen auch um einen Phasenverlauf eindeutig darstellen zu können, sollte der Phasenunterschied von Pixel zu Pixel, die Pixel-Last, unter  $\pi$  liegen [Bin05].

Für diesen Pulsformer wird ein Strahlradius von  $90\ \mu\text{m}$  am LCD gewählt (siehe auch [Bin05]). Dies hat zur Folge, dass der Strahlradius am Eingang des Prismas  $2\ \text{mm}$  beträgt, so dass im Mittel etwa  $4,2\ \text{mm}$  F2-Glas für den Hin- und Rücklauf durch den Pulsformer an Dispersion berücksichtigt werden müssen (siehe Abb. 5.3 (b)). Diese Dispersion muss häufig größtenteils durch eine zusätzliche Vorkompensation ausgeglichen werden [Bin05, Bin06, Rau08]. Wie bereits oben erwähnt sind bei diesem Pulsformer für eine Vorkompensation der Prismendispersion keine Prismen- oder Gitterkompressoren geeignet. Die Verwendung von weniger dispersiven Prismen in Kombination mit einer größeren Brennweite der Fokussieroptik stellt keine Lösung dar.



**Abbildung 5.4.:** Phasenunterschied von Pixel zu Pixel (Pixel-Last), um die Restphase des F2-Prismas zu kompensieren (siehe Text).

In diesem Fall müsste nämlich der Strahldurchmesser am Prisma deutlich größer sein (als bei dem hier vorgestellten FS-Prisma), um den benötigten Strahldurchmesser am LCD zu erhalten. Somit hebt die längere Propagation durch das Prisma den Vorteil der geringeren Materialdispersion auf.

Auch die Verwendung eines Teleskops im 4f-Aufbau des Pulsformers, um z.B. die Winkeldispersi-

on weniger dispersiver Prismen-Materialien zu erhöhen oder den Strahldurchmesser nach der Propagation durch das Prisma zu erhöhen, führt nicht zum Ziel. Daher wird

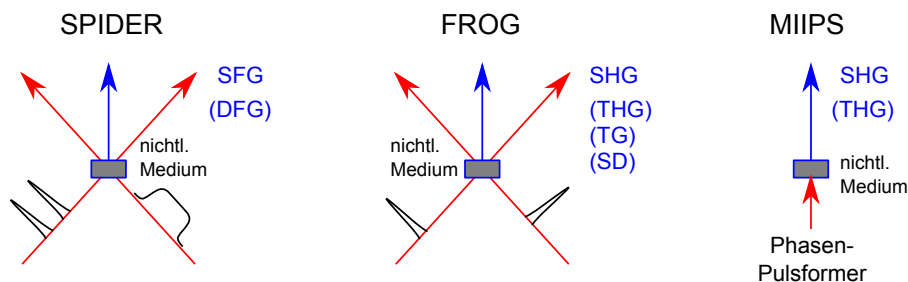


für diesen Pulsformer eine Vorkompensation der Prismendispersion mittels breitbandiger dispersiver Spiegel in Betracht gezogen. Wie bereits erwähnt, ist die Herstellung solcher Spiegel für diese Bandbreite nicht trivial. Allerdings könnten die breitbandigen dispersiven Spiegel aus [Per07], die eine Bandbreite von 400 nm–1200 nm und eine GDD von  $-20 \text{ fs}^2$  bei 800 nm besitzen, geeignet sein. Mit solch einem Spiegelpaar könnte die Prismendispersion mit etwa 25 Reflektionen um  $-500 \text{ fs}^2$  reduziert werden. Diese Abschätzung führt zu der in Abb. 5.4 dargestellten Pixel-Last. Somit ist es möglich die Pixellast unter den kritischen Wert von  $\pi$  zu halten.

Da dieser Pulsformer zur Dispersionskompensation für das in dieser Arbeit verstärkte Spektrum dienen soll, muss an den Pulsformer die entsprechende Gegenphase des Spektrums angelegt werden. Um diese Phase zu ermitteln, wird eine Pulscharakterisierungsmethode benötigt, die über das gesamte Spektrum hinweg die spektrale Phase des Pulses messen kann.

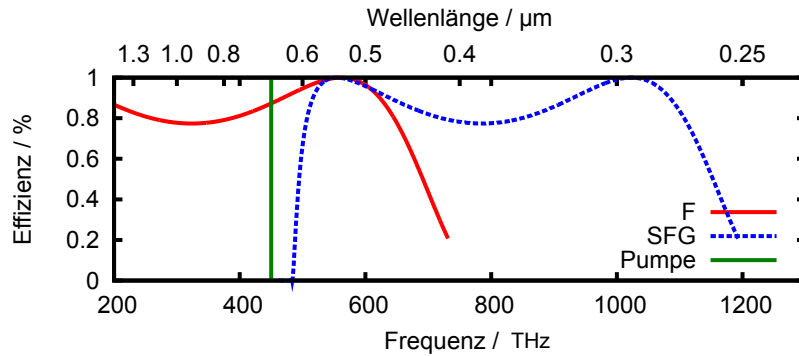
**Puls-Charakterisierung** Pulscharakterisierungsmethoden, die auf die zeitliche Pulsform und somit auf die spektrale Phase eines Pulses sensitiv sind, wie z.B. „Spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction“ (SPIDER), „Frequency resolved optical gating“ (FROG) oder „Multiphoton intrapulse interference phase scan“ (MIIPS) und deren verschiedenen Varianten, benötigen einen nichtlinearen Prozess, wie z.B. eine Frequenzkonversion (siehe Abb. 5.5).

Die Information der spektralen Phase ist in der SPIDER-Methode üblicherweise<sup>1</sup> in der spektralen Interferenz zweier Summenfrequenzen enthalten (siehe [Iac99]). Mit einer verwandten Methode, die besonders für Pulse mit nur wenigen oder nur einem optischen Zyklus geeignet ist („two-dimensional spectral shearing interfero-



**Abbildung 5.5.:** Beispiele für mögliche nichtlineare Prozesse der verschiedenen Pulscharakterisierungsmethoden: SPIDER, FROG und MIIPS.

<sup>1</sup>Für die Pulscharakterisierung von UV-Pulsen ist auch die Differenzfrequenz Erzeugung als nichtlinearer Prozess möglich, siehe z.B. [Bau04].

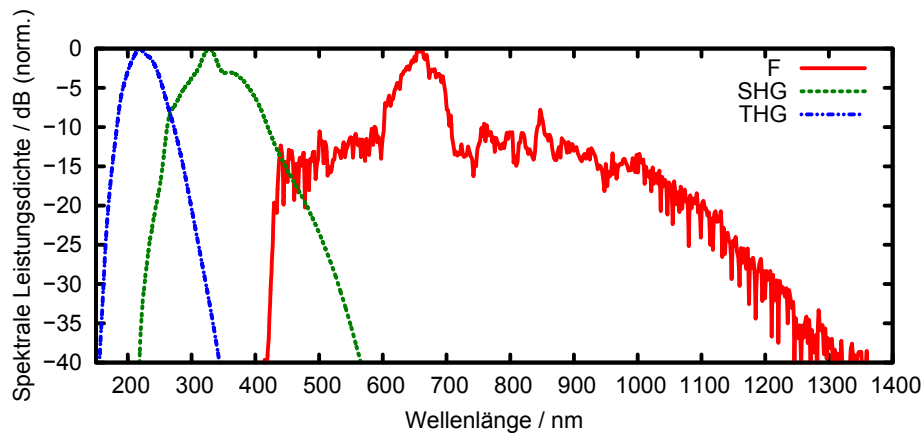


**Abbildung 5.6.:** Berechnete Phasenanpassungs-Kurve für die Summenfrequenz (SFG) des fundamentalen Spektrums (F) in einem 12 µm langem Typ-II-BBO-Kristall bei einer Pumpwellenlänge von 650 nm (Pumpe).

metry“ (2DSI) [Bir10]), konnten kürzlich Pulsauern von 3,7 fs gemessen werden [Cox12]. Die breitbandige Phasenanpassung von 500 nm bis in den IR-Bereich wurde mit einem 50 µm-langen Typ-II-BBO-Kristall bereitgestellt. Auf ähnliche Weise könnte auch dieser 1,2-Zyklus-Puls charakterisiert werden. Eine Phasenanpassungskurve für einen 12 µm Typ-II-BBO-Kristall ist in Abb. 5.6 zu sehen. Sie reicht von knapp 450 nm bis in den IR-Bereich. Zwar ist die Summenfrequenz spektral teilweise mit dem fundamentalen Spektrum überlagert, aber aufgrund der nichtkollinearen Geometrie sollte prinzipiell eine räumliche Separation der Signale möglich sein.

Prinzipiell könnte auch die Pulscharakterisierungsmethode FROG [Bal99, DeL94] verwendet werden. Neben dem üblichen nichtlinearen Prozess der Erzeugung der Zweiten-Harmonischen (SHG), die für diese enorme Bandbreite mit einem 10 µm Typ-I-KDP-Kristall möglich wäre, ist FROG auch für nichtlineare Prozesse dritter Ordnung, wie z.B. die Erzeugung der dritten-Harmonischen (THG), anwendbar. Die THG könnte sehr breitbandig mit der vorhandenen Pulsenergie an Oberflächen [Tsa95, Tsa96] oder an dünnen Schichten (z.B. Ti:O<sub>2</sub>-Schichten [Das11]) erzeugt werden und würde bis in den UV-Bereich (um 150 nm, siehe Abb. 5.7) reichen, was eine Detektion in einer Vakuumkammer erforderlich macht.

Um diesen Umstand zu umgehen, wäre die Methode der „transient grating based frequency resolved optical gating“ (TG-FROG) oder auch „self-diffraction“-FROG [Sch08, Tre00] besser geeignet, denn hier liegt das FROG-Signal im Spektralbereich des fundamentalen Spektrums und könnte aufgrund der nichtkollinearen Geometrie auch von diesem separiert werden, was die Detektion des Signals deutlich vereinfachen würde. Ein weiterer Vorteil des TG-FROGs ist die breitbandige Phasenan-



**Abbildung 5.7.:** Darstellung des Fundamentalen Spektrums (F) und die theoretische Lage der perfekt phasenangepassten SHG und THG des Spektrums.

passung des nichtlinearen Prozesses über den gesamten Spektralbereich. Allerdings muss bei dieser Methode der Strahl in drei Pulsreplika aufgeteilt werden, so dass Pulsenergien im Bereich von etwa  $100 \mu\text{J}$  nötig sind.

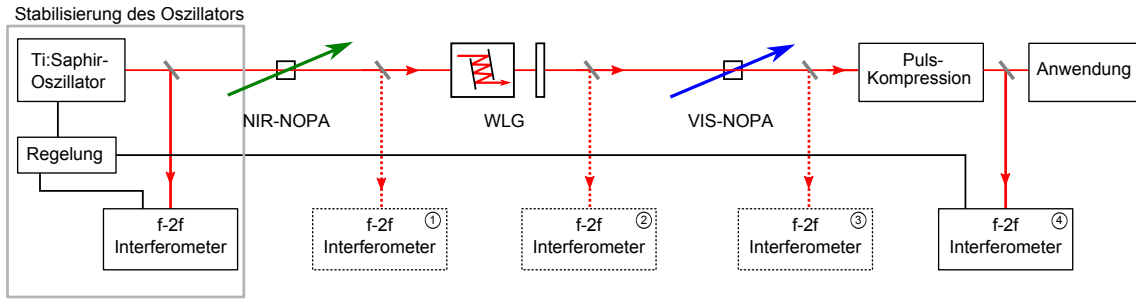
Da zur Pulskompression des in dieser Arbeit verstärkten Spektrums ein Pulsformer aufgebaut wird, wäre die MIIPS-Methode [Loz04, Xu06] ebenfalls zur Charakterisierung denkbar. Allerdings findet in dieser Methode die Frequenzkonversion kollinear statt. Somit ist die SHG als nichtlineares Element ungeeignet, da das MIIPS-Signal nur sehr schlecht vom fundamentalen Spektrum separiert werden kann (z.B. über die Polarisation). Daher könnte die Erzeugung der dritten-Harmonischen (siehe z.B. THG-MIIPS [Har07]) an einer dünnen  $\text{Ti:O}_2$ -Schicht (oder eine Oberflächen THG) als nichtlineares Element dienen.

Es könnten also prinzipiell alle drei Methoden geeignet sein den 1,2-Zyklen-Puls mit dem überoktav-breiten Spektrum zu charakterisieren. Bei allen Methoden ist eine Separation des eigentlichen Signals vom Streulicht unbedingt sorgfältig durchzuführen. Dies gilt insbesondere für den MIIPS-Aufbau, da hier die verschiedenen Strahlen räumlich und beim SHG-MIIPS teilweise spektral überlagert sind.

### 5.3. Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase

Wie schon in den vorangegangenen Kapiteln besprochen, ist die Träger-Einhüllenden-Phase (CEP) für Einzyklen-Pulse ein wichtiger Parameter. Daher soll im Folgenden auf die Stabilisierung des Verstärkersystems bzgl. der CEP eingegangen werden.

Ausgangspunkt der CEP-Stabilisierung ist die Stabilisierung der Träger-Einhül-

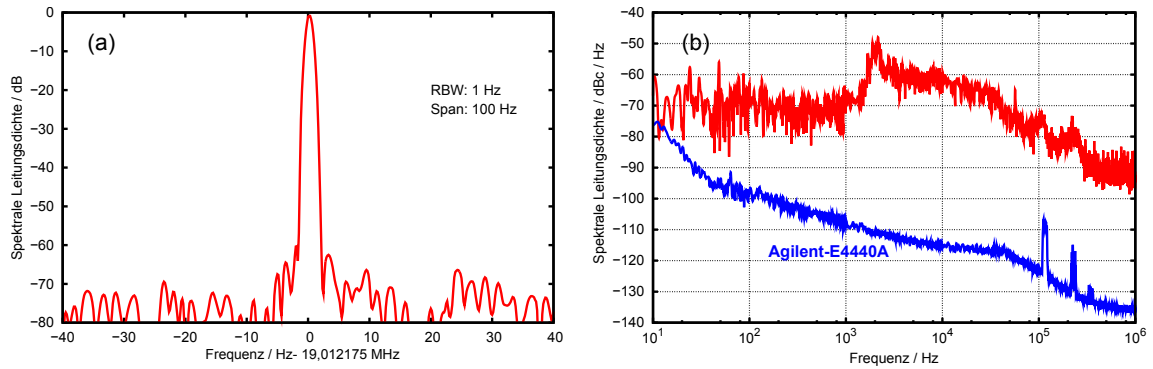


**Abbildung 5.8.:** Übersicht der CEP-Stabilisierung des OPCPA-Systems. Die Stabilisierung beginnt mit der Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Frequenz des Ti:Saphir-Oszillators. Die CEP sollte während der parametrischen Verstärkung und der Weißlichterzeugung erhalten bleiben. Direkt vor der Anwendung sollte eine Messung der CEP durchzuführen, um eine Drift der CEP auszugleichen.

lenden-Frequenz  $f_{ce}$  des Ti:Saphir-Oszillators (siehe auch Abb. 5.8). Da das Spektrum des Oszillators schon die optische Oktave beinhaltet, können die spektralen Ränder durch einen geeigneten Filter (siehe Abschnitt 4.2) vom Zentrum des Spektrum separiert und für die Messung der Träger-Einhüllenden-Frequenz mittels eines „f-2f“-Interferometers (siehe z. B. [Rei99, Tel99]) genutzt werden. Die gemessene Träger-Einhüllende-Frequenz und das Signal der Pulswiederholrate des Oszillators, aus der die Referenzfrequenz für die Stabilisierung erzeugt wird, werden an eine Regelelektronik übergeben. Das aus der Regelungselektronik erzeugte Fehlersignal steuert einen akusto-optischen Modulator (AOM), der im Pumpstrahl des Oszillators steht, und somit die Pumpleistung mit dem Fehlersignal moduliert, um die Nichtlinearität im Resonator und somit die Träger-Einhüllende-Phase der Oszillatortpulse auf eine Referenz zu regeln. Üblicherweise ist die Referenzfrequenz für die Stabilisierung ein Teiler  $N$  der Pulswiederholrate; hier ist  $N=4$ . Mit solch einem Referenzsignal ist jeder  $N$ -te bzw. vierte Puls aus dem Oszillatortpulszug identisch<sup>1</sup>.

Abb. 5.9 (a) zeigt eine Messung der stabilisierten Träger-Einhüllenden-Frequenz bei einer Auflösung von 1 Hz. Sie hat ein Signal zu Rausch Verhältnis von 60 dB. In Abb. 5.9 (b) ist die dazugehörige spektrale Rauschleistungsdichte (rot) zusammen mit der Rauschleistungsdichte des RF-Spektrumanalysators (Agilent-E4440A, blau) dargestellt. Die integrierte Rauschleistungsdichte (siehe z.B. [Rau06, Rau10]) von 5 Hz bis 1 MHz ergibt einen Phasen-Fehler von  $\sigma_\varphi = 225$  mrad. Aus diesem Wert kann eine zeitliche Verschiebung  $\Delta\tau$  der Träger-Oszillation (die Zentralwellenlänge ist

<sup>1</sup>Ist es erforderlich, dass jeder Puls dieselbe absolute Phase besitzt, könnte die Träger-Einhüllende-Frequenz des Oszillators mit einem modifiziertem Interferometer auch auf Null stabilisiert werden [Jon00, Rau09].



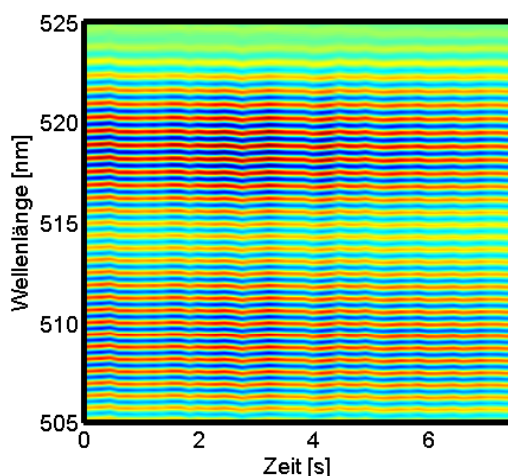
**Abbildung 5.9.:** (a) Messung der stabilisierten Träger-Einhüllenden-Frequenz des Oszillators. (b) Spektrale Rauschleistungsdichte der Träger-Einhüllenden-Frequenz aus der sich der integriert Phasenfehler berechnen lässt:  $\sigma_\varphi = 225$  mrad.

$\lambda_c = 800$  nm) unter der Pulseinhüllenden von maximal  $\Delta\tau = \lambda_c / (2\pi c_0) \sigma_\varphi = \approx 100$  as berechnet werden.

Die Pulswiederholrate der Pumpulse für die parametrischen Verstärkerstufen wird genau so eingestellt, dass der Wert durch  $N$  (bzw.  $N=4$ ) teilbar ist, damit nur Oszillatorpulse verstärkt werden, die eine gleiche CEP aufweisen. Somit hat der verstärkte Pulszug nach dem NIR-NOPA eine Träger-Einhüllende-Frequenz von  $f_{ce} = 0$ .

Die folgenden parametrischen Verstärker und die Weißlichterzeugung sollten die Stabilisierung der CEP erhalten [Bal02, Ros02]. Trotzdem können Instabilitäten des Systems zu einer Drift der CEP führen. Daher scheint es sinnvoll, einmalig die Stabilität der CEP nach jeder Stufe zu überprüfen.

Bisher wurde die Stabilität der CEP nach der ersten Verstärkerstufe mit einem zusätzlichen „f-2f“-Interferometer nachgewiesen (siehe Position 1 in Abb. 5.8). Dafür wurde das verstärkte Signalspektrum zunächst in ein Saphir-Plättchen fokussiert, um die nötige Bandbreite für die f-2f-Messung auf eine Oktave zu erweitern. Anschließend wurde die Interferenz der in einem BBO erzeugten zweiten Harmonischen mit der fundamentalen Wellenlänge mittels eines hoch auflösenden Spektrometers detektiert. Da die Pulse nicht exakt zeitlich übereinander propagieren, ist das Spektrum moduliert. Eine zeitliche Drift der CEP führt zu einer Phasenverschiebung der Spektralen Modulation. Variiert die CEP innerhalb der Integrationszeit von 50 ms des Spektrometers bis  $\pi$ , wird keine Modulation mehr sichtbar sein. Daher ist die Messung einer sichtbaren und über die Zeit stabilen Modulation im Spektrum ein Nachweis einer stabilisierten CEP. Eine solche Messung ist in Abb. 5.10 zu sehen.



**Abbildung 5.10.:** (a) Interferenzspektrum einer Messung mit einem f-2f-Interferometer zum Nachweis einer stabilisierten CEP nach der ersten Verstärkerstufe. Die Integrationszeit des Spektrometers: 50 ms, Pulswiederholrate: 200 kHz.

Mit einer Integrationszeit des Spektrometers von 50 ms und einer Pulswiederholrate von 200 kHz wird die spektrale Interferenz somit von etwa 10.000 Pulsen integriert. Da die Modulation deutlich über Sekunden erhalten bleibt, ist dies ein Nachweis für eine stabilisierte CEP.

Prinzipiell sollte es möglich sein, auch das Superkontinuums-Spektrum des Verstärkers (siehe Abb. 5.8) für diese CEP-Messung zu nutzen (siehe Position 2 in Abb. 5.8). Eine derartige Messung würde auch zeigen, inwieweit sich die Bewegung des BaF<sub>2</sub>-Plättchens auf die CEP-Stabilität auswirkt.

Schultze et al. [Sch10] haben an diesem System bereits erfolgreich gezeigt, dass die Stabilität der CEP auch nach einer zweiten parametrischen Verstärkerstufe erhalten bleibt. Dort wurde der zweite Verstärker mit einer Pumpwellenlänge von 515 nm betrieben und nicht wie hier mit 343 nm. Die Messung ergab einen Phasenfehler von  $\sigma_{rms} = 0,2$  rad über 10 s [Sch10]. Bei diesem System ist für eine f-2f-Messung nach der zweiten Verstärkerstufe (siehe Position 3 in Abb. 5.8) aufgrund der vorherigen Superkontinuumserzeugung die nötige spektrale Bandbreite bereits vorhanden. Interessant an diesem Spektrum ist, dass der sichtbare Spektralanteil nach dem VIS-NOPA verstärkt wurde, der infrarote Teil allerdings unverstärkt diese Stufe passiert, so dass sich eventuelle Instabilitäten der zweiten Stufe auf die Messung der CEP auswirken könnten.

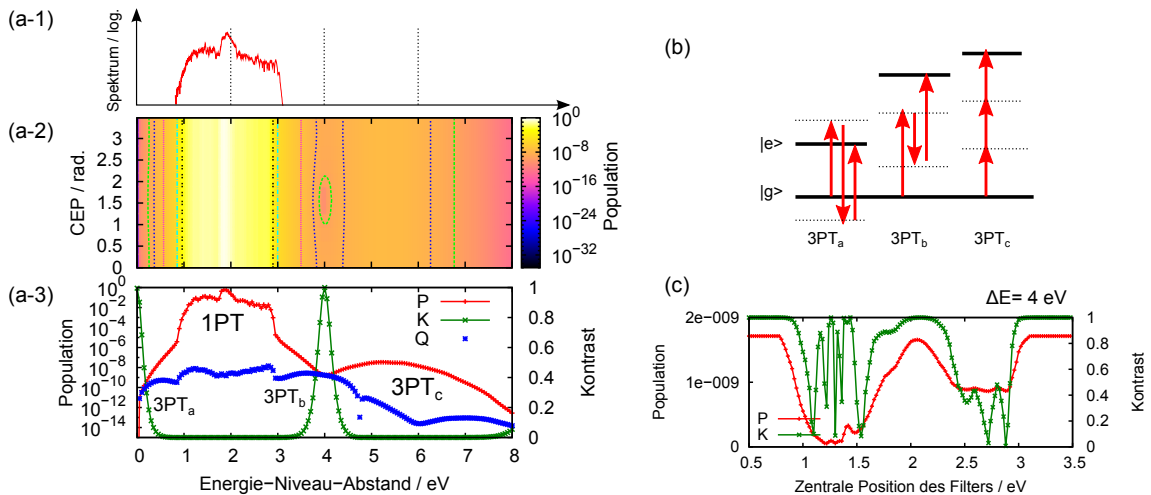
Für eine Anwendungen, die sensitiv auf die CEP des Pulses ist, sollte kurz vor dem eigentlichen Experiment mit Hilfe eines f2f-Interferometers eine Drift der CEP

gemessen werden (Position 4 in Abb. 5.8), um diese mittels einer langsamen Regelung an den Oszillator zurückzukoppeln (siehe z.B. [Rau06]).

## 5.4. Kohärente Kontrolle

Wie in Kapitel 3 diskutiert, ist die Träger-Einhüllende-Phase (CEP) bei Pulsen mit nur wenigen optischen Zyklen auch ein Kontrollparameter in der kohärenten Wechselwirkung mit einem atomaren System. In diesem Abschnitt wird überprüft, inwieweit das in dieser Arbeit experimentell generierte und verstärkte Spektrum eines 1,2-Zyklen-Pulses genutzt werden kann, um eine CEP-abhängige Zustandsbesetzung in einem Zwei-Niveau-System nachweisen zu können.

Dafür wurde dieselbe Simulation, wie sie schon in Kapitel 3 diskutiert wurde, nun auch für das gemessene Spektrum (siehe Abb. 4.21) durchgeführt. Abb. 5.11 (a-1) zeigt das Spektrum des fourierlimitierten Pulses, (a-2) zeigt die Population des oberen Niveaus in Abhängigkeit des Energie-Niveau-Abstands  $\Delta E$  und der CEP. Bei einem Niveau-Abstand von 4 eV ist eine Inselstruktur zu erkennen, die auf eine CEP-abhängige Zustandsbesetzung hinweist. Dies wird ganz deutlich in Abb. 5.11



**Abbildung 5.11.:** CEP-abhängige Zustandsbesetzung eines Zwei-Niveau-Systems nach der Anregung mit einem einzelnen 1,2-Zyklen-Puls. (a-1) zeigt das Spektrum des Pulses, (a-2) die Population des oberen Niveaus über den Energie-Niveau-Abstand  $\Delta E$  in Abhängigkeit der CEP, (a-3) stellt die mittlere Population  $P$ , den Kontrast  $K$  und die Qualität aus der Darstellung in (a-2) dar. Bei 4 eV hat der Kontrast ein Maximum, da dort verschiedene Quantenpfade interferieren (siehe Text). (b) Darstellung der verschiedenen Drei-Photonen-Übergänge (3PT) aus (a-3). (c) Berechnung der Zustandsbesetzung  $\Delta E = 4$  eV nach der Anregung mit dem Pulses, über das ein Phasenfilter ( $\Delta\varphi(\omega) = \pi$ ) der breite 0,2 eV verfahren wird. Dargestellt ist die mittlere Population und der Kontrast über der Zentralposition des Filters.

(a-3). Hier sind die mittlere Population, der Kontrast und die Qualität (siehe Kapitel 2.2) über dem Niveau-Abstand dargestellt.

Ähnlich wie in der Simulation mit einem Supergauß-Spektrum (Abb. 3.9), zeigt die mittlere Population im Bereich des Spektrums (von etwa 1 eV–3 eV) die starken Ein-Photon-Übergänge (1PT). Zusätzlich sind auch wieder die Drei-Photonen-Übergänge  $3PT_a$ ,  $3PT_b$  und  $3PT_c$  zu erkennen (siehe Abb. 5.11 (b)). Der Kontrast zeigt ein Maximum bei einem Niveau-Abstand von 4 eV. Dies ist der Überlapp-Bereich der  $3PT_b$  und  $3PT_c$  Quantenpfade und entspricht somit dem im Kapitel 3 vorgestellten Quantenpfadinterferenzpunkt B.

Mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Konzept der Erzeugung eines 1,2-Zyklus-Pulses könnte daher mittels der Wechselwirkung dieses Pulses mit einem geeigneten atomaren Zwei-Niveau-System ( $\Delta E \approx 4 \text{ eV}$ ) der experimentelle Nachweis einer CEP-abhängigen Zustandsbesetzung atomar gebundener Elektronen gelingen.

Ein solches System könnte z. B. der Übergang vom Grundzustand  $3^1s_0$  in den Zustand  $3^1p_1$  von Magnesium (Mg) darstellen. Abbildung 5.12 zeigt das Grotian-Diagramm von einigen Singulett-Zuständen von Magnesium. Der Energie-Niveau-Abstand von  $3^1s_0$  nach  $3^1p_1$  liegt bei 4,3 eV. Somit könnte die Population des oberen Niveaus über die Fluoreszenz bei 285 nm nachgewiesen werden.

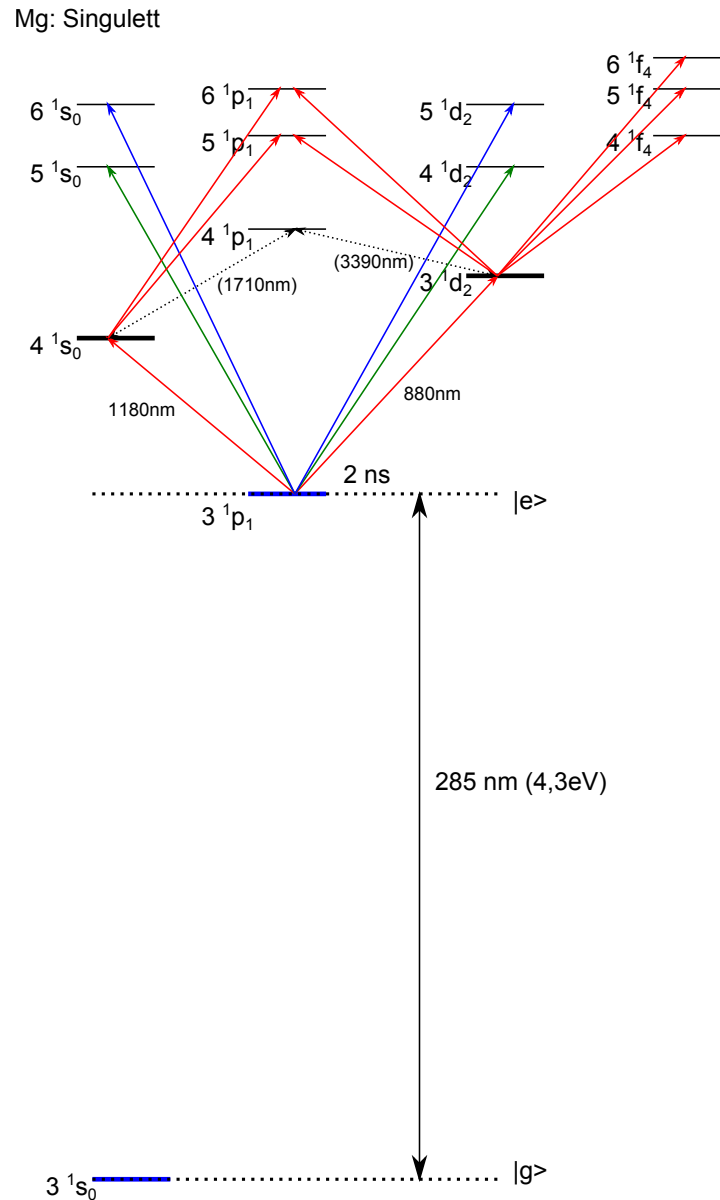
Allerdings ist das Spektrum des Pulses so breit, dass nach dem Drei-Photonen-Übergang in das  $3^1p_1$ -Niveau weiteren Energie-Niveaus nun mit Ein-Photonen-Übergängen bevölkert werden können. Dies ist in Abb. 5.12 durch die farbigen Pfeile angedeutet. Die so bevölkerten oberen Niveaus werden über Zerfallskanäle, die immer über den Übergang  $3^1p_1$  nach  $3^1s_0$  führen, wieder entvölkert. Somit wird das eigentlichen Messsignal mit diesem parasitären Prozesse vermischt. Deshalb stellt dieser Übergang kein abgeschlossenes Zwei-Niveau-System dar. Inwieweit dadurch die Messung der CEP-abhängigen Population des Niveaus  $3^1p_1$  beeinflusst wird, kann durch eine weitere Simulation, welche die relevanten darüberliegenden Niveaus berücksichtigt, abgeschätzt werden.

Zudem besteht die Möglichkeit diese Quantenpfadinterferenz, wie in Kapitel 3 vorgeschlagen, mit einem Phasenfiter zu untersuchen, da für die Pulskompression des 1,2-Zyklus-Pulses ein passender Pulsformer aufgebaut wird. Das berechnete Ergebnis ist in Abb. 5.11 (c) dargestellt und zeigt die mittlere Population und den Kontrast über der Zentralposition des Phasenfilters (die Bandbreite des Filters entspricht 0,2 eV). Da die mittlere Population wieder ein Maximum erreicht, wenn die Zentralfrequenz des Spektrums gefiltert wird, ist dies ein eindeutiger Hinweis



darauf, dass die Quantenpfadinterferenz hauptsächlich über die Randbereiche des Spektrums getrieben wird.

Somit eröffnet die Kombination des aufgebauten Verstärkersystems mit den theoretischen Vorhersagen der Wechselwirkung einen neuen Zugang für spektroskopische Untersuchungen im Bereich der „phase sensitiv nonlinear optics“ [Sch03b].



**Abbildung 5.12.:** Grotrian Diagramm des neutralen Magnesiumatoms im Singulett-Zustand (nach <http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD>). Das Zwei-Niveau-System könnte durch den Übergang  $3^1s_0$  nach  $3^1p_1$  repräsentiert werden.



# Zusammenfassung

Im Mittelpunkt dieser Arbeit steht die Entwicklung und der Aufbau eines optisch parametrischen Verstärkers für die Erzeugung von Einzyklen-Pulsen im sichtbaren Spektralbereich. Durch die Hintereinanderreihung zweier verschiedener Verstärkerstufen ist es möglich, die Verstärkungsbandbreite nicht-kollinear optisch parametrischer Verstärker (NOPA) weiter zu erhöhen. Diese „serielle“ Synthese zweier Verstärkungsbereiche führt zu einem Spektrum, das eine fourierlimitierte Pulsdauer von unter 3 fs unterstützt und bei einer Zentralwellenlänge im sichtbaren Spektralbereich zu einem Einzyklen-Puls führen kann.

Der optisch parametrische Verstärker in dieser Arbeit besteht aus einer ersten NOPA-Stufe, die mit 515 nm gepumpt wird und somit die nahinfraroten Spektralanteile eines breitbandigen Titan-Saphir-Seeds verstärkt, und einer zweiten NOPA-Stufe, die mit 343 nm gepumpt wird und den sichtbaren Spektralbereich eines Superkontinuum-Spektrums verstärkt. Zwischen diesen beiden Stufen wird das Signal des ersten NOPAs als Seed für eine Superkontinuums-Erzeugung in einem Festkörper genutzt, um das Spektrum in den sichtbaren Spektralbereich zu erweitern.

Das somit generierte Spektrum reicht von 430 nm bis 1300 nm und weist bei einer Pulswiederholrate von 200 kHz eine Pulsenergie von 1  $\mu$ J auf. Ein solches Spektrum unterstützt eine fourierlimitierte Pulsdauer von 2,5 fs, was bei einer Zentralwellenlänge von 650 nm einem 1,2-Zyklen-Puls entspricht.

Ein großer Vorteil dieses Systems gegenüber anderen Pulssynthese-Konzepten, ist, dass die „serielle“ Synthese intrinsisch eine feste Phasenbeziehung der beiden Verstärkerbereiche aufweist, so dass auf eine aufwendige aktive Regelung eines zeitlichen Überlapps der beiden Pulse und auf eine Phasenregelung verzichtet werden kann. Außerdem wird in diesem Verstärker das Superkontinuum mit einem Seed-Puls erzeugt, der bereits schon eine Pulsdauer unter 20 fs besitzt, so dass die sonst bei einer Weißlicht-Erzeugung in einem Festkörper bekannte stark ausgeprägte Phasenmodulation im Bereich des Seedspektrums eher mäßig ausgeprägt ist und somit das

gesamte Superkontinuum-Spektrum für die Erzeugung eines einzelnen Pulses geeignet ist. Dies führt dazu, dass der Phasenverlauf über das gesamte Spektrum hinweg keine nicht komprimierbaren nichtlinearen Phasensprünge enthält. Eine vorläufige Pulskompression mit einem breitbandigen Spiegelpaar von 550 nm bis 1000 nm führt zu einer Pulsdauer von 4,6 fs (FL: 4 fs). Da sich in diesem Spektralbereich sowohl der Überlappbereich der beiden Verstärkerstufen als auch das Spektrum des Seeds für die Superkontinuums-Erzeugung befindet, bestätigt diese Messung, dass das in dieser Arbeit vorgestellte Verstärkerkonzept mit der seriellen Synthese zweier nicht-kollinear parametrischer Verstärkerstufen zur kohärenten Verstärkung eines 450 THz breiten Spektrums geeignet ist.

Für eine vollständige Dispersionskompensation wurde ein Pulsformer geplant, der mittels eines 640 Pixel LCDs die Phase des gesamten Spektrums manipulieren kann. Dieser wird in naher Zukunft zusammen mit einer breitbandigen Pulscharakterisierungsmethode aufgebaut, um schließlich einen Puls nachzuweisen, dessen Trägeroszillation kaum mehr als eine Schwingung unter der Intensitäts-Pulseinhüllenden aufweist. Mit einer zusätzlichen Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase des Pulses ist dieses neuartige Verstärker-Konzept mit der seriellen Pulssynthese in Kombination mit einer integrierten Superkontinuumsstufe eine geeignete Einzyklen-Puls-Quelle für eine Vielfalt an spektroskopischen Studien im Bereich der extrem kurzen Pulsdauern im sichtbaren Spektralbereich.

So könnten z.B. breitbandige Pump-Abfrage Experimente an Atomen oder Molekülen durchgeführt werden. Das Spektrum des 1,2-Zyklus-Pulses selbst stellt einen über 400 THz breiten Frequenzkamm dar, der für metrologische Anwendungen genutzt werden könnte. Natürlich könnte solch ein Puls mit ausreichender Pulsenergie auch für die Erzeugung von hoher harmonischer Strahlung und Attosekunden-Pulsen genutzt werden. Da der cut-off-Bereich des HHG-Spektrums mit der Zentralwellenlänge des Pumpimpulses skaliert, wird der cut-off zwar nicht so weit in den XUV-Bereich reichen wie für Pumpimpulse im IR-Bereich, allerdings dafür die niedrigen Harmonischen weitaus effizienter erzeugen. Dies könnte für Anwendungen im Bereich der XUV-Spektroskopie und Metrologie in diesem Spektralbereich von Vorteil sein.

Aber auch bei moderaten Pulsspitzenintensitäten, könnten CEP-abhängige Effekte beobachtet werden, z.B. bei der Anregung von atomaren oder molekularen Übergängen. Diesbezüglich wurde in dieser Arbeit die Wechselwirkung eines Einzyklen-Pulses in einem atomaren Zwei-Niveau-System theoretisch mittels der Blochgleichungen

---

chungen untersucht. Dabei wurde darauf geachtet, dass in den Berechnungen die „rotating wave approximation“ (RWA) nicht verwendet wurde, da diese Näherung nur für Pulse mit vielen optischen Zyklen angewendet werden darf. Es wurde gezeigt, dass die Populationswahrscheinlichkeit der Zustände von der Träger-Einhüllenden-Phase (CEP) des Pulses abhängt und somit einen Kontrollparameter für die kohärente Wechselwirkung darstellt. Eine physikalische Erklärung dieses Effekts ist die Interferenz verschiedener Quantenpfade, die zur Population des Zustands beitragen. Daher wurde die Interferenz verschiedener Quantenpfade, die innerhalb eines 1,5-oktavenbreiten Spektrum relevant sind, bzgl. der Stärke des Effekts diskutiert. Bei dieser Berechnung wurden zunächst nur die Randbereiche des Spektrums berücksichtigt. Die Wechselwirkung mit dem vollständigen Spektrum führt zu einer deutlich ausgeprägten Quantenpfadinterferenz, die aufgrund der Voruntersuchungen vollständig identifiziert werden konnte.

Es wurde gezeigt, dass die Verbindung von dem in dieser Arbeit experimentell entwickelten Verstärkersystem für Einzyklen-Pulse mit den theoretischen Überlegungen einen experimentellen Zugang zu Untersuchung von Quantenpfadinterferenzen in einem atomaren System ermöglicht. Somit könnte mit diesem System z.B. zum ersten Mal ein experimenteller Nachweis der CEP-abhängigen Zustandsbesetzung über eine optische Anregung nachgewiesen werden.



## Simulationsparameter

Die 2D+1 Simulationen der parametrischen Verstärkung, die in Kapitel 2.2 und Kapitel 4 behandelt werden beruhen auf den in Lang et al. [Lan12] vorgestellten Gleichungen. Die genauen Simulationsdaten für die Rechnungen folgen nun hier.

### Parameter der in Abb. 2.9 auf Seite 20 dargestellten Simulation

Mit BBO (YZ-Ebene),  $d_{eff} = 2,02 \text{ pm/V}$ ,  $\theta_p = 24,49^\circ$ , Prozess: oo→e. Berücksichtigte Prozesse: „walk-off“, Abbau der Pumpwelle, mit und ohne parasitärer SHG. Seed: Supergauss(20) mit einem Spektrum von etwa 500 nm–1400 nm.

	Pumpe	Signal	Idler	Einheiten
Energie	6	0,001	0	μJ
Polarisation	e	o	o	μJ
Wellenlänge	515	716	1900	nm
Fourier-Limit	500	2.8	10	fs
GDD	0	50	0	fs <sup>2</sup>
GD	0	50	0	fs
Radius (1/e <sup>2</sup> )	0,04	0,05	0,05	mm
Shift x	0	0	0	mm
alpha	0	2.5	0	°

Nz	500	Länge des Kristalls	2 mm
Nt	1024	Zeitfenster	1,3 ps
Nx	256	räumliches Fenster	0,5 mm

### Simulationsparameter der in Abb. 2.11 auf Seite 22 dargestellten Simulation

Mit BBO (YZ-Ebene),  $d_{eff} = 2,02 \text{ pm/V}$ ,  $\theta_p = 37,2^\circ$ , Prozess:  $oo \rightarrow e$ . Berücksichtigte Prozesse: „walk-off“, Abbau der Pumpwelle, mit und ohne parasitärer SHG. Seed: Supergauss(20) mit einem Spektrum von etwa 300 nm–1100 nm.

	Pumpe	Signal	Idler	Einheiten
Energie	6	0,001	0	$\mu\text{J}$
Polarisation	e	o	o	$\mu\text{J}$
Wellenlänge	343	534	1900	nm
Fourier-Limit	500	2.3	10	fs
GDD	0	50	0	$\text{fs}^2$
GD	0	50	0	fs
Radius ( $1/e^2$ )	0,04	0,05	0,05	mm
Shift x	0	0	0	mm
alpha	0	4.51	0	$^\circ$

Nz	200	Länge des Kristalls	2 mm
Nt	4096	Zeitfenster	3,5 ps
Nx	2048	räumliches Fenster	1,6 mm

### Simulationsparameter der in Abb. 4.12 auf Seite 53 dargestellten Simulation

Mit BBO (YZ-Ebene),  $d_{eff} = 2,02 \text{ pm/V}$ ,  $\theta_p = 24,65^\circ$ , Prozess:  $oo \rightarrow e$ . Berücksichtigte Prozesse: „walk-off“, Abbau der Pumpwelle, parasitärer SHG. Seed: Seed-Spektrum in Abb. 4.11 auf Seite 52.

	Pumpe	Signal	Idler	Einheiten
Energie	10	0,0005	0	$\mu\text{J}$
Polarisation	e	o	o	$\mu\text{J}$
Wellenlänge	515	831	1900	nm
Fourier-Limit	1000	5.2	10	fs
GDD	0	0	0	$\text{fs}^2$
GD	0	150	300	fs
Radius ( $1/e^2$ )	0,09	0,03	0,05	mm
Shift x	0	0	0	mm
alpha	0	4.5	0	$^\circ$



---

Nz	1500	Länge des Kristalls	5 mm
Nt	4096	Zeitfenster	3,8 ps
Nx	2048	räumliches Fester	1,6 mm

### Simulationsparameter der Abb. 4.22 auf Seite 61

Mit BBO (YZ-Ebene),  $d_{eff} = 2,02 \text{ pm/V}$ ,  $\theta_p = 37,2^\circ$ , Prozess: oo→e. Berücksichtigte Prozesse: „walk-off“, Abbau der Pumpwelle, parasitärer SHG. Seed: Seed-Spektrum in Abb. 4.21 auf Seite 61 und die Dispersion von 3 mm BaF<sub>2</sub>.

	Pumpe	Signal	Idler	Einheiten
Energie	7	0,13	0	μJ
Polarisation	e	o	o	μJ
Wellenlänge	343	869	1900	nm
Fourier-Limit	900	4.6	10	fs
GDD	0	0	60	fs <sup>2</sup>
GD	0	50	0	fs
Radius (1/e <sup>2</sup> )	0,04	0,05	0,05	mm
Shift x	0	0	0	mm
alpha	0	4.51	0	°

Nz	200	Länge des Kristalls	2 mm
Nt	4096	Zeitfenster	3,5 ps
Nx	2048	räumliches Fester	1,6 mm



# Literaturverzeichnis

- [Ada89] R. Adair, L. Chase, and S. Payne. Nonlinear refractive index of optical crystals. *Physical Review B*, 39(5): 3337, 1989.
- [Ada08] S. Adachi, N. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and S. Watanabe. 5-fs, multi-mJ, CEP-locked parametric chirped-pulse amplifier pumped by a 450-nm source at 1 kHz. *Opt. Express*, 16(19): 14341–14352, Sept. 2008.
- [Agr01] G. P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, 2001.
- [Akt07] S. Akturk, C. D’Amico, M. Franco, A. Couairon, and A. Mysyrowicz. Pulse shortening, spatial mode cleaning, and intense terahertz generation by filamentation in xenon. *Physical Review A*, 76(6): 63819, 2007.
- [Alf06] R. R. Alfano. *The Supercontinuum Laser Source*. Springer, 2006.
- [Ant11] R. Antipenkov, A. Varanavičius, A. Zaukevičius, and A. P. Piskarskas. Femtosecond Yb:KGW MOPA driven broadband NOPA as a frontend for TW few-cycle pulse systems. *Opt. Express*, 19(4): 3519–3524, Feb. 2011.
- [Apo04] A. Apolonski, P. Domi, G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, K. T. Th. Udem, Ch. Lemell, J. Burgdörfer, T. Hänsch, and F. Krausz. Observation of Light-Phase-Sensitive Photoemission from a Metal. *Phys. Rev. Lett.*, 92: 073902–1, 2004.
- [Bal99] A. Baltuska, M. Pshenichnikov, and D. Wiersma. Second-harmonic generation frequency-resolved optical gating in the single-cycle regime. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 35(4): 459–478, apr 1999.
- [Bal02] A. Baltuska, T. Fuji, and T. Kobayashi. Controlling the Carrier-Envelope Phase of Ultrashort Light Pulses with Optical Parametric Amplifiers. 88: 133901, 2002.

- [Bal03] A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Hänsch, and F. Krausz. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421: 611, 2003.
- [Bau04] P. Baum, S. Lochbrunner, and E. Riedle. Generation of 7-fs ultraviolet pulses: achromatic phase matching and chirp management. *B* 79: 1027–1032, 2004.
- [Bin05] T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, F. Kartner, and U. Morgner. Prism-based pulse shaper for octave spanning spectra. *IEEE J. Quantum Electron.*, 41(12): 1552–1557, Dec. 2005.
- [Bin06] T. Binhammer, E. Rittweger, U. Morgner, R. Ell, and F. Kartner. Spectral phase control and temporal superresolution toward the single-cycle pulse. *Opt. Lett.*, 31(10): 1552–1554, May 15 2006.
- [Bir10] J. R. Birge, H. M. Crespo, and F. X. Kärtner. Theory and design of two-dimensional spectral shearing interferometry for few-cycle pulse measurement. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(6): 1165–1173, Jun 2010.
- [Bla98] V. Blanchet, M. Bouchène, and B. Girard. Temporal coherent control in the photoionization of Cs: Theory and experiment. *J. Chem. Phys.*, 108: 4862, 1998.
- [Boy92] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 1992.
- [Bra97] T. Brabec and F. Krausz. Nonlinear Optical Pulse Propagation in the Single-Cycle Regime. *Phys. Rev. Lett.*, 78: 3282–3285, Apr 1997.
- [Bra00] B. Bransden and C. Joachain. *Quantum mechanics*. Prentice hall Essex, UK, 2000.
- [Bra09] M. Bradler, P. Baum, and E. Riedle. Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- $\mu$ J pump pulses. *App. Phys. B*, 97(3): 561–574, Nov. 2009.
- [Bro99] A. Brodeur and S. L. Chin. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(4): 637–650, Apr 1999.

- [Bro11] J. Bromage, J. Rothhardt, S. Hädrich, C. Dorrer, C. Jocher, S. Demmler, J. Limpert, A. Tünnermann, and J. D. Zuegel. Analysis and suppression of parasitic processes in noncollinear optical parametric amplifiers. *Opt. Express*, 19(18): 16797–16808, Aug 2011.
- [Cal09] A.-L. Calendron, K. Wentsch, J. Meier, and M. J. Lederer. High Power and High Energy Yb:KYW Regenerative Amplifier Using a Chirped Volume Bragg Grating. In *Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference*, page CFD2. Optical Society of America, 2009.
- [Cer97] G. Cerullo, M. Nisoli, and S. D. Silvestri. Generation of 11 fs pulses tunable across the visible by optical parametric amplification. *Appl. Phys. Lett.*, 71: 3616–3618, 1997.
- [Cer03] G. Cerullo and S. D. Silvestri. Ultrafast optical parametric amplifiers. *Rev. Sci. Instrum.*, 74: 1–18, 2003.
- [Cer11] G. Cerullo, A. Baltuska, O. D. Muecke, and C. Vozzi. Few-optical-cycle light pulses with passive carrier-envelope phase stabilization. *Laser Photonics Rev.*, 5(3): 323–351, May 2011.
- [Che02] S. Chelkowski and A. D. Bandrauk. Sensitivity of spatial photoelectron distributions to the absolute phase of an ultrashort intense laser pulse. *Phys. Rev. A*, 65: 061802, Feb 2002.
- [Chu11] L. Chuntanov, A. Fleischer, and Z. Amitay. Weak-field multiphoton femtosecond coherent control in the single-cycle regime. *Opt. Express*, 19(7): 6865–6882, Mar 2011.
- [Cor03] K. Corwin, N. Newbury, J. Dudley, S. Coen, S. Diddams, B. Washburn, K. Weber, and R. Windeler. Fundamental amplitude noise limitations to supercontinuum spectra generated in a microstructured fiber. *Applied Physics B*, 77: 467–469, 2003.
- [Cox12] J. Cox, W. Putnam, A. Sell, A. Leitenstorfer, and F. Kärtner. Pulse synthesis in the single-cycle regime from independent mode-locked lasers using attosecond-precision feedback. *Opt. Lett.*, 37(17): 3579–3581, 2012.
- [Dan96] R. Danielius, A. Piskarskas, P. DiTrapani, A. Andreoni, C. Solcia, and P. Foggi. Matching of group velocities by spatial walk-off in collinear three-wave interaction with tilted pulses. *Opt. Lett.*, 21(13): 973–975, Jul. 1 1996.

- [Das11] S. K. Das, C. Schwanke, A. Pfuch, W. Seeber, M. Bock, G. Steinmeyer, T. Elsaesser, and R. Grunwald. Highly efficient THG in TiO<sub>2</sub> nanolayers for third-order pulse characterization. *Opt. Express*, 19(18): 16985–16995, Aug 2011.
- [Dcvac06] N. Došlić. Generalization of the Rabi population inversion dynamics in the sub-one-cycle pulse limit. *Phys. Rev. A*, 74: 013402, Jul 2006.
- [DeL94] K. W. DeLong, R. Trebino, J. Hunter, and W. E. White. Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(11): 2206–2215, Nov 1994.
- [Dem07] Demtröder. *Laserspektroskopie*. Springer, 5. auflage edition, 2007.
- [Dem11] S. Demmler, J. Rothhardt, A. M. Heidt, A. Hartung, E. G. Rohwer, H. Bartelt, J. Limpert, and A. Tünnermann. Generation of high quality, 1.3 cycle pulses by active phase control of an octave spanning supercontinuum. *Opt. Express*, 19(21): 20151–20158, Oct 2011.
- [Dem12] S. Demmler, J. Rothhardt, S. Hädrich, J. Bromage, J. Limpert, and A. Tünnermann. Control of nonlinear spectral phase induced by ultra-broadband optical parametric amplification. *Opt. Lett.*, 37(19): 3933–3935, Oct 2012.
- [DeS92] R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele. Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP. *Opt. Lett.*, 17(1): 28–30, Jan. 1 1992.
- [Dmi99] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*. Springer, 1999.
- [Dud01] F. S. Dudovich, Dayan. Transform-Limited Pulses Are Not Optimal for Resonant Multiphoton Transitions. *PRL*, 86: 47, 2001.
- [Emo10] M. Emons, A. Steinmann, T. Binhammer, G. Palmer, M. Schultze, and U. Morgner. Sub-10-fs pulses from a MHz-NOPA with pulse energies of 0,4 μJ. *Opt. Express*, 18(2): 1191–1196, Jan. 18 2010.
- [Fel01] D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, and S. S. Vianna. Accumulative effects in temporal coherent control. *Phys. Rev. A: At. Mol. Opt. Phys.*, 64(6): 063413, 2001.

- [Fel03] D. Felinto, C. Bosco, L. Acioli, and S. Vianna. Coherent accumulation in two-level atoms excited by a train of ultrashort pulses. *Opt. Commun.*, 215(1): 69–73, 2003.
- [Fly75] Flytzanis. *Quantum Electronics, Vol. 1 Nonlinear Optics Part A*. Academic Press, 1975.
- [For04] T. M. Fortier, P. A. Roos, D. J. Jones, S. T. Cundiff, R. D. R. Bhat, and J. E. Sipe. Carrier-envelope phase-controlled quantum interference of injected photocurrents in semiconductors. *Physical Review Letters*, 92(14): 147403, Apr. 2004.
- [Gal98] G. M. Gale, M. Cavallari, and F. Hache. Femtosecond visible optical parametric oscillator. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15(2): 702–714, Feb 1998.
- [Gou08] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. Aquila, E. Gullikson, D. Attwood, R. Kienberger, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 320(5883): 1614–1617, 2008.
- [Gu09] X. Gu, G. Marcus, Y. Deng, T. Metzger, C. Teisset, N. Ishii, T. Fuji, A. Baltuska, R. Butkus, V. Pervak, H. Ishizuki, T. Taira, T. Kobayashi, R. Kienberger, and F. Krausz. Generation of carrier-envelope-phase-stable 2-cycle 740- $\mu$ J pulses at 2.1- $\mu$ m carrier wavelength. *Opt. Express*, 17(1): 62–69, Jan 2009.
- [Har07] D. A. Harris, J. C. Shane, V. V. Lozovoy, and M. Dantus. Automated phase characterization and adaptive pulse compression using multiphoton intrapulse interference phase scan in air. *Opt. Express*, 15(4): 1932–1938, Feb 2007.
- [Har12] A. Harth, M. Schultze, T. Lang, T. Binhammer, S. Rausch, and U. Morgner. Two-color pumped OPCPA system emitting spectra spanning 1.5 octaves from VIS to NIR. *Opt. Express*, 20(3): 3076–3081, Jan 2012.
- [Heb95] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, and K. Köhler. Ultrafast Coherent Control and Destruction of Excitons in Quantum Wells. *Phys. Rev. Lett.*, 75: 2598–2601, Sep 1995.
- [Hei11] A. M. Heidt, A. Hartung, G. W. Bosman, P. Krok, E. G. Rohwer, H. Schworer, and H. Bartelt. Coherent octave spanning near-infrared and visible supercontinuum generation in all-normal dispersion photonic crystal fibers. *Opt. Express*, 19(4): 3775–3787, Feb 2011.

- [Her10] D. Herrmann, C. Homann, R. Tautz, M. Scharrer, P. S. J. Russell, F. Krausz, L. Veisz, and E. Riedle. Approaching the full octave: Non-collinear optical parametric chirped pulse amplification with two-color pumping. *Opt. Express*, 18(18): 18752–18762, Aug. 30 2010.
- [Hil04] K. M. Hilligsoe, T. Andersen, H. Paulsen, C. Nielsen, K. Molmer, S. Keiding, R. Kristiansen, K. Hansen, and J. Larsen. Supercontinuum generation in a photonic crystal fiber with two zero dispersion wavelengths. *Opt. Express*, 12(6): 1045–1054, Mar 2004.
- [Hom08] C. Homann, C. Schriever, P. Baum, and E. Riedle. Octave wide tunable UV-pumped NOPA: pulses down to 20 fs at 0.5 MHz repetition rate. *Opt. Express*, 16(8): 5746–5756, Apr. 14 2008.
- [Hoo11] L. E. Hooper, P. J. Mosley, A. C. Muir, W. J. Wadsworth, and J. C. Knight. Coherent supercontinuum generation in photonic crystal fiber with all-normal group velocity dispersion. *Opt. Express*, 19(6): 4902–4907, Mar 2011.
- [Hua11] S.-W. Huang, G. Cirimi, J. Moses, K.-H. Hong, S. Bhardwaj, J. R. Birge, L.-J. Chen, E. Li, B. J. Eggleton, G. Cerullo, and F. X. Kaertner. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics. *Nat. Photonics*, 5(8): 475–479, Aug. 2011.
- [Hug98] S. Hughes. Breakdown of the area theorem: Carrier-wave Rabi flopping of femtosecond optical pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 81(16): 3363–3366, Oct. 1998.
- [Iac98] C. Iaconis and I. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 23(10): 792–794, May 1998.
- [Iac99] C. Iaconis and I. Walmsley. Self-Referencing Spectral Interferometry for Measuring Ultrashort Optical Pulses. *IEEE J. Quantum Electron.*, 35: 501, 1999.
- [Jen06] Jenoptik. *SLM-640d Technical Documentation*, 2006.
- [Jha11] P. K. Jha, Y. V. Rostovtsev, H. Li, V. A. Sautenkov, and M. O. Scully. Experimental observation of carrier-envelope-phase effects by multicycle pulses. *Phys. Rev. A*, 83: 033404, Mar 2011.



- [Jir05] C. Jirauschek, L. Duan, O. D. Mucke, F. X. Kartner, M. Wegener, and U. Morgner. Carrier-envelope phase-sensitive inversion in two-level systems. *J. Opt. Soc. Am. B*, 22(10): 2065–2075, Oct. 2005.
- [Jon00] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff. Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis. *Science*, 288: 635–639, 2000.
- [Kär01] F. X. Kärtner, U. Morgner, R. Ell, T. Schibli, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi. Ultrabroadband double-chirped mirror pairs for generation of octave spectra. *B* 18(6): 882–885, Jun 2001.
- [Kra10] G. Krauss, S. Lohss, T. Hanke, A. Sell, S. Eggert, R. Huber, and A. Leitenstorfer. Synthesis of a single cycle of light with compact erbium-doped fibre technology. *Nat. Photonics*, 4(1): 33–36, Jan. 10 2010.
- [Lan12] T. Lang, A. Harth, J. Matyschok, T. Binhammer, M. Schultze, and U. Morgner. Impact of temporal, spatial and cascaded effects on the pulse formation in ultra-broadband parametric amplifiers. *accepted*, 2012.
- [Li10] H. Li, V. A. Sautenkov, Y. V. Rostovtsev, M. M. Kash, P. M. Anisimov, G. R. Welch, and M. O. Scully. Carrier-Envelope Phase Effect on Atomic Excitation by Few-Cycle rf Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 104: 103001, Mar 2010.
- [Loz04] V. V. Lozovoy, I. Pastirk, and M. Dantus. Multiphoton intrapulse interference. IV. Ultrashort laserpulse spectral phase characterization and compensation. *Opt. Lett.*, 29(7): 775–777, Apr 2004.
- [Man95] L. Mandel and E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1995.
- [Man12] C. Manzoni, S.-W. Huang, G. Cirimi, P. Farinello, J. Moses, F. X. Kärtner, and G. Cerullo. Coherent synthesis of ultra-broadband optical parametric amplifiers. *Opt. Lett.*, 37(11): 1880–1882, Jun 2012.
- [Mes98] D. Meshulach and Y. Silberberg. Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse. *Nature*, 396(6708): 239–242, 1998.

- [Met09] T. Metzger, A. Schwarz, C. Y. Teisset, D. Sutter, A. Killi, R. Kienberger, and F. Krausz. High-repetition-rate picosecond pump laser based on a Yb:YAG disk amplifier for optical parametric amplification. *Opt. Lett.*, 34(14): 2123–2125, Jul 2009.
- [Mon10] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel. A newcomer’s guide to ultrashort pulse shaping and characterization. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 43(10), May 28 2010.
- [Mor05] U. Morgner. *Nichtlineare Optik*. (Vorlesungsmanuskript, Universität Hannover, 2005).
- [Mor10] U. Morgner. Ultrafast optics: Single-cycle pulse generation. *Nat. Photonics*, 4(1): 14–15, Jan. 2010.
- [Muc04] O. D. Mucke, T. Tritschler, M. Wegener, U. Morgner, F. X. Kartner, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. Carrier-wave Rabi flopping: role of the carrier-envelope phase. *Opt. Lett.*, 29(18): 2160–2162, Sept. 2004.
- [Nak06a] T. Nakajima and S. Watanabe. Effects of the carrier-envelope phase in the multiphoton ionization regime. *Phys. Rev. Lett.*, 96(21): 213001, June 2006a.
- [Nak06b] T. Nakajima and S. Watanabe. Phase-dependent excitation and ionization in the multiphoton ionization regime. *Opt. Lett.*, 31(12): 1920–1922, June 2006b.
- [Pen10] D. Peng, B. Wu, P. Fu, B. Wang, J. Gong, and Z.-C. Yan. Sensitive frequency dependence of the carrier-envelope phase effect on bound-bound transitions: An interference perspective. *Phys. Rev. A*, 82: 053407, Nov 2010.
- [Per07] V. Pervak, F. Krausz, and A. Apolonski. Dispersion control over the ultraviolet-visible-near-infrared spectral range with HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>-chirped dielectric multilayers. *Opt. Lett.*, 32(9): 1183–1185, May 2007.
- [Prä04] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert. Phase control of a two-photon transition with shaped femtosecond laser-pulse sequences. *Phys. Rev. A*, 70: 063407, Dec 2004.
- [Ran10] S. C. Rand. *Nonlinear and Quantum optics using the density matrix*. Oxford, 2010.

- 
- [Rau06] J. Rauschenberger, T. Fuji, M. Hentschel, A.-J. Verhoef, T. Udem, C. Gohle, T. W. Hänsch, and F. Krausz. Carrier-envelope phase-stabilized amplifier system. *Laser Phys. Lett.*, 3: 37–42, 2006.
- [Rau08] S. Rausch, T. Binhammer, A. Harth, J. Kim, R. Ell, F. X. Kaertner, and U. Morgner. Controlled waveforms on the single-cycle scale from a femtosecond oscillator. *Opt. Express*, 16(13): 9739–9745, Jun. 23 2008.
- [Rau09] S. Rausch, T. Binhammer, A. Harth, E. Schulz, M. Siegel, and U. Morgner. Few-cycle oscillator pulse train with constant carrier-envelope phase and 65 as jitter. *Opt. Express*, 17(22): 20282–20290, Oct. 26 2009.
- [Rau10] S. Rausch. *Controlling the electric-field of few-cycle pulses on the cycle-scale*. PhD thesis, Leibniz Universität Hannover, 2010.
- [Rei99] J. Reichert, R. Holzwarth, T. Udem, and T. W. Hänsch. Measuring the frequency of light with mode-locked lasers. *Opt. Commun.*, 172: 59–68, 1999.
- [Ric92] S. Rice. New ideas for guiding the evolution of a quantum system. *Science*, 258(5081): 412–413, 1992.
- [Rie00] E. Riedle, M. Beutter, S. Lochbrunner, J. Piel, S. Schenkl, S. Spörlein, and W. Zinth. Generation of 10 to 50 fs pulses tunable through all of the visible and the NIR. *Appl. Phys. B*, B 71: 457–465, 2000.
- [Rie06] F. Riehle. *Frequency standards*. Wiley-Vch, 2006.
- [Ros02] I. N. Ross, P. Matousek, G. H. C. New, and K. Osvay. Analysis and optimization of optical parametric chirped pulse amplification. *J. Opt. Soc. Am. B*, 19(12): 2945–2956, Dec 2002.
- [Rot11] J. Rothhardt, S. Hädrich, H. Carstens, N. Herrick, S. Demmler, J. Limpert, and A. Tünnermann. 1 MHz repetition rate hollow fiber pulse compression to sub-100-fs duration at 100 W average power. *Opt. Lett.*, 36(23): 4605–4607, Dec 2011.
- [Rou07] V. Roudnev and B. D. Esry. General theory of carrier-envelope phase effects. *Phys. Rev. Lett.*, 99(22): 220406, Nov. 2007.
- [Sch90] F. Schwabl. *Quantenmechanik*. Springer, 1990.

- [Sch03b] T. Schibli, O. Kuzucu, J. Kim, E. Ippen, J. Fujimoto, F. Kärtner, V. Scheuer, and G. Angelow. Toward Singel-Cycle Laser Systems. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 9: 990, 2003b.
- [Sch03a] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. D. Silvestri, and O. Svelto. Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum. *Opt. Lett.*, 28: 1987–1989, 2003a.
- [Sch08] B. E. Schmidt, W. Unrau, A. Mirabal, S. Li, M. Krenz, L. Wöste, and T. Siebert. Poor man’s source for sub 7 fs: a simple route to ultrashort laser pulses and their full characterization. *Opt. Express*, 16(23): 18910–18921, Nov 2008.
- [Sch10] M. Schultze, T. Binhammer, G. Palmer, M. Emons, T. Lang, and U. Morgner. Multi- $\mu$ J, CEP-stabilized, two-cycle pulses from an OPCPA system with up to 500 kHz repetition rate. *Opt. Express*, 18(26): 27291–27297, Dec. 2010.
- [Sch12] M. Schultze. *Phasenstabiles OPCPA-System mit regenerativer Pumpquelle*. PhD thesis, Leibniz Universität Hannover, 2012.
- [Ser05] C. Serrat. Coherent control of ultrafast optical four-wave mixing with two-color  $\omega$ - $3\omega$  laser pulses. *Phys. Rev. A*, 72(2): 023808, 2005.
- [Sid09] A. M. Siddiqui, G. Cirimi, D. Brida, F. X. Kaertner, and G. Cerullo. Generation of  $< 7$  fs pulses at 800 nm from a blue-pumped optical parametric amplifier at degeneracy. *Opt. Lett.*, 34(22): 3592–3594, Nov. 2009.
- [Smi] A. Smith. SNLO: frei verfügbares Programm und Datenbank für Berechnungen in Bezug auf nicht-linearer Kristall und zur Simulation nichtlinearer Prozesse.
- [Ste09] D. S. Steingrube, E. Schulz, T. Binhammer, T. Vockerodt, U. Morgner, and M. Kovacev. Generation of high-order harmonics with ultra-short pulses from filamentation. *Opt. Express*, 17(18): 16177–16182, Aug 2009.
- [Sto08] M. Stowe, A. Peer, and J. Ye. Control of four-level quantum coherence via discrete spectral shaping of an optical frequency comb. *Phys. Rev. Lett.*, 100(20): 203001, 2008.

- [Str85] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Commun.*, 56: 219, 1985.
- [Sut03] R. L. Sutherland. *Handbook of Nonlinear Optics*. Marcel Dekker, 2003.
- [Tel99] H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. H. Sutter, and U. Keller. Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute frequency measurement and ultrashort pulse generation. *Appl. Phys. B*, B 69: 327–332, 1999.
- [Tre00] R. Trebino. *Frequency-resolved optical gating: the measurement of ultrashort laser pulses*. Springer, 2000.
- [Tsa95] T. Y. F. Tsang. Optical third-harmonic generation at interfaces. *Phys. Rev. A*, 52: 4116–4125, Nov 1995.
- [Tsa96] T. Tsang, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino. Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation. *Opt. Lett.*, 21(17): 1381–1383, Sep 1996.
- [Voz07] C. Vozzi, F. Calegari, E. Benedetti, S. Gasilov, G. Sansone, G. Cerullo, M. Nisoli, S. D. Silvestri, and S. Stagira. Millijoule-level phase-stabilized few-optical-cycle infrared parametric source. *Opt. Lett.*, 32(20): 2957–2959, Oct 2007.
- [Was04] B. Washburn and N. Newbury. Phase, timing, and amplitude noise on supercontinua generated in microstructure fiber. *Opt. Express*, 12(10): 2166–2175, May 2004.
- [Weg05] M. Wegener. *Extreme Nonlinear Optics*. Springer, 2005.
- [Wei00] A. M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Review of Scientific Instruments*, 71(5): 1929–1960, 2000.
- [Wir11] A. Wirth, M. Hassan, I. Grguraš, J. Gagnon, A. Moulet, T. Luu, S. Pabst, R. Santra, Z. Alahmed, A. Azzeer, et al. Synthesized light transients. *Science*, 334(6053): 195–200, 2011.
- [Wit05] S. Witte, R. T. Zinkstok, W. Hogervorst, and K. S. E. Eikema. Generation of few-cycle terawatt light pulses using optical parametric chirped pulse amplification. *Opt. Express*, 13: 4903–4908, 2005.

- [Wu07] Y. Wu and X. X. Yang. Carrier-envelope phase-dependent atomic coherence and quantum beats. *Phys. Rev. A*, 76(1): 013832, July 2007.
- [Xia07] K. Xia, Y. Niu, C. Li, and S. Gong. Absolute phase control of spectra effects in a two-level medium driven by two-color ultrashort laser pulses. *Phys. Lett. A*, 361(1): 173–177, 2007.
- [Xu06] B. Xu, Y. Coello, V. V. Lozovoy, D. A. Harris, and M. Dantus. Pulse shaping of octave spanning femtosecond laser pulses. *OPTICS EXPRESS*, 14(22): 10939–10944, OCT 30 2006.
- [Zha12] Z. Zhai, D. Peng, X. Zhao, F. Guo, Y. Yang, P. Fu, J. Chen, Z.-C. Yan, and B. Wang. Carrier-envelope-phase effect on laser-driven bound-bound transitions in the high-frequency region. *Phys. Rev. A*, 86: 043432, Oct 2012.
- [Zio95] R. W. Ziolkowski, J. M. Arnold, and D. M. Gogny. Ultrafast Pulse Interactions With 2-Level Atoms. *Phys. Rev. A*, 52(4): 3082–3094, Oct. 1995.

# Danksagung

In den letzten Jahren während meiner Promotionszeit hier in Hannover haben mich sehr viele Menschen beeinflusst und motiviert. Leider ist einem Menschen immer die Gegenwart am stärksten im Bewusstsein und daher werden in dieser Auflistung einige fehlen, die aber ganz sicher meinen Dank verdienen.

- Ich danke meinem Doktorvater Prof. Uwe Morgner. Von seinem Wissen und seinem Optimismus konnte ich immer profitieren. Ich bin sehr froh, dass ich in seiner Gruppe zu einer Wissenschaftlerin werden durfte.
- Ich danke Prof. Uwe Morgner, Prof. Luis Santos und Prof. Franz Kärtner, dass sie das Gutachten meiner Doktorarbeit übernehmen, und Prof. Manfred Lein für den Prüfungsvorsitz.
- Der theoretische Teil meiner Arbeit hat mir ebenso wie der experimentelle Teil sehr viel Freude bereitet und ich möchte daher auch Prof. Luis Santos von der ITP Hannover sehr für die lehrreichen Diskussionen danken.
- Ich danke dem Sekretariat, insbesondere Frau Hünitzsch, die immer den Durchblick hat und über alles Bescheid weiß. In diesem Zuge danke ich auch Herrn Witzlau stellvertretend für die gesamte Werkstatt, die immer sehr zügig meine kleinen Projekte bearbeitet hat, und auch Kai-Martin Knaak, da er für jede erdenkliche Elektronikfrage ansprechbar war.
- Unzählige Diskussionen über Physik habe ich u.a. mit Tino, Thomas, Marcel und Tamas geführt. Euch danke ich für eure Geduld und euren ebenso starken Wissensdurst und die Ausdauer in den Diskussionen.
- Ich danke meinen ehemaligen Diplomanden Niels Meiser und Fabian Katschmann (ehem. Elster) und besonders auch meinem Masterstudenten José Andrade, der sehr selbständig während des Verfassens dieser Arbeit das Experiment weitergeführt hat.

## DANKSAGUNG

---

- Ich danke Tino, Marcel, Moritz und Hauke, Olli, Jan und Thofan für ihren Humor und Ihr immer offenes Ohr für alle Fragen, Sorgen und ...
- Nun dürfen natürlich auch Andreas, Bernhard und Claudia in dieser Danksagung nicht fehlen. Ich danke Euch für das wirklich richtig nette Büroklima.
- Danke auch an alle unermüdlichen Korrekturleser, Ihr wart eine riesengroße Hilfe!
- Nun will ich auch ganz besonders meinen Eltern und meinen Großeltern für Ihren Zuspruch und Ihre Unterstützung während meiner gesamten Ausbildungszeit danken. Sie haben immer an mich geglaubt.



# Lebenslauf

**Name:** Anne Harth  
**E-Mail:** harth@iqo.uni-hannover.de  
**Geburtsdatum:** 08. 08. 1982  
**Geburtsort:** Frankfurt / Main  
**Staatsangehörigkeit:** deutsch  
**Familienstand:** ledig

## Schulische Ausbildung:

1989-1993	<b>Grundschule Nienhagen</b>	<b>Nienhagen</b>
1993-1995	<b>Orientierungsstufe Schulzentrum Burgstraße</b>	<b>Celle</b>
1995-2002	<b>Gymnasium Ernestinum Celle</b> Abitur	<b>Celle</b>

## Hochschulausbildung

Okt. 2002 -	<b>Leibniz Universität</b>	<b>Hannover</b>
Dez. 2007	Studium mit Abschluss Diplom in Physik (mit Auszeichnung)	
Okt. 2006 -	<b>Institut für Quantenoptik</b>	<b>Hannover</b>
Dez. 2007	Diplomarbeit in Physik in der Gruppe von Prof. Uwe Morgner: <i>Messung und Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase von Lasersystemen.</i>	

## Beruflicher Werdegang

2005 - 2007	<b>Leibniz Universität Hannover</b>	<b>Hannover</b>
	Studentische Wissenschaftliche Hilfskraft: Laser Zentrum Hannover (LZH), Institut für theoretische Physik (ITP), Institut für Quantenoptik (IQO)	

Seit **Institut für Quantenoptik und QUEST** **Hannover**  
Jan 2008 Wissenschaftlicher Mitarbeiter  
Promotion: *Parametrische Verstärkung von Einzyklen-Pulsen und deren  
kohärente Wechselwirkung mit einem Zwei-Niveau-System.*

# Publikationen

## Wissenschaftliche Veröffentlichungen

1. Tino Lang, Anne Harth, Jan Matyschok, Thomas Binhammer, Marcel Schultze, und Uwe Morgner: „Impact of temporal, spatial and cascaded effects on the pulse formation in ultra-broadband parametric amplifiers,“ *Optics Express*, Vol. 21, Issue 1, pp. 949-959 (2013)
2. Anne Harth, Marcel Schultze, Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, und Uwe Morgner: „Two-color pumped OPCPA system emitting spectra spanning 1.5 octaves from VIS to NIR,“ *Optics Express*, Vol. 20 Issue 3, pp. 3076-3081 (2012)
3. Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, Guido Palmer, Moritz Emons, Marcel Schultze, A. Harth, und Uwe Morgner: „High power ultra-widely tuneable femtosecond pulses from a non-collinear optical parametric oscillator (NOPO),“ *Optics Express*, Vol. 20 Issue 2, pp. 912-917 (2012)
4. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Emilia Schulz, Martin Siegel, und Uwe Morgner: „Few-cycle oscillator pulse train with constant carrier-envelope-phase and 65 as jitter,“ *Opt. Express* 17, 20282-20292 (2009)
5. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Franz X. Kaertner, und Uwe Morgner: „Few-cycle femtosecond field synthesizer,“ *Opt. Express* 16, pp. 17410-17419 (2008)
6. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Jungwon Kim, Richard Ell, Franz X. Kaertner, und Uwe Morgner: „Controlled waveforms on the single-cycle scale from a femtosecond oscillator,“ *Opt. Express* 16, pp. 9739-9745 (2008)

### Beiträge bei internationalen Konferenzen (invited)

1. Anne Harth, Marcel Schultze, Tino Lang, Stefan Rausch, Thomas Binhammer, und Uwe Morgner: „Two-color Pumped OPCPA System with  $\mu$ J Pulse Energy and a Spectral Bandwidth of 1.5 Octaves from VIS to NIR,“ High Intensity Lasers and High Field Phenomena (HILAS) 2012 paper: HT1C.5
2. Anne Harth, Mathias Hoffmann, Niels Meiser, Stefan Rausch, Thomas Binhammer, und Uwe Morgner: „Interaction of atoms and few cycle pulses in frequency and time domain“, SFB 407 network-meeting Les Houches, France, February 2009 ([http://www.ifraf.org/IMG/pdf/Harth\\_ppt2-r.pdf](http://www.ifraf.org/IMG/pdf/Harth_ppt2-r.pdf))

### Beiträge bei internationalen Konferenzen

1. Anne Harth, Marcel Schultze, Tino Lang, Thomas Binhammer, und Uwe Morgner: „Two color pumped OPCPA system delivering a 1.5 octave spanning coherent spectrum in the visible,“ Advanced Solid-State Photonics (ASSP) 2012 paper: AM4A.8
2. Anne Harth, Marcel Schultze, Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, und Uwe Morgner: „Spectra spanning over 1.5 Octaves from a Two-Color Pumped OPCPA System,“ CLEO: Science and Innovations (CLEO: S and I) 2012 paper: CTh1N.5
3. Anne Harth, Marcel Schultze, Tino Lang, Stefan Rausch, Thomas Binhammer, und Uwe Morgner: „High repetition rate two-color pumped OPCPA system with a spectral bandwidth of 1.5 octaves from VIS to NIR,“ Ultrafast Phenomena 2012 in Lausanne (THU\_PIII.8)
4. Susanta K. Das, M. Bock, R. Grunwald, B. Borchers, J. Hyyti, G. Steinmeyer, D. Ristau, Anne Harth, T. Vockerodt, T. Nagy, und U. Morgner: „First measurement of the non-instantaneous response time of a  $\chi^{(3)}$  nonlinear optical effect,“ Ultrafast Phenomena 2012 in Lausanne (TUE.4B.1)
5. Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, Guido Palmer, Moritz Emons, Marcel Schultze, Anne Harth, und Uwe Morgner: „Spectral high-speed sweeping of high power fs-pulses from a Non-collinear Optical Parametric Oscillator (NOPO),“ Ultrafast Phenomena 2012 in Lausanne (TUE.PII.4)

6. Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, Guido Palmer, Moritz Emons, Marcel Schultze, Anne Harth, and Uwe Morgner: „Rapidly Spectral Ramping of an Ultra-wide Tuneable Femtosecond Non-collinear Optical Parametric Oscillator (NOPO) with High Average Output Power,“ Advanced Solid-State Photonics (ASSP) 2012 paper: AT2A.2
7. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, and Uwe Morgner: „Self-Referenced Oscillator Pulse Train with Constant Carrier-Envelope-Offset Phase,“ International Conference on Ultrafast Phenomena (UP) 2010 paper: MB5
8. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, and Uwe Morgner: „Oscillator Pulse Train with Constant Carrier-Envelope-Offset Phase and 65 Attosecond CE Jitter,“ Advanced Solid-State Photonics (ASSP) 2010 paper: AWC2
9. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, and Uwe Morgner: „Octave-Spanning Ti:sapphire Laser Locked to Carrier-Envelope-Offset Frequency Zero,“ Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2010 paper: CWJ2
10. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Martin Siegel, and Uwe Morgner: „Ti:sapphire Frequency Comb with Octave-Spanning Spectrum for Spectroscopy and Few-Cycle Pulse Shaping,“ European Quantum Electronics Conference (EQEC) 2009 paper: EGP2
11. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Franz X. Kärtner, and Uwe Morgner: „Femtosecond Field Synthesizer,“ in Advanced Solid-State Photonics (ASSP) 2009 paper: WA5
12. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Niels Meiser, Franz X. Kärtner, and Uwe Morgner: „Few-Cycle Femtosecond Waveform Synthesizer,“ in Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2008 paper: CFA6

### **Buchveröffentlichung**

1. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, Franz X. Kärtner, and Uwe Morgner: „CEO-Phase Stabilized Few-Cycle Field Synthesizer,“ in ultrafast phenomena XVI, Springer series in chemical physics 92, 837-839 (2009)

### Beiträge bei nationalen Konferenzen

1. Anne Harth, Marcel Schultze, Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, und Uwe Morgner Morgner: „Zwei-farbig gepumptes OPCPA-System mit Spektren von 430 nm bis 1,3  $\mu\text{m}$ ,“ DPG-Tagung 2012 in Stuttgart (Mon, 10.30 AM Q 5.1)
2. Tino Lang, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, Guido Palmer, Moritz Emons, Marcel Schultze, Anne Harth, und Uwe Morgner: „Nichtkollinear-optisch-parametrischer Oszillator (NOPO) mit fs-Pulsen hoher mittlerer Ausgangsleistung und ultraweit durchstimmbaren Spektren,“ DPG-Tagung 2012 in Stuttgart (Mon, 11.00 AM Q 5.3)
3. Anne Harth, Marcel Schultze, Stefan Rausch, und Uwe Morgner: „Pulsformer für Pulsspektren mit 1,5 Oktaven von VIS bis NIR,“ DPG-Tagung 2011 in Dresden (Q 15.69 Mon 16:30 P1)
4. Fabian Elster, Anne Harth, Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Mathias Hoffmann, und Uwe Morgner: “Effects of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses on atomic bound states,“ DPG-Tagung 2010 (A 8.45 Tu 16:30 Lichthof)
5. Anne Harth, Daniel S. Steingrube, Thomas Binhammer, Fabian Elster, Luis Santos, und Uwe Morgner: „Abhängigkeit der Populationswahrscheinlichkeit eines atomaren Zwei-Niveau-Systems von der Träger-Einhüllenden-Phase eines fs-Laserpulses,“ DPG-Tagung 2010 in Hannover (A 13.7 We 15:45 F 107)
6. Anne Harth, Mathias Hoffmann, Niels Meiser, Stefan Rausch, Thomas Binhammer, und Uwe Morgner: „Messung der Träger-Einhüllenden-Phase von fs-Laserpulsen in Alkali-Atomen,“ DPG-Tagung 2009 in Hamburg (Q 29.24 Di 16:30 VMP 8 Foyer)
7. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth und Uwe Morgner: „Femtosekunden Feld-Synthesizer,“ DPG-Tagung 2009 in Hamburg (Q 55.41 Do 16:30 VMP 8 Foyer)
8. Anne Harth, Niels Meiser, Emilia Schulz, Thomas Binhammer, Stefan Rausch, Milutin Kovacev, und Uwe Morgner: “Messung und Stabilisierung der Träger-

- Einhüllenden-Phase von Laseroszillatoren und Verstärkersystemen,“ DPG-Tagung 2008 in Darmstadt (Q 26.2 Di 16:30 Poster C1)
9. Stefan Rausch, Thomas Binhammer, Anne Harth, und Uwe Morgner: „Femtosekunden Wellenform-Synthesizer,“ DPG-Tagung 2008 in Darmstadt (Q 49.7 Do 18:00 3H)
  10. Andy Steinmann, Anne Harth und Uwe Morgner „Erzeugung von sub 10 fs Pulsen mit einem MHz-NOPA,“ DPG-Tagung 2007 in Düsseldorf (Q 10.5 Mo 15:00 5J)