Hochrepetierende Erzeugung und Phasenkontrolle hoher optischer Harmonischer in Festkörpern

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades
des Doktors der Naturwissenschaften
(*Doctor rerum naturalium*)

vorgelegt von

Patrick Storz

an der

Universität Konstanz

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Sektion

Fachbereich Physik

Tag der mündlichen Prüfung: 26. Juli 2018

1. Referent: Prof. Dr. Alfred Leitenstorfer
2. Referent: Dr. Daniele Brida

Konstanzer Online-Publikations-System (KOPS)
URL: http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:bsz:352-2-1qdtn4ln1jpbu8

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis **5**

1 Einleitung **7**

2 Passiv phasenstarres Lasersystem auf Basis von Erbium-Fasertechnologie **11**
2.1 Erbium-Fasern als Verstärkungsmedium 12
2.2 Solitonisch modengekoppelter Er:Faser-Oszillator 14
2.3 Nichtlineare Er:Faser-Verstärker zur Erzeugung ultrakurzer Impulse . . . 17
2.4 Hoch nichtlineare Glasfasern zur gezielten Frequenzkonversion 18
2.5 Passive Stabilisierung und Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase . . . 21

3 Stabiler Hochleistungsverstärker basierend auf Yb:PCF **27**
3.1 Ytterbium-Fasern als Verstärkungsmedium 28
3.2 Erzeugung eines Eingangssignals mit variabler Repetitionsrate 29
3.3 Verstärkung zeitlich gestreckter Impulse 32
3.4 Zweistufiger Yb:Faser-Hochleistungsverstärker 35
3.5 Stabilisierung des Hochleistungsverstärkers 41
3.6 Variation der Repetitionsrate und Impulsenergien über 10 µJ 45

4 Ultrabreitbandiger optisch-parametrischer Verstärker **49**
4.1 Konzept zur parametrischen Verstärkung ultrabreitbandiger Impulse . . . 50
4.2 Aufbau des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers 52
4.3 Charakterisierung des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers 56
4.4 Passive Stabilität und Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase 60
4.5 Parametrische Verstärkung bei Variation der Repetitionsrate 64

5 Erzeugung optischer Harmonischer in Festkörpern bei hoher Repetitionsrate **69**
5.1 Theoretische Beschreibung der Erzeugung optischer Harmonischer 70
5.2 Erzeugung und Detektion Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich 72
5.3 Detektion optischer Harmonischer bei Wellenlängen kürzer als 200 nm . . 75
5.4 Kontrolle optischer Harmonischer durch die Träger-Einhüllenden-Phase . 79
5.5 Perspektiven für die Erzeugung optischer Harmonischer 84

6 Zusammenfassung und Ausblick **87**

Literaturverzeichnis **91**

Publikationsliste **103**

Abkürzungsverzeichnis

ASE	verstärkte spontane Emission (*engl.* amplified spontaneous emission)
BBO	β-Bariumborat ($Ba(BO_2)_2$)
BIBO	Bismuthtriborat (BiB_3O_6)
BS	Strahlteiler (*engl.* beam splitter)
CCD	lichtempfindlicher Sensor (*engl.* charge-coupled device)
CEO	Träger-Einhüllenden-Phase (*engl.* carrier envelope offset)
CEP	Träger-Einhüllenden-Phase (*engl.* carrier envelope phase)
DCF	dispersionskompensierende Glasfaser (*engl.* dispersion compensating fiber)
DFG	Differenzfrequenzerzeugung (*engl.* difference frequenzy generation)
EOM	elektrooptischer Modulator (*engl.* electro-optic modulator)
FROG	frequenzaufgelöstes optisches Abtasten (*engl.* frequency resolved optical gating)
HHG	Erzeugung hoher Harmonischer (*engl.* high harmonic generation)
HNF	hoch nichtlineare Glasfaser (*engl.* highly nonlinear fiber)
OPA	optisch-parametrischer Verstärker (*engl.* optical parametric amplifier)
PCF	photonische Kristallfaser (*engl.* photonic crystal fiber)
PPLN	periodisch gepolter Lithiumniobatkristall (*engl.* periodically poled lithium niobate)
RMS	mittlere Quadratische Abweichung (*engl.* root mean square)
SAM	sättigbarer Absorberspiegel (*engl.* saturable absorber mirror)
SHG	Erzeugung der zweiten Harmonischen (*engl.* second harmonic generation)
VUV	vakuumultravioletter Spektralbereich
WDM	Wellenlängenmultiplexer (*engl.* wavelength division multiplexer)
ZDW	Nulldurchgang der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (*engl.* zero dispersion wavelength)

1 Einleitung

Seit der Erfindung modengekoppelter Laser hält eine rasche Entwicklung an, welche die Erzeugung von Lichtimpulsen mit immer kürzerer Dauer erlaubt [Kär04]. Gleichzeitig sind kontinuierlich steigende Impulsenergien zu verzeichnen. Durch die Konzentrierung der Leistung auf ein extrem kurzes Zeitintervall werden Spitzenleistungen erreicht, die so hoch sind, dass sich bei der Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit Materie ein stark nichtlineares Verhalten zeigt [Bra00]. Zusammenfassend spricht man deshalb von extrem nichtlinearer Optik [Weg05].

Besondere Bedeutung hat in den letzten Jahren die Erzeugung hoher Harmonischer (*engl.* high harmonic generation, HHG) erlangt. Durch die nichtlineare Polarisationsantwort eines Mediums wird Strahlung erzeugt, deren Frequenz einem ganzzahligen Vielfachen der des eingestrahlten Lichts entspricht. Bei ausreichend hohen Intensitäten lassen sich so spektrale Komponenten bis ins extreme Ultraviolett und sogar weiche Röntgenstrahlung erzeugen [Pop12]. Die Relevanz der HHG ruht dabei auf drei Eckpfeilern: Zunächst ermöglicht sie die Konstruktion von kompakten Quellen extrem kurzwelliger Strahlung für spektroskopische Anwendungen. Entsprechende Photonenenergien können andernfalls nur in Beschleunigern und Freie-Elektronen-Lasern bereitgestellt werden. Weiterhin bestehen die erzeugten Harmonischen inhärent aus Impulsen, deren Dauer kürzer als ein Halbzyklus des treibenden Feldes ist. Diese Eigenschaft gibt dem Forschungszweig der Attosekunden-Physik seinen Namen und bildet dessen Grundlage [Bal03,Cor07]. Schließlich liefert die bei der HHG emittierte Strahlung fundamentale Informationen über die Elektronendynamik im angeregten Medium und ermöglicht so die Untersuchung von grundlegenden Eigenschaften des Erzeugungsprozesses selbst.

In verdünnten Systemen wie atomaren Gasen ist der Erzeugungsprozess mittlerweile im Rahmen des sogenannten Dreistufenmodells gut verstanden, welches erstmals in [Cor93] vorgeschlagen wurde. Die Erzeugung hoher Harmonischer in Festkörpern ist hingegen erst 2011 experimentell gelungen [Ghi11]. Obwohl einige Gemeinsamkeiten zwischen den Prozessen ausgemacht werden können [Vam15a,Vam15b,Hut16], ist die Ladungsträgerdynamik in Festkörpern ungleich komplexer. Während auf den Halbleiter-Blochgleichungen basierende Theorien viele experimentell beobachtete Eigenschaften beschreiben können [Gol08,Kem13,Sch14,Vam14,Luu16], bleiben zahlreiche Fragen unbeantwortet. Die vollständige theoretische Beschreibung ist deshalb immer noch Gegenstand aktueller Forschung und alternative Ansätze, die etwa auf der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie

basieren [Tan17], versprechen einen tieferen Einblick in die mikroskopische Ursache der nichtlinearen Polarisation in Festkörpern.

Dieses Verständnis birgt hohes Potential für zukünftige Anwendungen des zugrundeliegenden physikalischen Prozesses. Zum einen werden für die Erzeugung hoher Harmonischer in Festkörpern im Vergleich zu Gasen gesteigerte Konversionseffizienzen erwartet. Damit sind noch kompaktere und robustere Quellen hoch energetischer Photonen denkbar. Zum anderen wird die Untersuchung fundamentaler struktureller und dynamischer Eigenschaften des Materialsystems ermöglicht [Luu15]. Die Entwicklung einer leistungsfähigen Methode zur vollständigen Rekonstruktion der elektronischen Bandstruktur stellt ein besonders erstrebenswertes Ziel dar [Vam15c].

Die Erzeugung hoher Harmonischer in Festkörpern ist deshalb Gegenstand einer Vielzahl aktueller Studien mit dem Ziel experimentelle Einsicht in die zugrundeliegende Physik zu erhalten. In diesem Kontext wird intensiv die Abhängigkeit des Erzeugungsprozesses von der Kristallstruktur untersucht [You17a,You17b,Lan17,Sai17]. Auch zeitaufgelöste Methoden zur Auflösung der Ladungsträgerdynamik erscheinen vielversprechend [Hoh15,Has16,Gar16]. Um mikroskopisch Einfluss auf die Bewegung der Kristallelektronen zu nehmen hat sich die Träger-Einhüllenden-Phase (*engl.* carrier envelope phase, CEP) als mächtiges Werkzeug herausgestellt. Es lässt sich damit direkt der Verlauf des elektromagnetischen Feldes beeinflussen, was eine fundamentale Kontrolle über den Erzeugungsprozess erlaubt. Das offensichtliche Potential wurde bereits vielfach experimentell demonstriert [Bal03,Gou08,Sch14,Ish14,Her15,Rud15,You17c,You17d,Ham17a,Ham17b] und zeigt die Relevanz für zukunftsweisende Experimente der extrem nichtlinearen Optik.

Gegenstand dieser Arbeit ist die Untersuchung von in Festkörpern erzeugten optischen Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich. Durch die Messung von Photonenenergien im Bereich der Bandlücke der verwendeten Proben wird hier eine physikalisch besonders relevante Ladungsträgerdynamik erwartet. Eine hohe Repetitionsrate im Megahertz-Bereich verspricht dabei höchste Sensitivität. Um dieses Ziel zu erreichen wurde ein ultrabreitbandiger optisch-parametrischer Verstärker entwickelt, welcher hoch intensive Impulse mit einer Dauer von nur zwei Schwingungen des elektromagnetischen Feldes bereitstellt. Durch die absolute Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase wurde damit die Messung fundamentaler Eigenschaften des Erzeugungsprozesses möglich, welche Rückschlüsse auf strukturelle Charakteristika der untersuchten Proben zulassen [Sto17].

Konzeptionell vereint der im Folgenden beschriebene Aufbau dabei die Zuverlässigkeit, Stabilität und Flexibilität eines Erbium-Faserlasersystems [Bri14] mit der Leistungsskalierbarkeit eines Ytterbium-Faserverstärkers und der Verstärkungsbandbreite eines optisch-parametrischen Verstärkers [Bri10]. Die Verwendung von Erbium-Fasertechnologie erlaubt die Konstruktion einer zuverlässigen Quelle passiv phasenstarrer sowie ultrakurzer Impulse. Anschließende Verstärkung in Ytterbium-Faser ermöglicht die Erzeugung der für

die geplanten Anwendungen nötigen Spitzenleistungen. Durch optisch-parametrische Verstärkung wird schließlich die zeitliche Kompression der Impulse auf wenige Femtosekunden für die jeweilige Anwendung möglich.

Im ersten Schritt erfolgt die Erzeugung eines passiv phasenstarren Impulszugs in einem Erbium-Faserlasersystem. Die Verwendung der Erbium-Technologie für die phasenstarre Quelle hat sich dabei als zielführend erwiesen: Zum einen sind aufgrund der Bedeutung für die Telekommunikationsindustrie Faserkomponenten höchster Qualität verfügbar, wodurch sich das technische Potential voll ausreizen lässt. Zum anderen erlaubt der Dispersionsverlauf in diesem Wellenlängenbereich die gezielte Frequenzkonversion der erzeugten Strahlung in hoch nichtlinearer Glasfaser (HNF), wodurch diese für beinahe beliebige Anwendungen verwendbar gemacht werden kann. Unter anderem ermöglicht dies die passive Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase durch Differenzfrequenzerzeugung spektraler Komponenten aus demselben Frequenzkamm [Kra11a]. Neben einer deutlich erhöhten Stabilität wird diesbezüglich eine neu implementierte Methode zur absoluten Kontrolle der Phasenlage vorgestellt. Der phasenstarre Impulszug wird schließlich auf zwei parallele Zweige aufgeteilt.

In einem Zweig erfolgt die Frequenzkonversion auf eine Wellenlänge von 1,03 µm. Dies erlaubt die Verstärkung in Ytterbium-Fasern. Ein Hochleistungsverstärker basierend auf einer photonischen Kristallfaser mit großem Kerndurchmesser liefert bei einer Repetitionsrate von 10 MHz Ausgangsleistungen bis zu 72 W. Daraus resultieren nach Kompression 6 µJ Impulsenergie bei einer Dauer von 145 fs [Wun15a]. Für viele Anwendungen ist eine Anpassung der Repetitionsrate wünschenswert, was im Rahmen dieser Arbeit umgesetzt wurde. Eine Steigerung auf bis zu 20 MHz erlaubt höchste Sensitivität und macht moderne Lock-In-Messungen möglich. Für die in dieser Arbeit präsentierten Messungen wird hingegen die maximal mögliche Impulsenergie angestrebt. Bei Reduzierung der Wiederholrate auf 5 MHz ist diese nicht mehr durch die zur Verfügung stehende Pumpleistung limitiert und kann nahezu verdoppelt werden. Eine neu entwickelte zeitliche Stabilisierung auf Basis einer balancierten Kreuzkorrelation erlaubt die Synchronisation des intensiven Impulszugs mit dem zweiten Zweig des phasenstarren Er:Faser-Systems.

Im parallelen Zweig wird ein extrem breitbandiges Spektrum mit einer Zentralwellenlänge von 1,1 µm erzeugt. Dessen Kompression ist auf eine Dauer von unter 8 fs möglich [Sel09]. Ein Ziel dieser Arbeit war, solch kurze Impulse mit der für die Untersuchung extrem nichtlinearer Phänomene nötigen Spitzenleistung zu erzeugen. Dazu wurde ein ultrabreitbandiger optisch-parametrischer Verstärker entwickelt, welcher das in hoch nichtlinearer Glasfaser erzeugte breite Spektrum als Eingangssignal nutzt. Als Pumpquelle dient der frequenzverdoppelte Yb:Faser-Hochleistungsverstärker. Damit konnte erstmals die Verstärkung eines entsprechenden Spektrums um einen Faktor 1000 auf Impulsenergien bis 200 nJ verwirklicht werden. Das System verknüpft damit die extrem kurze Dauer der Im-

pulse aus dem Erbium-Faserlasersystem mit den hohen Energien welche vom Ytterbium-Hochleistungsverstärker bereitgestellt werden. Die resultierenden Impulse enthalten nur zwei Schwingungen des elektromagnetischen Feldes. In dieser Arbeit wird bestätigt, dass die Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase bei der optisch-parametrischen Verstärkung erhalten bleibt. Durch die aktive Kontrolle in der phasenstarren Quelle wird die präzise Einstellung der Phasenlage möglich, ohne dabei andere Impulsparameter, insbesondere die Dauer, zu beeinflussen.

Das entwickelte System eignet sich damit hervorragend für eine Vielzahl von Experimenten der extrem nichtlinearen Optik. Insbesondere wird damit die zuvor erwähnte Erzeugung von hohen Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich möglich, deren Untersuchung den letzten Teil dieser Arbeit darstellt. Um das Verhalten auch im Wellenlängenbereich kürzer als 200 nm untersuchen zu können muss die Erzeugung und Detektion im Vakuum erfolgen. Ein eigens konstruierter Vakuumaufbau ermöglicht diese Messungen.

Die Gliederung der Arbeit folgt dem experimentellen Aufbau. Das Erbium-Faserlasersystem bestehend aus solitonisch modengekoppeltem Er:Faser-Oszillator und dem zur passiven Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase genutzten Differenzfrequenzaufbau ist Gegenstand von Kapitel 2. Außerdem wird dort die Technologie nichtlinearer Er:Faser-Verstärker, sowie die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern beschrieben. Der auf Ytterbium-Fasern basierte Hochleistungsverstärker ist Inhalt von Kapitel 3. Das Konzept und die experimentelle Realisierung des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers werden in Kapitel 4 erläutert. Ebenso sind dort die Ergebnisse zur passiven Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase, sowie ihrer aktiven Kontrolle enthalten. Kapitel 5 umfasst die experimentellen Arbeiten und Ergebnisse zur Erzeugung optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich in Festkörpern. Eine Zusammenfassung und ein Ausblick schließen die Arbeit in Kapitel 6 ab.

2 Passiv phasenstarres Lasersystem auf Basis von Erbium-Fasertechnologie als vielseitige Quelle ultrakurzer Impulse

Die offensichtliche Grundvoraussetzung für Experimente der extrem nichtlinearen Optik sowie der Ultrakurzzeitphysik ist eine zuverlässige Quelle kurzer Lichtimpulse. Da mit Hochleistungs-Faserverstärkern (Kapitel 3) und parametrischen Verstärkern (Kapitel 4) Möglichkeiten existieren die Impulsenergie um mehrere Größenordnungen zu skalieren, sollte diese sich vor allem durch eine hohe Stabilität, sowohl auf langen als auch auf kurzen Zeitskalen, auszeichnen. Weiterhin ist eine hohe Flexibilität von Parametern wie Ausgangsspektrum, Repetitionsrate sowie Anzahl der parallel verwendbaren Verstärkerzweige wünschenswert, um die Quelle an die spezifischen Anforderungen der Anwendung optimal anpassen zu können.

Um diesen Forderungen gerecht zu werden, wurde ein hochstabiles passiv phasenstarres Erbium-Faserlasersystem entwickelt, welches in diesem Kapitel vorgestellt wird. Durch den Einsatz von Fasertechnologie ergeben sich zunächst einige allgemeine Vorteile, allen voran die weitgehende Unabhängigkeit von Umgebungseinflüssen wie Staub, Temperatur, Luftfeuchtigkeit und Vibrationen. Durch die Vermeidung von Freistahlstrecken erhöht sich die mechanische Robustheit enorm und der Justageaufwand entfällt nahezu komplett. Zielführend ist auch die Verwendung von Er:Fasern bei einer Wellenlänge von 1,55 µm, da durch die hohe Bedeutung für die Telekommunikationsindustrie Bauteile kommerziell und in höchster Qualität verfügbar sind. Dadurch lassen sich rauscharme Er:Faser-Oszillatoren und -Verstärker mit ausgezeichneter Langzeitstabilität konstruieren, die alle eingangs geforderten Voraussetzungen erfüllen [Feh15,Wun15a].

Einzigartig für das im vorgestellten Lasersystem implementierte Konzept ist die Kombination der Er:Faser-Technologie mit der Verbreiterung der erzeugten Spektren in hoch nichtlinearen Germanosilikatfasern [Sel09], wodurch nahezu beliebige neue Frequenzanteile gebildet werden können. Dadurch lassen sich zum Beispiel Eingangsspektren für nachfolgende Hochleistungsverstärker erzeugen, was mit dem beschriebenen System bereits erfolgreich mit faserbasierten Ytterbium- [Wun15a] und Thulium-Zweigen [Kum17] gezeigt wurde. Ferner sind auch Freistrahlsysteme wie regenerative Titan-Saphir-Verstärker [Sel08] und

Ytterbium-Scheiben-Verstärker [Fis16] umsetzbar. Ebenso ermöglicht diese Technologie die passive Phasenstabilisierung des Impulszuges durch Differenzfrequenzerzeugung.

In Abschnitt 2.1 werden zunächst allgemeine Eigenschaften von Er:Fasern als Verstärkungsmedium diskutiert, welche die Grundlage für das in diesem Kapitel beschriebene phasenstarre Lasersystem bilden. Der solitonisch modengekoppelte Oszillator als Herzstück des Systems ist Inhalt von Abschnitt 2.2. Zur Skalierung der Energie der erzeugten Impulse kommt ebenfalls Er:Faser zum Einsatz. Die Technologie dieser nichtlinearen Verstärker, welche im vorgestellten Lasersystem vielfach Anwendung findet und durch Erzeugung breitbandiger Spektren die Kompression auf Impulsdauern unter 100 fs zulässt, wird in Abschnitt 2.3 beschrieben. Unter anderem ermöglicht sie die Frequenzkonvertierung in hoch nichtlinearen Glasfasern, deren Prinzip in Abschnitt 2.4 erläutert wird. Die passive Phasenstabilisierung durch Differenzfrequenzerzeugung zwischen so erzeugten dispersiven und solitonischen Impulsanteilen ist Inhalt von Abschnitt 2.5.

2.1 Erbium-Fasern als Verstärkungsmedium

Mit Erbium dotierte Glasfasern gehören zu den am häufigsten verwendeten Verstärkerfasern, was vor allem an ihrer großen Bedeutung für die Telekommunikationsindustrie liegt. Diese ist maßgeblich in ihrem Emissionsmaximum im Spektralbereich um 1,55 µm begründet, welches nahezu perfekt mit dem Absorptionsminimum von undotierten Quarzglasfasern zusammenfällt [Li85] und so die Signalübertragung über weite Strecken mit minimalen Verlusten ermöglicht. Weiterhin erlaubt das Absorptionsmaximum bei einer Wellenlänge von etwa 980 nm optisches Pumpen mit Laserdioden auf InGaAs-Basis, welche hohe Effizienz und Ausgangsleistung liefern und schon früh günstig und in großer Stückzahl produziert werden konnten.

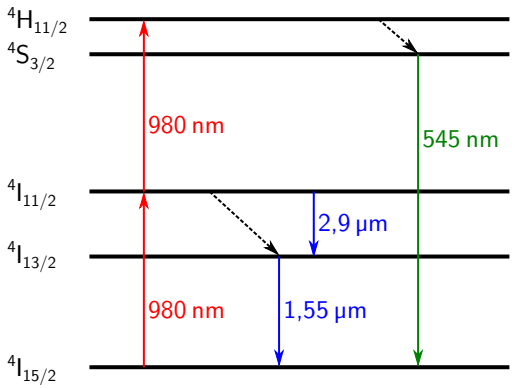

Abbildung 2.1 – Energieniveauschema von Er^{3+}-Ionen in einer Glasmatrix. Durch Absorption bei einer Pumpwellenlänge von etwa 980 nm (rot) werden mehrere optische Übergänge ermöglicht (blau/grün). Nicht strahlende Relaxationen sind schwarz gestrichelt dargestellt. Für Laseranwendungen ist die Emissionswellenlänge von 1,55 µm am häufigsten anzutreffen, wodurch sich mit dem verbreiterten Grundzustand ein Quasi-Dreiniveausystem ergibt. Die parasitäre Aufkonversion und anschließende Emission bei 545 nm führt zum charakteristischen grünen Leuchten angeregter Er:Fasern. Nach [Dig01].

Abbildung 2.1 zeigt das Energieniveauschema von Er^{3+}-Ionen in einer Glasmatrix. Das häufigste Pumpschema, welches auch ausnahmslos bei dem in dieser Arbeit beschriebenen System zum Einsatz kommt, lässt sich als Quasi-Dreiniveausystem beschreiben: Eine Pumpwellenlänge von etwa 980 nm erlaubt die Anregung vom $^4I_{15/2}$ Grundzustand nach $^4I_{11/2}$. Eine schnelle strahlungsfreie Multiphononen-Relaxation führt in das obere Laserniveau $^4I_{13/2}$ mit einer natürlichen Lebensdauer von rund 10 ms [Bar91]. Der strahlende Übergang zurück in den verbreiterten Grundzustand entspricht einer Wellenlänge von etwa 1,55 µm. Das Materialsystem besitzt weitere Emissionsmaxima, welche für die Verstärkung genutzt werden können, etwa bei 2,9 µm oder durch Aufkonversion bei 545 nm, die für die vorliegende Arbeit jedoch nicht von Bedeutung sind. Letzteres ist jedoch für die charakteristische Emission von Er:Fasern im sichtbaren Spektralbereich verantwortlich.

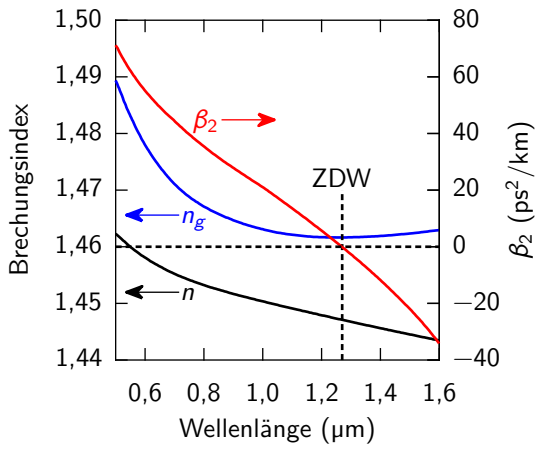

Abbildung 2.2 – Brechungsindex n (schwarz), Gruppengeschwindigkeitsindex n_g (blau) und Gruppengeschwindigkeitsdispersion β_2 (rot) von Quarzglas. Der Nulldurchgang der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (ZDW, *engl.* zero dispersion wavelength) liegt bei 1,27 µm (n_g verläuft hier flach), für kleinere Wellenlängen ist sie positiv (normale Dispersion), für größere Wellenlängen negativ (anomale Dispersion). Nach [Agr13].

Der Betrieb von Er:Faser-Oszillatoren und -Verstärkern bei einer Wellenlänge von 1,55 µm bietet neben den eingangs genannten Vorteilen eine sehr hohe Kleinsignalverstärkung die mühelos 30 dB erreicht [Ped94], was die effiziente Verstärkung selbst kleinster Signale erlaubt. Noch höhere Verstärkungen bis jenseits von 40 dB sind möglich, erhöhen jedoch die durch verstärkte spontane Emission verursachten Rauschbeiträge signifikant, weshalb im vorgestellten Lasersystem zu Gunsten der Stabilität darauf verzichtet wurde. Weiterhin haben sich die dispersiven Eigenschaften von Glasfasern in diesem Wellenlängenbereich als besonders günstig erwiesen. Da der Nulldurchgang der Gruppengeschwindigkeitsdispersion von reinem Quarzglas bei einer Wellenlänge von 1,27 µm liegt (Abbildung 2.2) weisen Standardfasern zunächst eine negative Dispersion auf. Durch passende Dotierung und Ausnutzung der Wellenleiterdispersion, lässt sich dieser jedoch nahezu beliebig Verschieben und sogar positiv dispersive Fasern sind möglich. Bei der Konstruktion eines Faserlasersystems führt dies zu einer enormen Flexibilität, wodurch die Propagation kurzer Lichtimpulse, insbesondere im nichtlinearen Regime, präzise kontrolliert werden kann. Dies ist in allen Stufen des vorgestellten Lasersystems essentiell und spielt auch

beim Modenkopplungsmechanismus des im nächsten Kapitel beschriebenen Er:Faser-Oszillators eine zentrale Rolle.

2.2 Solitonisch modengekoppelter Er:Faser-Oszillator mit 40 MHz Repetitionsrate

Als Taktgeber und inhärente Signallichtquelle für alle darauffolgenden Verstärkerstufen kommt dem Laser-Oszillator eine zentrale Rolle zu. Seine Ausgangscharakteristik entscheidet maßgeblich über Stabilität und Zuverlässigkeit des Gesamtsystems, dessen Konstruktion sollte deshalb höchsten Anforderungen genügen. Im vorgestellten Aufbau kommt ein solitonisch modengekoppelter Er:Faser-Oszillator mit einer hohen Repetitionsrate von 40 MHz zum Einsatz. Ein sättigbarer Absorberspiegel (SAM, *engl.* saturable absorber mirror) dient dabei zum Starten und zur Stabilisierung des Modenkopplungsprozesses.

Wie der Name bereits nahelegt, nutzt die solitonische Modenkopplung die Ausbildung von optischen Solitonen, d.h. Impulsen mit einer zeitlich invarianten Intensitätseinhüllenden. Da deren Entwicklung bei der linearen Propagation eines Impulses stets durch Materialdispersion bestimmt wird, ist dies nur in einem nichtlinearen Regime möglich, in dem Selbstphasenmodulation die Impulsform zusätzlich beeinflusst. Wenn die nichtlineare Phasenverschiebung die durch Dispersion aufgeprägte Phase gerade ausgleicht, kann sich so eine zeitlich konstante Intensitätseinhüllende ergeben, welche die Form eines quadratischen Sekans-Hyperbolikus (sech^2) aufweist. Das Verhältnis zwischen Dispersion und Nichtlinearität muss exakt aufeinander abgestimmt sein, was sich durch folgende Beziehung ausdrücken lässt [Agr13]:

$$E_\mathrm{p} = -\frac{1{,}763}{t_\mathrm{FWHM}} \cdot \frac{2\beta_2}{\gamma} \,. \tag{2.1}$$

Für feste Impulsenergie E_p entscheidet das Verhältnis aus Gruppengeschwindigkeitsdispersion β_2 und dem Nichtlinearitätsparameter der Faser γ die Impulsdauer t_FWHM und damit auch die spektrale Breite $\Delta\nu_\mathrm{FWHM}$ des Impulses. Für sech^2-förmige Impulse gilt z.B. $t_\mathrm{FWHM} \cdot \Delta\nu_\mathrm{FWHM} = 0.315$. Da der Nichtlinearitätsparameter bei ausreichendem Abstand zu Materialresonanzen praktisch immer positiv ist, liefert die Gleichung nur für $\beta_2 < 0$, d.h. negativ dispersive Medien, eine physikalische Lösung, was für typische Glasfasern bei einer Wellenlänge von 1,55 µm gegeben ist (vgl. Abbildung 2.2).

Bei der solitonischen Modenkopplung wird nun ausgenutzt, dass Impulse, welche Bedingung 2.1 erfüllen, bei jedem Umlauf ihre zeitliche Form erhalten und damit stabil im Resonator propagieren. Da das Verhältnis aus Dispersion und Nichtlinearitätsparameter

konstruktionsbedingt ist und durch die Wahl der eingesetzten Glasfasern und Variation ihrer Längen festgelegt ist, hängt die Dauer und spektrale Breite der erzeugten Impulse direkt von deren Impulsenergie und damit der Pumpleistung ab. Für weitere Details wird auf [Feh16] verwiesen.

Der im vorgestellten Lasersystem eingesetzte Oszillator basiert auf der in [Adl07] entwickelten Hybrid-Geometrie (siehe auch [Kra11b,Wun15b]). Mit Hilfe eines faserbasierten Zirkulators lässt sich ein linearer Abschnitt in den ringförmigen Resonator integrieren, in welchem ein sättigbarer Absorberspiegel (SAM, *engl.* saturable absorber mirror) zum Starten und zur Stabilisierung der solitonischen Modenkopplung eingesetzt wird [Sou93,Kär96]. Dabei handelt es sich um einen Spiegel auf dem eine Halbleiter-Heterostruktur aufgebracht ist. Die resultierenden Quantentöpfe absorbieren einen Teil des Signallichts. Bei ausreichender Intensität können die relevanten Übergänge jedoch ausgebleicht werden, wodurch sich die Reflektivität des Bauteils erhöht und die Verluste im Resonator verringern. Dadurch ist der gepulste Betrieb bevorzugt und Dauerstrichanteile werden wirkungsvoll unterdrückt.

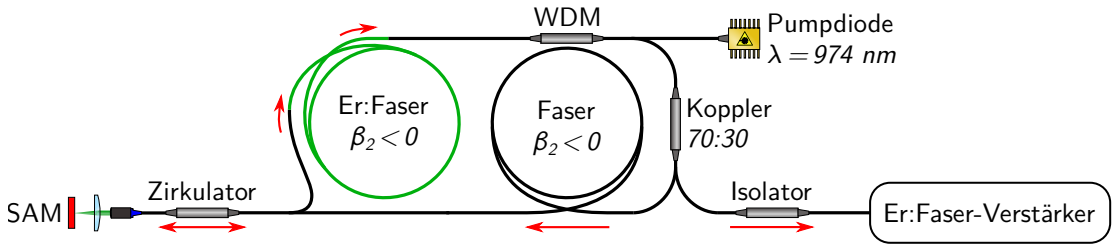

Abbildung 2.3 – Schematische Darstellung des Aufbaus des modengekoppelten Er:Faser-Oszillators mit 40 MHz Repetitionsrate. Ein Zirkulator ermöglicht einen hybriden Aufbau: Im linearen Abschnitt des Resonators wird ein sättigbarer Absorberspiegel (SAM) zur Modenkopplung eingesetzt. Die Verstärkung findet in negativ dispersiver Er:Faser im ringförmigen Teil statt. Als Pumpquelle dient eine wellenlängenstabilisierte Laserdiode, deren Licht über einen Wellenlängenmultiplexer (WDM) in Rückwärtsrichtung eingekoppelt wird. Pro Umlauf werden 30 % der Resonatorleistung mit einem Faserkoppler abgespalten, ein Isolator schützt den Oszillator vor Rückreflexen aus dem nachfolgenden Er:Faser-Verstärker.

Der Aufbau des Oszillators ist schematisch in Abbildung 2.3 gezeigt. Die Impulse durchlaufen zunächst mehrere Meter negativ dispersive Standardfaser, in der sie solitonisch propagieren und so den zuvor beschriebenen Modenkopplungsmechanismus erlauben. Nach Passieren des linearen Resonatorabschnitts werden die Impulse in negativ dispersiver Er:Faser verstärkt. Diese wird mit einer fasergekoppelten Laserdiode gepumpt, die durch ein Faser-Bragg-Gitter auf eine Wellenlänge von 974 nm stabilisiert ist. Ihr Licht wird mit Hilfe eines Wellenlängenmultiplexers (WDM, *engl.* wavelength division multiplexer) in Rückwärtsrichtung, d.h. entgegen der Propagationsrichtung des Signals, eingekoppelt.

Anschließend werden 30 % der Leistung abgespalten, wobei ein Isolator den Oszillator vor Rückreflexen aus dem nachfolgenden Er:Faser-Verstärker schützt.

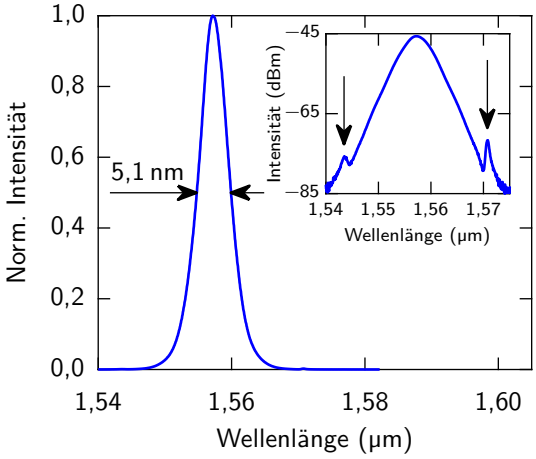

Abbildung 2.4 – Ausgangsspektrum des modengekoppelten Er:Faser-Oszillators mit einer Halbwertsbreite von 5,1 nm zentriert um eine Wellenlänge von 1,557 µm. In logarithmischer Auftragung (Einsatz) werden die durch Pfeile markierten Kelly-Seitenbänder sichtbar, deren Intensität jedoch 30 dBm bzw. 26 dBm unter der des Hauptmaximums liegt.

Mit dem beschriebenen Aufbau lässt sich eine Ausgangsleistung von 2 mW bei einer Repetitionsrate von 40 MHz erreichen, was einer Impulsenergie von 50 pJ entspricht. Ein Unterschied zu vergleichbaren Oszillatoren ist die Verwendung von negativ dispersiver Er:Faser, wodurch der Betrag der Gesamtdispersion pro Umlauf sehr groß ist. Nach Gleichung 2.1 hat dies eine größere Impulsdauer bzw. ein schmaleres Spektrum zur Folge, was durch das experimentell bestimmte Ausgangsspektrum bestätigt wird, welches in Abbildung 2.4 gezeigt ist. Die Halbwertsbreite beträgt 5,1 nm und ist damit deutlich kleiner als bei Er:Faser-Oszillatoren der jüngsten Generation, die Breiten von bis zu 17,4 nm erreichen können [Feh16]. Ebenfalls zu erkennen sind die für solitonisch modengekoppelte Oszillatoren charakteristischen Kelly-Seitenbänder [Kel92]. Bei ihnen handelt es sich um Impulsanteile, die nicht stabil im Soliton propagieren können, jedoch trotzdem konstruktiv mit diesem interferieren, d.h. pro Umlauf relativ zum Soliton einen Phasenunterschied von 2π bzw. Vielfachen aufweisen. Sie entstehen aufgrund von Verstärkung und Verlusten, insbesondere bei der Auskopplung, die im Oszillator periodisch auftreten und die solitonische Propagation stören. Da die abgespaltenen Impulsanteile keine nichtlineare Phasenverschiebung erfahren, wird der Effekt bei steigender Impulsenergie größer, was experimentell in Form von intensiveren Kelly-Seitenbänder beobachtet werden kann. Ultimativ führt es zum Auseinanderbrechen der Impulse und limitiert so die maximale Ausgangsleistung.

Der vorgestellte solitonisch modengekoppelte Er:Faser-Oszillator arbeitet zuverlässig und liefert einen stabilen Impulszug. Er ist selbststartend und dank vollständiger Kapselung und Spülung mit Trockenluft bei konstanter Temperatur unempfindlich auf Umgebungsbedingungen, sowie trotz kurzer Freistrahlstrecke justagefrei. Die Spitzenleistung der erzeugten Impulse ist jedoch selbst bei Fourier-limitierter Dauer, welche sich aus der

spektralen Breite zu 495 fs berechnen lässt, zu gering für die meisten experimentellen Anwendungen, insbesondere die nichtlineare Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern (Abschnitt 2.4). Deshalb erfolgt zunächst eine nichtlineare Verstärkung in Er:Faser.

2.3 Nichtlineare Er:Faser-Verstärker zur Erzeugung ultrakurzer Impulse

Wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, eigenen sich Er:Fasern ideal um auch kleine Signale um bis zu drei Größenordnungen und mehr zu verstärken. Um die Spitzenintensität dabei noch weiter zu erhöhen, wird der Verstärker so konstruiert, dass die Impulse in einem nichtlinearen Regime propagieren, sodass durch Selbstphasenmodulation neue Frequenzkomponenten erzeugt werden und das Fourier-Limit sinkt. Durch anschließende Kompression können so leicht Impulsdauern von unter 100 fs erreicht werden [Tau03].

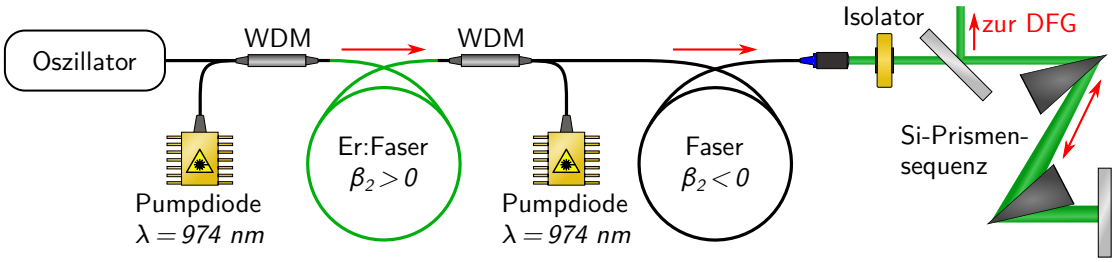

Abbildung 2.5 – Schematische Darstellung des Aufbaus des nichtlinearen Er:Faser-Verstärkers. Der Impulszug aus dem Oszillator wird in normal dispersiver Er:Faser verstärkt, welche beidseitig von wellenlängenstabilisierten Laserdioden gepumpt wird. Die Impulse, die nach dem Oszillator eine nahezu Fourier-limitierte Dauer besitzen, werden dadurch zunächst gestreckt. In einem kurzen Stück undotierter Glasfaser mit negativer Dispersion reduziert sich ihre Dauer wieder, wodurch sich die Spitzenleistung erhöht und durch Nichtlinearitäten neue spektrale Anteile erzeugt werden. Eine Siliziumprismensequenz erlaubt die zeitliche Kompression der spektral verbreiterten Impulse.

Der Aufbau des Er:Faser-Verstärkers, welcher zur Verstärkung des Impulszuges aus dem Oszillator verwendet wird, ist schematisch in Abbildung 2.5 gezeigt (siehe auch [Kra11b] für weitere Details). Die Impulse durchlaufen zunächst Er:Faser, welche beidseitig von wellenlängenstabilisierten Laserdioden gepumpt wird. Die kombinierte Pumpleistung von 1,5 W reicht aus, um Ausgangsleistungen von 340 mW zu erzielen, was einer Impulsenergie von 8,5 nJ entspricht [Kra11b]. Die nach dem Oszillator nahezu Fourier-limitierten, jedoch spektral schmalen, Impulse werden in der positiv dispersiven Er:Faser durch Dispersion und die einsetzende Selbstphasenmodulation zunächst positiv frequenzmoduliert. Diese zeitliche Streckung verhindert starke nichtlineare Phasenverschiebungen, die zu einem

Auseinanderbrechen führen würden. Anschließend durchlaufen die Impulse passive Standardfaser mit negativer Dispersion, welche die positive Frequenzmodulation kompensiert. Sie werden dadurch kürzer und durch die zunehmende Selbstphasenmodulation werden neue Frequenzanteile erzeugt. Variation der Faserlänge erlaubt die präzise Kontrolle der spektralen Form, wodurch ein breites und verhältnismäßig unstrukturiertes Ausgangsspektrum nach dem Verstärker erzielt werden kann. Eine Silizium-Prismensequenz ermöglicht die Kompression der verstärkten Impulse auf eine Dauer von 128 fs. Durch Einsatz der Prismen im Brewster-Winkel lässt sich eine hohe Effizienz von über 90 % erreichen.

Die verstärkten Impulse besitzen eine ausreichende Spitzenintensität für die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern, welche im nächsten Abschnitt beschrieben wird und im Folgenden die passive Phasenstabilisierung des Impulszuges durch Differenzfrequenzerzeugung erlaubt (Abschnitt 2.5). Durch Variation des Materialdurchgangs im Prismenkompressor lässt sich die Frequenzmodulation der Impulse genau kontrollieren. Dies ermöglicht die Propagation in der hoch nichtlinearen Glasfaser und damit das erzeugte Spektrum noch besser auf die gewünschte Anwendung abzustimmen.

Dieselbe Technologie wird auch an mehreren anderen Stellen im vorgestellten Lasersystem implementiert (vgl. Abschnitte 3.2 und 4.2) und ist maßgeblich für dessen Vielseitigkeit verantwortlich. Wenn das Eingangsspektrum ausreichend breit ist, kann dabei auch ein leicht optimierter Verstärkeraufbau zum Einsatz kommen: Statt die Impulse erst in der positiv dispersiven Er:Faser zu strecken, wird ihre Dauer bereits vor dem Verstärker mit einer negativen Frequenzmodulation erhöht. Da passive Standardfasern bei der Signalwellenlänge ohnehin eine negative Dispersion aufweisen, sind die kurzen Verbindungsstrecken zwischen den fasergekoppelten Bauteilen meist ausreichend und es sind keine zusätzlichen Faserstrecken nötig. Die Impulse werden somit bereits in der Er:Faser kürzer und nichtlineare spektrale Verbreiterung setzt ein. Bei passender Wahl der Faserlänge vor dem Verstärker erreichen sie etwa am Ende der aktiven Faser ihre kürzeste Dauer und das gewünschte Spektrum und können direkt ausgekoppelt werden.

2.4 Hoch nichtlineare Glasfasern zur gezielten Frequenzkonversion

Die vorgestellte Er:Faser-Technologie bildet bereits eine solide Basis für unterschiedlichste Experimente, ist jedoch inhärent auf Wellenlängen im Bereich von 1,55 µm limitiert. Außerdem verhindert der hohe Quantendefekt von 37 % die Konstruktion von Hochleistungsverstärkern. Die Ausnutzung von nichtlinearen Effekten zur Frequenzkonversion stellt deshalb eine attraktive Möglichkeit dar, um die Technologie auch für weitere Anwendungsgebiete zu erschließen. Mit der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG,

engl. second harmonic generation) ist z.B. die Erzeugung von Spektren im Bereich um 775 nm möglich, was unter Anderem in die Verstärkungsbandbreite von mit Titan dotiertem Saphir fällt und die Speisung von entsprechenden Verstärkern erlaubt [Sel08]. Sehr viel flexibler ist hingegen die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern (HNF, *engl.* highly nonlinear fiber), deren Prinzip in diesem Abschnitt beschrieben wird.

Hoch nichtlineare Glasfasern zeichnen sich durch eine starke Dotierung des Faserkerns aus, wodurch sich ein großer Brechungsindexunterschied zum Fasermantel ergibt und besonders kleine Kerndurchmesser möglich werden [Hol95,Kat95,Agr13]. Dadurch erhöht sich der Nichtlinearitätsparameter um fast eine Größenordnung. Ein Impuls, der in einer solchen Faser propagiert, erfährt deshalb große nichtlineare Phasenverschiebungen. Bei passender Wahl der Impulsparameter lassen sich damit gezielt neue spektrale Anteile generieren, die nahezu den gesamten nahinfraroten Spektralbereich abdecken [Kum12].

Eine entscheidende Rolle für die nichtlineare Frequenzkonversion spielt dabei der spektrale Verlauf der Gruppengeschwindigkeitsdispersion der Glasfaser. An ihrem Nulldurchgang wird die Gruppengeschwindigkeit maximal, auf entgegengesetzten Seiten des Nulldurchgangs ergeben sich somit ähnliche Gruppengeschwindigkeiten (vgl. Abbildung 2.2). Liegt der Nulldurchgang im Bereich der Wellenlänge des Eingangsimpulses, ermöglicht dies die Aufspaltung des Impulses, welcher als Soliton höherer Ordnung angesehen werden kann (*engl.* „soliton fission“, [Hus01,Her02]). Es entsteht ein rotverschobenes Soliton erster Ordnung, welches im Bereich negativer Dispersion propagiert, sowie ein zweiter Impuls, welcher zu kürzeren Wellenlängen verschoben ist. Er propagiert somit im Bereich positiver Dispersion und wird deshalb auch dispersive Welle genannt. Durch Vierwellenmischprozesse kann ein effizienter Energieaustausch zwischen den beiden Impulsen stattfinden, wodurch das Soliton kontinuierlich rotverschoben wird, während die dispersive Welle Energie gewinnt und spektral kürzer wird. Der Prozess wird durch stimulierte Ramanstreuung des Solitons zusätzlich unterstützt, welche ebenfalls in einer Rotverschiebung resultiert [Sto89]. Da dieser Energieaustausch Phasenanpassung erfordert, kommt die Frequenzverschiebung zum Erliegen, sobald der zeitliche Überlapp zwischen den Impulsen verloren geht. Wie weit die spektralen Anteile verschoben werden können, hängt dabei empfindlich vom genauen Dispersionsverlauf der eingesetzten hoch nichtlinearen Glasfaser ab.

Um die Erzeugung von maßgeschneiderten Spektren zu ermöglichen, wurde ein Computerprogramm entwickelt, welches die nichtlineare Impulspropagation in Glasfasern simuliert [Sel06,Sel09]. Es implementiert die Split-Step-Fourier-Methode zur Lösung der nichtlinearen Schrödingergleichung [Agr13]. Dabei wird die Propagationsstrecke in diskrete Schritte unterteilt. Für jeden Schritt wird zunächst die lineare Phasenverschiebung in der Frequenzdomäne berechnet und anschließend die nichtlineare Phasenverschiebung in der Zeitdomäne. Der Wechsel zwischen Frequenz- und Zeitbereich lässt sich effizient

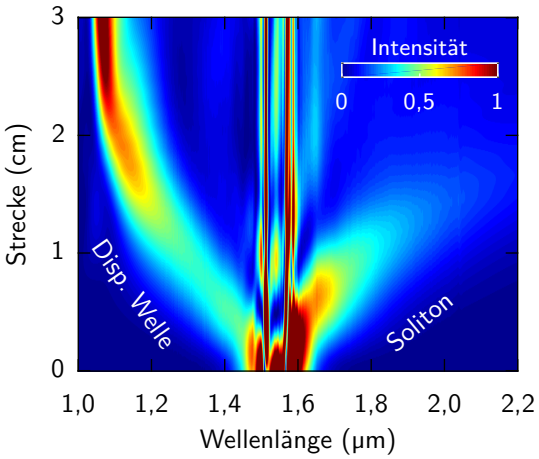

Abbildung 2.6 – Simulation der Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern. Gezeigt ist die farbcodierte spektrale Intensität über eine Propagationsstrecke von 3 cm. Für die Faser im Beispiel fällt der Nulldurchgang der Gruppengeschwindigkeitsdispersion mit der Zentralwellenlänge des Eingangsimpulses von 1,55 µm zusammen. Auf den gegenüberliegenden Seiten des Nulldurchgangs ergeben sich so vergleichbare Gruppengeschwindigkeiten für Soliton und dispersive Welle, was einen effizienten Energieaustausch über Vierwellenmischprozesse ermöglicht.

über die schnelle Fourier-Transformation implementieren. Ein beispielhaftes Simulationsergebnis ist in Abbildung 2.6 gezeigt, welches die zuvor qualitativ beschriebenen Prozesse quantitativ wiedergeben kann. Die Aufspaltung des Eingangsimpules in Soliton und dispersive Welle, sowie die anschließende Frequenzverschiebung, sind eindeutig zu erkennen. Mit abnehmendem zeitlichem Überlapp ändert sich die Frequenz immer langsamer bis dieser bei einer Propagationsstrecke von etwa 3 cm vollständig verloren geht und die Frequenz der dispersiven Welle nahezu konstant bleibt.

Bei der experimentellen Umsetzung wird der komprimierte Impuls aus dem Er:Faser-Verstärker nicht direkt in die hoch nichtlineare Glasfaser eingekoppelt, sondern durchläuft zunächst einige Zentimeter Standardfaser. Dabei verbreitert sich das Spektrum durch Selbstphasenmodulation und aufgrund von negativer Dispersion ist eine quasi-solitonische Propagation möglich, was zu einer Verkürzung der Impulsdauer führt, man spricht auch von „solitonischer Kompression“. Die Standardfaser wird an der Stelle gekürzt, an welcher der Impuls seine kürzeste Dauer erreicht, d.h. kurz bevor die schnell ansteigende Nichtlinearität zu seinem Auseinanderbrechen führen würde. In der nachfolgend angespleißten hoch nichtlinearen Glasfaser wird somit die höchstmögliche Spitzenintensität erreicht, was ideale Bedingungen für die nichtlineare Frequenzkonversion schafft. In der Praxis als besonders relevant erwiesen hat sich auch die Möglichkeit die Frequenzmodulation der Eingangsimpulse durch einen Siliziumprismenkompressor vor der Einkopplung präzise einzustellen. Dadurch ist eine Feinjustage der nichtlinearen Frequenzkonversion möglich und das Ausgangsspektrum kann noch besser kontrolliert werden, etwa um die Differenzfrequenz von Soliton und dispersiver Welle auf das Verstärkungsmaximum von Er:Faser zu optimieren wie im nächsten Abschnitt beschrieben.

2.5 Passive Stabilisierung und präzise Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase

In einem modengekoppelten Laser ist die Umlaufzeit des Impulses durch die Resonatorlänge und die mittlere Gruppengeschwindigkeit festgelegt. Da die Phasengeschwindigkeit typischerweise größer ist, ändert sich die relative Lage der Trägerwelle zur Einhüllenden kontinuierlich (Abbildung 2.7). Man nennt diesen Phasenversatz Träger-Einhüllenden-Phase (CEP, *engl.* carrier-envelope phase) bzw. Träger-Einhüllenden-Offset (CEO, *engl.* carrier-envelope offset), die Frequenz mit der sich die Phase um jeweils 2π ändert heißt Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz f_{CEO}.
Für nahinfrarote Impulse mit einer Dauer in der Größenordnung einiger zehn Femtosekunden spielt dies keine Rolle, da sich die Einhüllende in Bezug auf die Periodendauer nur langsam ändert und die exakte Phasenlage nur wenig Einfluss auf den Feldverlauf aufeinanderfolgender Lichtzyklen hat. Sobald ein Impuls nur noch aus wenigen Schwingungen des elektromagnetischen Feldes besteht, wie etwa die Ausgangsimpulse des in Kapitel 4 beschriebenen optisch parametrischen Verstärkers, ist der Effekt hingegen nicht mehr zu vernachlässigen und die Phasenlage bestimmt maßgeblich den Feldverlauf. Insbesondere wird nur noch für zwei Stellungen der Träger-Einhüllenden-Phase ($\Delta\phi = 0$ und $\Delta\phi = \pi$) die maximal mögliche Feldstärke erreicht, wechselt dabei jedoch ihr Vorzeichen.
Für Experimente der extrem nichtlinearen Optik, wie der in Kapitel 5 beschrieben Erzeugung von optischen Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich in Festkörpern, ist deshalb eine präzise Kontrolle der Phasenlage nötig, da sie maßgeblich die untersuchten physikalischen Prozesse beeinflusst. In diesem Abschnitt wird die im Versuchsaufbau implementierte Methode zur passiven Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase präsentiert [Kra11a], welche die Differenzfrequenzerzeugung zur Eliminierung der Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz nutzt [Bal02]. Darüber hinaus wird die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Möglichkeit zur anschließenden Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase vorgestellt.

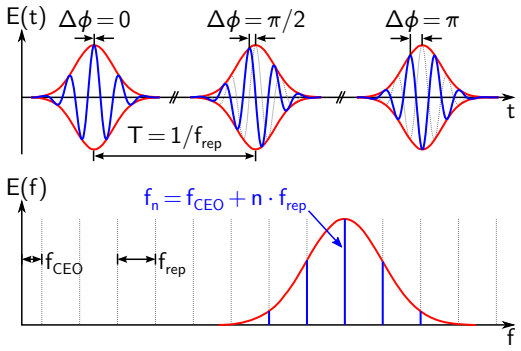

Abbildung 2.7 – Impulszug eines modengekoppelten Oszillators in Zeit- (oben) und Frequenzdomäne (unten). Bei einer Umlaufdauer T ergibt sich ein Frequenzkamm, dessen Modenabstand der Repetitionsrate $f_{\mathrm{rep}} = \frac{1}{T}$ entspricht. Eine kontinuierliche zeitliche Änderung der Träger-Einhüllenden-Phase $\Delta\phi$ zwischen elektrischem Feld (blau) und Impulseinhüllender (rot) führt zu einer Verschiebung der Frequenzkammmoden um die Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz f_{CEO}.

Die passive Phasenstabilisierung durch Differenzfrequenzerzeugung ist möglich, da sich das Spektrum eines modengekoppelten Oszillators wie in Abbildung 2.7 dargestellt aus Kammmoden bei Frequenzen von $f_\mathrm{n} = f_\mathrm{CEO} + n \cdot f_\mathrm{rep}$ zusammensetzt [Wei09]. Die Differenzfrequenz zweier Kammmoden ergibt sich damit zu

$$\begin{aligned} \Delta f = f_\mathrm{n} - f_\mathrm{m} &= (f_\mathrm{CEO} + n \cdot f_\mathrm{rep}) - (f_\mathrm{CEO} + m \cdot f_\mathrm{rep}) \\ &= (n - m) \cdot f_\mathrm{rep}\,, \end{aligned} \tag{2.2}$$

die Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz hebt sich auf. Diesen Prozess nennt man auch optische Gleichrichtung und er ermöglicht z.B. die Erzeugung von phasenstarrer Multi-Terahertz-Strahlung [Rie16].
Im vorgestellten Lasersystem ist das Ziel jedoch die Erzeugung nahinfraroter Impulse. Für den nötigen Frequenzabstand reicht die spektrale Breite des Frequenzkamms nicht aus. Um die nötigen Frequenzkomponenten zu erzeugen kann jedoch die in Abschnitt 2.4 beschriebene Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern verwendet werden. Da es sich bei den zugrunde liegenden physikalischen Prozessen (Selbstphasenmodulation und Vierwellenmischen) um nichtlineare Effekte dritter Ordnung handelt, lassen sie sich durch die Wechselwirkung von vier elektromagnetischen Wellen beschreiben, wobei die Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz erhalten bleibt:

$$\begin{aligned} f_\mathrm{p} = f_\mathrm{q} + f_\mathrm{r} - f_\mathrm{s} &= (f_\mathrm{CEO} + p \cdot f_\mathrm{rep}) + (f_\mathrm{CEO} + q \cdot f_\mathrm{rep}) - (f_\mathrm{CEO} + r \cdot f_\mathrm{rep}) \\ &= f_\mathrm{CEO} + (p + q - r) \cdot f_\mathrm{rep}\,. \end{aligned} \tag{2.3}$$

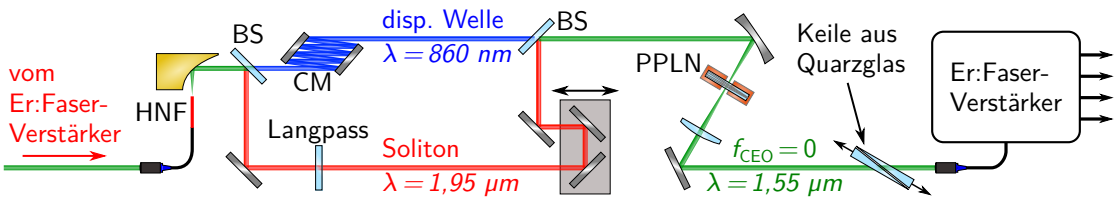

Abbildung 2.8 – Schema des Aufbaus zur Erzeugung passiv phasenstarrer Lichtimpulse. Die komprimierten Impulse aus dem Er:Faser-Verstärker werden in eine hoch nichtlineare Glasfaser (HNF) eingekoppelt und die erzeugten Frequenzkomponenten anschließend mit einem dielektrischen Strahlteiler (BS) getrennt. Die dispersive Welle, die nach der Propagation in der Faser eine positive Frequenzmodulation aufweist, wird mit vier Reflexionen auf einem Spiegelpaar mit negativer Gruppengeschwindigkeitsdispersion (CM) komprimiert. Das langwellige Soliton mit nahezu Fourier-limitierter Impulsdauer wird weitestgehend reflektiv über eine variable Verzögerungsstrecke geführt, bevor beide Strahlen mit einem zweiten Strahlteiler wieder kollinear überlagert werden. Durch Differenzfrequenzerzeugung in einem periodisch gepolten Lithiumniobatkristall (PPLN) entsteht ein bei einer Wellenlänge von 1,55 µm zentriertes Spektrum, welches wiederum in Er:Faser verstärkt werden kann. Die Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz beträgt nun $f_\mathrm{CEO} = 0$, die Träger-Einhüllenden-Phase lässt sich durch Variation des Materialdurchgangs in einem Paar von Quarzglaskeilen präzise einstellen.

Der Aufbau zur Erzeugung eines passiv phasenstarren Impulszugs im nahinfraroten Spektralbereich ist schematisch in Abbildung 2.8 gezeigt, für eine detaillierte Beschreibung der

verwendeten Komponenten sei auf [Kra11b] verwiesen. Die komprimierten Impulse aus dem in Abschnitt 2.3 beschriebenen Er:Faser-Verstärker werden zur Frequenzkonversion in eine hoch nichtlineare Glasfaser eingekoppelt. Durch Feineinstellung der Frequenzmodulation mit Hilfe des Siliziumprismenkompressors lässt sich die Frequenzverschiebung präzise kontrollieren (vgl. Abbildung 2.9). Nach der Kollimation mit einem Parabolspiegel werden Soliton und dispersive Welle mit einem dielektrischen Strahlteiler voneinander getrennt. Da das Soliton eine nahezu Fourier-limitierte Dauer aufweist, wird es reflektiv geführt, um eine zeitliche Streckung durch Materialdispersion zu verhindern. Die einzige Ausnahme bilden zwei dielektrische Filter, welche mehr als 99,996 % des fundamentalen Lichts bei einer Wellenlänge von 1,55 µm blockieren. Die hohe Dämpfung ist nötig, um sicherzustellen, dass der phasenstarre Impulszug nach der Differenzfrequenzerzeugung nicht mit unstabilisiertem Restlicht aus der Fundamentalen überlagert wird, was durch das Schwebungssignal zwischen den um f_{CEO} verschobenen Frequenzkämmen zu zusätzlichen Beiträgen im relativen Intensitätsrauschen führen würde. Die dispersive Welle muss nach der Propagation in der Glasfaser komprimiert werden. Dazu wird ein dielektrisches Spiegelpaar mit negativer Gruppengeschwindigkeitsdispersion (*engl.* chirped mirrors) eingesetzt. Neben der Komprimierung der Impulse unterdrücken die insgesamt acht Reflexionen auch in diesem Zweig fundamentales Licht, da die Spiegel bei einer Wellenlänge von 1,55 µm nur eine geringe Reflektivität aufweisen. Soliton und dispersive Welle werden daraufhin wieder kollinear überlagert, eine variable Verzögerungsstrecke im Strahlengang des Solitons erlaubt deren zeitliche Synchronisierung.

Fokussierung der Impulse in periodisch gepoltes Lithiumniobat (PPLN) erlaubt schließlich die quasi-phasenangepasste Differenzfrequenzerzeugung [Fej92,Hum07]. Der Kristall weist ein Fächerstruktur auf, wodurch sich die Polungsperiode durch Verschieben des Kristalls kontinuierlich ändern lässt und die Phasenanpassung für die anschließende Verstärkung in Er:Faser auf eine Wellenlänge von 1,55 µm bzw. eine Frequenz von 193 THz optimiert werden kann. Abbildung 2.9 zeigt drei mögliche Eingangsspektren von Soliton und dispersiver Welle. Bei korrekter Wahl des Frequenzabstandes (rote Kurve) lässt sich damit effizient das gewünschte Differenzfrequenzspektrum erzeugen (schwarze Kurve). Die darin enthaltene Leistung liegt bei etwa 2 mW.

Der so erhaltene Impulszug ist phasenstarr ($f_{\mathrm{CEO}} = 0$) und besitzt prinzipiell ausreichend Leistung um direkt einen nichtlinearen Er:Verstärker in Sättigung zu betreiben [Adl07]. Im vorgestellten Lasersystem sollen jedoch mehrere parallele Zweige zur Verfügung stehen, weshalb das Signal vor der weiteren Verwendung zunächst vorverstärkt wird. Da die Halbwertsbreite des Differenzfrequenzspektrums über 100 nm beträgt, kann in dieser Stufe auf eine nichtlineare Verbreiterung verzichtet werden. Dazu werden die Impulse zunächst in negativ dispersiver Standardfaser zeitlich gestreckt und können anschließend in Er:Faser mit positiver Dispersion in einem vorwiegend linearen Regime verstärkt werden. Die Ausgangsleistung des mit 150 mW moderat gepumpten Vorverstärkers beträgt 28 mW, das

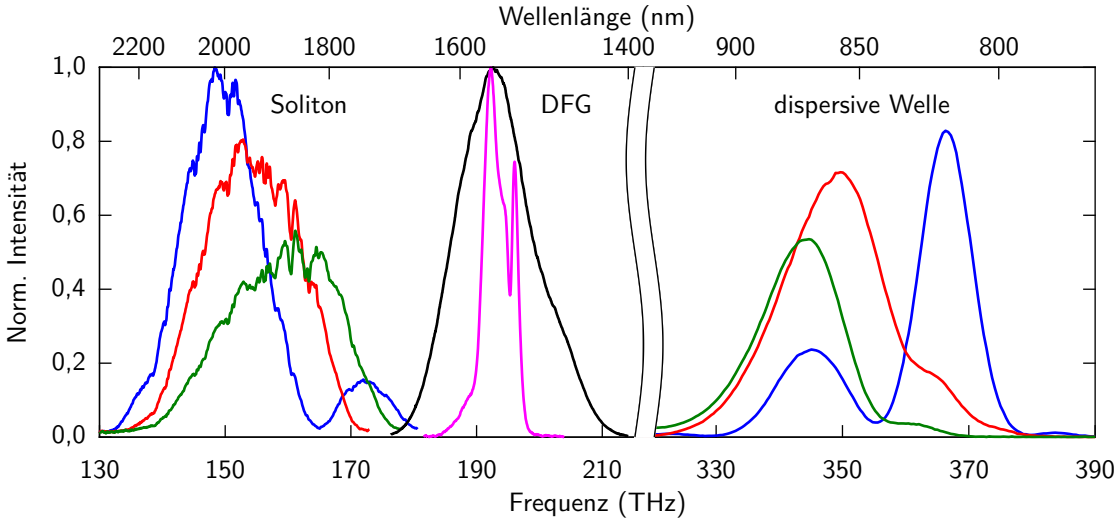

Abbildung 2.9 – Ausgangsspektren einer hoch nichtlinearen Glasfaser bei variierter Frequenzmodulation des Eingangsimpulses (blau, rot, grün). Bei passender Einstellung (rot) liegt das Maximum des in periodisch gepoltem Lithiumniobat erzeugten Differenzfrequenzspektrums (schwarz) bei 193 THz bzw. einer Wellenlänge von 1,55 µm. Es fällt somit gerade mit dem Maximum des Verstärkungsspektrums von Er:Fasern zusammen, wie das experimentell gemessene Spektrum nach der erneuten Verstärkung beweist (magenta).

resultierende Spektrum ist in Abbildung 2.9 zusätzlich zum Differenzfrequenzspektrum gezeigt (magenta). Damit könner derzeit vier parallele nichtlineare Er:Faser-Verstärker in Sättigung betrieben werden, deren Signal entweder direkt verwendet oder durch Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern für nahezu beliebige Anwendungen nutzbar gemacht werden kann. Zwei der vier Arme enthalten zusätzlich einen elektrooptischen Modulator (EOM), über den die Repetitionsrate des Zweigs auf beliebige Sub-Harmonische der Wiederhohlrate des Oszillators eingestellt werden kann.

Die Qualität der passiven Phasenstabilisierung kann mit Hilfe eines f-zu-$2f$-Interferometers bestimmt werden [Hol00,Jon00,Kak01]. Es erlaubt die Messung der relativen zeitlichen Änderung der Träger-Einhüllenden-Phase, für die bereits in [Kra11a] eine mittlere quadratische Abweichung (RMS, *engl.* root mean square) von nur 219 mrad bei einer Integrationszeit von 4 ms und einer Messdauer von 8 s gezeigt werden konnte. Da die Differenzfrequenzerzeugung die Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz inhärent eliminiert, kann eine relative Phasenänderung auf diesen Zeitskalen nur noch durch einen variablen Wegunterschied zwischen Soliton und dispersiver Welle verursacht werden. Ein Ansatz diesen Einfluss zu minimieren ist die Strecke auf der die Strahlen getrennt propagieren so kurz wie möglich zu halten, was in [Feh16] umgesetzt wurde und eine Verbesserung um fast eine Größenordnung auf 28,3 mrad erlaubt [Lie17]. Die Verwendung von mechanisch stabilerer Optomechanik und insbesondere die Kapselung des gesamten Aufbaus zur

Abschirmung von Umgebungseinflüssen wie Luftverwirbelungen, konnte jedoch auch im vorgestellten Lasersystem die Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase um mehr als eine Größenordnung verbessern. Für identische Integrationszeit und Messdauer beträgt die mittlere quadratische Abweichung nur noch 10,6 mrad. Die Messungen werden im Detail in Abschnitt 4.4 präsentiert.

Während die möglichst präzise Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Offset-Frequenz auf einen festen Wert insbesondere in der Frequenzmetrologie von großer Bedeutung ist [Ude02], benötigen die in Kapitel 5 vorgestellten Experimente die Kontrolle über den absoluten Wert der Träger-Einhüllenden-Phase. Dazu bietet sich an den Unterschied zwischen Phasen- und Gruppengeschwindigkeit in einem dispersiven Medium auszunutzen. Durch Variation des Materialdurchgangs lässt sich die Phasenlage anpassen. Zu diesem Zweck wurden vor der Einkopplung in den Er:Faser-Vorverstärker zwei Quarzglaskeile mit einem Keilwinkel von 2,87° installiert (siehe Abbildung 2.8) mit Außenmaßen von $40 \times 10 \times 2{,}5\,\mathrm{mm}^3$ bei einer minimalen Dicke von 0,5 mm. Werden sie gegeneinander verschoben, ändert sich der Materialdurchgang kontinuierlich. Die Verwendung baugleicher Keile stellt sicher, dass die durch Brechung am ersten Keil verursachte wellenlängenabhängige Aufspaltung durch den zweiten Keil exakt kompensiert wird. Eine Ausrichtung im Brewster-Winkel minimiert Reflexionsverluste.
Obwohl die Implementierung auch an einer späteren Position im Lasersystem möglich wäre, bietet der vorgestellte Ansatz mehrere Vorteile. Der offensichtlichste ist, dass die Träger-Einhüllenden-Phase in allen Zweigen des Lasersystems kontrolliert werden kann. Weiterhin werden die Impulse direkt nach dem Passieren der Keile in eine Glasfaser eingekoppelt. Kleine Parallelverschiebungen der Strahlposition und die minimale wellenlängenabhängige räumliche Aufspaltung durch die Anordnung im Brewster-Winkel werden dadurch kompensiert. Wichtigster Vorteil ist, dass die zusätzliche Materialdispersion an dieser Stelle völlig vernachlässigbar ist, da die Impulse im Anschluss ohnehin fast einen Meter Standardfaser durchlaufen. Eine Verschiebung der Keile hat auf die Impulsdauern im nachfolgenden System damit keine Auswirkung. Dies erlaubt eine stufenlose Änderung der Träger-Einhüllenden-Phase um 40π, d.h. eine Verschiebung der Trägerwelle um 20 vollständige Perioden, die lediglich durch die Verfahrstrecke der Quarzglaskeile limitiert ist. Dabei sind keine Auswirkungen auf Impulsdauer oder Spektrum nach dem optisch parametrischen Verstärker messbar, wie in Abschnitt 4.4 gezeigt.

Für die im Rahmen dieser Arbeit beschriebenen Experimente werden zwei Arme der passiv phasenstarren Quelle genutzt. Im ersten Zweig wird in einer hoch nichtlinearen Glasfaser ein Eingangsspektrum für den im nächsten Kapitel beschriebenen Yb:Faser-Hochleistungsverstärker erzeugt. Im zweiten Zweig ermöglicht die nichtlineare Frequenzkonversion die Erzeugung eines ultrabreitbandigen Spektrums als Eingangssignal für den optisch parametrischen Verstärker, welcher Gegenstand von Kapitel 4 ist.

3 Stabiler Hochleistungsverstärker basierend auf mit Ytterbium dotierter photonischer Kristallfaser

Das im vorigen Kapitel beschriebene phasenstarre Er:Faser-Lasersystem ist eine zuverlässige, vielseitige und stabile Quelle ultrakurzer Lichtimpulse bei hoher Repetitionsrate und ermöglicht damit eine Vielzahl von komplexen Experimenten der Spektroskopie und Ultrakurzzeitphysik. Für die Untersuchung extrem nichtlinearer Effekte sind die erzielten Impulsenergien jedoch nicht ausreichend. Für die in Kapitel 5 beschriebene Erzeugung von optischen Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich in Festkörpern sind z.B. Spitzenfeldstärken in der Größenordnung von 1 V/Å nötig, was sich mit der Erbium-Technologie nur im Ausnahmefall durch Erzeugung von Impulsen mit einer einzigen Schwingung des elektromagnetischen Feldes bei gleichzeitiger beugungsbegrenzter Fokussierung erreichen lässt [Kra10,Ryb16]. Im vorgestellten Lasersystem wird deshalb ein zweistufiger, faserbasierter Ytterbium-Hochleistungsverstärker eingesetzt, um die zur Verfügung stehende Impulsenergie in den Mikrojoule-Bereich zu skalieren.

Abschnitt 3.1 beleuchtet zunächst allgemeine Eigenschaften der Yb:Faser-Technologie, sowie ihre Tauglichkeit für Hochleistungsanwendungen. Die Erzeugung eines Eingangssignals mit variabler Repetitionsrate für den Hochleistungsverstärker ist Inhalt von Abschnitt 3.2, wobei auch hier die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern ausgenutzt wird, um die nötigen spektralen Anteile im Wellenlängenbereich um 1,03 µm zu erzeugen. Durch zeitliche Streckung der Impulse vor der Verstärkung und anschließende Rekomprimierung in einem Gitterkompressor (Abschnitt 3.3) kann die Spitzenintensität in den Verstärkerstufen klein gehalten werden, wodurch sich unerwünschte Nichtlinearitäten verhindern lassen. Eine Beschreibung des Aufbaus sowie die Charakterisierung des Ytterbium-Hochleistungsverstärkers folgt in Abschnitt 3.4. Eine weitergehende mechanische und thermische Stabilisierung, wie sie im Rahmen dieser Arbeit realisiert werden konnte, sowie die Implementierung einer zeitlichen Synchronisation mit der passiv phasenstarren Quelle sind Voraussetzungen für den stabilen Betrieb des in Kapitel 4 beschriebenen ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers und werden in Abschnitt 3.5 thematisiert. Die neu geschaffene Möglichkeit zur Variation der Repetitionsrate des Hochleistungsverstärkers (Abschnitt 3.6) ermöglicht dabei die Optimierung der Impulsparameter für die jeweilige Anwendung.

3.1 Ytterbium-Fasern als Verstärkungsmedium

Während die Erbium-Fasertechnologie durch ihre Anwendung in der Telekommunikation große Bedeutung erlangt hat (vgl. Abschnitt 2.1), ist sie für Hochleistungsanwendungen weitestgehend ungeeignet. Dies liegt maßgeblich am hohen Quantendefekt von 37 %. Mit Ytterbium dotierte Glasfasern sind diesbezüglich weit überlegen und können je nach Pump- und Emissionswellenlänge Werte kleiner als 5 % aufweisen. Weiterhin sind nur zwei Energieniveaus der Yb^{3+}-Ionen für die optischen Eigenschaften verantwortlich, was viele parasitäre Effekte verhindert, welche die Gesamteffizienz mindern, etwa Absorption aus dem angeregten Zustand oder Fluoreszenzlöschung (*engl.* quenching) [Nil95,Pas97a,Pas97b]. Zusammen mit der großen Verstärkungsbandbreite und den erzielbaren hohen Dotierungsdichten ergeben sich damit ideale Voraussetzungen für die effiziente Verstärkung ultrakurzer Impulse.

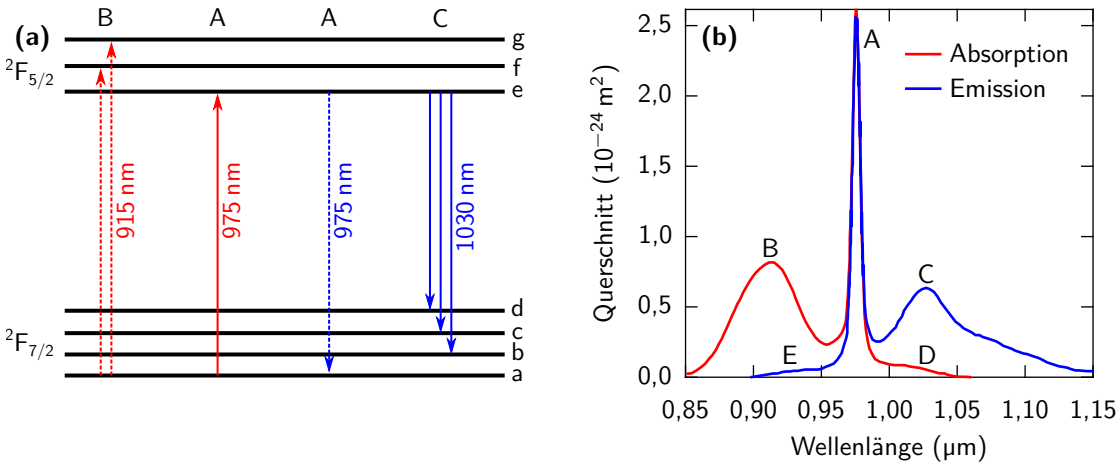

Abbildung 3.1 – (a) Energieniveauschema von Yb^{3+}-Ionen in einer Glasmatrix und (b) zugehöriger Absorptions- und Emissionsquerschnitt. Lediglich zwei Energieniveaus (aufgespalten durch den Stark-Effekt) bestimmen die optischen Eigenschaften. Die charakteristischen Merkmale sind durch Großbuchstaben (A-E) markiert und werden im Text erklärt. Eine schmalbandige Pumpquelle bei einer Wellenlänge von 975 nm erlaubt breitbandige Verstärkung bei Wellenlängen um 1030 nm. Nach [Pas95] und [Pas97b].

Abbildung 3.1a zeigt einen Ausschnitt des Energieniveauschemas von Yb^{3+}-Ionen in einer Glasmatrix. Die beiden für die optischen Eigenschaften verantwortlichen Energieniveaus $^2F_{7/2}$ und $^2F_{5/2}$ sind durch den Stark-Effekt in mehrere Unterniveaus aufgespalten (a-g) [Pas95]. Anhand des Energieniveauschemas lässt sich der spektrale Verlauf von Absorption und Emission erklären, welcher in Abbildung 3.1b gezeigt ist. Beide sind durch ein schmales Maximum bei einer Wellenlänge von 975 nm dominiert (A), welches Übergängen zwischen den energetisch niedrigsten Stark-Niveaus (a $\longleftrightarrow$ e) entspricht.

Eine Anregung in die höher liegenden Niveaus von $^2F_{5/2}$ (a $\longrightarrow$ f/g) resultiert im breiteren Absorptionsmaximum (B), welches bei einer Wellenlänge von 915 nm zentriert ist. Die Relaxation des angeregten Zustands in höher liegende Niveaus des Grundzustands (e $\longrightarrow$ b/c/d) resultiert in einer breitbandigen Emission (C), deren Maximum bei einer Wellenlänge von 1030 nm liegt. Die Ausläufer in Absorption (D) und Emission (E) sind auf Anregung bzw. Relaxation aus den thermisch besetzten Niveaus (b/f) zurückzuführen.

Ein gebräuchliches Pumpschema macht sich die starke Absorption bei einer Wellenlänge von 975 nm zu Nutze, um eine breitbandige Verstärkung im Wellenlängenbereich von 1,0 µm bis 1,2 µm zu ermöglichen. Es wird auch im vorgestellten Lasersystem eingesetzt. Das Verstärkungsmaximum liegt bei einer Wellenlänge von 1,03 µm, was einen sehr geringen Quantendefekt von nur 5 % zur Folge hat. Die schmalbandige Absorption stellt jedoch hohe Anforderungen an die spektrale Bandbreite und Wellenlängenstabilität der Pumpquelle. Trotz des höheren Quantendefekts von 11 % werden deshalb auch oft Pumpquellen mit einer Zentralwellenlänge von 915 nm eingesetzt.

Faserverstärker auf Basis von Yb:Fasern erreichen bei Signalwellenlängen von 1,03 µm regelmäßig Effizienzen um 70 % (optisch zu optisch). Dieser Wert wird auch von dem in Abschnitt 3.4 vorgestellten Hochleistungsverstärker erreicht, welcher eine mit Ytterbium dotierte photonische Kristallfaser als aktives Medium verwendet.

3.2 Erzeugung eines Eingangssignals mit variabler Repetitionsrate

Der Impulszug aus der passiv phasenstarren Quelle ist bei einer Wellenlänge von 1,55 µm zentriert und hat eine Repetitionsrate von 40 MHz. Um das Eingangssignal für den Ytterbium-Verstärkerzweig mit spektralen Anteilen im Wellenlängenbereich des Verstärkungsmaximums bei 1,03 µm zu erzeugen, wird die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearen Glasfasern genutzt. Darüber hinaus erlaubt ein elektrooptischer Modulator die Anpassung der Repetitionsrate auf beliebige Sub-Harmonische der ursprünglichen Wiederholrate. Letzteres hat zwei Vorteile: Zum einen ermöglicht die Absenkung der Repetitionsrate eine Reduzierung der Durchschnittsleistung zugunsten einer erhöhten Impulsenergie. Im Rahmen dieser Arbeit konnten nach dem Ytterbium-Hochleistungsverstärker so Impulsenergien von 13 µJ erreicht werden (vgl. Abschnitt 3.6), was bei voller Repetitionsrate einer Leistung von 520 W entspräche. Dies würde sieben Mal mehr Pumpleistung als derzeit verfügbar benötigen und die für die Verstärkerfasern akzeptable thermische Last bei weitem überschreiten. Zum anderen erlaubt es die Optimierung der Impulsparameter für die jeweilige Anwendung, da Impulsenergie, thermischer Eintrag in die Probe sowie Messdauer gegeneinander abgewogen werden können.

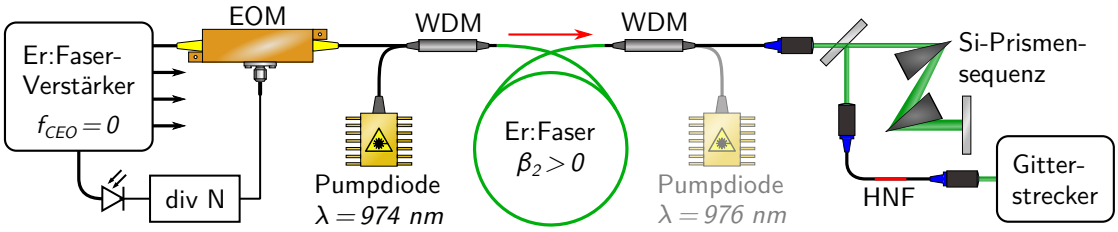

Abbildung 3.2 – Schematische Darstellung des Aufbaus zur Signalerzeugung für den Ytterbium-Verstärkerzweig. Die Repetitionsrate des Impulszuges aus der passiv phasenstarren Quelle kann mit einem elektrooptischen Modulator (EOM) auf beliebige Sub-Harmonische eingestellt werden, ein Frequenzteiler liefert dabei das Modulationssignal. Nach Verstärkung der Impulse in einem Er:Faser-Verstärker und Kompression in einer Silizium-Prismensequenz ist die Spitzenintensität ausreichend für die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearer Glasfaser (HNF), in der ein bei einer Wellenlänge von 1,03 µm zentriertes Spektrum erzeugt wird. Vor der hohen Verstärkung in Yb:Fasern werden die Impulse zeitlich gestreckt.

Der Aufbau, mit dem die Variation der Repetitionsrate sowie die nichtlineare Frequenzkonversion ermöglicht werden, ist schematisch in Abbildung 3.2 dargestellt. Der Impulszug aus der passiv phasenstarren Quelle wird direkt in einen fasergekoppelten elektrooptischen Modulator geleitet. Das Gerät besteht aus einem Michelson-Interferometer, bei dem sich der optische Wegunterschied zwischen den Armen durch Anlegen einer Spannung variieren und so am Ausgang entweder konstruktive oder destruktive Interferenz erzielen lässt (für Details, siehe [Wun15b,Woo00]). Zur Erzeugung des Spannungssignals wird der verstärkte Photostrom einer fasergekoppelten Photodiode verwendet, die aus einem Monitorausgang des Er:Faser-Verstärkers gespeist wird. Geeignete Elektronik und ein Funktionsgenerator erlauben es, die Frequenz dieses Triggersignals auf beliebige Sub-Harmonische einzustellen und daraus eine Rechteckspannung mit geeigneter Verzögerung und Amplitude zu erzeugen. Für geringe Repetitionsraten im Bereich einiger 100 kHz ist eine besonders präzise Einstellung der Spannungsniveaus und der Breite der Spannungsimpulse nötig, um maximale Unterdrückung für die unerwünschten Laserimpulse zu erreichen. Deren Anteil an der Gesamtleistung kann andernfalls erheblich werden und die Effizienz der nachfolgenden Verstärkerstufe verringern, was zu stark erhöhten Rauschbeiträgen führt.

Der Impulszug mit reduzierter Repetitionsrate durchläuft anschließend einen nichtlinearen Er:Faser-Verstärker (vgl. Abschnitt 2.3), um eine ausreichende Impulsenergie für die Frequenzkonversion in hoch nichtlinearer Glasfaser zu erzielen. Sowohl für die Verstärkung als auch für die Frequenzkonversion muss die Impulsenergie bei Variation der Repetitionsrate konstant gehalten werden, um einen definierten Impulsformungsprozess durch den intensitätsabhängigen Einfluss der Nichtlinearität sicherzustellen. Dies kann für Repetitionsraten bis einschließlich 10 MHz durch Anpassung der Pumpleistung in Vorwärtsrichtung erreicht werden. Die geringfügige Änderung des Verstärkungsprofils

in der Er:Faser durch die modifizierte Inversion spielt dabei nur eine untergeordnete Rolle und stört den Impulsformungsprozess nicht. Für eine Repetitionsrate von 20 MHz reicht die zur Verfügung stehende Pumpleistung jedoch nicht aus um eine konstante Impulsenergie zu gewährleisten, weshalb zusätzlich das Licht einer zweiten Pumpdiode in Rückwärtsrichtung eingekoppelt wird. Dies hat einen größeren Einfluss auf das Verstärkungsprofil (vgl. [Adl07]), führt in diesem Fall jedoch ebenfalls nur zu einer geringfügigen Änderung der erzeugten Impulse, wie in [Tau16] gezeigt.

Die verstärkten Impulse werden nach Kompression in einer Silizium-Prismensequenz zur Frequenzkonversion in eine hoch nichtlineare Glasfaser eingekoppelt (vgl. Abschnitt 2.4). An dieser Stelle kann auf die Kollimation mit einem Parabolspiegel verzichtet werden, da nur ein spektraler Ausschnitt der dispersiven Welle als Eingangssignal für den Ytterbium-Verstärkerzweig benötigt wird. Chromatische Aberrationen haben damit keinen nennenswerten Einfluss und auch Materialdispersion durch die zusätzliche Linse ist im Vergleich zu den nachfolgenden Faserstrecken vernachlässigbar. Stattdessen kommt ein gewöhnlicher fasergekoppelter Kollimator zum Einsatz, was die Richtungsstabilität des Strahls noch einmal deutlich erhöht und in Hinblick auf die große Freistrahlstrecke im nachfolgenden Gitterstrecker besonders vorteilhaft ist.

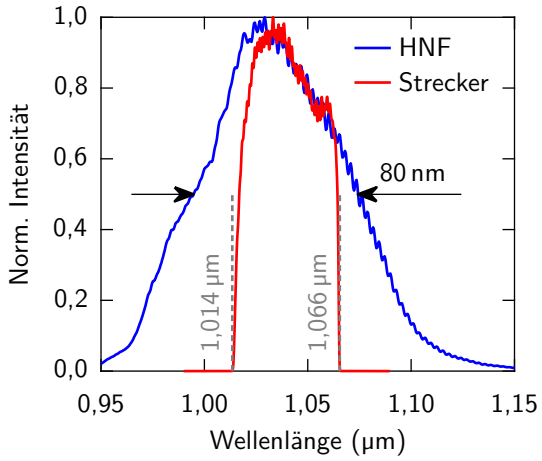

Abbildung 3.3 – Durch Frequenzkonversion in hoch nichtlinearer Glasfaser erzeugtes Eingangsspektrum für den Ytterbium-Verstärkerzweig (blau). Die Halbwertsbreite beträgt 80 nm, wovon ein 52 nm breiter zentraler Ausschnitt den Gitterstrecker passiert (rot). Die Leistung im beschnittenen Spektrum beträgt 1,2 mW und entspricht rechnerisch einem Anteil von 50 % der Gesamtleistung.

Das in der hoch nichtlinearen Glasfaser erzeugte Spektrum mit einer Halbwertsbreite von 80 nm ist in Abbildung 3.3 gezeigt. Durch den im nächsten Abschnitt beschriebenen Gitterstrecker wird davon ein Ausschnitt mit 52 nm Breite transmittiert. Die Leistung im beschnittenen Spektrum bei einer Repetitionsrate von 10 MHz liegt bei etwa 1,2 mW. Die Impulsenergie, die zur Verstärkung in der nachfolgenden Yb:Faser zur Verfügung steht, beträgt folglich 120 pJ.

3.3 Verstärkung zeitlich gestreckter Impulse – Implementierung von Gitterstrecker und -kompressor

Zwar lassen sich Nichtlinearitäten gezielt zur spektralen Verbreiterung und Frequenzkonversion nutzen, allerdings werden die von ihnen verursachten Phasenverschiebungen schnell sehr groß und weisen oft einen komplizierten spektralen Verlauf auf. Sie lassen sich durch gängige Methoden nicht mehr ausgleichen und die erzeugten Impulse sind nicht mehr komprimierbar. Selbst wenn die Impulsform bei der Verstärkung erhalten werden kann, führt die schnell ansteigende Spitzenintensität leicht zu Beschädigungen optischer Komponenten. In Glasfasern ist dabei insbesondere katastrophale Selbstfokussierung limitierend, die ab einem Schwellwert von rund 4 MW Spitzenleistung einsetzt und nicht von der Modenfeldgröße abhängt [Kas88,Fib00].

Es ist deshalb nötig, die Impulse vor der Verstärkung zeitlich zu strecken und so die Spitzenleistung zu reduzieren, um damit Nichtlinearitäten zu minimieren sowie Beschädigungen zu vermeiden. Nach der Verstärkung können die Impulse auf ihre ursprüngliche Dauer rekomprimiert werden. Das Prinzip der Verstärkung gestreckter Impulse (CPA, *engl.* chirped pulse amplification, [Str85]) ist in Abbildung 3.4 dargestellt.

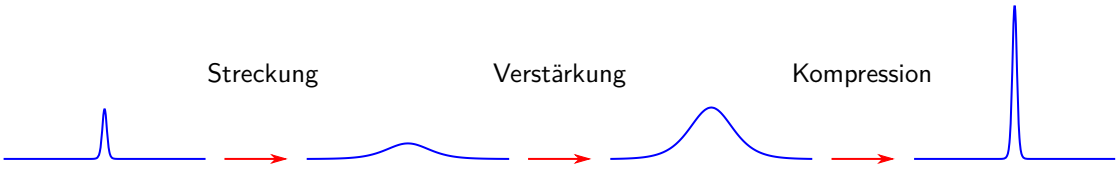

Abbildung 3.4 – Prinzip der Verstärkung frequenzmodulierter Impulse anhand des zeitlichen Intensitätsverlaufs. Der Impuls wird zunächst gestreckt, wodurch die Spitzenintensität während der Verstärkung moderat bleibt. Erst im letzten Schritt wird der Impuls auf seine ursprüngliche Dauer rekomprimiert.

Im vorgestellten Lasersystem kommt eine Kombination aus einem Gitterstrecker, welcher positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion verursacht, und einem Gitterkompressor mit negativer Dispersion zum Einsatz.

Der Aufbau des Streckers ist schematisch in Abbildung 3.5 gezeigt. Ein Teleskop mit einem Abbildungsverhältnis von 1:1 erlaubt die Inversion der bei der ersten Gitterreflexion verursachten Winkeldispersion. Beträgt der Abstand zwischen den Komponenten jeweils f, ist die Gesamtdispersion Null (die Anordnung entspricht in diesem Fall dem oft für Impulsformer eingesetzten „$4f$-Aufbau“ [Wei88]). Wird der Abstand zwischen Gitter und Teleskop um eine Strecke z reduziert, verursacht der Aufbau negative Dispersion. Für die experimentelle Umsetzung wird ein Spiegelteleskop genutzt, um die Baugröße kompakt

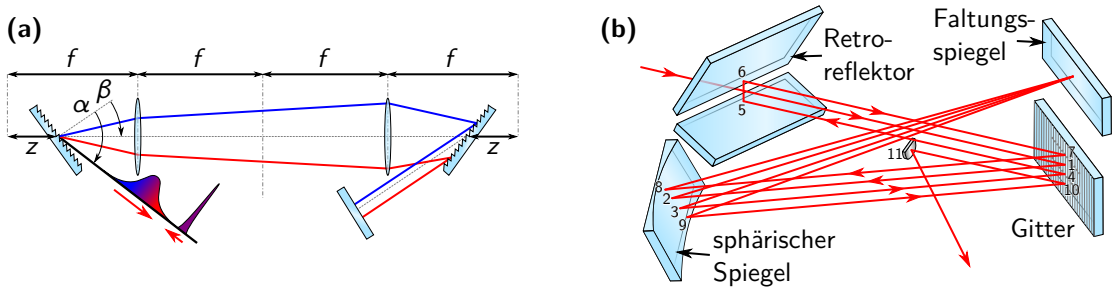

Abbildung 3.5 – (a) Schematische Darstellung eines Gitterstreckers mit positiver Dispersion. Neben Einfallswinkel α und dem resultierenden Beugungswinkel β der Zentralwellenlänge bestimmt vor allem die Verschiebung z der Gitter im Vergleich zu einem idealen $4f$-Aufbau die Gruppengeschwindigkeitsdispersion. (b) Experimentelle Anordnung mit sphärischem Spiegel statt Linsen. Ein zusätzlicher Retroreflektor ermöglicht den Aufbau mit nur einem Gitter.

und Abbildungsfehler gering zu halten. Weiterhin wird der Aufbau in der Symmetrieebene gefaltet, wodurch für die insgesamt vier Reflexionen nur ein Gitter benötigt wird.

Der Betrag der verursachten Gruppengeschwindigkeitsdispersion ist durch die zweite Ableitung der spektralen Phase ϕ nach der Frequenz $f = \omega/2\pi$ gegeben und lässt sich mit Hilfe der Gittergleichung berechnen. Für Licht der Wellenlänge λ, welches an einem Gitter gebeugt wird, gilt als Bedingung für konstruktive Interferenz

$$\sin\alpha + \sin\beta = \frac{m\lambda}{d}\,, \tag{3.1}$$

wobei α der Einfallswinkel des Strahls, β der Beugungswinkel für die Ordnung m und d die Gitterkonstante ist. Für die Anordnung des Streckers ergibt sich damit [Mar87,Die06]

$$\frac{\mathrm{d}^2\phi}{\mathrm{d}\omega^2} = 4z\frac{\omega}{c}\left(\frac{\mathrm{d}\beta}{\mathrm{d}\omega}\right)^2\,, \tag{3.2}$$

mit der Lichtgeschwindigkeit c und der durch das Gitter verursachten Winkeldispersion

$$\frac{\mathrm{d}\beta}{\mathrm{d}\omega} = \frac{2\pi mc}{\omega^2 d}\frac{1}{\cos\beta} = \frac{2\pi mc}{\omega^2 d}\left[1-\left(\frac{2\pi mc}{\omega d}-\sin\alpha\right)^2\right]^{-1/2}\,. \tag{3.3}$$

Der Kompressor ist so ausgelegt, dass er Dispersion mit entgegengesetztem Vorzeichen verursacht. Abbildung 3.6 zeigt schematisch den Aufbau und die experimentelle Realisierung. Im Vergleich zum Strecker entfällt das Teleskop zwischen den Gittern. Der frequenzabhängige Gangunterschied lässt sich nun direkt durch Variation des Normalenabstands b festlegen. Wie beim Strecker wird der experimentelle Aufbau zweifach gefaltet, um mit vier Reflexionen auf einem einzigen Gitter auszukommen. Da die Inversion des Strahls nicht mehr durch das Teleskop möglich ist, kommt für den Kompressor zusätzlich

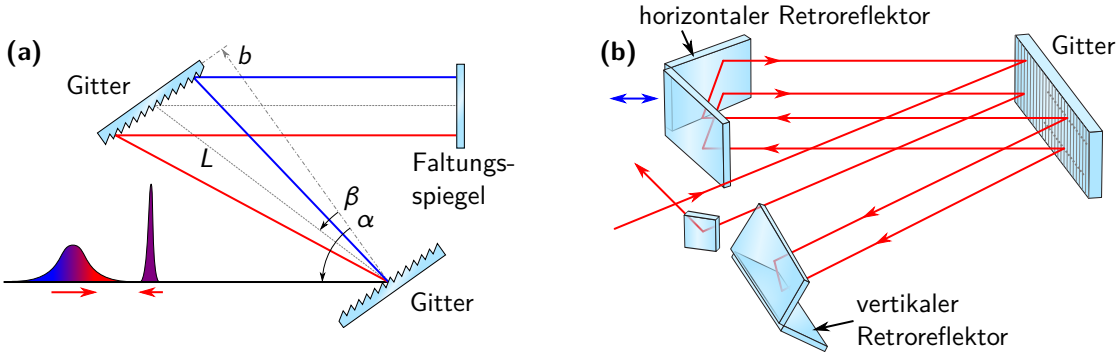

Abbildung 3.6 – (a) Schematische Darstellung eines Gitterkompressors mit negativer Dispersion. Neben Einfallswinkel α und dem resultierenden Beugungswinkel β der Zentralwellenlänge bestimmt vor allem der Normalenabstand b zwischen den Gittern die Gruppengeschwindigkeitsdispersion. (b) Experimentelle Anordnung mit zusätzlichem horizontalem Retroreflektor, was den Aufbau mit nur einem Gitter ermöglicht. Eine Verschiebung des horizontalen Retroreflektors erlaubt die Feineinstellung der verursachten Dispersion.

ein horizontaler Retroreflektor zum Einsatz. Durch Verschieben erlaubt dieser ferner die kontinuierliche Änderung von b und damit die Feinjustage der Dispersion.

Wie schon beim Gitterstrecker lässt sich mit Hilfe der Gittergleichung und geometrische Überlegungen eine Beziehung für den Betrag der verursachten Gruppengeschwindigkeitsdispersion herleiten [Tre69,Die06]:

$$\frac{\mathrm{d}^2\phi}{\mathrm{d}\omega^2} = -\frac{\lambda}{\pi c^2}\left(\frac{\lambda}{d}\right)^2 \frac{b}{\cos^3\beta} = -\frac{\lambda}{\pi c^2}\left(\frac{\lambda}{d}\right)^2 \frac{L}{\cos^2\beta}\,. \tag{3.4}$$

Der Normalenabstand b wurde dabei im letzten Schritt durch den experimentell leichter zugänglichen Abstand der Gitter in Strahlrichtung L ausgedrückt durch $b = L\cos\beta$.

Mit den für den experimentellen Aufbau ermittelten Größen (vgl. [Wun15b]) lässt sich nach Gleichungen 3.2 und 3.4 die durch Strecker bzw. Kompressor verursachte Gruppengeschwindigkeitsdispersion abschätzen. Sie liegt bei etwa $20\,\mathrm{ps}^2$ mit entsprechend negativem Vorzeichen beim Kompressor. Letzterer muss zusätzlich die durch die Verstärkerfasern verursachte Materialdispersion ausgleichen. Bei einer Gruppengeschwindigkeitsdispersion von $19\,\mathrm{fs}^2/\mathrm{mm}$ für Quarzglas bei der Signalwellenlänge von $1{,}03\,\mu\mathrm{m}$ [Mal65] beträgt diese für knapp 3 m Faserlänge jedoch nur $0{,}05\,\mathrm{ps}^2$.

Für die Impulse vor der Verstärkung, die noch eine sehr hohe spektrale Breite aufweisen (vgl. Abbildung 3.3), erlaubt dies die Streckung auf eine Dauer von rund 1 ns. In den beiden Verstärkerstufen verringert sich die Halbwertsbreite jedoch auf 12 nm, was bei der großen linearen Frequenzmodulation zu einer kürzeren Impulsdauer von 500 ps führt [Wun15b].

Um maximale Effizienz bei der Streckung und insbesondere bei der Kompression sicherzustellen, kommen im vorgestellten Lasersystem spezielle dielektrische Reflexionsgitter zum Einsatz (MLD, *engl.* mutilayer dielectric grating). Diese bestehen aus einer mehrlagigen, auf ein Quarzglassubstrat aufgedampften, hochreflektiven dielektrischen Spiegelschicht, auf welche die beugende Struktur lithographisch aufgebracht ist [Per95]. Die damit erreichte Beugungseffizienz beträgt über 95 %. Weiterhin werden im Aufbau von Strecker und Kompressor ausschließlich dielektrisch beschichtete Spiegel mit Reflektivitäten größer als 99 % verwendet. Damit lässt sich eine Gesamteffizienz von 83 % erzielen. Das Eingangssignal für den im nächsten Abschnitt beschriebenen zweistufigen Yb:Faser-Hochleistungsverstärker wird somit nicht nur effizient gestreckt. Auch nach der Verstärkung und Rekompression steht ein Großteil der erzeugten Leistung für die Anwendung zur Verfügung.

3.4 Zweistufiger Yb:Faser-Hochleistungsverstärker zur Skalierung der Impulsenergie in den Mikrojoule-Bereich

Nach der zeitlichen Streckung des in hoch nichtlinearer Glasfaser erzeugten Eingangssignals mit variabler Repetitionsrate (vgl. Abschnitt 3.2) steht eine Impulsenergie von 0,12 nJ zur Verfügung. Um den Mikrojoule-Bereich zu erreichen, ist deshalb eine Verstärkung um mindestens vier Größenordnungen nötig. Im Rahmen dieser Arbeit wurden sogar Impulse mit Energien bis 13 µJ erzeugt, was einer Verstärkung von mehr als 50 dB entspricht. Diese kann nicht in einer einzelnen Verstärkerstufe erzielt werden, da in diesem Regime auch der Anteil an verstärkter spontaner Emission (ASE, *engl.* amplified spontaneous emission) schnell zunimmt. Insbesondere zu Beginn der Verstärkung, wenn das Nutzsignal noch sehr klein ist, sollte die Verstärkung deshalb reduziert werden, um ASE zu minimieren und so einen stabilen Betrieb zu gewährleisten. Im vorgestellten Lasersystem kommen deshalb zwei Verstärkerstufen zum Einsatz, die durch optische Isolatoren voneinander getrennt sind. ASE und Rückreflexe aus dem Hauptverstärker werden somit blockiert und können den Vorverstärker nicht beeinflussen. Weiterhin erlaubt der zweistufige Aufbau die Verwendung von auf die jeweilige Leistungsklasse optimierten Komponenten: Im Vorverstärker wird eine konventionelle Stufenindexfaser eingesetzt, welche die Integration mit kommerziell erhältlichen Faserkomponenten erlaubt und unter anderem die zuverlässige und justagefreie Einkopplung von Pumplicht aus stabilen monomodigen Laserdioden über Wellenlängenmultiplexer ermöglicht. Der Hauptverstärker basiert auf einer photonischen Kristallfaser (PCF, *engl.* photonic crystal fiber) mit vergrößertem Modenfelddurchmesser, welche sehr viel höhere Leistungen tolerieren kann und durch einen zusätzlichen Pumpkern die Verwendung besonders leistungsstarker multimodiger Pumpdioden erlaubt.

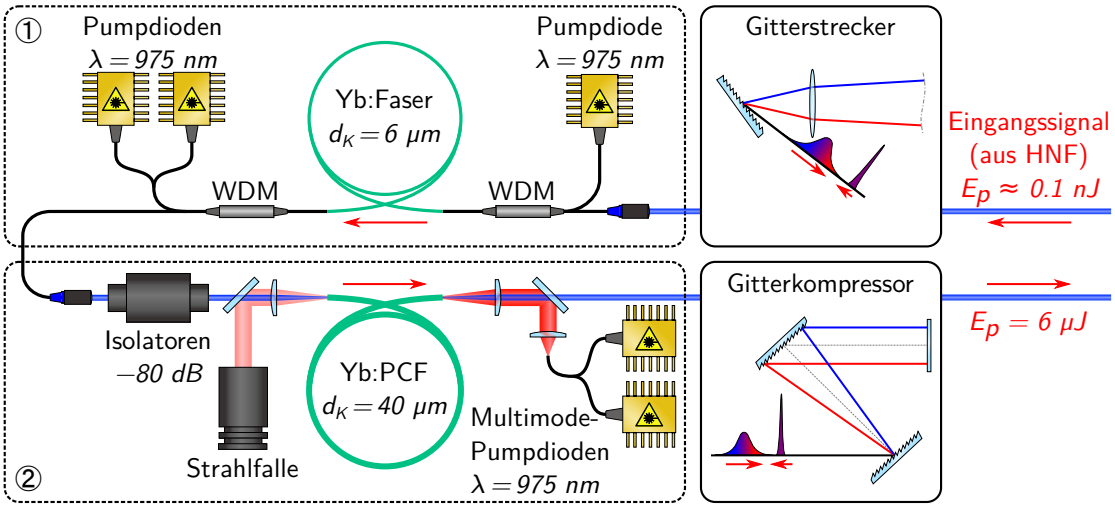

Abbildung 3.7 – Schematische Darstellung des Aufbaus des zweistufigen Ytterbium-Hochleistungsverstärkers. Das in einer hoch nichtlinearen Glasfaser erzeugte und bei einer Wellenlänge von 1,03 µm zentrierte Eingangssignal wird zunächst zeitlich gestreckt (vgl. Abbildung 3.5 für Details zum Gitterstrecker). Die erste Verstärkerstufe nutzt eine konventionelle Yb:Stufenindexfaser mit einem Kerndurchmesser von 6 µm und wird von insgesamt drei wellenlängenstabilisierten in Monomodenfaser gekoppelten Laserdioden gepumpt, deren Licht über Wellenlängenmultiplexer eingekoppelt wird. Zwei Freistrahl-Isolatoren mit einer Dämpfung von insgesamt 80 dB schützen vor Rückreflexen aus der zweiten Verstärkerstufe. Diese nutzt eine mit Ytterbium dotierte photonische Kristallfaser mit einem deutlich größeren Kerndurchmesser von 40 µm und einem multimodigen Pumpkern, dessen Durchmesser 200 µm beträgt. Die Einkopplung von Signal- und Pumplicht erfolgt im Freistrahl mit dielektrischen Spiegeln zur Trennung der unterschiedlichen Wellenlängen. Als Pumpquelle dienen zwei wellenlängenstabilisierte in Multimodenfaser gekoppelte Hochleistungs-Laserdioden. Der verstärkte Impulszug wird anschließend rekomprimiert (vgl. Abbildung 3.6 für Details zum Gitterkompressor).

Der Aufbau des kompletten Ytterbium-Hochleistungsverstärkers ist schematisch in Abbildung 3.7 gezeigt, inklusive Gitterstrecker und -kompressor zur zeitlichen Streckung vor der Verstärkung bzw. anschließender Rekompression (siehe Abschnitt 3.3). Das zeitlich gestreckte Signal wird zunächst in eine Stufenindexfaser eingekoppelt. Die hohe Modenqualität nach dem Gitterstrecker erlaubt dabei eine Effizienz von nahezu 100 %. Anschließend erfolgt die Verstärkung in einer mit Ytterbium dotierten Stufenindexfaser mit 6 µm Kerndurchmesser. Pumplicht aus insgesamt drei durch Faser-Bragg-Gitter wellenlängenstabilisierten Laserdioden wird über Wellenlängenmultiplexer in die aktive Faser eingekoppelt, womit eine Leistung von etwa 2,1 W bei einer Wellenlänge von 975 nm in der aktiven Faser zur Verfügung steht.

Für die zweite Verstärkerstufe wird das Signal zunächst ausgekoppelt und durchläuft zwei optische Isolatoren mit hohen Dämpfungen von −42,8 dB und −38 dB in Rückwärtsrich-

tung. Die Einkopplung in die aktive Faser erfolgt durch Fokussierung mit einer Linse aus dem Freistrahl. Es wird eine spezielle photonische Kristallfaser (aeroGAIN FLEX, NKT Photonics) eingesetzt, die sich das Prinzip des effektiven Brechungsindex [Bir97] zunutze macht, um trotz eines großen Kerndurchmessers von 40 µm einen rein monomodigen Betrieb zu gewährleisten. Der Modenfelddurchmesser beträgt 30 µm, womit sich im Vergleich zur im Vorverstärker verwendeten Stufenindexfaser eine etwa 25 Mal größere Modenfläche ergibt. Zusätzlich besitzt die Faser einen multimodigen Pumpkern mit einem Durchmesser von 200 µm, der durch sogenannte „Air-Clad“-Technologie eine besonders große numerische Apertur von 0.55 besitzt und somit die effiziente Einkopplung von Pumplicht erlaubt [Han11]. Dieses wird von zwei multimodig fasergekoppelten Hochleistungspumpdioden erzeugt, welche jeweils 55 W Leistung bei einer durch Volumen-Bragg-Gitter stabilisierten Wellenlänge von 975 nm zur Verfügung stellen. Wie das Signallicht wird auch das Pumplicht aus dem Freistrahl in die Verstärkerfaser eingekoppelt, zur Maximierung der Konversionseffizienz und Minimierung von ASE jedoch in entgegengesetzter Richtung. Zur Überlagerung mit dem Signallicht kommt dabei ein dielektrischer Stahlteiler zum Einsatz, der für die Signalwellenlänge hochreflektiv ist und für die Pumpwellenlänge eine hohe Transmission aufweist. Ein baugleicher Strahlteiler trennt auch das nicht absorbierte Pumplicht am Eingang der Verstärkerfaser vom Signallicht, um die thermische Last für die vorhergehenden Komponenten gering zu halten.

Da der Ytterbium-Hochleistungsverstärker ursprünglich für eine Repetitionsrate von 10 MHz ausgelegt war [Wun15b], wird diese für die nachfolgende Charakterisierung impliziert. Insbesondere kann bei dieser Repetitionsrate die verfügbare Pumpleistung voll ausgenutzt werden, ohne durch nichtlineare Effekte in der Verstärkerfaser limitiert zu sein. Für Vergleichsmessungen mit höheren [Tau16] sowie reduzierten Repetitionsraten (Abschnitt 3.6) werden jedoch nahezu identische Resultate erzielt, weshalb die hier präsentierten Ergebnisse in der Regel auch auf andere Wiederholraten übertragbar sind.

Die nach der ersten Verstärkerstufe maximal erreichte Durchschnittsleistung beträgt 700 mW, was einer Impulsenergie von 70 nJ entspricht und einen Verstärkungsfaktor von knapp 28 dB ergibt. Nach der zweiten Verstärkerstufe beträgt die erzielte Leistung bis zu 72 W, entsprechend einer Impulsenergie von 7,2 µJ bei einem Verstärkungsfaktor von über 20 dB.

Die bei diesen Impulsparametern erzeugten Ausgangsspektren sind in Abbildung 3.8 gezeigt. Obwohl das 47,5 nm breite Eingangsspektrum vollständig innerhalb der Verstärkungsbandbreite der Yb:Fasern liegt, ändert sich die Intensitätsverteilung im Laufe der Verstärkung deutlich. Dies liegt am charakteristischen Verstärkungsspektrum von Yb:Fasern [Pas95], welches zu einer Abnahme der spektralen Breite führt, die inhärent vom Verstärkungsfaktor abhängt. Man spricht deshalb von sogenanntem „Gain Narrowing“. Die Halbwertsbreite sinkt im Vorverstärker auf 14,7 nm und beträgt nach dem

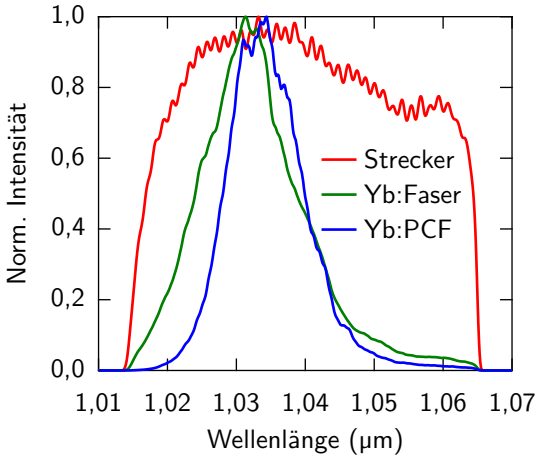

Abbildung 3.8 – Eingangsspektrum nach dem Gitterstrecker (rot) und Spektren nach der zweistufigen Verstärkung in Yb:Faser (grün) und Yb:PCF (blau). Die anfängliche Halbwertsbreite von 47,5 nm sinkt aufgrund von Gain-Narrowing auf 14,7 nm und schließlich 11,9 nm. Die Zentralwellenlänge bleibt nahezu konstant und beträgt 1040 nm, 1033 nm bzw. 1035 nm.

Hauptverstärker schließlich 11,9 nm. Weiterhin ist beim Vergleich der Ausgangsspektren aus den beiden Verstärkerstufen eine Verlagerung der Intensität von kurzen zu langen Wellenlängen zu beobachten. Diese lässt sich ebenfalls über das Verstärkungsspektrum von Yb:Fasern erklären, welches seinen Schwerpunkt für höhere Inversion des aktiven Mediums zu kürzeren Wellenlängen verschiebt. Trotz der sehr viel höheren Pumpleistung der Yb:PCF ist die Inversion im Vergleich zur Yb:Faser im Vorverstärker geringer, was bereits der kleinere Verstärkungsfaktor andeutet. Eine Abschätzung der Anregungsdichte bestätigt dies: Die Pumpintensität (normiert auf den Durchmesser des aktiven Kerns) im Hauptverstärker ist lediglich um einen Faktor 2 höher, wobei die Doppelmantelstruktur die Effizienz der Pumplichtabsorption sogar noch reduziert. Dem steht die fast viermal so hohe Dotierung und dreifache Länge der Yb:PCF gegenüber. Ein weiterer Effekt ergibt sich als Folge der in der Yb:PCF erreichten hohen Temperatur. Sie beträgt an der Oberfläche über 163 °C [Wun15b], und kann aufgrund der geringen Wärmeleitfähigkeit von Quarzglas im Kern der Faser noch deutlich höher liegen. Die resultierende Zunahme der thermischen Besetzung höher liegender Stark-Niveaus des Grundzustandes (vgl. Abschnitt 3.1) führt in Verbindung mit dem Quasi-Drei-Niveau-Verhalten zu einer Abnahme der Verstärkung für kurze Wellenlängen [New07,Moo11].

Die Kompression der Impulse (vgl. Abschnitt 3.3) ist durch den Einsatz eines hochreflektiven dielektrischen Gitters mit einer Effizienz von 83 % möglich. Es steht damit eine Durchschnittsleistung von bis zu 60 W zur Verfügung, was einer Impulsenergie von 6 µJ entspricht. Die Charakterisierung der komprimierten Impulse erfolgte mittels frequenzaufgelöstem optischem Abtasten (FROG, *engl.* frequency resolved optical gating, [Kan93,Tre00]). Das gemessene SHG-FROG Spektrogramm und dessen Auswertung sind in Abbildung 3.9 gezeigt. Es ergibt sich eine Impulsdauer von 145 fs, die Spitzeinleistung beträgt 36,8 MW. Die Rekonstruktion der spektralen Phase zeigt, dass deren dritte Ordnung nicht vollständig ausgeglichen ist, was auch die etwas längere Impulsdauer

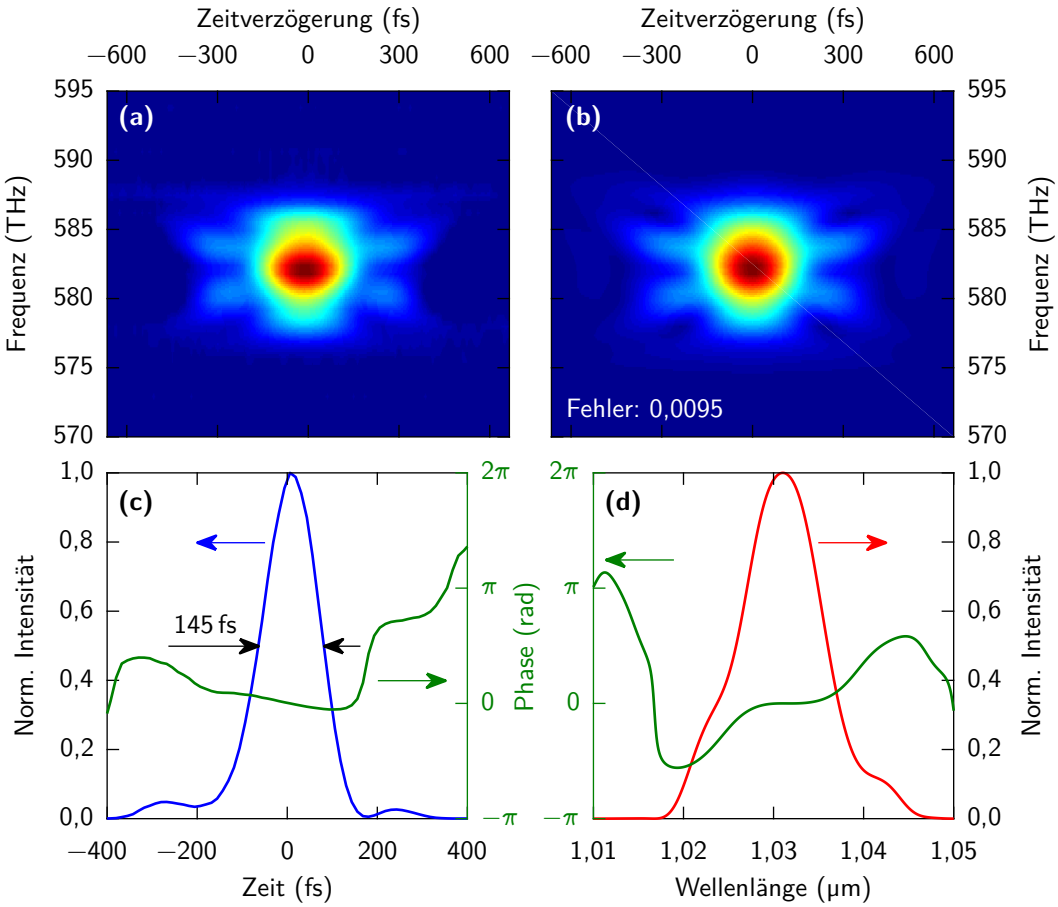

Abbildung 3.9 – Charakterisierung der komprimierten Impulse aus dem Yb:PCF-Hochleistungsverstärker mit 6 µJ Impulsenergie mittels SHG-FROG. (a) Spektrale Intensität der Autokorrelation zweiter Ordnung mit einer Auflösung von 128 × 128 Pixeln und (b) deren Rekonstruktion mit einem Fehler kleiner als 1 %. (c) Aus der Rekonstruktion ermittelter zeitlicher Intensitätsverlauf und (d) zugehöriges Spektrum, mit jeweiliger Phase (grün). Die rekonstruierte Impulsdauer beträgt 145 fs bei einer Zentralwellenlänge von 1,03 µm.

im Vergleich zum Fourier-Limit von 125 fs erklärt. Während experimentell tatsächlich kürzere Impulsdauern erzielt werden konnten, führt dies jedoch nicht zu einer höheren Spitzenleistung, da ein zunehmender Anteil der Impulsenergie in zeitlichen Vor- und Nachläufern enthalten ist [Wun15b]. Die Ursache dafür sind sehr wahrscheinlich höhere Ordnungen der spektralen Phase, die mit dem Gitterkompressor nicht ausgeglichen werden können.

Ein Auszeichnungsmerkmal des vorgestellten Ytterbium-Hochleistungsverstärkers ist dessen hervorragende Amplitudenstabilität, sowohl auf kurzen als auch auf langen Zeitskalen [Wun15a]. Diese konnte durch eine Vielzahl von Optimierungsschritten erzielt

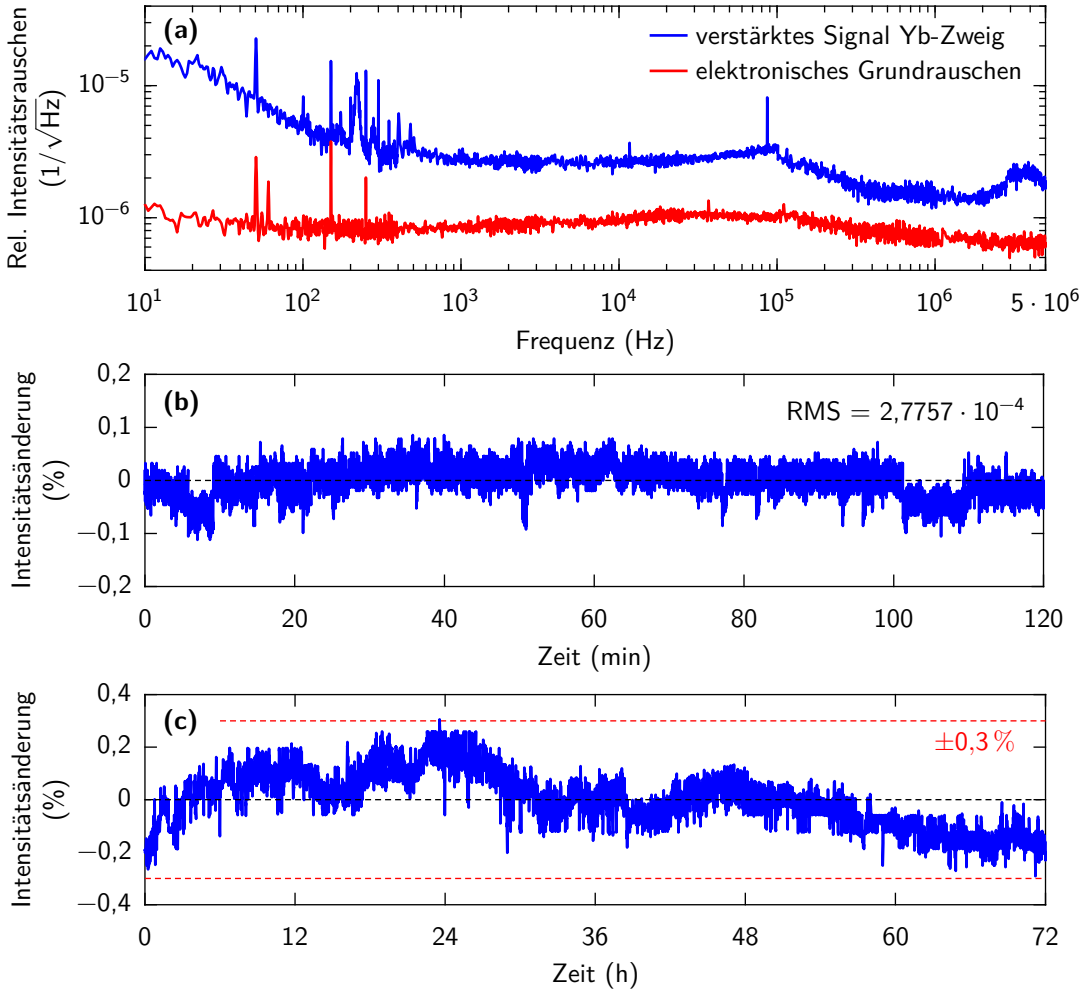

Abbildung 3.10 – Stabilität des komprimierten Impulszuges nach dem Ytterbium-Verstärkerzweig bezogen auf die volle Ausgangsleistung von 60 W. (a) Relatives Intensitätsrauchen des Impulszuges von 10 Hz bis zur Nyquist-Frequenz bei 5 MHz, gemessen mit einem Radiofrequenz-Spektrumanalysator. (b) Relative Änderung der Intensität über einen Zeitraum von zwei Stunden, gemessen mit einem Lock-In-Verstärker (Zeitkonstante 30 ms, Ausleserate 10 Hz). (c) Relative Änderung der Intensität über einen Zeitraum von drei Tagen, gemessen mit einer kalibrierten Photodiode (Ausleseintervall 5 s).

werden, welche im Detail in [Wun15b] beschrieben sind. Die vollständige Charakterisierung ist in Abbildung 3.10 gezeigt. Das relative Intensitätsrauschen liegt im gesamten Bereich von 10 Hz bis zur Nyquist-Frequenz bei 5 MHz unter $2 \cdot 10^{-5}\,\sqrt{\mathrm{Hz}}$, mit einem Wert von nur $1{,}5 \cdot 10^{-6}\,\sqrt{\mathrm{Hz}}$ bei einer Frequenz von 1 MHz. Die Langzeitstabilität wurde durch zwei unabhängige Messungen bestätigt: Über einen Zeitraum von zwei Stunden mit einer Ausleserate von 10 Hz beträgt das quadratische Mittel (RMS, *engl.* root mean square) der Amplitudenänderung nur $2{,}78 \cdot 10^{-4}$. Selbst über einen Zeitraum von drei Tagen ändert sich die Ausgangsleistung um weniger als $\pm 0{,}3\,\%$. Der Yb:Faser-Hochleistungsverstärker kombiniert damit große Impulsenergien und ultrakurze Impulsdauern bei gleichzeitig hoher Repetitionsrate und erlaubt trotz der damit verbundenen Durchschnittsleistung von nahezu 100 W einen maximal zuverlässigen und stabilen Betrieb.

3.5 Stabilisierung des Hochleistungsverstärkers – Kompensation von räumlichem und zeitlichem Drift

Die im letzten Abschnitt beschriebene, hervorragende Amplitudenstabilität schafft die Voraussetzung für hochpräzise Messungen, allerdings stellt sie nur einen Teilaspekt der Gesamtstabilität des Verstärkersystems dar. In der Praxis ebenso relevant ist die Stabilität der Strahlrichtung sowie die zeitliche Synchronisation unterschiedlicher Verstärkerzweige, welche z.B. für den stabilen Betrieb des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers (Kapitel 4) essentiell sind.

Die Stabilität der Strahlrichtung wird als direktes Resultat der hohen Ausgangsleistung durch thermische Effekte dominiert. Durch die Erwärmung optischer und optomechanischer Bauteile lässt sich ein geringer Drift nicht vermeiden. Im vorgestellten Lasersystem konnte dieser Effekt jedoch so weit reduziert werden, dass selbst ohne den Einsatz einer aktiven Strahlstabilisierung ein effizienter Messbetrieb möglich ist. Dazu wurde der Aufbau des Lasersystems konsequent so optimiert, dass Streulicht durch Strahlfallen und passive Komponenten blockiert wird, die nicht an der Strahlführung beteiligt sind. Reflexe an antireflexbeschichteten Optiken sowie die durch dielektrische Spiegel transmittierten Leistungsanteile werden, wann immer möglich, abgetrennt und aus dem System entfernt. Die Erwärmung von Optomechaniken lässt sich so minimieren. Weiterhin werden ausschließlich Linsen aus Quarzglas eingesetzt, da dieses eine geringere Absorption als das sonst übliche Borosilikat-Kronglas BK7 besitzt und zudem die Wärmeausdehnung geringer ist. Eine erhebliche Erhöhung der Stabilität konnte durch den Austausch von Optomechaniken aus Aluminium durch Komponenten aus Edelstahl erzielt werden, da der Wärmeausdehnungskoeffizient von Stahl nur etwa halb so groß ist [Hay14].

Für die Synchronisation des Impulszugs aus dem Hochleistungsverstärker mit den anderen Zweigen der passiv phasenstarren Quelle wurde eine balancierte Kreuzkorrelation [Sch03] zur aktiven Stabilisierung implementiert. Eine Besonderheit der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Realisierung besteht darin, dass das Regelsignal nicht durch Summenfrequenzerzeugung in einem nichtlinearen Kristall erzeugt wird, sondern direkt durch Zweiphotonenabsorption in der zur Detektion genutzten Photodiode. Das ermöglicht einen besonders kompakten Aufbau und vereinfacht die Justage stark.
Ein motorisierter Verschiebetisch im Strahlengang nach der Kompression ermöglicht die Anpassung der Zeitverzögerung des Ytterbium-Verstärkerzweigs. Zur Synchronisation wird anschließend an einem teildurchlässigen Spiegel ein Bruchteil von 1 % der Leistung abgespalten. Als Referenz aus der passiv phasenstarren Quelle dient das Soliton, welches parallel zum Eingangssignal für den optisch parametrischen Verstärker in einer hoch nichtlinearen Glasfaser erzeugt (vgl. Kapitel 4) und über einen dielektrischen Strahlteiler abgetrennt wird.

Der Aufbau des Kreuzkorrelators ist schematisch in Abbildung 3.11a gezeigt. Die beiden Impulszüge werden auf einem Strahlteiler kollinear überlagert. Um die Dispersion in beiden Armen vergleichbar zu halten, wird ein dünnes ($d \approx 1\,\mathrm{mm}$) Substrat aus BK7 verwendet. Die metallische Beschichtung besteht aus Inconel, was trotz der unterschiedlichen Wellenlängen in beiden Armen ein Teilungsverhältnis von etwa 1:1 ermöglicht und eine Reflexion und Transmission von rund 30 % aufweist. Die überlagerten Strahlen werden anschließend mit Linsen der Brennweite $f = 20\,\mathrm{mm}$ auf zwei identische GaAs-Photodioden fokussiert. Diese sind nur für Wellenlängen kleiner als 790 nm sensitiv, womit eine lineare Absorption für beide Impulse ausgeschlossen ist. Lediglich durch Zweiphotonenabsorption kann ein Photostrom erzeugt werden, der bei zeitlichem Überlapp der beiden Impulse folglich maximal wird. Die Photodioden weisen außerdem eine aktive Fläche von nur 40 µm Durchmesser auf, was geringfügig über der Fokusgröße liegt. Dies vereinfacht die Justage enorm, da die Strahlen unabhängig voneinander auf den jeweiligen Detektor justiert werden können, und die räumliche Überlagerung damit automatisch gegeben ist.

Um ein Regelsignal zu erzeugen, wird die Verzögerung der beiden Impulse so eingestellt, dass im ersten Arm der kurzwellige Impuls aus dem Ytterbium-Verstärker etwas früher eintrifft. Dessen Verzögerung führt folglich zu einer Erhöhung des Photostroms. Im zweiten Arm wird die relative Position der Impulse invertiert, indem der Unterschied der Gruppengeschwindigkeiten in einem 4 mm dicken Fenster aus dem Schwerflintglas SF66 ausgenutzt wird. Ein verzögertes Eintreffen des kurzwelligen Impulses führt in diesem Arm folglich zu einer Abnahme des Photostroms. Durch den Vergleich der beiden Diodensignale lässt sich somit nicht nur ein zeitlicher Drift feststellen, sondern sogar dessen Vorzeichen bestimmen. Zur Signalauswertung wird der Photostrom beider Photodioden transimpedanzverstärkt und das damit gewonnene Spannungssignal durch einen Analog-Digital-Wandler digitalisiert.

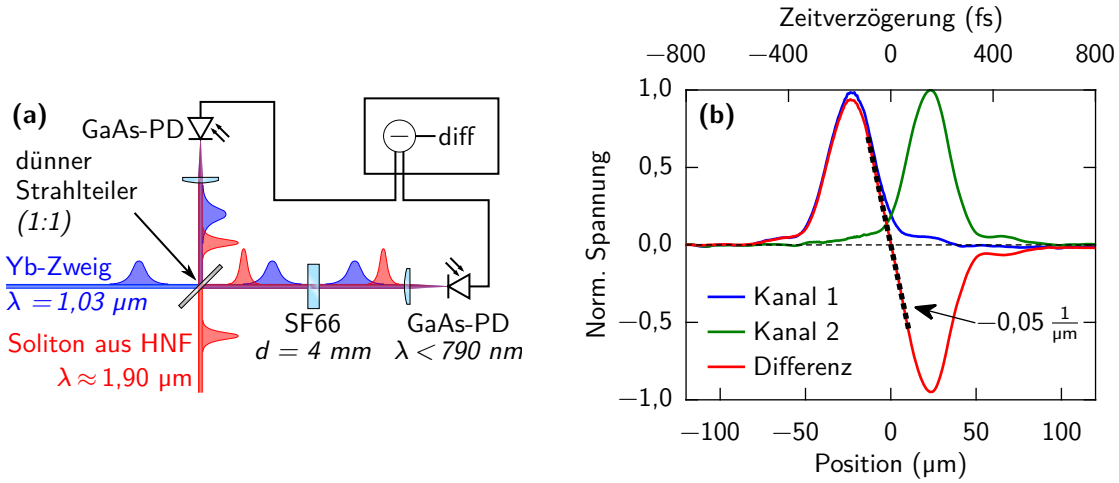

Abbildung 3.11 – Balancierte Kreuzkorrelation zur zeitlichen Synchronisation der komprimierten Impulse aus dem Ytterbium-Hochleistungsverstärker mit den parallelen Zweigen der passiv phasenstarren Quelle. (a) Schematische Darstellung des Aufbaus. Ein Bruchteil der Leistung aus dem Ytterbium-Zweig wird auf einem Strahlteiler kollinear mit dem in einem parallelen Zweig in einer hoch nichtlinearen Glasfaser erzeugten Soliton überlagert. Beide Teilstrahlen werden auf GaAs-Photodioden fokussiert, welche nur für Wellenlängen kleiner als 790 nm sensitiv sind und somit nur das Mehrphotonensignal detektieren können, welches bei zeitlichem Überlapp der beiden Impulse maximal wird. Die Weglängen werden so angepasst, dass das Soliton im ersten Arm zeitlich verzögert eintrifft, im zweiten Arm invertiert ein Fenster aus Schwerflintglas (SF66) durch seine hohe Gruppengeschwindigkeitsdispersion die zeitliche Abfolge. (b) Normiertes Ausgangssignal des Kreuzkorrelators. Die relative Verzögerung zwischen den Impulsen lässt sich mit einem motorisierten Verschiebetisch im Ytterbium-Zweig einstellen. Trifft der kurzwellige Impuls früher ein, vergrößert sich der zeitliche Überlapp im ersten Arm und das in Kanal 1 (blau) detektierte Spannungssignal wird größer. Der Messwert in Kanal 2 (grün) nimmt hingegen ab. Für eine Verzögerung des kurzwelligen Impulses ergibt sich entgegengesetztes Verhalten. Die Differenz der Spannungssignale (rot) weist damit einen Vorzeichenwechsel auf und der nahezu lineare Verlauf am Symmetriepunkt (schwarz gestrichelt) wird als Regelgröße für die aktive Stabilisierung genutzt.

Die Verwendung von SF66 ist an dieser Stelle besonders vorteilhaft, da der Nulldurchgang der Gruppengeschwindigkeitsdispersion bei einer Wellenlänge von 1,8 µm liegt. Das zeitlich kurze Soliton erfährt deshalb nur eine vernachlässigbar geringe dispersive Streckung. Der Einfluss auf den Impuls aus dem Ytterbium-Zweig ist aufgrund seiner geringeren spektralen Breite und damit höheren Ausgangsdauer ebenfalls vernachlässigbar (die Gruppengeschwindigkeitsdispersion von SF66 beträgt 178,30 $\mathrm{fs}^2/\mathrm{mm}$ bei einer Wellenlänge von 1,03 µm was zu einer Änderung der Impulsdauer von lediglich 1 fs führt).

Das Kreuzkorrelations-Signal, das bei Veränderung der Verzögerungszeit zwischen den beiden Impulszügen entsteht, ist in Abbildung 3.11b gezeigt. Da die Verzögerungsstrecke doppelt durchlaufen wird, entspricht die Änderung der Position des motorisierten

Verschiebetisches um 1 µm einer Verzögerung von 6,67 fs. Aufgetragen ist das normierte Spannungssignal, wobei der konstante Untergrund, der durch Zweiphotonenabsorption der individuellen Impulse ohne zeitlichen Überlapp verursacht wird, zuvor abgezogen wurde. Der Zeitversatz zwischen den beiden Armen beträgt 310 fs. Das Differenzsignal der Kanäle weist im Bereich des Symmetriepunkts einen nahezu linearen Verlauf und einen Nulldurchgang auf und eignet sich damit hervorragend als Regelgröße (es wird auf den Nullpunkt stabilisiert). Eine lineare Regression ergibt eine Steigung von −0,052/µm, womit sich die Position des motorisierten Verschiebetisches nach einer Änderung des zeitlichen Versatzes und damit des Regelsignals präzise nachführen lässt.

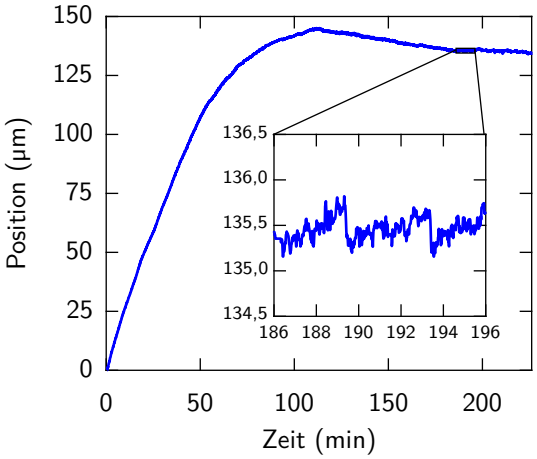

Abbildung 3.12 – Langzeitverhalten der zeitlichen Stabilisierung. Gezeigt ist die Position des motorisierten Verschiebetisches über einen Zeitraum von knapp vier Stunden bei aktiver Regelung. Die Position spiegelt damit die Änderung der zeitlichen Verzögerung zwischen den Impulszügen wieder. Der Ytterbium-Hochleistungsverstärker wurde zu Beginn der Messung eingeschaltet und benötigt etwa 2 Stunden zur Thermalisierung. Der Einsatz zeigt einen Ausschnitt von zehn Minuten nach thermischer Stabilisierung des Systems.

Um das Langzeitverhalten der zeitlichen Stabilisierung zu untersuchen, wurde die Position des Verschiebetisches bei aktiver Stabilisierung über einen Zeitraum von 225 Minuten nach Einschalten des Hochleistungsverstärkers aufgezeichnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.12 gezeigt.

Deutlich sichtbar ist eine Aufwärmphase von etwa 2 Stunden, während der sich die Position um fast 150 µm ändert, was einem zeitlichen Versatz von 1 ps entspricht. Die thermische Ausdehnung der im Ytterbium-Zweig eingesetzten Glasfaserstrecken kann diesen Wert nur teilweise erklären, denn sie beträgt für reines Quarzglas lediglich $0{,}5 \cdot 10^{-6}\,1/°\mathrm{C}$ [Hay14]. Für eine Erwärmung um 10 °C ergibt sich der zusätzliche optische Weg in einem Meter Glasfaser damit gerade einmal zu 7,25 µm. Dabei ist jedoch zu beachten, dass zumindest der Faserkern nicht aus reinem Quarzglas besteht und einige Glassorten einen bis zu einer Größenordnung höheren Ausdehnungskoeffizienten aufweisen können. Ein größerer Einfluss wird einer kleinen Änderung der Strahlrichtung im Gitterkompressor zugerechnet, wodurch sich prinzipbedingt eine große Änderung des Strahlwegs ergibt. Dies deckt sich auch mit der experimentellen Beobachtung, dass sich die Kompression nach einer Aufwärmphase durch geringfügige Justage meist ein wenig optimieren lässt.

Bei genauerer Betrachtung der Position auf der Zeitskala von zehn Minuten werden weitere Strukturen erkennbar. Zum einen tritt ein langsamer Drift mit eine Perioden-

dauer von etwa 3 min auf. Der sägezahnförmige Verlauf macht eine Regelschleife zur Temperaturstabilisierung, etwa durch Wasserkühlung oder Klimageräte, unwahrscheinlich. Stattdessen werden als Ursache Modensprünge in den wellenlängenstabilisierten Pumpdioden als Folge einer langsamen Temperaturänderung vermutet. Zum anderen ist eine sinusförmige Modulation mit einer relativ kurzen Periodendauer von etwa 30 s sichtbar, welche eine Ursache in der gemeinsamen Wasserkühlung von Hochleistungs-Pumpdioden und Yb:PCF nahelegt. Beide Effekte zusammen führen zu einer Positionsänderung von weniger als 1 µm, der kompensierte Zeitversatz liegt bei etwa 5 fs.

3.6 Variation der Repetitionsrate über mehr als zwei Größenordnungen und Impulsenergien über 10 µJ

Wie in Abschnitt 3.2 beschrieben, lässt sich die Repetitionsrate des Eingangssignals für den Ytterbium-Verstärkerzweig auf beliebige Sub-Harmonische der Wiederholrate der passiv phasenstarren Quelle von 40 MHz festlegen. Es konnte bereits erfolgreich gezeigt werden, dass damit die Erhöhung der Repetitionsrate von ursprünglich 10 MHz auf 20 MHz bei nahezu identischen Impulsparametern möglich ist [Tau16]. Da die Pumpleistung jedoch limitiert ist, erfordert dies offensichtlich eine Reduktion der Impulsenergie. Wird die Repetitionsrate hingegen reduziert, ist diese Begrenzung nicht gegeben und die Impulsenergie kann in diesem Fall sogar noch angehoben werden. Im Rahmen dieser Arbeit konnte die maximal erzielbare Impulsenergie somit noch einmal um über 80 % gesteigert werden. Im Folgenden wird das Verhalten des Hochleistungsverstärkers in diesem Regime vorgestellt.

Zunächst wurde das Verhalten der beiden Verstärkerstufen für konstante Impulsenergie untersucht, wozu die Pumpleistung entsprechend angepasst werden muss. Mit zusätzlichen Nichtlinearitäten ist während der Propagation somit nicht zu rechnen. Das Verstärkungsspektrum kann sich aufgrund des veränderten Pumpprofils allerdings ändern. Weiterhin steigt bei reduzierter Repetitionsrate die Zeit zwischen zwei Impulsen, wodurch die relative Verstärkungseffizienz für spontane Emission im Vergleich zum eigentlichen Signal zunimmt. Dies kann zu erheblichen ASE-Anteilen am Ausgang führen und die Stabilität des Verstärkers somit negativ beeinflussen.
Abbildung 3.13 zeigt das Ausgangsspektrum der beiden Verstärkerstufen für jeweils drei unterschiedliche Repetitionsraten (10 MHz, 1 MHz und 0,1 MHz). Für kleine Wiederholraten ist, wie erwartet, eine Zunahme der relativen Intensität von ASE zu beobachten, allerdings bleibt diese in beiden Verstärkerstufen auf einem akzeptablen Niveau. Davon abgesehen sind die gemessenen Spektren praktisch identisch. Ein vergleichbarer Betrieb liegt damit nahe.

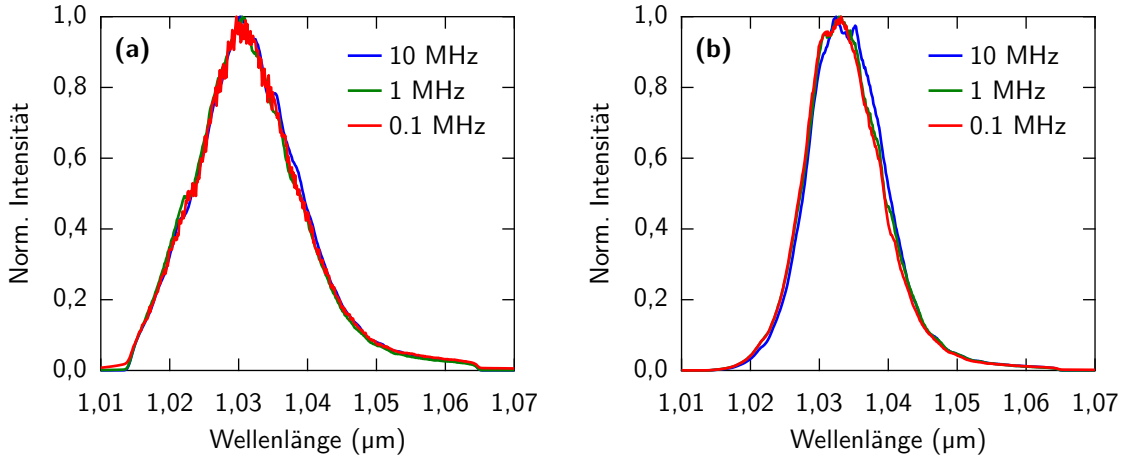

Abbildung 3.13 – Ausgangsspektrum von (a) Yb:Faser-Vorverstärker und (b) Yb:PCF-Hochleistungsverstärker für drei verschiedene Repetitionsraten. Die Energie der Ausgangsimpulse beträgt 66 nJ bzw. 4,4 µJ. Sie wurde durch Anpassung der Pumpleistung konstant gehalten. Für kleinere Repetitionsraten nimmt der durch verstärkte spontane Emission erzeugte Untergrund zu. Bei 0,1 MHz (rot) beträgt er an den Flanken des Spektrums etwa 1 % (Vorverstärker) bzw. 0,1 % (Hauptverstärker) des Maximalwerts. Der scheinbare Rauschbeitrag, der auf der Kurve des Vorverstärkers sichtbar wird, ist hingegen ein Messartefakt aufgrund der vergleichbaren Größenordnung von Repetitionsrate und Abtastrate des verwendeten Spektrumanalysators in dieser Messung.

Um die spektrale Charakterisierung zu bestätigen, wurden die komprimierten Impulse nach dem Yb:PCF-Hochleistungsverstärker mittels frequenzaufgelöstem optischem Abtasten charakterisiert. Die rekonstruierten zeitlichen Verläufe und Spektren sind in Abbildung 3.14 für Repetitionsraten von 10 MHz, 1 MHz und 0,1 MHz gezeigt. Im Rahmen der Messgenauigkeit ergeben sich identische Ergebnisse.

Weitaus interessanter ist jedoch das Verhalten für ansteigende Impulsenergie. Für eine konstante Repetitionsrate von 1 MHz wurde dazu die Pumpleistung des Yb:PCF-Verstärkers schrittweise erhöht. Auf eine Anhebung der Ausgangsleistung aus dem Vorverstärker wurde an dieser Stelle verzichtet, da dieser bereits einen höheren Verstärkungsfaktor als der Hauptverstärker aufweist (vgl. Abschnitt 2.3) und, wie oben gezeigt, damit anfälliger für ASE ist. Außerdem steht bereits mehr als genug Ausgangsleistung zur Verfügung, um den Hauptverstärker in Signalsättigung zu betreiben [Wun15b]. Die Ergebnisse sind für Impulsenergien von 7,4 µJ, 8,6 µJ und 11 µJ in Abbildung 3.15 präsentiert. Während die Impulsdauer trotz optimaler Kompression in allen Fällen nahezu konstant bleibt, nimmt die spektrale Breite aufgrund einsetzender Selbstphasenmodulation zu. Die Fourier-limitierte Impulsdauer wird dabei zwar kürzer, allerdings werden in der spektralen Phase zunehmend nichtlineare Verschiebungen deutlich, die offensichtlich nicht mehr komprimierbar sind. Im zeitlichen Impulsprofil äußert sich dies durch größer werdende Vor- und Nachläufer. Auch im FROG-Spektrogramm (hier für die höchste Impulsenergie

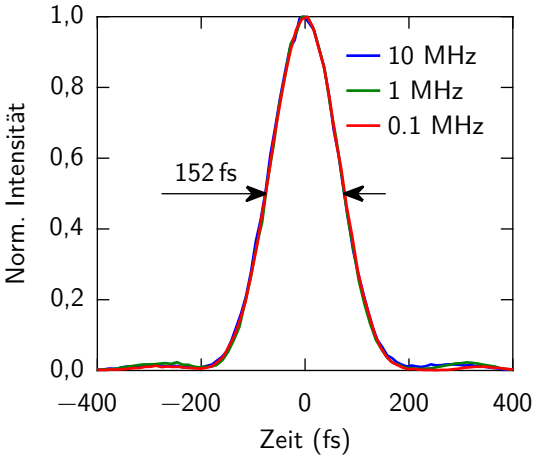

Abbildung 3.14 – Rekonstruierter zeitlicher Intensitätsverlauf der komprimierten Impulse aus dem Yb:PCF-Hochleistungsverstärker für unterschiedliche Repetitionsraten bei konstanter Impulsenergie von 4,4 µJ (Charakterisierung mittels SHG-FROG).

gezeigt) werden die Nichtlinearitäten deutlich und es ergibt sich eine im Vergleich zu Abbildung 3.9 stark veränderte Intensitätsverteilung.

Nichtsdestotrotz wird bei einer Impulsenergie von 11 µJ noch eine Impulsdauer von 158 fs erreicht. Die Spitzenleistung beträgt 61 MW und konnte im Vergleich zu dem bei 10 MHz erreichten Wert damit noch einmal um 65 % gesteigert werden. Mit der zur Verfügung stehenden Pumpleistung kann diese Impulsenergie bei Repetitionsraten bis 5 MHz erzielt werden und bietet damit insbesondere für Hochfeldexperimente, wie die in Kapitel 5 präsentierte Erzeugung höherer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich, noch einmal das Potential für um ein Drittel höhere Feldstärken.

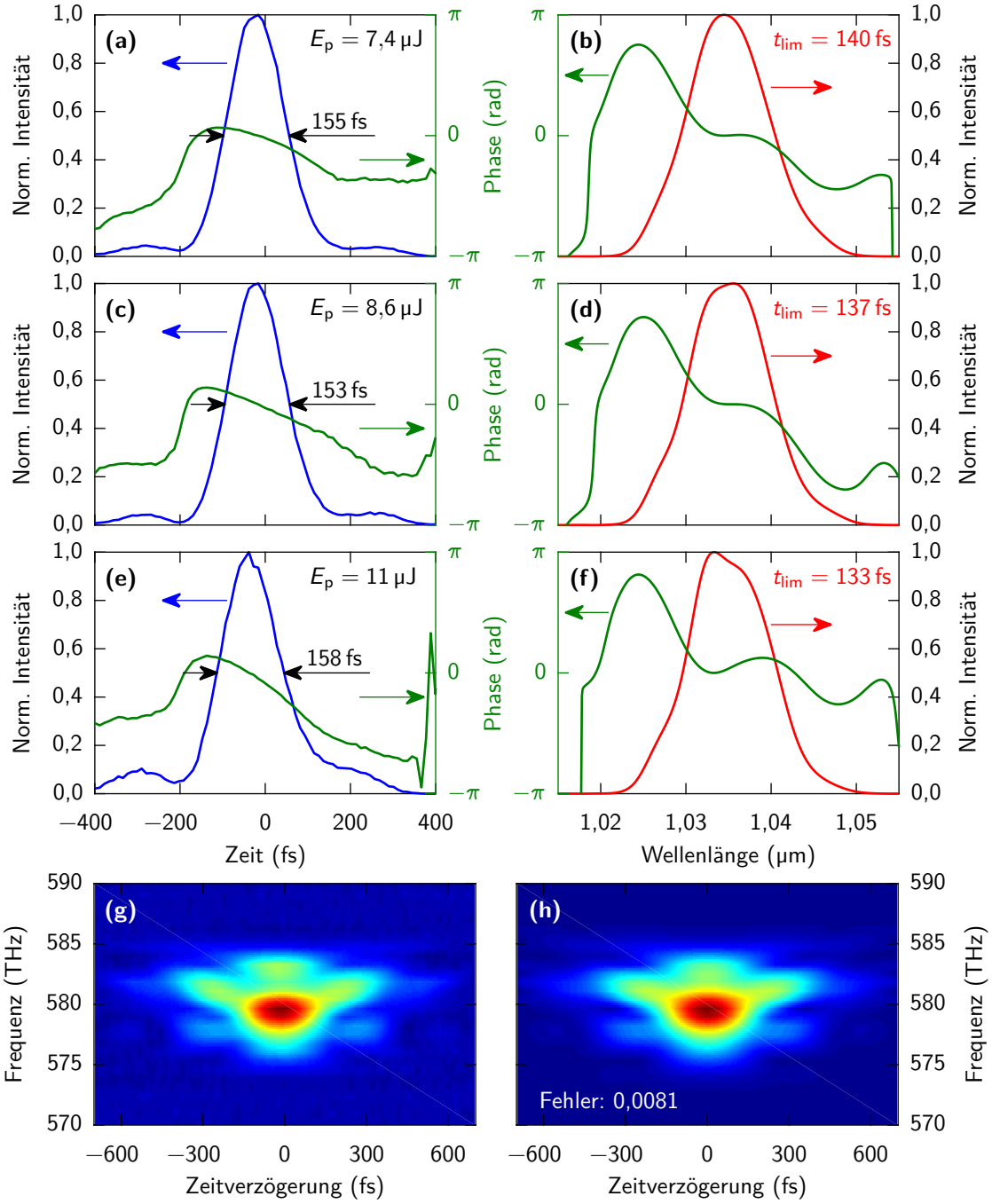

Abbildung 3.15 – Charakterisierung der komprimierten Impulse aus dem Yb:PCF-Hochleistungsverstärker mittels SHG-FROG für ansteigende Impulsenergie. (a,c,e) Rekonstruierter zeitlicher Intensitätsverlauf und (b,d,f) zugehöriges Spektrum, mit jeweiliger Phase (grün). Für den Impuls mit der höchsten Energie von $E_p = 11\,\mu J$ ist zusätzlich (g) die spektrale Intensität der Autokorrelation zweiter Ordnung mit einer Auflösung von 128×128 Pixeln und (h) deren Rekonstruktion mit einem Fehler kleiner als 1 % gezeigt.

4 Ultrabreitbandiger optisch-parametrischer Verstärker zur Erzeugung besonders kurzer Lichtimpulse

Der im vorigen Kapitel beschriebene Yb:Faser-Hochleistungsverstärker stellt intensive Impulse mit Spitzenleistungen im Bereich mehrerer zehn Megawatt bei einer Dauer von rund 150 fs zur Verfügung. Durch Fokussierung auf einen Durchmesser von 10 µm können damit elektrische Feldstärken größer als 1 V/Å bzw. Intensitäten im Bereich von 50 TW/cm^2 erzielt werden. Damit lassen sich bereits viele nichtlineare Prozesse effizient treiben. Die Erzeugung eines Weißlichtkontinuums ist z.B. mit einem Bruchteil der Leistung möglich. Viele praktische Anwendungen haben hingegen noch sehr viel höhere Anforderungen und neben der Spitzenleistung kommt auch anderen Parametern eine entscheidende Rolle zu. Für Anrege-Abfrage-Spektroskopie bestimmt die Impulsdauer direkt die zeitliche Auflösung und selbst für nicht zeitaufgelöste Methoden ist eine große spektrale Breite erforderlich. Auch bei der Erzeugung von Terahertzstrahlung via optischer Gleichrichtung sind erzielbare Impulsdauer und spektrale Breite miteinander gekoppelt [Kai98]. Kürzere Impulse verringern bei gleicher Spitzenintensität zusätzlich die thermische Last auf die verwendeten Proben und viele kaskadierte Schadensmechanismen können vollständig vermieden werden. Lediglich im Regime einzelner Lichtzyklen lassen sich schließlich Prozesse mit einer derart nichtlinearen Ladungsträgerdynamik untersuchen, dass nicht nur der Betrag, sondern auch Richtung und Phase des elektrischen Feldes relevant werden, etwa beim Tunneln einzelner Elektronen [Ryb16] oder bei der in Kapitel 5 untersuchten Erzeugung von höheren Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich.

Eine effiziente Methode, um Impulse mit diesen Parametern zu erzeugen, stellt die optisch-parametrische Verstärkung (OPA, *engl.* optical parametric amplification) dar. Es handelt sich dabei um einen nichtlinearen Effekt zweiter Ordnung, der es erlaubt die Energie eines intensiven aber vergleichsweise schmalbandigen Pumpimpulses auf einen schwächeren, jedoch extrem breitbandigen Signalimpuls zu übertragen. Im vorgestellten Lasersystem wird die zweite Harmonische der intensiven Impulse aus dem Yb:Faser-Hochleistungsverstärker genutzt um die Energie der in einer hoch nichtlinearen Quarzglasfaser erzeugten dispersiven Welle anzuheben. Durch entsprechende Kompression können damit Lichtimpulse mit nur noch 2,3 Zyklen des elektromagnetischen Feldes erzeugt werden.

In Abschnitt 4.1 wird zunächst das im System implementierte OPA-Konzept vorgestellt, welches durch Ausnutzung einer quasi-kollinearen Geometrie und Betrieb am Entartungspunkt die Verstärkung von Spektren mit bis zu 500 nm Breite erlaubt. Der Aufbau und die Charakterisierung des Verstärkers sind Inhalt der Abschnitte 4.2 und 4.3. Eine wichtige Eigenschaft des vorgestellten Lasersystems ist dessen passive Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase, die durch die optisch-parametrische Verstärkung vollständig erhalten bleibt und die präzise Kontrolle der erzeugten Impulsform erlaubt (Abschnitt 4.4). Auch in dieser Verstärkungsstufe lässt sich die Repetitionsrate über mehr als zwei Größenordnungen variieren, was in Abschnitt 4.5 beschrieben wird.

4.1 Konzept zur parametrischen Verstärkung ultrabreitbandiger Impulse

Die optisch-parametrische Verstärkung ist ein Dreiwellen-Mischprozess [Man16,Boy08]: In einem geeigneten Kristall mit $\chi^{(2)}$-Nichtlinearität wird die Energie eines intensiven Pumpstrahls mit hoher Frequenz ω_p auf einen schwächeren Signalstrahl mit niedrigerer Frequenz ω_s übertragen. Da bei diesem Prozess Energieerhaltung gelten muss, wird zusätzlich ein dritter Strahl bei der Differenzfrequenz $\omega_\mathrm{i} = \omega_\mathrm{p} - \omega_\mathrm{s}$ erzeugt, der sogenannte „Idler“, und es gilt somit

$$\hbar\omega_\mathrm{p} = \hbar\omega_\mathrm{s} + \hbar\omega_\mathrm{i}\,. \tag{4.1}$$

Weiterhin muss auch der Gesamtimpuls erhalten bleiben, was sich analog schreiben lässt als

$$\hbar\mathbf{k}_\mathrm{p} = \hbar\mathbf{k}_\mathrm{s} + \hbar\mathbf{k}_\mathrm{i}\,, \tag{4.2}$$

wobei $\mathbf{k}_*$ der jeweilige Wellenvektor ist. Diese Beziehung wird gemeinhin auch als Phasenanpassung bezeichnet, denn bei kollinearer Wechselwirkung am Entartungspunkt ($\omega_\mathrm{s} = \omega_\mathrm{i}$) ergibt sich eine skalare Gleichung die äquivalent zur Forderung identischer Phasengeschwindigkeiten für die beteiligten Wellen ist.
Da sich diese Bedingung aufgrund des spektralen Verlaufs der Dispersion gebräuchlicher nichtlinearer Medien typischerweise nicht erfüllen lässt, nutzt man in der Praxis doppelbrechende Kristalle, wodurch sich in der Polarisationsrichtung ein zusätzlicher Freiheitsgrad ergibt. Wird ein uniaxialer Kristall mit den ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindices n_o und n_e im richtigen Phasenanpassungswinkel θ geschnitten, lässt sich der Brechungsindex für die eine Polarisationsrichtung kontinuierlich zwischen diesen Extremalwerten variieren, während die andere Polarisationsrichtung stets den ordentlichen Brechungsindex n_o erfährt. Bei Betrieb nahe am Entartungspunkt bietet sich die häufig verwendete und auch im vorgestellten Aufbau eingesetzte „Typ-1“-Phasenanpassung an, bei der Signal und Idler in der ordentlichen und der Pumpstrahl in der außerordentlichen

Polarisationsrichtung propagieren.
Eine zweite Möglichkeit ist die nichtkollineare Phasenanpassung, bei der Pump- und Signalstrahl unter einem Winkel α zueinander propagieren (siehe Vektordiagramm in Abbildung 4.1a). Die Propagationsrichtung des Idlers ergibt sich in diesem Fall aus Gleichungen 4.1 und 4.2, was bei breitbandiger Verstärkung zu einer spektralen Aufspaltung führt.

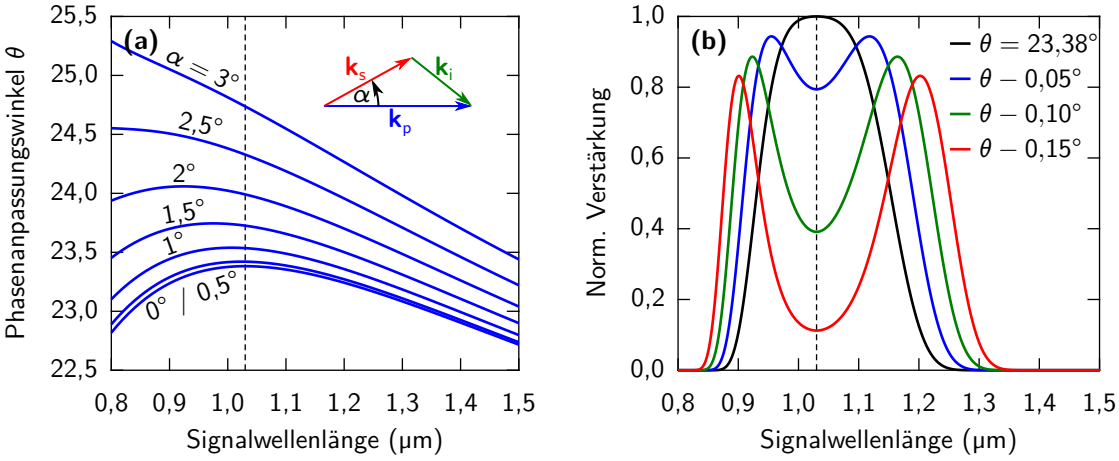

Abbildung 4.1 – Typ-1-Phasenanpassung in BBO unter quasi-kollinearer Geometrie bei einer Pumpwellenlänge von 515 nm. (a) Winkel für perfekte Phasenanpassung θ in Abhängigkeit der Signalwellenlänge für unterschiedliche Winkel α zwischen Pump- und Signalstrahl ($\alpha = 0°$ entspricht dem kollinearen Aufbau; ein interner Winkel von $\alpha = 3°$ im Kristall erfordert einen externen Winkel von 5°). (b) Verstärkungsspektrum in einem 3 mm dicken Kristall in kollinearer Geometrie für perfekte Phasenanpassung bei einer Wellenlänge von 1,03 µm (schwarz) und für drei etwas kleinere Winkel. Die Halbwertsbreite wächst von 223 nm auf 286 nm, 339 nm bzw. 387 nm an.

Ziel im vorgestellten Lasersystem ist es Phasenanpassung für einen möglichst großen Frequenzbereich zu erzielen. Für die verwendete Pumpwellenlänge von 515 nm und β-Bariumborat (BBO) als nichtlineares Medium ist in Abbildung 4.1a für unterschiedliche Winkel α zwischen Signal- und Pumpstrahl der jeweils ideale Phasenanpassungswinkel θ über der Signalwellenlänge aufgetragen. Für breitbandige Phasenanpassung muss der Kurvenverlauf folglich möglichst flach sein. Es wird damit deutlich, dass ein nahezu kollinearer Aufbau erstrebenswert ist. Kleine Winkel bis etwa $\alpha = 2°$ sind zwar noch akzeptabel, verschieben den flach verlaufenden Bereich jedoch zu kürzeren Wellenlängen, wohingegen die als Eingangssignal genutzte dispersive Welle nur Frequenzkomponenten bis etwa 850 nm und einen Schwerpunkt größer als 1,1 µm besitzt (vgl. Abbildung 4.3).

Die erreichbare Bandbreite lässt sich auch quantitativ abschätzen. Nach [Cer03,Bri10] gilt für den Verstärkungsfaktor eines kollinearen optisch-parametrischen Verstärkers

$$G = 1 + \frac{\Gamma^2}{g^2} \sinh^2(gL) \tag{4.3}$$

wobei L die Länge des nichtlinearen Kristalls ist. Der Parameter Γ setzt sich aus den frequenzabhängigen Brechungsindices n_*, dem effektiven Nichtlinearitätskoeffizient d_{eff} des nichtlinearen Kristalls, sowie der Pumpintensität I_{p} zusammen und kann geschrieben werden als

$$\Gamma^2 = \frac{2\omega_{\text{s}}\omega_{\text{i}} d_{\text{eff}}^2 I_{\text{p}}}{n_{\text{p}} n_{\text{s}} n_{\text{p}} \varepsilon_0 c_0^3}\,, \tag{4.4}$$

mit der elektrischen Feldkonstante ε_0 und der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0. Der Parameter g enthält die Wellenvektorfehlanpassung $\Delta k = k_{\text{p}} - k_{\text{s}} - k_{\text{i}}$ und es gilt

$$g = \Gamma^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2 . \tag{4.5}$$

Das Ergebnis von Gleichung 4.3 ist in Abbildung 4.1b für unterschiedliche Phasenanpassungswinkel θ in Abhängigkeit der Signalwellenlänge aufgetragen. Bei perfekter Phasenanpassung bei 1,03 µm ergibt sich eine Halbwertsbreite von 223 nm. Minimal kleinere Phasenanpassungswinkel führen zu einer leicht erhöhten Wellenvektorfehlanpassung im Zentrum des Spektrums, wodurch sich die Verstärkung hier reduziert. Dafür ergibt sich nun für zwei rot- bzw. blauverschobene Wellenlängen perfekte Phasenanpassung (leicht ersichtlich in Abbildung 4.1a), was ein charakteristisches Verstärkungsprofil mit zwei Maxima zur Folge hat. Die resultierenden Verstärkungsspektren weisen deutlich erhöhte Halbwertsbreiten von 286 nm, 339 nm bzw. 387 nm auf. Geht man von einem flachen Eingangsspektrum und damit einer homogenen Verstärkung aus, lässt sich damit die Fourier-limitierte Impulsdauer von 9,7 fs auf 8,6 fs, 7,5 fs bzw. 6,6 fs reduzieren. Die Verstärkungseffizienz kann in diesem Fall durch Integration abgeschätzt werden und ist für eine Abweichung von −0,05° vom optimalen Phasenanpassungswinkel (blau) maximal.

4.2 Aufbau des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers

Ziel des vorgestellten optisch-parametrischen Verstärkers ist die Erzeugung intensiver und gleichzeitig extrem kurzer Impulse mit nur wenigen Lichtzyklen bei hoher Repetitionsrate. Mit dem hochstabilen Impulszug aus dem Yb:Faser-Hochleistungsverstärker steht eine ideale Pumpquelle zur Verfügung. Nach Frequenzverdopplung lässt sich durch Betrieb am Entartungspunkt mit dem im vorigen Kapitel vorgestellten Konzept eine ultrabreitbandige Verstärkung in BBO erzielen. Im Unterschied zu vielen vergleichbaren Systemen dient jedoch nicht ein aus den fundamentalen Impulsen erzeugtes Weißlichtkontinuum als Eingangssignal [Bro99,Bra09], sondern die in einer hoch nichtlinearen Quarzglasfaser erzeugte dispersive Welle. Dies erlaubt die präzise Kontrolle des erzeugten Spektrums, was bei einem Weißlichtkontinuum nur sehr eingeschränkt möglich ist. Weiterhin umgeht man das

Problem, dass die Frequenzmodulation des erzeugten Weißlichts im Wellenlängenbereich des fundamentalen Impulses, und damit am Entartungspunkt, stark nichtlinear ist und damit eine nachfolgende Kompression unpraktikabel macht [Cer97], weshalb hier meist auf zweistufige Prozesse zur Frequenzkonversion zurückgegriffen werden muss [Sid09]. Wichtigster Vorteil ist, dass die passive Phasenstabilität des Er:Faserverstärkersystems bei der optisch-parametrischen Verstärkung erhalten bleibt, wodurch die präzise Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase der resultierende Impulse möglich wird (Abschnitt 4.4).

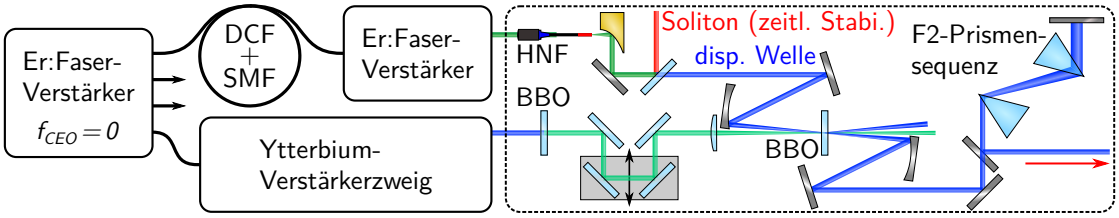

Abbildung 4.2 – Schematische Darstellung des Aufbaus des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers. Signal- und Pumpimpulse werden in parallelen Armen der passiv phasenstarren Quelle erzeugt, eine faserbasierte Verzögerungsstrecke (DCF+SMF) gleicht deren optische Wege an. Zum Pumpen dienen die in BBO frequenzverdoppelten intensiven Impulse aus dem Yb:Faser-Hochleistungsverstärker, welche bei einer Wellenlänge von 515 nm zentriert sind. Frequenzkonversion in hoch nichtlinearer Glasfaser (HNF) liefert eine breitbandige dispersive Welle im Wellenlängenbereich von rund 800 nm bis 1200 nm als Eingangssignal für den OPA, wobei das Soliton für die zeitliche Synchronisation (vgl. Abschnitt 3.5) abgetrennt wird. Die parametrische Verstärkung erfolgt bei nahezu kollinearer Geometrie in BBO. Eine Flintglas-Prismensequenz ermöglicht die anschließende zeitliche Kompression.

Ein Schema zum vollständigen Aufbau des optisch-parametrischen Verstärkers ist in Abbildung 4.2 gezeigt. Wie zuvor beschrieben werden Pumpimpulse und Eingangssignal in zwei parallelen Zweigen der passiv phasenstarren Quelle erzeugt. Da nur im Ytterbium-Verstärkerzweig ein elektrooptischer Modulator die Variation der Repetitionsrate erlaubt, besitzt der Impulszug, der zur Erzeugung des Eingangssignals genutzt wird, stets die volle Repetitionsrate von 40 MHz. Für typische Experimente ist dies jedoch nicht von Bedeutung, da Verstärkung lediglich bei zeitlichem Überlapp mit einem Pumpimpuls stattfindet. Alle übrigen Impulse besitzen damit eine vernachlässigbare Energie und sind bei nichtlinearen Prozessen, wie der Erzeugung von optischen Harmonischen, oder der optischen Gleichrichtung, nicht relevant. Bei geringen Repetitionsraten (vgl. Abschnitt 4.5) muss jedoch beachtet werden, dass die unverstärkten Impulse einen nennenswerten Anteil der Gesamtleistung ausmachen können, was bei der Bestimmung der Impulsenergie und der Messung von Spektren durch einen entsprechenden Korrekturfaktor berücksichtigt werden muss.

Die Erzeugung des Eingangssignals in hoch nichtlinearer Glasfaser erfolgt analog zur Beschreibung in den Abschnitten 2.3 und 2.4: Erneute Verstärkung der Impulse in

einem nichtlinearen Er:Faser-Verstärker, gefolgt von Kompression in einer Silizium-Prismensequenz, ermöglicht die gezielte Frequenzkonversion. Zur zeitlichen Synchronisation mit dem Ytterbium-Zweig sind vor dem Er:Faser-Verstärker jedoch zusätzlich 1,10 m dispersionskompensierende Glasfaser (DCF, *engl.* dispersion compensating fiber) und 2,20 m Standardfaser eingefügt, die einem optischen Weg von rund 4,75 m entsprechen. Der Einsatz von DCF erlaubt die Kompensation der Dispersion die von jeweils der doppelten Länge Standardfaser verursacht wird und ermöglicht so die Verlängerung des Verstärkerarms ohne die Impulsform und damit die anschließende nichtlineare Verstärkung maßgeblich zu beeinflussen. Eine Implementierung der Verzögerungsstrecke in Glasfaser statt im Freistrahl ist wünschenswert, da es die Stabilität des Systems stark erhöht. Anzumerken ist, dass die Verzögerungsstrecke nicht ausreicht um den gesamten optischen Weg im Ytterbium-Verstärkerzweig auszugleichen. Stattdessen werden die beiden Impulszüge um eine Periode versetzt zueinander überlagert, was bei der Repetitionsrate von 40 MHz einem optischen Weg von 7,5 m entspricht. Das in der hoch nichtlinearen Glasfaser erzeugte Signal wird nach Kollimation mit einem Parabolspiegel an einem dielektrischen Strahlteiler spektral aufgespalten: Der langwellige Anteil wird für die in Abschnitt 3.5 beschriebene zeitliche Stabilisierung zwischen Ytterbium-Zweig und den Signalimpulsen verwendet. Ein zusätzlicher Langpass in diesem Strahlengang filtert Restlicht bei 1,55 µm, sodass nur das zeitlich kurze Soliton für die Synchronisierung verwendet wird. Der dispersive Anteil mit Wellenlängen kleiner als 1400 nm wird transmittiert und als Eingangssignal für den optisch-parametrischen Verstärker verwendet. Ein typisches Spektrum ist in Abbildung 4.3 gezeigt und enthält Komponenten bis zu einer Wellenlänge von etwa 850 nm. Durch Anpassen der Frequenzmodulation der Impulse vor der Einkopplung in die hoch nichtlineare Glasfaser lässt sich das Spektrum auf den gewünschten Betriebsmodus des optisch-parametrischen Verstärkers optimieren, um maximale Effizienz bei einer homogenen spektralen Gewichtung zu erzielen (vgl. [Tau16]). Während das gezeigte homogene Eingangsspektrum für schmale Phasenanpassung eine erhöhte Effizienz liefert, hat sich insbesondere für breitbandige Phasenanpassung ein Spektrum mit einem ausgeprägten Maximum bei einer Wellenlänge von 900 nm bewährt.

Die Pumpimpulse werden durch Frequenzverdopplung des Ausgangssignals aus dem Yb:Faser-Hochleistungsverstärker (Kapitel 3) erzeugt. Es kommt dabei ein 2 mm dicker BBO-Kristall zum Einsatz, der in einem Winkel von $\theta = 23{,}5°$ geschnitten ist und für die Fundamentale bei einer Wellenlänge von 1,03 µm sowie die zweite Harmonische bei 515 nm antireflexbeschichtet ist. Aufgrund der hohen Durchschnittsleistung von bis zu 60 W in der Fundamentalen ist eine starke Fokussierung nicht möglich. Gleichzeitig ist die Spitzenleistung als Folge der hohen Repetitionsrate jedoch limitiert, weshalb bei einem zu großen Strahldurchmesser die Effizienz schnell zurück geht. Als zielführend hat sich deshalb die Konvertierung im kollimierten Strahl bei einem Strahldurchmesser von etwa 1 mm erwiesen, womit eine Konversionseffizienz von über 50 % möglich ist.

Damit stehen mehr als 30 W Pumpleistung bei einer Repetitionsrate von 10 MHz zur Verfügung. Typischerweise werden zum Pumpen des OPAs jedoch maximal 20 W bis 25 W verwendet, da sich für die optisch-parametrische Verstärkung eine Fokussierung nicht mehr vermeiden lässt und höhere Pumpleistungen sich negativ auf das Strahlprofil auswirken (vgl. auch Diskussion zur thermischen Abhängigkeit des Brechungsindex in Abschnitt 4.5). Die frequenzverdoppelten Pumpimpulse durchlaufen anschließend eine weitere Verzögerungsstrecke, welche die manuelle Optimierung des zeitlichen Überlapps mit den Signalimpulsen erlaubt. Weiterhin weisen die verbauten dielektrischen Spiegel eine hohe Transmission für die Fundamentale auf und filtern diese damit effizient, wodurch parasitäre Effekte durch Rückkonversion während der optisch-parametrischen Verstärkung ausgeschlossen sind.

Pump- und Signalstrahl werden nahezu kollinear ($\alpha < 1°$) in einem 3 mm dicken BBO überlagert, der wie der zur Frequenzverdopplung genutzte Kristall in einem Winkel von $\theta = 23{,}5°$ geschnitten und antireflexbeschichtet ist. Ein vollständig kollinearer Aufbau ist aufgrund des Betriebs am Entartungspunkt nicht möglich, da sich Signal und Idler sonst nicht trennen lassen. Dies ist jedoch erforderlich, da sie eine unterschiedliche und zeitlich nicht konstante Phasenlage aufweisen (siehe Abschnitt 4.4), was die Stabilität des Ausgangssignals durch Interferenzeffekte beeinträchtigen würde. Die Dicke des Kristalls wurde gewählt um maximale Konversionseffizienz zu erzielen, ohne dabei die Verstärkungsbandbreite zu verringern. Unter Berücksichtigung der Gruppengeschwindigkeiten von Pump- und Signalimpulsen ergibt sich eine Interaktion über die komplette Länge des Kristalls. Der Pumpstrahl wird mit einer Linse der Brennweite $f = 200$ mm kurz vor dem Kristall fokussiert. Zum einen vermeidet dies die Beschädigung des Kristalls durch Überschreiten dessen Zerstörschwelle, zum anderen führt eine Selbstfokussierung lediglich zu einer Verringerung der Strahldivergenz, was für den Prozess sogar vorteilhaft ist. Der Strahldurchmesser im Kristall beträgt damit etwa 100 µm, was eine Spitzenintensität im Bereich 150 GW/cm^2 ergibt. Der Signalstrahl wird mit einem Silberspiegel fokussiert, dessen Brennweite ebenfalls $f = 200$ mm beträgt. Der Fokus liegt hier leicht hinter dem Kristall, um vergleichbare Strahldurchmesser während der Konversion zu erreichen.

Nach Rekollimation mit einem zweiten Silberspiegel erfolgt die Kompression in einer Prismensequenz aus Flintglas (F2). Die Wahl einer kürzeren Brennweite von $f = 100$ mm verringert den Strahldurchmesser und ermöglicht die Minimierung von Materialdurchgang im Kompressor durch Justage des Strahls möglichst nahe am Apex der Prismen. Der nicht komprimierbare Einfluss von Dispersion dritter Ordnung kann damit reduziert werden.

Der Einsatz von BBO im vorgestellten Aufbau bietet sich aufgrund der Materialeigenschaften [Eim87,Eck90,Nik05] an. Insbesondere die hohe Zerstörschwelle und der große effektive Nichtlinearitätskoeffizient, der für die gewählte Interaktionsgeometrie rund

2 pm/V beträgt, sind für die Anwendung vorteilhaft. Der vergleichsweise flache Verlauf der Dispersion erlaubt die zuvor erwähnte breitbandige Phasenanpassung beim Pumpen mit der zweiten Harmonischen und Betrieb am Entartungspunkt. In Anbetracht der hohen Durchschnittsleistungen ist die vergleichsweise kleine Wärmeleitfähigkeit von etwa 1 W/(m K) ein potentieller Nachteil, dem jedoch die geringe Absorption des Materials gegenübersteht. Zusätzlich ist die Temperaturabhängigkeit für die Phasenanpassung in BBO im Vergleich zu den meisten anderen Materialien gering, d.h. die Wellenvektorfehlanpassung erhöht sich bei Änderung der Temperatur nur langsam [Pra14]. BBO zeichnet sich damit insbesondere auch gegenüber Bismuthtriborat (BIBO) aus, welches aufgrund seiner extrem hohen effektiven Nichtlinearität von 3 pm/V [Hel98] das Potential für größere Verstärkungseffizienzen bietet und auch eine um etwa eine Größenordnung höhere Wärmeleitfähigkeit besitzt. Letztere führt in der Praxis jedoch typischerweise zu keinem Vorteil, da auch die Absorption des Materials deutlich höher ist. Dies wird maßgeblich auf Zweiphotonenabsorption des Pumplichts in Folge der geringeren Bandlücke von nur 4,32 eV zurückgeführt [Rie14a] (zum Vergleich: die Bandlückenenergie von BBO beträgt 6,42 eV, die Energie der Pumpphotonen ist 2,41 eV).

4.3 Charakterisierung des ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärkers

Mit der dispersiven Welle aus der hoch nichtlinearen Glasfaser steht für den optisch-parametrischen Verstärker ein Eingangssignal mit einer Leistung von rund 10 mW bei der vollen Repetitionsrate von 40 MHz zur Verfügung. Davon fällt ein Anteil von etwa 8 mW in die Verstärkungsbandbreite, entsprechend einer Impulsenergie von 0,2 nJ. Die Wiederholrate des OPAs wird dabei durch den Ytterbium-Zweig vorgegeben, wobei für die nachfolgende Charakterisierung wie zuvor ein Wert von 10 MHz impliziert wird. Eine Variation ist aber auch in dieser Stufe problemlos möglich (Abschnitt 4.5) und lediglich durch die thermische Belastung des nichtlinearen Kristalls und die zur Verfügung stehende Pumpimpulsenergie limitiert.

Mit dem im vorigen Abschnitt vorgestellten Aufbau lässt sich bei einer Pumpleistung von rund 26 W eine Ausgangsleistung von bis zu 2 W erzielen. Dies entspricht einer Energie von 200 nJ und damit einer 1000-fachen Verstärkung der Eingangsimpulse. Es ist anzumerken, dass dieser hohe Verstärkungsfaktor nur erreicht werden kann, wenn ein sehr kleiner Pumpstrahldurchmesser im BBO gewählt wird, was sich nachteilig auf die Modenqualität des verstärkten Signals auswirkt. Der Modendurchmesser nimmt in diesem Regime ab und interferenzartige Ringstrukturen bilden sich im Randbereich aus. Da der Prozess reversibel ist kann eine Beschädigung des Kristalls ausgeschlossen werden, der Effekt wird stattdessen auf die lokal starke Erhöhung der thermischen Belastung und

dadurch verursachte Degradierung der Phasenanpassungsbedingung zurückgeführt. Für den dauerhaften Betrieb wurde zu Gunsten der Strahlqualität deshalb ein etwas größerer Durchmesser für die Pumpe gewählt, was Ausgangsleistungen im Bereich 1 W bis 1,5 W erlaubt. Der exakte Wert hängt dabei von der Wahl des Ausgangsspektrums ab.

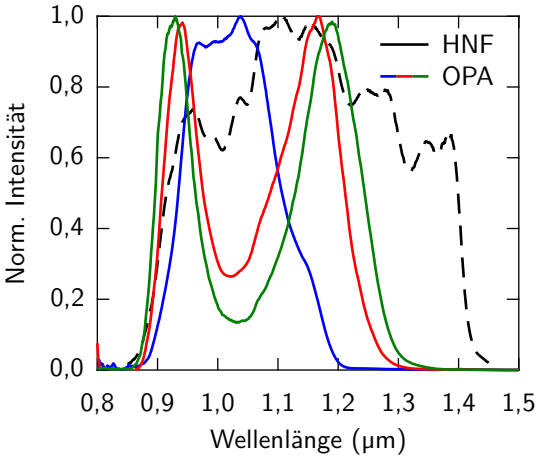

Abbildung 4.3 – Ausgangsspektren des optisch-parametrischen Verstärkers für leicht unterschiedliche Phasenanpassungswinkel. Perfekte Phasenanpassung für 1,03 µm (blau), typisches experimentell verwendetes (rot) und besonders breites Spektrum mit über 500 nm Breite (grün). Durch Anpassen des in hoch nichtlinearer Glasfaser erzeugten Eingangssignals (schwarz) lässt sich das spektrale Gewicht im verstärkten Signal sowie die Effizienz optimieren.

Abbildung 4.3 zeigt das verstärkte Spektrum für drei leicht unterschiedliche Phasenanpassungswinkel. Für optimale Phasenanpassung bei 1,03 µm ergibt sich eine Halbwertsbreite von 172 nm, für kleine Abweichungen von diesem Winkel ergeben sich Werte von 305 nm bzw. 348 nm. Das beobachtete Verhalten deckt sich gut mit den berechneten Verstärkungsspektren (Abbildung 4.1b). Auch die Verstärkungseffizienz folgt qualitativ der Vorhersage (im Graph aufgrund der Normierung nicht zu erkennen): Sie wird für ein leicht verbreitertes Spektrum maximal und nimmt für breiter werdende Spektren anschließend kontinuierlich ab. In der Praxis am zielführendsten hat sich ein Spektrum mit einer zentralen Einschnürung auf etwa ein Drittel der Maximalleistung (rote Kurve) erwiesen, mit dem sich für experimentelle Anwendungen die Impulse mit der höchsten Spitzenintensität erzielen lassen: Schmalere Spektren erlauben zwar eine etwas höhere Effizienz, jedoch keine ausreichende Kompression (die Fourier-limitierte Impulsdauer des rot gezeichnete Spektrums beträgt 8,4 fs), wodurch die Spitzenleistung der resultierenden Impulse effektiv abnimmt. Breitere Spektren enthalten nicht nur weniger Energie sondern sind auch zunehmend schwieriger zu komprimieren. Maßgeblich liegt das an Dispersion dritter und höherer Ordnung, die sich mit dem Prismenkompressor nicht kompensieren lässt, jedoch ist auch ein geringer Einfluss von Winkeldispersion im erzeugten Strahl nicht auszuschließen, der sich als Folge der durch die Divergenz des Signalstrahls leicht unterschiedlichen Phasenanpassungsbedingung für verschiedene Positionen im Strahl ergibt wie in Messungen zum Strahlprofil deutlich wird.

Aufgrund der großen spektralen Breite des verstärkten Signals ist eine Charakterisierung der Strahlqualität durch das Strahlparameterprodukt bzw. den M^2-Faktor nicht sinnvoll,

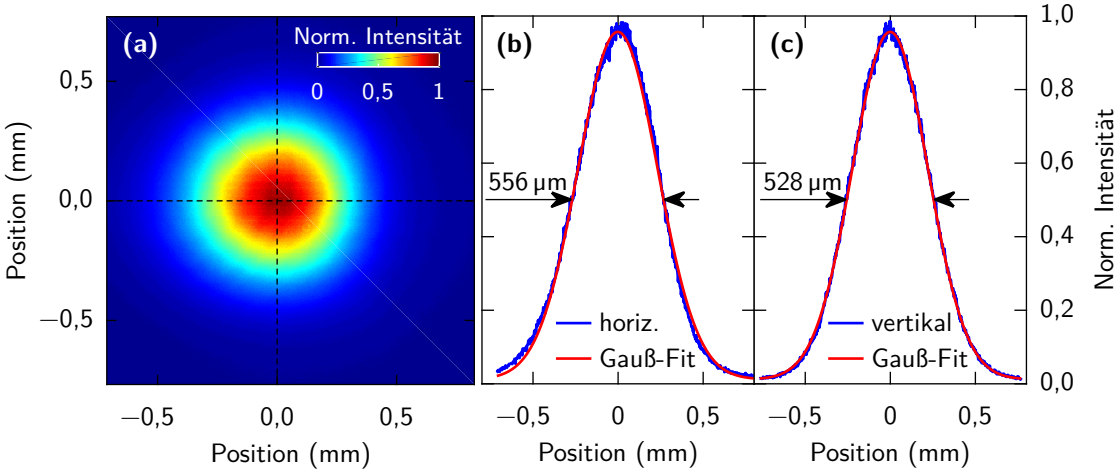

Abbildung 4.4 – Intensitätsprofil des kollimierten Strahls nach dem optisch-parametrischen Verstärker. Aufgetragen ist jeweils die Intensität als Funktion der lateralen Position. (a) CCD Aufnahme mit farbcodierter Intensität. (b,c) Horizontaler bzw. vertikaler Schnitt durch die Messdaten mit gaußförmiger Anpassung.

da diese von der Wellenlänge abhängen. Stattdessen wurde die Intensitätsverteilung im kollimierten Strahl mit einer CCD-Kamera bestimmt (Abbildung 4.4a; da der Sensor nur eine lineare Sensitivität bis zu einer Wellenlänge von etwa 1,1 µm aufweist, ist das Gewicht hoher Frequenzen etwas überrepräsentiert). Das gemessene Strahlprofil ist nahezu rotationssymmetrisch mit einer kleinen Verbreiterung in horizontaler Richtung. Dies bestätigen auch gaußförmige Anpassungen in den beiden Vorzugsachsen (Abbildungen 4.4b und 4.4c): Während sich in horizontaler Richtung minimale Abweichungen vom funktionalen Verlauf und eine etwas größere Halbwertsbreite von 556 µm ergeben, zeigt sich in vertikaler Richtung eine perfekte Übereinstimmung bei einer Breite von 528 µm. Wahrscheinliche Ursache für die geringfügige Asymmetrie ist zum einen die Modenform des Pumpstrahls, die nach dem Gitterkompressor ebenfalls eine leichte Verbreiterung in horizontaler Richtung aufweist [Wun15b]. Zum anderen ergeben sich wie zuvor erwähnt für unterschiedliche Ausbreitungsrichtungen im OPA-Kristall leichte Änderungen in der Phasenanpassungsbedingung, die auf der fraglichen Achse in einer minimalen Richtungsabhängigkeit der Verstärkungseffizienz für unterschiedliche spektrale Anteile resultiert. Der zuletzt genannte Effekt macht sich bei der Einkopplung in eine Monomodenfaser etwa durch eine leichte Verschiebung des spektralen Gewichts bei horizontaler Translation bemerkbar. Die geringe Abhängigkeit trotz der kritischen Anforderungen bezüglich Anpassung der Modenfelder bei der Einkopplung in entsprechende Glasfasern beweist jedoch trotz allem die exzellente Strahlqualität.

Die Kompressionseffizienz der verstärkten Impulse in der Prismensequenz beträgt 72 %. Die etwas höheren Verluste ergeben sich zum einen aus der hohen spektralen Breite der

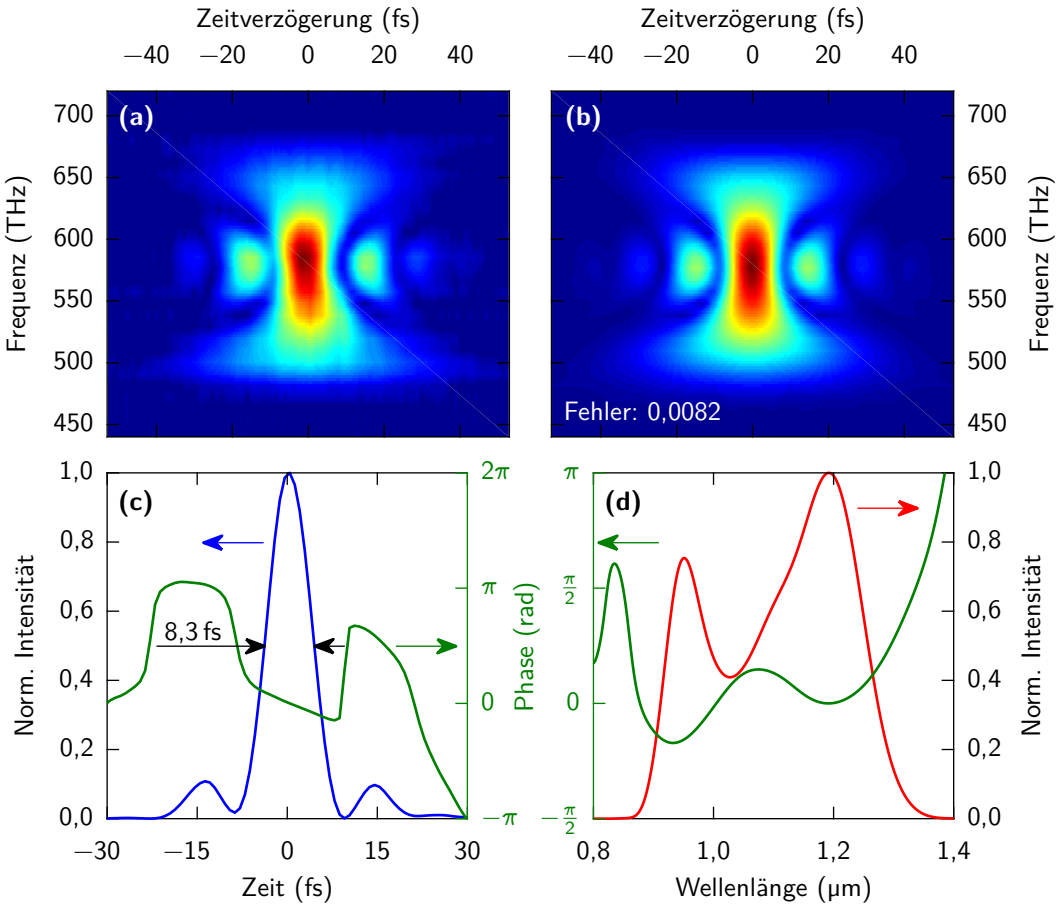

Abbildung 4.5 – Charakterisierung der komprimierten Impulse aus dem ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärker mittels SHG-FROG. (a) Spektrale Intensität der Autokorrelation zweiter Ordnung mit einer Auflösung von 128×128 Pixeln und (b) deren Rekonstruktion mit einem Fehler kleiner als 1 %. (c) Aus der Rekonstruktion ermittelter zeitlicher Intensitätsverlauf und (d) zugehöriges Spektrum, mit jeweiliger Phase (grün). Die rekonstruierte Impulsdauer beträgt 8,3 fs bei einer Zentralwellenlänge von 1,1 µm, was 2,3 Zyklen des elektromagnetischen Feldes entspricht.

komprimierten Impulse, wodurch sich die Brewster-Bedingung nicht für alle Frequenzkomponenten gleichzeitig erfüllen lässt. Zum anderen erlaubt ein Prismenkompressor keine Kompensation von Dispersion dritter Ordnung, weshalb der Materialdurchgang so stark wie möglich reduziert wurde und sich zusätzliche Verluste durch Abschneiden von Randbereichen des Strahls am Apex ergeben können. Die Charakterisierung erfolgte auch hier durch frequenzaufgelöstes optisches Abtasten und ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Es ergibt sich eine Impulsdauer von 8,3 fs, welche bei einer Zentralwellenlänge von 1,1 µm lediglich 2,3 Zyklen des elektromagnetischen Feldes entspricht. Die Fourier-limitierte Dauer des rekonstruierten Spektrums liegt mit 7,7 fs nur etwa 7 % niedriger. Die verbleibende spektrale Phase wird wie bereits erläutert von nicht kompensierter Dispersion

dritter Ordnung dominiert. Der Verlauf legt auch einen Einfluss der sogenannten „optisch-parametrischen Phase“ nahe [Ros02,Dem12], die ihre Ursache im spektralen Verlauf der Wellenvektorfehlanpassung hat und entsprechend Abschnitt 4.1 nur für zwei Wellenlängen exakt Null ist.

Die vorgestellte FROG-Messung wurde bei einer Pumpleistung von 21 W durchgeführt womit eine Ausgangsleistung von rund 1,2 W erzielt werden konnte. Unter Berücksichtigung der Kompressionseffizienz ergibt sich damit eine Spitzenleistung von 10 MW. Dies ist ausreichend um die angestrebten Spitzenfeldstärken von 1 V/Å zu erzielen wobei die erreichte Impulsdauer in Kombination mit der präzisen Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase, welche im nächsten Abschnitt präsentiert wird, die Untersuchung der Feldabhängigkeit extrem nichtlinearer Prozesse erlaubt. Eine weitere Verkürzung der Impulsdauer, etwa durch den Einsatz gechirpter Spiegel, insbesondere zum Ausgleich der Dispersion dritter Ordnung, könnte in Zukunft zu noch höheren Feldstärken führen.

4.4 Passive Stabilität und Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase intensiver Lichtimpulse mit wenigen Zyklen

Wie in Abschnitt 2.5 gezeigt kann die Differenzfrequenzerzeugung zwischen zwei Impulsen aus dem gleichen Frequenzkamm zur passiven Phasenstabilisierung genutzt werden. Die Differenzfrequenzerzeugung stellt dabei einen Spezialfall der optisch-parametrischen Verstärkung dar, denn auch bei dieser handelt es sich um einen Dreiwellen-Mischprozess. Die Phasenbeziehung lässt sich allgemein ausdrücken als

$$\phi_\mathrm{p} = \phi_\mathrm{s} + \phi_\mathrm{i} + \frac{\pi}{2} \tag{4.6}$$

und für den Fall $\phi_\mathrm{p} = \phi_\mathrm{s}$ ergibt sich für den Idler eine konstante Phase. Während dies auch zur Erzeugung intensiver phasenstarrer Impulse in einem OPA Verwendung finden kann [Bal02,Man04], ergeben sich in der Praxis zwei maßgebliche Nachteile: Zum einen sind nichtkollineare Geometrien nahezu ausgeschlossen, da sich nur der Idler stabilisieren lässt und dieser als Folge der Phasenanpassungsbedingung räumlich aufgespalten und experimentell nur schwer zugänglich ist. Zum anderen limitieren Fluktuationen der Phase von Pump- und Signalimpulsen direkt die Qualität der Phasenstabilisierung. In Hochleistungssystemen lassen diese sich durch die verhältnismäßig großen optischen Wege und die hohe thermische Last oft nich vermeiden, was eine aktive Stabilisierung nötig macht.

Im vorgestellten Lasersystem wird deshalb eine alternative Technik gewählt: Da die Phase ϕ_s des Signals während der optisch-parametrischen Verstärkung unverändert

bleibt, weist der resultierende Impulszug dieselbe Phasenstabilität auf, wie das Er:Faser-Lasersystem. Phasenänderungen im Pumpimpuls haben keine Auswirkung und beeinflussen die Qualität der erreichbaren Phasenstabilisierung nicht. Es ist somit eine vollständige Entkopplung vom Hochleistungsverstärkerzweig möglich, was eine Vielzahl technischer Herausforderungen vermeidet. Stattdessen werden alle Vorteile des inhärent phasenstarren Er:Faserlaser-Systems direkt auf die intensiven und ultrakurzen Impulse nach der optisch-parametrischen Verstärkung übertragen.

Um die Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase zu charakterisieren kommt ein f-zu-$2f$-Interferometer zum Einsatz. In diesem wird zunächst durch Vierwellenmischprozesse ein Kontinuum erzeugt, welches mindestens eine Oktave umfasst. Entsprechend Gleichung 2.3 bleiben Phasenänderungen dabei erhalten. Im zweiten Schritt wird ein langwelliger Ausschnitt aus dem Spektrum frequenzverdoppelt und interferometrisch mit dem kurzwelligen Anteil überlagert. Die Phasenbeziehung aus Gleichung 4.6 lässt sich auch auf den Prozess der Frequenzverdopplung anwenden und liefert $\phi_{\mathrm{SHG}} = 2\phi_0 + \frac{\pi}{2}$. Eine Änderung der Phase ϕ_0 der fundamentalen Welle wirkt sich auf die Phase der zweiten Harmonischen ϕ_{SHG} mit einem Faktor 2 aus, wodurch sich die relative Phasenlage der interferierenden Frequenzanteile zueinander verschiebt und als Intensitätsänderung detektiert werden kann.

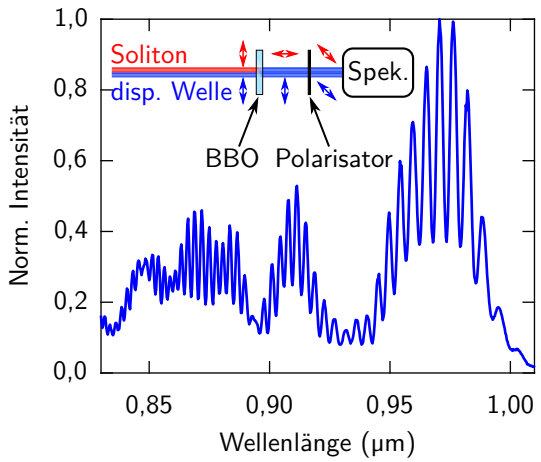

Abbildung 4.6 – Typisches f-zu-$2f$-Interferogramm nach einer hoch nichtlinearen Glasfaser. Das Soliton wird in einem BBO-Kristall frequenzverdoppelt, wodurch es spektral mit der dispersiven Welle überlappt. Ein Polarisator projiziert die beiden Strahlen auf eine gemeinsame Polarisationsachse und erlaubt zugleich die Anpassung ihrer relativen Intensität. Die Modulationsperiode lässt sich durch ein dispersives Medium vor der Frequenzverdopplung anpassen, mit dem eine gruppengeschwindigkeitsabhängige Zeitverzögerung zwischen den beiden Impulsen realisiert werden kann.

Eine absolute Intensitätsmessung bzw. deren Kalibration ist oft fehlerbehaftet. Eine alternative Methode, die nicht von der Leistung abhängt, wird durch eine spektral aufgelöste Messung ermöglicht, wobei ein Zeitversatz zwischen den beiden Impulsen eine Modulation bewirkt, die experimentell einfach ausgewertet werden kann [Kak01]. Eine Änderung der Träger-Einhüllenden-Phase bewirkt eine Verschiebung des Interferenzmusters und lässt sich durch eine Fourier-Transformation präzise extrahieren. Ein typisches f-zu-$2f$-Interferogramm ist in Abbildung 4.6 gezeigt. Die Messung nach einer hoch nichtlinearen Glasfaser ist besonders elegant, da Soliton und dispersive Welle in

der Regel bereits mehr als eine Oktave umfassen und durch Frequenzverdopplung des Solitons in einer kollinearen Geometrie direkt überlappende spektrale Anteile erzeugt werden können, wie im Einsatz von Abbildung 4.6 schematisch dargestellt. Diese liegen im Wellenlängenbereich der zweiten Harmonischen des Solitons, d.h. bei etwa 900 nm (Abbildung 4.6). Für die Messung nach dem optisch-parametrischen Verstärker ist der Aufbau äquivalent, jedoch muss das Spektrum zunächst nichtlinear verbreitert werden, wozu sich die Weißlichterzeugung in Yttrium-Aluminium-Granat (YAG) anbietet. Der langwellige Anteil des verstärkten Spektrums wird frequenzverdoppelt und interferiert mit dem Weißlicht im Wellenlängenbereich um 650 nm (siehe auch Abbildung 4.8a).

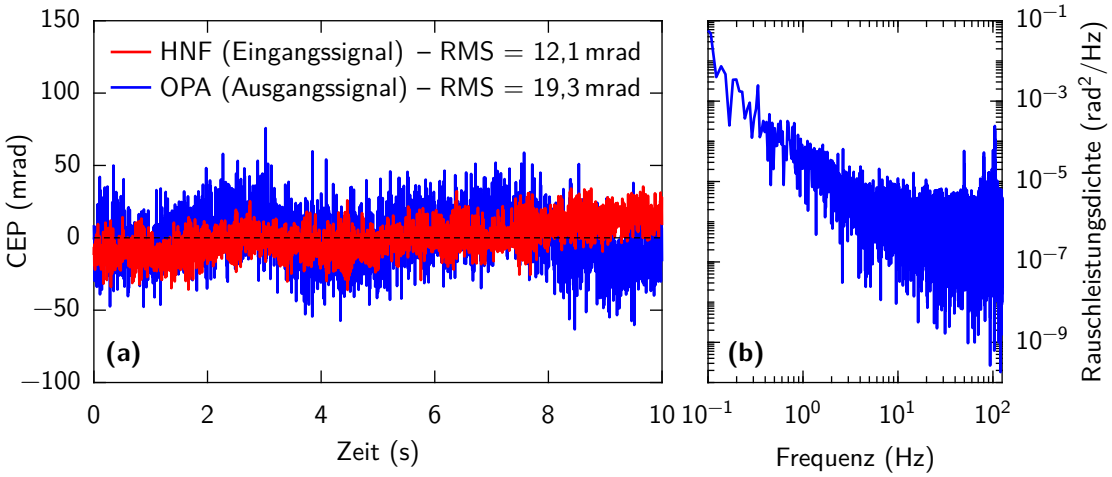

Abbildung 4.7 – Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase der Impulse aus dem optisch-parametrischen Verstärker, gemessen in einem f-zu-$2f$-Interferometer. (a) Relative Änderung der CEP über einen Zeitraum von 10 s bei einer Integrationszeit von 4 ms. Für das Eingangssignal aus der HNF ergibt sich eine mittlere quadratische Abweichung von 12,1 mrad, nach der Verstärkung liegt der Wert bei 19,3 mrad. (b) Radiofrequenzspektrum der Rauschanteile im Bereich zwischen 100 mHz und 125 Hz.

Die Charakterisierung der Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase vor und nach der optisch-parametrischen Verstärkung ist in Abbildung 4.7a gezeigt. Für einen Zeitraum von 10 s wurde dafür kontinuierlich das Interferenzspektrum bei einer Integrationszeit von 4 ms aufgezeichnet und anschließend aus jeder Messung die CEP extrahiert. Auf diesen Zeitskalen ergibt sich eine exzellente Stabilität, die maximalen Abweichungen vom Mittelwert liegen im Bereich von ±75 mrad, d.h. gerade einmal $\pm 0{,}02\pi$. Im quadratischen Mittel ist die Abweichung noch deutlich kleiner und für die Impulse aus der hoch nichtlinearen Glasfaser wird ein Wert von 12,1 mrad berechnet. Nach der optisch-parametrischen Verstärkung erhöht er sich leicht auf 19,3 mrad. Die zusätzlichen Beiträge werden dabei maßgeblich auf nichtlineare Phasenverschiebungen im f-zu-$2f$-Interferometer selbst zurückgeführt, die sich als Folge minimaler Leistungsschwankungen ergeben.

Eine nichtlineare Kopplung im OPA-Kristall durch $\chi^{(3)}$-Effekte ist zwar ebenfalls möglich, ihr Einfluss wird durch die exzellente Stabilität des Pumpstrahls (vgl. Abschnitt 3.4) jedoch minimiert. Ebenfalls dargestellt ist das frequenzaufgelöste relative Phasenrauschen (Abbildung 4.7b) welches aus dem Datensatz berechnet wurde.

Die Messergebnisse beweisen die exzellente Stabilität der Träger-Einhüllenden-Phase und die prinzipielle Eignung für feldabhängige Messungen. Erst auf Zeitskalen im Minutenbereich ergeben sich größere Änderungen der CEP, welche sich in einem kontinuierlichen Drift äußern. Sie werden deshalb auf temperaturbedingte Längenänderungen der verwendeten Verstärkerfasern zurückgeführt. Für die im Rahmen dieser Arbeit präsentierten Experimente sind sie unerheblich, da typische Messdauern bei unter einer Minute liegen. Für längere Integrationszeiten können diese durch die neu geschaffene Möglichkeit zur aktiven Kontrolle der Phase einfach kompensiert werden.

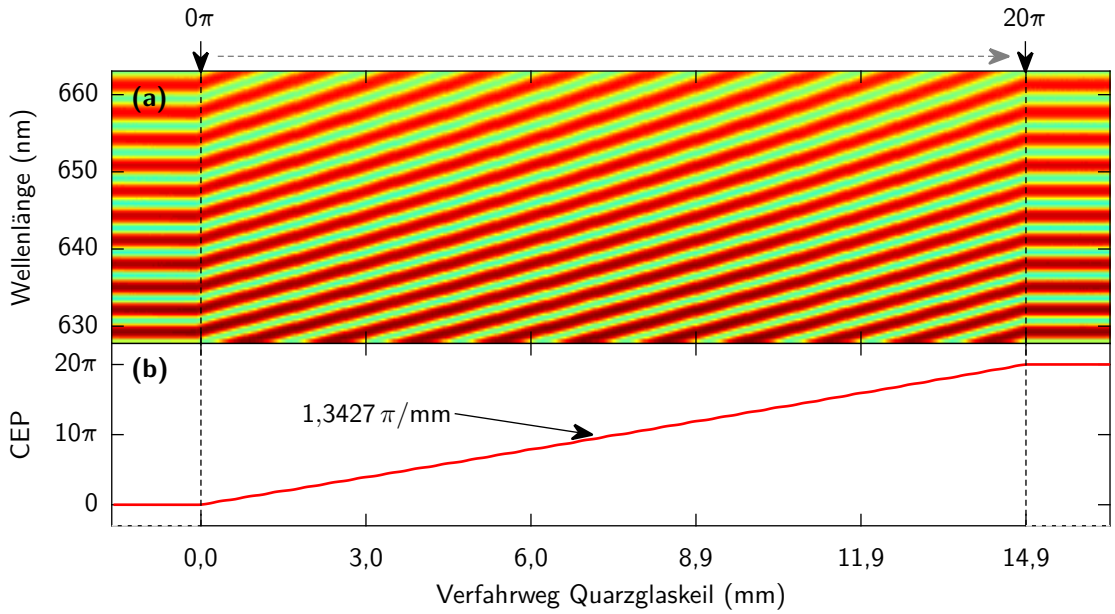

Abbildung 4.8 – Präzise Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase der Impulse aus dem optisch-parametrischen Verstärker durch variablen Einschub eines Quarzglaskeils in der passiv phasenstarren Quelle. (a) f-zu-$2f$-Interferogramm und (b) daraus extrahierte CEP für eine lineare Verschiebung um 20π, entsprechend einem Verfahrweg des Quarzglaskeils von 14,9 mm. Zu Beginn und am Ende der Messung wurde die Phasenlage konstant gehalten.

Für die aktive Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase werden die Quarzglaskeile, welche direkt nach der Differenzfrequenzerzeugung in der passiv phasenstarren Quelle implementiert sind (vgl. Abbildung 2.8), gegeneinander verschoben. Es ändert sich damit der optische Weg im Material und aufgrund des Unterschieds zwischen Phasen- und Gruppengeschwindigkeit die Phasenlage der Impulse. Wie zuvor gezeigt wirkt sich diese

Änderung trotz der anschließenden nichtlinearen Verstärkung in Er:Faser und der Frequenzkonversion in hoch nichtlinearer Glasfaser direkt auf die CEP der kurzen Impulse nach der optisch-parametrischen Verstärkung aus. Zur Demonstration der Methode ist in Abbildung 4.8 das f-zu-$2f$-Interferogramm und die daraus extrahierte CEP für eine Verschiebung des Quarzglaskeils um rund 15 mm, entsprechend einer Änderung der Phase um 20π gezeigt. Zu Beginn und am Ende der Messung wurde die CEP konstant gehalten. Eine lineare Anpassung ergibt eine Änderung der CEP von $1{,}3427\,\pi/\mathrm{mm}$, welche zur Kalibrierung und damit präzisen Einstellung der Phase auch ohne aktive Überwachung durch f-zu-$2f$-Interferometrie genutzt werden kann. Die maximal mögliche Änderung beträgt 40π, d.h. 20 vollständige Perioden, und ist lediglich durch den Verfahrweg des Quarzglaskeils limitiert. Dies beweist den großen Vorteil der im vorgestellten Lasersystem implementierten Methode zur Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase: Der zusätzliche Materialdurchgang wird an einer Stelle im System eingebracht, an der die Impulse eine relativ hohe Dauer besitzen und dieser im Vergleich zu den nachfolgenden Faserstrecken völlig vernachlässigbar ist. Die Einstellung der Phasenlage hat damit keinerlei Einfluss auf andere Impulsparameter. Insbesondere die Dauer der kurzen Impulse nach dem optisch-parametrischen Verstärker, welche nur noch wenige Lichtzyklen enthalten und auf minimale Änderungen im Materialdurchgang somit extrem empfindlich reagieren, bleibt völlig unbeeinflusst. CEP-abhängige Effekte können damit eindeutig zugeordnet werden und eine Verfälschung von Messergebnissen durch eine Kopplung mit anderen Impulsparametern ist ausgeschlossen. Dies liefert ideale Voraussetzungen für die feldabhängige Untersuchung extrem nichtlinearer Phänomene, etwa bei der in Abschnitt 5.4 präsentierten Erzeugung von höheren Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich.

4.5 Parametrische Verstärkung bei Variation der Repetitionsrate über mehr als zwei Größenordnungen

Wie in Abschnitt 4.2 erläutert, wird die Repetitionsrate der verstärkten Impulse durch die Wiederholrate der Pumpimpulse und damit des Ytterbium-Zweigs vorgegeben. Da dieser eine Variation über mehr als zwei Größenordnungen erlaubt (Abschnitt 3.6) wurde auch das Verhalten des optisch-parametrischen Verstärkers bei einer entsprechenden Anpassung untersucht.

Im Gegensatz zum Ytterbium-Verstärkerzweig wird im OPA mit komprimierten Impulsen gearbeitet. Eine Limitierung der Impulsenergie zur Vermeidung unerwünschter Nichtlinearitäten in Faserstrecken ist deshalb offensichtlich nicht nötig. Eine erhöhte Spitzenintensität führt entsprechend Gleichung 4.3 sogar zu einer Erhöhung der Verstärkung, solange Sättigungseffekte ausgeschlossen werden können. Die Spitzenleistung sollte

somit lediglich durch die Zerstörschwelle des OPA-Kristalls limitiert sein. Da die Strahldurchmesser zur Reduzierung der thermischen Last bei den höchsten Repetitionsraten jedoch bereits vergrößert wurden (vgl. Abschnitt 4.3) ist selbst für die maximalen im Yb:PCF-Hochleistunsverstärker erreichten Impulsenergien um 10 µJ keine Beschädigung zu erwarten.

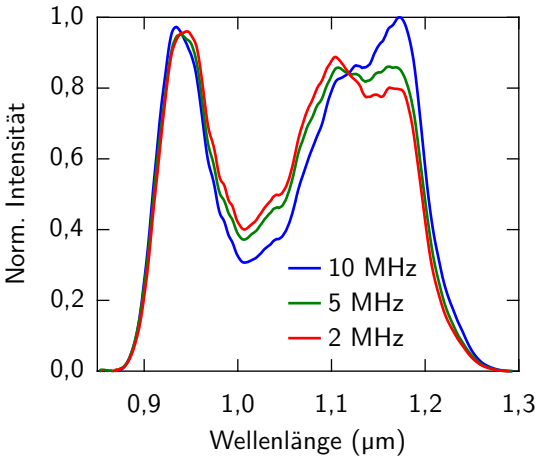

Abbildung 4.9 – Ausgangsspektren des optisch-parametrischen Verstärkers für drei verschiedene Repetitionsraten bei konstanter Pumpimpulsenergie von 2,2 µJ. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die Spektren auf die integrierte Intensität normiert. Die Verstärkungseffizienz und damit die Energie der Ausgangsimpulse nimmt für niedrigere Repetitionsraten hingegen zu und beträgt 79 nJ, 85 nJ bzw. 91 nJ für die drei gezeigten Spektren.

Im ersten Schritt wurde das Spektrum für unterschiedliche Repetitionsraten im Bereich von 100 kHz bis 10 MHz für konstante Pumpimpulsenergie von 2,2 µJ untersucht. Das Ergebnis für drei Konfigurationen ist in Abbildung 4.9 gezeigt. Es ergibt sich ein vergleichbarer spektraler Verlauf was ähnliche Betriebsparameter nahelegt. Für höhere Wiederholraten sind jedoch kleine Änderungen zu erkennen: Die spektrale Breite nimmt leicht zu, die Einschnürung im Wellenlängenbereich um 1,03 µm wird tiefer und insbesondere beim langwelligen Maximum ist eine Verschiebung des spektralen Gewichts zu beobachten. Das Verhalten ist qualitativ identisch zu Beobachtungen die für Fluoreszenzspektren eines optisch-parametrischen Verstärkers ohne Eingangssignal gemacht wurden und damit das Verstärkungsspektrum wiedergeben [Rot13]. Sie werden auf die Erwärmung des BBO-Kristalls durch den Pumpstrahl zurückgeführt, welche eine Änderung des Brechungsindex und damit der Phasenanpassungsbedingung bewirkt. Konkret führt eine höhere Temperatur zu einer Verschiebung der Phasenanpassung zu größeren Winkeln (vgl. Abbildung 4.1a) wodurch sich eine Verbreiterung des Spektrums ergibt, wie sie im Experiment beobachtet wird, denn für hohe Repetitionsraten sind bei konstanter Pumpimpulsenergie deutlich größere Durchschnittsleistungen erforderlich. Lediglich die Änderung der Substruktur im langwelligen Maximum kann damit nicht erklärt werden.

Während die Spektren zur besseren Vergleichbarkeit auf die Gesamtleistung normiert sind, ergeben sich bei Variation der Repetitionsrate auch deutliche Unterschiede in der Verstärkungseffizienz. Abbildung 4.10 zeigt die Energie der verstärkten Impulse in Abhängigkeit der Repetitionsrate. Wie zuvor wurde eine konstante Pumpimpulsenergie von

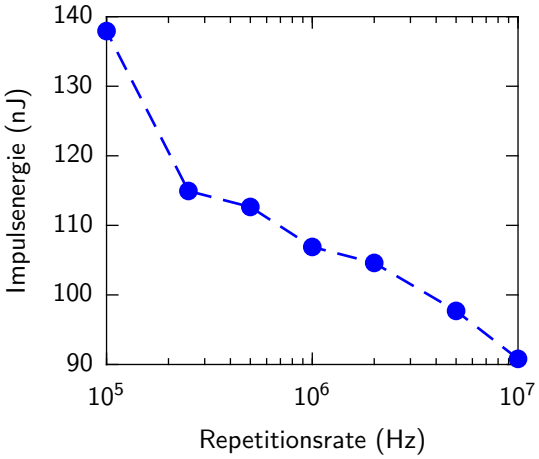

Abbildung 4.10 – Energie der optisch-parametrisch verstärkten Impulse für unterschiedliche Repetitionsraten zwischen 100 kHz und 10 MHz bei konstanter Pumpimpulsenergie von 2,2 µJ. Für niedrigere Wiederholraten ist ein Anstieg der Verstärkungseffizienz zu erkennen, bei 100 kHz liegt sie mit 138 nJ um 52 % höher als bei 10 MHz.

2,2 µJ verwendet und es erfolgte keine Neujustage des optisch-parametrischen Verstärkers zwischen den Messungen. Entsprechend Gleichung 4.3 sollte sich damit, abgesehen von den thermisch bedingten Abweichungen in der Phasenanpassungsbedingung, keine Änderung der Verstärkungseffizienz ergeben. Experimentell wird hingegen eine um bis zu 52 % höhere Energie für die verstärkten Impulse gemessen, wenn eine Repetitionsrate von 100 kHz statt 10 MHz gewählt wird. Für dieses Verhalten werden zwei maßgebliche Effekte verantwortlich gemacht: Zum einen ändert sich wie bereits erwähnt durch die Erwärmung des Kristalls dessen Brechungsindex. Während dies zunächst ähnliche Auswirkungen wie eine Änderung des Phasenanpassungswinkels hat, ergibt sich durch die gaußförmige Intensitätsverteilung des Pumpstrahls sowie die endliche Wärmeleitfähigkeit des Materials jedoch ein radialer Temperaturgradient im BBO-Kristall. Dies beeinträchtigt den Verstärkungsprozess deutlich stärker, denn die radiale Abhängigkeit des Brechungsindex führt zu einer ebenfalls radialen Abhängigkeit von Bandbreite, Konversionseffizienz und Gruppengeschwindigkeit, wodurch die Gesamteffizienz des Prozesses deutlich reduziert wird [Rie14a,Rie14b,Tan18]. Der zweite Effekt, welcher die Spitzenintensität im Verstärkerkristall und damit direkt die Verstärkungseffizienz beeinflusst, wird in der Ausbildung thermischer Linsen vermutet. Da der Fokus des Pumpstrahls kurz vor dem BBO liegt, führt eine zusätzliche thermische Linse zu einer Verkürzung der effektiven Fokuslänge und damit einem größeren Strahldurchmesser mit geringerer Intensität. Für kleinere Repetitionsraten verschwindet dieser Effekt weitgehend, wodurch sich der Fokus in Richtung Kristall verschiebt und sich trotz gleichbleibender Energie der Pumpimpulse die Spitzenleistung während der parametrischen Verstärkung erhöht.

Im Rahmen der vorgestellten Messungen wurde ebenfalls der Betrieb bei einer Repetitionsrate von 20 MHz untersucht. Aufgrund der limitierten Pumpleistung des Yb:PCF-Hochleistungsverstärkers muss die Impulsenergie dabei jedoch reduziert werden. Bei identischer Pumpleistung wie in den vorigen Messungen verringert sich bereits die Effizienz

der Frequenzverdopplung um 15 %, wodurch die Energie der Pumpimpulse auf 0,93 µJ zurück geht. Die Effizienz der optisch-parametrischen Verstärkung reduziert sich dadurch auf nur noch 25 % des Wertes für 10 MHz.

Die präsentierten Ergebnisse zeigen, dass die Effizienz der optisch-parametrischen Verstärkung bei den höchsten Repetitionsraten durch thermische Effekte limitiert ist. Ein Betrieb bis zu einer Wiederholrate von 20 MHz ist zwar grundsätzlich noch möglich, allerdings geht die Impulsenergie dabei zurück. Da die minimalen Strahldurchmesser bereits durch die Durchschnittsleistung limitiert sind, sollte für den dauerhaften Betrieb in diesem Regime deshalb die Untersuchung alternativer Verstärkerkonzepte in Betracht gezogen werden. Aussichtsreich erscheint der mehrstufige Aufbau des Verstärkers: Durch kleinere Pumpleistungen in den einzelnen Stufen lassen sich thermische Einflüsse reduzieren. Gleichzeitig werden kleinere Strahldurchmesser möglich, womit trotz geringerer Spitzenleistungen noch ausreichend hohe Verstärkungsfaktoren denkbar sind. In diesem Regime könnte auch der Einsatz von BIBO-Kristallen in Erwägung gezogen werden, wobei die zuvor erwähnte hohe Absorption gegen den Zugewinn an Verstärkungseffizienz durch die höhere Nichtlinearität abgewogen werden muss.
Für kleinere Repetitionsraten zeigt sich hingegen eine Zunahme der Verstärkungseffizienz. Da die Zerstörschwelle von BBO noch nicht erreicht ist, könnten sich durch Optimieren der Strahldurchmesser in diesem Regime voraussichtlich noch höhere Effizienzen erzielen lassen. Eine geringfügige Reduzierung der Repetitionsrate ist dabei attraktiv, da sie die Ausnutzung der maximal vom Yb:Faser-Hochleistungsverstärker zur Verfügung gestellten Impulsenergie erlaubt. Dadurch kann die Effizienz der Verstärkung noch weiter erhöht werden, womit für experimentelle Anwendungen besonders intensive Impulse zur Verfügung stehen. Außerdem lassen sich thermische Instabilitäten im System, die sich bei den höchsten Repetitionsraten in Drifts der Strahlposition und -richtung sowie durch Luftverwirbelungen an erwärmten Komponenten verursachten Amplitudenfluktuationen bemerkbar machen weitestgehend vermeiden. Ob der Zugewinn an Stabilität die reduzierte Photonenanzahl und folglich erhöhten Messdauern rechtfertigt, muss selbstverständlich für jede mögliche Anwendung individuell festgestellt werden. Für die im nächsten Kapitel vorgestellte Untersuchung der Erzeugung von optischen Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich hat sich z.B. eine Repetitionsrate von etwa 1 MHz als zielführend herausgestellt, da die beobachteten Prozesse aufgrund der extrem hohen nichtlinearen Ordnungen sehr empfindlich auf kleinste Leistungsschwankungen reagieren. Die Detektionssensitivität war hingegen ausreichend um auch bei reduziertem Photonenstrom noch Messdauern unter 1 min zu erlauben.

5 Erzeugung optischer Harmonischer in Festkörpern mit ultrakurzen, intensiven Impulsen bei hoher Repetitionsrate

Der im vorherigen Kapitel präsentierte optisch-parametrische Verstärker stellt Impulse zur Verfügung, die mit Energien bis zu 200 nJ nicht nur hochintensiv, sondern mit einer Dauer von nur 8,3 fs auch ultrakurz sind. Sie enthalten damit nur zwei Schwingungen des elektromagnetischen Feldes. Diese Parameter erlauben die Untersuchung extrem nichtlinearer Phänomene, die bei elektrischen Feldstärken in der Größenordnung von 1 V/Å auftreten. Mit längeren Impulsen oder gar statischen Feldern sind diese unmöglich zu beobachten, da die Feldstärke um mehr als das einhundertfache über der Durchbruchspannung typischer Materialien liegt. Durch Stoßionisation würden in der Folge unweigerlich Schäden auftreten.

Ziel dieser Arbeit war die Erzeugung und Untersuchung höherer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich. Dieser Prozess macht sich die nichtlineare Antwort eines Mediums auf ein externes elektromagnetisches Feld zu Nutze. Propagiert ein kurzer Lichtimpuls durch ein Medium wird so Strahlung bei Harmonischen der Trägerwelle erzeugt, deren Photonenenergie um ein Vielfaches größer ist, als das der fundamentalen Strahlung. In verdünnten Systemen wie atomaren Gasen ist der Prozess gut verstanden und wird durch das Dreistufenmodell anschaulich beschrieben [Cor07]. Die Erzeugung in Festkörpern, welche Gegenstand dieses Kapitels ist, wurde hingegen erst 2011 beobachtet [Ghi11]. Die mikroskopischen Details der Ladungsträgerdynamik sind noch ungeklärt. Durch die absolute Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase der intensiven Impulse und damit einem direkten Einfluss auf das elektrische Feld bietet das entwickelte Lasersystem hervorragende Voraussetzungen, um den Erzeugungsprozess zu untersuchen. Die Leistungsfähigkeit kann dabei anhand der durchgeführten Messungen unter Beweis gestellt werden.

Abschnitt 5.1 eröffnet das Kapitel mit einer kurzen theoretischen Beschreibung in einem perturbativen Regime, d.h. bei Betrachtung der Nichtlinearität als kleiner Störung in der linearen Materialantwort. Der Aufbau, welcher im Rahmen dieser Arbeit erstmals die Erzeugung und Detektion von Harmonischen im ultravioletten Spektralbereich erlaubte,

sowie erste Messungen sind Inhalt von Abschnitt 5.2. Um den Messbereich auf Wellenlängen kürzer 200 nm zu erweitern, ist hingegen eine Erzeugung und Detektion im Vakuum erforderlich, da Luft in diesem Spektralbereich stark absorbiert. Es wurde deshalb ein überarbeiteter Aufbau entwickelt der in Abschnitt 5.3 beschrieben wird. Die Abhängigkeit der erzeugten Spektren von der Träger-Einhüllenden-Phase wird in Abschnitt 5.4 zusammen mit einer Simulation diskutiert, welche viele der experimentell beobachteten Merkmale wiedergibt. Abschnitt 5.5 schließt das Kapitel mit einem Ausblick über weitere Optimierungsmöglichkeiten des überarbeiteten Aufbaus und dadurch mögliche zukünftige Experimente ab.

5.1 Theoretische Beschreibung der Erzeugung optischer Harmonischer in Festkörpern

Propagiert eine elektromagnetische Welle durch ein dielelektrisches Medium resultiert eine Verschiebung mikroskopischer Ladungen und folglich ein Dipolmoment. Makroskopisch wird diese Materialantwort durch die Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r},t)$ beschrieben. Für kleine Feldstärken hängt sie näherungsweise linear vom elektrischen Feld $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ ab. Die für größere Felder zunehmenden Abweichungen lassen sich im Rahmen einer Störungsrechnung berücksichtigen, weshalb man auch vom „perturbativen Regime“ spricht. Es bietet sich dazu an die Polarisation in einer Potenzreihe zu entwickeln

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)}\mathbf{E}(\mathbf{r},t) + \chi^{(2)}\mathbf{E}^2(\mathbf{r},t) + \chi^{(3)}\mathbf{E}^3(\mathbf{r},t) + \cdots \right) , \tag{5.1}$$

wobei ε_0 die elektrische Feldkonstante ist und die Tensoren $n+1$-ter Stufe $\chi^{(n)}$ als optischen Suszeptibilitäten n-ter Ordnung bezeichnet werden. Setzt man für $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ eine ebene Welle der Frequenz ω ein, lässt sich zeigen, dass die nichtlinearen Terme $n-$ter Ordnung zu Polarisationsbeiträgen bei Frequenzen $n\omega$ führen [Boy08], den optischen Harmonischen.

Die mikroskopische Ursache für die Entstehung einer nichtlinearen Polarisation ist in Abbildung 5.1 für den eindimensionalen Fall anschaulich dargestellt. Wird ein Ladungsträger in einem Bindungspotential $U(x)$ durch ein elektrisches Feld beschleunigt, hängt die resultierende Auslenkung und damit $P(x)$ von der Stärke der Rückstellkraft $F(x) = -\frac{\mathrm{d}U}{\mathrm{d}x}$ ab. Deshalb ergibt sich nur für ein perfekt parabolisches Potential ein linearer Zusammenhang zwischen Polarisation und Feldstärke. Anharmonische Terme im Potential führen zu Abweichungen: Ein kubischer Term resultiert in einer zusätzlichen konstanten Auslenkung (optische Gleichrichtung) sowie einem bei der doppelten Frequenz oszillierenden Anteil (zweite Harmonische). Ein Term vierter Ordnung führt zu einem zusätzlichen Anteil, welcher bei der dreifachen Frequenz oszilliert, der dritten Harmonischen.

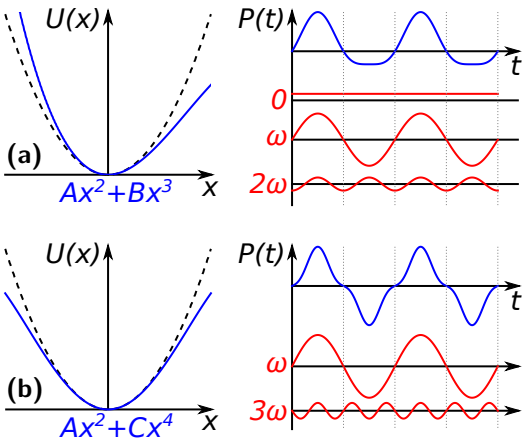

Abbildung 5.1 – Schematische Darstellung der Polarisation $P(t)$ eines Mediums mit anharmonischem Potential $U(x)$ bei sinusförmiger Anregung. Die Antwort lässt sich als Superposition des linearen Anteils bei der Fundamentalfrequenz ω und nichtlinearen Beiträgen bei deren Harmonischen darstellen. (a) Bei asymmetrischen Potentialen ergibt sich eine ebenfalls asymmetrische Antwort und alle Ordnungen sind möglich. (b) Bei symmetrischen Potentialen, wie sie bei zentrosymmetrischen Kristallen zu finden sind, ist die Auslenkung in beide Richtungen gleich und nur ungerade Harmonische treten auf.

An diesem einfachen Modell lässt sich auch direkt eine fundamentale Eigenschaft zentrosymmetrischer Kristalle verstehen: Aufgrund der Symmetrie der Kristallstruktur ergibt sich für Ladungsträger zwangsläufig ein inversionssymmetrisches Bindungspotential, welches folglich nur Terme gerader Ordnung enthält. Die Auslenkung ist damit stets symmetrisch um die Ruhelage und ihr Betrag unabhängig vom Vorzeichen des elektrischen Feldes. Unter anderem führt dies dazu, dass in zentrosymmetrischen Kristallen stets nur Harmonische ungerader Ordnung erzeugt werden können.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Erzeugung höherer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich bis zur siebten Ordnung demonstriert. Dafür sind extrem hohe Feldstärken im Bereich von 1 V/Å nötig. Obwohl die in Abschnitt 5.4 präsentierte Simulation die Tauglichkeit eines perturbativen Modells bei diesen Impulsparametern bis mindestens zur fünften Ordnung beweist, ist die störungstheoretische Beschreibung des Prozesses für noch höhere Ordnungen und Feldstärken letztendlich nicht mehr haltbar. Die aktuelle Forschung beschäftigt sich deshalb mit der Entwicklung von theoretischen Modellen, welche die Erzeugung hoher Harmonischer in Festkörpern auch in einem Bereich beschreiben können, in dem nichtlineare Effekte dominieren. Man spricht folglich vom „nicht-perturbativen“ Regime. Oft wird dabei ein Ansatz gewählt, welcher die Ladungsträgerdynamik im Impulsraum als Bloch-Oszillationen beschreibt, wobei die sogenannten Halbleiter-Blochgleichungen (*engl.* Semiconductor Bloch equations) zum Einsatz kommen [Gol08]. Die Emissionscharakteristik wird dabei durch das Zusammenspiel von Intraband- und Interbandbeiträgen zur Polarisation bestimmt. Es ist jedoch schwierig daraus ein mikroskopisches Verständnis des Erzeugungsprozesses zu entwickeln. Bislang konnte insbesondere nicht abschließend geklärt werden, welche Bänder für eine ausreichende Beschreibung zu berücksichtigen sind, da den Berechnungen typischerweise ein vereinfachtes Bandmodell zu Grunde liegt. Ein alternativer theoretischer Ansatz verwendet deshalb die zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie (*engl.* time-dependent den-

sity functional theory), wobei direkt der mikroskopische Strom im Ortsraum unter Berücksichtigung der realen Kristallstruktur berechnet wird [Tan17]. Eine Auswertung der experimentellen Daten durch diese Modelle stellt eine interessante Perspektive für zukünftige Untersuchungen dar.

5.2 Erzeugung und Detektion optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich

Zur Erzeugung optischer Harmonischer werden die ultrakurzen Impulse aus dem optisch-parametrischen Verstärker verwendet (Kapitel 4). Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente standen damit Impulsenergien bis 100 nJ bei einer Dauer von 8,3 fs zur Verfügung.

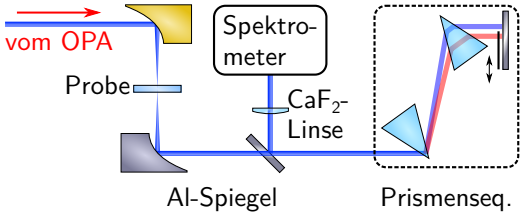

Abbildung 5.2 – Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung und Detektion optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich. Parabolspiegel fokussieren die ultrakurzen Impulse aus dem optisch-parametrischen Verstärker in die Probe und kollimieren das resultierende Signal. Eine Prismensequenz erlaubt die spektrale Filterung der Fundamentalen und niedrigen Harmonischen um das Signal an den Dynamikumfang des zur Detektion genutzten CCD-Spektrometers anzupassen.

Der Aufbau zur Erzeugung und Detektion ist schematisch in Abbildung 5.2 gezeigt. Ein goldbeschichteter Parabolspiegel mit einer effektiven Brennweite von $f = 25$ mm fokussiert die Impulse in die Festkörperprobe. Bei einer Fokusgröße von 8 µm Halbwertsbreite lassen sich dadurch elektrische Feldstärken von über 1 V/Å im Vakuum erreichen. In einer Quarzprobe entspricht dies unter Berücksichtigung der Reflexionsverluste rund 0,86 V/Å. Ein zweiter Parabolspiegel mit der effektiven Brennweite $f = 15$ mm kollimiert das erzeugte Signal. Da Silberspiegel nur für Wellenlängen größer als 400 nm eine hohe Reflektivität aufweisen wird bei diesem sowie den nachfolgenden Spiegeln eine für den ultravioletten Spektralbereich optimierte Aluminiumbeschichtung verwendet, was eine ausreichende Reflektivität bis zu einer Wellenlänge von 200 nm liefert. Das kollimierte Signal durchläuft zunächst eine Prismensequenz zur spektralen Filterung. Dies erlaubt die Unterdrückung der Fundamentalen sowie je nach Bedarf niedriger Harmonischer. Der zu detektierende Spektralbereich kann damit an den Dynamikumfang des CCD-Spektrometers angepasst werden. Quarzglas als Prismenmaterial stellt auch hier hohe

Transmission bis zu einer Wellenlänge von 200 nm sicher. Die Einkopplung ins Spektrometer erfolgt mit einer CaF_2-Linse der Brennweite $f = 50$ mm. Chromatische Aberrationen werden dank der vergleichsweise geringen Materialdispersion minimiert. Der schnelle Anstieg des Brechungsindex ab einer Wellenlänge von 500 nm führt damit nur zu einer moderaten Verschiebung des Fokus um etwa 5 mm die sich noch gut korrigieren lässt.

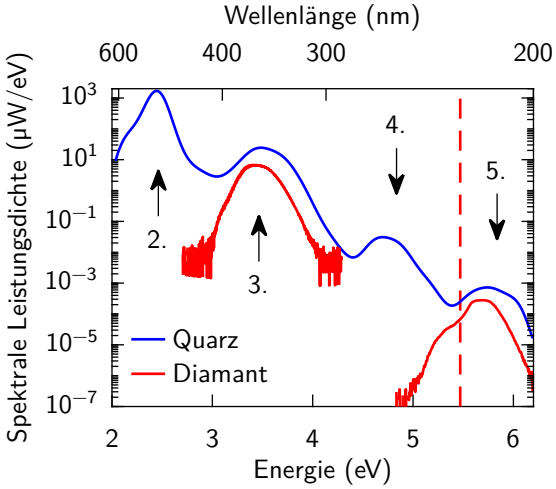

Abbildung 5.3 – Detektierte Spektren für zwei ausgewählte Festkörper. In nicht inversionssymmetrischem Quarz der Dicke 100 µm (blau) werden alle harmonischen Ordnungen (durch Pfeile markiert) erzeugt. Für zentrosymmetrischen Diamant mit einer Dicke von 320 µm (rot) sind nur die ungeraden 3. und 5. Harmonischen zu beobachten. Die gestrichelte Linie entspricht der Bandlückenenergie von Diamant. Der Messbereich ist bei einer Wellenlänge von 200 nm durch das Spektrometer limitiert.

Die in kristallinem Quarz der Dicke 100 µm und 320 µm dickem Diamant erzeugten Spektren sind in Abbildung 5.3 gezeigt. Der vorgestellte Aufbau erlaubt eine Detektion bis zur fünften Harmonischen und ist durch die kürzeste Detektionswellenlänge des Spektrometers begrenzt. Im Fall von Quarz, welcher keine Inversionssymmetrie aufweist, sind alle Ordnungen zu beobachten. Auf Grund der hohen spektralen Breite der treibenden Impulse ergibt sich so ein kontinuierliches Spektrum. In zentrosymmetrischem Diamant werden hingegen nur ungerade Harmonische erzeugt. Dies deckt sich mit der theoretischen Erwartung, wonach Ladungsträger in zentrosymmetrischen Potentialen nur ungerade Beiträge zur nichtlinearen Polarisation liefern (vgl. Abschnitt 5.1). Ein weiteres auffälliges Merkmal im Spektrum von Diamant ist eine Änderung des Intensitätsverlaufs der fünften Harmonischen. Dies wird auf eine Überhöhung der Intensität durch Resonanzeffekte oberhalb einer Energie von 5,47 eV zurückgeführt, was der Bandlücke von Diamant entspricht [Cla64]. Quarz weist eine sehr viel größere Bandlückenenergie von 8,9 eV auf [Lau80], welche nicht in den Messbereich fällt.

Es ist anzumerken, dass bei der Erzeugung optischer Harmonischer im nicht phasenangepassten Regime zwei Impulsanteile mit unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten entstehen [Gar14]: Ein Anteil propagiert mit der für die Frequenz der jeweiligen Harmonischen erwarteten Gruppengeschwindigkeit, ein zweiter Anteil propagiert hingegen mit der Geschwindigkeit des fundamentalen Impulses. Dieser Effekt ist auch bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten zu beobachten und äußert sich in Form von Interferenzeffekten zwischen den beiden Anteilen, d.h. durch eine Modulation im

Spektrum. Entsprechende Messungen sind in [Tau16] gezeigt. Für die hier präsentierten Messergebnisse wurde die Modulation wo nötig während der Nachbearbeitung durch geeignete digitale Fourier-Filter entfernt, da sie für die weitere Diskussion nicht von Bedeutung ist und die spektrale Form verfälscht. Bei höheren Harmonischen wird der Effekt schwächer, da die Länge immer kürzer wird, auf der Phasenanpassung gegeben ist. Die Intensität des „frei“ propagierenden Anteils geht damit gegen Null und es wird vorwiegend der Anteil detektiert, der vom fundamentalen Impuls am Ende des Kristalls erzeugt wird.

Um die Effizienz der Erzeugung höherer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich abzuschätzen, wurde das in Quarz erzeugte Spektrum auf die Intensität der zweiten Harmonischen normiert, welche sich mit einem kalibrierten Leistungsmessgerät bestimmen lässt. Die Verluste an den Aluminiumspiegeln, Quarzglasprismen sowie der CaF_2-Linse sind dabei berücksichtigt. Die Antwortfunktion des verwendeten Spektrometers ist hingegen nicht bekannt und insbesondere durch das verbaute Gitter wird ein Abfall der Effizienz für Wellenlängen kleiner als 300 nm erwartet. Die errechnete Leistungsdichte stellt somit eine untere Grenze dar und erlaubt eine Abschätzung der in den einzelnen Ordnungen minimal enthaltenen Leistung. Für die zweite bis zur fünften Harmonischen ergeben sich Werte von 330 µW, 12,9 µW, 12,1 nW bzw. 337 pW.

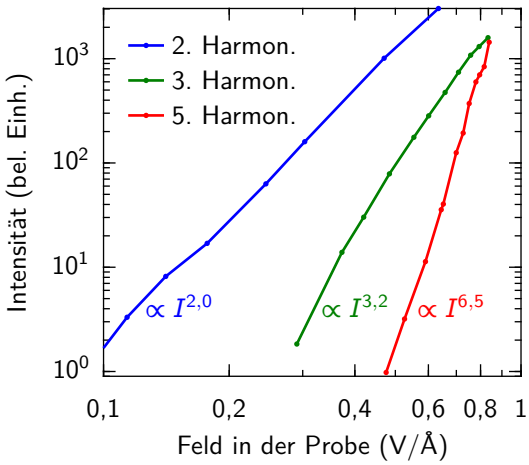

Abbildung 5.4 – Intensität der in kristallinem Quarz erzeugten optischen Harmonischen aufgetragen über der elektrischen Feldstärke. Für die zweite und dritte Harmonische ergibt eine Polynom-Anpassung die im perturbativen Regime erwartete quadratische bzw. kubische Abhängigkeit von der Intensität. Für die fünfte Harmonische ergibt sich ein abweichender Exponent von 6,5. Die Intensitäten zwischen unterschiedlichen Ordnungen sind nicht vergleichbar, da die Kurven unterschiedlich skaliert sind.

In diesem Zusammenhang ist auch die Leistungsabhängigkeit der erzeugten Harmonischen von der Intensität der treibenden Impulse interessant. Im perturbativen Modell (Abschnitt 5.1) folgt diese einem einfachen exponentiellen Zusammenhang, wobei der Exponent der nichtlinearen Ordnung entspricht [Boy08]. In Abbildung 5.4 ist der für Quarz experimentell bestimmte Zusammenhang gezeigt. Für die zweite und dritte Harmonische ergeben sich Exponenten von 2,0 und 3,2, was sich mit der theoretischen Erwartung deckt. Für die fünfte Harmonische wird hingegen ein deutlich zu großer Exponent von 6,5 berechnet. Für die Abweichung kommen zwei Effekte in Frage: Zum einen könnte der zu

große Wert sich als Folge des Zusammenspiels mehrerer nichtlinearer Prozesse ergeben, etwa durch kaskadierte Mischprozesse zwischen unterschiedlichen Ordnungen. Auch ein Einfluss von Selbstphasenmodulation des fundamentalen Impulses während der Propagation in der Probe kann nicht ausgeschlossen werden. Dabei werden neue spektrale Anteile gebildet und bei einem günstigen Verlauf der Dispersion ist eine gesteigerte Effizienz bei der Erzeugung der Harmonischen denkbar. Zum anderen könnte dies ein Anzeichen dafür sein, dass die rein perturbative Beschreibung nicht mehr ausreichend ist und bei solch hohen Ordnungen zunehmend nicht-perturbative Effekte berücksichtigt werden müssen. Der Vorstoß in dieses Regime mit einem angepassten Aufbau zur Erzeugung und Detektion noch kurzwelligerer Harmonischer ist Gegenstand des nächsten Abschnitts.

5.3 Detektion optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich bei Wellenlängen kürzer als 200 nm

Mit dem im letzten Abschnitt beschriebenen Aufbau lassen sich optische Harmonische bis zu einer Wellenlänge von 200 nm detektieren. Für kürzere Wellenlängen geht die Effizienz der verwendeten Komponenten drastisch zurück und auch das verwendete CCD-Spektrometer ist für diesen Bereich nicht mehr geeignet. Weiterhin stellt die Dämpfung in Luft eine fundamentale Begrenzung für die Detektion solch kurzer Wellenlängen dar, da atmosphärische Gase in diesem Bereich stark absorbieren [Sul66]. Insbesondere molekularer Sauerstoff ist dabei für einen Großteil der Absorption verantwortlich. Die Erzeugung und Detektion muss deshalb im Vakuum erfolgen, weshalb der Spektralbereich von 100 nm bis 200 nm auch als „Vakuumultraviolett“ (VUV) bezeichnet wird.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde dazu ein zweiter Aufbau entwickelt, welcher die Untersuchung optischer Harmonischer mit Wellenlängen kleiner als 200 nm erlaubt und vollständig im Vakuum untergebracht ist. Nach Erzeugung des Signals in einer Vakuumkammer erfolgt die Detektion in einem VUV-Spektrometer, welches aus einem Monochromator und einer CCD-Kamera besteht.

Der Aufbau ist schematisch in Abbildung 5.5 dargestellt. Zunächst werden die intensiven Impulse aus dem ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärker (Kapitel 4) durch ein 200 µm dickes MgF_2-Fenster in die Vakuumkammer eingekoppelt. Die geringe Dicke und der flache Dispersionsverlauf des Fenstermaterials minimieren die zeitliche Streckung. Der Brechungsindex von 1,37 ermöglicht die Transmission mit geringen Reflexionsverlusten von nur 5 %. Wie zuvor wird das Signal durch einen Parabolspiegel mit einer effektiven Brennweite von $f = 25$ mm in die Festkörperprobe fokussiert, wodurch sich eine Fokusgröße von 8 µm Halbwertsbreite erzielen lässt.

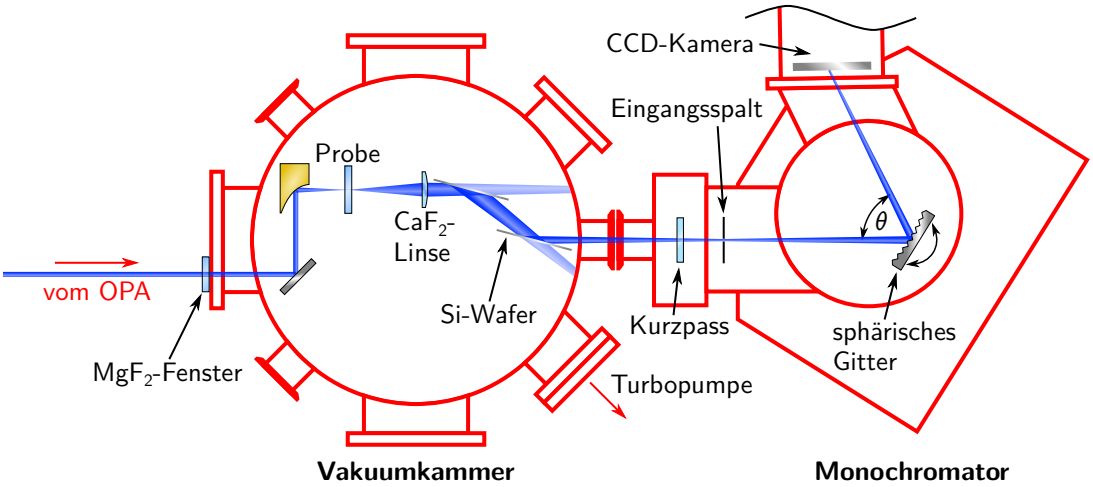

Abbildung 5.5 – Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung optischer Harmonischer im Vakuum und Detektion in einem VUV-Spektrometer. Die ultrakurzen Impulse aus dem optisch-parametrischen Verstärker werden durch ein dünnes MgF_2-Fenster in die Vakuumkammer eingekoppelt und mit einem Parabolspiegel in die Probe fokussiert. Die Kollimation erfolgt mit einer CaF_2-Linse. Die Fundamentale kann bei der Transmission durch zwei Silizium-Wafer im Brewsterwinkel abgespalten werden, wohingegen Wellenlängen kürzer 200 nm Reflektivitäten um 50 % aufweisen. Eine Kurzpassfilter bietet eine zusätzliche Unterdrückung für Wellenlängen größer als 500 nm. Zur Detektion kommt ein Seya-Namioka Monochromator zum Einsatz, welcher den Eingangsspalt über ein sphärisches Gitter auf einen CCD-Detektor abbildet.

Da gebräuchliche Spiegelmaterialien bei Wellenlängen kleiner als 200 nm nicht mehr eingesetzt werden können, wurde im vorgestellten Aufbau eine CaF_2-Linse der Brennweite $f = 20$ mm zur Kollimation des erzeugten Signals gewählt. Ist diese aus hochreinem Material („VUV grade“) geschliffen, ergibt sich ein Transmissionsbereich bis etwa 125 nm der lediglich von MgF_2 leicht übertroffen wird. Bei letzterem ist es auf Grund des geringen Brechungsindex jedoch schwierig Linsen mit ausreichender numerischer Apertur herzustellen. Alternativ könnten in Zukunft spezielle Aluminiumspiegel für den VUV-Spektralbereich mit MgF_2-Schutzschicht oder für noch kürzere Wellenlängen streifender Einfall auf Metallspiegeln zum Einsatz kommen (vgl. Abschnitt 5.5).
Nach Kollimation wird die Fundamentale vom Signal abgetrennt, da deren Streulicht andernfalls den CCD-Detektor sättigt. Zwei Silizium-Wafer im Brewsterwinkel transmittieren bzw. absorbieren einen Großteil der Fundamentalen. Für Wellenlängen kleiner als 200 nm ergibt sich aufgrund des Brechungsindexverlaufs von Silizium hingegen eine Reflektivität von etwa 50 %. Es muss dabei jedoch beachtet werden, dass die natürliche Oxidschicht von Silizium wiederum eine hohe Absorption im VUV-Spektralbereich aufweist und bereits 1 nm Verluste im Bereich von 50 % verursacht. Die Oxidschicht wurde deshalb mit Flusssäure entfernt. Sie bildet sich in der Folge zwar langsam neu [Mor90], jedoch kann ihre Dicke damit vorübergehend reduziert werden.

Um eine möglichst hohe Unterdrückung der Fundamentalen, insbesondere auch für unpolarisierte Anteile wie Streulicht, zu erreichen, passiert der Strahl vor Einkopplung ins VUV-Spektrometer einen Kurzpass, der mit Dämpfungen im Bereich 10^{-3} bis 10^{-4} spezifiziert ist. Dieser ist auf einem MgF_2-Substrat gefertigt, wodurch sich eine Transmission bis zu einer Wellenlänge von 120 nm ergibt. Im Durchlassbereich steigt die Transmission ab einer Wellenlänge von 500 nm kontinuierlich an, bis sie ihr Maximum von über 40 % bei einer Wellenlänge von 130 nm erreicht. Dieser Verlauf ist vorteilhaft, da er die intensiveren niedrigen Harmonischen, die durch Streuung im VUV-Spektrometer ebenfalls für einen erhöhten Untergrund sorgen, relativ zu den höheren Harmonischen stärker abschwächt. Für die Einkopplung des Strahls in das Spektrometer wurden mehrere Freiheitsgrade motorisiert, da zur Detektion unterschiedlicher Ordnungen eine Optimierung der Justage notwendig wird und sie auch beim Abpumpvorgang nicht vollständig erhalten werden kann. Piezo-Aktuatoren erlauben die Translation der Linse in Strahlrichtung, um diesen auf den Eingangsspalt des Spektrometers zu fokussieren und die bei der Vermessung unterschiedlicher Harmonischer auftretenden chromatischen Aberrationen auszugleichen. Weiterhin lässt sich die Strahlposition auf dem Spalt, sowie die Position der Probe im Fokus kontrollieren.

Zur Detektion kommt ein Seya-Namioka-Monochromator zum Einsatz [Nam59,Sam98]. Bei dieser Bauweise wird der Eingangsspalt über ein sphärisches Gitter direkt auf den Ausgangsspalt bzw. im vorgestellten Aufbau auf den Sensor einer CCD-Kamera abgebildet. Die Brennweite beträgt $f = 20\,\mathrm{cm}$. Der Winkel zwischen einfallendem und gebeugtem Strahl ist damit stets konstant und beträgt $\theta = 64°$. Die Rotation des Gitters erlaubt die Durchstimmung der Zentralwellenlänge. Vorteil dieser Anordnung ist die hohe Effizienz, da mit dem Gitter nur eine einzige Optik benötigt wird. Dies ist insbesondere im VUV-Spektralbereich von Bedeutung, in dem keine breitbandig hochreflektiven Optiken zur Verfügung stehen. Für die durchgeführten Messungen wurde ein Reflexionsgitter mit 1200 Linien/mm und einer Aluminiumbeschichtung mit MgF_2-Schutzschicht verwendet, mit dem sich eine Auflösung von 0,1 nm erreichen lässt. Es besitzt eine maximale Reflektivität von etwa 33 % bei einer Wellenlänge von 140 nm. Für Wellenlängen kleiner als 120 nm nimmt die Effizienz auf Grund der MgF_2-Beschichtung rasch ab.
Zur Detektion kommt eine CCD-Kamera mit einer Auflösung von 1024×255 Pixeln mit einer Größe von jeweils 26 µm zum Einsatz. Der Sensor wird dabei von der Rückseite beleuchtet um hohe Quanteneffizienz, insbesondere für kurze Wellenlängen, zu gewährleisten. Peltier-Kühlung auf bis zu −70 °C erlaubt die Reduzierung von thermischem Rauschen und reduziert den Dunkelstrom um fast fünf Größenordnungen im Vergleich zu Raumtemperatur. Da der Sensor völlig ungeschützt ist, muss dies jedoch im Vakuum erfolgen um Kondensation von Wasserdampf zu vermeiden.

Zur Evakuierung der Vakuumkammer wird eine Turbopumpe mit einem Saugvermögen von 80 l/s eingesetzt. Der minimale Druck, der sich im vorgestellten System damit er-

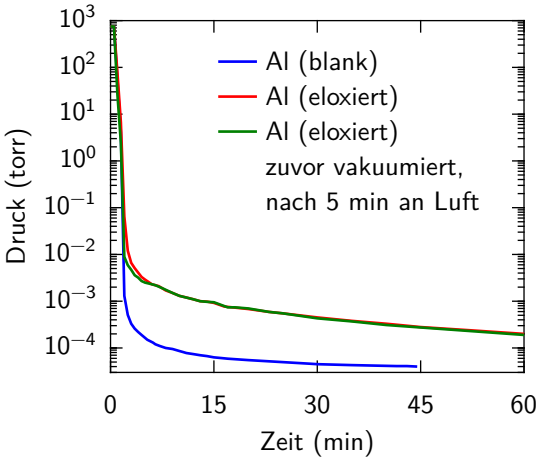

Abbildung 5.6 – Druckverlauf in der Vakuumkammer über einen Zeitraum von 60 min. Die Turbopumpe wurde bei $t = 0$ in Betrieb genommen. Für die Messungen wurde lediglich eine Aluminiumplatte mit einer Oberfläche von insgesamt 0,1 m^2 in die Kammer eingebracht. Wird eine eloxierte Aluminiumplatte verwendet erhöht sich die Zeit die zum Abpumpen benötigt wird stark. Dieses Verhalten ist auch dann noch zu beobachten, wenn sich die eloxierte Platte zuvor über mehrere Stunden im Vakuum befindet und vor Beginn der Messung nur 5 min mit Luft in Berührung kommt.

reichen lässt, liegt bei $2 \cdot 10^{-5}$ torr. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die Dauer des Abpumpvorgangs stark von den Materialien abhängt, welche in die Vakuumkammer eingebracht werden. Als Beispiel ist in Abbildung 5.6 der Druckverlauf in der Vakuumkammer nach Einschalten der Turbopumpe gezeigt, wobei zwei unterschiedliche Aluminiumplatten als Gaslast dienten. Für blankes Aluminium fällt der Druck bereits nach 8 min unter $1 \cdot 10^{-4}$ torr. Für eloxiertes Aluminium wird dieser Wert erst nach zwei Stunden (im Graph nicht zu sehen) erreicht. Dieses Verhalten ist Folge von auf der Oberfläche adsorbiertem Wasser. Im Fall von blankem Aluminium verdampft es schnell. Die Eloxalschicht führt jedoch zu einer porösen Struktur mit einer sehr großen Oberfläche, wodurch die Gaslast deutlich höher ist und nur langsam kleiner wird [OHa03]. Das Verhalten ist unabhängig davon ob die eloxierte Platte zuvor bereits in einer evakuierten Umgebung gelagert wurde oder nicht, da sich der Wasserfilm in weniger als 5 min wieder aufbaut.
Für experimentelle Arbeiten sollte der Druck unter $1 \cdot 10^{-3}$ torr liegen. Im Fall einer reinen Wasserdampf-Atmosphäre, mit einem Absorptionskoeffizienten im Bereich von 200/cm im relevanten Spektralbereich [Sul66], ergibt sich bei diesem Druck z.B. eine Transmission von 97 % für 1 m Strahlweg im vorgestellten Aufbau. Andere Gase, insbesondere Stickstoff und Sauerstoff, haben sogar noch leicht höhere Absorptionskoeffizienten. Um einen effizienten Messbetrieb zu ermöglichen, bei dem zum Wechsel der Probe und zu Justagezwecken die Vakuumkammer regelmäßig geöffnet werden muss, wurde deshalb darauf geachtet nur Materialien mit geringer Gaslast zu verwenden. Insbesondere auf eloxiertes Aluminium wurde vollständig verzichtet, wobei sich bei Bedarf vorhandene Eloxalschichten mit Natronlauge entfernen lassen.

Mit dem vorgestellten Aufbau konnte der messbare Spektralbereich im Vergleich zum Messaufbau aus Abschnitt 5.2 deutlich erweitert werden. Abbildung 5.7 zeigt das resultierende Spektrum von Quarz bis zur siebten Harmonischen bei einer Wellenlänge von 150 nm. Für Photonenenergien ab 9,2 eV entsprechend Wellenlängen kürzer 135 nm fällt

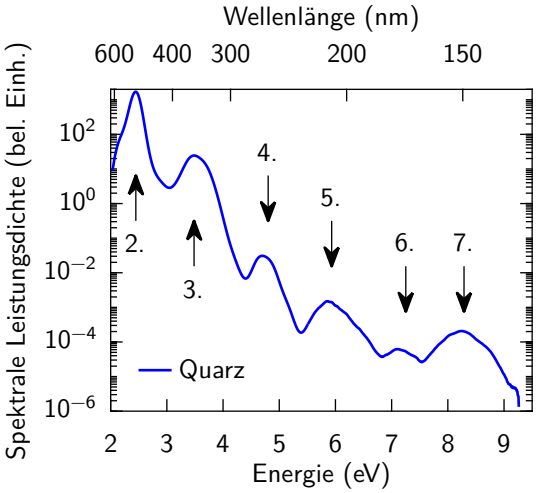

Abbildung 5.7 – Spektrum erzeugt in kristallinem Quarz. Das VUV-Spektrometer ermöglicht die Detektion bis zur 7. Harmonischen. Der Messbereich wird damit bis zu einer Photonenenergie von etwa 9,2 eV erweitert, entsprechend einer Wellenlänge von 135 nm. Für noch kürzere Wellenlängen nehmen die Transmission der im Aufbau verwendeten CaF_2-Linse sowie die Gittereffizienz rapide ab.

die Detektionssensitivtät schnell ab, was auf die zunehmende Absorption von MgF_2 und CaF_2 zurückgeführt wird. Die achte Harmonische, welche in diesem Bereich erwartet wird, ist deshalb nicht mehr messbar.

Es ist auffällig, dass sich im gemessenen Spektrum für die siebte Harmonische eine höhere Intensität als für die sechste Harmonische ergibt. Im Rahmen eines perturbativen Modells gibt es dafür keine überzeugende Erklärung. Die Intensität gerader Ordnungen liegt zwar relativ gesehen etwas niedriger wie die der ungeraden, allerdings sind die Intensitätsverhältnisse von 2./3. bzw. 4./5. Harmonischer konstant, was für die 6./7. Harmonische offensichtlich nicht mehr gegeben ist. Ein nicht-perturbativer Einfluss liegt somit nahe. Wie zuvor bei Diamant könnte es sich hierbei um eine resonante Überhöhung im Bereich der Bandlückenenergie von 8,9 eV [Lau80] handeln.

Das nicht-perturbative Verhalten höherer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich legt eine genauere Untersuchung des Erzeugungsprozesses nahe. Das in dieser Arbeit vorgestellte Lasersystem ermöglicht die präzise Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase. Es ist damit ein besonders geeignetes Werkzeug um das Verhalten von Festkörpern bei Variation des treibenden elektromagnetischen Feldes zu erforschen. Diese Messungen sind Gegenstand des folgenden Abschnitts.

5.4 Kontrolle der Erzeugung optischer Harmonischer durch die Träger-Einhüllenden-Phase

Die Erzeugung optischer Harmonischer ist ein inhärent nichtlinearer Prozess. Mit steigender Ordnung hängt die Leistung der erzeugten Harmonischen dabei immer empfindlicher von der Intensität und damit der Stärke des elektromagnetischen Feldes der treibenden

Impulse ab. Der in Kapitel 4 beschriebene optisch-parametrische Verstärker ist deshalb ein ideales Werkzeug, um den Erzeugungsprozess detailliert zu untersuchen: Er stellt intensive und ultrakurze Impulse mit einer Dauer von nur 8,3 fs zur Verfügung, was gerade einmal 2,3 Lichtzyklen entspricht. Durch Variation der Träger-Einhüllenden-Phase (vgl. Abschnitt 4.4) wird ein hohes Maß an Kontrolle über den exakten Feldverlauf möglich. In einer einzigen Messung lässt sich z.B. das Verhalten für unterschiedliche Richtungen des elektromagnetischen Feldes untersuchen, wobei sichergestellt ist, dass alle anderen Parameter absolut identisch bleiben. Messungen dieser Art besitzen das Potential ein tiefgreifendes Verständnis des elektronischen Bindungspotentials in Festkörpern und damit ihrer Bandstruktur zu erlangen.

In diesem Abschnitt werden erste Messungen zur CEP-abhängigen Erzeugung höherer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich präsentiert. Sie beweisen, dass die Methode direkten Zugang zur Kristallstruktur der verwendeten Proben bietet. Für nicht zu hohe Ordnungen lässt sich die Erzeugung mit einem einfach zu implementierenden Modell eines anharmonischen Oszillators beschreiben, was die grundsätzliche Eignung dieser Messungen für die Rekonstruktion von Bindungspotentialen demonstriert. Für höhere Ordnungen können grundsätzlich ähnliche Beobachtungen gemacht werden, allerdings dominieren zunehmend Effekte, die sich in einem perturbativen Regime nicht mehr ausreichend beschreiben lassen.

Abbildung 5.8a zeigt einen Ausschnitt aus dem in kristallinem Quarz erzeugten Spektrum für eine lineare Verschiebung der Träger-Einhüllenden-Phase um 10π. Es ergibt sich eine deutliche Intensitätsmodulation bei einer Änderung der CEP um jeweils 2π. Zusätzlich fällt auf, dass die Maxima von vierter und fünfter Harmonischer um etwa π gegeneinander verschoben sind.

In der Frequenzdomäne kann diese Modulation als Interferenzeffekt zwischen den unterschiedlichen Ordnungen verstanden werden. Analog zur f-zu-$2f$-Interferometrie (vgl. Abschnitt 4.4) führt eine Änderung der CEP zu einer Modifikation des Interferenzmusters, weshalb ähnliche Methoden bereits zur Messung des Absolutwerts der Träger-Einhüllenden-Phase vorgeschlagen wurden [Xia07,Haw07]. Der fundamentale Unterschied besteht jedoch darin, dass sich die Interferenz nicht erst durch Superposition unabhängiger Strahlen auf einem Sensor ergibt, sondern bereits bei der Erzeugung des Spektrums existiert. Die CEP bestimmt dabei die Ladungsträgerdynamik direkt in der Probe und damit den zeitlichen Verlauf der nichtlinearen Polarisation.

Um die Ladungsträgerdynamik im Ortsraum zu verstehen und somit die mikroskopische Ursache für die Abhängigkeit der erzeugten harmonischen Spektren von der Träger-Einhüllenden-Phase zu untersuchen, wurde ein Modell entwickelt welches den Prozess

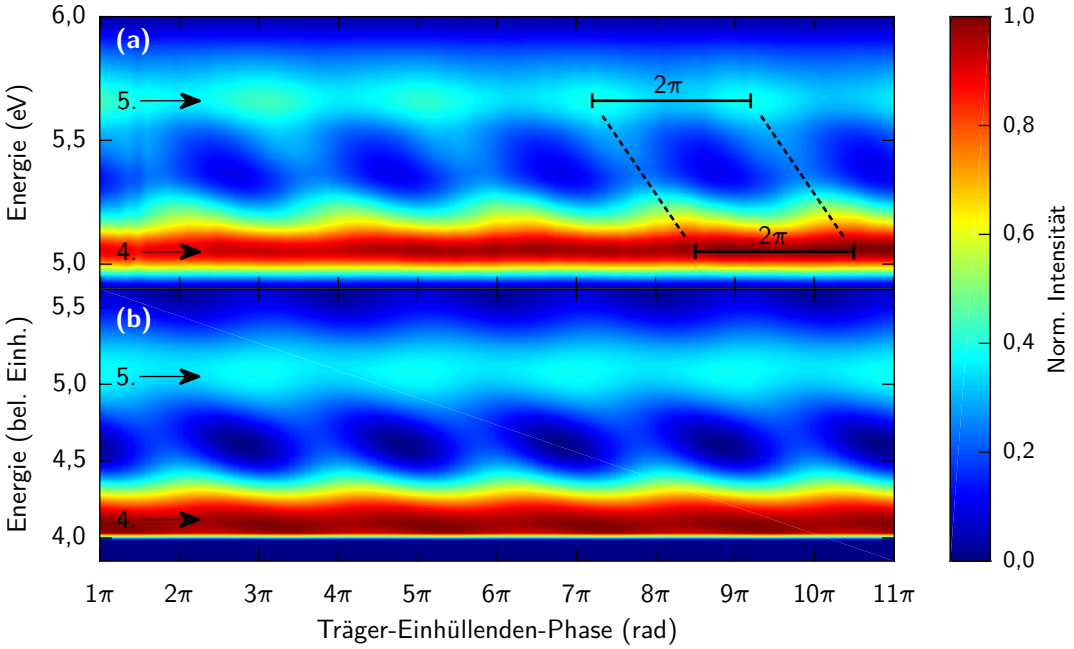

Abbildung 5.8 – (a) Abhängigkeit des in Quarz erzeugten Spektrums von der Träger-Einhüllenden-Phase der fundamentalen Impulse. Gezeigt ist ein Ausschnitt der 4. sowie die 5. Harmonische, die Intensität ist farbcodiert. Es lässt sich eine ausgeprägte 2π-Periodizität beobachten, wobei die Maxima für gerade und ungerade Harmonische um etwa π gegeneinander versetzt sind. (b) Simulation anhand des Modells eines anharmonischen Oszillators mit nichtlinearen Termen bis zur fünften Ordnung. Alle experimentell beobachteten Charakteristiken werden reproduziert.

anhand eines eindimensionalen anharmonischen Oszillators simuliert. Die Bewegungsgleichung lautet

$$m\ddot{x} = F_{\text{Feld}} - F_{\text{Rück}} - \gamma\dot{x}\,, \tag{5.2}$$

wobei das elektrische Feld als treibende Kraft F_{Feld} berücksichtigt wird. Die Rückstellkraft $F_{\text{Rück}}$ modelliert das anharmonische Bindungspotential. Eine geringe Dämpfung $\gamma\dot{x}$, die klein gegenüber der treibenden sowie der Rückstellkraft ist, vermeidet eine andauernde Oszillation nach Abklingen der Anregung. Für die treibende Kraft wird ein Cosinus mit Amplitude A, Frequenz ω und Phase ϕ sowie gaußförmiger Einhüllender gewählt, deren Breite σ an den experimentell verwendeten Impuls angepasst wird:

$$F_{\text{Feld}} = A\cos(\omega t + \phi)\exp\left(-\frac{t^2}{\sigma}\right)\,. \tag{5.3}$$

Die rückstellende Kraft setzt sich aus einem linearen Anteil mit Koeffizient $k = m\omega_0^2$ sowie nichtlinearen Anteilen mit Koeffizienten a_n $(n \geq 2)$ zusammen:

$$F_{\text{Rück}} = kx + \sum_n a_n x^n\,. \tag{5.4}$$

Das Verhältnis aus Resonanzfrequenz ω_0 und der Frequenz der treibenden Kraft ω ist entsprechend dem experimentellen Verhältnis aus Bandlückenenergie und der Photonenenergie des treibenden Feldes gewählt. Die Lösung der Bewegungsgleichung erfolgt nach einem Runge-Kutta-Verfahren (Dormand–Prince Methode, [Dor80]). Zum Vergleich mit den experimentellen Daten wird verwendet, dass die Intensität im Fernfeld eines Ladungsträgers proportional zu dessen Beschleunigung ist. Das Spektrum kann dann einfach durch eine Fouriertransformation berechnet werden.

Ein entsprechendes Simulationsergebnis ist in Abbildung 5.8b gezeigt. Unter Verwendung anharmonischer Terme vierter und fünfter Ordnung, deren Koeffizienten als freie Parameter dienen, können alle experimentellen Beobachtungen reproduziert werden. Insbesondere die Periodizität bei einer Verschiebung der CEP um 2π wird als inhärente Eigenschaft aller geraden Ordnungen wiedergegeben. Für ungerade Ordnungen tritt sie nur bei überlappenden spektralen Komponenten auf. Diese Eigenschaft kann anschaulich mit dem Potentialverlauf begründet werden: Für gerade Ordnungen ist dieser asymmetrisch (vgl. Abschnitt 5.1). Es ergibt sich somit eine Abhängigkeit von der Richtung der treibenden Kraft. Auch der Versatz der Intensitätsmaxima um π wird reproduziert. Er tritt jedoch nur für $a_5 > 0$ auf. Für negatives Vorzeichen ergibt sich in der Simulation eine phasengleiche Emission. Um die Asymmetrie der experimentellen Daten in Bezug auf positive bzw. negative Phasenänderungen in der Simulation zu erhalten ist ein Bruch der zeitlichen Symmetrie der treibenden Kraft notwendig. Dies wird mit einer Modifikation von Gleichung 5.3 durch eine lineare Frequenzmodulation erreicht. Bei Verwendung einer konstanten spektralen Phase ist das Verhalten spiegelsymmetrisch in Bezug auf die Position der Intensitätsmaxima.

Die Abhängigkeit von der Träger-Einhüllenden-Phase wurde auch für höhere Ordnungen untersucht. Abbildung 5.9 zeigt die in Quarz (SiO_2) und Saphir (Al_2O_3) erzeugten Spektren im Bereich der 6./7. Harmonischen. Die sechste Ordnung ist dabei nur als Ausläufer zu erahnen. Randbereiche der intensiven fünften Ordnung sind in beiden Messungen deutlich zu sehen.

Im Fall von Quarz zeigt sich wie zuvor eine ausgeprägte Periodizität bei Verschiebung der CEP um 2π. Für die siebte Harmonische treten nun jedoch auch kleinere Maxima bei Verschiebung um π auf. Die vorgestellte Simulation kann diese Beobachtung nicht mehr zufriedenstellend reproduzieren. Als Ursache wird dabei ein zunehmend nicht-perturbatives Verhalten vermutet, etwa durch resonante Effekte im Bereich der Bandlückenenergie, welche von der Simulation nicht ausreichend abgebildet werden.
Ein offensichtlicher Unterschied ergibt sich im Spektrum welches in Saphir erzeugt wurde: Es weist eine reine π Periodizität auf. Dies bedeutet, dass die Richtung des elektromagnetischen Feldes in diesem Fall keine Rolle spielt. Erklärt werden kann das Verhalten wie zuvor anhand der Kristallstruktur des Materials (vgl. Abschnitt 5.1): Da Saphir

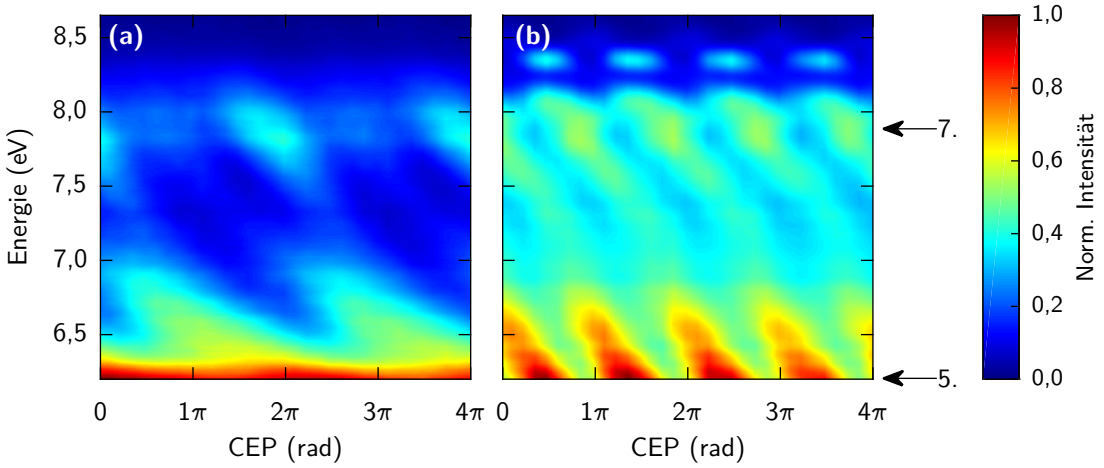

Abbildung 5.9 – Abhängigkeit der in (a) Quarz (SiO_2) der Dicke $d = 100\,\mu m$ und (b) Saphir (Al_2O_3) der Dicke $d = 130\,\mu m$ erzeugten Spektren von der Träger-Einhüllenden-Phase der fundamentalen Impulse. Quarz besitzt keine Inversionssymmetrie, Saphir ist zentrosymmetrisch.

eine Inversionssymmetrie aufweist, ergibt sich ein symmetrisches Bindungspotential, womit keine geraden Ordnungen auftreten und ein Vorzeichenwechsel in der Richtung des elektromagnetischen Feldes zu identischem Verhalten führt.
Dieser fundamentale Unterschied wird für fast alle untersuchten Festkörper beobachtet. Für Kristalle ohne Inversionssymmetrie, wie Quarz und BBO, ergeben sich periodische Spektren bei Verschiebung der CEP um 2π. Für zentrosymmetrische Materialien, wie Saphir, Siliziumcarbid und Magnesiumoxid, tritt hingegen eine Periodizität nach jedem Halbzyklus, d.h. Verschiebung der CEP um π auf. Lediglich im Fall von Lanthanfluorid ergibt sich trotz einer prinzipiell zentrosymmetrischen Struktur [Zal85] ein mit 2π periodischer Anteil. Zwei mögliche Ursachen konnten dafür ausgemacht werden: Zum einen sind Beiträge durch Oberflächeneffekte möglich, welche die Inversionssymmetrie brechen. Durch die nicht phasenangepasste Erzeugung im Experiment und die Fokussierung ans Ende des Kristalls könnte deren Einfluss damit messbar werden, sollte jedoch auch bei anderen Proben auftreten, wo er bislang nicht beobachtet werden konnte. Zum anderen handelt es sich bei Lanthanfluorid um ein hygroskopisches Material. Es ist deshalb möglich, dass die Materialeigenschaften durch Kontamination mit Wasser modifiziert wurden.

5.5 Perspektiven für die Erzeugung optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich

Die in diesem Kapitel präsentierten Ergebnisse zeigen bereits fundamentale Eigenschaften der Erzeugung optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich. Sie beweisen die hervorragende Eignung des entwickelten Lasersystems für die Untersuchung des Effekts. Insbesondere die hohe Repetitionsrate ermöglicht dabei höchste Sensitivität. Mit dem in Abschnitt 5.3 vorgestellten Aufbau wurde dabei die Möglichkeit geschaffen um Wellenlängen bis zu 135 nm entsprechend einer Photonenenergie von 9,2 eV zu detektieren. Das zunehmend nicht-perturbative Verhalten sowie die starke Abhängigkeit von der Träger-Einhüllenden-Phase demonstrieren die Relevanz der durchgeführten Messungen für die weitergehende Erforschung der physikalischen Grundlagen und mikroskopischen Ursache des Erzeugungsprozesses. Es wird erwartet, dass damit ein weites Feld an Anwendungsmöglichkeiten für die Erzeugung hoher Harmonischer in Festkörpern erschlossen werden kann.

Im Folgenden werden Perspektiven für zukünftige Messungen im vorgestellten Lasersystem vorgestellt. Es wird erhofft, dass sich die Tragweite der hier präsentierten Ergebnisse damit sogar noch übertreffen lässt. Als wichtigstes Ziel kann dabei die Erweiterung des Messbereichs noch über das präsentierte Limit hinaus formuliert werden. Dies kann insbesondere durch Verzicht auf Transmissionsoptiken erreicht werden. Alle gängigen Materialien absorbieren im VUV stark und selbst MgF_2 mit einer Bandlücke von etwa 12 eV [Pal12] limitiert den Transmissionsbereich inhärent auf Wellenlängen größer als 120 nm. Durch Verzicht auf die derzeit verwendete CaF_2-Linse und reflektive Kollimation des erzeugten Signals wird eine deutlich erhöhte Effizienz für kurze Wellenlängen erwartet: Zum einen entfallen die Reflexionsverluste, welche in diesem Spektralbereich schnell ansteigen, zum anderen wird die Fokussierung ins VUV-Spektrometer wellenlängenunabhängig, was chromatische Aberration derzeit verhindert.

Eine Herausforderung dabei ist die Wahl eines geeigneten Spiegelmaterials. Lediglich Aluminium bietet im VUV eine ausreichende Reflektivität, die durch Ausbildung einer natürlichen Oxidschicht jedoch schnell abnimmt. Abhilfe schafft eine dünne Schicht aus MgF_2 welche die Oxidation verhindert. Bei geeigneter Wahl der Schichtdicke kann die Effizienz für bestimmte Wellenlängen sogar noch optimiert werden [Can66,Hun71,Wil14]. Erste Versuche sind vielversprechend und zeigen, dass sich entsprechende Optiken selbst herstellen lassen. Als nächste Schritte stehen die Charakterisierung der absoluten Reflektivität und Untersuchungen zur Langzeitstabilität an. Alternativ sind entsprechende Beschichtungen als kundenspezifische Spezialanfertigung mittlerweile sogar kommerziell erhältlich.

Insbesondere bei noch kürzeren Wellenlängen wird auch der streifende Einfall auf Metalloptiken eine interessante Option [Sam98]. Typischerweise kommt dabei unbeschichtetes Gold zum Einsatz. Zur Fokussierung werden dann Ellipsoidspiegel eingesetzt, welche in horizontaler und vertikaler Richtung unterschiedliche Krümmungsradien aufweisen und so Abbildungsfehler vermeiden, die bei sphärischen oder parabolischen Spiegeln unter großen Einfallswinkeln auftreten.

Der derzeit verwendete Monochromator erlaubt dabei die Erweiterung des Messbereichs bis zu einer Wellenlänge von 100 nm, wobei ab 120 nm jedoch mit einem Rückgang der Gittereffizienz zu rechnen ist. Ein alternativ erhältliches Platingitter bietet hingegen eine Reflektivität bis zu einer Wellenlänge von nur noch 30 nm. In beiden Fällen ist eine spektrale Filterung der Fundamentalen sowie niedriger Harmonischer zwingend, um von der hohen Sensitivität des vorgestellten Lasersystems maximal zu profitieren. Trotz starker Unterdrückung langwelliger spektraler Anteile im derzeitigen Aufbau durch zwei Reflexionen im Brewsterwinkel und einen Transmissionsfilter (vgl. Abschnitt 5.3) hat der durch Streulicht verursachte Untergrund derzeit noch einen großen Anteil an der gemessenen Gesamtleistung. Für Wellenlängen kürzer 100 nm wird hier erstmals der Einsatz von dünnen Metallfolien zur Filterung möglich: Während hochenergetische Strahlung nahezu ungehindert passieren kann, werden langwellige Anteile praktisch vollständig absorbiert bzw. reflektiert.

Mit diesen Schritten sollte in Zukunft sogar eine Detektion weit über die siebte Harmonische hinaus realisierbar sein. Die Untersuchung von Harmonischen unterhalb und oberhalb der Bandlückenenergie vieler Festkörper wird damit möglich. Dieses Regime ist besonders interessant, da es den Übergang von Ordnungen, die sich in einem perturbativen Modell beschreiben lassen, hin zu Ordnungen, die stark nicht-perturbativen Charakter aufweisen, kennzeichnet.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Ziel der vorliegenden Arbeit war die Untersuchung und Kontrolle extrem nichtlinearer optischer Phänomene bei hoher Repetitionsrate. Dazu wurde ein Lasersystem entwickelt, welches nahinfrarote Lichtimpulse mit einer Dauer in der Größenordnung einzelner Schwingungen des elektromagnetischen Feldes bei Spitzenleistungen im Megawattbereich zur Verfügung stellt. Eine variable Repetitionsrate von bis zu 20 MHz erlaubt dabei hoch sensitive Messungen. Durch die absolute Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase der erzeugten Impulse kann der Verlauf des elektromagnetischen Feldes präzise eingestellt werden, wodurch sich dessen fundamentaler Einfluss auf den beobachteten physikalischen Prozess untersuchen lässt. Dies wurde am Beispiel der Erzeugung optischer Harmonischer im ultravioletten Spektralbereich in Festkörpern gezeigt.

Zentrales Element des Lasersystems ist eine Quelle ultrakurzer Impulse auf Basis von Erbium-Fasertechnologie [Kra11b], welche in Kapitel 2 beschrieben wird. Sie stellt einen Impulszug bei einer Repetitionsrate von 40 MHz zur Verfügung, welcher für nachfolgende Anwendungen auf parallele Zweige aufgeteilt wird. Ein Alleinstellungsmerkmal der Quelle ist die passive Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase (CEP) durch Differenzfrequenzerzeugung zwischen in hoch nichtlinearer Glasfaser erzeugten Spektralanteilen. Dank zahlreicher Maßnahmen zur Erhöhung der mechanischen Stabilität und Abschirmung von Umgebungseinflüssen konnte für die mittlere quadratische Abweichung der CEP ein Wert von nur noch 10,6 mrad bei 8 s Messdauer und 4 ms Integrationszeit gemessen werden, was im Vergleich zu den zuvor in [Kra11a] veröffentlichten Werten eine Verbesserung um mehr als eine Größenordnung darstellt. Neu implementiert wurde außerdem eine Möglichkeit zur präzisen Einstellung der Phasenlage, wodurch sich diese in allen Zweigen des Systems kontinuierlich um bis zu 40π verschieben lässt.

In einem der Zweige wird der in Kapitel 3 präsentierte Hochleistungsverstärker betrieben, welcher Ytterbium-Fasern als aktives Medium nutzt. Eine photonische Kristallfaser in der zweiten Stufe liefert Ausgangsleistungen bis 72 W [Wun15b]. Dies ermöglicht die Skalierung der Impulsenergie in den Mikrojoule-Bereich und stellt die zur Untersuchung extremer Nichtlinearitäten benötigten Spitzenleistungen bei Impulsdauern um 150 fs zur Verfügung. Im Rahmen dieser Arbeit wurde gezeigt, dass sich die Repetitionsrate dabei um mehr als zwei Größenordnungen variieren und bis auf 20 MHz erhöhen lässt. Bei einer leicht reduzierten Wiederholrate von 5 MHz steht genug Pumpleistung zur Verfügung um die maximal mögliche Impulsenergie von 11 µJ zu erreichen, welche durch

Nichtlinearitäten in der Verstärkerfaser limitiert ist und im Vergleich zu [Wun15a] damit fast verdoppelt werden konnte. Neben der bereits demonstrierten ausgezeichneten Amplitudenstabilität stellt eine neu entwickelte zeitliche Stabilisierung auf Basis einer balancierten Kreuzkorrelation jetzt auch die Synchronisation des verstärkten Impulszuges mit den parallelen Zweigen der phasenstarren Quelle sicher.

Die zweite Harmonische der intensiven Impulse aus dem Yb:Faser-Hochleistungsverstärker liefert das Pumpsignal für einen ultrabreitbandigen optisch-parametrischen Verstärker, welcher in Kapitel 4 dieser Arbeit detailliert beschrieben wird. Als Eingangssignal dient das in einem parallelen Zweig der phasenstarren Quelle durch Frequenzkonversion in hoch nichtlinearer Glasfaser erzeugte Spektrum mit mehr als 500 nm Breite. Es resultieren Impulse mit Energien bis maximal 200 nJ, deren Dauer auf 8,3 fs komprimiert wird. Bei einer Zentralwellenlänge von 1,1 µm entspricht dies nur 2,3 Zyklen des elektromagnetischen Feldes. Da sich die Träger-Einhüllenden-Phase des Eingangssignals direkt auf die optisch-parametrisch verstärkten Impulse überträgt, bleibt dessen passive Stabilität erhalten und die mittlere quadratische Abweichung beträgt 19,3 mrad bei 10 s Messdauer und 4 ms Integrationszeit. Auch die präzise Einstellung der CEP ist weiterhin durch Anpassung direkt in der phasenstarren Quelle möglich, ohne andere Impulsparameter zu beeinflussen.

Die so erzeugten Impulse besitzen die nötige Spitzenintensität und die besonders kurze Dauer, welche für die Untersuchung extrem nichtlinearer Effekte nötig sind. Dies erlaubt die Erzeugung und Untersuchung von höheren Harmonischen in Festkörpern im nicht phasenangepassten Regime, was in Kapitel 5 gezeigt wird. Bei elektrischen Feldstärken im Bereich von 1 V/Å ist in einem Vakuumaufbau dabei die Detektion bis zur siebten Harmonischen bei einer Wellenlänge von 150 nm möglich. Der Erzeugungsprozess weist eine starke Abhängigkeit von der Träger-Einhüllenden-Phase der treibenden Impulse auf. Anhand der bisherigen Messungen scheint bei nicht-zentrosymmetrischen Kristallen dabei eine fundamentale Periodizität bei Verschiebung der CEP um 2π vorzuliegen. Bei Kristallen mit Zentralsymmetrie ist die Richtung des elektrischen Feldes hingegen unerheblich und das Verhalten wiederholt sich nach jedem Halbzyklus.

Die gesammelten Ergebnisse bestätigen die Tauglichkeit des entwickelten Lasersystems für zukunftsweisende Experimente der extrem nichtlinearen Optik. Die hohe Repetitionsrate im Megahertz-Bereich verspricht dabei höchste Sensitivität selbst bei kurzen Messzeiten. Kurzfristig ist damit die weitergehende Untersuchung des Erzeugungsprozesses von hohen Harmonischen in Festkörpern denkbar. Die Messung von Ordnungen mit Photonenenergien nahe der Bandlücke der untersuchten Materialien ist dabei besonders interessant, da dieser Bereich weitgehend unerforscht ist und eine physikalisch äußerst relevante Ladungsträgerdynamik erwartet wird. Er ist gekennzeichnet durch den Übergang von der klassischen nichtlinearen Optik, welche im perturbativen Modell ausreichend beschrieben wird, zu einem Regime welches nicht-perturbativ behandelt werden muss. Er kann deshalb

auch theoretisch nur schwer erfasst werden.
Weiterhin eröffnet das vorgestellte Lasersystem eine Vielzahl neuer Anwendungsmöglichkeiten, die von spektroskopischen Untersuchungen im ultravioletten und vakuumultravioletten Spektralbereich bis hin zu Attosekundenphysik reichen. Ebenso sind Experimente der Ultrakurzzeitphysik denkbar, welche eine Anregung durch höchste elektrische Felder bei absoluter Kontrolle der Träger-Einhüllenden-Phase benötigen.
In derzeit laufenden Experimenten werden die ultrakurzen Impulse aus dem optisch-parametrischen Verstärker bereits zur Erzeugung intensiver Multi-Terahertzstrahlung durch optische Gleichrichtung genutzt. Während sich durch die hohe Repetitionsrate voraussichtlich die gleiche Sensitivität wie mit dem in [Rie16] verwendeten rein faserbasierten System erreichen lässt, sind bereits jetzt um mehr als eine Größenordnung höhere Feldstärken möglich. Damit wird ein zuvor unerreichbares Regime für Experimente der Subzyklen-Quantenelektrodynamik erschlossen [Rie17].
Das im Rahmen dieser Arbeit präsentierte Lasersystem stellt somit ein einzigartiges und extrem flexibles Werkzeug mit unzähligen Anwendungsbereichen dar und verspricht grundlegende Fragestellungen der Physik und verwandter Disziplinen zu beantworten.

Literaturverzeichnis

[Adl07] F. Adler, „Erbium-dotierte Femtosekunden-Faserlaser und Anwendungen“, Dissertation (Universität Konstanz, 2007).

[Agr13] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, 5. Aufl. (Academic Press, 2013).

[Bal02] A. Baltuška, T. Fuji und T. Kobayashi, „Controlling the Carrier-Envelope Phase of Ultrashort Light Pulses with Optical Parametric Amplifiers“, Phys. Rev. Lett. **88**, 133901 (2002).

[Bal03] A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hansch und F. Krausz, „Attosecond control of electronic processes by intense light fields“, Nature **421**, 611–615 (2003).

[Bar91] W. L. Barnes, R. I. Laming, E. J. Tarbox und P. R. Morkel, „Absorption and emission cross section of Er3+ doped silica fibers“, IEEE J. Quantum Electron. **27**, 1004–1010 (1991).

[Bir97] T. A. Birks, J. C. Knight und P. S. J. Russell, „Endlessly single-mode photonic crystal fiber“, Opt. Lett. **22**, 961–963 (1997).

[Boy08] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3. Aufl. (Academic Press, 2008).

[Bra00] T. Brabec und F. Krausz, „Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics“, Rev. Mod. Phys. **72**, 545–591 (2000).

[Bra09] M. Bradler, P. Baum und E. Riedle, „Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-µJ pump pulses“, English, Appl. Phys. B **97**, 561–574 (2009).

[Bri10] D. Brida, C. Manzoni, G. Cirmi, M. Marangoni, S. Bonora, P. Villoresi, S. D. Silvestri und G. Cerullo, „Few-optical-cycle pulses tunable from the visible to the mid-infrared by optical parametric amplifiers“, J. Opt. **12**, 013001 (2010).

[Bri14] D. Brida, G. Krauss, A. Sell und A. Leitenstorfer, „Ultrabroadband Er:fiber lasers“, Laser Photonics Rev. **8**, 409–428 (2014).

[Bro99] A. Brodeur und S. L. Chin, „Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media“, J. Opt. Soc. Am. B **16**, 637–650 (1999).

[Can66] L. R. Canfield, G. Hass und J. E. Waylonis, „Further Studies on MgF2-Overcoated Aluminum Mirrors with Highest Reflectance in the Vacuum Ultraviolet“, Appl. Opt. **5**, 45–50 (1966).

[Cer97] G. Cerullo, M. Nisoli und 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 und S. D. Silvestri, „Ultrafast optical parametric amplifiers“, Rev. Sci. Instrum. **74**, 1–18 (2003).

[Cla64] C. D. Clark, P. J. Dean und P. V. Harris, „Intrinsic Edge Absorption in Diamond“, Proc. R. Soc. A **277**, 312–329 (1964).

[Cor93] P. B. Corkum, „Plasma perspective on strong field multiphoton ionization“, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994–1997 (1993).

[Cor07] P. B. Corkum und F. Krausz, „Attosecond science“, Nat. Phys. **3**, 381–387 (2007).

[Dem12] S. Demmler, J. Rothhardt, S. Hädrich, J. Bromage, J. Limpert und A. Tünnermann, „Control of nonlinear spectral phase induced by ultra-broadband optical parametric amplification“, Opt. Lett. **37**, 3933–3935 (2012).

[Die06] J.-C. Diels und W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena* (Elsevier Inc., 2006).

[Dig01] M. J. F. Digonnet, *Rare-Earth-Doped Fiber Lasers and Amplifiers*, 2. Aufl. (Marcel Dekker, Inc., 2001).

[Dor80] J. Dormand und P. Prince, „A family of embedded Runge-Kutta formulae“, J. Comput. Appl. Math. **6**, 19–26 (1980).

[Eck90] R. C. Eckardt, H. Masuda, Y. X. Fan und R. L. Byer, „Absolute and relative nonlinear optical coefficients of KDP, KD*P, BaB2O4, LiIO3, MgO:LiNbO3, and KTP measured by phase-matched second-harmonic generation“, IEEE J. Quantum Electron. **26**, 922–933 (1990).

[Eim87] D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham und A. Zalkin, „Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate“, J. Appl. Phys. **62**, 1968–1983 (1987).

[Feh15] D. Fehrenbacher, P. Sulzer, A. Liehl, T. Kälberer, C. Riek, D. V. Seletskiy und A. Leitenstorfer, „Free-running performance and full control of a passively phase-stable Er:fiber frequency comb“, Optica **2**, 917–923 (2015).

[Feh16] D. Fehrenbacher, „Passiv phasenstarre Femtosekunden-Frequenzkämme basierend auf Er:Fasertechnologie“, Dissertation (Universität Konstanz, 2016).

[Fej92] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt und R. L. Byer, „Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances“, IEEE J. Quantum Electron. **28**, 2631–2654 (1992).

[Fib00] G. Fibich und A. L. Gaeta, „Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides“, Opt. Lett. **25**, 335–337 (2000).

[Fis16] J. Fischer, A.-C. Heinrich, S. Maier, J. Jungwirth, D. Brida und A. Leitenstorfer, „615 fs pulses with 17 mJ energy generated by an Yb:thin-disk amplifier at 3 kHz repetition rate“, Opt. Lett. **41**, 246–249 (2016).

[Gar14] N. Garejev, I. Gražulevičiūtė, D. Majus, G. Tamošauskas, V. Jukna, A. Couairon und A. Dubietis, „Third- and fifth-harmonic generation in transparent solids with few-optical-cycle midinfrared pulses“, Phys. Rev. A **89**, 033846 (2014).

[Gar16] M. Garg, M. Zhan, T. T. Luu, H. Lakhotia, T. Klostermann, A. Guggenmos und E. Goulielmakis, „Multi-petahertz electronic metrology“, Nature **538**, 359–363 (2016).

[Ghi11] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro und D. A. Reis, „Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal“, Nat. Phys. **7**, 138–141 (2011).

[Gol08] D. Golde, T. Meier und S. W. Koch, „High harmonics generated in semiconductor nanostructures by the coupled dynamics of optical inter- and intraband excitations“, Phys. Rev. B **77**, 075330 (2008).

[Gou08] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz und U. Kleineberg, „Single-Cycle Nonlinear Optics“, Science **320**, 1614–1617 (2008).

[Ham17a] T. J. Hammond, S. Monchocé, C. Zhang, G. Vampa, D. Klug, A. Y. Naumov, D. M. Villeneuve und P. B. Corkum, „Integrating solids and gases for attosecond pulse generation“, Nat. Photonics **11**, 594 (2017).

[Ham17b] T. J. Hammond, D. M. Villeneuve und P. B. Corkum, „Producing and controlling half-cycle near-infrared electric-field transients“, Optica **4**, 826–830 (2017).

[Han11] K. P. Hansen, C. B. Olausson, J. Broeng, D. Noordegraaf, M. D. Maack, M. Laurila, T. Nikolajsen, P. M. W. Skovgaard, T. T. Alkeskjold, M. H. Sørensen, M. Denninger, C. Jakobsen und H. R. Simonsen, „Airclad fiber laser technology“, Opt. Eng. **50**, 111609 (2011).

[Has16] M. T. Hassan, T. T. Luu, A. Moulet, O. Raskazovskaya, P. Zhokhov, M. Garg, N. Karpowicz, A. M. Zheltikov, V. Pervak, F. Krausz und E. Goulielmakis, „Optical attosecond pulses and tracking the nonlinear response of bound electrons“, Nature **530**, 66–70 (2016).

[Haw07] C. A. Haworth, L. E. Chipperfield, J. S. Robinson, P. L. Knight, J. P. Marangos und J. W. G. Tisch, „Half-cycle cutoffs in harmonic spectra and robust carrier-envelope phase retrieval“, Nat. Phys. **3**, 52–57 (2007).

[Hay14] W. Haynes, *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 95th Edition*, 100 Key Points (CRC Press, 2014).

[Hel98] H. Hellwig, J. Liebertz und L. Bohatý, „Exceptional large nonlinear optical coefficients in the monoclinic bismuth borate BiB3O6 (BIBO)“, Solid State Commun. **109**, 249–251 (1998).

[Her02] J. Herrmann, U. Griebner, N. Zhavoronkov, A. Husakou, D. Nickel, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, P. S. J. Russell und G. Korn, „Experimental Evidence for Supercontinuum Generation by Fission of Higher-Order Solitons in Photonic Fibers“, Phys. Rev. Lett. **88**, 173901 (2002).

[Her15] C. Hernández-García, W. Holgado, L. Plaja, B. Alonso, F. Silva, M. Miranda, H. Crespo und I. J. Sola, „Carrier-envelope-phase insensitivity in high-order harmonic generation driven by few-cycle laser pulses“, Opt. Express **23**, 21497–21508 (2015).

[Hoh15] M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert, M. Knorr, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira und R. Huber, „Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation“, Nature **523**, 572–575 (2015).

[Hol95] M. J. Holmes, D. L. Williams und R. J. Manning, „Highly nonlinear optical fiber for all optical processing applications“, IEEE Photon. Technol. Lett. **7**, 1045–1047 (1995).

[Hol00] R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth und P. S. J. Russell, „Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy“, Phys. Rev. Lett. **85**, 2264–2267 (2000).

[Hum07] D. S. Hum und M. M. Fejer, „Quasi-phasematching“, C. R. Phys. **8**, 180–198 (2007).

[Hun71] W. R. Hunter, J. F. Osantowski und G. Hass, „Reflectance of Aluminum Overcoated with MgF2 and LiF in the Wavelength Region from 1600 Å to 300 Å at Various Angles of Incidence“, Appl. Opt. **10**, 540–544 (1971).

[Hus01] A. V. Husakou und J. Herrmann, „Supercontinuum Generation of Higher-Order Solitons by Fission in Photonic Crystal Fibers“, Phys. Rev. Lett. **87**, 203901 (2001).

[Hut16] U. Huttner, K. Schuh, J. V. Moloney und S. W. Koch, „Similarities and differences between high-harmonic generation in atoms and solids“, J. Opt. Soc. Am. B **33**, C22–C29 (2016).

[Ish14] N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe und J. Itatani, „Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses“, Nat. Commun. **5**, 3331 (2014).

[Jon00] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall und S. T. Cundiff, „Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis“, Science **288**, 635–639 (2000).

[Kai98] R. A. Kaindl, D. C. Smith, M. Joschko, M. P. Hasselbeck, M. Woerner und T. Elsaesser, „Femtosecond infrared pulses tunable from 9 to 18 µm at an 88-MHz repetition rate“, Opt. Lett. **23**, 861–863 (1998).

[Kak01] M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, Y. Fujihira, T. Homma und H. Takahashi, „Single-shot measurement of carrier-envelope phase changes by spectral interferometry“, Opt. Lett. **26**, 1436–1438 (2001).

[Kan93] D. J. Kane und R. Trebino, „Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating“, IEEE J. Quantum Electron. **29**, 571–579 (1993).

[Kär96] F. X. Kärtner, I. D. Jung und U. Keller, „Soliton mode-locking with saturable absorbers“, IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron. **2**, 540–556 (1996).

[Kär04] F. X. Kärtner, *Few-Cycle Laser Pulse Generation and Its Applications* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2004).

[Kas88] R. Kashyap und K. J. Blow, „Observation of catastrophic self-propelled self-focusing in optical fibres“, Electron. Lett. **24**, 47–49 (1988).

[Kat95] T. Kato, Y. Suetsugu und M. Nishimura, „Estimation of nonlinear refractive index in various silica-based glasses for optical fibers“, Opt. Lett. **20**, 2279–2281 (1995).

[Kel92] S. M. J. Kelly, „Characteristic sideband instability of periodically amplified average soliton“, Electron. Lett. **28**, 806–807 (1992).

[Kem13] A. F. Kemper, B. Moritz, J. K. Freericks und T. P. Devereaux, „Theoretical description of high-order harmonic generation in solids“, New J. Phys. **15**, 023003 (2013).

[Kra10] G. Krauss, S. Lohss, T. Hanke, A. Sell, S. Eggert, R. Huber und A. Leitenstorfer, „Synthesis of a single cycle of light with compact erbium-doped fibre technology“, Nat. Photonics **4**, 33–36 (2010).

[Kra11a] G. Krauss, D. Fehrenbacher, D. Brida, C. Riek, A. Sell, R. Huber und A. Leitenstorfer, „All-passive phase locking of a compact Er:fiber laser system“, Opt. Lett. **36**, 540–542 (2011).

[Kra11b] G. Krauss, „Ultrabreitbandige Femtosekunden-Faserlaser“, Dissertation (Universität Konstanz, 2011).

[Kum12] S. Kumkar, G. Krauss, M. Wunram, D. Fehrenbacher, U. Demirbas, D. Brida und A. Leitenstorfer, „Femtosecond coherent seeding of a broadband Tm:fiber amplifier by an Er:fiber system“, Opt. Lett. **37**, 554–556 (2012).

[Kum17] S. Kumkar, „Intensive Femtosekunden-Impulse bei 2 µm Wellenlänge aus einem Hochleistungs-Tm:Faserverstärker“, Dissertation (Universität Konstanz, 2017).

[Lan17] F. Langer, M. Hohenleutner, U. Huttner, W. Koch S., M. Kira und R. Huber, „Symmetry-controlled temporal structure of high-harmonic carrier fields from a bulk crystal“, Nat Photon **11**, 227–231 (2017).

[Lau80] R. B. Laughlin, „Optical absorption edge of SiO2“, Phys. Rev. B **22**, 3021–3029 (1980).

[Li85] T. Li, *Optical Fiber Communications: Fiber fabrication*, Optical Fiber Communications (Academic Press, 1985).

[Lie17] A. Liehl, D. Fehrenbacher, P. Sulzer, A. Leitenstorfer und D. V. Seletskiy, „Ultrabroadband out-of-loop characterization of the carrier-envelope phase noise of an offset-free Er:fiber frequency comb“, Opt. Lett. **42**, 2050–2053 (2017).

[Luu15] T. T. Luu, M. Garg, S. Y. Kruchinin, A. Moulet, M. T. Hassan und E. Goulielmakis, „Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids“, Nature **521**, 498–502 (2015).

[Luu16] T. T. Luu und H. J. Wörner, „High-order harmonic generation in solids: A unifying approach“, Phys. Rev. B **94**, 115164 (2016).

[Mal65] I. H. Malitson, „Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica“, J. Opt. Soc. Am. **55**, 1205–1209 (1965).

[Man04] C. Manzoni, G. Cerullo und S. D. Silvestri, „Ultrabroadband self-phase-stabilized pulses by difference-frequency generation“, Opt. Lett. **29**, 2668–2670 (2004).

[Man16] C. Manzoni und G. Cerullo, „Design criteria for ultrafast optical parametric amplifiers“, J. Opt. **18**, 103501 (2016).

[Mar87] O. E. Martinez, „3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: Application to fiber compensation in 1.3-1.6 µm region“, IEEE J. Quantum. Electron. **23**, 59–64 (1987).

[Moo11] S. W. Moore, T. Barnett, T. A. Reichardt und R. L. Farrow, „Optical properties of Yb^{+3}-doped fibers and fiber lasers at high temperature“, Opt. Commun. **284**, 5774–5780 (2011).

[Mor90] M. Morita, T. Ohmi, E. Hasegawa, M. Kawakami und M. Ohwada, „Growth of native oxide on a silicon surface“, J. Appl. Phys. **68**, 1272–1281 (1990).

[Nam59] T. Namioka, „Theory of the Concave Grating. III. Seya-Namioka Monochromator“, J. Opt. Soc. Am. **49**, 951–961 (1959).

[New07] T. Newell, P. Peterson, A. Gavrielides und M. Sharma, „Temperature effects on the emission properties of Yb-doped optical fibers“, Opt. Commun. **273**, 256–259 (2007).

[Nik05] D. N. Nikogosyan, *Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey*, 1. Aufl. (Springer-Verlag New York, 2005).

[Nil95] J. Nilsson, P. Blixt, B. Jaskorzynska und J. Babonas, „Evaluation of parasitic upconversion mechanisms in Er3+-doped silica-glass fibers by analysis of fluorescence at 980 nm“, J. Lightwave Technol. **13**, 341–349 (1995).

[OHa03] J. F. O'Hanlon, *A User's Guide to Vacuum Technology* (Wiley-Interscience, 2003).

[Pal12] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Bd. 2 (Elsevier Science, 2012).

[Pas95] H. M. Pask, R. J. Carman, D. C. Hanna, A. C. Tropper, C. J. Mackechnie, P. R. Barber und J. M. Dawes, „Ytterbium-doped silica fiber lasers: versatile sources for the 1-1.2 µm region“, IEEE J. Sel. Topics in Quantum Electron. **1**, 2–13 (1995).

[Pas97a] R. Paschotta, J. Nilsson, P. Barber, J. Caplen, A. Tropper und D. Hanna, „Lifetime quenching in Yb-doped fibres“, Opt. Commun. **136**, 375–378 (1997).

[Pas97b] R. Paschotta, J. Nilsson, A. C. Tropper und D. C. Hanna, „Ytterbium-doped fiber amplifiers“, IEEE J. Quantum. Electron. **33**, 1049–1056 (1997).

[Ped94] B. Pedersen, „Small-signal erbium-doped fibre amplifiers pumped at 980 nm: a design study“, Opt. Quantum. Electron. **26**, S273–S284 (1994).

[Per95] M. D. Perry, R. D. Boyd, J. A. Britten, D. Decker, B. W. Shore, C. Shannon und E. Shults, „High-efficiency multilayer dielectric diffraction gratings“, Opt. Lett. **20**, 940–942 (1995).

[Pop12] T. Popmintchev, M.-C. Chen, D. Popmintchev, P. Arpin, S. Brown, S. Ališauskas, G. Andriukaitis, T. Balčiunas, O. D. Mücke, A. Pugzlys, A. Baltuška, B. Shim, S. E. Schrauth, A. Gaeta, C. Hernández-García, L. Plaja, A. Becker, A. Jaron-Becker, M. M. Murnane und H. C. Kapteyn, „Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers“, Science **336**, 1287–1291 (2012).

[Pra14] M. J. Prandolini, R. Riedel, M. Schulz, A. Hage, H. Höppner und F. Tavella, „Design considerations for a high power, ultrabroadband optical parametric chirped-pulse amplifier“, Opt. Express **22**, 1594–1607 (2014).

[Rie14a] R. Riedel, J. Rothhardt, K. Beil, B. Gronloh, A. Klenke, H. Höppner, M. Schulz, U. Teubner, C. Kränkel, J. Limpert, A. Tünnermann, M. Prandolini und F. Tavella, „Thermal properties of borate crystals for high power optical parametric chirped-pulse amplification“, Opt. Express **22**, 17607–17619 (2014).

[Rie14b] R. Riedel, A. Stephanides, M. J. Prandolini, B. Gronloh, B. Jungbluth, T. Mans und F. Tavella, „Power scaling of supercontinuum seeded megahertz-repetition rate optical parametric chirped pulse amplifiers“, Opt. Lett. **39**, 1422–1424 (2014).

[Rie16] C. Riek, „Subzyklen-Quantenelektrodynamik“, Dissertation (Universität Konstanz, 2016).

[Rie17] C. Riek, P. Sulzer, M. Seeger, A. S. Moskalenko, G. Burkard, D. V. Seletskiy und A. Leitenstorfer, „Subcycle quantum electrodynamics“, Nature **541**, 376 (2017).

[Ros02] I. N. Ross, P. Matousek, G. H. C. New und K. Osvay, „Analysis and optimization of optical parametric chirped pulse amplification“, J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2945–2956 (2002).

[Rot13] J. Rothhardt, S. Demmler, S. Hädrich, T. Peschel, J. Limpert und A. Tünnermann, „Thermal effects in high average power optical parametric amplifiers“, Opt. Lett. **38**, 763–765 (2013).

[Rud15] P. Rudawski, A. Harth, C. Guo, E. Lorek, M. Miranda, C. M. Heyl, E. W. Larsen, J. Ahrens, O. Prochnow, T. Binhammer, U. Morgner, J. Mauritsson, A. L'Huillier und C. L. Arnold, „Carrier-envelope phase dependent high-order harmonic generation with a high-repetition rate OPCPA-system“, English, Eur. Phys. J. D **69**, 70 (2015).

[Ryb16] T. Rybka, M. Ludwig, M. F. Schmalz, V. Knittel, D. Brida und A. Leitenstorfer, „Sub-cycle optical phase control of nanotunnelling in the single-electron regime“, Nat. Photonics **10**, 667 (2016).

[Sai17] N. Saito, P. Xia, F. Lu, T. Kanai, J. Itatani und N. Ishii, „Observation of selection rules for circularly polarized fields in high-harmonic generation from a crystalline solid“, Optica **4**, 1333–1336 (2017).

[Sam98] J. Samson und D. Ederer, Hrsg., *Vacuum Ultraviolet Spectroscopy* (Academic Press, 1998).

[Sch03] T. R. Schibli, J. Kim, O. Kuzucu, J. T. Gopinath, S. N. Tandon, G. S. Petrich, L. A. Kolodziejski, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen und F. X. Kaertner, „Attosecond active synchronization of passively mode-locked lasers by balanced cross correlation“, Opt. Lett. **28**, 947–949 (2003).

[Sch14] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch und R. Huber, „Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations“, Nat. Photonics **8**, 119–123 (2014).

[Sel06] A. Sell, „Nichtlineare Impulspropagation in Glasfasern“, Diplomarbeit (Universität Konstanz, 2006).

[Sel08] A. Sell, A. Leitenstorfer und R. Huber, „Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm“, Opt. Lett. **33**, 2767–2769 (2008).

[Sel09] A. Sell, G. Krauss, R. Scheu, R. Huber und A. Leitenstorfer, „8-fs pulses from a compact Er:fiber system: quantitative modeling and experimental implementation“, Opt. Express **17**, 1070–1077 (2009).

[Sid09] A. M. Siddiqui, G. Cirmi, D. Brida, F. X. Kärtner und G. Cerullo, „Generation of <7 fs pulses at 800 nm from a blue-pumped optical parametric amplifier at degeneracy“, Opt. Lett. **34**, 3592–3594 (2009).

[Sou93] E. A. D. Souza, C. E. Soccolich, W. Pleibel, R. H. Stolen, J. R. Simpson und D. J. DiGiovanni, „Saturable absorber modelocked polarisation maintaining erbium-doped fibre laser“, Electron. Lett. **29**, 447–449 (1993).

[Sto89] R. H. Stolen, J. P. Gordon, W. J. Tomlinson und H. A. Haus, „Raman response function of silica-core fibers“, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 1159–1166 (1989).

[Sto17] P. Storz, J. Tauch, M. Wunram, A. Leitenstorfer und D. Brida, „Parametric Amplification of Phase-Locked Few-Cycle Pulses and Ultraviolet Harmonics Generation in Solids at High Repetition Rate“, Laser Photonics Rev. **11**, 1700062 (2017).

[Str85] D. Strickland und G. Mourou, „Compression of amplified chirped optical pulses“, Opt. Commun. **55**, 447–449 (1985).

[Sul66] J. O. Sullivan und A. C. Holland, „A Congeries of Absorption Cross Sections for Wavelengths Less Than 3000 degrees Angstrom“, NASA Technical Report **CR-371** (1966).

[Tan17] N. Tancogne-Dejean, O. D. Mücke, F. X. Kärtner und A. Rubio, „Impact of the Electronic Band Structure in High-Harmonic Generation Spectra of Solids“, Phys. Rev. Lett. **118**, 087403 (2017).

[Tan18] D. Tang, J. Wang, J. Ma, B. Zhou, P. Yuan, G. Xie und L. Qian, „Design of High Average Power OPCPA Based on Simultaneous Temperature and Wavelength Insensitive Phase Matching“, IEEE Photon. J. **10**, 1–11 (2018).

[Tau03] F. Tauser, A. Leitenstorfer und W. Zinth, „Amplified femtosecond pulses from an Er:fiber system: Nonlinear pulse shortening and selfreferencing detection of the carrier-envelope phase evolution“, Opt. Express **11**, 594–600 (2003).

[Tau16] J. Tauch, „Spektrale Kontrolle optischer Harmonischer über die Träger-Einhüllenden-Phase intensiver und hochrepetitiver 2,3-Zyklen-Lichtimpulse“, Masterarbeit (Universität Konstanz, 2016).

[Tre69] E. Treacy, „Optical pulse compression with diffraction gratings“, IEEE J. Quantum. Electron. **5**, 454–458 (1969).

[Tre00] R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses* (Kluwer Academic, 2000).

[Ude02] T. Udem, R. Holzwarth und T. W. Hänsch, „Optical frequency metrology“, Nature **416**, 233 (2002).

[Vam14] G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, D. D. Klug, P. B. Corkum und T. Brabec, „Theoretical Analysis of High-Harmonic Generation in Solids“, Phys. Rev. Lett. **113**, 073901 (2014).

[Vam15a] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thire, B. E. Schmidt, F. Legare, C. R. McDonald, T. Brabec und P. B. Corkum, „Linking high harmonics from gases and solids“, Nature **522**, 462–464 (2015).

[Vam15b] G. Vampa, C. McDonald, A. Fraser und T. Brabec, „High-Harmonic Generation in Solids: Bridging the Gap Between Attosecond Science and Condensed Matter Physics“, IEEE J. Sel. Topics in Quantum Electron. **21**, 1–10 (2015).

[Vam15c] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, D. D. Klug und P. B. Corkum, „All-Optical Reconstruction of Crystal Band Structure“, Phys. Rev. Lett. **115**, 193603 (2015).

[Weg05] M. Wegener, *Extreme Nonlinear Optics* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005).

[Wei88] A. M. Weiner, J. P. Heritage und E. M. Kirschner, „High-resolution femtosecond pulse shaping“, J. Opt. Soc. Am. B **5**, 1563–1572 (1988).

[Wei09] A. M. Weiner, *Ultrafast Optics* (John Wiley & Sons, Inc., 2009).

[Wil14] S. Wilbrandt, O. Stenzel, H. Nakamura, D. Wulff-Molder, A. Duparré und N. Kaiser, „Protected and enhanced aluminum mirrors for the VUV“, Appl. Opt. **53**, A125–A130 (2014).

[Woo00] E. L. Wooten, K. M. Kissa, A. Yi-Yan, E. J. Murphy, D. A. Lafaw, P. F. Hallemeier, D. Maack, D. V. Attanasio, D. J. Fritz, G. J. McBrien und D. E. Bossi, „A review of lithium niobate modulators for fiber-optic communications systems“, IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron. **6**, 69–82 (2000).

[Wun15a] M. Wunram, P. Storz, D. Brida und A. Leitenstorfer, „Ultrastable fiber amplifier delivering 145-fs pulses with 6-µJ energy at 10-MHz repetition rate“, Opt. Lett. **40**, 823–826 (2015).

[Wun15b] M. Wunram, „Hochstabile Faserlaser zur Erzeugung intensiver Femtosekunden-Impulse bei hoher Repetitionsrate“, Dissertation (Universität Konstanz, 2015).

[Xia07] K. Xia, Y. Niu, C. Li und S. Gong, „Absolute phase control of spectra effects in a two-level medium driven by two-color ultrashort laser pulses“, Phys. Lett. A **361**, 173–177 (2007).

[You17a] Y. S. You, D. A. Reis und S. Ghimire, „Anisotropic high-harmonic generation in bulk crystals“, Nat. Phys. **13**, 345–349 (2017).

[You17b] Y. S. You, Y. Yin, Y. Wu, A. Chew, X. Ren, F. Zhuang, S. Gholam-Mirzaei, M. Chini, Z. Chang und S. Ghimire, „High-harmonic generation in amorphous solids“, Nat. Commun. **8**, 724 (2017).

[You17c] Y. S. You, M. Wu, Y. Yin, A. Chew, X. Ren, S. Gholam-Mirzaei, D. A. Browne, M. Chini, Z. Chang, K. J. Schafer, M. B. Gaarde und S. Ghimire, „Laser waveform control of extreme ultraviolet high harmonics from solids“, Opt. Lett. **42**, 1816–1819 (2017).

[You17d] Y. S. You, Y. Yin, Y. Wu, A. Chew, X. Ren, F. Zhuang, S. Gholam-Mirzaei, M. Chini, Z. Chang und S. Ghimire, „High-harmonic generation in amorphous solids“, (2017).

[Zal85] A. Zalkin und D. H. Templeton, „Refinement of the trigonal crystal structure of lanthanum trifluoride with neutron diffraction data“, Acta Crystallogr., Sect. B **41**, 91–93 (1985).

Publikationsliste

Veröffentlichungen in referierten Fachzeitschriften

- P. Storz, J. Tauch, M. Wunram, A. Leitenstorfer und D. Brida, „Parametric Amplification of Phase-Locked Few-Cycle Pulses and Ultraviolet Harmonics Generation in Solids at High Repetition Rate“, Laser Photonics Rev. **11**, 1700062 (2017).
- M. Wunram, P. Storz, D. Brida und A. Leitenstorfer, „Ultrastable fiber amplifier delivering 145-fs pulses with 6-µJ energy at 10-MHz repetition rate“, Opt. Lett. **40**, 823–826 (2015).

Beiträge auf internationalen Konferenzen

- P. Storz, C. Beckh, J. Tauch, M. Wunram, A. Leitenstorfer und D. Brida, „Excitation of UV harmonics in solids at 10 MHz repetition rate with intense and phase-locked few-cycle pulses“, in Conference on Lasers and Electro-Optics Europe / European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC) (2017), CG–2.1.
- D. Brida, J. Fischer, P. Storz und A. Leitenstorfer, „High-power Yb:amplifiers seeded by a femtosecond Er:Fiber laser“, in International Conference on Laser Optics (LO) (2016), R1–R27.
- P. Storz, J. Fischer, J. Tauch, M. Wunram, A. Leitenstorfer und D. Brida, „Generation of UV Harmonics in Solids with Intense and Phase-Locked Few-Cycle Pulses at High Repetition Rate“, in Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (2016), SF1I.3.
- P. Storz, J. Fischer, J. Tauch, M. Wunram, A. Leitenstorfer und D. Brida, „UV Harmonics from Solids Excited at High Repetition Rate by Intense and Phase-Locked Few-Cycle Pulses“, in International Conference on Ultrafast Phenomena (UP) (2016), UF2A.7.

- P. Storz, M. Wunram, D. Brida und A. Leitenstorfer, „Ultrastable and High-Power Yb:Fiber Amplifier Driving Optical Parametric Amplification at High Repetition Rate“, in Conference on Lasers and Electro-Optics Europe / European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC) (2015), CF–1.1.
- P. Storz, M. Wunram, D. Brida und A. Leitenstorfer, „Ultrastable and High-Power Yb:Fiber Amplifier for Nonlinear Frequency Conversion at High Repetition Rate“, in Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (2015), SM1P.5.
- S. Kumkar, M. Wunram, P. Storz, D. Fehrenbacher, D. Brida und A. Leitenstorfer, „High-power Yb- and Tm-doped fiber amplifiers seeded by a femtosecond Er:fiber system“, in Conference on Lasers and Electro-Optics Europe / European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC) (2013), CJ–7.3.
- M. Wunram, S. Kumkar, P. Storz, D. Fehrenbacher, D. Brida und A. Leitenstorfer, „High-power Yb: and Tm:fiber amplifiers seeded by a femtosecond passively phase-stable Er:system“, in Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (2013), CW1M.4.
- M. Wunram, P. Storz, S. Kumkar, D. Fehrenbacher, D. Brida und A. Leitenstorfer, „High-power Yb- and Tm-doped amplifiers seeded by femtosecond passively phase stable Er:fiber system“, in Ultrafast Optics IX (UFO2013) (2013).

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wäre ohne die wertvolle Unterstützung von Kollegen, Freunden und Familie nicht möglich gewesen. Allen, die an ihrem Gelingen Teil hatten, möchte ich an dieser Stelle herzlich danken!

Mein besonderer Dank gilt dabei

Prof. Dr. Alfred Leitenstorfer, der mich bereits im dritten Studiensemester für die Optik begeistern konnte und mich bis heute mit seiner einzigartigen, stets eingängigen und doch präzisen Perspektive selbst auf komplizierteste physikalische Sachverhalte immer wieder aufs Neue verblüfft. Die Möglichkeit an diesem Forschungsprojekt arbeiten zu können war ein prägendes Erlebnis. Die kontinuierliche Betreuung innerhalb und außerhalb des Labors, von der Planung, über die Umsetzung, bis zur Auswertung, Aufbereitung und Präsentation der Ergebnisse ist von unschätzbarem und nachhaltigem Wert.

Prof. Dr. Daniele Brida, der als direkter Ansprechpartner stets eine offene Tür und ein offenes Ohr für alle Probleme im Laboralltag hatte. In einer durchweg angenehmen und motivierenden Arbeitsatmosphäre konnte ich stets von seinem umfangreichen Fachwissen profitieren, welches ein wichtiger Bestandteil für den Erfolg des Projektes war. Die gemeinsame Veröffentlichung der Ergebnisse sowie der gemeinschaftliche Besuch internationaler Konferenzen sind wertvolle und bleibende Erfahrungen.

Dr. Marcel Wunram, für die kostbare Vorarbeit und Einführung in das Lasersystem. Die sehr produktive Zusammenarbeit vor und zu Beginn der Promotion ist die Basis der vorliegenden Arbeit. Dank gebührt weiterhin Jonas Tauch und Johannes Lutz, die mich im Rahmen einer Master- bzw. Bachelorarbeit unterstützt haben und einen bedeutenden Anteil an den präsentierten Ergebnissen hatten. Cornelius Beckh, in dem sich ein würdiger Nachfolger gefunden hat, möchte ich für die jüngsten Beiträge danken sowie viel Erfolg für die Zukunft wünschen.

der „alten Riege“ und der „neuen Riege“ im Faserlaserlabor, bestehend aus Dr. David Fehrenbacher, Dr. Claudius Riek, Andreas Liehl und Philipp Sulzer sowie den Laborkollegen und Labornachbarn Dr. Sören Kumkar, Dr. Jonathan Fischer und Alexander

Heinrich. Der Erfahrungs-, Wissens- und nicht zuletzt der Materialaustausch waren von unschätzbarem Wert. Die stets produktive Zusammenarbeit und positive Arbeitsatmosphäre habe ich sehr genossen.

den Bürokollegen Jan Lippmann, Johannes Bühler und Marco Fischer für anregende und angeregte Diskussionen.

den noch nicht genannten Korrekturlesern dieser Arbeit, Arne Budweg und Felix Ritzkowsky.

Christian Beschle, dank dem alle Optiken zuverlässig einen festen Platz gefunden haben, Stefan Eggert, ohne den trotz aller Mühen wohl nie das (Laser-)Licht im Labor angegangen wäre, Ute Hentzen, die stets Ordnung ins Chaos gebracht hat und Matthias Hagner für die „kleinen Dinge“.

meinen Eltern, Ingrid und Peter Storz, für die Unterstützung während des Studiums.

Danke!