

Inaugural–Dissertation

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich–Mathematischen

Gesamtfakultät

der Ruprecht–Karls–Universität

Heidelberg

vorgelegt von

Dipl.–Phys. Hartmut Gimpel

aus Bonn

Tag der mündlichen Prüfung: 21. Juni 2006

**Erzeugung und Anwendung
intensiver ultrakurzer Lichtpulse
mit stabiler Träger–Einhüllenden–Phase**

**Gutachter: Prof. Dr. Uwe Morgner
Prof. Dr. Markus Oberthaler**

Zusammenfassung:

Diese Dissertation beschreibt den Aufbau, die Charakterisierung und die Anwendung eines Lasersystems zur Erzeugung intensiver ultrakurzer Lichtpulse mit stabiler Träger–Einhüllenden–Phase. Diese Lichtpulse haben eine Dauer von wenig mehr als zwei optischen Schwingungszyklen. Durch die Stabilisierung ihrer Träger–Einhüllenden–Phase, also der relativen Lage zwischen der Intensitätseinhüllenden und der optischen Trägerwelle der Lichtpulse, konnte der zeitliche Verlauf ihres elektrischen Feldes auf beinahe 100 Attosekunden genau festgelegt werden (1 Attosekunde = 10^{-18} Sekunden). Außerdem lassen sich mit dem System im Lichtfokus Spitzenfeldstärken erreichen, die mit den Feldstärken im Innern eines Atoms vergleichbar sind. Daher ist das Lasersystem zur Untersuchung von fundamentalen atomaren Prozessen mit einer Zeitauflösung im Attosekundenbereich hervorragend geeignet. Zwei derartige Experimente wurden im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt: Zum einen konnte erstmals Terahertzstrahlung in einem Luftplasma erzeugt werden, ohne äußere Felder anzulegen. Dies ist die erste Beobachtung von optischer Gleichrichtung in einem räumlich isotropen Medium. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass dieser Prozess eine vielversprechende Methode zur Langzeitmessung der „absoluten“ Träger–Einhüllenden–Phase ermöglicht. In einem zweiten Experiment wurde die Mehrphotonenionisation von Neon–Atomen untersucht. Dazu wurden in einem „Reaktionsmikroskop“ die vektoriellen Impulse aller erzeugten Ionisationsfragmente gemessen. Bei der Einfachionisation sowie erstmalig bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon wurde eine signifikante Abhängigkeit der Ionenimpulse von der Träger–Einhüllenden–Phase der ionisierenden Lichtpulse beobachtet.

Abstract:

This thesis describes the setup, characterization and application of a laser system that produces intense ultrashort light pulses with a stable carrier–envelope (CE) phase. The light pulses have a duration of just over two optical oscillation cycles. With the stabilization of their CE–phase, which is the relative position of the optical carrier oscillation to its intensity envelope, the electrical field evolution of these pulses is known to a precision of almost 100 attoseconds (1 attosecond = 10^{-18} seconds). Additionally, the electric field at the light focus is of similar magnitude to the field inside an atom. Therefore, the laser system is perfectly suited for the investigation of fundamental atomic processes with an attosecond time resolution. Two such experiments were accomplished in this work: For the first time terahertz radiation was produced with a plasma in ambient air without external fields. This is also the first observation of optical rectification in a spatially isotropic medium. This process is a promising method for the long–term stabilization of the “absolute“ CE–phase. In a second experiment the multi–photon ionisation of neon atoms was examined by measuring the vectorial momenta of all ionisation fragments in a “reaction microscope“. A significant dependence of the ion momenta on the CE–phase of the light pulses was observed in the single ionisation and for the first time in the non–sequential double ionisation of neon.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Theorie der Träger–Einhüllenden–Phase	3
1.1 Allgemeine Definitionen	3
1.1.1 Lichtpuls im Zeit- und Frequenzbereich	4
1.1.2 Dispersion	4
1.1.3 Selbstphasenmodulation	6
1.1.4 Gaußscher Strahl	7
1.2 Definitionen zur CEO–Phase	8
1.2.1 CEO–Phase im Zeit- und Frequenzbereich	8
1.2.2 Dispersion und CEO–Phase	11
1.2.3 Selbstphasenmodulation und CEO–Phase	12
1.2.4 Gouy–Phase und CEO–Phase	12
1.3 Messung der CEO–Phase mit f–2f–Interferometern	15
1.3.1 Messprinzip des f–2f–Interferometers	15
1.3.2 f–2f–Interferometer im Zeit- und Frequenzbereich	16
1.3.3 f–2f–Interferometer und interne Dispersionsdrift	18
1.3.4 Grenzen des f–2f–Messprinzips	19
1.4 Übersicht phasenabhängiger Effekte	20
1.4.1 Spitzenfeldstärke und CEO–Phase	21
1.4.2 Phasenabhängige Effekte in der Atomphysik	22
1.4.3 Andere phasenabhängigen Effekte	23
2 Aufbau des Lasersystems	25
2.1 Aufbau des Titan–Saphir Seed–Oszillators	25
2.1.1 Pumpgeometrie	26
2.1.2 Laser–Resonator	26
2.1.3 Dispersion und Modenkopplung	27
2.1.4 Ergebnisse	29
2.2 Multipass–Verstärker	30
2.2.1 Zerstörschwelle des Verstärker–Kristalls	31
2.2.2 Spektrale Einengung im Verstärkungsprozess	31
2.2.3 Ergebnisse	33

2.3	Kapillar–Spiegel–Kompressor	34
2.3.1	Aufbau	35
2.3.2	Spektrale Verbreiterung in der Kapillare	38
2.3.3	Pulscharakterisierung mit SPIDER und Autokorrelation	39
2.3.4	Ergebnisse	41
3	Phasenstabilisierung des Lasersystems	43
3.1	Phasenstabilisierung des Seed–Oszillators	43
3.1.1	Aufbau	44
3.1.2	Messung der Phasenstabilität	47
3.1.3	Einfluss des Pumplasers auf die Phasenstabilität	48
3.1.4	Ergebnisse	50
3.2	Phasenstabilisierung des Multipass–Verstärkers	51
3.2.1	Elektronischer und optischer Aufbau	51
3.2.2	Algorithmus der Phasenbestimmung	54
3.2.3	Leistungsabhängigkeit der Phasenmessung	55
3.2.4	Ergebnisse	56
3.3	Dritte Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse	57
3.3.1	Optischer Aufbau	58
3.3.2	Algorithmus der Phasenbestimmung	59
3.3.3	Erzeugungsort der spektralen Oktave und Leistungsabhängigkeit der Phasenmessung	61
3.3.4	Ergebnisse	63
4	Phasenabhängige Experimente	67
4.1	Erzeugung von THz–Strahlung in einem Luft–Plasma	67
4.1.1	Theoretischer Hintergrund	68
4.1.2	Experimenteller Aufbau	71
4.1.3	Messergebnisse	72
4.1.4	Diskussion der Messergebnisse	76
4.2	Einzel- und Doppelionisation von Neon	77
4.2.1	Theorie der Einzelionisation	78
4.2.2	Theorie der nichtsequentiellen Doppelionisation	82
4.2.3	Messaufbau: Das Reaktionsmikroskop	84
4.2.4	Einfluss der Gouy–Phase	85
4.2.5	Messergebnisse: Einzelionisation von Neon	87
4.2.6	Messergebnisse: nichtsequentielle Doppelionisation von Neon	89
4.2.7	Diskussion der Messergebnisse	90
	Ausblick	93
	Zusammenfassung	95

Anhang:

A Software zur Phasenstabilisierung	97
A.1 Software zur Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers	97
A.2 Software zur dritten Phasenmessung der Lichtpulse	99
B Atomare Einheiten	101
Literaturverzeichnis	103
Danksagung	111
Lebenslauf	113

INHALTSVERZEICHNIS

Einleitung

Laser sind aus unserem täglichen Leben kaum mehr wegzudenken. Wir finden sie an der Supermarktkasse und im CD-Spieler. Sie transportieren die Daten des Internet durch Glasfaserkabel und werden in der Zahn- und Augenchirurgie eingesetzt. Gerade gepulste Laser haben ein breites Anwendungsspektrum. Die mit ihrer Hilfe kurzzeitig erreichbaren hohen Leistungsdichten eröffnen z. B. in der Materialbearbeitung neue Möglichkeiten bezüglich Präzision und Geschwindigkeit. In der Wissenschaft führen Lichtpulse, deren Dauer nur noch Femtosekunden ($=10^{-15}$ Sekunden) beträgt, zu einer unerreicht hohen Zeitauflösung.

Durch technische Fortschritte ist es mittlerweile möglich, Lichtpulse im nahen infraroten Spektralbereich zu erzeugen, die aus weniger als zwei optischen Schwingungszyklen bestehen. Bei einem solchen ultrakurzen Lichtpuls gewinnt die relative Lage zwischen der optischen Trägerwelle und der Intensitätseinhüllenden an Bedeutung. Diese relative Lage nennt man die *Träger-Einhüllenden-Phase*.

Für die Wissenschaft war es von großer Bedeutung, als vor gut sieben Jahren die Träger-Einhüllenden-Phase erstmals gemessen und kontrolliert werden konnte. Damit war nun direkt der zeitliche Feldverlauf eines Lichtpulses zugänglich und manipulierbar, nicht mehr nur sein Intensitätsverlauf. Solche phasenstabilen Lichtpulse sind seitdem zu einem mächtigen Hilfsmittel in mehreren Gebieten der Wissenschaft geworden.

Im vergangenen Jahr (2005) wurde der Nobelpreis für Physik für die Anwendung phasenstabiler Lichtpulse in der Präzisionsspektroskopie an Theodor Hänsch vergeben. Dabei wird der Zusammenhang ausgenutzt, dass eine kontinuierliche Abfolge phasenstabiler Lichtpulse im Frequenzraum einen so genannten *Frequenzkamm* bildet. Die Anwendung dieser Erkenntnis hat die Präzisions-Frequenzmetrologie revolutioniert.

Mittlerweile sind einige physikalische Effekte bekannt, die von der Träger-Einhüllenden-Phase abhängen. Diese Effekte reagieren damit unmittelbar auf den schnell oszillierenden Verlauf des optischen Feldes, ohne über die Lichtperiode (~ 3 fs) zu mitteln. Zuerst wurde eine Phasenabhängigkeit bei der Multiphotonenionisation von Edelgas-Atomen beobachtet. Weiterhin hängt die Photoemission von Elektronen aus einer Goldoberfläche von der Träger-Einhüllenden-Phase ab, wie auch der Photostrom in einem speziell dafür ausgelegten Halbleiter.

Um solche phasenabhängigen Effekte in der Atomphysik zu beobachten, ist es nötig mit den Lichtpulsen Feldstärken zu erreichen, die vergleichbar sind mit den inneratomaren Feldstärken. Vor drei Jahren gelang es erstmals die Träger-Einhüllenden-Phase von solchen intensiven Lichtpulsen aus einem Laser-Verstärkersystem zu kontrollieren. Zuerst wurde

damit die phasenabhängige Erzeugung von XUV-Strahlung mittels der so genannten *Erzeugung hoher Harmonischer* untersucht.

Diese Entwicklung eröffnete die „Atto-Wissenschaft“ (*attoscience*). Jetzt konnten physikalische Effekte auf Attosekunden-Zeitskala untersucht werden (1 Attosekunde = 10^{-18} Sekunden). Auf dieser Zeitskala findet die inneratomare Dynamik statt: das Elektron im Wasserstoffatom benötigt im Bohr'schen Atommodell ca. 150 Attosekunden um das Proton zu umrunden. Als aktuelle Beispiele für dieses junge und schnell wachsende Gebiet seien hier nur die tomographische Abbildung einer atomaren Wellenfunktion und die direkte Vermessung einer Lichtwelle mit Hilfe eines isolierten XUV-Pulses von 250 Attosekunden Dauer genannt.

Das zeitabhängige Verhalten von Atomen und Molekülen in starken zeitabhängigen Feldern zählt zu den fundamentalen Fragestellungen der modernen Atom- und Molekülphysik. Auch in diesem Gebiet ermöglichen intensive ultrakurze Lichtpulse mit stabiler Träger-Einhüllenden-Phase die Untersuchung grundlegender Prozesse auf Attosekunden-Zeitskalen. So hat diese Technik zu einem vertieften Verständnis bei der *above-threshold*-Ionisation von Edelgas-Atomen geführt, bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von Argon-Atomen, und bei der Photodissoziation von Wasserstoffmolekülen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein verstärktes Lasersystem aufgebaut, das ultrakurze Lichtpulse mit stabiler Träger-Einhüllenden-Phase erzeugt, deren Intensität für atomphysikalische Experimente ausreicht. Solch ein Lasersystem gibt es weltweit schätzungsweise nur in vier bis fünf Laboren, mit der hohen Pulswiederholrate von 3 Kilohertz ist das System momentan wahrscheinlich einzigartig.

Mit diesem Lasersystem wurde die Phasenabhängigkeit eines weiteren Effektes erstmalig nachgewiesen, der Erzeugung von Terahertz-Strahlung in einem Luftplasma. Dieser Effekt birgt die vielversprechende Möglichkeit zur vergleichsweise einfachen Messung der „absoluten“ Träger-Einhüllenden-Phase von intensiven Lichtpulsen.

Weiterhin wurden in dieser Arbeit erste atomphysikalische Untersuchungen an Neon-Atomen durchgeführt. Bei diesen Experimenten wurde ein so genanntes *Reaktionsmikroskop* verwendet, das die vektoriellen Impulse aller entstehenden Fragmente eines Photoionisationsprozesses misst. Dabei wurde in der Einfachionisation, sowie erstmals in der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon, eine Abhängigkeit von der Träger-Einhüllenden-Phase der ionisierenden Lichtpulse beobachtet.

Diese Arbeit gliedert sich wie folgt: Im ersten Kapitel werden die zum weiteren Verständnis nötigen Grundlagen erläutert. Dort finden sich theoretische Überlegungen zur möglichen Beeinflussung der Träger-Einhüllenden-Phase von Lichtpulsen, sowie zu deren Messung mit Hilfe von nichtlinearen f - $2f$ -Interferometern. In Kapitel 2 wird dann der Aufbau des Lasersystems beschrieben, und die damit erzeugten Lichtpulse werden vollständig charakterisiert. Kapitel 3 beschreibt den Aufbau zur Phasenstabilisierung des Lasersystems sowie die Messungen zur erzielten Phasenstabilität. Kapitel 4 enthält die beiden im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten phasenabhängigen Experimente: die Erzeugung von Terahertzstrahlung in einem Luftplasma und die Untersuchung der Einzel- und Doppelionisation von Neon-Atomen.

Kapitel 1

Theorie der Träger–Einhüllenden–Phase

Besteht ein Lichtpuls nur noch aus wenige Schwingungsperioden, dann wird eine bis dahin irrelevante Eigenschaft des Pulses wichtig: die zeitliche Lage der Trägerwelle unter ihrer Einhüllenden, die mit der sogenannten *Träger–Einhüllenden–Phase* (englisch *carrier-envelope offset phase*, CEO–Phase) beschrieben wird.

Seit einigen Jahren können im nahen infraroten Spektralbereich um 800 nm solche ultrakurzen Lichtpulse erzeugt werden. Wenn ein Lichtpuls, wie in dieser Arbeit, eine Dauer von 6,5 fs hat, dann befinden sich innerhalb seiner Halbwertsbreite nur noch ca. 2,5 Wellenzyklen. Experimente, die auf die Träger–Einhüllenden–Phase von Lichtpulsen sensitiv sind, reagieren direkt auf den Verlauf der elektrischen Feldstärke des Lichts, nicht mehr nur auf dessen Intensität.

In diesem Kapitel werden die Grundlagen erläutert, die für das Verständnis dieser Arbeit mit Lichtpulsen stabiler Träger–Einhüllenden–Phase nötig sind. Dabei wird zuerst auf allgemeine Eigenschaften von Lichtpulsen eingegangen (Abschnitt 1.1). Danach wird die Träger–Einhüllenden–Phase definiert und ihre Eigenschaften werden diskutiert (Abschnitt 1.2). Dann folgt ein Abschnitt über die Messung der CEO–Phase mit f–2f–Interferometern (Abschnitt 1.3), die in dieser Arbeit mehrfach verwendet wurden. Abschließend werden kurz die zur Zeit bekannten physikalischen Effekte vorgestellt, die von der CEO–Phase abhängen (Abschnitt 1.4).

1.1 Allgemeine Definitionen

Ein linear polarisierter Lichtstrahl lässt sich beschreiben durch sein elektrisches Feld

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{e} \operatorname{Re} \int_{\Delta\omega} \tilde{E}(z, \omega) \cdot u_\omega(\vec{r}) \cdot e^{i(\omega t - k(\omega)z)} d\omega . \quad (1.1)$$

Das E–Feld lässt sich also zerlegen in einen Einheitsvektor \vec{e} in Polarisationsrichtung, der senkrecht auf die Ausbreitungsrichtung z des Lichtstrahls steht, eine frequenzabhängige

komplexe Amplitude $\tilde{E}(z, \omega)$ und das transversale Strahlprofil $u_\omega(\vec{r})$. Dabei ist $k(\omega)$ die frequenzabhängige Wellenzahl, ω die Kreisfrequenz, und Re steht für die Bildung des Realteils, die im Folgenden aus Gründen der Übersichtlichkeit oft weggelassen wird. Die Frequenzabhängigkeit des Strahlprofils $u_\omega(\vec{r})$ kann für schmale optische Spektren ($\Delta\omega/\omega_c \ll 1$) in guter Näherung vernachlässigt werden, womit es aus der Frequenzintegration herausfällt (s. aber Kap. 1.2.4). Vollständig polarisiertes Licht, das nicht linear polarisiert ist, kann als Überlagerung zweier solcher linear polarisierten Lichtfelder beschrieben werden. Die Frequenzabhängigkeit (bzw. Zeitabhängigkeit) eines solchen Lichtstrahls entlang der Propagationsrichtung und die Eigenschaften seines transversalen Strahlprofils werden im Folgenden nacheinander diskutiert. Für ausführlichere Informationen zu den Themen dieses Abschnitts wird auf gängige Lehrbücher verwiesen [Sve98, Agr95, Mes99, Boy03, Mor03a, Mor03b].

1.1.1 Lichtpuls im Zeit- und Frequenzbereich

Der zeitliche Verlauf der elektrischen Feldstärke eines Lichtstrahls an einem festen Punkt \vec{r} wird beschrieben durch

$$E(t) = \text{Re} \int \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega = \text{Re} \int E(\omega) e^{i\phi(\omega)} e^{i\omega t} d\omega . \quad (1.2)$$

Dabei nennt man $E(\omega) := |\tilde{E}(\omega)|$, oder auch $I(\omega) := |E(\omega)|^2$, das *optische Spektrum* und $\phi(\omega)$ die *spektrale Phase*. Wählt man die Zentralfrequenz ω_c des optischen Spektrums als Trägerfrequenz ω_0 , so kann man den Verlauf dieses Feldes im Zeitbereich schreiben als

$$E(t) = \text{Re} \tilde{A}(t) e^{i\omega_0 t} = \text{Re} A(t) e^{i\phi(t)} e^{i\omega_0 t} , \quad (1.3)$$

mit einer komplexen *Einhüllenden* $\tilde{A}(t)$ oder einer reellen *Einhüllenden* $A(t)$, außerdem einer *zeitlichen Phase* $\phi(t)$ und der *Trägerwelle* $e^{i\omega_0 t}$ (zur Veranschaulichung s. Abb. 1.2). Dabei kann der Verlauf der *Einhüllenden* $\tilde{A}(t)$ aus dem Verlauf des Spektrums $\tilde{E}(\omega - \omega_0)$ durch Fourier–Transformation berechnet werden.

Hat das optische Frequenzspektrum eine gewisse Breite $\Delta\omega$, so ergibt sich nach der Fourier–Transformation eine zeitliche *Einhüllende* der Breite $\Delta t = \alpha \cdot 2\pi/\Delta\omega$, falls man eine konstante spektrale Phase wählt ($\phi(\omega) = \text{const.}$). Der auf diese Weise aus einem optischen Spektrum erzeugte zeitliche Lichtimpuls¹ hat die minimal mögliche Dauer und man nennt ihn den *Fourier–limitierten* Lichtpuls. Der exakte Wert des Proportionalitätsfaktors ($\alpha \approx 1$) zwischen spektraler Breite und minimaler zeitlicher Breite hängt von der Form des optischen Spektrums ab und ist als *Zeit–Bandbreite–Produkt* bekannt.

1.1.2 Dispersion

In optischen Materialien unterscheidet sich die Phasengeschwindigkeit v_{ph} von der Vakuumlichtgeschwindigkeit c . Dem kann mit einem *Brechungsindex* n des verwendeten Materials

¹In dieser Arbeit werden zeitliche Lichtimpulse kurz mit „Puls“ bezeichnet, was den aktuellen Sprachgebrauch in der Wissenschaft widerspiegelt.

Rechnung getragen werden: $v_{\text{ph}} = c/n$.

Weiterhin sind auch die Phasengeschwindigkeiten für verschiedene Lichtwellenlängen unterschiedlich. Diese sogenannte *Dispersion* kann in einem linearen Medium mit einem wellenlängenabhängigen Brechungsindex $n(\lambda)$ beschrieben werden. Konzeptionell einfacher ist aber die Beschreibung der Dispersion mit einer frequenzabhängigen Wellenzahl $k(\omega)$. Bei Propagation eines Lichtpulses durch ein dispersives Medium verändert sich die spektrale Phase, das optische Spektrum bleibt unverändert. Man kann die Zeit- und Ortsabhängigkeit des Lichtstrahls entlang seiner Propagationsachse schreiben als

$$E(z, t) = \int \tilde{E}(z, \omega) e^{i\omega t} d\omega = \int E(0, \omega) e^{i\phi(z, \omega)} e^{i\omega t} d\omega . \quad (1.4)$$

Die dispersiven Eigenschaften des Materials werden mit der Gesamtphase $\phi(z, \omega)$ beschrieben. Eine Taylor-Entwicklung dieser Gesamtphase um eine Zentralfrequenz ω_0 ergibt

$$\begin{aligned} \phi(z, \omega) &= \phi(0, \omega) + k(\omega)z \\ &= \phi(\omega_0) + \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial^2 \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \\ &= \underbrace{\phi(\omega_0)}_{=\phi_0 + \omega_0 z n(\omega_0)/c} + \underbrace{\text{GD}_{\omega_0}}_{=:k_1 z} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \underbrace{\text{GDD}_{\omega_0}}_{=:k_2 z} (\omega - \omega_0)^2 + \dots . \end{aligned} \quad (1.5)$$

Das heißt, man kann die Dispersionseigenschaften eines Materials durch einen Satz von Dispersionskoeffizienten (k_1, k_2, \dots) bei der verwendeten Wellenlänge ω_0 beschreiben. GD (*group delay*) heißt die *Gruppenlaufzeit* (Einheit: fs) und GDD (*group delay dispersion*) die *Gruppenlaufzeitdispersion* (Einheit: fs²).

Bei sehr breiten optischen Spektren, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, ist die obige Taylor-Entwicklung nicht mehr sinnvoll. Stattdessen muss man den gesamten Verlauf des von dem Material erzeugten spektralen Phasengangs berücksichtigen. Doch auch hier wird weiterhin von GD, GDD, usw. gesprochen. Damit ist dann die frequenzabhängige erste, bzw. zweite Ableitung der vom Material erzeugten spektralen Phase nach der Kreisfrequenz gemeint.

Hat die Gruppenlaufzeitdispersion einen positiven Wert, so spricht man von *positiver Dispersion*. In diesem Fall propagieren rote Spektralkomponenten mit einer höheren Gruppengeschwindigkeit als blaue. Das ist bei allen optischen Materialien im hier verwendeten Spektralbereich um 800 nm der Fall. Negative Gruppenlaufzeitdispersion, also *negative Dispersion*, kann nur aufwendig durch Prismen- bzw. Gittersequenzen oder speziell dafür angefertigte dispersive, dielektrische Spiegel erreicht werden.

Der mittlere Brechungsindex $n(\omega_0)$ des Materials bewirkt also eine Verringerung der *Phasengeschwindigkeit*, mit der die Trägerwelle des Lichtpulses propagiert, auf $v_{\text{ph}} = c/n(\omega_0)$. Die Gruppenlaufzeit GD_{ω_0} bestimmt die *Gruppengeschwindigkeit* $v_{\text{gr}} = 1/k_1 = c/(n(\omega_0) + \omega_0 \, dn/d\omega|_{\omega_0})$, also die Geschwindigkeit, mit der die Einhüllende $A(t)$ dieses Lichtpulses propagiert, ansonsten bleibt die Pulsform durch die GD_{ω_0} unverändert.

Die Gruppenlaufzeitdispersion GDD_{ω_0} verändert die Pulsform, indem die verschiedenen Spektralkomponenten des Pulses zeitlich auseinandergezogen werden. Für einen Puls mit

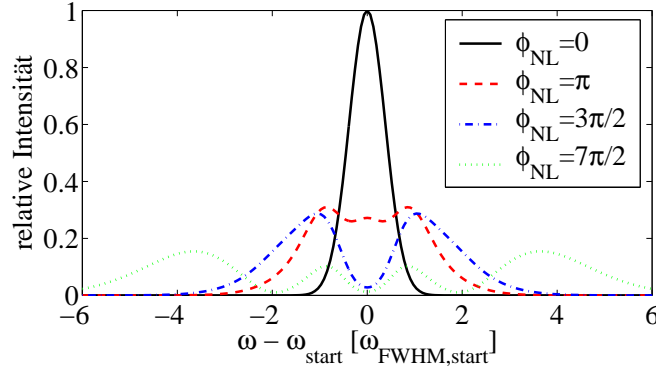


Abbildung 1.1: Selbstphasenmodulation: Das optische Spektrum eines Lichtpulses wird verbreitert, abhängig von der nichtlinearen Phase ϕ_{NL} . (gaußförmiges Eingangsspektrum)

gaußförmigem Spektrum und einer Fourier-limitierter Pulsdauer τ_0 ergibt sich dabei, nach dem Durchgang durch ein Medium mit ausschließlich Gruppenlaufzeitdispersion, folgende FWHM-Pulsdauer² τ : ([Sie86], S. 356)

$$\tau(\text{GDD}) = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln(2) \cdot \text{GDD}}{\tau_0^2} \right)^2} \xrightarrow{\text{GDD} \gg \tau_0^2} \frac{4 \ln(2)}{\tau_0} \cdot \text{GDD} \quad (1.6)$$

Das heißt, der Puls wird zeitlich gestreckt. Für sehr große Gruppenlaufzeitdispersion ist der Streckungsfaktor proportional zur durchlaufenen GDD und proportional zur spektralen Breite ($\Delta\omega \propto 1/\tau_0$). Ultrakurze Lichtpulse mit sehr breiten optischen Spektren reagieren daher wesentlich empfindlicher auf Dispersion als längere Pulse.

1.1.3 Selbstphasenmodulation

Für hohe Lichtintensitäten ($I \gtrsim 10^{10} \text{ W/cm}^2$) wird relevant, dass der Brechungsindex in optischen Medien intensitätsabhängig ist:

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I \quad (1.7)$$

Diese Beschreibung ist im Zeitbereich zu verstehen, mit $I(t)$ als der über die Lichtoszillation gemittelten Intensität. Dabei ist die Antwortzeit optischer Medien für diese Brechungsindexvariation sehr schnell ($\sim \text{fs}$), und für transparente optische Medien ist n_2 positiv.

Dies führt zum zeitlichen Kerr-Effekt, auch *Selbstphasenmodulation* (SPM) genannt. Durch diesen Effekt werden bei der Propagation eines Lichtpulses hoher Intensität neue Spektralkomponenten erzeugt, symmetrisch um die Zentralfrequenz des Pulses herum (s. Abb. 1.1). Hohe Frequenzen entstehen dabei im Rücken des Pulses und niedrige an seiner Front. Es ist bemerkenswert, dass sich bei diesem Prozess die Form, und speziell auch die

²FWHM: englisch *full width at half maximum*, auf deutsch *volle Halbwertsbreite*

Dauer, der zeitlichen Einhüllenden nicht verändert. Im Zusammenwirken mit negativer Dispersion kann die SPM zur Ausbildung eines *optischen Solitons* führen, dessen Einhüllende ohne zeitliche oder spektrale Änderung propagiert.

Die Stärke der Selbstphasenmodulation wird charakterisiert durch die nichtlineare Phase, auch das *B-Integral* genannt, die die Pulsspitze während der Propagation durch das nichtlineare Medium akkumuliert:

$$\phi_{\text{NL}} = B := \frac{\omega_0}{c} \int_0^L n_2(z) I(z) dz \stackrel{(n_2=\text{const}, I=\text{const})}{=} \frac{\omega_0}{c} n_2 I L \quad (1.8)$$

Für $\phi_{\text{NL}} \approx 3\pi/2 + m \cdot 2\pi$ ($m = 0, 1, 2, \dots$) treten charakteristische Minima in dem verbreiterten optischen Spektrum auf (vgl. Abb. 1.1).

Die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex verursacht außerdem den räumlichen Kerr-Effekt. Dieser ist bei einer gaußförmigen Intensitätsverteilung folgendermaßen zu verstehen: Die Intensität ist auf der optischen Achse am größten und hat dort eine Phasenverzögerung des Strahls zur Folge. Daraus resultiert eine konkave Krümmung der Phasenflächen und deshalb Selbstfokussierung durch diese sogenannte *Kerr-Linse*. Im Extremfall kann dieser Effekt zum katastrophalen Kollaps eines Pulses führen [Gae00].

Bei der *Selbstaufsteilung* (*self steepening*) wird für sehr kurze Pulse ($\tau \lesssim 100$ fs) zusätzlich noch berücksichtigt, dass die Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{gr}}(I)$ in einer zu Gleichung (1.7) analogen Weise intensitätsabhängig ist. Daher propagiert der Schwerpunkt eines intensiven Lichtpulses langsamer als seine Flanken. Der Puls steilt sich also an seinem Rücken auf und verflacht an seiner Front. Das verbreiterte Spektrum ist in diesem Fall nicht mehr symmetrisch um die ursprüngliche Zentralfrequenz.

1.1.4 Gaußscher Strahl

Beim Umgang mit Lichtstrahlen, die mit einem Laser erzeugt wurden, ist meistens die paraxiale Näherung gültig. In den meisten Fällen lässt sich solch ein Strahl mit der sogenannten *Gaußschen Grundmode* gut beschreiben. Dann ist das transversale Strahlprofil in Gleichung (1.1) gegeben durch

$$u_{\lambda}(\vec{r}) = u_{\lambda}(z, \rho) = \frac{w_0}{w(z)} e^{-\rho^2/w^2(z)} e^{-ik\rho^2/2R(z)} e^{-i\eta(z)}. \quad (1.9)$$

Hierbei ist z die Ausbreitungsachse des Lichtstrahls, $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ der radiale Abstand von dieser Achse und $k = 2\pi/\lambda$ die Wellenzahl der betrachteten Frequenzkomponente des Lichtstrahls mit der Wellenlänge $\lambda = 2\pi c/\omega n$, dessen Fokus in den Ursprung $\vec{r} = 0$ gelegt wurde. Die neu eingeführten Größen des *Strahlradius*³ $w(z)$, des *Krümmungsradius der Phasenfronten* $R(z)$ und der *Gouy-Phase* $\eta(z)$ sind definiert als:

$$w^2(z) := w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2 \right] \quad R(z) := z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z} \right)^2 \right] \quad \eta(z) := \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) \quad (1.10)$$

³Der Strahlradius $w(z)$ entspricht dem $1/e^2$ -Radius der transversalen Intensitätsverteilung eines gaußschen Lichtstrahls.

Dabei ist der minimale Strahlradius $w_0 = w(z=0)$ der einzige freie Parameter des Gaußschen Strahls (mit gegebener Wellenlänge λ). Die sogenannte *Rayleigh-Länge* z_R ergibt sich daraus als

$$z_R := \frac{\pi}{\lambda} w_0^2. \quad (1.11)$$

Manchmal werden die beiden Größen $w(z)$ und $R(z)$ in einem einzigen komplexen *Strahlparameter* $q(z)$ zusammengefasst. Dieser ist definiert als

$$\frac{1}{q(z)} := \frac{1}{z + i z_R} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)} \quad (1.12)$$

und charakterisiert einen gaußschen Strahl (gegebener Wellenlänge) an einer Stelle \bar{z} vollständig, deren Abstand vom Fokus ($z = 0$) nicht bekannt sein muss. Die weitere Propagation dieses Lichtstrahls in $\pm z$ -Richtung ist durch die Angabe des Strahlparameters an dieser einzelnen Stelle ebenfalls vollständig festgelegt.

Das Konzept des gaußschen Strahls wird oft erweitert, indem in den beiden Transversalrichtungen (x und y) des Lichtstrahls unterschiedliche Strahlparameter zugelassen werden. Die Entwicklung dieser beiden Strahlparameter entlang der Propagationsachse z erfolgt dann unabhängig voneinander. Einen Lichtstrahl mit gleichem Strahlparameter in beiden transversalen Achsen ($q_x(\bar{z}) = q_y(\bar{z})$) heißt *stigmatisch*, ein Strahl mit zwei unterschiedlichen Strahlparametern *astigmatisch*.

1.2 Definitionen zur CEO-Phase

Im folgenden Abschnitt wird die Träger-Einhüllenden-Phase definiert. Danach wird ihr Verhalten beim Durchgang durch dispersive Medien, bei Selbstphasenmodulation und bei Propagation durch einen Lichtfokus diskutiert. Die Themen dieses Abschnitts werden teilweise auch in dem Übersichtsartikel [Bra00] behandelt.

1.2.1 CEO-Phase im Zeit- und Frequenzbereich

Die spektrale Phase aus Gleichung (1.2) kann aufgeteilt werden in die konstante Phase $\phi_0 := \phi(\omega_0)$ bei der Trägerfrequenz ω_0 und den übrigen frequenzabhängigen Phasenverlauf $\phi'(\omega)$:

$$E(t) = \text{Re} \int E(\omega) e^{i\phi(\omega)} e^{i\omega t} d\omega = \text{Re} e^{i\phi_0} \int E(\omega) e^{i\phi'(\omega)} e^{i\omega t} d\omega \quad (1.13)$$

Durch Ausführen der Fourier-Transformation erhält man daraus analog zu Gleichung (1.3) den Zeitverlauf zu

$$E(t) = \text{Re} e^{i\phi_0} \tilde{A}'(t) e^{i\omega_0 t}. \quad (1.14)$$

Nimmt man vorerst eine konstante spektrale Phase an ($\phi'(\omega) = 0$) und zusätzlich ein optisches Spektrum $E(\omega)$, das symmetrisch um die Trägerfrequenz ist, dann wird die komplexe

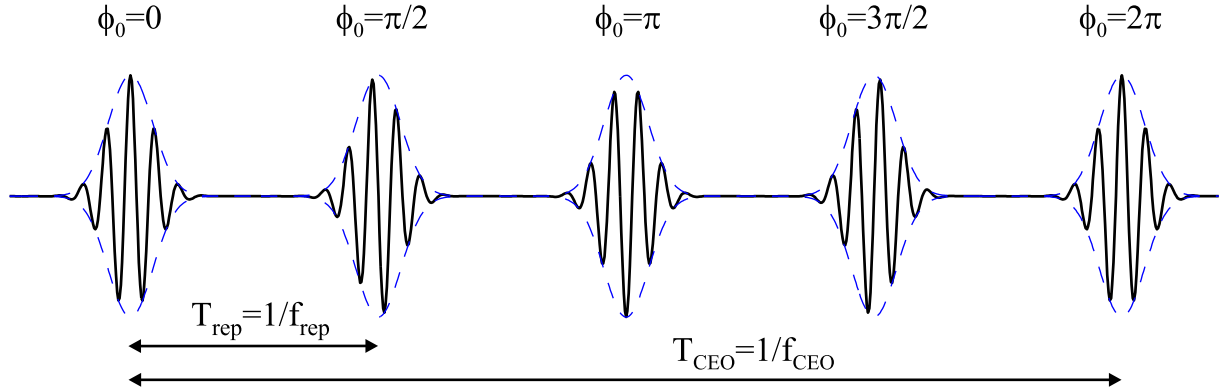


Abbildung 1.2: Pulszug im Zeitbereich mit Pulswiederholzeit T_{rep} und Feldwiederholzeit T_{CEO} . Es ist die Pulseinhüllende und das E-Feld der Lichtpulse eingezeichnet. Die unterschiedliche Lage der Trägerwelle unter der Einhüllenden wird mit der CEO-Phase ϕ_0 beschrieben. (In diesem Spezialfall ist $T_{\text{CEO}} = 4T_{\text{rep}}$, d. h. $f_{\text{CEO}} = 1/4 \cdot f_{\text{rep}}$.)

zeitliche Einhüllende $\tilde{A}'(t)$ ebenfalls reell und symmetrisch. Der Zeitverlauf des Pulses kann dann geschrieben werden als

$$E(t) = A(t) \cos(\omega_0 t + \phi_0) . \quad (1.15)$$

Die Phase ϕ_0 ist die *Träger-Einhüllenden-Phase*. Sie beschreibt die relative Phasenlage der Trägerwelle bezüglich der Einhüllenden. Den zeitlich symmetrischen und räumlich asymmetrischen Puls mit $\phi_0 = 0$ nennt man auch *Kosinus-Puls*, der zeitlich und räumlich antisymmetrische Puls mit $\phi_0 = \pi/2$ wird *Sinus-Puls*⁴ genannt.

Im Allgemeinen, also auch für Lichtpulse mit komplizierterem spektralen Phasenverlauf und mit asymmetrischem Spektrum, kann die CEO-Phase definiert werden als zeitliche Phase der komplexen Einhüllenden zum Zeitpunkt ihres Maximalbetrags, das heißt $\phi_0^t := \arg(\tilde{A}(t_{\max|A(t)|}))$ in Gleichung (1.3). Die Trägerwelle ist dann so zu definieren, dass sie zu diesem Zeitpunkt gleich 1, also Kosinus-förmig, ist. Alternativ kann man die CEO-Phase als spektrale Phase der Trägerfrequenz definieren, also $\phi_0^\omega := \arg(\tilde{E}(\omega_0))$ in Gleichung (1.2). Die zweite Definition ist für optische Messungen im Frequenzbereich einfacher zugänglich. Die erste Definition ist dagegen anschaulicher und bei Experimenten im Zeitbereich relevant. Für Lichtpulse, die nahezu Fourier-limitiert sind, kann die Trägerfrequenz so als Schwerpunkt der optischen Spektrums gewählt werden, dass die beiden Definitionen praktisch dasselbe Ergebnis ϕ_0 liefern.

Lichtpulse, die aus einem Laseroszillator stammen, haben auch im Idealfall nicht alle dieselbe CEO-Phase. Das liegt daran, dass im Laserresonator normalerweise dispersive Ma-

⁴Falls man bei einer theoretischen Berechnung einen phasenstabilen Lichtpuls direkt im Zeitraum über Gleichung (1.15) definiert, darf die zeitliche Einhüllende $A(t)$ nur so gewählt werden, dass das optische Spektrum bei der Frequenz Null verschwindet: $\tilde{A}(\omega = 0) = 0$. Ansonsten kann der beschriebene Lichtpuls nicht im ladungsfreien Raum propagieren und man erzeugt durch die DC-Komponente künstlich eine räumliche Asymmetrie des Lichtpulses, die unphysikalisch ist und Effekte durch die CEO-Phase vortäuschen kann. [Mad02]

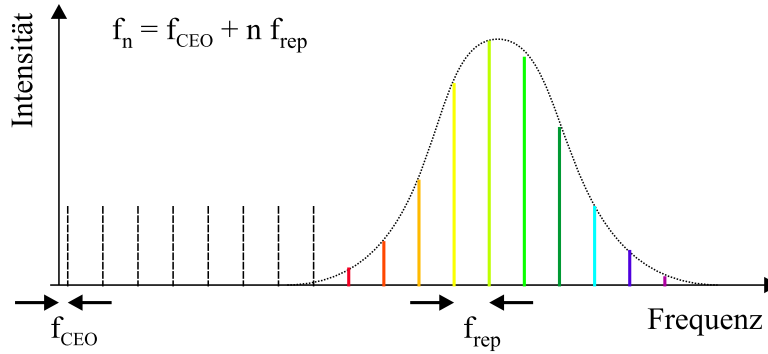


Abbildung 1.3: Darstellung eines periodischen Pulszugs im Frequenzraum. Die einzelnen Frequenznadeln des optischen Spektrums haben den Abstand der Pulswiederholfrequenz f_{rep} voneinander. Extrapoliert man diesen „Modenkamm“ zur Frequenz Null, so wird eine Verschiebung des gesamten Kamms um f_{CEO} erkennbar. (Der Abstand der Frequenznadeln voneinander wurde stark vergrößert. Typischerweise enthält das optische Spektrum einer periodischen Folge von ultrakurzen Pulsen ca. 10^6 Frequenznadeln. In dem dargestellten Spezialfall ist $f_{\text{CEO}} = 1/4 \cdot f_{\text{rep}}$.)

terialien vorkommen. Beim Durchqueren dieser Komponenten propagiert die Trägerwelle mit der Phasengeschwindigkeit und die Einhüllende mit der Gruppengeschwindigkeit (s. Kap. 1.2.2), die CEO–Phase der ausgekoppelten Lichtpulse ändert sich also von Puls zu Puls, wie es in Abbildung 1.2 dargestellt ist. Den Unterschied der CEO–Phase zwischen zwei aufeinanderfolgenden Lichtpulsen kann man dort ablesen, er beträgt

$$\Delta\phi = 2\pi f_{\text{CEO}}/f_{\text{rep}} . \quad (1.16)$$

Dabei wurde die *CEO–Frequenz* f_{CEO} eingeführt als Maß für die Änderung der CEO–Phase von Puls zu Puls. Ist das Verhältnis zwischen CEO–Frequenz und Pulswiederholrate ganzzahlig ($f_{\text{CEO}} \cdot n = f_{\text{rep}}$), dann hat jeder n -te Puls dieselbe CEO–Phase. Ist $f_{\text{CEO}} = 0$, was gleichbedeutend ist mit $f_{\text{CEO}} = f_{\text{rep}}$, dann haben alle Pulse dieselbe CEO–Phase.

Die Darstellung desselben Pulszugs im Frequenzraum sieht man in Abbildung 1.3. Das optische Spektrum des periodischen Pulszuges besteht aus diskreten Frequenznadeln im Abstand der Pulswiederholrate f_{rep} und weist eine globale Verschiebung der Nadeln um die CEO–Frequenz f_{CEO} auf. Damit lassen sich die einzelnen Frequenzkomponenten dieses „Modenkamms“ schreiben als

$$f_n = f_{\text{CEO}} + n \cdot f_{\text{rep}} \quad (n \in \mathbb{N}) . \quad (1.17)$$

Wenn also die CEO–Frequenz Null ist, dann bilden die Frequenznadeln eine diskrete Fourier–Reihe. Das entspricht im Zeitbereich dem streng periodischen *Feld*verlauf für solch einen Pulszug mit konstanter CEO–Phase.

Die beiden Größen f_{CEO} und f_{rep} liegen im Radiofrequenzbereich und sind daher relativ einfach für Messungen zugänglich. Wenn diese beiden Größen bekannt sind, dann sind über Gleichung (1.17) auch die exakten Frequenzen aller Spektralkomponenten eines solchen Pulszuges ultrakurzer Lichtpulse bekannt. Stabilisiert man beispielsweise diese beiden Frequenzen relativ zu der Frequenz einer Atomuhr, dann können mit diesem

dispersives Material	$L_{2\pi}$
Luft	16,8 cm
Quarzglas	57,9 μm
BK7 Glas	50,4 μm
Bariumfluorid	81,5 μm
SF57 Glas	15,1 μm
Saphir	37,7 μm

Tabelle 1.1: Dicke $L_{2\pi}$ verschiedener optischer Materialien, nach deren Durchqueren sich die CEO-Phase eines Lichtpulses um 2π geändert hat, berechnet nach Formel (1.18). (Trägerwellenlänge $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$)

„Frequenzkamm“ unbekannte optische Frequenzen, z. B. von atomaren Übergängen, mit unübertroffener Genauigkeit vermessen werden [Ude02]. Die Messung und Stabilisierung der CEO-Frequenz konnte erstmals vor sieben Jahren erreicht werden [Ude99], im letzten Jahr ging der Nobelpreis für Physik an Theodor Hänsch für die Anwendung dieser Technik in der Präzisions-Frequenzmetrologie [Sci05].

Häufig wird die Phase ϕ_0 eines Lichtpulses, von dem an einem gegebenen Ort der konkrete Wert bekannt ist, als „absolute Phase“ bezeichnet. Im Unterschied dazu wird diese Phase als „CEO-Phase“ bezeichnet, wenn man ϕ_0 zwar konstant halten und kontrollieren kann, sein Wert aber an einem gegebenen Ort nur bis auf einen unbekanntem, konstanten Summanden bekannt ist.

Kennt man an einem Ort die Polarisation, das optische Spektrum, die spektrale Phase (und damit die zeitliche Einhüllende) und die „absolute Phase“ eines Lichtpulses, so ist der zeitabhängige Verlauf seines elektrischen Feldes dort vollständig bekannt. Auf diese Weise hat man durch die Kontrolle der CEO-Phase die Möglichkeit, das E-Feld auf Zeitskalen weit unterhalb der Periodendauer des Lichtes (in dieser Arbeit erreicht: $\Delta t \approx 10^{-16} \text{ s}$) zu kontrollieren und zu manipulieren.

1.2.2 Dispersion und CEO-Phase

Wie in Abschnitt 1.1.2 diskutiert wurde, propagiert die Trägerwelle eines Lichtpulses (Trägerfrequenz ω_0) in einem dispersiven Medium (Brechungsindex $n(\omega)$) mit der Phasengeschwindigkeit $v_{\text{ph}} = c/n(\omega_0)$. Die zeitliche Einhüllende des Pulses propagiert dagegen mit der Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{gr}} = 1/k_1(\omega_0)$, dabei ist k_1 der Dispersionkoeffizient aus Gleichung (1.5). Aus diesem Grund verändert sich die CEO-Phase eines Lichtpulses stetig, während er durch ein dispersives Material propagiert. Je nach Stärke der Dispersion in unterschiedlichen optischen Materialien variiert die Länge

$$L_{2\pi} = \frac{2\pi}{\omega_0} \cdot \frac{1}{\frac{1}{v_{\text{gr}}(\omega_0)} - \frac{1}{v_{\text{ph}}(\omega_0)}} = \frac{1}{\left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0}}, \quad (1.18)$$

in der sich die CEO-Phase um ganze 2π verändert. Die Länge $L_{2\pi}$ ist in Tabelle 1.1 für die in dieser Arbeit verwendete Materialien notiert.

Man erkennt, dass schon kleine Schwankungen der Materialdicke im optischen Strahlengang eine signifikante Änderung der CEO-Phase bewirken. Dies ist der Grund, warum sich in einem Lasersystem mit nicht ausschließlich plan-parallelen Optiken Strahllage-schwankungen in CEO-Phasenschwankungen übersetzen. Dies passiert beispielsweise im Multipass-Verstärker, der in dieser Arbeit verwendet wurde (vgl. Kap. 3.2).

1.2.3 Selbstphasenmodulation und CEO-Phase

Wenn ein Lichtpuls in einem optischen Medium der Selbstphasenmodulation unterliegt, dann ändert sich auch seine CEO-Phase. Aus Abschnitt 1.1.3 ist die nichtlineare Phase ϕ_{NL} bekannt, die die zeitliche Einhüllende an ihrem Maximum erfährt. Diese Phase addiert sich also entsprechend der Definition von ϕ_0 im Zeitbereich direkt auf die CEO-Phase des betrachteten Pulses:

$$\phi_0 \xrightarrow{\text{SPM}} \phi_0 + \phi_{\text{NL}} \quad (1.19)$$

Aus diesem Grund wandeln sich Intensitätsschwankungen an einer optischen Komponente, in der SPM stattfindet, in CEO-Phasenschwankungen um. Der Kopplungskoeffizient dieser beiden Größen beträgt damit

$$\alpha_{I \rightarrow \phi_0} \left[\frac{\text{rad}}{\%} \right] = \frac{\phi_{\text{NL}}}{100} \quad (1.20)$$

und beschreibt, wie stark sich in der Umgebung einer gegebenen nichtlinearen Phase ϕ_{NL} die CEO-Phase ändert bei einer einprozentigen Intensitätsschwankung. In dieser Arbeit wird zur Pulsverkürzung die Selbstphasenmodulation in einer gasgefüllten Kapillare verwendet, dabei findet der genannte Effekt statt (s. Kap. 3.3). Weiterhin beruht die Möglichkeit, die CEO-Frequenz eines Laserresonators durch seine Pumpleistung zu verändern, auf diesem Kopplungsmechanismus im Gewinn-Kristall (s. Kap. 3.1).

Die Selbstaufteilung hat dagegen keinen Einfluss auf die CEO-Phase eines Lichtpulses. Sie modifiziert den Verlauf der zeitlichen Phase nur an den Rändern des Pulses, nicht im zeitlichen Intensitätsmaximum.

1.2.4 Gouy-Phase und CEO-Phase

Wie in Kapitel 1.1.4 diskutiert wurde, erfährt ein fokussierter, monochromatischer Lichtstrahl der Lichtfrequenz ω in der gaußschen Grundmode beim Durchgang durch den Fokus eine kontinuierliche Phasenverschiebung $\eta(z; \omega) = \arctan(z/z_R(\omega))$ gegenüber einer fiktiven ebenen Welle am selben Ort. Diese Phasenverschiebung summiert sich bei Propagation von $z \ll -z_R$ bis $z \gg z_R$ auf π . Die Hälfte dieser Phasendifferenz ($\pi/2$) wird dabei innerhalb der Rayleigh Zone zwischen $z = -z_R(\omega)$ und $z = z_R(\omega)$ aufgesammelt. Diese Phase $\eta(z; \omega)$ ist als Gouy-Phase bekannt [Gou90].

Propagiert nun ein kurzer Lichtpuls durch einen Fokus, so ändert sich in analoger Weise die Phase der Trägerwelle bezüglich ihrer Einhüllenden, also die CEO-Phase. Da ein kurzer Lichtpuls nicht mit einer einzigen Lichtfrequenz ω beschrieben werden kann, sondern sich aus einem breiten optischen Spektrum zusammensetzt, ist die Phasenänderung des Pulses

bei Propagation durch einen Fokus zwar von obiger Gouy-Phase bestimmt, aber nicht mit ihr identisch.

Für einen ultrakurzen Lichtpuls in der gaußschen Grundmode kann dieser Verlauf der CEO-Phase im Fokusbereich exakt beschrieben werden [Por02, Tri05]. Da für die hierbei relevanten, sehr breiten optischen Spektren die Separation des transversalen Strahlparameters in Gleichung (1.1) nicht mehr möglich ist, wird es allerdings nötig, verschiedene Typen gepulster Gaußstrahlen zu unterscheiden. D. h. die verschiedenfarbigen monochromatischen Gaußstrahlen mit einem Fokus bei $z = 0$ können auf unterschiedliche Weise zu einem polychromatischen Gaußstrahl überlagert werden. Es ist dabei nicht mehr möglich, dass diese verschiedenfarbigen Komponenten alle denselben Strahlradius $w_0(\omega)$ im Fokus und dieselbe Rayleigh-Länge $z_R(\omega) \propto \omega \cdot w_0^2(\omega)$ haben. Drei Spezialfälle, die mit dem Parameter \mathcal{F} unterschieden werden, sind:

1. $w_0(\omega) = \text{const}$: Alle Spektralkomponenten haben im Fokus denselben Strahlradius. Dann sind die Rayleigh-Länge $z_R \propto \omega$ und der Strahlradius im Fernfeld $w_\infty \propto 1/\omega w_0 \propto 1/\omega$ frequenzabhängig. Dieser Strahl kann experimentell durch eine enge Apertur (z. B. Glasfaser) im Strahlengang erzeugt werden. Seine Eigenschaften werden beispielsweise in [Por02] diskutiert. ($\mathcal{F} = +1$)
2. $z_R(\omega) = \text{const}$: Alle Spektralkomponenten haben dieselbe Rayleigh-Länge. Sowohl der Strahlradius im Fokus $w_0 \propto 1/\sqrt{\omega}$ als auch der Strahlradius im Fernfeld $w_\infty \propto 1/\sqrt{\omega}$ sind deshalb frequenzabhängig. Dieser polychromatische Strahl kann stabil in einem optischen Resonator (z. B. Laserresonator) umlaufen, weil der Krümmungsradius der Phasenfronten für alle Spektralkomponenten derselbe ist. Daher wird dieser Strahl auch von idealen Laser-Oszillatoren emittiert. Sein Phasengang in der Fokus-Region entspricht dem eines monochromatischen Gaußstrahls. ($\mathcal{F} = 0$)
3. $w_\infty(\omega) = \text{const}$: Alle Spektralkomponenten haben denselben Strahlradius im Fernfeld. Die Rayleigh-Länge $z_R \propto 1/\omega$ wie auch der Strahlradius im Fokus $w_0 \propto 1/\omega$ sind frequenzabhängig. Dies ist der einzige polychromatische Strahl, dessen optisches Spektrum im Fernfeld an allen transversalen Strahlpositionen dasselbe ist. ($\mathcal{F} = -1$)

Für diese unterschiedlichen polychromatischen Gaußstrahlen ($z_R \propto \omega^{\mathcal{F}}$, $-1 \leq \mathcal{F} \leq 1$) kann der Verlauf der CEO-Phase auf der optischen Achse beim Durchqueren des Fokus beschrieben werden durch

$$\phi_0(z) = \phi_0(0) + \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R(\omega_0)} \right) + \mathcal{F} \frac{z/z_R(\omega_0)}{1 + (z/z_R(\omega_0))^2}. \quad (1.21)$$

Hierbei ist ω_0 die Zentralfrequenz des Lichtpulses und \mathcal{F} der oben beschriebene Parameter zur Unterscheidung der verschiedenen polychromatischen Gaußstrahlen. Für die Berechnung obiger Formel wurde zur Vereinfachung angenommen, dass die Form der zeitlichen Einhüllenden des Lichtpulses bei Propagation durch den Fokus unverändert bleibt [Tri05]. Es sind weiterhin komplexere Abhängigkeiten des transversalen Strahlparameters von der

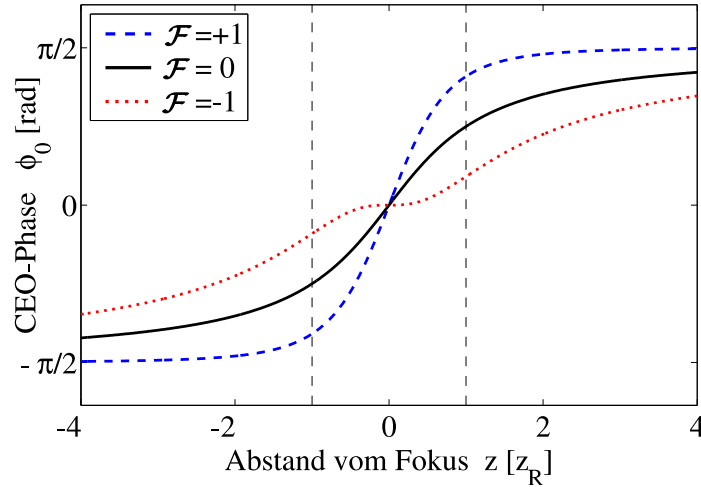


Abbildung 1.4: Änderung der CEO-Phase bei Propagation dreier verschiedener polychromatischer Gaußstrahlen durch den Fokus, nach Gleichung (1.21). Von $z \ll -z_R$ bis $z \gg z_R$ verschiebt sich die CEO-Phase immer um π . Die schnellste Änderung der Phase findet im Rayleigh-Bereich statt (vertikal gestrichelt markiert). Die monochromatische Gouy-Phase $\eta(z) = \arctan(z/z_R)$ ist die durchgezogene Kurve mit $\mathcal{F} = 0$. Die beiden anderen polychromatischen Gaußstrahlen mit unterschiedlichem Parameter \mathcal{F} sind im Text definiert. (z_R ist die Rayleigh-Länge)

Lichtfrequenz möglich, welche z. B. für Laser-Oszillatoren auch schon beobachtet wurden [For03].

Obige Formel (1.21) gilt für gaußsche Strahlen auf der optischen Achse. Entfernt man sich von der optischen Achse, so verändert sich der Verlauf der CEO-Phase [Por02]. Bei realen Lichtstrahlen sind weiterhin Abweichungen von obigem idealen Verhalten zu erwarten, wenn das transversale Strahlprofil sich nicht exakt mit einer Gauß-Funktion beschreiben lässt.

Im Experiment von [Tri05] wurde für einen 5-fs-Lichtpuls direkt aus einem Laser-Resonator eine Entwicklung der CEO-Phase gemessen, die gut mit dem Verlauf der monochromatischen Gouy-Phase ($\mathcal{F} = 0$) übereinstimmt und eine kleine Abweichung in Richtung des Strahls mit $\mathcal{F} = 1$ aufweist. Für einen hochenergetischen 5-fs-Puls, der mit einem Kapillar-Spiegel-Kompressor ähnlich zu dem in Kapitel 2.3 erzeugt wurde, wurde ein Verlauf der CEO-Phase gemessen, der innerhalb der Rayleigh-Zone gut mit der monochromatischen Gouy-Phase übereinstimmt und außerhalb deutliche Abweichungen in Richtung des $\mathcal{F} = 1$ Strahls aufweist [Lin04]. Aus diesem Grund wurde für die Simulation dieser longitudinalen Variation der CEO-Phase in Kapitel 4.2.4 die monochromatische Gouy-Phase $\eta(z, \omega_0)$ verwendet. Weiterhin wird im Folgenden vereinfachend der Begriff der „Gouy-Phase“ verwendet, um die Variation der CEO-Phase bei Propagation durch den Fokus zu bezeichnen.

1.3 Messung der CEO-Phase mit f-2f-Interferometern

Für die experimentelle Bestimmung der CEO-Phase eines Lichtpulses können alle physikalischen Effekte genutzt werden, die von dieser Phase abhängen. In Kapitel 1.4 werden die bis jetzt bekannten Effekte dieser Art kurz vorgestellt, sie beruhen zum großen Teil auf Unterschieden im zeitlichen Feldverlauf von Lichtpulsen unterschiedlicher CEO-Phase.

In diesem Abschnitt wird das Messprinzip des *f-2f-Interferometers* (sprich: „f zu zwei f Interferometer“) vorgestellt. Diese optische Messeinheit ist zur Bestimmung der CEO-Phase bei Lichtpulsen aus einem Laserresonator seit einigen Jahren etabliert (s. Kap. 3.1). Im Rahmen dieser Arbeit wurde die f-2f-Technik weiterhin an zwei Stellen zur Bestimmung der CEO-Phase von verstärkten Pulsen verwendet (Kap. 3.2 und 3.3).

Nach der Erläuterung des f-2f-Messprinzips werden zwei Bauweisen diskutiert, mit denen die relevante spektrale Phasenlage zeitabhängig oder frequenzabhängig detektiert werden kann. Danach wird auf zwei mögliche Fehlerquellen bei der Messung der CEO-Phase mit f-2f-Interferometern eingegangen.

1.3.1 Messprinzip des f-2f-Interferometers

Mit einem f-2f-Interferometer kann die CEO-Phase eines Lichtpulses als spektrale Phase gemessen werden, wenn das optische Spektrum des Pulses mindestens die Breite einer Oktave hat.

Nach Gleichung (1.17) lässt sich jede Frequenzkomponente des elektrischen Feldes in einem optischen Pulszug schreiben als $f_u = f_{\text{CEO}} + u \cdot f_{\text{rep}}$, wobei f_{CEO} nach Gleichung (1.16) die Veränderung der CEO-Phase von aufeinanderfolgenden Lichtpulsen beschreibt. Bei der üblichen optischen Detektion der Lichtintensität $I \sim |E|^2$, bei der nur die entstehenden langsam veränderlichen Differenzfrequenzen $f_u - f_v$ technisch beobachtbar sind, fallen alle Frequenzanteile mit f_{CEO} heraus. Mit einer Detektion, die nichtlinear in der Lichtintensität ist, kann f_{CEO} jedoch unter geeigneten Umständen beobachtet werden.

Im f-2f-Detektionsschema werden nun die Frequenzanteile f_n vom langwelligen Ende des Pulsspektrum frequenzverdoppelt und mit den Frequenzanteilen f_m des kurzwelligen spektralen Randes zur Interferenz gebracht. Das dadurch erzeugte Schwebungssignal beinhaltet folgende Frequenzkomponenten:

$$2 \cdot f_n - f_m = 2(f_{\text{CEO}} + n f_{\text{rep}}) - (f_{\text{CEO}} + m f_{\text{rep}}) = f_{\text{CEO}} + (2n - m) f_{\text{rep}} \stackrel{(2n=m)}{=} f_{\text{CEO}} \quad (1.22)$$

Wenn das optische Spektrum der Lichtpulse ausreichend breit ist um die Bedingung $2n = m$ zu erfüllen, wenn also der frequenzverdoppelte langwellige Rand des Spektrums spektral überlappt mit dem kurzwelligen Rand, dann hat das obige Schwebungssignal eine niederfrequente Komponenten im Radiofrequenzbereich. Die dann erzeugten Frequenzen von f_{CEO} können daher mit der üblichen Messtechnik verarbeitet werden. Ein solches optisches Spektrum, in dem sowohl eine Lichtfrequenz wie auch die doppelte Frequenz auftreten, bezeichnet man als *oktavbreit*⁵.

⁵Für ein „oktavbreites Spektrum“ ist es nicht nötig, dass die spektrale Halbwertsbreite des Inten-

Bei der experimentellen Realisierung solcher f–2f-Interferometer kann aus dem beobachteten Signal im Allgemeinen nur auf die Änderung $\Delta\phi_0$ der CEO-Phase geschlossen werden, und damit die „absolute Phase“ nur bis auf einen unbekanntes, aber zeitlich konstanten Summanden bestimmt werden.

1.3.2 f–2f-Interferometer im Zeit- und Frequenzbereich

Es gibt zwei unterschiedliche Möglichkeiten, die erläuterte f–2f-Interferenz experimentell zu detektieren. Man kann die CEO-Phase im Zeitbereich oder im Frequenzbereich detektieren.

f–2f-Interferometer mit Detektion im Zeitbereich

Beim f–2f-Interferometer im Zeitbereich beschränkt man das optische Spektrum vor der Detektion der Interferenz auf einen schmalen Frequenzbereich. Dann wird bei somit konstanter Lichtfrequenz die zeitliche Modulation der Lichtintensität mit einer Photodiode beobachtet (vgl. Abb. 3.3). Dieses Detektionsschema lässt sich gut im Photonenbild veranschaulichen: Zwei Photonen der Frequenz f und ein Photon der Frequenz $f' \approx 2f$ (jeweils mit der Phase ϕ_0) erzeugen in dem Vierwellenmischprozess der optischen Gleichrichtung (vgl. Gl. 4.2) ein Photon der Frequenz $2 \cdot f - f' \approx 0$ im Radiofrequenzbereich bei der Frequenz f_{CEO} , das genau einmal die Phase ϕ_0 trägt. Die Phasenlage dieser RF-Welle entspricht daher der CEO-Phase und kann mit üblicher Messtechnik einfach bestimmt werden.

Dieses f–2f-Detektionsschema im Zeitbereich eignet sich für Pulszüge mit fast beliebiger CEO-Frequenz, da Photodioden im benötigten Radiofrequenzbereich problemlos verfügbar sind. Lediglich eine Detektion von $f_{\text{CEO}} = 0$, was äquivalent ist zu $f_{\text{CEO}} = f_{\text{rep}}$, erfordert technische Kniffe, weil dann Signalschwankungen nicht mehr erkennbar sind. Ein f–2f-Interferometer im Zeitbereich wurde in dieser Arbeit für die Phasenstabilisierung des Laseroszillators (Kap. 3.1) eingesetzt.

f–2f-Interferometer mit Detektion im Frequenzbereich

Für die Detektion der f–2f-Interferenz im Frequenzbereich wird während einer möglichst kurzen Zeitspanne das gesamte optische Spektrum gemessen. Zwischen dem Ort der Erzeugung des oktavbreiten Spektrums und dem Ort der Interferenz propagiert das Licht im Interferometer in zwei „Armen“ unterschiedlicher Lichtfrequenz (Frequenz f und $2f$). Dabei erfahren diese beiden Lichtfrequenzen aufgrund von Dispersion unterschiedliche Verzögerungen. Nach der Frequenzverdopplung des Lichts mit der Frequenz f erreichen also zwei Lichtpulse derselben Frequenz $2f$ mit einem zeitlichen Abstand (Δt_{f-2f}) das Spektrometer und interferieren dort. Deshalb beobachtet man hinter dem Interferometer

sitätsverlaufs dieses Spektrums eine Oktave beträgt. Das Erreichen der Oktave mit viel schwächeren spektralen Rändern ist ausreichend. Man nennt ein Spektrum vielmehr oktavbreit, sobald es experimentell möglich ist, eine f–2f-Interferenz mit ihm zu beobachten.

dispersives Material	$\Delta t_{f-2f} = \Delta \text{GD}_{f-2f}$ (= $\text{GD}_{500 \text{ nm}} - \text{GD}_{1000 \text{ nm}}$)	λ_{osc} @ $\lambda_{2f} = 500 \text{ nm}$ (für 1 mm Material)
Luft	48,1 fs/m	17,4 μm
Quarzglas	89,9 fs/mm	9,3 nm
BK7 Glas	110,6 fs/mm	7,5 nm
Bariumfluorid	89,5 fs/mm	9,3 nm
SF57 Glas	586,0 fs/mm	1,4 nm
Saphir	143,5 fs/mm	5,8 nm

Tabelle 1.2: Gruppenlaufzeitunterschiede Δt_{f-2f} in verschiedenen dispersiven Materialien zwischen Licht mit 500 nm und mit 1000 nm Wellenlänge, und die Modulationsperiode λ_{osc} der daraus resultierenden Intensitätsmodulation der spektralen f-2f-Interferenz beobachtet bei $\lambda_{2f} = 500 \text{ nm}$.

ein optisches Spektrum, dessen Intensität über die verschiedenen interferierenden Wellenlängen hinweg stark moduliert ist (vgl. Abb. 3.8a). Die spektrale Phase der jeweiligen Wellenlängen (ϕ_f und ϕ_{2f}) im oktavbreiten Eingangsspektrum bestimmt, für welche Wellenlängen konstruktive, und für welche destruktive Interferenz erfolgt. Deswegen kann aus der Lage der Maxima und Minima dieser spektralen Interferenz auf den Phasenunterschied $\phi_{f-2f} := 2\phi_f - \phi_{2f}$ geschlossen werden. Dieser Phasenunterschied entspricht bei einem Puls mit konstantem spektralen Phasenverlauf $\phi(\omega) = \phi_0$ der CEO-Phase des Eingangspulses.

Je nach der Summe der Dispersion zwischen dem Erzeugungsort der Lichtfrequenzen f und 2f und dem Ort ihrer Interferenz ergibt sich ein anderer Gruppenlaufzeitunterschied Δt_{f-2f} zwischen den beiden „Armen“, der die Modulationsperiode dieser spektralen Interferenz bestimmt. In Tabelle 1.2 ist für die in dieser Arbeit verwendeten optischen Materialien der relevante Gruppenlaufzeitunterschied $\Delta t_{f-2f} = \text{GD}(500 \text{ nm}) - \text{GD}(1000 \text{ nm})$ und die resultierende spektrale Modulationsperiode $\lambda_{\text{osc}} = \lambda_{2f}^2 / c \Delta t_{f-2f}$ bei der Beobachtungswellenlänge von λ_{2f} angegeben.

Transformiert man das beobachtete modulierte Interferenzspektrum mit einer Fourier-Transformation aus dem Lichtfrequenzbereich in den Zeitbereich, so erhält man dort einen Peak beim Gruppenlaufzeitunterschied Δt_{f-2f} . Die Phase ϕ_{FT} des komplexen Funktionswertes an diesem Zeitpunkt entspricht der Summe aus der Phase, die aus der unterschiedlichen Phasengeschwindigkeit der beiden Lichtfrequenzen resultiert, und der mit der f-2f-Technik gemessenen CEO-Phase ϕ_{f-2f} des einfallenden Lichtpulses:

$$\phi_{\text{FT}} = \frac{\omega_{2f}}{c} \int_L (n(\omega_{2f}) - n(\omega_f)) dl + \phi_{f-2f} \quad (1.23)$$

Da im Experiment der Brechungsindex und die Dicken der durchlaufenen dispersiven Materialien nicht exakt genug bekannt sind, kann aus der gemessenen Phase ϕ_{FT} die CEO-Phase nur bis auf einen zeitlich konstanten Summanden bestimmt werden.

Das vorgestellte Detektionsschema der f-2f-Interferenz im Frequenzbereich ist geeignet für Pulszüge, deren CEO-Phase sich nur langsam ändert. Wenn dagegen während der

dispersives Material	$L_{2\pi}^{f-2f}$
Luft	10,7 cm
Quarzglas	42,0 μm
BK7 Glas	35,9 μm
Bariumfluorid	53,9 μm
SF57 Glas	9,3 μm
Saphir	26,9 μm

Tabelle 1.3: Dicke $L_{2\pi}^{f-2f}$ verschiedener optischer Materialien, nach deren Durchqueren sich die mit der f–2f–Technik gemessene Phase ϕ_{f-2f} eines Lichtpulses um 2π geändert hat, berechnet nach Formel (1.25). ($\lambda_f = 1000$ nm, $\lambda_{2f} = 500$ nm)

Belichtungszeit des Spektrometers zu viele Lichtpulse mit unterschiedlicher CEO–Phase zur Interferenz beitragen, dann wird die spektrale Modulation ausgewaschen. Damit eignet sich dieses Detektionsschema gut für die Phasenbestimmung von verstärkten Laserpulsen mit vorstabilisierter Phase und Pulswiederholraten im kHz–Bereich. Es wurde in dieser Arbeit zweifach angewandt: zur Phasenstabilisierung der Pulse aus dem Multipass–Verstärker (Kap. 3.2) und zur Phasenmessung bei den ultrakurzen Lichtpulsen hinter dem Kapillar–Spiegel–Kompressor (Kap. 3.3).

1.3.3 f–2f–Interferometer und interne Dispersionsdrift

In diesem Abschnitt wird untersucht, wie ein f–2f–Interferometer darauf reagiert, wenn sich die Dispersion innerhalb des Interferometers ändert. Dies ist hilfreich, um abzuschätzen, ob auf diese Weise ein systematischer Messfehler der im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten f–2f–Interferometer im Frequenzbereich (Kap. 3.2 und 3.3) entstehen kann.

Nach Gleichung (1.23) erzeugt eine Änderung der Weglänge L innerhalb des dispersiven Materials im Interferometer um δL eine zusätzliche Phase $\delta\phi_{\text{FT}} = \omega_{2f}(n(\omega_{2f}) - n(\omega_f))\delta L/c$. Mechanische Schwankungen der optischen Komponenten, oder Strahllageschwankungen können die effektive Dicke der dispersiven Komponenten im Interferometer geringfügig ändern und so diese Veränderung der Weglänge L im dispersiven Material bewirken. In Tabelle 1.3 ist die nötige Dickenänderung $L_{2\pi}^{f-2f}$ von verschiedenen dispersiven Materialien aufgelistet, mit der eine Veränderung der gemessenen Phase ϕ_{FT} um 2π erreicht werden kann.

Mit den Werten aus der genannten Tabelle ergibt sich beispielsweise, dass erst eine transversale Strahllageverschiebung von 3,1 mm auf einem mit $0,5^\circ$ gekeilten Saphir–Substrat die gemessene Phase ϕ_{f-2f} um 2π verschiebt. Da alle in den aufgebauten f–2f–Interferometern verwendeten dispersiven Komponenten einen vergleichbaren oder kleineren Keilwinkel aufweisen, und solche großen Strahllageschwankungen im Fokus auszuschließen sind, kann dieser mögliche Messfehler der f–2f–Interferometer im Frequenzbereich vernachlässigt werden. Aus demselben Grund sind durch die relativ kurzen Luftwege im Interferometer (kürzer als 1 m, vgl. Kap. 3.2.1 und 3.3.1) auch Phasenmessfehler durch Luftdruckschwankungen zu vernachlässigen.

1.3.4 Grenzen des f-2f-Messprinzips

Die ultimative Grenze für CEO-Phasenmessungen mit f-2f-Interferometern liegt im f-2f-Messprinzip selbst begründet. Diese Messmethode misst im Idealfall, also abzüglich des oben diskutierten additiven Werts des Gangunterschieds zwischen den Interferometerarmen, die Größe ϕ_{f-2f} :

$$\phi_{f-2f} := 2 \cdot \phi(\omega_f) - \phi(\omega_{2f}) \approx \phi(\omega_0) =: \phi_0 \quad (1.24)$$

Dieser Messwert entspricht aber nur für glatte spektrale Phasen ($\phi(\omega) = \text{const.}$) exakt dem Wert der CEO-Phase ϕ_0 , der bei der Trägerfrequenz ω_0 definiert ist. Für andere spektrale Phasen, also für nicht exakt Fourier-limitierte Lichtpulse, ergeben sich Abweichungen zwischen dem mit der f-2f-Technik gemessenen Phasenwert ϕ_{f-2f} und der realen CEO-Phase ϕ_0 .

Auf zwei Konsequenzen aus dieser prinzipiellen Limitation des f-2f-Messprinzips soll hier kurz eingegangen werden:

Systematischer Messfehler der f-2f-Technik bei Dispersion

Es verursacht einen systematischen Messfehler, wenn die CEO-Phase eines Lichtpulses durch Dickenänderung eines dispersiven Materials, z. B. durch ein Paar Glaskeile, verändert wird [Dom04, Pau05b]. Die CEO-Phase des Lichtpulses verändert sich dabei nach Gleichung (1.18). Die gemessene f-2f-Phase hingegen ändert sich schon nach der Länge

$$L_{2\pi}^{f-2f} = \frac{2\pi}{\omega_{2f}} \cdot \frac{c}{n(\omega_{2f}) - n(\omega_f)} \quad (1.25)$$

um 2π . Dabei ist n der Brechungsindex des Materials. In Tabelle 1.3 sind die Werte von $L_{2\pi}^{f-2f}$ für die in dieser Arbeit verwendeten Materialien notiert, sie sind identisch⁶ mit den Werten zur Phasenänderung durch Interferometer-interne Dispersionsänderungen aus Abschnitt 1.3.3. Man erkennt in dieser Tabelle, wie sich die Werte deutlich unterscheiden von den in Tabelle 1.1 notierten Werten zur Änderung der CEO-Phase um 2π , beispielsweise beträgt der Unterschied der beiden Werte für Quarzglas ca. 30%.

⁶Die angegebenen Werte für $L_{2\pi}^{f-2f}$ gelten nur exakt für ultrakurze Pulse, deren f-2f-Phase direkt gemessen wird, also für Pulse, die schon ein oktavbreites Spektrum haben. Falls aber zwischen der CEO-Phasenänderung des Lichtpulses mittels Dispersion und der Messung der CEO-Phase mit einem f-2f-Interferometer noch ein nichtlinearer optischer Prozess zur spektralen Verbreiterung des Pulses stattfindet, dann entsteht ein komplexer Zusammenhang zwischen dem spektralen Phasenverlauf des Pulses vor der Verbreiterung und dem danach. Dann können nur noch alle beteiligten nichtlinearen Prozesse für die gegebenen experimentellen Bedingungen numerisch simuliert werden, um herauszufinden wie sich die Dispersion des Eingangspulses exakt in der gemessenen f-2f-Phase niederschlägt. Die angegebenen Werte für $L_{2\pi}^{f-2f}$ können auch in diesem Fall als erste Näherung verwendet werden.

Systematischer Messfehler der f–2f–Technik bei Selbstphasenmodulation und Selbstaufsteilung

Es entsteht außerdem ein systematischer Messfehler, wenn die CEO–Phase eines Lichtpulses verändert wird durch Pulsintensitätsänderung in einem nichtlinearen Medium, in dem Selbstphasenmodulation (SPM) und Selbstaufsteilung stattfinden (vgl. Kap. 1.1.3 und 1.2.3).

Bei *Selbstphasenmodulation* ändert sich die CEO–Phase des Pulses in Abhängigkeit von der Pulsintensität nach den Gleichungen (1.8) und (1.19). Da die SPM einen stark strukturierten spektralen Phasenverlauf im Ausgangspuls erzeugt, lässt sich die Wirkung einer Intensitätsschwankung auf die gemessene f–2f–Phase, also auf die spektralen Phasen an den Rändern des Spektrums bei den Lichtfrequenzen f und 2f, nicht einfach analytisch angeben. Eine numerische Simulation dieses Prozesses mit einem Split–Step–Fourier Algorithmus [Kil05] ergab in der Umgebung der nichtlinearen Phase von $\phi_{\text{NL}} = 3,4 \pi$, wie sie in der verwendeten Kapillare auftritt (Kap. 2.3.2), eine Änderung der f–2f–Phase, die um einen Faktor von 4 kleiner ist als die Änderung der CEO–Phase.

Untersucht man den Einfluss der *Selbstaufsteilung* im Zusammenwirken mit der SPM auf dieselbe Weise numerisch, so ergibt sich für die in der verwendeten Kapillare auftretenden Pulsintensitäten eine Änderung der gemessenen f–2f–Phase in Abhängigkeit von der Pulsintensität, die ca. fünfmal größer ist als die Änderung der CEO–Phase (s. Fußnote 23 in Kap. 3.3.4). Damit dominiert die Selbstaufsteilung in diesem Fall mit ihrem Einfluss auf den systematischen Messfehler des f–2f–Interferometers alle anderen dort auftretenden Effekte.

Trotz der genannten Grenzen des f–2f–Messprinzips ist diese optische Technik momentan noch die einfachste bekannte Methode zur Bestimmung der CEO–Phase von Lichtpulsen über Zeiträume von Millisekunden bis zu Stunden. Atomphysikalische Messmethoden der CEO–Phase verlangen einen wesentlich größeren apparativen Aufwand mit einem Vakuumsystem und Teilchendetektoren. Sie benötigen auch mindestens Integrationszeiten von einigen Sekunden. Mit anderen phasenabhängigen Effekten konnten bis jetzt noch kein mit der f–2f–Technik vergleichbares Signal–zu–Rausch Verhältnis erzielt werden.

1.4 Übersicht phasenabhängiger Effekte

In diesem Abschnitt wird eine kurze Übersicht über die bisher veröffentlichten physikalischen Effekte gegeben, die von der CEO–Phase eines Lichtpulses abhängen. Die vorgestellten Prozesse reagieren damit direkt auf den Verlauf des elektrischen Feldes dieser Lichtpulse, sie mitteln nicht über dessen Schwingungsperiode ($T \sim 3 \text{ fs}$).

Zu Beginn seien kurz die optischen Messverfahren genannt, mit denen die CEO–Phase bestimmt werden kann. Diese optischen Verfahren beruhen auf der Messung der Lichtintensität mit Hilfe einer Photodiode hinter einem mehr oder weniger elaborierten optischen Aufbau. Diese Verfahren sind:

- Die spektrale Interferenz zwischen einem Lichtpuls und einem (möglicherweise län-

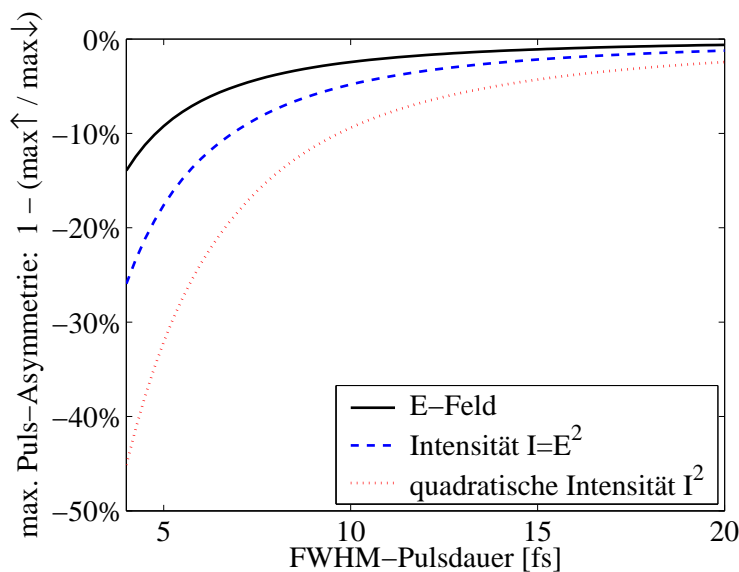


Abbildung 1.5: Richtungs-Asymmetrie eines linear polarisierten kurzen Lichtpulses mit gaußförmigem Spektrum bei verschiedenen Pulsdauern für den maximal asymmetrischen Lichtpuls ($\phi_0 = 0$). Aufgetragen ist das Verhältnis zwischen maximalem E-Feld in positive (\uparrow) und in negative (\downarrow) Richtung, und dasselbe Verhältnis für die schnell oszillierende Momentanintensität I des Lichtpulses und ihr Quadrat I^2 . Man erkennt, wie diese Asymmetrie für ultrakurze Lichtpulse relevant wird.

geren) Referenzpuls bekannter CEO-Phase [Lep95]. Damit kann der Unterschied zwischen den CEO-Phasen der beiden Pulse bestimmt werden.

- Die interferometrische Kreuzkorrelation (zweiter Ordnung) zwischen einem Lichtpuls und dem darauffolgenden Lichtpuls durch Frequenzverdopplung hinter einem Michelson-Interferometer [Xu96]. Hiermit kann die CEO-Phasenänderung $\Delta\phi$ von Puls zu Puls, und daraus die CEO-Frequenz, bestimmt werden.
- Die Selbstreferenzierung eines Lichtpulses durch Interferenz unterschiedlicher Harmonischer, wie z. B. die f - $0f$ -Interferenz [Fuj05a, Fuj05b], die f - $2f$ -Interferenz [Jon00, Hel03], oder die $2f$ - $3f$ -Interferenz [Mor01]. Dieses Messprinzip wurde in Abschnitt 1.3.1 diskutiert.

1.4.1 Spitzenfeldstärke und CEO-Phase

Einige der im Folgenden genannten phasenabhängigen Effekte beruhen auf der räumlichen Asymmetrie des zeitlichen Feldverlaufs ultrakurzer Lichtpulse. In Abbildung 1.5 ist dargestellt, wie stark sich die maximale Feldstärke eines linear polarisierten Lichtpulses in die beiden entgegengesetzte Raumrichtungen unterscheidet. Prozesse, die direkt auf das elektrische Feld von Lichtpuls reagieren, bzw. auf die schnell variierende Momentanintensität oder deren Potenzen, können deshalb auch eine solche Richtungs-Asymmetrie aufweisen.

Diese unterschiedlich großen Spitzenfeldstärken in entgegengesetzte Raumrichtungen können die Phasenabhängigkeit der folgenden Prozesse nur motivieren. Oft ist der gesamte zeitliche Verlauf des elektrischen Lichtfeldes, der sich für Pulse mit unterschiedlicher CEO-Phase unterscheidet, wichtig, um die Details dieser phasenabhängigen Prozesse zu verstehen.

1.4.2 Phasenabhängige Effekte in der Atomphysik

Die meisten bekannten physikalischen Effekte, die von der CEO-Phase abhängen, stammen aus der Atomphysik. Hier sind zu nennen:

Einfachionisation von Edelgas-Atomen

Bei der Einfachionisation von Edelgas-Atomen durch Mehrphotonen-Prozesse mit linear polarisierten ultrakurzen Lichtpulsen hängt zum einen die Gesamtzählrate der in die beiden Polarisationsrichtungen emittierten Photoelektronen von der CEO-Phase der ionisierenden Lichtpulse ab. Zum andern hängen auch die Energiespektren der Photoelektronen, die aus Rekollisionsprozessen stammen, von der CEO-Phase ab [Pau03]. An diesem Prozess wurde zuerst überhaupt eine Abhängigkeit von der CEO-Phase beobachtet [Pau01]. Der Effekt wird genutzt für die Bestimmung der „absoluten Phase“ mit der sog. „Stereo-ATI“ Methode. Auf die Theorie des Prozesses wird in Kapitel 4.2.1 näher eingegangen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dieser Prozess an Neon-Atomen untersucht (Kap. 4.2).

Außerdem wurde bei Argon an den Energiespektren der Photoelektronen eine Interferenz zwischen Elektronen beobachtet, die zu zwei unterschiedlichen Zeitpunkten freigesetzt wurden [Lin05].

Neuerdings wurde auch die schon seit einigen Jahren vorausgesagte CEO-Phasenabhängigkeit [Die00] der Emissionsrichtung von Photoelektronen bei Ionisation mit zirkular polarisierten ultrakurzen Lichtpulsen an Argon-Atomen beobachtet [Smo06].

Nichtsequentielle Doppelionisation von Argon-Atomen

Bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von Argon-Atomen wurde in der Verteilung der Ionenimpulse eine deutliche Phasenabhängigkeit beobachtet [Liu04]. Die Theorie dieses Prozesses wird in Kapitel 4.2.2 diskutiert. Der Effekt konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals auch an Neon-Atomen beobachtet werden (Kap. 4.2).

Erzeugung von Hohen Harmonischen

Fokussiert man einen intensiven ultrakurzen Lichtpuls in ein verdünntes Edelgas, so können die Photoelektronen, nachdem sie im elektrischen Lichtfeld Energie gewonnen haben, mit dem Mutterion rekombinieren und dabei elektromagnetische Strahlung im XUV-Bereich (~ 100 eV Photonenenergie) emittieren, die sogenannten „Hohen Harmonischen“. Das Frequenzspektrum dieser Strahlung hängt im mittleren Energiebereich und besonders auch im hochenergetischen *cut-off* Bereich von der CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses

ab [Bal03a]. Mit passend gewählter CEO-Phase können auch isolierte XUV-Pulse mit bis zu 250 as Dauer ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) erzeugt werden [Kie04].

Photo-Dissoziation von D_2 -Molekülen

Bei der Photo-Dissoziation von D_2 -Molekülen beeinflusst die CEO-Phase des Lichtpulses die Emissionsrichtung der D^+ -Fragmente, die durch Rekollision eines Photoelektrons entstehen [Kli06].

1.4.3 Andere phasenabhängigen Effekte

Folgende CEO-phasenabhängigen Effekte außerhalb der Atomphysik sind bekannt:

Interferenz der Ein- und Zweiphotonenabsorption im Halbleiter

In Halbleitern mit passender Bandlücke, können ultrakurze Pulse mit oktavbreitem Spektrum auf zwei unterschiedlichen Wegen Elektronen vom Valenzband ins Leitungsband heben: durch Absorption eines einzigen kurzwelligigen Photons, oder durch Zweiphotonenabsorption im langwelligen Spektralbereich. Diese beiden möglichen Prozesse sind kohärent und führen zu Interferenzeffekten im erzeugten Photostrom.

Die Abhängigkeit des Photostroms im Halbleiter LT-GaAs von der CEO-Phase der Lichtpulse wurde gemessen [Müc04, For04] und konnte auch schon zur CEO-Phasenstabilisierung eines Laseroszillators verwendet werden [Roo05].

Feld-induzierte Photoemission von Elektronen aus einer Gold-Oberfläche

Die Stärke der Feld-induzierten Photoemission von Elektronen aus einer Gold-Kathode hängt von der CEO-Phase der Lichtpulse ab. Dieser Effekt wurde mit einer Lock-In-Technik an phasenstabilisierten Lichtpulsen beobachtet [Dom04, Apo04].

Erzeugung von THz-Strahlung im Luftplasma

Erzeugt man mit einem intensiven ultrakurzen Lichtpulse ein Plasma in Luft, so emittiert dieses kurzzeitig Strahlung im THz-Bereich. Der Feldverlauf dieses THz-Strahlungspulses hängt von der CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses ab. Durch Messung der Stärke und Polarität der THz-Strahlung kann die „absolute Phase“ der Lichtpulse bestimmt werden. Die Theorie dieses Effektes wird in Kapitel 4.1.1 ausführlicher diskutiert. Der Effekt konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals experimentell beobachtet werden [Kre06] (s. Kap. 4.1).

Kapitel 2

Aufbau des Lasersystems

Um die beabsichtigten phasenabhängigen Experimente durchführen zu können, sind intensive ultrakurze Lichtpulse mit kontrollierter CEO-Phase nötig. Da ein Lasersystem zur Erzeugung dieser Pulse nicht als Ganzes kommerziell erhältlich ist, wurde es im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebaut.

Ausgangspunkt hierfür war ein kommerzielles Titan-Saphir Multipass-Verstärkersystem. Es wurde ein neuer Seed-Oszillator für diesen Verstärker konstruiert (Abschnitt 2.1), der ultrakurze Lichtpulse erzeugt und der die CEO-Phasenstabilisierung dieser Pulse erlaubt. Mit dem Multipass-Verstärker werden diese Lichtpulse auf die für die Experimente nötigen Pulsenergien gebracht. Dazu wurde der vorhandene Verstärker für die Verwendung mit dem neuen Seed-Oszillator angepasst (Abschnitt 2.2). Weiterhin wurde ein neuer Kapillar-Spiegel-Kompressor aufgebaut (Abschnitt 2.3), um die Pulse des Multipass-Verstärkers auf eine Dauer von nur 6,5 fs zu verkürzen, wie sie zur Beobachtung CEO-phasenabhängiger Effekte notwendig ist. Die Phasenstabilisierung dieses gesamten Lasersystems wird in Kapitel 3 erläutert werden.

2.1 Aufbau des Titan-Saphir Seed-Oszillators

Wegen seiner extrem großen Verstärkungsbandbreite von 100 THz — dies entspricht einer Bandbreite von 217 nm um die Zentralwellenlänge von 800 nm — ist Titan-dotierter Saphir das am weitesten verbreitete Gewinn-Material in Ultrakurzpuls-Laser-Oszillatoren und wird hauptsächlich in der Forschung verwendet. Mit einem solchen Laser wurden auch die momentan kürzesten Lichtpulse (4,2 fs) direkt aus einem Oszillator erzeugt [Bin05].

Um den aufgebauten Laser-Oszillator im weiteren Verlauf sowohl zum Seeden des Multipass-Verstärkers zu nutzen als auch seine CEO-Phase stabilisieren zu können, mussten folgende Anforderungen an ihn gestellt werden: Die Repetitionsrate sollte bei etwa 80 MHz liegen, die spektrale Bandbreite des erzeugten Lichtpulses sollte 40 nm nicht unterschreiten und die Durchschnittsleistung musste über 450 mW liegen. Weiterhin sollte die Gruppenlaufzeit des Resonators feinabstimmbar sein. Eine genaue Begründung dieser Anforderungen erfolgt in den jeweiligen Abschnitten.

2.1.1 Pumpgeometrie

Als aktives Laser-Medium wird ein Titan-dotierter Saphir-Kristall¹ mit einer Dotierkonzentration von 0,25% verwendet. Der Kristall wird mit Hilfe eines Peltier-Elements auf einer wassergekühlten Wärmesenke und eines elektronischen Regelkreises auf einer Temperatur von 12 °C gehalten.

Der Titan-Saphir Kristall wird bei einer Wellenlänge von 532 nm optisch gepumpt mit einem frequenzverdoppelten Neodym-Vanadat Dauerstrich-Laser². Der optische Kopf dieses kommerziellen Pumpasers ist wassergekühlt und wird bei einer Ausgangsleistung von 8 W betrieben.

Der nahezu beugungsbegrenzte Pumpstrahl ($M^2 < 1.1$) durchläuft zuerst einen akusto-optischen Modulator (AOM in Abb. 2.1), der für die spätere Phasenstabilisierung nötig ist (s. Kap. 3.1). Danach wird er mit einer achromatischen Linse durch den für diese Wellenlänge transparenten Pumpspiegel hindurch in den Titan-Saphir Kristall fokussiert, der im Brewster-Winkel getroffen wird. Der $1/e^2$ -Fokusbereich in der sagittalen Ebene des Kristalls beträgt hierbei 25,6 μm und es werden 5,5 W des Pumplichts im Kristall absorbiert.

Mit der verwendeten Pumpleistung von 8 W erhält man einen Ausgangsstrahl des Titan-Saphir Lasers, dessen transversales Strahlprofil sich sehr gut mit einer Gaußmode beschreiben lässt. Wird die Pumpleistung allerdings weiter erhöht, so ergeben sich Probleme durch die thermische Linse im Saphir-Kristall, die eine Kühlung des Kristalls auf eine Temperatur unterhalb des Taupunktes der Umgebungsluft erforderlich machen würden. Bei Verzicht auf diese aufwendige Kühlung lässt sich der Laser dann nur mit einem transversalen Strahlprofil zum Pulsen bringen, das sich am besten mit zwei untereinander liegenden Ellipsen beschreiben lässt. Zum Seeden des Multipass-Verstärkers muss der Laser-Oszillator aber in der transversalen Grundmode laufen, daher bleibt die maximal mögliche Pumpleistung auf 8 W beschränkt.

2.1.2 Laser-Resonator

Der Resonator des Seed-Oszillator ist in linearer Standard-z-Anordnung aufgebaut und ist in Abb. 2.1 schematisch dargestellt. Zwei Hohlspiegel fokussieren die transversale Resonator-Mode im Gewinn-Kristall auf einen sagittalen $1/e^2$ -Modendurchmesser von 28 μm . Die einfache Gesamtlänge des Resonators ist mit 1,95 m so gewählt, dass sich eine Puls-wiederholrate f_{rep} von 77 MHz ergibt und das Armlängen-Verhältnis ist mit 1 : 2,1 gut geeignet für die Kerrlinsen-Modenkopplung.

Ein Endspiegel des Resonators ist als Auskoppelspiegel mit 20% Transmission ausgelegt und mit einem Winkel von 0,5° gekeilt, um störende Reflexe von der Rückseite zu vermeiden. Um den durch diesen Keil erzeugten räumlichen *Chirp* auszugleichen, durchläuft der

¹äußere Abmessungen des Kristalls im Brewster Schnitt: 5 mm x 5 mm x 2 mm (geometrischer Weg entlang des Laserstrahls: 2 mm)

²Verdi-V10 (maximale Ausgangsleistung 10 W), Firma Coherent, USA

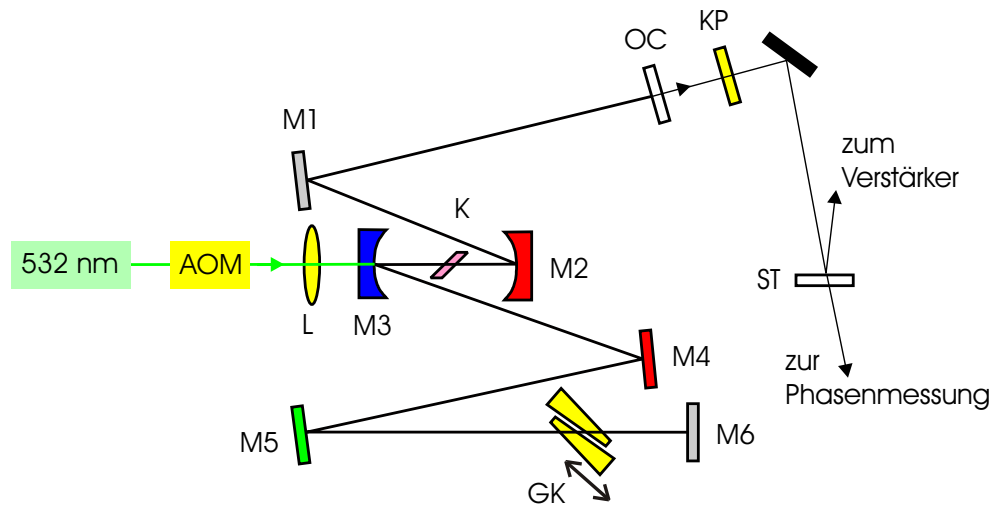


Abbildung 2.1: Aufbau des Seed-Laseroszillators. (AOM: akusto-optischer Modulator; L: achromatische Linse ($f = 70$ mm); K: Titan-Saphir Kristall; M1 und M6: plane dielektrische Spiegel; M2 und M3: konkave disperse Spiegel ($f = 50$ mm); M4 und M5: plane disperse Spiegel; GK: Keile aus Quarzglas; OC: Auskoppelspiegel ($T = 20\%$); KP: gekeiltes Plättchen aus Quarzglas; ST: Strahlteiler 25:75)

ausgekoppelte Laserstrahl direkt hinter dem Auskoppler ein gleich gekeiltes und umgekehrt montiertes Quarzglasplättchen.

Um einen möglichst stabilen Pulsbetrieb des Lasers zu ermöglichen, ist der gesamte Aufbau inklusive des Pumplasers und der Phasenstabilisierung des Oszillators auf einer massiven und wassergekühlten Lochrasterplatte³ aus Invar-Aluminium montiert und von einer luftdichten Kiste umgeben.

2.1.3 Dispersion und Modenkopplung

Der aufgebaute Laser-Oszillator läuft im kontinuierlich modengekoppelten Betriebszustand, wobei die Modenkopplung durch eine Kerr-Linse im Gewinn-Kristall erreicht wird (zur Kerr-Linsen Modenkopplung s. [Spe91, Kär98]). Das Zusammenspiel von negativer Gruppenlaufzeitdispersion im gesamten Resonator und Selbstphasenmodulation im Saphir bestimmt die Pulsformung, daher läuft annähernd ein optisches Soliton im Resonator um (zur solitären Pulsformung s. [Bra91]).

Um die für den Puls-Betrieb des Lasers nötige negative Gruppenlaufzeitdispersion des gesamten Resonators zu erreichen, wird die positive Dispersion des Saphir-Kristalls und der Glaskeile im Resonator überkompensiert durch die negative Dispersion der gechirpten Resonatorspiegel (zu gechirpten Spiegeln s. [Kär01]). Die Glaskeile sind hierbei für die Feinabstimmung der gesamten Gruppenlaufzeitdispersion verwendbar, werden aber ebenfalls in der Phasenstabilisierung (s. Kap. 3.1) für die Feinabstimmung der Gruppenlaufzeit

³Abmessungen: 49 cm x 89 cm, Dicke 5 cm

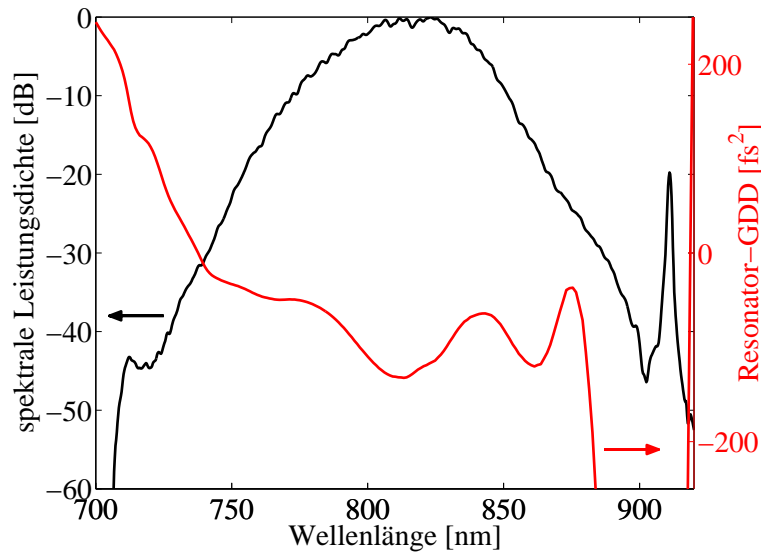


Abbildung 2.2: Gruppenlaufzeitdispersion (GDD) des Laserresonators und optisches Spektrum des Ausgangspulses in logarithmischer Darstellung. (Die kleinen Modulationen am Maximum des Spektrums sind ein Messartefakt. Zur Berechnung der Resonator-GDD wurde die Dispersion der in Abb. 2.1 genannten dispersiven Spiegel sowie von 4 m Luft, 2 mm Quarzglas und 4 mm Saphir addiert.)

benötigt. Die genauen Dispersionseigenschaften der in Abbildung 2.1 genannten dispersiven Resonator-Spiegel sind in [Dra04] beschrieben⁴.

In Abbildung 2.2 ist die Gruppenlaufzeitdispersion eines gesamten Resonatorumlaufs dargestellt, sie setzt sich zusammen aus der Dispersion des Saphir-Kristalls, der Glaskeile, der Luft im Resonator und der dispersiven Spiegel. Dabei wurden die dispersiven Spiegel so ausgewählt, dass eine Gesamtdispersion erreicht wird, die über einen möglichst großen Wellenlängenbereich auf einem konstanten negativen Wert — hier ca. -100 fs^2 — bleibt.

An dem Ausgangsspektrum des Lasers in linearer Darstellung (Abb. 2.3) kann man erkennen, dass sich der Intensitätsverlauf $I(\omega)$ dieses Spektrums im Wesentlichen noch mit

$$I(\omega) = \text{sech}^2(\omega - \omega_0) \quad (2.1)$$

beschreiben lässt, wie man es für ein optisches Soliton mit der Zentralfrequenz ω_0 erwartet. Allerdings ist auch schon deutlich die Tendenz zu einer Verbreiterung in der spektralen Spitze zu erkennen. Man befindet sich hier am Übergang zwischen der Pulsformung durch ein reines optisches Soliton und der durch ein sog. *dispersion-managed soliton* [Che99], für solche noch kürzeren Pulse wird ein rechteckiger Verlauf des Spektrums erwartet.

⁴genaue Bezeichnung der dispersiven Spiegel in Abbildung 2.1: M1 und M6: Typ *HR800*, M2 und M4: Typ *Felix*, M3: Typ *Herriott*, M5: Typ *Grün*. Die Typen *Grün*, *Felix* und *Herriott* sind Eigenentwicklungen der Arbeitsgruppe, der Typ *HR800* ist ein dielektrischer Spiegel mit geringer Dispersion und wird von der Firma Layertec (Deutschland) vertrieben.

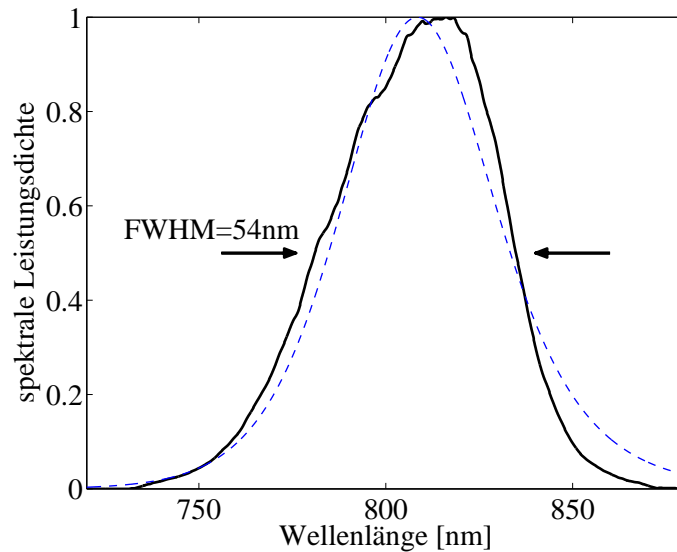


Abbildung 2.3: optisches Spektrum des Laser-Oszillators in linearer Darstellung und (gestrichelt) ein *least square fit* mit dem Sech-Spektrum nach Formel (2.1). Die gewichtete Zentralwellenlänge dieses gemessenen Spektrums liegt bei 805 nm und die Pulsdauer beträgt im Fourier-Limit 20 fs.

Die Transmissions-Verluste liegen für alle im Resonator verwendeten Spiegeln zwischen 720 nm und 910 nm jeweils deutlich unter 1%. Daher ist die Breite des Ausgangsspektrums nicht durch diese Reflexionsbandbreiten beschränkt sondern wird durch den oben genannten Pulsformungsmechanismus bestimmt, und somit durch den Verlauf der Dispersionskurve in Abbildung 2.2. Man erkennt dort, wie der Hauptteil des Spektrums in der „Dispersionsmulde“ um 810 nm zu liegen kommt. Weiterhin sieht man um 712 nm und 911 nm deutlich die sogenannten *Kelly sidebands* [Bra93], die von einem spektralen Interferenzeffekt durch den periodischen Wechsel der Dispersionseigenschaften verursacht werden, die ein Lichtpuls beim Umlauf im Resonator erfährt.

2.1.4 Ergebnisse

Zusammenfassend erzeugt der im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebaute Laser-Oszillator Lichtpulse mit folgenden Eigenschaften: Die Pulswiederholrate beträgt 77 MHz und die Zentralwellenlänge liegt je nach Justage zwischen 805 nm und 815 nm. Das optische Spektrum hat eine volle Halbwertsbreite von 40 nm bis 58 nm (s. Abb. 2.3). Dieses Spektrum unterstützt (im Fourier-Limit, s. Kap. 1.1.1) eine Pulsdauer von 19 fs bis 22 fs. Da die genaue Pulsform für das Seeden des Multipass-Verstärkers nicht von Belang ist, wurde auf eine Messung der wirklichen Pulsdauer durch eine Autokorrelation oder SPIDER (vgl. Kap. 2.3.3) verzichtet. Die mittlere Ausgangsleistung des Lasers beträgt 430 mW bis 530 mW, was einer Pulsenergie von 5 nJ bis 6 nJ entspricht. Von dieser Leistung stehen 75% zum Seeden des Verstärkers zur Verfügung, das übrige Licht wird für die Phasenstabilisie-

rung des Oszillators benötigt (s. Kap. 3.1).

Dieser Laser-Oszillator liefert unter normalen Laborbedingungen über einen langen Zeitraum gleichbleibend stabile Laserpulse: Normalerweise ist eine wöchentliche Justage der Endspiegel und eine monatliche Anpassung des Hohlspiegel-Abstandes und der Kristallposition für die Kerrlinsen-Modenkopplung ausreichend.

2.2 Multipass-Verstärker

Die Laserpulse aus dem oben beschriebenen Seed-Oszillator werden in einem kommerziellen Multipass-Verstärkersystem⁵ nachverstärkt, um sie auf eine Pulsenergie zu bringen, die für die durchgeführten Experimente ausreicht.

Hierzu wird der Laserstrahl aus dem neu aufgebauten Seed-Oszillator an Stelle des mit dem Verstärkersystem mitgelieferten Seed-Oszillators⁶ in den Multipass-Verstärker eingekoppelt. Um einen stabilen Betrieb des Verstärkers zu gewährleisten, ist hierbei eine Leistung von mehr als 350 mW nötig, was die genannte Anforderung an die Ausgangsleistung des Seed-Oszillators begründet (vgl. Kap. 2.1). Dieser Laserstrahl durchläuft zuerst ein Teleskop aus zwei achromatischen Sammellinsen⁷, um den transversalen Strahlparameter auf den für den Verstärker erforderlichen Strahldurchmesser anzupassen. Danach folgt eine Halbwellenplatte und ein Periskop, um die für den optischen Isolator nötige Polarisationsrichtung einzustellen.

Der Multipass-Verstärker besteht aus drei aufeinanderfolgenden Stufen. In der ersten Stufe wird der Puls durch einen Glasblock und dispersive Spiegel zeitlich gedehnt (Puls-Stretcher), in der zweiten wird er dann in neun Durchgängen durch einen optisch gepumpten Titan-Saphir Kristall verstärkt, und in der dritten Stufe wird er mit einem Prismen-Kompressor wieder zeitlich komprimiert (Puls-Kompressor). Weiterhin reduziert eine Pockels-Zelle zwischen dem vierten und dem fünften Durchlauf durch das Verstärkungsmedium die Pulswiederholrate auf 2,8 kHz.

Eine genauere Beschreibung des Aufbaus dieses Multipass-Verstärkers soll im Rahmen dieser Arbeit nicht erfolgen, es wird hierzu verwiesen auf [Zro05]. Es sind nur zwei relevante Änderungen gegenüber dem üblichen kommerziellen Aufbau zu nennen: Zum einen musste ein spektrales Filter zur Vergrößerung der spektralen Breite innerhalb des Puls-Stretchers entfernt werden, um die Seed-Leistung zu erhöhen. Und zum anderen wurde die Triggerung der schon erwähnten Pockelszelle im Rahmen der Phasenstabilisierung des Lasersystems modifiziert (s. Kapitel 3.2).

Im Folgenden wird noch auf zwei speziellere Probleme im Zusammenhang mit dem Multipass-Verstärker eingegangen, die die am Anfang des Kapitels genannte Anforderung an das Spektrum des Seed-Oszillator begründen.

⁵Titan-Saphir Multipass-Verstärkersystem „Femtopower Compact Pro“ der Firma Femtolasers, Wien, und als gepulsten Pumplaser den gütegeschalteten Nd:YAG-Laser „Corona“ der Firma Coherent.

⁶Titan-Saphir Laseroszillator „Femtsource Scientific Pro“ mit dispersiven Resonatorspiegeln, Firma Femtolasers, Wien. (Pulsdauer ~ 10 fs, spektrale Bandbreite ~ 120 nm FWHM, Zentralwellenlänge 795 nm)

⁷Brennweite $f = 80$ mm

2.2.1 Zerstörschwelle des Verstärker-Kristalls

Wenn ein optischer Lichtpuls mit ursprünglich flacher spektraler Phase (d. h. Fourier-limitiert) durch ein dispersives Medium propagiert, so akkumuliert er dabei einen spektralen Phasenverlauf, den sog. *Chirp*, der zu einer zeitlichen Verlängerung des Pulses führt (vgl. Kap. 1.1.2).

Das Prinzip der *Chirped Pulse Amplification* (CPA) des verwendeten Verstärkersystems beruht darauf, den nahezu Fourier-limitierten Eingangspuls aus dem Laser-Oszillator mit anfänglich einigen Femtosekunden Dauer durch den Durchgang durch ein stark dispersives Medium⁸ zeitlich auf einige Pikosekunden zu dehnen. Der solchermaßen verlängerte Puls hat auch eine dementsprechend geringere Spitzenintensität⁹ im Fokus innerhalb des Verstärkungskristalls, und dort kann er nun bis knapp unter die Zerstörschwelle dieses Kristalls verstärkt werden.

Weil der neu aufgebaute Seed-Oszillator ein höchstens halb so breites optisches Spektrum liefert, wie der für diesen Verstärker vorgesehene Seed-Oszillator, gilt es darauf zu achten, in diesem Fall nicht die Zerstörschwelle des Verstärkerkristalls zu überschreiten und den Kristall an der verwendeten Stelle unbrauchbar zu machen.

Wie man an Gleichung (1.6) sieht, resultiert ein doppelt so langer Eingangspuls bei gleichbleibender Dispersion in einem halb so langen Puls nach dem Puls-Stretcher. Hierbei muss berücksichtigt werden, dass eine Zerstörung des Verstärker-Kristalls nur beim letzten Durchgang des Pulses durch den Kristall zu erwarten wäre, da dort der Puls am stärksten ist. Zu diesem Zeitpunkt wurde das Spektrum des Eingangspulses aber schon wesentlich eingeeengt (s. folgenden Abschnitt). Für die Berechnung der kritischen Intensität im Verstärkerkristall ist also die Fourier-limitierte Pulsdauer des schon verstärkten Pulses zu verwenden.

Es wird sich im folgenden Abschnitt zeigen, dass das weniger als halb so breite optische Spektrum des neuen Seed-Oszillators im Verstärker-Kristall an der relevanten Stelle nur zu einer um ca. 50% höheren Spitzenintensität führt. Insgesamt hat sich herausgestellt, dass eine spektrale Bandbreite des Seed-Oszillators von mindestens 40 nm FWHM ausreichend ist, um eine Beschädigung des Verstärker-Kristalls in diesem Aufbau zu vermeiden. Der neue Seed-Oszillator kann also mit dem vorhandenen Verstärkersystem zusammen verwendet werden, ohne dass der Puls-Stretcher und damit auch der Puls-Kompressor modifiziert werden müssen.

2.2.2 Spektrale Einengung im Verstärkungsprozess

Während des Verstärkungsprozesses im Titan-Saphir Kristall findet — wie schon erwähnt — eine spektrale Einengung (*gain narrowing*) des verstärkten Pulses statt. Dies resultiert aus dem spektralen Verlauf des Verstärkungsfaktors in diesem Material.

⁸zweifacher Durchgang durch 5 cm SF57 Glas, Gesamt-GDD = 22300 fs² bei 800 nm

⁹maximal resultierende Spitzenleistung im Verstärker-Kristall: $E_{\text{Puls}}/\tau_{\text{Puls}} = 300 \text{ MW}$. Da der Strahlradius beim letzten Durchgang durch den Kristall nicht bekannt ist, kann kein Wert für die Spitzenintensität angegeben werden.

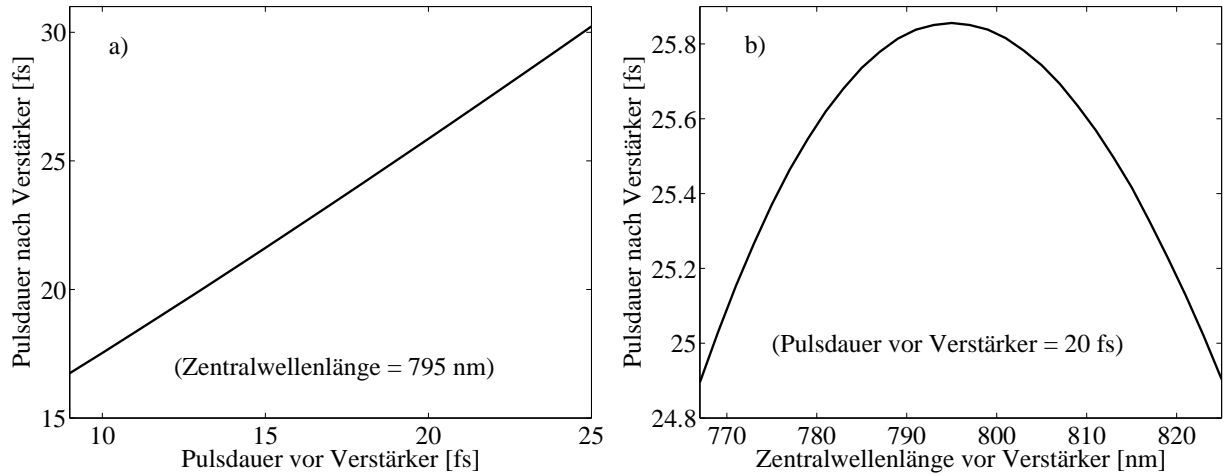


Abbildung 2.4: Numerische Simulation der Pulsverlängerung durch spektralen Einengung (*gain narrowing*) eines Lichtpulses mit Sech-Spektrum bei der Verstärkung in einem Titan-Saphir Kristall ($\omega_0 = 2\pi c/795$ nm und $\gamma = 2\pi \cdot 130$ THz, s. Gl. 2.2). Die Pulsenergie wird um einen konstanten Faktor von 230000 verstärkt. **a)** Abhängigkeit der Fourier-limitierten Pulsdauer des Ausgangspulses von der Fourier-limitierten Pulsdauer des Eingangspulses bei konstanter Zentralwellenlänge. **b)** Abhängigkeit der Fourier-limitierten Ausgangspulsdauer von der Zentralwellenlänge des Eingangspulses bei konstanter Pulsdauer des Eingangspulses.

Der Verstärkungsfaktor g des homogen verbreiterten Lasermaterials Titan-Saphir wird üblicherweise durch ein Lorentz-Profil ([Dem93], Formel 3.8) angenähert:

$$g(\omega) = \frac{\gamma/2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2} \quad (2.2)$$

Dabei sind $\omega_0 = 2\pi c/795$ nm die Zentralfrequenz und $\gamma = 2\pi \cdot 98$ THz die volle Halbwertsbreite des Verstärkungsprofils [Sve98].

Berechnet man mit Formel (2.2) die spektrale Einengung eines Sech-Pulses durch die Verstärkung in Titan-Saphir, so erhält man eine Abhängigkeit der Fourier-limitierten Ausgangspulsdauer sowohl von der Fourier-limitierten Pulsdauer des Eingangspulses sowie von dessen Zentralwellenlänge (s. Abb. 2.4). Der Verstärkungsfaktor der Pulsenergie wurde hierbei konstant auf einem Wert von 230000 gehalten, wie er dem experimentellen Aufbau entspricht. In der Abbildung ist zu erkennen, dass eine Verdopplung der Fourier-limitierten Eingangspulsdauer von 10 fs auf 20 fs lediglich eine Verlängerung des Fourier-Limits des Ausgangspulses um 50% bedeutet. Weiterhin sieht man, dass sich die vom Verstärkungsmaximum weg verschobene Zentralwellenlänge des neuen Seed-Oszillators von 810 nm positiv, d. h. verkürzend für die Fourier-limitierte Pulsdauer, auswirkt.

Bei dieser numerischen Berechnung wurde eine größere Verstärkungsbandbreite von $\gamma = 2\pi \cdot 130$ THz angenommen, denn dieser Wert reproduziert am besten die experimentell beobachtete spektrale Einengung, wie sie in Abbildung 2.5 dargestellt ist. Das kann damit erklärt werden, dass diese breitere Lorentz-Kurve in dem hier relevanten Bereich eng um die

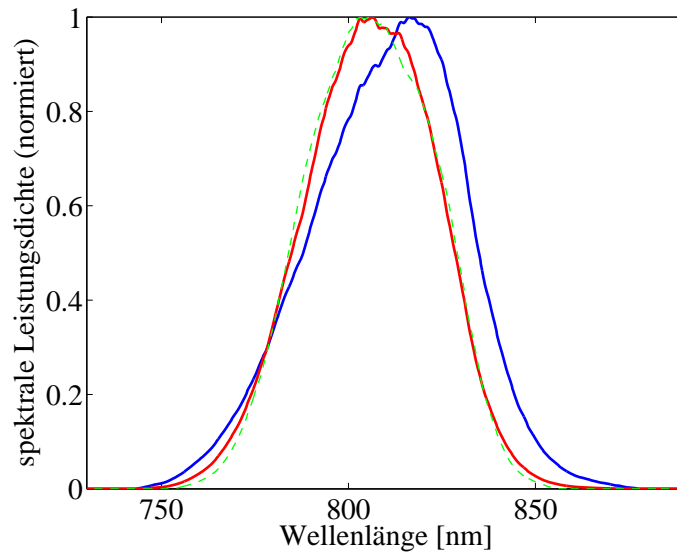


Abbildung 2.5: gemessene optische Spektren direkt vor (rechte Kurve, blau) und nach (linke Kurve, rot) dem Multipass-Verstärker. Eine numerische Simulation der spektralen Einengung (grün gestrichelte Kurve, Parameter wie in Abb. 2.4) beschreibt den Prozess sehr gut. Die spektrale Bandbreite nach der Verstärkung beträgt 44 nm FWHM bei einer Zentralwellenlänge von 806 nm.

Zentralwellenlänge herum den exakten Verlauf des Verstärkungsfaktors besser nachbildet als der oben genannte Literaturwert. Der Literaturwert reproduziert vor allem gut die Halbwertsbreite des gesamten Verlaufs.

In Abbildung 2.5 ist die Messung des optischen Spektrums direkt vor der Verstärkung und direkt danach dargestellt. Man erkennt, wie das Spektrum durch den Verstärkungsprozess sowohl eingengt, als auch zur Zentralwellenlänge von Titan-Saphir (795 nm) hin verschoben wird. Die zusätzlich dargestellte Simulationskurve beschreibt den Prozess der spektralen Einengung des gemessenen Eingangsspektrums gut.

2.2.3 Ergebnisse

Letztendlich erzeugt das Multipass-Verstärkersystem, wenn es zusammen mit dem neu aufgebauten Seed-Oszillator verwendet wird, Lichtpulse mit folgenden Eigenschaften: Die Pulswiederholrate beträgt 2,8 kHz und die mittlere Ausgangsleistung hinter dem Puls-Kompressor des Verstärkers beträgt 1,4 W, das entspricht einer Pulsenergie von 500 μJ . Das Ausgangsspektrum hat eine spektrale Bandbreite von 44 nm FWHM bei einer Zentralwellenlänge von 806 nm (s. Abb. 2.5), dieses Spektrum unterstützt eine Fourier-limitierte Pulsdauer von 27 fs. Die Pulsdauer wurde mit einer interferometerischen Autokorrelation gemessen (Abb. 2.6). Diese Messung ergibt eine Pulsdauer von 28 fs, d. h. der Ausgangspuls ist nahezu Fourier-limitiert.

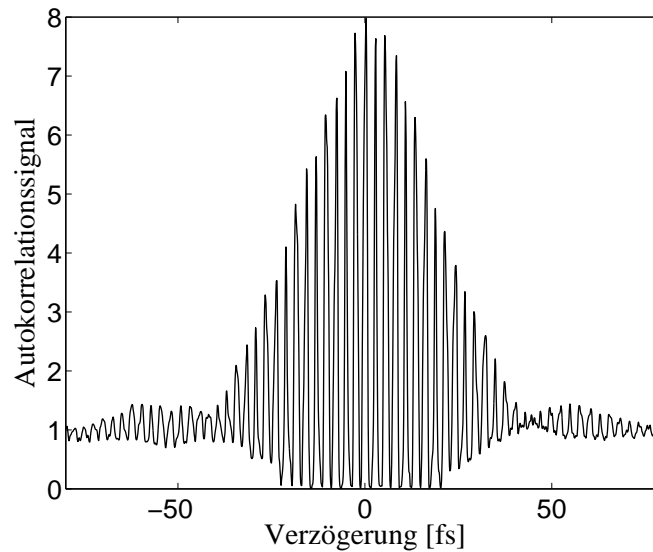


Abbildung 2.6: Messung der interferometerischen Autokorrelation des Lichtpulses aus dem Multipass–Verstärker. Es befinden sich 17 Interferenz–Modulationen innerhalb der vollen Halbwertsbreite. Eine numerische Simulation der Autokorrelationsfunktion im Fourier–Limit mit dem gemessenen Ausgangsspektrum aus Abb. 2.5 ergibt eine Halbwertsbreite von 16,5 Modulationen. Damit lässt sich auf eine nahezu Fourier–limitierte Pulsdauer von 28 fs schließen.

2.3 Kapillar–Spiegel–Kompressor

Die Pulsdauer der hochenergetischen Lichtpulse aus dem Multipass–Verstärker wird in dem folgenden Kapillar–Spiegel–Kompressor auf ca. 6,5 fs verringert. Diese ultrakurze Pulsdauer ist nötig, um Abhängigkeiten von der CEO–Phase in den durchgeführten Experimenten beobachten zu können.

Prinzipiell basiert das verwendete Pulscompressionsverfahren [Nis96, Nis98] darauf, durch nichtlineare optische Effekte das optische Spektrum des Pulses zu verbreitern. Danach wird die Phase dieses breiteren Spektrums mit Hilfe von dispersiven Spiegeln wieder geglättet, damit wird der Puls zeitlich komprimiert. Die nichtlinearen optischen Effekte (hauptsächlich Selbstphasenmodulation, SPM) finden hierbei innerhalb einer Kapillare aus Glas statt, die mit einem Edelgas geflutet wird.

Es ist seit kurzem auch ein Verfahren zur spektralen Verbreiterung durch ein Weißlicht–Filament in einem Edelgas bekannt, das ohne Kapillare auskommt [Sti06]. In dieser Arbeit wurde das schon länger etablierte Verfahren verwendet.

Im folgenden wird der experimentelle Aufbau und eine Simulation der nichtlinearen Prozesse bei der spektralen Verbreiterung erläutert. Erste Ionisations–Experimente unter Verwendung der Kapillare wurden schon in der Vorgänger–Arbeit [Zro05] durchgeführt, die dort erreichte Pulsdauer betrug vermutlich 8 fs. Der Spiegel–Kompressor und die Astigmatismus–Kompensation vor der Kapillare wurden im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebaut.

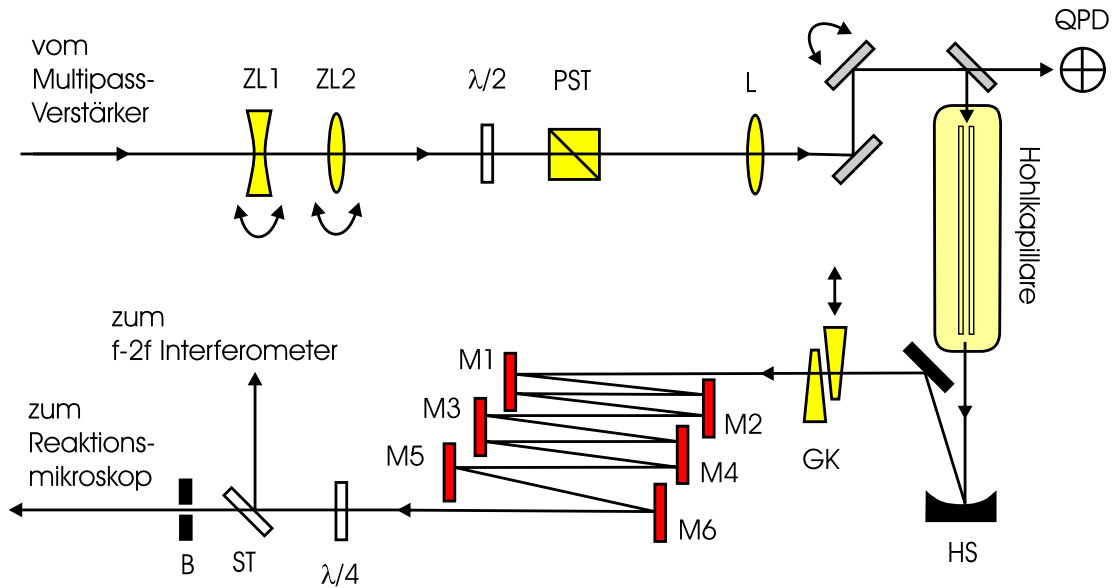


Abbildung 2.7: Aufbau des Kapillar-Spiegel-Kompressors samt Astigmatismus-Kompensation (ZL1 und ZL2) vor der Kapillare. (ZL1: plankonkave Zylinderlinse mit $f = -2$ m, ZL2: plankonvexe Zylinderlinse mit $f = 2$ m, $\lambda/2$: Halbwellenplatte, PST: polarisierender Strahlteiler-Würfel, Sammellinse mit $f = 1$ m, QPD: 4-Quadranten-Photodiode, HS: konvexer Silber-Hohlspiegel mit $f = 500$ mm, GK: Paar Quarzglas-Keile (Gesamtdicke 3,0 mm), M1 - M6: dispersive Spiegel [M1 und M4: „M251“, M3 und M6: „M281“, M2 und M5: „M282“], $\lambda/4$: achromatische Viertelwellenplatte, ST: breitbandiger dispersionsarmer 50:50 Strahlteiler, B: Irisblende)

2.3.1 Aufbau

In Abbildung 2.7 ist der Aufbau des Kapillar-Spiegel-Kompressors schematisch dargestellt.

Der leicht astigmatische Ausgangsstrahl des Multipass-Verstärkers wird zuerst durch ein Teleskop mit zwei drehbar gelagerten, langbrennweitigen Zylinderlinsen so eingestellt, dass sowohl der Strahldurchmesser als auch der Divergenzwinkel des Strahls in beiden transversalen Richtungen identisch ist. Das wird dadurch erreicht, dass die tangentialen Brennweiten f_t der beiden Zylinderlinsen durch Änderung des Einfallswinkels α gemäß der Formel [Mes99]

$$\begin{aligned} f_t &= \frac{f_{0,t}}{\cos \alpha} \geq f_{0,t} \\ f_s &= f_{0,s} \cdot \cos \alpha \leq f_{0,s} \end{aligned} \quad (2.3)$$

variabel vergrößert werden, hierbei sind $f_{0,t}$ und $f_{0,s}$ die nominellen Brennweiten in tangentialer und sagittaler Richtung bei senkrechtem Durchgang durch die Linse. Die sagittale Brechkraft $1/f_s$ dieser Zylinderlinsen bleibt unverändert Null. So kann der tangentiale Strahlparameter auf den Wert des (unveränderten) sagittalen Strahlparameters gebracht werden. Um dies zu erreichen, kann der stark abgeschwächte Strahl in der Umgebung seines Fokus mit einer CCD-Kamera abgebildet werden.

Weiterhin wird durch eine drehbare Halbwellenplatte und einen polarisierenden Strahlteilerwürfel eine exakte lineare Polarisation des Lichtes sichergestellt. Mit dieser Anordnung kann die Pulsenergie außerdem falls nötig abgeschwächt werden.

Mit einer langbrennweitigen Linse wird der Lichtstrahl nun durch ein Eintrittsfenster¹⁰ hindurch in die Kapillare fokussiert, die in einem gasgefüllten Glaszylinder gelagert ist. Der durch den letzten dabei getroffenen dielektrischen Spiegel transmittierte Lichtstrahl wird hierbei auf eine 4-Quadranten-Photodiode fokussiert. Deren Signal wird dazu genutzt mit einem motorisierten Spiegelhalter den vorigen Spiegel so nachzuführen, dass der sich langsam seitlich bewegende Ausgangsstrahl des Multipass-Verstärkers immer genau die Öffnung der Kapillare trifft.

Die genutzte Kapillare aus Quarzglas hat einen Innenradius von $r = 100 \mu\text{m}$ und eine Länge von 82 cm. Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurde sie mit Neongas unter einem Absolutdruck von 4,5 bar befüllt. Mit dem linear polarisierten Einfallsstrahl wird die Hybridmode EH_{11} [Mar64] dieser Kapillare angeregt, sie hat den größten Überlapp mit einer Gaußmode des Strahlradius $w = 0,644 \cdot r \approx 64 \mu\text{m}$ [Nis98], auf diesen $1/e^2$ -Strahlradius wird deshalb auch der Eingangsstrahl fokussiert. Damit wird im Experiment typischerweise eine Transmission von mehr als 50% der Leistung durch die gasgefüllte Kapillare erreicht. Die deutlich unter dem theoretischen Limit¹¹ von 88% liegende Transmission lässt sich erklären durch Einkoppelverluste aufgrund des transversalen Modenprofils des Multipass-Verstärkers¹² und der durch den Lichtstrahl beschädigten Eintrittsfacette der Kapillare, sowie durch Propagationsverluste durch Imperfektionen im Innern der Kapillare wie z. B. Kratzer, Verunreinigungen oder Radiusvariationen. Neon wurde als nichtlineares Medium ausgewählt, weil damit noch bei hohen Gasdrücken ein stabilerer Betrieb der spektralen Verbreiterung möglich ist [Zro05].

In Abbildung 2.9 ist das optische Spektrum gezeigt, das bei den genannten experimentellen Parametern hinter der Kapillare gemessen wurde. Das Spektrum unterstützt eine Fourier-limitierte Pulsdauer von 4,9 fs und hat eine „gewichtete“ Zentralwellenlänge¹³ von 760 nm. Im folgenden Abschnitt wird dieses Spektrum genauer diskutiert werden.

Der Lichtstrahl mit dem auf solche Weise erzeugten breiten Spektrum wird danach mit einem Silberhohlspiegel kollimiert. Dann durchläuft er ein Paar Glaskeile¹⁴ und wird an mehreren dispersiven Spiegeln¹⁵ reflektiert (s. Abb. 2.7). Diese dispersiven Spiegel haben den Zweck, die positive Dispersion (vgl. Kap. 1.1.2), die der Lichtstrahl auf seinem Weg von der Kapillare zum Experiment erfährt, zu kompensieren. Die Glaskeile werden hierbei für die Feineinstellung der Dispersion verwendet. In Abbildung 2.8 ist die Dispersion

¹⁰Eintrittsfenster und Austrittsfenster aus Quarzglas, Dicke 0,5 mm, mit Antireflexionsbeschichtung

¹¹theoretische Einkoppeleffizienz von 98% [Nis98] und Dämpfung im Wellenleiter um 10,7% (vgl. Fußnote 20)

¹²spezifizierter Wert des kommerziellen Multipass-Verstärkersystems: $M^2 < 2$

¹³„gewichtete“ Zentralwellenlänge meint den Schwerpunkt der spektralen Leistungsdichte, auf einer Frequenzachse gemessen

¹⁴Paar Quarzglas Keile, Länge 30 mm, Höhe 10 mm, dünnste Dicke: 0,2 mm, Keilwinkel 2,8 Grad, genutzte Gesamtdicke: 3,0 mm in Transmission.

¹⁵Spiegelsatz „BBCOMP“ der Firma Femtolasers (Wien), Details in Abb. 2.7

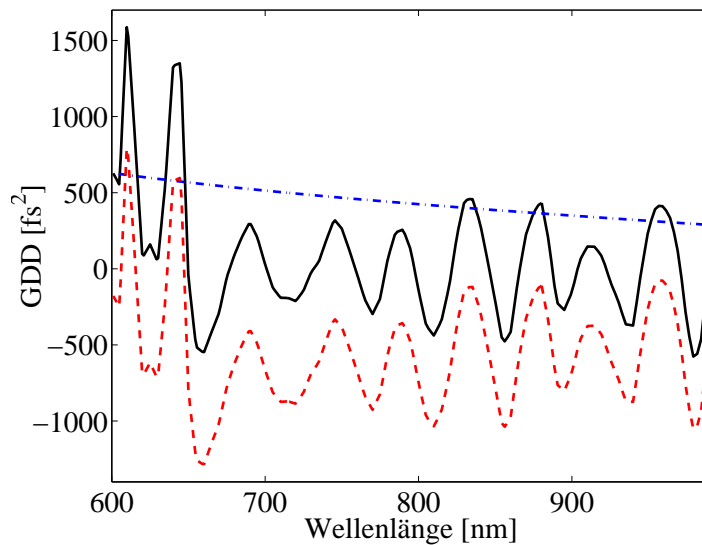


Abbildung 2.8: Gruppenlaufzeitdispersionen (GDD) im Kapillar-Spiegel-Kompressor: negative Dispersion der dispersiven Spiegel (rote gestrichelte Linie), zu kompensierende positive Materialdispersion (blaue strich-punktierte Linie, Summe aus 8 m Luft und 7,2 mm Quarzglas) und die erzielte Gesamtdispersion des Kompressors (schwarze durchgezogene Linie, Summe der beiden vorigen Dispersionen und $+180 \text{ fs}^2$, Diskussion im Text).

der dispersiven Spiegel, die zu kompensierende Materialdispersion sowie die resultierende Gesamtdispersion dargestellt.

Zuletzt durchläuft der Lichtstrahl eine achromatische Viertelwellenplatte, um eine leichte Elliptizität der Polarisation auszugleichen, die durch die Spannungs-Doppelbrechung im Ein- und Austrittsfenster zur Kapillare entstanden ist. Mit einem breitbandigen Strahlteiler¹⁶ wird dann ein Teil des Lichtstrahls abgezweigt und in einem f - $2f$ -Interferometer (s. Kap. 3.3) für die Messung der CEO-Phase verwandt. Das übrige Licht durchläuft eine Irisblende, mit der die Pulsenergie ein wenig abgeschwächt werden kann, und kommt dann mit einem Strahldurchmesser zwischen 4 mm und 12 mm an der Vakuumkammer des Reaktionsmikroskops an. Dabei ist der optische Weg zwischen der Kapillare und dem Reaktionsmikroskop durchgängig von einem nahezu luftdichten Plexiglas-Gehäuse umgeben, um die Luftbewegung entlang des Lichtstrahls zu verringern.

Alternativ zum Strahlteiler kann der Strahl auch ein breitbandiges Mach-Zehnder-Interferometer durchlaufen, das für die Messung der Autokorrelation genutzt wird. In diesem Fall wird das Licht am zweiten Ausgang des Interferometers für das f - $2f$ -Interferometer verwendet.

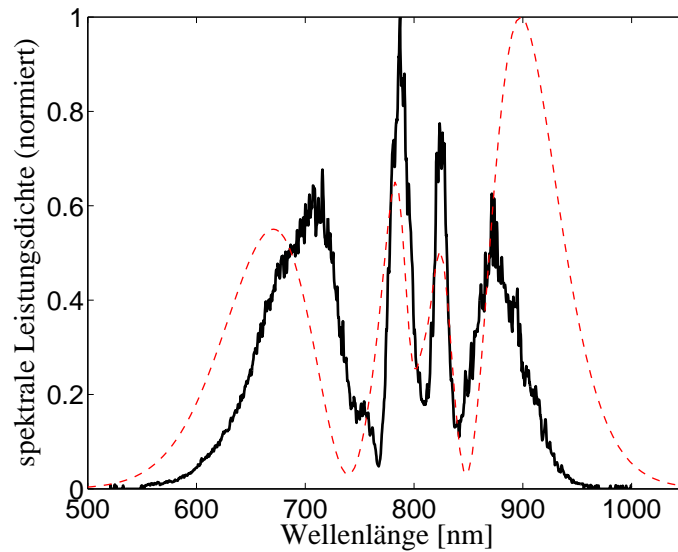


Abbildung 2.9: Optisches Spektrum, das in der Kapillare erzeugt wurde (durchgezogene Linie) und das Ergebnis einer Simulation der nichtlinearen Prozesse in der Kapillare (gestrichelte Linie). Das gemessene Spektrum unterstützt eine Fourier-limitierte Pulsdauer von 4,9 fs und hat eine „gewichtete“ Zentralwellenlänge von 760 nm. Beide Kurven zeigen denselben qualitativen Verlauf. (Diskussion im Text)

2.3.2 Spektrale Verbreiterung in der Kapillare

In Abbildung 2.9 ist außer dem hinter der Kapillare gemessenen optischen Spektrum das Ergebnis einer Simulation der nichtlinearen Prozesse in der Kapillare zu sehen. Hierzu wurde die Propagation eines Fourier-limitierten Sech-Eingangspulses einer Dauer von 28 fs und einer Zentralwellenlänge von 806 nm (vgl. Abb. 2.5 und 2.6) entlang der Kapillare mittels eines Split-Step-Fourier Algorithmus [Agr95, Kil05] numerisch simuliert. Dabei wurden die nichtlinearen Effekte der Selbstphasenmodulation¹⁷ und der Selbstaufsteilung (*self-steepening*) berücksichtigt, außerdem die Gruppenlaufzeitdispersion¹⁸ des Neongases, die Gruppenlaufzeitdispersion der Kapillare¹⁹ und die wellenlängenabhängige Dämpfung²⁰ in der Kapillare. Während dieser Propagation akkumuliert der Puls insgesamt eine nicht-lineare Phase von $3,4\pi$ (vgl. Kap. 1.2.3).

Die Simulation reproduziert den qualitativen Verlauf des gemessenen Spektrums, wenn

¹⁶eigene Entwicklung von Uwe Morgner

¹⁷einfallende Pulsenergie: $200 \mu\text{J}$, nichtlinearer Brechungsindex von Neon: $n_2 = 7,5 \cdot 10^{-25} \text{ m}^2/(\text{W bar})$ [Leh85, Nis96], effektive Modenfläche in der Kapillare: $A_{\text{eff}} = \pi(0,65 \cdot 100 \mu\text{m})^2 = 0,0133 \text{ mm}^2$

¹⁸GDD(Ne, 800 nm) = $2,0 \text{ fs}^2/(\text{m bar})$ (aus den Sellmeier-Koeffizienten in [Dal60])

¹⁹Wellenleiterdispersion: $\text{GDD} = -2,89 c/\omega^3 r^2 \approx -6,6 \text{ fs}^2/\text{m} @ 800 \text{ nm}$ (mit $\text{GDD} = 1/2 \cdot \partial^2 \beta_{1,1}(\omega)/\partial \omega^2$ aus Formel 22 in [Mar64])

²⁰Dämpfungskonstante für die EH_{11} -Mode im dielektrischen Hohlleiter aus Quarzglas ($n = 1,45$): $\alpha = 0,216 \lambda^2/r^3 \approx 0,138/\text{m}$ (Formel 22 in [Mar64]). D. h. 10,7 % Verlust in der verwendeten Kapillare (82 cm).

auch vor allem in den spektralen Rändern deutliche Unterschiede erkennbar sind. Ohne Berücksichtigung der Selbstaufteilung wäre mit der Simulation nur eine wesentlich geringere Übereinstimmung erreichbar. Für die verbleibende Diskrepanz der Simulation an den spektralen Rändern müssen die in dieser Simulation vernachlässigten Prozesse verantwortlich gemacht werden: die Vierwellenmischung, jegliche Plasma-Prozesse sowie zeitverzögerte Prozesse.

Diese in der Simulation vernachlässigten Effekte könnten ebenfalls verantwortlich sein für den nicht vollständig verstandenen Phasengang des Ausgangsspektrums der Kapillare (s. Abb. 2.8). Um im Experiment einen kurzen Puls zu erhalten, müssen vom Kompressor $+180 \text{ fs}^2$ mehr an Gruppenlaufzeitdispersion kompensiert werden als mit den bekannten Dispersionseigenschaften der verwendeten Materialien und Spiegel zu erwarten wäre. Dieses Verhalten wird auch bei ähnlichen Kapillar-Spiegel-Kompressoren in anderen Arbeitsgruppen beobachtet²¹ und ist bis jetzt ungeklärt.

2.3.3 Pulscharakterisierung mit SPIDER und Autokorrelation

Der Ausgangspuls des Kapillar-Spiegel-Kompressors wurde genau charakterisiert mit Hilfe einer SPIDER-Messung [Iac99] und der Messung einer interferometrischen Autokorrelation zweiter Ordnung [Kel96]. Für das Messprinzip dieser beider Verfahren zur Pulscharakterisierung wird auf die genannte Literatur verwiesen.

Die SPIDER-Messung wurde durchgeführt mit einem transportablen Aufbau, der im Rahmen von [Rit04] und [Bin06] aufgebaut wurde. Die Messgröße einer SPIDER-Messung ist im Wesentlichen die Gruppenlaufzeit (GD) der verschiedenen Spektralkomponenten eines Lichtpulses. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abbildung 2.10a dargestellt, sein Verlauf stimmt im Wesentlichen mit dem Verlauf überein, der aus den Spiegeldaten und Materialeigenschaften des Kapillar-Spiegel-Kompressors berechnet wurde (s. Abb. 2.8). In Abbildung 2.10b ist dann die aus dieser Gruppenlaufzeit resultierende zeitliche Pulsform dargestellt. Sie hat eine Halbwertsbreite von 6,5 fs und zeigt einen Satellitenpuls mit ca. 20% der Spitzenintensität. Diese Pulsdauer kommt sehr nahe heran an die ebenfalls dargestellte theoretisch mögliche Pulsdauer von 6,3 fs, die mit der Gruppenlaufzeit des Kompressors aus Abbildung 2.8 erreicht würde. Es muss noch gesagt werden, dass eine SPIDER-Messung bei solchen stark modulierten Spektren sehr schwierig ist, da an den Stellen der spektralen Lücken dann als Messartefakt ein Sprung in der Gruppenlaufzeit auftreten kann. Doch weil die dargestellte Messung sehr gut mit den bekannten Dispersionseigenschaften der verwendeten Spiegel übereinstimmt, ist die daraus abgeleitete Pulsdauer von 6,5 fs verlässlich.

Eine zweite und unabhängige Pulscharakterisierung wurde mit Hilfe einer interferometrischen Autokorrelation durchgeführt. Hierfür wurde ein dispersionsarmes Mach-Zehnder Interferometer [Erg06] und die Zweiphotonen-Absorption in einer Galliumphosphid-Photodiode²² verwendet.

²¹Auskunft der Firma Femtolasers, Wien

²²Bandlücke von GaP: $\Delta = 2,26 \text{ eV} \approx hc/550 \text{ nm}$ (Firma Hamamatsu, Art.-Nr. G1961)

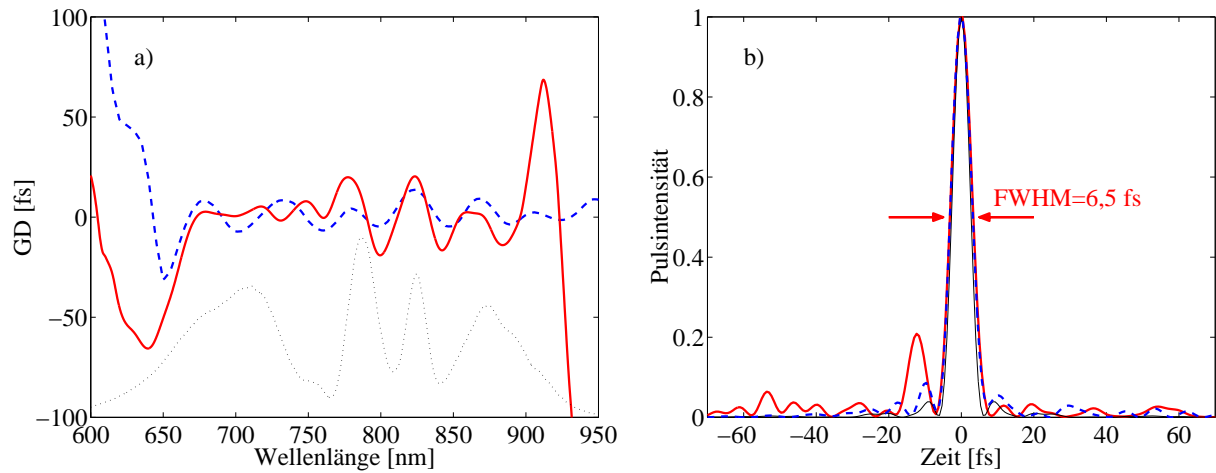


Abbildung 2.10: **a)** mit SPIDER gemessene Gruppenlaufzeit (GD) der Spektralkomponenten des Pulses nach dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (durchgezogen rot), berechnete Gruppenlaufzeit aus Abb. 2.8 (gestrichelt blau) und das Ausgangsspektrum der Kapillare aus Abb. 2.9 (dünn punktiert). **b)** zeitliche Pulsform, die sich aus den gemessenen Gruppenlaufzeiten ergibt: aus der SPIDER-Messung (FWHM = 6,5 fs, durchgezogen rot), aus der berechneten Gruppenlaufzeit (FWHM = 6,3 fs, gestrichelt blau) und das Fourier-Limit des in a) dargestellten Spektrums (FWHM = 5,5 fs). Hierbei wurde immer nur das Spektrum zwischen 600 nm und 950 nm berücksichtigt, das aufgrund seiner Gruppenlaufzeit zum Puls beitragen kann.

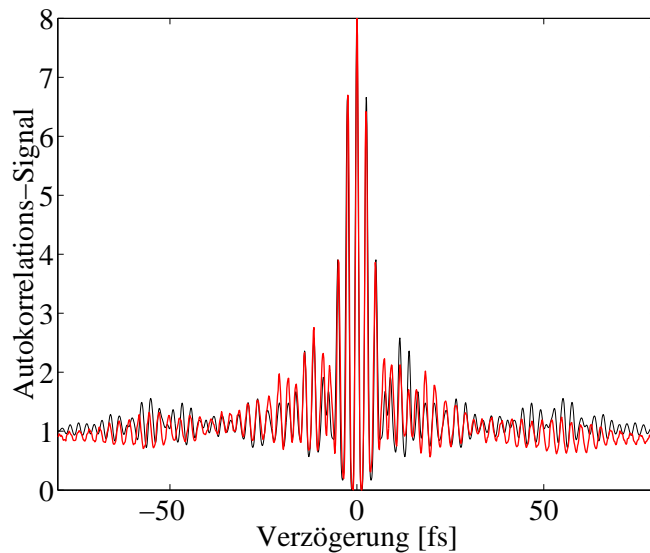


Abbildung 2.11: Messung der interferometrischen Autokorrelation des Pulses hinter dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (rot) und simulierte Autokorrelation des Pulses der SPIDER-Messung aus Abb. 2.10b (dünn schwarz). Die gute Übereinstimmung verifiziert eine Pulsdauer von 6,5 fs.

Das Ergebnis der Autokorrelations-Messung ist in Abbildung 2.11 dargestellt. Es stimmt sehr gut überein mit der ebenfalls dort abgebildeten Simulation der Autokorrelation des Pulses, wie ihn die SPIDER-Messung ergibt. Diese gute Übereinstimmung ist eine weitere Bestätigung der kurzen Pulsdauer von 6,5 fs.

2.3.4 Ergebnisse

Zusammenfassend produziert das im Rahmen dieser Arbeit angepasste und teilweise neu aufgebaute Lasersystem Lichtpulse mit folgenden Spezifikationen: Die nutzbare Pulsenergie beträgt bis zu 150 μJ bei einer Pulswiederholrate von 2,8 kHz. Das entspricht einer maximal möglichen Spitzenleistung von 23 GW und bei einer für das Reaktionsmikroskop typischen Fokussierung auf einen Durchmesser von 6 μm einer Spitzenintensität von 80 PW/cm^2 . Die Polarisation kann exakt linear eingestellt werden, was für die durchgeführten atomphysikalischen Experimente von großer Bedeutung ist. Die Pulsdauer wurde mit SPIDER und einer interferometrischen Autokorrelation genau charakterisiert: sie beträgt 6,5 fs. Zu diesem Puls trägt ein optisches Spektrum zwischen 600 nm und 950 nm bei, mit einer typischen „gewichteten“ Zentralwellenlänge²³ von 762 nm. Diese ultrakurze Pulsdauer ermöglicht es, Experimente durchzuführen, die von der CEO-Phase abhängen.

²³s. Fußnote 13

Kapitel 3

Phasenstabilisierung des Lasersystems

Um phasenabhängige Experimente durchführen zu können, wurde die CEO-Phase des Lasersystems aus Kapitel 2 im Rahmen dieser Arbeit stabilisiert. Dabei ist eine Stabilisierung in mehreren Stufen notwendig, um intensive ultrakurze Lichtpulse mit kontrollierter CEO-Phase zu erhalten. Diese setzt sich zusammen aus der Phasenstabilisierung des Seed-Oszillators (Abschnitt 3.1), der Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers (Abschnitt 3.2) und der Phasenmessung der ultrakurzen Pulse (Abschnitt 3.3) hinter dem Kapillar-Spiegel-Kompressor.

3.1 Phasenstabilisierung des Seed-Oszillators

Ausgangspunkt für einen phasenstabilen Multipass-Verstärker muss ein Seed-Oszillator mit kontrollierter CEO-Phase sein. Denn läuft ein Laser-Oszillator ohne aktive Phasenstabilisierung, so schwankt seine CEO-Frequenz je nach Stabilität des Aufbaus mehr oder weniger um einen mittleren Wert. Die starke Verringerung der Pulswiederholrate durch periodisches Herausgreifen einzelner Oszillator-Pulse für den Verstärker (*pulse picking*) würde dann zu einem Pulszug führen, in dem die CEO-Phasen der Einzelpulse irregulär verteilt wären.

Die Phasenstabilisierung des Seed-Oszillators erfolgt derart, dass dessen Licht zuerst in einer mikrostrukturierten Glasfaser spektral auf eine Oktave verbreitert wird, und dann die CEO-Phase mittels eines optischen Aufbaus, eines $f-2f$ -Interferometers im Zeitbereich (zu dessen Funktionsprinzip s. Kap. 1.3.2), gemessen wird [Jon00, Hel03]. Danach ermittelt ein elektronischer Regelkreis die Abweichung dieses Signals vom Sollwert und korrigiert diese Abweichung dadurch, dass mit Hilfe eines akusto-optischen Modulators (AOM) die Pumpleistung des Seed-Lasers angepasst wird. Der hierfür verwendete optische und elektronische Aufbau ist kommerziell erhältlich¹ und ist ausgelegt für eine Pulswiederholrate

¹„Femtosecond Phase Stabilization Unit XPS800“ der Firma Menlo Systems GmbH, Martinsried (München)

zwischen 70 MHz und 90 MHz. Deswegen wurde der hierbei verwendete Seed-Oszillator mit einer Pulswiederholrate von 77 MHz aufgebaut (vgl. Kap. 2.1).

Ziel dieser ersten Stufe der Phasenstabilisierung ist es, die CEO-Frequenz phasenstarr auf einem Viertel der Pulswiederholrate zu halten. Dann hat jeder vierte Puls des Seed-Oszillators dieselbe CEO-Phase.

Alternativ zu der in dieser Arbeit angewandten f - $2f$ -Methode der CEO-Phasen Bestimmung ist seit einiger Zeit auch eine zweite Methode bekannt [Fuj05a, Fuj05b]. Diese basiert auf Selbstphasenmodulation und Differenzfrequenzerzeugung in einem PPLN-Kristall² und nachfolgender Detektion der CEO-Frequenz im nah-infraroten Spektralbereich, was einem f - $0f$ Interferometer entspricht. Da hierzu aber ein aufwendiges, nahezu oktavbreites Oszillator-Spektrum nötig ist, was im folgenden Verstärkungsprozess sofort wieder eingengt würde, wurde diese f - $0f$ Phasenstabilisierung hier nicht verwendet.

3.1.1 Aufbau

In Abbildung 3.1 ist der optische Aufbau des verwendeten f - $2f$ -Interferometers dargestellt. Er ist zusammen mit dem Laser-Oszillator und dessen Pumplaser auf einer wassergekühlten Lochrasterplatte montiert und von einer Metallkiste umgeben. Ein Teil des Lichts (125 mW) aus dem Seed-Oszillator (vgl. Kap. 2.1) wird mit einer exakt positionierbaren asphärischen Linse in eine mikrostrukturierte Glasfaser hinein fokussiert. Deren Strukturierung bewirkt einen sehr kleinen Modendurchmesser in der Faser und damit hohe Spitzenintensitäten. Deswegen findet dort eine Vielzahl von nichtlinearen optischen Prozessen statt, die das Spektrum des Lichtpulses während der Propagation stark verbreitern [Gae02, Ree03, Rus03]. Mit einer Halbwellenplatte vor dieser Faser kann die lineare Polarisation des Lichtes so gedreht werden, dass unter Ausnutzung kleiner Abweichungen des Faserkerns von der Rotationssymmetrie, ein möglichst breites Spektrum erzielt wird. Ein typisches Spektrum, wie man es hinter der Faser beobachtet, ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Im Normalfall können ca. 30% der Leistung durch die Faser gekoppelt werden.

Nach der Faser wird das Licht mit einem Mikroskop-Objektiv kollimiert und fällt auf einen dichroitischen Strahlteiler. Dort wird der langwellige Teil des verbreiterten Spektrums transmittiert, ein Farbglasfilter reduziert das Spektrum dieses Lichts danach weiter auf den langwelligen Teil mit einer Wellenlänge um 1040 nm. Dieser Lichtstrahl wird in einen Kaliumniobat-Kristall fokussiert und dort frequenzverdoppelt auf eine Wellenlänge um 520 nm; zur Phasen Anpassung kann man die Polarisationsrichtung vor dem Kristall mit einer Halbwellenplatte drehen. Der andere Teil des Spektrums, der ebenfalls grünes Licht mit einer Wellenlänge um 520 nm enthält, wird an dem schon genannten dichroitischen Strahlteiler reflektiert. Mit zwei Glaskeilen kann seine Verzögerung so eingestellt werden, dass dieser Puls zeitgleich mit dem frequenzverdoppelten Lichtpuls an einem polarisierenden Strahlteiler ankommt. Mit einer Halbwellenplatte vor den Glaskeilen kann man erreichen, dass der Hauptteil beider an diesem Strahlteiler ankommenden grünen Lichtstrahlen den Strahlteiler in derselben Richtung verlässt.

²PPLN: periodisch gepolter Magnesium-dotierter Lithiumniobat-Kristall (PP-MgO:LN)

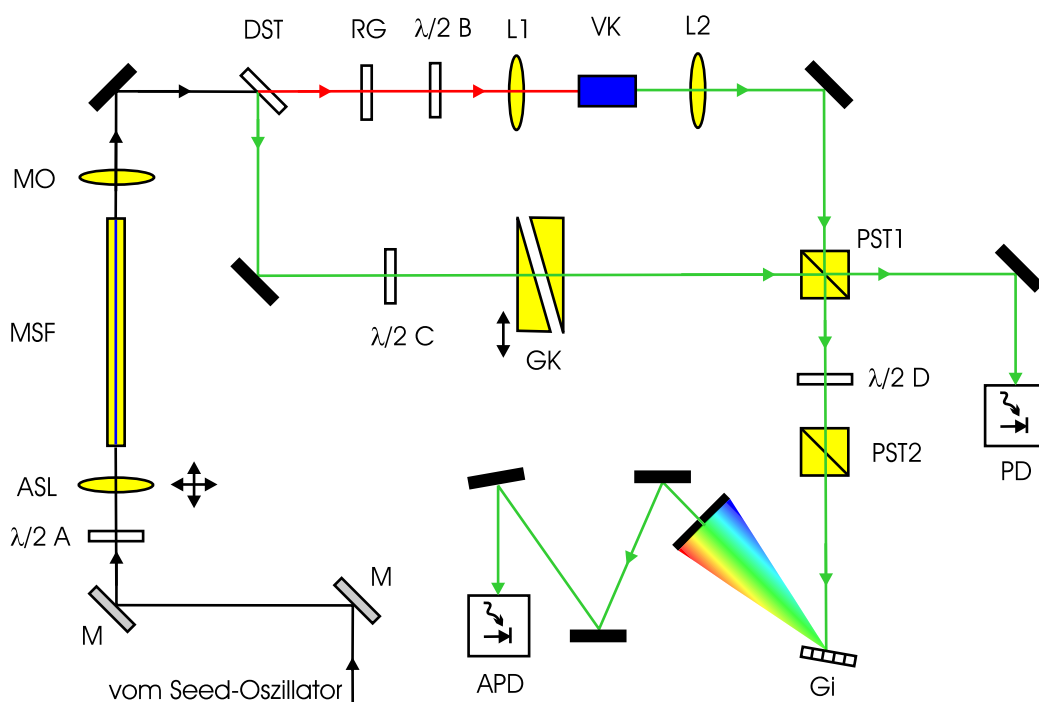


Abbildung 3.1: Aufbau des f - $2f$ -Interferometers zur Phasenstabilisierung des Seed-Oszillators. M: breitbandige dielektrische Spiegel, $\lambda/2$ A: Halbwellenplatte (800 nm), ASL: asphärische Einkoppel-Linse ($f = 6,24$ mm), MSF: mikrostrukturierte Faser (Gesamtlänge 60 mm, Kern-durchmesser $2,4 \mu\text{m}$, vorne Single-Mode Faser mit gekeilter Facette angebracht), MO: Auskoppel-Objektiv ($f = 4$ mm), DST: dichroitischer Strahlteiler (HR 532 nm, HT 1064 nm), RG: Farbglasfilter RG715, $\lambda/2$ B: Halbwellenplatte (1000nm), L1 und L2: Sammellinsen ($f = 40$ mm), VK: Verdoppler-Kristall (Kaliumniobat, Länge 5 mm), PST1: polarisierender Strahlteilerwürfel (400 nm - 1100 nm), $\lambda/2$ C: Halbwellenplatte (500 nm), GK: Paar Glaskeile (BK7 Glas), PD: Photodiode zur Detektion der Pulswiederholfrequenz, $\lambda/2$ D: Halbwellenplatte (500 nm), PST2: polarisierender Strahlteilerwürfel (500 nm), Gi: Reflexionsgitter (2100 Striche/mm), APD: Lawinen-Photodiode mit integriertem Vorverstärker zur Detektion der CEO-Frequenz.

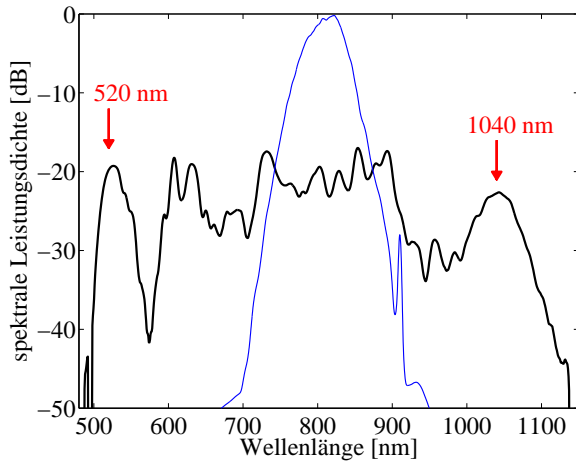


Abbildung 3.2: Optisches Spektrum am Ausgang der mikrostrukturierten Glasfaser (dick schwarz) und optisches Spektrum des Laser-Oszillators am Eingang dieser Faser (dünn blau). Die beiden Wellenlängen, die im f - $2f$ -Interferometer verwendet werden, sind markiert.

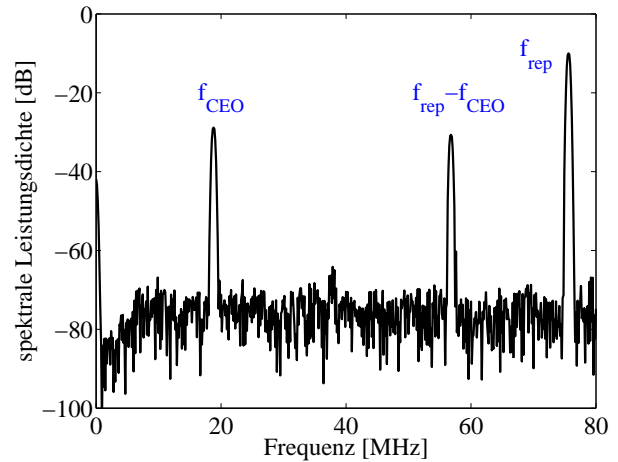


Abbildung 3.3: Frequenzspektrum des Signals der Lawinen-Photodiode. Man erkennt sowohl die Pulswiederholrate f_{rep} wie auch die CEO-Frequenz f_{CEO} und ihre Spiegelfrequenz. Das Signal-zu-Rausch Verhältnis der CEO-Nadel beträgt hier 48 dB. (Messbandbreite 390 kHz)

Der kleine Teil des Lichtes, der den polarisierenden Strahlteiler in der anderen Richtung verlässt, fällt auf eine Photodiode, die so die Pulswiederholrate misst. Der Hauptteil des Lichts dagegen, dessen zwei Anteile orthogonal zueinander polarisiert sind, wird mittels einer weiteren Halbwellenplatte und eines zweiten polarisierenden Strahlteilers auf eine gemeinsamen Polarisationsrichtung projiziert, damit die beiden Anteile interferenzfähig werden. Von einem Reflexionsgitter wird dieses Licht dann spektral aufgefächert, und der Teil mit einer Wellenlänge von 520 nm fällt auf eine Lawinenphotodiode. Das Signal dieser Lawinenphotodiode ist in Abbildung 3.3 dargestellt, es zeigt im Frequenzspektrum sowohl die Pulswiederholrate wie auch die CEO-Frequenz. Typischerweise kann mit diesem Aufbau bei einer Messbandbreite von 390 kHz ein Signal-zu-Rausch Verhältnis dieser CEO-Nadel von 40 dB bis 50 dB erreicht werden.

Aus diesen beiden Photodioden-Signalen wird nun mit der Elektronik wie folgt ein Regelsignal generiert: Das Signal aus der Photodiode mit der Pulswiederholrate wird mit einem digitalen Frequenzteiler phasenstarr auf ein Viertel dieser Frequenz heruntergeteilt. Gleichzeitig durchläuft das schon vorverstärkte Signal aus der Lawinen-Photodiode einen elektronischen Verstärker, der den für die CEO-Frequenz relevanten Bereich zwischen 18 MHz und 22 MHz überhöht und den der Pulswiederholrate um 80 MHz dämpft. Diese beiden derart vorverarbeiteten Signale gelangen daraufhin an die beiden entgegengesetzten Eingänge eines digitalen Zählers, der damit den aktuellen Gangunterschied zwischen beiden Signalen ermittelt. Die Größe dieses Gangunterschieds dient dann

als Eingangssignal für einen auf diese Anwendung optimierten PID-Regler. Insgesamt bilden der digitale Zähler und der PID-Regler einen sogenannten *phase-locked loop* (PLL). Das Ausgangssignal des PID-Reglers steuert den Treiber des akusto-optischen Modulators³ (AOM in Abb. 2.1). Durch die veränderliche Stärke des Schall-Signals am AOM wird dessen Beugungseffizienz variiert und damit die Intensität des Lichtstrahls in nullter Beugungsordnung geregelt, der den Seed-Laser optisch pumpt.

Mit der veränderlichen Pumpleistung des Seed-Oszillators können die Pulsenergie und eventuell auch die Zentralwellenlänge des im Resonator umlaufenden Lichtpulses verändert werden. Dies bewirkt über die nichtlineare Phasenverschiebung im Gewinnkristall (vgl. Kap. 1.2.3) und die Dispersion des Resonators letztendlich eine Veränderung der CEO-Frequenz [Xu96, Hol03, Goo04]. Und so ist der Regelkreis geschlossen, die CEO-Frequenz kann phasenstarr auf ein Viertel der Pulswiederholfrequenz stabilisiert werden. Das heißt jeder vierte Puls aus dem Seed-Oszillator hat dieselbe CEO-Phase und damit einen identischen Verlauf seines elektrischen Feldes.

3.1.2 Messung der Phasenstabilität

Abbildung 3.4 zeigt das gemessene Rauschspektrum in der Umgebung der stabilisierten CEO-Frequenz. Man erkennt, wie die Rauschfrequenzen unterhalb der Regelbandbreite des Systems (~ 30 kHz) unterdrückt werden. Dabei wird die Regelbandbreite begrenzt durch die Schaltgeschwindigkeit des AOMs. Bei den niedrigen Rauschfrequenzen sind die nicht vollständig ausgeregelten mechanischen Schwingungen der Einkopplung in die mikrostrukturierte Glasfaser zu erkennen. Die Struktur bei den hohen Rauschfrequenzen stammt aus den Schwankungen der Pulsenergie des Laseroszillators, die bei den hochgradig nichtlinearen Prozessen in der mikrostrukturierten Faser deutlich verstärkt werden. Es sind dort z. B. die Relaxationsschwingungen erkennbar.

Eine *in-loop* Messung⁴ des RMS-Rauschens der CEO-Phase bei geschlossenem Regelkreis ergab einen Wert von $\phi_{\text{RMS}} \approx 0,065$ rad im Frequenzbereich von 2 Hz bis 10 kHz, der das Rauschen dominiert. Dieser Wert stimmt gut überein mit dem in [For02] veröffentlichten Wert des *in-loop* Phasenrauschens von $\phi_{\text{RMS}} \approx 0,06$ rad im selben Frequenzbereich. Eine *out-of-loop* Messung mit größerer Aussagekraft konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt werden, weil kein zweites f-2f-Interferometer im Zeitbereich vorhanden war.

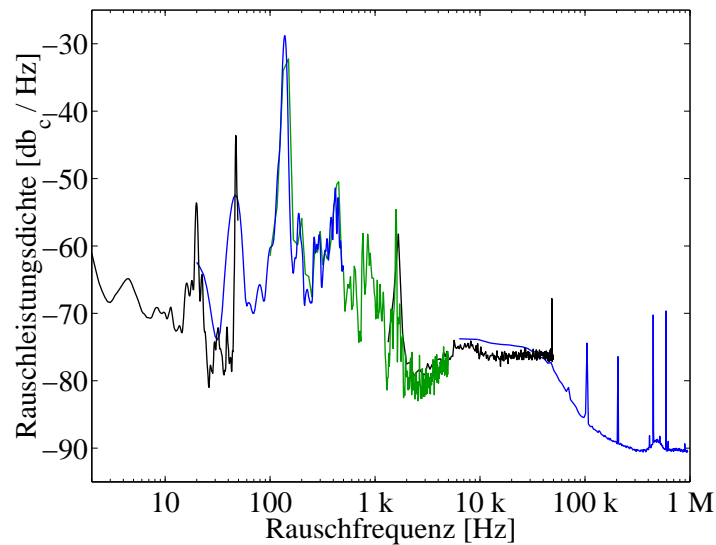


Abbildung 3.4: Messungen des einseitigen Rauschleistungsspektrums der stabilisierten CEO–Nadel: Auf der Abszisse ist der Frequenzabstand von der CEO–Nadel (0 Hz) logarithmisch aufgetragen, auf der Ordinate die gemessene Rauschleistungsdichte. Die Leistungen wurden mit einer Messbandbreite von 1 Hz gemessen oder darauf umgerechnet und sind auf die Leistung der CEO–Nadel (0 dB_c/Hz) normiert. (Die nicht aufgelösten Delta–artigen Frequenznadeln zwischen 100 Hz und 90 kHz sind deshalb um 10 dB zu niedrig dargestellt, und die über 90 kHz um 25 dB zu niedrig.) Man sieht, wie die Rauschfrequenzen unter ~ 30 kHz vom Regelkreis unterdrückt werden. Bei 140 Hz und dessen Harmonischen erkennt man die mechanischen Schwingungen der Einkopplung in die Glasfaser und bei 430 kHz die Relaxationsschwingung des Laseroszillators.

3.1.3 Einfluss des Pumplasers auf die Phasenstabilität

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Laser–Oszillator nacheinander mit zwei unterschiedlichen Pumplasern optisch gepumpt, zum einen mit einem Millennia⁵ und zum andern mit einem Verdi⁶. In beiden Fällen wurde versucht, die CEO–Phase des Oszillators mit dem oben beschriebenen f – $2f$ –Aufbau zu stabilisieren.

Um die Ergebnisse dieser Phasenstabilisierung zu verstehen, wurde das Rauschleistungsspektrum der beiden Pumplaser bei möglichst identischen Bedingungen aufgenom-

³akusto–optischer Modulator: Modell AOM-405, Treiber: Modell ME-40R, Betriebsfrequenz 40 MHz, Firma IntraAction Corp., Bellwood, IL (USA).

⁴Messung der Schwankung des Monitorsignals $\Delta V_{\text{RMS}} = 4,5$ mV am digitalen Zähler des PLL–Regelkreises mittels eines Oszilloskops bei bekannter Phasenspanne dieses Zählers ($3,5$ V $\hat{=}$ 16π rad bei der gewählten Regelverstärkung).

⁵frequenzverdoppelter Neodym–Vanadat Dauerstrich–Laser „Millennia Xs“, Firma Spectra–Physics, USA. Der Laser läuft in mehreren longitudinalen Moden gleichzeitig. Spezifiziertes RMS-Rauschen (10 Hz bis 100 MHz): $< 0,04\%$

⁶frequenzverdoppelter Neodym–Vanadat Dauerstrich–Laser „Verdi–V10“, Firma Coherent, USA. Der Laser läuft in einer einzigen Longitudinal–Mode. Spezifiziertes RMS-Rauschen (10 Hz bis 1 GHz): $< 0,02\%$

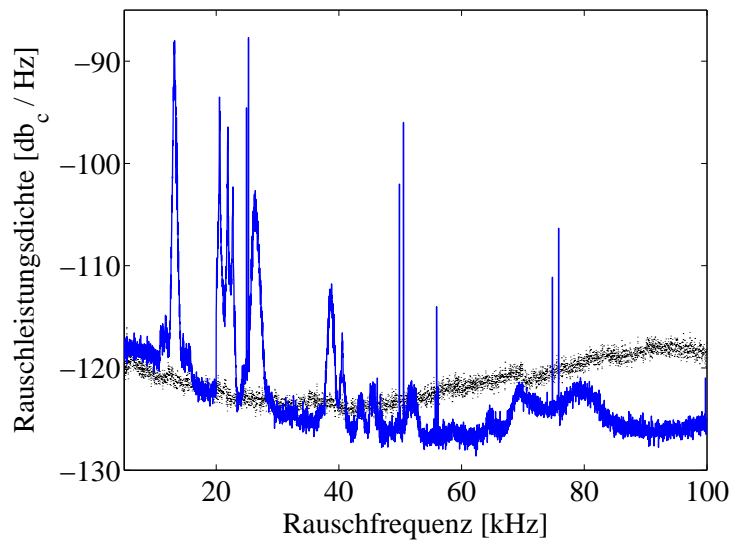


Abbildung 3.5: Messung des Rauschleistungsspektrums der beiden cw-Laser *Verdi* (schwarz punktiert) und *Millennia* (blau durchgezogen), die nacheinander zum Pumpen des Seed-Oszillators verwendet wurden. (Die Intensitäten wurden mit 1 Hz Bandbreite gemessen und auf die jeweilige DC-Leistung normiert.) Das RMS-Rauschen der Intensität im dargestellten Frequenzbereich (5 kHz bis 100 kHz) errechnet sich aus diesen Daten zu 0,03% (*Verdi*) bzw. 0,08% (*Millennia*).

men⁷, es ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Man erkennt, dass der *Verdi* bei den Frequenzen ab 50 kHz (bis ~ 400 kHz, nicht dargestellt) um bis zu eine Größenordnung stärker rauscht als der *Millennia*. Der *Millennia* hat dagegen bei Frequenzen unter 50 kHz mehrere sehr starke Rauschanteile. Insgesamt hat das Intensitätsrauschen beim *Millennia* einen mehr als doppelt so großen RMS-Wert wie beim *Verdi* und es liegt bei kleineren Frequenzen.

In Abbildung 3.6 ist die stabilisierte CEO-Frequenz bei der Verwendung der beiden Pumplaser dargestellt. Wird der Laser-Oszillator mit dem *Verdi* gepumpt, ist die Breite der gemessenen CEO-Frequenz nur durch die Bandbreite des Messgeräts (1 Hz) beschränkt. Wird der Oszillator dagegen mit dem *Millennia* gepumpt, kann keine solche auflösungsbegrenzte CEO-Nadel gemessen werden. Das heißt, dass die CEO-Phase in diesem Fall nicht im eigentlichen Sinne stabilisiert ist. Der elektronische Regelkreis erreicht hier lediglich, dass die CEO-Frequenz bei ihren Schwankungen einen Bereich mit einer Halbwertsbreite von ca. 40 kHz nicht verlässt. Ein derart stabilisierter Seed-Oszillator ist für die Verwendung in einem phasenstabilen Verstärkersystem ungeeignet. Für alle übrigen Messungen in dieser Arbeit wurde der Laser-Oszillator deshalb immer mit dem *Verdi* ge-

⁷Ausgangsleistung 10 W (*Verdi*) bzw. 8 W (*Millennia*). Circa 10 mW davon werden auf eine Photodiode mit 50 Ω -Abschluss fokussiert, die damit gerade nicht gesättigt wird. Die DC-Spannung wird gemessen sowie das Rauschspektrum hinter einem DC-Block (Grenzfrequenz 1,2 kHz). Es wurde zusätzlich dieselbe Messung ohne Laserlicht durchgeführt und dieser Hintergrund von den Messdaten manuell abgezogen. Verwendeter Spectrum-Analyzer: Agilent „E4440A“

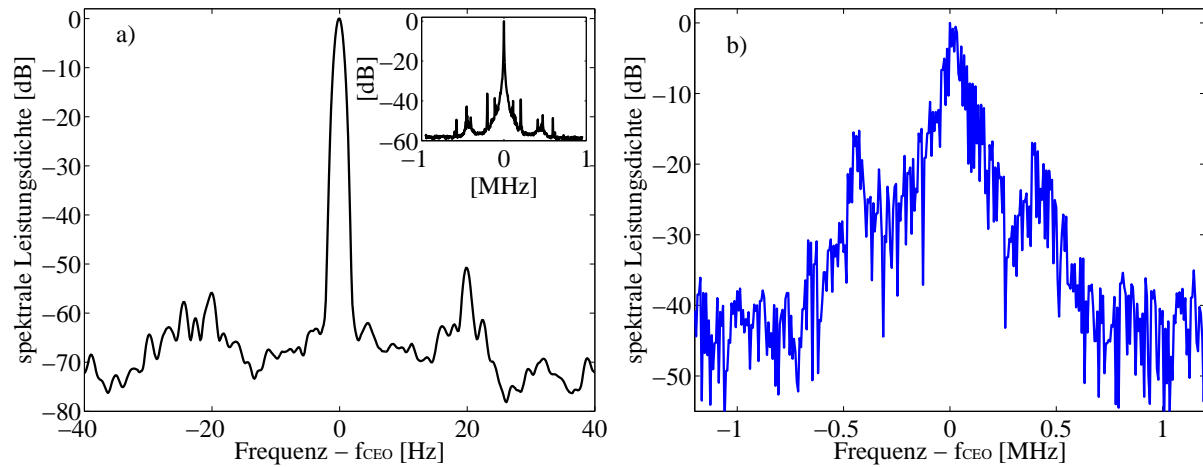


Abbildung 3.6: Messung des Rauschspektrums in der Umgebung der stabilisierten CEO-Nadel. **a)** Laser-Oszillator mit Verdi gepumpt. Die CEO-Nadel ist auflösungsbegrenzt (Messbandbreite 1 Hz, FWHM der Nadel ≤ 1 Hz). In dem Einsatz ist dieselbe scharfe Nadel zum Vergleich nocheinmal in einer größeren Umgebung gezeigt (Messbandbreite 2 kHz). **b)** Laser-Oszillator mit Millennia gepumpt (Messbandbreite 18 kHz). Es gibt keine scharfe Nadel im Frequenzspektrum. Das heißt die CEO-Phase ist nicht im eigentlichen Sinne stabilisiert.

pumpt.

Auch in anderen Arbeitsgruppen wurde beobachtet, dass sich die CEO-Phase in Laser-Oszillatoren, die mit einem Millennia gepumpt werden, schlechter stabilisieren lässt als in Oszillatoren, die mit einem Verdi gepumpt werden [Wit04]. Das völlige Versagen der Phasenstabilisierung beim Pumpen mit dem Millennia in dieser Arbeit kann erklärt werden mit dem Zusammentreffen zweier hinderlicher Umstände: Zum einen ist das Rauschen des Millennia-Pumplasers wie in Abbildung 3.5 dargestellt größer. Und zum andern verursacht der Pumplaser damit Intensitätsschwankungen in einem Titan-Saphir Laser, der schon vergleichsweise starke Relaxationsschwingungen aufweist (vgl. Relaxationsschwingung in Abb. 3.4 und Abb. 3.6). Aus dieser Kombination ergeben sich großen Intensitätsschwankungen des Titan-Saphir Lasers im Frequenzbereich der Relaxationsschwingungen (~ 430 kHz), und damit große Schwankungen der CEO-Frequenz, die in diesem Frequenzbereich außerhalb der Regelbandbreite des Regelkreises liegen und daher nicht mehr ausgeglichen werden können.

3.1.4 Ergebnisse

Die dargestellte Phasenstabilisierung des Seed-Lasers führt zu folgendem Ergebnis: Die CEO-Frequenz des Laser-Oszillators kann phasenstarr auf ein Viertel der Pulswiederholfrequenz stabilisiert werden. Damit hat jeder vierte Lichtpuls aus dem Laser dieselbe CEO-Phase. Die Regelbandbreite des verwendeten Regelkreises beträgt ca. 30 kHz. Die damit stabilisierte CEO-Frequenz hat eine Halbwertsbreite, die kleiner ist als 1 Hz (begrenzt

durch die minimale Messbandbreite) und erreicht in einer Messbandbreite von 1 Hz ein Signal-zu-Rausch Verhältnis von 60 dB (s. Abb. 3.6a).

Diese Phasenstabilisierung bleibt üblicherweise für eine Stunde stabil, unter günstigen Umständen auch für mehrere Stunden. Grund für die beschränkte Dauer der Phasenstabilität sind thermische Drifts bei der Einkopplung in die mikrostrukturierte Glasfaser, die dann sehr schnell durch einen manuellen Eingriff korrigiert werden können, um die Phasenstabilität über längere Zeiträume aufrecht zu erhalten.

3.2 Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers

Die vorhandene Phasenstabilisierung des Seed-Oszillators ermöglicht es, auch die CEO-Phase der Lichtpulse aus dem Multipass-Verstärker zu stabilisieren. Da jeder vierte Lichtpuls aus dem Oszillator jetzt dieselbe CEO-Phase hat, muss vor allem dafür gesorgt werden, dass nur solche Pulse mit identischer Phase von der Pockels-Zelle (vgl. Kap. 2.2) für den Verstärkungsprozess ausgewählt werden. Dies wird mit einer Änderung in der Triggerung des gepulsten Pumpasers erreicht, die hierfür erforderliche Elektronik wurde im Rahmen dieser Arbeit konzipiert und eingebaut.

Selbst wenn die Eingangspulse des Multipass-Verstärkers immer eine identische CEO-Phase haben⁸, führen thermische Drifts der Strahlage innerhalb des Verstärkers zu langsamen Schwankungen der Phase an dessen Ausgang (vgl. Kap. 1.2.2). Aus diesem Grund wird die Phase der Lichtpulse hinter dem Verstärker mit einem $f-2f$ -Interferometer im Frequenzbereich (vgl. Kap. 1.3.2) nochmals gemessen und mit einem langsamen Regelkreis die CEO-Phase des Seed-Oszillators so manipuliert, dass diese Schwankungen schon im Seed-Oszillator vorkompensiert werden. Es war lange Zeit fraglich, ob die Stabilität der CEO-Phase überhaupt durch einen Verstärker hindurch aufrecht erhalten werden könne, erstmals gelang dies vor drei Jahren in der Arbeitsgruppe von Ferenc Krausz [Bal03a, Bal03b]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ebenfalls ein $f-2f$ -Interferometer zur Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers neu konzipiert und aufgebaut.

3.2.1 Elektronischer und optischer Aufbau

Die neu aufgebaute Triggerelektronik für den gepulsten Pumpaser des Multipass-Verstärkers soll sicherstellen, dass vom Verstärker nur Seed-Pulse mit identischer CEO-Phase zur Verstärkung ausgewählt werden. Sie besteht im Wesentlichen aus einem programmierbaren digitalen Schaltkreis zur Frequenzteilung. Das Eingangssignal für diesen Frequenzteiler stammt aus dem $f/8$ Ausgang des Frequenzteilers, der für die Viertelung der Pulswiederholfrequenz im Phasenstabilisierungs-Aufbau des Seed-Oszillators sorgt (vgl. Kap. 3.1.1), damit ist schon sichergestellt, dass nur phasengleiche Seed-Pulse ein Triggerereignis auslösen können. Der programmierbare Frequenzteiler teilt dann diese Eingangsfrequenz um einen

⁸Beim genannten *pulse-picking*-Prozess im Multipass-Verstärker wird allerdings das CEO-Phasenrauschen des Seed-Oszillators im Frequenzraum auf den Bereich unterhalb der *pulse-picking*-Frequenz heruntergemischt und dabei deutlich vergrößert [Goh05].

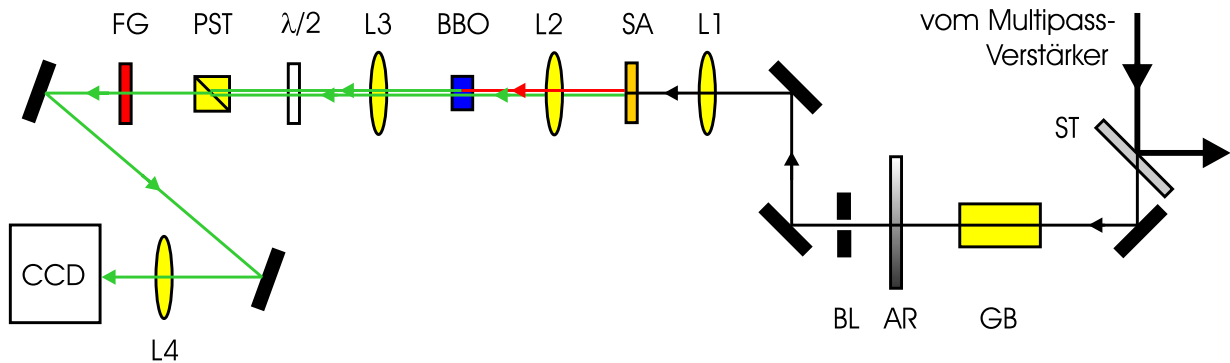


Abbildung 3.7: Aufbau des f - $2f$ -Interferometers zur Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers. ST: teildurchlässiger dielektrischer Spiegel (1% Transmission), GB: Glasblock (51 mm BK7-Glas), AR: variables Abschwächrad (reflektierende Metallbeschichtung mit OD0 - OD2), BL: einstellbare Irisblende, L1: Sammellinse ($f = 150$ mm), SA: Saphir-Plättchen (3mm dick), L2: achromatische Sammellinse ($f = 25$ mm, Mittendicke 5,5 mm), BBO: BBO-Kristall (gekeilt mit Dicke $90 \mu\text{m} - 120 \mu\text{m}$, Schnitt für 1064 nm SHG Typ I, Doppelband-Antireflexbeschichtung), L3: Sammellinse ($f = 60$ mm), $\lambda/2$: Halbwellenplatte (532 nm, low order), PST: polarisierender Strahlteilerwürfel (440 nm - 650 nm), FG: Farbglasfilter BG39, L4: achromatische Sammellinse ($f = 50$ mm), CCD: CCD-Gitterspektrometer.

konstanten Faktor von 3417 herunter, von einem Achtel der Pulswiederholrate des Seed-Oszillators (77 MHz/8) auf die Wiederholrate des Verstärkers (2,8 kHz)⁹. Weiterhin ist dieser Frequenzteiler so programmiert, dass er bei einem Ausfall seines Eingangssignals automatisch eine konstante Frequenz von 2,8 kHz ausgibt und bei neuerlich vorhandenem Eingangssignal wieder dessen Frequenzteilung aufnimmt. Mit dieser Programmierung soll ein Aussetzen des gepulsten Pumplasers vermieden werden, das zu einer Beschädigung des zwischenzeitlich vereisenden Verstärkerkristalls führen könnte.

Abbildung 3.7 zeigt den optischen Aufbau des f - $2f$ -Interferometers zur Phasenstabilisierung hinter dem Multipass-Verstärker. Er ist zur Verbesserung der mechanischen Stabilität auf einer separaten Lochrasterplatte aufgebaut und wurde zum Schutz vor Luftschwankungen innerhalb des Gehäuses des Multipass-Verstärkers neben dem Prismen-Kompressor montiert.

Ein Umlenkspiegel zwischen dem Prismen-Kompressor und der Astigmatismus-Kompensation (s. Kap. 2.3.1) ist teildurchlässig und transmittiert 1% der einfallenden Lichtleistung. Dieser Lichtpuls aus dem Kompressor hat zur Vorkompensation des darauffolgenden polarisierenden Strahlteilers einen negativen *Chirp* (vgl. Kap. 1.1.2) und durchläuft deshalb in diesem Aufbau zuerst einen Glasblock, der den Puls mit seiner positiven Materialdispersion zeitlich komprimiert. Danach wird der Lichtpuls mit einem variablen Abschwächrad und einer verstellbaren Irisblende auf eine Pulsenergie von ca. $0,5 \mu\text{J}$ und einen Strahl-

⁹Der programmierbare Frequenzteiler kann eine Eingangsfrequenz von 77 MHz/8 wahlweise auf 3 kHz, 2,9 kHz oder 2,8 kHz herunterteilen.

durchmesser von 5 mm gebracht.

Dieser Lichtpuls wird mit einer Linse in ein Saphir-Plättchen fokussiert. In dem Plättchen bildet sich durch Selbstfokussierung ein Filament aus, in dem durch nichtlineare Prozesse wie der Selbstaufsteilung ein breitbandiges spektrales Podest erzeugt wird, das sogenannte Weißlicht [Gae00]. Dieses Weißlicht enthält nun Spektralkomponenten um 500 nm und um 1000 nm, was in Abbildung 3.7 durch die verschiedenfarbigen Pfeile angedeutet wird. Das Licht wird dann mit einer weiteren Linse in einen nichtlinearen Kristall fokussiert und damit die Spektralkomponente um 1000 nm frequenzverdoppelt auf 500 nm. Eine weitere Linse kollimiert den Lichtstrahl wieder und mit einer Halbwellenplatte und einem polarisierenden Strahlteiler wird dann die Polarisation der beiden grünen Teilstrahlen auf eine gemeinsame Polarisationsrichtung projiziert und zur Interferenz gebracht. Ein Farbglasfilter absorbiert zum Schutz des Spektrometers das Fundamentallicht um 800 nm, bevor das grüne Licht mit einer Linse auf den Eingangsspalt des Gitterspektrometers¹⁰ fokussiert wird. Aus der Intensitätsmodulation des optischen Spektrums in diesem Spektrometer (s. Abb. 3.8a) kann dann auf die CEO-Phase der einfallenden Lichtpulse geschlossen werden.

Es ist anzumerken, dass die beiden Arme des vorgestellten f - $2f$ -Interferometers nicht räumlich getrennt sind, sondern nur durch Lichtstrahlen unterschiedlicher Wellenlänge bzw. Polarisation gebildet werden. Ein solches *common-path*-Interferometer ist besonders unempfindlich gegenüber mechanischen Schwankungen.

Das Gitterspektrometer wird über einen USB-Bus von einem Laptop ausgelesen. Auf diesem Computer läuft ein im Rahmen dieser Arbeit programmiertes C++ Programm¹¹, das alle 10 ms aus einem neu ausgelesenen Spektrum die momentane CEO-Phase der verstärkten Lichtpulse bestimmt. Der Algorithmus dieser Phasenberechnung wird im folgenden Abschnitt näher erläutert. In der Software wird dann aus diesen aufeinanderfolgenden Phasenmessungen und einem vorgegebenen Sollwert der Phase mittels eines dort implementierten langsamen Integral-Reglers ein Regelsignal berechnet und als analoge Spannung mit einer Digital-Analog-Wandlerkarte¹² ausgegeben. Dieses Ausgangssignal wird in dem elektronischen PID-Regler der Oszillator-Phasenstabilisierung (s. Kap. 3.1.1) auf das eingehende Fehlersignal addiert und bewirkt so eine Verschiebung des Sollwertes der Oszillator-Phase. Dadurch wird erreicht, dass die im Verstärker verursachte Verschiebung der CEO-Phase von einer entgegengesetzt verschobenen CEO-Phase des Seed-Oszillators vorkompensiert wird und deshalb die CEO-Phase der Lichtpulse hinter dem Multipass-Verstärker — wie beabsichtigt — konstant bleibt.

¹⁰Gitterspektrometer „HR4000“ der Firma OceanOptics, USA. (3648 CCD-Pixel, Spektralbereich 460 nm – 580 nm, FWHM-Auflösung 0,065 nm, Gitter H11 mit 1800 Strichen/mm, 5 μ m Eingangsschlitz, minimale Integrationszeit 1 ms, Signal-zu-Rausch Verhältnis <300:1, USB 2.0 Schnittstelle, gemessene Zeit für einen kompletten Scan samt Datenübertragung in den Computer: 10 ms.)

¹¹Die Software wurde programmiert in Microsoft Visual C++ 6.0 unter Verwendung der Microsoft Foundation Classes und einer Mathematik- und Grafikbibliothek von Uwe Morgner (s. Anhang A).

¹²PCMCIA-Einschubkarte „DAQCARD-AO-2DC“ der Firma National Instruments, mit 2 analogen Ausgängen (0 V – 10 V, 12 Bit Spannungsauflösung).

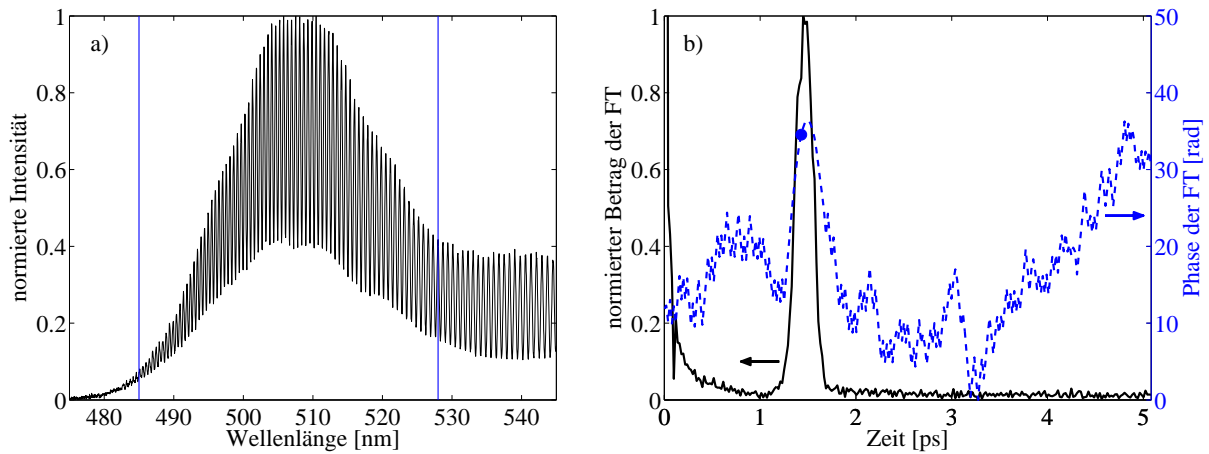


Abbildung 3.8: Interferenzsignal des f - $2f$ -Interferometers zur Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers. **a)** gemessenes optisches Spektrum am Gitterspektrometer mit Intensitätsmodulation **b)** Betrag und Phase der Fourier Transformation (FT) dieser spektralen Interferenz. Die Interferenz-Modulation entspricht einem Peak des FT-Betrags im Zeitbereich und einem parabolischen Verlauf der FT-Phase an dieser Stelle. Der blaue Punkt zeigt die aus dieser Kurve entnommene CEO-Phase. (Für die Berechnung der FT wurde nur das modulierte Spektrum innerhalb des blau markierten Wellenlängen-Intervalls verwendet.)

3.2.2 Algorithmus der Phasenbestimmung

In Abbildung 3.8a ist das modulierte Spektrum dargestellt, das mit dem Gitterspektrometer hinter dem f - $2f$ -Interferometer gemessen wird. Aus diesem Spektrum errechnet eine Software mit folgendem Algorithmus die momentane CEO-Phase der Lichtpulse hinter dem Multipass-Verstärker (zum theoretischen Verständnis der f - $2f$ -Interferenz, s. Kap. 1.3.2):

Der stark modulierte Teil des Spektrums (blau markiertes Intervall in Abb. 3.8a), der durch die Bandbreite der Phasenanpassung im Verdoppler-Kristall begrenzt wird, wird vom Benutzer ausgewählt. Er wird auf eine Frequenzachse umgerechnet und danach mit einem Fast-Fourier Algorithmus (FFT) in den Zeitbereich transformiert. Betrag und Phase dieser Transformation sind in Abbildung 3.8b dargestellt. Man erkennt dort einen Peak des Betrags im Zeitbereich bei 1,4 ps, an dieser Stelle hat die zeitliche Phase der Fourier-Transformation (FT) einen parabolischen Verlauf. Diese Zeit entspricht dem Unterschied zwischen der Gruppenlaufzeit des Lichts im 500 nm Interferometer-Arm und dem im 1000 nm Arm. Der Unterschied resultiert vor allem aus der Materialdispersion der Linse L2 in Abb. 3.7, deren Dicke¹³ so gewählt wurde dass das Interferenz-Spektrum möglichst eng moduliert ist, die Modulation vom Gitterspektrometer aber noch aufgelöst werden kann. Der parabolische Verlauf der zeitlichen Phase hat seine Ursache in der Gruppen-

¹³Die beobachtete Zeitverzögerung von 1,4 ps entspricht bei einer Materialdicke der achromatischen Linse L2 von 5,5 mm einem mittleren Gruppenlaufzeitunterschied von $GD(500\text{ nm}) - GD(1000\text{ nm}) = 255\text{ fs/mm}$. Dieser Wert liegt zwischen den Werten der beiden verwendeten Linsenmaterialien ($\Delta GD \approx 150\text{ fs/mm}$ für SSK8 und $\Delta GD \approx 460\text{ fs/mm}$ für SF56).

laufzeitdispersion (GDD) dieser Linse, die leicht unterschiedlichen Wellenlängen sehen alle einen unterschiedlichen Laufzeitunterschied. Wenn die Pulsenergie im Saphir-Plättchen zu hoch gewählt wird, dann wird das Weißlicht dort in mehreren Filamenten erzeugt. Im Interferenz-Spektrum wird dann zusätzlich eine Schwebung sichtbar, der zeitliche Peak der FT-Betrags teilt sich auf und verhindert damit eine sinnvolle Bestimmung der CEO-Phase. Daher wird das f - $2f$ -Interferometer hier mit einem einzelnen Filament im Saphir-Plättchen betrieben.

An den Verlauf der FT-Phase in der Umgebung des zeitlichen Peaks passt die Software mit einem *least-square* Fit eine Parabel an. Der Wert der dieser Fit-Parabel an einer vom Benutzer fest gewählten Zeit-Position wird als momentaner Wert der CEO-Phase genommen. Es wird typischerweise über 3 aufeinanderfolgende Phasen-Messungen gemittelt um das Messrauschen zu verringern und das Ergebnis dieser Mittelung wird als Monitor-Signal am Digital-Analog Wandler ausgegeben. Aus dem Verlauf des Mittelwertes der typischerweise letzten 10 gemessenen Phasenwerte berechnet nun der Integral-Regler der Software ein Regelsignal mit einstellbarer Verstärkung, das ebenfalls am Digital-Analog Wandler ausgegeben wird und zur langsamen Regelung des Sollwertes der Oszillator-Phasenstabilisierung dient.

Das Gitterspektrometer wird mit einer Integrationszeit von 10 ms betrieben. Das darauffolgende Auslesen der Spektrometer-Daten dauert dann typischerweise ebenfalls 10 ms, in denen das Spektrometer schon das nächste Spektrum aufnimmt. Die gesamte dargestellte Datenverarbeitung dauert vergleichsweise kurz, so dass ca. alle 10 ms ein neu berechneter CEO-Phasenwert zur Verfügung steht. Alle 2 Sekunden pausiert die Datenaufnahme für ca. 30 ms, um die graphische Darstellung auf dem Computermonitor zu aktualisieren. In Anhang A.1 wird die Benutzeroberfläche der beschriebenen Software dargestellt und seine Bedienung kurz erläutert.

3.2.3 Leistungsabhängigkeit der Phasenmessung

Ein systematischer Messfehler des dargestellten f - $2f$ -Interferometers besteht darin, dass der Messwert der CEO-Phase von der Pulsenergie der vermessenen Pulse abhängt (vgl. Kap. 1.2.3 und 1.3.4). Um diese Abhängigkeit zu quantifizieren, wurde die CEO-Phase am Seed-Oszillator stabilisiert und die Pulsenergie im f - $2f$ -Interferometer bei konstanter Ausgangsleistung des Verstärkers durch langsames periodisches Drehen des Abschwächrades vor dem Saphir-Plättchen (AR in Abb. 3.7) moduliert.

Die Messung ergibt einen näherungsweise linearen Zusammenhang zwischen der Pulsenergie im Saphir-Plättchen und der gemessenen CEO-Phase. Der gemessene Kopplungskoeffizient dieser beiden Größen beträgt $0,6 \text{ rad}/\%$. Dieser Messwert hat einen relativen Fehler von 40% und gibt die Schwankung der gemessenen CEO-Phase in Radiant an, wenn die Pulsenergie (um die verwendete Pulsenergie von ca. $0,5 \mu\text{J}$ herum) um 1% geändert wird, wobei die prozentuale Änderung dabei 10% nicht übersteigen sollte, damit eine Phasenmessung mit dem Aufbau überhaupt möglich bleibt.

Mit diesem Kopplungskoeffizienten ergibt sich, dass das beobachtete RMS-Rauschen der stabilisierten CEO-Phase hinter dem Verstärker von typischerweise $0,3 \text{ rad}$ (im Zei-

tintervall zwischen 10 ms und 20 s, siehe folgender Abschnitt) schon mit einem RMS-Rauschen der Pulsenergie des Multipass-Verstärkers von 0,5% vollständig erklärt wäre, was mit den Spezifikationen des Herstellers¹⁴ gut verträglich ist. Dies kann wie folgt interpretiert werden: Das kurzzeitige Pulsenergieauschen des Verstärkers (< 30 ms) wird durch die Mittelung der Phasenmessung nicht für die Phasenregelung berücksichtigt. Es verbleibt daher wie dargestellt im Rauschen der stabilisierten CEO-Phase. Die auf mittleren Zeitskalen (100 ms bis 10 min) erfolgenden Schwankungen der CEO-Phase durch thermische Strahllageschwankungen werden von dem langsamen Regelkreis herausgeregelt. Diese Phasenstabilität auf mittleren Zeitskalen wird aber mit der Gefahr einer langzeitigen Drift erkauft. Denn wenn die Ausgangsleistung des Multipass-Verstärkers auf langen Zeitskalen (> 10 min) absinkt, wird vom Regelkreis eine nicht vorhandene Phasendrift herausgeregelt, und die stabilisierte CEO-Phase der verstärkten Pulse verschiebt sich.

Der mit diesem f - $2f$ -Aufbau gemessene Kopplungskoeffizient ist deutlich größer als der veröffentlichte Wert von 0,084 rad/% einer anderen Arbeitsgruppe [Bal03b]. Die Gründe hierfür sind nicht eindeutig bestimmbar. Die andere Arbeitsgruppe verwendet beispielsweise ein dünneres Saphir-Plättchen (2 mm), einen dickeren Verdoppler-Kristall (1 mm BBO), eine unterschiedlich starke Fokussierung in den Saphir und eine durchgängige Fokussierung mit Hohlspiegeln statt mit Linsen.

Die physikalische Ursache dieser Leistungsabhängigkeit ist allerdings erklärbar: Lichtpulse mit höherer Pulsenergie können im Saphir-Plättchen schon an früherer Stelle entlang des fokussierten Lichtstrahls ein Weißlicht-Filament erzeugen. In diesem Filament ist der Brechungsindex und die Dispersion größer als in Saphir, damit ergibt sich zum einen eine größere CEO-Phasenverschiebung und zum anderen ein größerer Gruppenlaufzeitunterschied zwischen den beiden Interferometerarmen. Der Peak im Zeitbereich verschiebt sich in der Folge ein wenig (maximal wenige FFT-Zeitpixel weit), und es verschiebt sich der Wert der daraus bestimmten CEO-Phase. (Zur genaueren Diskussion der Auswirkung von Dispersionsschwankungen im f - $2f$ -Interferometer siehe Kapitel 1.3.3.) Die aufgrund dieser Erklärung erwartete Verschiebung des zeitlichen FT-Peaks zu größeren Zeiten mit zunehmender Pulsenergie wurde im Experiment ebenfalls beobachtet.

3.2.4 Ergebnisse

Wird der in diesem Abschnitt beschriebene langsame Regelkreis zur Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers zusammen mit der Phasenstabilisierung des Seed-Oszillators betrieben, so lässt sich die CEO-Phase der Lichtpulse aus dem Multipass-Verstärker so stabilisieren, wie es in Abbildung 3.9 dargestellt ist: Die langsamen Schwankungen der CEO-Phase (> 1 s) werden durch die Kombination der Regelkreise vollständig unterdrückt, es wird eine dauerhafte Stabilisierung der gemessenen CEO-Phase auf einen einstellbaren Sollwert erreicht. Die schnelleren Schwankungen der gemessenen Phase (< 100 ms) bleiben unbeeinflusst, sie sind vermutlich nur ein Resultat der intensitätsabhängigen Phasen-

¹⁴Spezifikation des Herstellers (Femtolasers, Wien): 1% RMS-Pulsenergiefluktuation des Multipass-Verstärkers

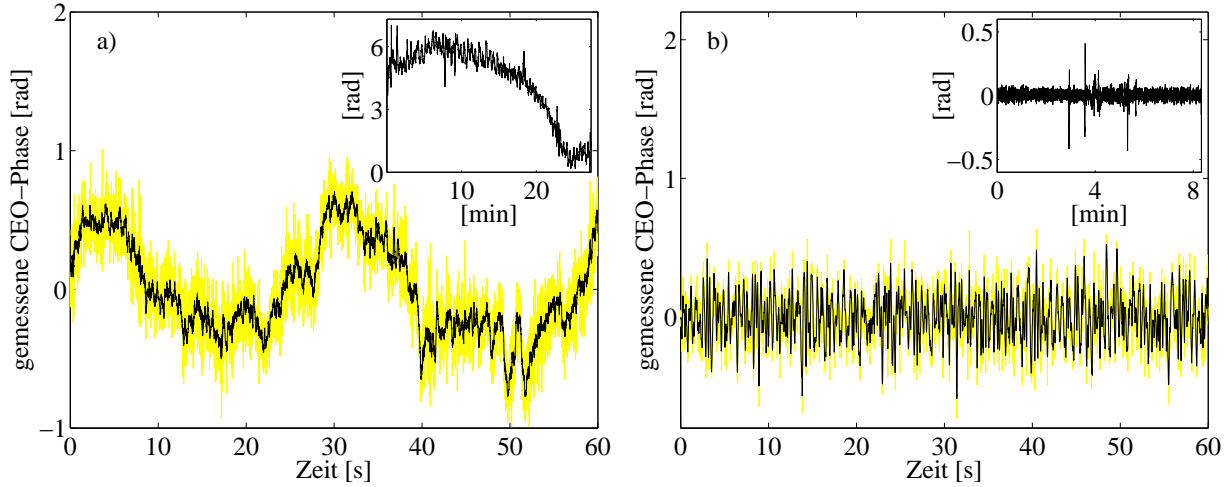


Abbildung 3.9: Messung der CEO-Phase hinter dem Multipass-Verstärker. **a)** Mit Phasenstabilisierung nur am Seed-Oszillator (ohne langsamen Regelkreis hinter dem Verstärker). Man erkennt die langsamen Schwankungen der CEO-Phase. **b)** Mit Phasenstabilisierung am Seed-Oszillator und langsamem Regelkreis hinter dem Verstärker. Die langsamen Schwankungen der CEO-Phase werden ausgegletet. (effektive Integrationszeiten der beiden Messungen: gelbe Linie 10 ms, schwarze Linie 100 ms, in dem Einsatz 1 s)

Messtechnik und des Intensitätsrauschens des Multipass-Verstärkers. In dem dazwischenliegenden Zeitbereich ($100 \text{ ms} < t < 1 \text{ s}$) vergrößert der langsame Regelkreis das Phasenrauschen, dieser unerwünschte Effekt könnte wahrscheinlich durch einen zusätzlichen P-Anteil des I-Reglers in der Software und genauer eingestellte Regelparameter vermieden werden.

Insgesamt kann mit den beiden dargestellten Regelkreisen die gemessene CEO-Phase so stabilisiert werden, dass ihr RMS-Rauschen typischerweise $0,2 \text{ rad}$ (für $t > 100 \text{ ms}$), bzw. $0,3 \text{ rad}$ (für $t > 10 \text{ ms}$) beträgt. Dabei soll hier noch einmal bemerkt werden, dass aufgrund der Intensitätsabhängigkeit der Phasenmessung (vgl. Abschn. 3.2.3) der wirkliche Wert der CEO-Phase in langen Zeiträumen ($> 10 \text{ min}$) wegdriften kann, falls sich auf dieser Zeitskala die durchschnittliche Ausgangsleistung des Multipass-Verstärkers ändert.

3.3 Dritte Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse

Um phasenabhängige Experimente mit dem aufgebauten Lasersystem durchführen zu können, wird die Pulsdauer der phasenstabilen Lichtpulse aus dem Multipass-Verstärker in einem Kapillar-Spiegel-Kompressor weiter verkürzt (vgl. Kap. 2.3). Nach dieser Pulsverkürzung wird die CEO-Phase der Pulse noch ein drittes Mal gemessen. Diese Phasenmessung ist nötig, weil mechanische Schwankungen der Einkopplung in die Kapillare eine veränderliche Pulsenergie innerhalb der Kapillare zur Folge haben und damit auch einen veränderlichen Phasenversatz in der Kapillare bewirken (s. Kap. 1.2.3).

Diese dritte Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse erfolgt wieder mit einem f-2f-

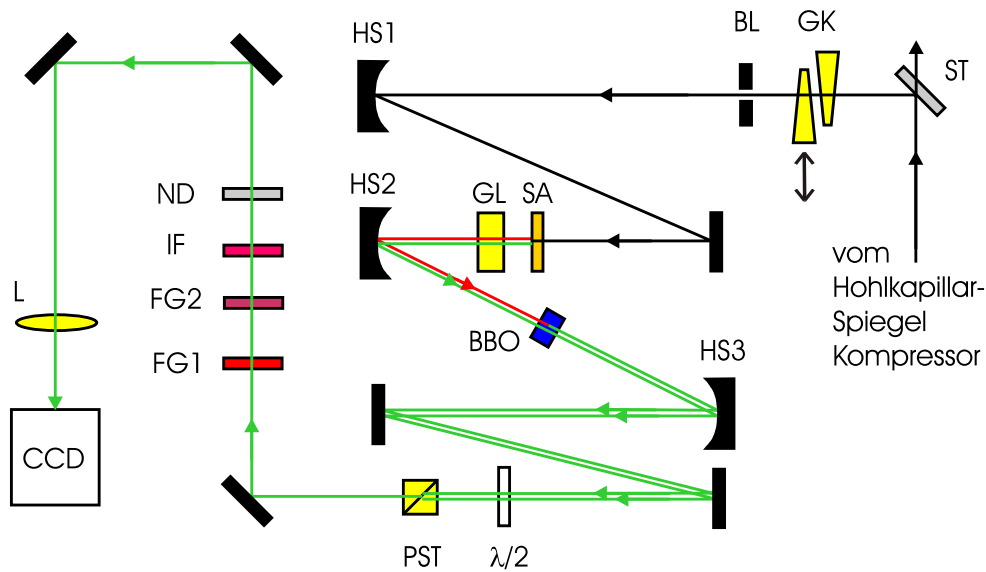


Abbildung 3.10: Aufbau des f - $2f$ -Interferometers zur dritten Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse. ST: breitbandiger dielektrischer Strahlteiler (50:50), GK: Paar Quarzglas-Keile (Gesamtdicke $\sim 2,7$ mm), BL: einstellbare Irisblende, HS1: Silberhohlspiegel ($f = 250$ mm), SA: Saphir-Plättchen (Dicke 1 mm), GL: Glassubstrat (BK7, Dicke 6,35 mm), HS2: Silberhohlspiegel ($f = 50$ mm), BBO: BBO-Kristall ($100 \mu\text{m}$ dick, p-coating, Schnitt für 1064 nm SHG Typ I), HS3: Silberhohlspiegel ($f = 100$ mm), $\lambda/2$: Halbwellenplatte (514 nm, low order), PST: polarisierender Strahlteilerwürfel (440 nm – 650 nm), FG1: Farbglasfilter (GG475), FG2: Farbglasfilter (VG9), IF: Kurzpassfilter (520 nm), ND: Neutraleichtfilter (OD 0,5), L: achromatische Sammellinse ($f = 50$ mm), CCD: CCD-Gitterspektrometer. (Die doppelte grüne bzw. rote Linie dient nur zur Verdeutlichung der beiden „Interferometerarme“.)

Interferometer im Frequenzbereich (s. Kap. 1.3.2), das ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebaut wurde. Das Ergebnis dieser Phasenmessung wird bei den durchgeführten Experimenten (s. Kap. 4) mitgeschrieben und bei deren Auswertung letztlich dazu verwendet, den beobachteten Ereignissen die CEO-Phase des verursachenden Lichtpulses zuzuordnen.

3.3.1 Optischer Aufbau

Der optische Aufbau des f - $2f$ -Interferometers zur dritten Phasenmessung bei den ultrakurzen Lichtpulsen ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Bis auf das Gitterspektrometer und dessen Einkopplung ist es auf einer separaten Lochrasterplatte¹⁵ innerhalb des Gehäuses des Kapillar-Spiegel-Kompressors montiert. Im Unterschied zu dem oben vorgestellten f - $2f$ -Interferometer direkt hinter dem Multipass-Verstärker (s. Kap. 3.2.1), wurden hier durchgängig Hohlspiegel statt Linsen verwendet. Dies war zum einen wegen des größeren Einflusses von Dispersion auf die Pulsdauer der ultrakurzen Lichtpulse nötig (vgl. Kap. 1.1.2), zum anderen sollten so potentielle systematische Messfehler durch Strahllageschwan-

¹⁵Lochrasterplatte aus Aluminium, Abmessungen 200 mm \times 200 mm \times 13 mm.

kungen auf der Linse (vgl. Kap. 1.2.2) und durch den transversalen Gruppenlaufzeitunterschied in einer Linse [Bor88, Pla04] vermieden werden. Weiterhin wurde in diesem Aufbau ein dünneres Saphir-Plättchen verwendet. Im Wesentlichen ist dieser Aufbau jedoch vergleichbar mit dem in Abbildung 3.7 vorgestellten Interferometer, daher ist die Darstellung hier knapp gehalten.

Die beiden durchgeführten Experimente aus Kapitel 4 wurden mit zwei leicht unterschiedlichen Aufbauten dieses dritten f-2f-Interferometers durchgeführt. In diesem Abschnitt wird durchgängig der verbesserte Aufbau beschrieben, der während der atomphysikalischen Messungen (Kap. 4.2) zum Einsatz kam, die Unterschiede der beiden Aufbauten werden in Abschnitt 3.3.3 diskutiert.

Das Licht aus dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (s. Kap. 2.3) wird durch drei Reflexionen an breitbandigen und dispersionsarmen Strahlteilern und durch eine einstellbare Irisblende auf einen Strahldurchmesser von 2 mm und eine Pulsenergie von 1 μJ gebracht. Durch die Materialdispersion eines Paares verschiebbarer Glaskeile wird der im Puls vorhandene negative Chirp kompensiert und der dann ultrakurze Lichtpuls mit einem Hohlspiegel in das Saphir-Plättchen fokussiert. Die dort erzeugten Spektralkomponenten¹⁶ um 500 nm und um 1000 nm werden durch die Materialdispersion eines Glassubstrats gegeneinander verzögert, bevor der langwellige Anteil in einem BBO-Kristall frequenzverdoppelt wird. Mit einer Halbwellenplatte und einem polarisierenden Strahlteiler werden diese beiden grünen Komponenten des Lichts dann auf eine gemeinsame Polarisationsachse projiziert und zur Interferenz gebracht. Dann wird das Licht in den Eintrittsspalt des CCD-Gitterspektrometers¹⁷ fokussiert und dessen optisches Spektrum gemessen. Mit mehreren spektralen Filtern wird dabei verhindert, dass das Spektrometer in Sättigung geht.

Das gemessene Spektrum wird über einen USB-Bus aus dem Gitterspektrometer in einen Laptop eingelesen. Dessen Software kann dann alle 40 ms aus der Intensitätsmodulation des Spektrums die CEO-Phase der ultrakurzen Pulse berechnen. Dieser Phasenwert wird als analoge Spannung mittels einer Digital-Analog-Wandlerkarte¹⁸ ausgegeben und in den durchgeführten Experimenten mitprotokolliert. Details zum Algorithmus dieser Phasenbestimmung finden sich im folgenden Abschnitt.

3.3.2 Algorithmus der Phasenbestimmung

Abbildung 3.11 zeigt das optische Spektrum, wie es hinter diesem dritten f-2f-Interferometer gemessen wird. Aus der Intensitätsmodulation dieses Spektrums berechnet die Soft-

¹⁶Zum Erzeugungsort der beiden verwendeten Spektralkomponenten siehe auch die Diskussion in Abschnitt 3.3.3.

¹⁷Gitterspektrometer „AvaSpec-2048-SPU“ der Firma Avantes, Niederlande. (2048 CCD-Pixel, Spektralbereich 440 nm – 574 nm, FWHM-Auflösung 0,1 nm, Gitter VD mit 1800 Strichen/mm, 10 μm Eingangsspalt, minimale Integrationszeit 2 ms, Signal-zu-Rausch Verhältnis <250:1, USB 1.1 Schnittstelle, gemessene Zeit für einen kompletten Scan samt Datenübertragung in den Computer: 40 ms.)

¹⁸PCMCIA-Einschubkarte „DAQCard-6062E“ der Firma National Instruments, mit 2 analogen Ausgängen ($\pm 10\text{ V}$, 12 Bit Spannungsauflösung, 800 kS/s).

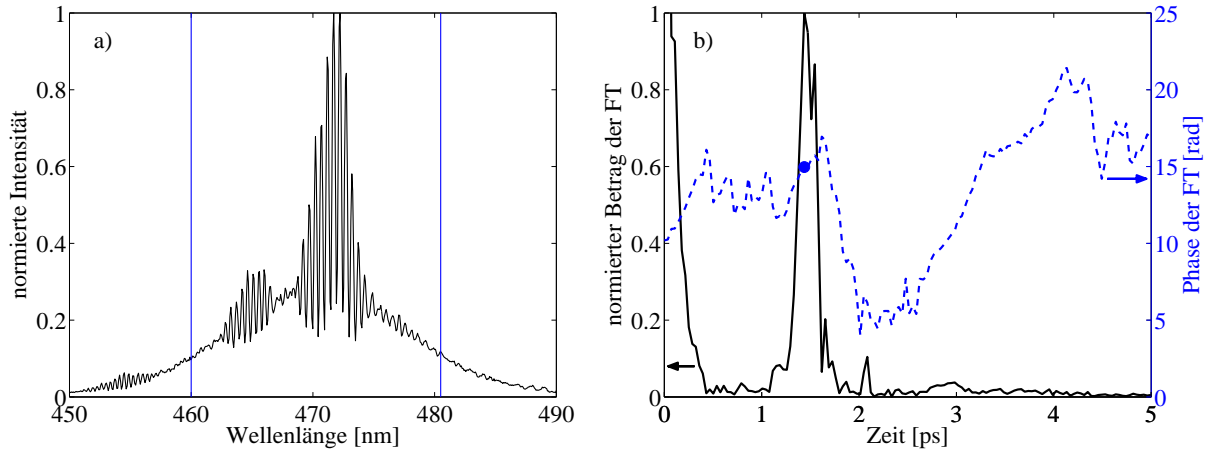


Abbildung 3.11: Interferenzsignal des f - $2f$ -Interferometers zur dritten Messung der CEO-Phase bei den ultrakurzen Lichtpulsen. **a)** gemessenes optisches Spektrum mit Intensitätsmodulation **b)** Betrag und Phase der Fourier-Transformation (FT) dieser Interferenz. Die Intensitätsmodulation entspricht einem Peak des FT-Betrags im Zeitbereich, an dieser Stelle hat die FT-Phase kurzzeitig einen stetigen Verlauf. Der blaue Punkt zeigt die aus dieser Kurve entnommene CEO-Phase. (Für die Berechnung der FT wurde nur das Spektrum innerhalb des blau markierten Wellenlängen-Intervalls verwendet.)

ware die momentane CEO-Phase der ultrakurzen Lichtpulse. Da diese Software im Wesentlichen mit der schon beschriebenen Software in Abschnitt 3.2.2 übereinstimmt, werden hier nur knapp einige Unterschiede erläutert.

Der Peak im FT-Betrag dieses modulierten Spektrums bei einer Verzögerungszeit¹⁹ von 1,45 ps wurde durch die Dicke des verwendeten Glassubstrats GL wieder so eingestellt, dass die resultierende Modulation im Wellenlängenbereich möglichst eng ist, vom Gitterspektrometer aber noch aufgelöst werden kann. Im Zeitbereich ist die FT-Phase nur in sehr wenigen Zeitpixeln wohldefiniert, aus diesem Grund musste in der Software auf die Anpassung einer Fit-Parabel verzichtet werden. Die CEO-Phase wird aus der Kurve der FT-Phase direkt an einem vom Benutzer einstellbaren Zeitpunkt abgelesen.

Die Messung der CEO-Phase der ultrakurzen Lichtpulse wird dadurch erschwert, dass die Pulsenergie wie auch das optische Spektrum dieser Pulse hinter dem Kapillar-Spiegel-Kompressor wesentlich stärker schwanken als vor diesem. Deswegen mittelt die Software

¹⁹Die im FT-Betrag erkennbare Verzögerung von $\tau = 1,45$ ps passt nicht zu der genau bekannten Dicke des BK7 Substrats und dessen Gruppenlaufzeitunterschied. (Mit $GD_{\text{BK7}}(500 \text{ nm}) - GD_{\text{BK7}}(1000 \text{ nm}) = 110 \text{ fs/mm}$ und der Dicke $d = 6,35 \text{ mm}$ ergäbe sich $\tau = \Delta GD \cdot d = 0,70 \text{ ps}$.) Die beobachtete Verzögerungszeit lässt sich aber mit $\tau \approx 1,42 \text{ ps}$ erklären als Summe der Gruppenlaufzeitdifferenzen von 7,6 mm Quarzglas, 4 m Luft, 1 mm Saphir, 6,35 mm BK7-Glas, dem angenommenen spektralen Phasengang von $+180 \text{ fs}^2$ aus der Kapillare (s. Kap. 2.3.2, $\Delta GD_{180 \text{ fs}^2} = 330 \text{ fs}$) und der näherungsweise bekannten Gruppenlaufzeitdifferenz der dispersiven Spiegel des Kapillar-Spiegel-Kompressors ($\Delta GD_{\text{DCMs}} \approx -630 \text{ fs}$). Genau diese dispersiven Komponenten befinden sich zwischen der Kapillare und dem BBO-Kristall des f - $2f$ -Interferometers (Diskussion s. Abschn. 3.3.3, Werte für $GD_{500 \text{ nm}} - GD_{1000 \text{ nm}} = \Delta t_{f-2f}$ aus Tabelle 1.2 entnommen).

typischerweise über 8 einzelne Phasenmessungen mit je 40 ms Integrationszeit, bevor sie das laufende Mittel als Spannungssignal am Digital–Analog Wandler ausgibt. Alle 2 s pausiert die Software die Datenaufnahme, um für ca. 50 ms die Bildschirmdarstellung zu aktualisieren. In Anhang A.2 ist die Benutzeroberfläche der beschriebenen Software dargestellt.

Es sei noch darauf hingewiesen, dass im beobachteten optischen Spektrum je nach Justage des Interferometers und Einkopplung in das Gitterspektrometer verschiedenartige spektrale Interferenzen beobachtet werden können. Diese Interferenzen entstehen im Allgemeinen nicht durch eine f – $2f$ –Interferenz, ihr Ursprung wurde nicht im einzelnen untersucht. Für die Bestimmung der CEO–Phase darf nur eine solche Interferenz verwendet werden, die von der CEO–Phase abhängt, und deren Phasenlage sich daher durch langsames Verschieben der Glaskeile vor dem Interferometer stetig verschieben lässt.

3.3.3 Erzeugungsort der spektralen Oktave und Leistungsabhängigkeit der Phasenmessung

In diesem Kapitel wurde bis jetzt ausschliesslich der Aufbau für die dritte Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse beschrieben, wie er für die atomphysikalischen Messungen in Kapitel 4.2 verwendet wurde. Weiter unten in diesem Abschnitt wird diskutiert werden, dass in diesem Fall die im f – $2f$ –Interferometer effektiv verwendeten Spektralkomponenten dabei schon in der Kapillare erzeugt wurden, nicht erst im Saphir–Plättchen wie ursprünglich angenommen. Zuvor soll kurz der leicht unterschiedliche f – $2f$ –Aufbau erwähnt werden, mit dem die THz–Experimente in Kapitel 4.1 durchgeführt wurden.

Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse für die THz–Experimente

Die Experimente zur THz–Erzeugung (Kap. 4.1) wurden mit einer kleinen Modifikation des dritten f – $2f$ –Interferometers durchgeführt. Im Unterschied zu dem in Abschnitt 3.3.1 dargestellten Aufbau stand hierbei nur ein breitbandiges Gitterspektrometer²⁰ mit einer wesentlich größeren Wellenlängenauflösung zur Verfügung. Deshalb wurde die zeitliche Verzögerung zwischen den beiden spektral getrennten Armen des f – $2f$ –Interferometers in diesem Fall mit einem nur 4,3 mm dicken Quarzglas–Substrat (entspricht GL in Abb. 3.10) verwirklicht.

Die verwendete Materialdicke dieses Glassubstrats erklärt in diesem Fall gut die im Interferogramm beobachtete Verzögerungszeit von 0,35 ps (gemessen wie in Abb. 3.11b, zur Berechnung vgl. Fußnote 19). Daran erkennt man, dass die beiden Spektralkomponenten, die zur betrachteten f – $2f$ –Interferenz beitragen, erst — wie beabsichtigt — im Saphir–Plättchen erzeugt wurden.

Die Abhängigkeit dieser Phasenmessung von der Pulsenergie der vermessenen Lichtpulse wurde in diesem Fall nicht untersucht. Es kann aber ein Kopplungskoeffizient in derselben

²⁰Gitterspektrometer „HR2000–UV–NIR“ der Firma OceanOptics, 2048 CCD–Pixel, Spektralbereich 200 nm – 1100 nm, FWHM–Wellenlängenauflösung $\sim 0,7$ nm.

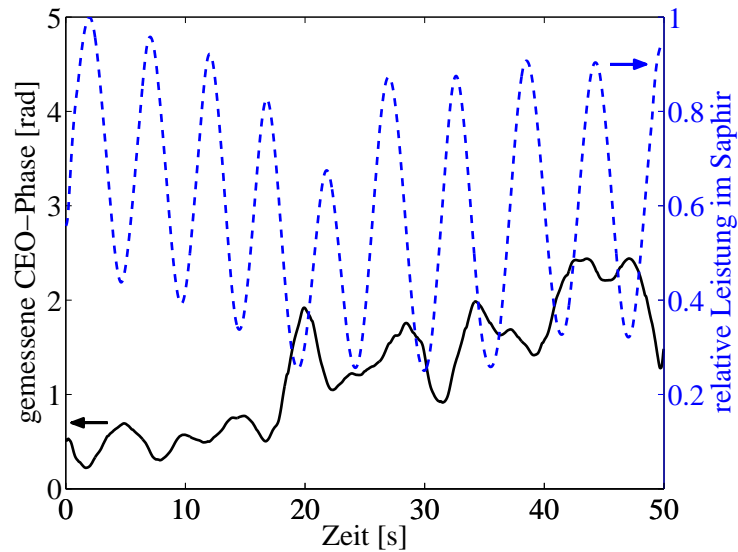


Abbildung 3.12: Experimentelle Bestimmung der Intensitätsabhängigkeit bei der dritten Phasenmessung im f - $2f$ -Interferometer für die ultrakurzen Lichtpulse. Die Pulsenergie im Interferometer wird periodisch moduliert (blau gestrichelte Linie) und die CEO-Phase mit dem f - $2f$ -Interferometer kontinuierlich gemessen (schwarze durchgezogene Linie). Es ergibt sich daraus eine obere Grenze für den Kopplungskoeffizienten von 15 mrad/%. (Die effektive Integrationszeit der beiden dargestellten Messungen beträgt 2 s.)

Größenordnung vermutet werden, wie er in Abschnitt 3.2.3 beim f - $2f$ -Interferometer zur Phasenmessung direkt hinter dem Multipass-Verstärker gemessen und diskutiert wurde.

Weiterhin wurde bei dieser THz-Messung anstatt des vorgestellten Kapillar-Spiegel-Kompressors (vgl. Kap. 2.3) dieselbe Kapillare, ein älterer Satz aus dispersiven Spiegeln²¹ und eine 2-Prismen-Anordnung²² aus Quarzglas zur Pulskompression verwendet. Die dabei erzielte Pulsdauer betrug ca. 8 fs.

Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse für die atomphysikalischen Experimente

Die atomphysikalischen Experimente (Kap. 4.2) wurden mit dem dritten f - $2f$ -Interferometer durchgeführt, wie es oben in den Abschnitten 3.3.1 und 3.3.2 beschrieben wurde.

Um auch für diesen Aufbau die Leistungsabhängigkeit der Phasenmessung zu untersuchen (vgl. Abschn. 3.2.3), wurde anstelle der Glaskeile (GK in Abb. 3.10) ein variables Abschwächrad ähnlicher Dicke vor dem f - $2f$ -Interferometer eingebaut und durch langsames

²¹Satz dispersive Spiegel der Firma Femtolasers (Wien): 2× „M193“, 2× „M199“, 2× „M204“, 2× „M205“, 2× „M207“, 1× „M220“, 4× „M221“ und 2× „M235“, gesamte Gruppenlaufzeitdispersion Σ GDD(600 nm - 900 nm) \approx -850 fs², aber unpassende Dispersion höherer Ordnung.

²²Prismenstrecke aus zwei Quarzglas-Prismen, Apex-Winkel für 800 nm geschliffen, Apex-Abstand der Prismen: 380 mm, gesamte Eindringtiefe der beiden Prismen: \sim 13 mm

Drehen die Pulsenergie im Saphir-Plättchen periodisch stark moduliert. Die CEO-Phase des Multipass-Verstärkers wurde dabei mit den beiden oben dargestellten Regelkreisen konstant gehalten. In Abbildung 3.12 ist die gemessene CEO-Phase der ultrakurzen Lichtpulse gezeigt, die simultan zur veränderlichen Lichtleistung aufgenommen wurde. Aus der Messung kann man einen Kopplungskoeffizienten zwischen gemessener CEO-Phase und einfallender relativer Pulsenergie von weniger als 15 mrad/% ableiten. Die in der Abbildung erkennbaren Phasenschwankungen werden hauptsächlich von mechanischen Schwankungen bei der Einkopplung in die Kapillare verursacht (s. folgender Abschnitt) und sind kaum korreliert zu der periodischen Pulsenergiemodulation.

Der hier gemessene Kopplungskoeffizient ist damit sogar wesentlich kleiner als der oben genannte Messwert einer anderen Arbeitsgruppe [Bal03b] von 84 mrad/%. Zusammen mit der Beobachtung einer übergroßen Zeitverzögerung in der hier verwendeten f-2f-Interferenz (s. Fußnote 19) deutet diese geringe Intensitätsabhängigkeit darauf hin, dass in diesem Fall die relevanten Spektralkomponenten um 500 nm und um 1000 nm schon in der Kapillare erzeugt wurden, und nicht erst im Saphir. Das f-2f-Interferometer für die ultrakurzen Lichtpulse sollte daher bei Verwendung mit diesem neuen Kapillar-Spiegel-Kompressor auch ohne das Saphir-Plättchen zur Phasenmessung geeignet sein, was aber im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr überprüft werden konnte.

Diese Annahme erklärt damit zum einen die größere Zeitverzögerung im f-2f-Interferometer, denn die beiden spektral getrennten Interferometerarme beginnen dann schon am Ausgang der Kapillare und jede dispersive Komponente bis zum Verdoppler-Kristall trägt zur Zeitverzögerung bei. Zum anderen folgt aus ihr, dass die Phasenmessung unabhängig von der Pulsenergie im Saphir ist, denn dort passiert nichts mehr, was die betrachteten Spektralkomponenten beeinflusst. Diese Vorhersage eines verschwindenden Kopplungskoeffizienten ist kompatibel mit der dargestellten Messung aus Abbildung 3.12.

3.3.4 Ergebnisse

Wird das oben beschriebene dritte f-2f-Interferometer dazu genutzt, die CEO-Phase der ultrakurzen Pulse aus dem Kapillar-Spiegel-Kompressor zu messen, so ergibt sich ein Zeitverlauf der Phase wie in Abbildung 3.13 dargestellt.

In Abbildung 3.13a erkennt man, dass die CEO-Phase der ultrakurzen Pulse schwankt, obwohl die Phase vor der Kapillare mit beiden Regelkreisen konstant gehalten wird. Der Grund hierfür liegt hauptsächlich in der veränderlichen Lichtleistung innerhalb der Kapillare, die einen veränderlichen nichtlinearen Phasenversatz in der Kapillare verursacht. Mit der Annahme eines nichtlinearen Phasenversatzes der Kapillare von $\phi_{\text{NL}} = 3,4\pi$ (vgl. Kap. 2.3.2) ergibt die Rechnung aus Kapitel 1.2.3 einen Kopplungskoeffizienten von 0,1 rad/%. Dieser Wert ist deutlich kleiner als der gemessene Wert in Abbildung 3.13a von ca. 0,7 rad/%. Der Grund hierfür liegt in einem systematischen Messfehler des dritten f-2f-Interferometers, denn es misst ja nicht $\phi_{800\text{nm}}$, sondern $2\phi_{1000\text{nm}} - \phi_{500\text{nm}}$ mit den direkt in der Kapillare erzeugten Spektralkomponenten (vgl. Kap. 1.3.4), und dieser Messwert unter-

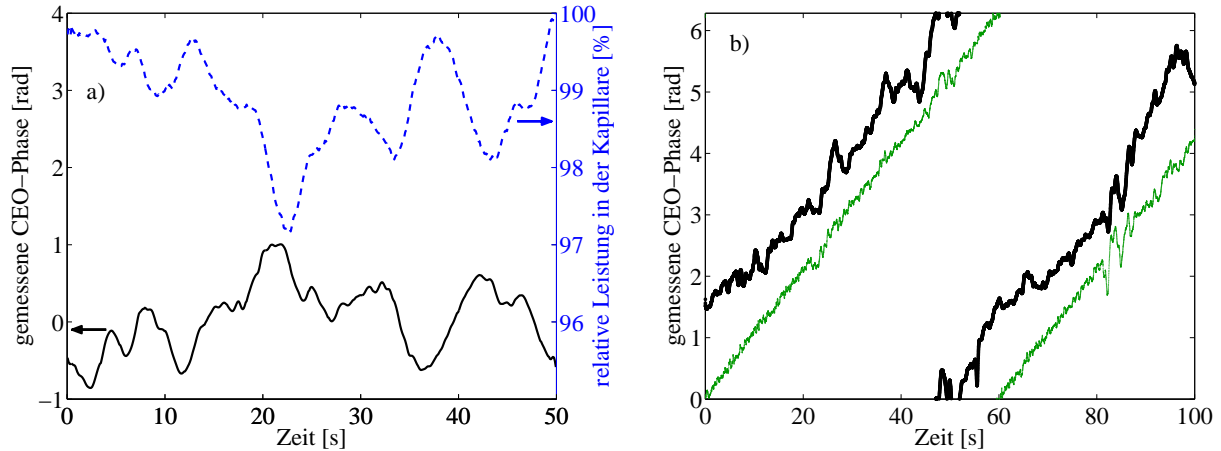


Abbildung 3.13: Dritte Messung der CEO-Phase der ultrakurzen Lichtpulse. **a)** CEO-Phase hinter dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (durchgezogen schwarz), wenn die Phase vor der Kapillare mit beiden Regelkreisen auf einen konstanten Wert stabilisiert wird, und Lichtleistung in der Kapillare (blau gestrichelt). Aus der Messung kann man einen Kopplungskoeffizienten von $\sim 0,7$ rad/% abschätzen, mit der die nichtlinearen Prozesse in Kapillare je nach Pulsenergie die gemessene CEO-Phase beeinflussen. (effektive Integrationszeit 2 s) **b)** CEO-Phase der ultrakurzen Pulse hinter dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (dick schwarz), wenn die Phase vor der Kapillare einer langsamen Rampe folgt ($2\pi/60$ s, dünn grün). (effektive Integrationszeit 320 ms)

liegt größeren Schwankungen. In einer numerischen Simulation²³ der nichtlinearen Prozesse in der Kapillare wurde für die verwendeten experimentellen Parameter eine Vergrößerung des Kopplungskoeffizienten für die $f-2f$ -Phase um einen Faktor von ca. 5 gefunden. Damit kann der beobachtete Kopplungskoeffizient ausreichend genau erklärt werden. Durch eine mechanisch stabilere Einkopplung des Lichtstrahls in die Kapillare können diese Phasenschwankungen verringert werden und damit auch der genannte systematische Messfehler des $f-2f$ -Interferometers vermieden werden.

Die RMS-Schwankung der CEO-Phase berechnet sich aus den gezeigten Daten zu 0,45 rad. Unter der oben diskutierten Annahme, dass der Großteil dieser Schwankungen aus der Pulsenergie-Phasen-Kopplung in der Kapillare stammt und somit kein Messfehler ist, kann auf eine maximale Messungengenauigkeit dieser Phasenmessung von 0,3 rad ($t > 320$ ms) geschlossen werden, vergleichbar zu dem Wert in Abschnitt 3.2.4. Dies entspricht bei einer Zentralwellenlänge von 760 nm einer Messungengenauigkeit von nur 120 as in der zeitlichen

²³Diese numerische Simulation entspricht der Split-Step Fourier Propagation, die für Abbildung 2.9 verwendet und dort auch näher erläutert wurde. Allerdings war es für die beobachtete Verfünfachung des genannten Kopplungskoeffizienten nur nötig zusätzlich zur Selbstphasenmodulation noch die Selbstaufsteilung zu berücksichtigen. Alle weiteren dort genannten Prozesse beeinflussen den Kopplungskoeffizienten nicht mehr signifikant. Der genannte Faktor von 5 ist so zu verstehen, dass sich die CEO-Phase durch die Intensitätsschwankung bei der Selbstphasenmodulation so verändert wie es in Kapitel 1.2.3 erläutert wird. Bei der Messung dieser Phase durch die $f-2f$ -Technik wird zusätzlich ein systematischer Messfehler desselben Vorzeichens beobachtet, der viermal größer ist. (Vgl. Kap. 1.3.4)

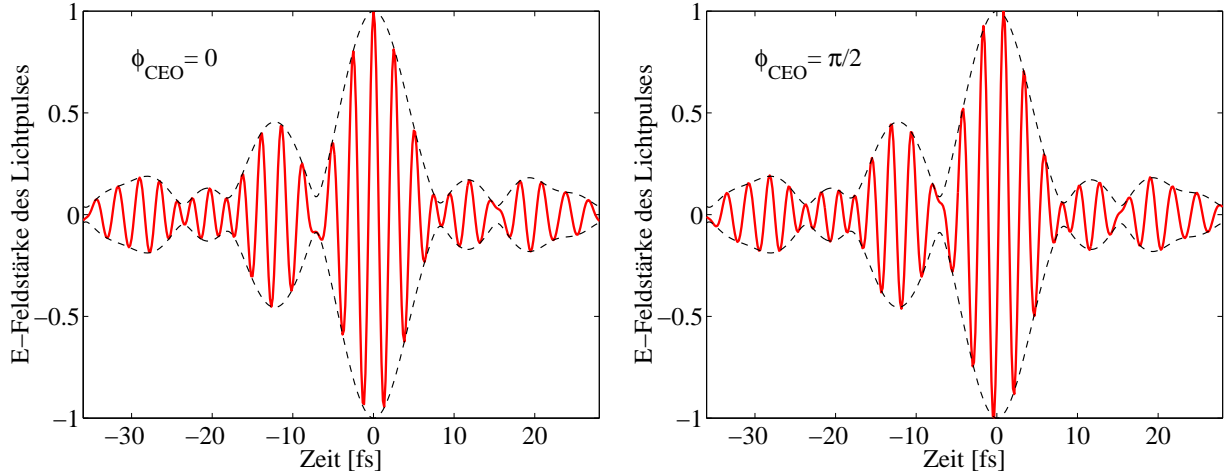


Abbildung 3.14: Feldverlauf zweier Lichtpulse, wie sie mit dem hier dargestellten Lasersystem erzeugt werden. Die CEO-Phase wurde beispielhaft auf $\phi_{\text{CEO}} = 0$ und $\phi_{\text{CEO}} = \pi/2$ gesetzt. Beim dargestellten Kosinus-Puls ($\phi_{\text{CEO}} = 0$) ist das maximale E-Feld in negative Richtung um 6% geringer als das in positive Richtung. Beim Sinus-Puls ($\phi_{\text{CEO}} = \pi/2$) ist das maximale E-Feld in beide Richtungen annähernd gleichstark. (Pulsform aus SPIDER-Messung in Abb. 2.10)

Lage des elektrischen Feldverlaufs dieser Lichtpulse.

In Abbildung 3.13b ist gezeigt, wie sich die CEO-Phase der ultrakurzen Pulse ändert, wenn die Phase des Multipass-Verstärkers mit den beiden Regelkreisen auf einer langsamen Rampe geführt wird. Die Übereinstimmung dieser beiden völlig unabhängigen Phasenmessungen bestätigt die Funktionalität der beiden f-2f-Interferometer. Mit dieser langsamen Rampe der CEO-Phase wurden außerdem die Experimente in Kapitel 4 durchgeführt.

Den Beweis, dass auch auf langen Zeitskalen ($t > 10$ min) diese dritte Phasenmessung innerhalb der angegebenen Messgenauigkeit korrekt bleibt, liefert der Vergleich mit dem Phasensignal des THz-Experiments (Kap. 4.1), das länger als eine Stunde bis zum Ende der Messung starr korreliert blieb.

Zum Abschluss zeigt Abbildung 3.14 einen beispielhaften Lichtpuls, der mit dem hier beschriebenen Lasersystem erzeugt wurde. Der Verlauf seines elektrischen Feldes kann mit dem Aufbau dieser Arbeit vollständig²⁴ charakterisiert werden. Und seine typische Feldstärke im Fokus ($\sim \text{GV}/\text{cm}$) reicht aus um Ionisationsexperimente durchzuführen, die im folgenden Kapitel beschrieben werden.

²⁴Mit der dargestellten f-2f-Phasenmessungen ist die absolute Phase des Feldverlaufs erst bis auf eine gleichbleibende Konstante bekannt, die aber mit der THz-Messung in Kapitel 4.1 oder der atomphysikalischen Messung in Kapitel 4.2 bestimmt werden kann.

Kapitel 4

Phasenabhängige Experimente

Mit dem im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Lasersystem (Kap. 2 und 3), das ultrakurze und hochintensive Lichtpulse mit kontrollierter CEO-Phase erzeugt, wurden zwei verschiedene phasenabhängige Experimente durchgeführt.

Zum einen wurde mit dem Laserstrahl in Umgebungsluft ein Plasma gezündet und dort Terahertz-Strahlung (THz-Strahlung) erzeugt (Abschnitt 4.1). Es wurde dabei beobachtet, dass der elektrische Feldverlauf der THz-Welle von der CEO-Phase des erzeugenden Lichtpulses abhängt [Kre06]. Damit wurde eine neuartige Methode zur Bestimmung der „absoluten Phase“ demonstriert, die schon jetzt konkurrenzfähig zur dafür etablierten Methode des Stereo-ATI Spektrometers ist. Außerdem wurde hierbei erstmalig optische Gleichrichtung in einem räumlich isotropen Medium nachgewiesen.

Im zweiten Experiment wurde die Phasenabhängigkeit der Photoionisation von Neon-Atomen untersucht (Abschnitt 4.2). Hierfür wurde in einem Reaktionsmikroskop der vollständig differenzielle Wirkungsquerschnitt dieses Ionisationsprozesses gemessen. Im Ionenimpuls nach Einfachionisation war eine Phasenabhängigkeit erkennbar. Und in der Doppelhöcker-Struktur des Neon-Ionenimpulses nach nichtsequentieller Doppelionisation konnte erstmalig eine signifikante Phasenabhängigkeit beobachtet werden.

4.1 Erzeugung von THz-Strahlung in einem Luft-Plasma

Für die in diesem Abschnitt dargestellte Messung wurde mit dem Hauptteil des Lichts aus dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (Kap. 2.3) durch Fokussierung ein Plasma in der Umgebungsluft gezündet. Ein Teil des übrigen Lichts wurde für die simultane Messung der CEO-Phase im dritten f - $2f$ -Interferometer (Kap. 3.3) verwendet. Damit konnte die im Plasma erzeugte THz-Strahlung in ihrer Abhängigkeit von der CEO-Phase des Lichts untersucht werden. Dieses Experiment wurde in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von Hartmut Roskos an der Universität Frankfurt durchgeführt.

Im Folgenden wird zuerst der theoretische Hintergrund der phasenabhängigen THz-Erzeugung im Plasma kurz erläutert. Dann werden der experimentelle Aufbau dargestellt

und die Messergebnisse diskutiert.

4.1.1 Theoretischer Hintergrund

Zur Erzeugung des Plasmas wird der ultrakurze und hochintensive Lichtpuls in die Umgebungsluft fokussiert. Durch die dabei in der Fokus-Region entstehenden hohen Feldstärken kommt es zur Ionisation der Luftmoleküle, die hier ausschliesslich als Stickstoff-Moleküle angenommen werden. Die zeitabhängige Ionisationsrate des Gases kann mit der statischen Tunneltheorie (s. Gl. 4.3, [Cor89]) berechnet werden und hängt stark nichtlinear von der momentanen Feldstärke des Lichtpulses ab. Das führt dazu, dass im Wesentlichen nur wenige Feldspitzen in der Umgebung des Pulsmaximums zur Ionisation beitragen.

In Abbildung 4.1b ist dargestellt, wie Lichtpulse mit unterschiedlicher CEO-Phase zu einem unterschiedlichen zeitlichen Ablauf der Ionisation führen. Dabei ist zu beachten, dass die freigesetzten Elektronen dabei je nach momentaner E-Feld Richtung des Lichtpulses in positive (Elektronendichte ρ^+) oder negative Richtung (Elektronendichte ρ^-) ausgelenkt werden. Der Zeitverlauf dieser beiden Ladungsdichten ist in Abbildung 4.1c dargestellt. Man erkennt, dass — nachdem der Lichtpuls wieder abgeklungen ist — eine unterschiedliche Anzahl Elektronen in die eine oder andere Richtung ausgelenkt wurde, je nach CEO-Phase des ionisierenden Pulses.

Damit ergibt sich nach der Ionisation ein makroskopisches Dipolmoment des erzeugten Plasmas, das proportional ist zu dem Asymmetrieparameter

$$R_\rho^\infty := \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\rho^+(t) - \rho^-(t)}{\rho^+(t) + \rho^-(t)}. \quad (4.1)$$

Abbildung 4.2 zeigt die Abhängigkeit dieses Asymmetrieparameters von der Pulsdauer und der CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses, die numerisch aus den Bewegungsgleichungen der beiden Ladungsdichten im Plasma berechnet wurde [Kre06]. Man erkennt, dass die Größe von R_ρ^∞ direkt zusammenhängt mit der CEO-Phase des Pulses und dabei einer nahezu Kosinus-förmigen Abhängigkeit folgt. Weiterhin sieht man, dass der Betrag von R_ρ^∞ für Pulsdauern über 10 fs verschwindend gering wird.

Falls also das elektrische Feld des ionisierenden Lichtpulses räumlich asymmetrisch ist, oder ein starkes externes E-Feld angelegt wird, wird eine Ladungsasymmetrie im Plasma erzeugt, und damit ein makroskopisches Dipolmoment. In diesem Fall kommt es aufgrund dieses Dipolmomentes zu einem kurzzeitigen elektrischen Ladungsstrom, nachdem der Lichtpuls schon wieder abgeklungen ist. Die freien Ladungsträger im Plasma beginnen, mit ihrer Plasma-Frequenz¹ im THz-Bereich zu oszillieren. Durch die Abwesenheit des ionisierenden Lichtfeldes rekombinieren die freien Ladungsträger allerdings zügig und diese Schwingung hält nur für wenig länger als einen Schwingungszyklus an.

Der kurzzeitig schwingende Strom der freien Ladungsträger im Plasma erzeugt als Hertz'scher Dipol eine elektromagnetische Welle im THz-Frequenzbereich, die sogenannte

¹Nimmt man an, dass 10% der Stickstoffmoleküle bei Normaldruck ionisiert sind, so ergibt sich eine Plasmafrequenz von $\omega_p = \sqrt{ne^2/\epsilon_0 m} = 0,41$ THz. Das entspricht einer Periodendauer von 2,4 ps.

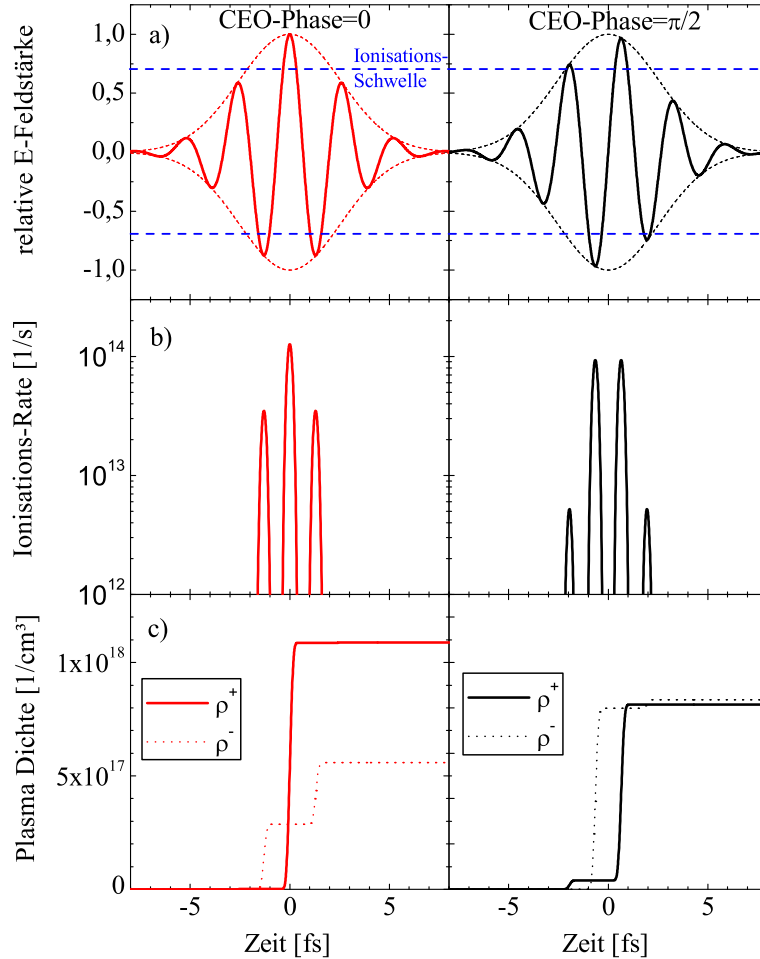


Abbildung 4.1: Simulation der Plasma-Erzeugung in Luft mit einem ultrakurzen Lichtpuls. **a)** Zeitverlauf des elektrischen Feldes für zwei Lichtpulse mit unterschiedlicher CEO-Phase. Die Ionisationsschwelle wurde willkürlich bei einer Ionisationsrate von $0,1\%/fs$ ($=10^{12}/s$) eingezeichnet. **b)** Berechnete Ionisationsrate des Gases. Nur 3 bzw. 4 Feldspitzen tragen signifikant zur Ionisation bei. **c)** Dichte der in positive (ρ^+) und negative (ρ^-) Feldrichtung ausgelenkten freien Elektronen. Man beachte den polarisierten (links), bzw. nahezu unpolarisierten (rechts) Endzustand des Plasma. (Simulationsparameter: molekulares Stickstoff-Gas bei Normaldruck mit einer Anfangsdichte von $\rho_{\text{Gas}}^0 = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, Ionisationsraten aus statischer Tunneltheorie, 6 fs Dauer des Licht-Pulses mit gaußförmiger Einhüllender, Zentralwellenlänge 800 nm, maximale Licht-Feldstärke $E_{\text{opt}}^0 = 4,2 \cdot 10^{10} \text{ V/m} \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, Details in [Kre06].)

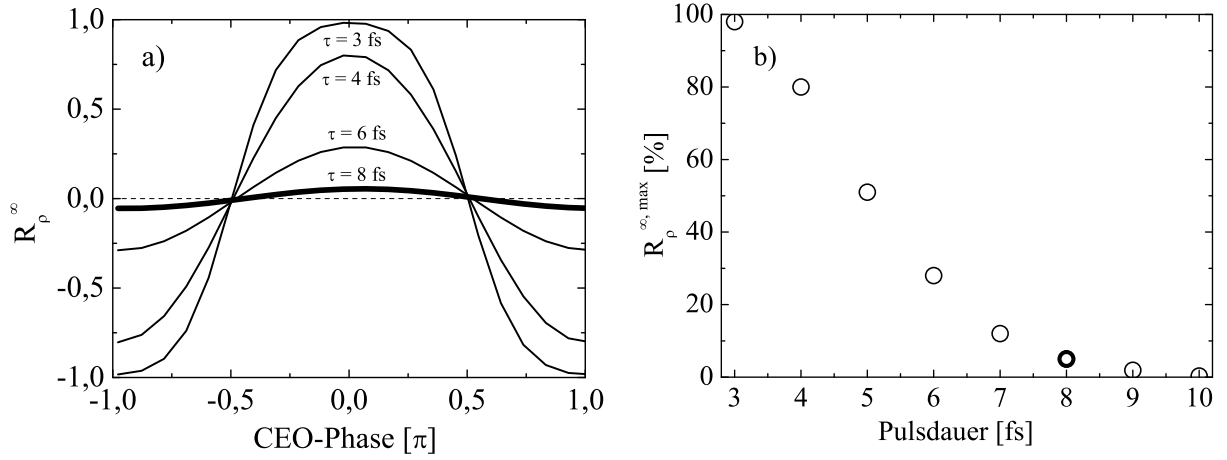


Abbildung 4.2: Berechnung der Ladungs-Asymmetrie eines von einem ultrakurzen Lichtpuls erzeugten Luft-Plasmas. **a)** Asymmetrieparameter R_p^∞ in Abhängigkeit von der CEO-Phase des erzeugenden Lichtpulses und dessen Pulsdauer τ . Die Asymmetrie R_p^∞ ist proportional zum erzeugten Dipolmoment im Luftplasma, das die Erzeugung von THz-Dipolstrahlung zur Folge hat. **b)** Maximalwert von R_p^∞ bei der CEO-Phase = 0 in Abhängigkeit von der Pulsdauer. Die Pulsdauer dieser Arbeit von 8 fs ist durch fette Markierung hervorgehoben. (Der zeitliche Verlauf des Lichtpulses ist gaußförmig angenommen. Die Feldstärke ist so gewählt, dass jeweils eine Plasma-Dichte $\rho_{\text{total}} = \rho^+ + \rho^-$ von 10% der gesamten Moleküldichte ρ_{Gas}^0 erreicht wird. Daten aus [Kre06].)

THz-Strahlung. Durch Betrachtung des obigen phasenabhängigen Asymmetrieparameters R_p^∞ wird deutlich, dass die Amplitude und die Polarität dieser THz-Strahlung von der CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses abhängen.

Alternativ zu der obigen mikroskopischen Betrachtungsweise kann man den betrachteten Prozess auch phänomenologisch als Vierwellenmischung beschreiben. Dabei betrachtet man den Mischprozess dreier Photonen aus dem oktavbreiten optischen Spektrum des ionisierenden Lichtpulses. Diese erzeugen im Gasmedium eine niederfrequente ($\Omega \rightarrow 0$) Polarisation P aus zwei Photonen des langwelligen spektralen Randes und einem Photon des kurzwelligen Randes:

$$P(\Omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) \propto \sqrt{I(\omega_1)I(\omega_2)I(\omega_3)} \cdot \cos(\phi_{\text{CEO}}) \quad (4.2)$$

Weil die CEO-Phase aller beteiligten Photonen die gleiche ist — sie stammen alle aus demselben Lichtpuls — erbt auch das von der nichtlinearen Polarisation letztendlich abgestrahlte niederfrequente THz-Photon diese CEO-Phase. Da kürzere Lichtpulse ein breiteres optisches Spektrum besitzen, und damit mehr Intensität bei der Oktav-Breite zur Verfügung stellen können, wird auch mit dieser Beschreibungsweise die Abhängigkeit der erzeugten THz-Intensität von der Pulsdauer verständlich. Für eine vollständige Beschreibung dieses THz-Erzeugungsmechanismus sind allerdings noch die Beiträge der nichtlinearen Polarisations-

tionen höherer Ordnung zu berücksichtigen, die nach obiger Argumentation aber dieselbe Phasenabhängigkeit zeigen.

Bei dieser theoretischen Diskussion ist unberücksichtigt geblieben, dass das erzeugte Plasma nicht punktförmig ist. Wenn an verschiedenen Stellen entlang des fokussierten Lichtstrahls THz-Strahlung erzeugt wird, dann wird diese mit verschiedenen CEO-Phasen erzeugt. Denn die Dispersion des Lichtpulses durch das schon früher erzeugte Plasma (s. Kap. 1.2.2) und der Verlauf der Gouy-Phase des Lichts entlang des Fokus-Bereiches (s. Kap. 1.2.4) führen zu einer veränderlichen CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses. Die dadurch entstehende THz-Strahlung wäre damit eine Überlagerung von THz-Wellen verschiedener Phasenlage und die Stärke des THz-Signals wäre verringert. Doch wegen der hohen Ordnung der Nichtlinearität in der relevanten Einzelionisation bleibt das Plasma im Wesentlichen auf einen kleinen Bereich im Zentrum des Fokus beschränkt (vgl. Kap. 4.2.4). Durch das dort erzeugte Plasma wird außerdem die räumliche Phasenfront des propagierenden Lichtpulses soweit verzerrt, dass es hinter dem Fokus zu keinen weiteren Ionisationsprozessen kommen kann. Die räumliche Ausdehnung des Plasmas kann also nur zu einer kleinen, im nachfolgenden Experiment nicht nachweisbaren, Auswaschung dieses phasenabhängigen Effektes führen.

Diese theoretische Erläuterung der phasenabhängigen THz-Erzeugung folgt der Darstellung in [Kre06], wo auch einige weiterführende Details zu finden sind.

4.1.2 Experimenteller Aufbau

Von dem Licht aus dem Kapillar-Spiegel-Kompressor werden mittels einer breitbandigen Halbwellenplatte und eines Barium-Fluorid Substrats² zwei Teilstrahlen mit einigen μJ Pulsenergie abgezweigt. Einer dieser Teilstrahlen dient nach Durchlaufen einer weiteren breitbandigen Halbwellenplatte zur Bestimmung der CEO-Phase im f-2f-Interferometer für die ultrakurzen Lichtpulse (Kap. 3.3), der andere wird nicht verwendet. Der Hauptteil des Lichts mit einer Pulsenergie von $70 \mu\text{J}$ und einer Pulsdauer von ca. 8 fs erreicht über ein Periskop den optische Messaufbau zur phasenabhängigen THz-Erzeugung, der in Abbildung 4.3 dargestellt ist. Dieser Messaufbau ist auf einer Lochrasterplatte³ montiert.

Nachdem dort ein Strahlteiler einen kleinen Teil des Lichts abgetrennt hat, wird der Hauptteil mit einem Parabolspiegel in Luft fokussiert um ein Plasma zu erzeugen. Zuvor wird die Pulswiederholrate des Lichtstrahls mit einem Chopper-Rad exakt halbiert, um später eine Lock-in-Detektion verwenden zu können. Um den Fokus-Bereich des Plasmas herum sind zwei Elektroden montiert, mit denen alternativ eine Hochspannung angelegt werden kann, um eine Polarisation des Plasmas zu induzieren [Löf00].

Die im Luft-Plasma erzeugte THz-Strahlung wird mit einem weiteren Parabol-Spiegel kollimiert. Sie durchläuft eine Strahl-Blockade aus Papier und einer schwarzen Polyethylenfolie, die den optischen Anteil des Lichts absorbiert. Dann wird der THz-Puls in einen

²leicht gekeiltes Barium-Fluorid Substrat, Dicke 0,5 mm, Einfallswinkel 45° , Verwendung mit Licht in s-Polarisation

³Abmessungen des Messaufbaus für die THz-Erzeugung: $30 \text{ cm} \times 45 \text{ cm}$

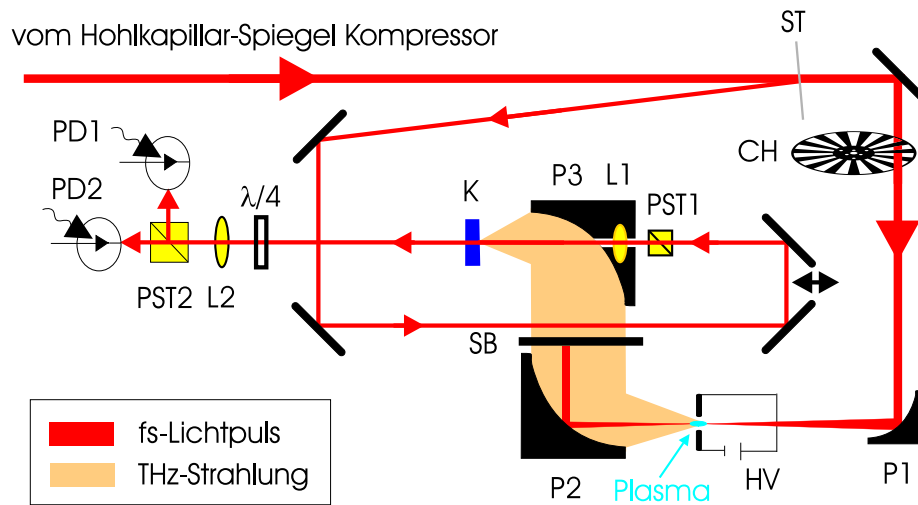


Abbildung 4.3: Aufbau zur Erzeugung von THz-Strahlung in einem Luft-Plasma und dessen Detektion. ST: einseitig AR-beschichtetes Glasplättchen als Strahlteiler, CH: Chopper-Rad ($f_{\text{Chopper}} = f_{\text{rep}}/2$), P1: Off-Axis Parabolspiegel ($f_{\text{eff}} = 76$ mm), HV: optionale externe Hochspannung, P2: Off-Axis Parabolspiegel ($f_{\text{eff}} = 50$ mm), SB: Strahl-Blockade für das Licht, PST1: polarisierender Strahlteilerwürfel, L1: Sammellinse, P3: Off-Axis Parabolspiegel ($f_{\text{eff}} = 50$ mm), K: ZnTe-Kristall, $\lambda/4$: Viertelwellenplatte, L2: Sammellinse, PST2: polarisierender Strahlteilerwürfel, PD1 und PD2: Silizium-Photodioden.

nichtlinearen Kristall fokussiert, in dem dessen quasi-statisches E-Feld über den Pockels-Effekt eine Doppelbrechung induziert. Diese induzierte Doppelbrechung wird von dem optischen Probestrahl abgefragt, der linear polarisiert zur gleichen Zeit in denselben Kristall fokussiert wird. Die Polarisationsdrehung des Probestrahls wird mit einer Viertelwellenplatte und zwei Photodioden an den beiden Ausgängen eines polarisierenden Strahlteilers detektiert. Diese THz-Detektionsmethode ist auch als *electro-optical sampling* bekannt.

Die Differenz der Spannungen an den beiden Photodioden ist somit proportional zu der Amplitude der erzeugten THz-Strahlung im Kristall zu dem Zeitpunkt als der Probepuls den Kristall erreichte. Diese kleine Spannungsdifferenz wird mit einem Lock-In-Verstärker gemessen, der zum Chopper-Rad synchronisiert ist.

4.1.3 Messergebnisse

In Abbildung 4.4 ist die gemessene Pulsform der im Luftplasma erzeugten THz-Strahlung dargestellt. Dieser Pulsverlauf entspricht dem erwarteten Einzyklenpuls mit einer Dauer von wenigen Pikosekunden (vgl. Fußnote 1). Für diese Messung wurde das erzeugte Plasma mit einer externen Hochspannung (HV in Abb. 4.3) stark polarisiert. Zwar könnte diese Messung auch ohne externe Spannung mit einem phasenstabilen Lichtpuls maximaler Asymmetrie ($\phi_{\text{CEO}} = 0$, „Kosinus-Puls“) durchgeführt werden, aber aufgrund der damit erreichbaren schwächeren Plasma-Polarisation und dem deshalb geringeren Signal-zu-Rausch Verhältnis bzw. der viel längeren Messzeit wurde hier darauf verzichtet.

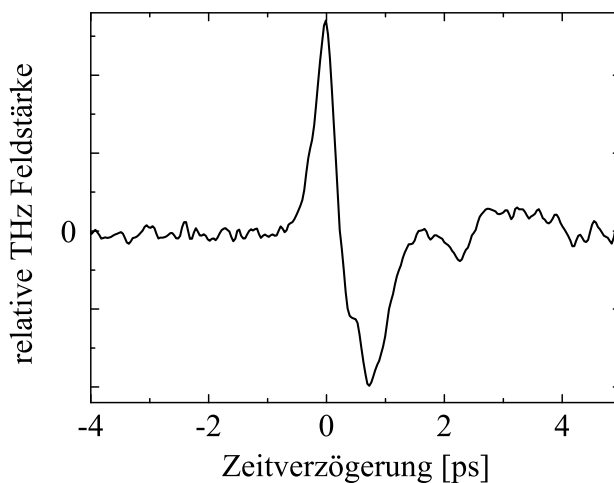


Abbildung 4.4: Messung des Zeitverlaufs eines THz-Pulses, wie er mit dem Aufbau aus Abbildung 4.3 und den ultrakurzen Lichtpulsen erzeugt wurde. (Hierzu wurde mit der externen Hochspannung HV künstlich eine große Ladungs-Asymmetrie im Plasma erzeugt.)

Bei der Messung wurde die zeitliche Verzögerung des optischen Probepulses mit einem Piezo-gesteuerten Verschiebetisch kontinuierlich variiert und jeweils das Signal des Lock-In-Verstärkers aufgezeichnet. Für die folgenden Messungen wurde der Verschiebetisch dann auf der Position des maximalen THz-Signals ($t \approx 0$ ps in Abb. 4.4) festgehalten.

Abbildung 4.5 zeigt die Messungen zum Nachweis der CEO-phasenabhängigen Erzeugung von THz-Strahlung im Luftplasma. Hierzu wurde die CEO-Phase der Lichtpulse langsam durchgeföhren und zeitgleich zu dem THz-Signal gemessen. Dabei wurde die Variation der CEO-Phase auf zwei unterschiedlichen Wegen erreicht: In Abbildung 4.5a wurde der Sollwert des Phasenregelkreises direkt hinter dem Multipass-Verstärker periodisch durchgeföhren, in Abbildung 4.5b wurde dieser Sollwert festgehalten und die CEO-Phase der ionisierenden Lichtpulse durch die Materialdispersion von Glaskeilen (GK in Abb. 2.7) verändert, deren effektive Dicke periodisch variiert wurde. Man erkennt in beiden Abbildungen deutlich die Modulation des THz-Signals in Abhängigkeit von der CEO-Phase der ionisierenden Lichtpulse.

Das Ergebnis einer Langzeitmessung mit periodischer Variation der CEO-Phase durch den Phasenregelkreis des Multipass-Verstärkers ist in Abbildung 4.6 gezeigt. Man erkennt, dass die vom dritten f - $2f$ -Interferometer gemessene CEO-Phase über die gesamte Messdauer von 73 Minuten korreliert bleibt zu dem THz-Signal. Damit wird bestätigt, dass diese dritte Phasenmessung auch in solchen langen Zeiträumen keiner Drift unterliegt (vgl. Kap. 3.3.4).

Für die Gesamtheit aller Messdaten der Langzeitmessung sind in Abbildung 4.7a die gemessene CEO-Phase des dritten f - $2f$ -Interferometers und das THz-Signal gegeneinander aufgetragen. Hierbei wurde ein konstanter Versatz von $\phi_0 = 0,8$ rad zwischen den beiden Messungen subtrahiert. Aus der Messung ergibt sich der Messfehler einer einzelnen 5-Sekunden Messung zu 35% der Maximalamplitude, bzw. eine Messungenauigkeit von ca.

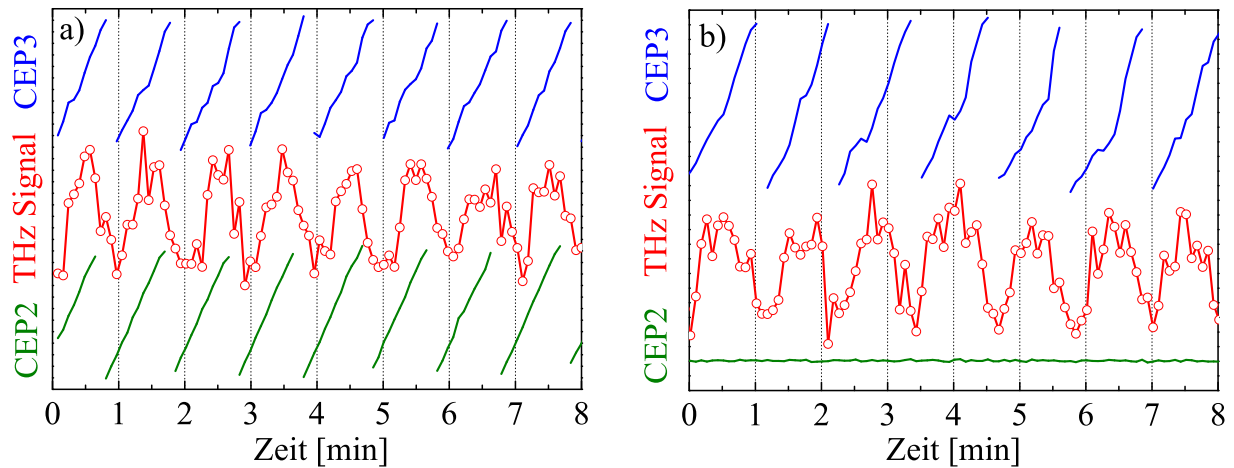


Abbildung 4.5: Gleichzeitige Messung der CEO-Phase der ultrakurzen Lichtpulse mit dem dritten $f-2f$ -Interferometer (CEP3) und Messung der Amplitude des erzeugten THz-Pulses. Man erkennt die Kosinus-förmige Abhängigkeit des THz-Signals von der CEO-Phase. **a)** Der Sollwert der Phasenregelung des Multipass-Verstärkers (CEP2) wird auf einer langsamen Rampe ($2\pi/\text{min}$) gefahren, die dritte CEO-Phasenmessung folgt dieser Rampe. **b)** Der Sollwert der Phasenregelung des Verstärkers (CEP2) wird konstant gehalten. Ein Paar Glaskeile direkt hinter dem Kapillar-Spiegel-Kompressor variieren die Dispersion im Strahlengang langsam, so dass dieselbe periodische Phasenänderung ($2\pi/\text{min}$) der ultrakurzen Pulse (CEP3) erreicht wird. (Die effektive Integrationszeit aller dargestellten Messwerte beträgt 5 s.)

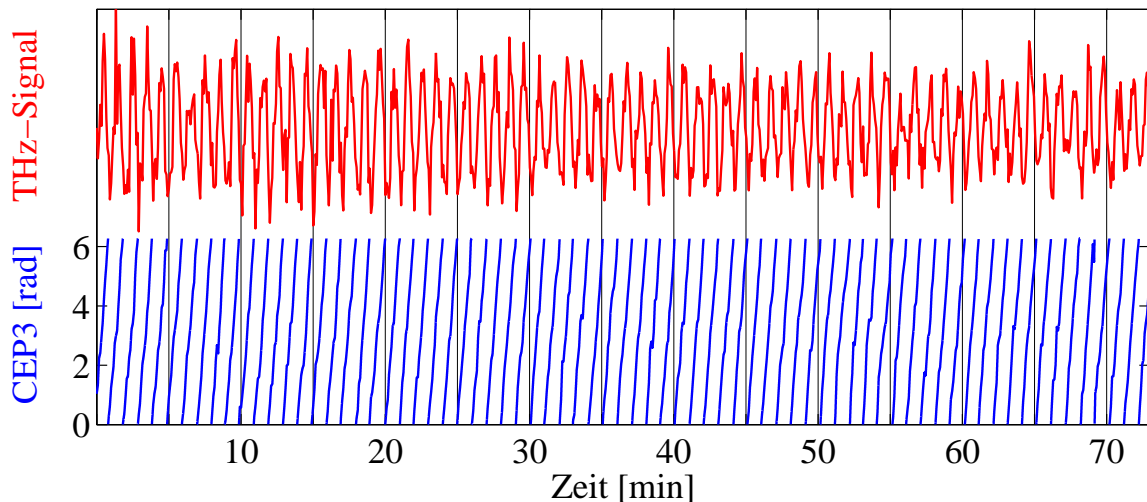


Abbildung 4.6: Langzeitmessung des THz-Signals und der CEO-Phase hinter dem Hohlkapillar-Spiegel-Kompressor (CEP3). Man erkennt, dass beide Messsignale über die gesamte Messdauer (73 min) korreliert bleiben und nicht gegeneinander driften. (Die effektive Integrationszeit beider Messungen beträgt 5 s.)

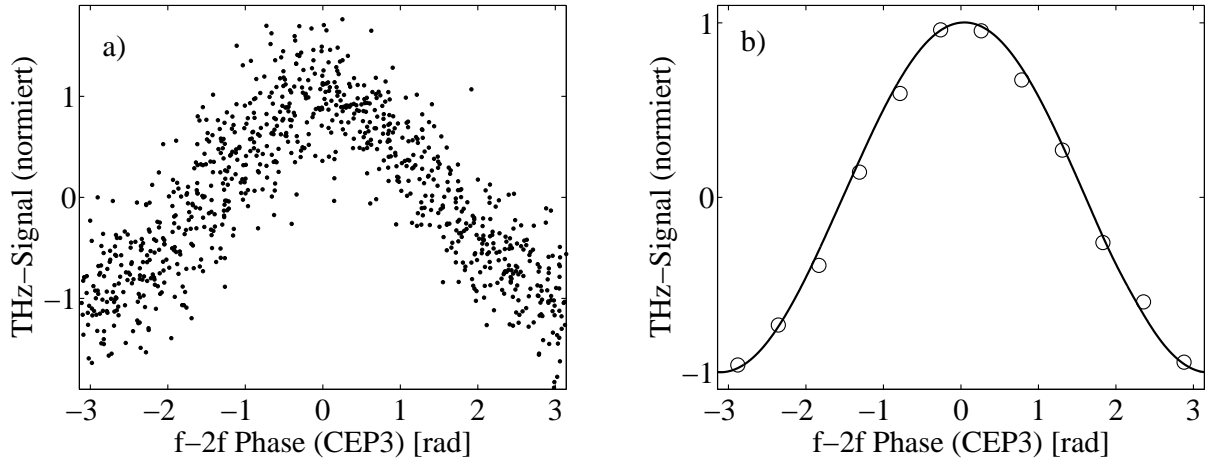


Abbildung 4.7: gemessene Abhängigkeit des THz-Signals von der CEO-Phase der ultrakurzen Lichtpulse (CEP3). Der Kosinus-förmige Verlauf entspricht dem vorgestellten Modell. Als Linie eingezeichnet ist der normierte Asymmetrie-Parameter R_p^∞ eines 8-fs-Pulses. **a)** Alle Messwerte der 73-minütigen Zeitreihe (s. Abb. 4.6) mit 5 s effektiver Integrationszeit. Hieraus ergibt sich bei dieser Integrationszeit eine Standardabweichung zwischen $\cos(\phi_{\text{CEP3}})$ und der normierten THz-Amplitude von $\sigma = 0,35$, also einem „Messfehler“ der Einzelmessung von $\pm 35\%$ der Maximalamplitude. **b)** Mittelung der Messdaten aus a) über ein CEP3-Intervall von 0,5 rad. Der Radius der Messpunkte stellt die erreichte Messgenauigkeit dieses Mittelwertes von $\pm 4\%$ der Maximalamplitude dar. Die Messung stimmt im Rahmen dieser Messgenauigkeit mit der dargestellten Theorie-Kurve überein.

0,35 rad mit der man aus der gemessenen THz-Amplitude in 5 Sekunden die CEO-Phase des Lichtpulses bestimmen könnte (vgl. folgender Abschnitt).

In Abbildung 4.7b werden die gemittelten Werte der gesamten Messung verglichen mit der theoretischen Vorhersage der phasenabhängigen THz-Erzeugung aus Abschnitt 4.1.1 mit einem 8 fs langen Lichtpuls. Hierzu wurden beide Kurven auf ihren Maximalwert normiert und die Werte der dritten Phasenmessung (CEP3) um einen konstanten Wert auf die „absolute Phase“ verschoben. Man erkennt, dass die durchgeführte Messung im Rahmen der Messgenauigkeit mit der Theorie übereinstimmt.

Für die Auswertung der dargestellten THz-Signale wurde jeweils eine langsame Verschiebung ($t > 3$ min) der durchschnittlichen Ausgangsspannung aus dem Lock-In-Verstärker nachträglich korrigiert. Dieses technische Problem bei der Detektion kleiner Spannungssignale mit einem Lock-In-Verstärker über lange Zeiträume ist bekannt. Für stärkere THz-Spannungssignale, wie sie mit kürzeren Lichtpulsen erzeugt werden können, wird diese Verschiebung schnell bedeutungslos. Wird die Auswertung der Messdaten für Abbildung 4.7b ohne die nachträgliche Korrektur dieser Langzeitdrift durchgeführt, so ergibt sich ebenfalls eine gute Übereinstimmung mit der Theorie-Kurve, lediglich die resultierende Messgenauigkeit vergrößert sich dann ein wenig (von $\pm 4\%$ auf $\pm 5\%$).

4.1.4 Diskussion der Messergebnisse

Mit der dargestellten Messung der phasenabhängigen THz-Erzeugung im Luft-Plasma konnte gezeigt werden, dass die CEO-Phase des im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Lasersystems auch für Zeiträume über eine Stunde hinaus konstant gehalten werden kann. Die RMS-Abweichung der CEO-Phase von ihrem einstellbaren Sollwert ist für diese langen Zeiträume ($5 \text{ s} < t < 73 \text{ min}$) kleiner als $0,35 \text{ rad}$.

Weiterhin wurde mit dieser Messung eine neuartige Methode zur Bestimmung und zur Langzeit-Stabilisierung der „absoluten“ Phase von ultrakurzen Lichtpulsen erstmals demonstriert. Verglichen mit der hierfür etablierten Technik des Stereo-ATI Spektrometers [Liu04, Sch04, Pau05a, Pau05b] birgt diese Methode einige Vorteile: Es wird zum einen nur ein vergleichsweise kleiner optischer Aufbau benötigt anstatt einer Vakuum-Kammer und zwei Elektronen-Detektoren bei der Stereo-ATI Methode.

Weiterhin ist hier die Theorie konzeptionell einfacher, um aus dem Messsignal die „absolute“ Phase der Lichtpulse zu bestimmen. Bei der theoretischen Beschreibung der ATI (*above threshold ionisation*) eines isolierten Atomes muss die kohärente Bewegung des ionisierten Elektrons im elektrischen Feldes der Lichtpulses bis zu einer eventuellen Rekollision mit dem Mutterion berechnet werden (vgl. Kap. 4.2.1). Die dargestellte Theorie der THz-Erzeugung (s. Kap. 4.1.1) ist einfacher, weil der kohärenten Bewegung der ionisierten Elektronen hier bei Normaldruck durch baldige Stöße mit den umgebenden Gasatomen ein Ende gesetzt wird.

Die dargestellte Messung zeigt nur die Möglichkeit einer „absoluten“ Phasenmessung durch THz-Erzeugung in einem Luftplasma auf. Es sind noch weitreichende Verbesserungen der Qualität des Messsignals zu erwarten. Doch schon jetzt wurde mit dieser Technik ein vergleichbares Signal-zu-Rausch Verhältnis erzielt, wie es bei der ausgereiften Stereo-ATI Methode üblich ist: Der Messfehler einer 10-sekündigen Einzelmessung⁴ betrug hier $\sigma = 250 \text{ mrad}$ mit einem Lichtpuls von 8 fs Dauer. Die Stereo-ATI Methode erzielt mit einem vergleichbaren Lasersystem in derselben Messzeit eine typische Messgenauigkeit [Pau05a] von⁵ $\sigma = 33 \text{ mrad}$ mit einer Pulsdauer von $6,5 \text{ fs}$. Beachtet man die zu erwartende Verbesserung des THz-Messsignals um einen Faktor 4 (s. Abb. 4.2b) für Lichtpulse mit nur $6,5 \text{ fs}$ statt 8 fs Dauer, so ist diese Messtechnik der etablierten Stereo-ATI Methode schon jetzt um weniger als einen Faktor 2 unterlegen. Der prinzipielle Vorteil der THz-Phasenmessung besteht dabei darin, dass bei Normaldruck viel mehr Atome zur Signalerzeugung beitragen können und dabei eine wesentlich bessere Statistik erreicht werden kann als in einem stark verdünnten Gas wie es für die Detektion von Photoelektronen bei der Stereo-ATI Methode nötig ist (vgl. Diskussion zur Messgenauigkeit in [Pau05a]).

Der Pulsenergiebedarf der dargestellten THz-Messmethode für die „absolute“ Phase betrug $70 \mu\text{J}$, verglichen mit einem typischen Bedarf der ATI-Methode von $20 \mu\text{J}$ [Pau05a].

⁴Der Messfehler einer Einzelmessung mit 5 -sekündiger Dauer betrug $0,35 \text{ rad}$ (s. Abb. 4.7). Damit errechnet sich der Messfehler einer 10 -sekündigen Messung zu $\sigma = 0,35 \text{ rad}/\sqrt{2} \approx 250 \text{ mrad}$.

⁵Die in [Pau05a] angegebene typische Messgenauigkeit der Stereo-ATI Methode beträgt $3\sigma = 100 \text{ mrad}$ für eine 10 -sekündige Messung mit einem Lichtpuls aus einem Multipass-Verstärker und einer Pulsdauer von $6,5 \text{ fs}$.

Das ist nur ca. die Hälfte der Pulsenergie des aktuell aufgebauten Kapillar-Spiegel-Kompressors (vgl. Kap. 2.3.4). Die verbleibenden $80 \mu\text{J}$ sind für viele Experimente voll ausreichend, wie z. B. für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Ionisationsexperimente (Kap. 4.2). Für Ultrakurzpuls-Lasersysteme mit größerer Pulsenergie (z. B. [Liu04]) verbliebe eine dementsprechend größere Pulsenergie für die Experimente.

Das Signal-zu-Rausch Verhältnis dieser Messmethode kann durch bessere Detektion des THz-Signals weiter vergrößert werden: Die bisher zur Messung des Photodiodenstroms verwendete Lock-In-Technik ist für die vorhandenen Signale mit kHz-Repetitionsrate und μs -Strompulsen nicht optimal. Mit einer Box-Car Integrations-Technik könnte die Differenz der Photodiodenimpulse in ihrem gesamten Verlauf in einen Computer eingelesen werden und dort, durch das Chopper-Rad alternierend, zu einem THz-Wert und einem Referenzwert integriert werden. Damit würde der gesamte von der THz-Welle periodisch erzeugte Strompuls detektiert und nicht nur sein Sinus-Anteil bei der Frequenz des Chopper-Rades; eine deutliche Vergrößerung des Messsignals wäre die Folge.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass mit dem dargestellten Experiment erstmals die CEO-phasenabhängige Erzeugung von THz-Strahlung in einem Luftplasma gezeigt werden konnte. Das gemessene THz-Signal stimmt im Rahmen der Messgenauigkeit mit den Vorhersagen des skizzierten Modells überein. Diese Messung eignet sich zur Bestimmung der „absoluten“ Phase von hochintensiven ultrakurzen Lichtpulsen und ist schon jetzt konkurrenzfähig zur dafür etablierten Messmethode der Stereo-ATI. Weiterhin stellt dieser Effekt die erstmalige optische Gleichrichtung (*down-conversion*) in einem räumlich isotropen Medium dar, die Symmetrie wird hier vom phasenstabilen Lichtpuls selbst gebrochen.

4.2 Einzel- und Doppelionisation von Neon

Dieser Abschnitt beschreibt die zweite phasenabhängige Messung, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurde. Hierbei wurde der Hauptteil des Lichts aus dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (Kap. 2.3) in ein „Reaktionsmikroskop“ fokussiert und dort die Photoionisation eines kalten Neon-Gasstrahls ausgelöst. Die resultierenden Energien und Impulse aller Fragmente dieses Ionisationsprozesses können in dem Aufbau simultan gemessen werden. Da weiterhin die CEO-Phase der ionisierenden Lichtpulse mit dem dritten f-2f-Interferometer (Kap. 3.3) bestimmt und mitprotokolliert wurde, konnte dabei erstmalig die CEO-Phasenabhängigkeit der Einzelionisation und der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon beobachtet werden.

Im Folgenden wird zuerst der theoretische Hintergrund der beobachteten Ionisationsprozesse kurz skizziert. Dann wird der experimentelle Aufbau beschrieben, und abschließend werden die Messergebnisse dargestellt und diskutiert.

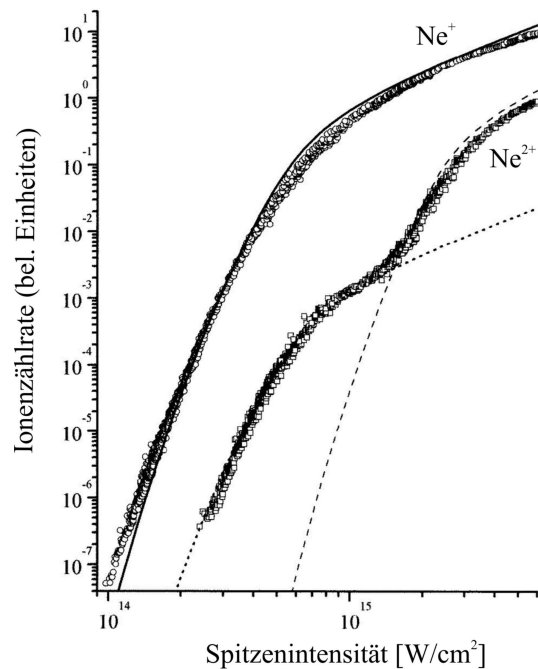


Abbildung 4.8: Integrale Ionenzählrate der Photoionisation von Neon-Atomen. Intensitätsabhängigkeit der Einzelionisations- (Ne^+) und Doppelionisationsrate (Ne^{2+}). Die erhöhte Doppelionisationsrate bei kleinen Intensitäten geht auf die nichtsequentielle Doppelionisation zurück. (Messung mit einem 200 fs Lichtpuls bei 800 nm Zentralwellenlänge. Daten aus [Lar98]. Dort werden auch die eingezeichneten Kurven der ADK-Theorie näher erläutert.)

4.2.1 Theorie der Einzelionisation

Für die Photoionisation von Edelgas-Atomen sind bei der verwendeten Lichtwellenlänge von 800 nm mehrere Photonen nötig⁶. Bei dieser Multiphotonen-Ionisation können je nach Lichtintensität verschiedene Prozesse stattfinden (s. Übersichtsartikel [Pro97]), diese starke Intensitätsabhängigkeit drückt sich auch in der beobachteten Ionisationsraten aus (s. Abb. 4.8). Zur Orientierung ist der Keldysh-Parameter $\gamma := \sqrt{I_p/2U_p}$ hilfreich [Kel65], hierbei ist I_p das Ionisationspotential des betrachteten Atoms⁷ und U_p die weiter unten definierte Zitterenergie oder ponderomotive Energie, die proportional ist zur Lichtintensität. Dieser Parameter γ kann interpretiert werden als Quotient aus der Tunnelzeit des Elektrons und der Periodendauer ($T = 2\pi/\omega$) des Lichts.

Für kleine Lichtintensitäten ($\gamma \gg 1$) dominiert das elektrische Potential des Atomkerns über das des Lichtfeldes. Der Ionisationsprozess kann im Photonen-Bild beschrieben werden: Ein Elektron wird ionisiert, indem es mehrere Photonen absorbiert und damit die Energiebarriere I_p überwindet. Bei dieser Multiphotonen-Ionisation können auch mehr Photonen als nötig absorbiert werden, diese zusätzlich aufgenommene Energie macht sich dann als diskrete Struktur im Energiespektrum der Photoelektronen bemerkbar. Dann spricht man von *above threshold ionisation* (ATI, s. Übersichtsartikel [Ebe88]).

Für große Lichtintensitäten ($\gamma \ll 1$) dagegen dominiert das äußere Lichtfeld über das Feld des Atomkerns. Die Tunnelzeit des Elektrons ist jetzt kürzer als die Schwingungspe-

⁶Für die Einzelionisation von Neon ($I_p = 21,6$ eV) sind bei einer Wellenlänge von 800 nm ($E_{\text{Photon}} = 1,55$ eV) 13 Photonen nötig.

⁷Das Ionisationspotential von Neon beträgt $I_p = 21,6$ eV = 0,8 au. Damit ist der Keldysh-Parameter $\gamma = 1$ bei einer Lichtintensität von $0,2$ PW/cm² (mit einer Lichtwellenlänge von $\lambda = 800$ nm). Die ponderomotive Energie beträgt dann $U_p = 0,4$ au = 10,8 eV.

riode des Lichts, so dass das Elektron bei quasi-statischem Lichtfeld die Barriere durchtunneln kann. Diesen Vorgang nennt man Tunnelionisation.

Im mittlere Intensitätsbereich ($\gamma \sim 1$) gehen die beiden Beschreibungsweisen ineinander über und führen zu komplexen Vorgängen während des Ionisationsprozesses. In diesem Intensitätsbereich liegen die in dieser Arbeit durchgeführten Ionisations-Experimente, wobei es üblich ist, den ersten Ionisationsvorgang weiterhin mit dem einfacheren Prozess der Tunnelionisation zu beschreiben.

Im Bereich der Tunnelionisation kann der Ionisationsprozess im Rahmen der *strong field approximation* mit dem semiklassischen *simple man's model* [Cor93, Feu00] durch zwei aufeinanderfolgenden Prozesse beschrieben werden: Zuerst tunnelt ein Elektron zu einer gegebenen Zeit t_0 im quasi-statischen E-Feld des Lichtes durch die Barriere. Die quasistatische Ionisationswahrscheinlichkeit der weit verbreiteten ADK-Theorie [Amm86] hat dabei in atomaren Einheiten (s. Anhang B) die Form

$$w_{\text{DC}}(t) \propto \exp \left[\frac{-2(2I_p)^{3/2}}{3E(t)} \right]. \quad (4.3)$$

Danach wird das ionisierte Elektron im zweiten Schritt als freies Teilchen im E-Feld des Lichts klassisch beschrieben. Nimmt man das Lichtfeld an als $E(t) = E_0(t) \cdot \sin(\omega t)$, dann lautet die Bewegungsgleichung $m\ddot{z} = qE(t) = qE_0(t) \cdot \sin(\omega t)$ mit der Ladung q und der Masse m des Elektrons und der langsam veränderlichen Einhüllenden $E_0(t)$. Hierbei wird nur die Bewegung des Elektrons in Richtung der linearen Lichtpolarisation (z -Richtung) betrachtet.

Löst man diese einfache Bewegungsgleichung für eine konstante Einhüllende E_0 und verschwindende Anfangsgeschwindigkeit des Elektrons, so ergibt sich die folgende Bewegung des Elektrons im Lichtfeld (vgl. Abb. 4.10): Je nach Ionisationszeitpunkt t_0 erhält das Elektron eine Driftgeschwindigkeit. Und unabhängig von diesem Zeitpunkt führt das Elektron — solange das Lichtfeld noch schwingt — zusätzlich eine Zitterbewegung aus. Die mittlere kinetische Energie dieser Zitterbewegung beträgt (in atomaren Einheiten) $U_p := E_0^2/4\omega^2$ und wird auch ponderomotive Energie genannt. Die Driftenergie hängt vom Ionisationszeitpunkt ab und beträgt maximal $2U_p$.

Mit diesem Modell ergibt sich daher für die hier verwendeten „kurzen“ Lichtpulse⁸ eine maximal mögliche End-Energie des Photoelektrons von $2U_p$. Mit einer Ionisationswahrscheinlichkeit wie in Gleichung 4.3, die stark von der Feldstärke abhängt, sollte die Mehrzahl der Elektronen zum Zeitpunkt maximaler Feldstärke freigesetzt werden und damit eine verschwindend kleine Driftenergie erhalten (vgl. Abb. 4.10).

In Abbildung 4.9 ist die gemessene Verteilung der Elektronenenergien nach der Einzelionisation von Neon-Atomen dargestellt. Man erkennt, dass eine gaußförmige Verteilung um die Energie Null herum die Messdaten gut beschreibt, wie obige Diskussion erwarten lässt. Allerdings werden auch höherenergetische Elektronen jenseits von $2U_p$ beobachtet, deren Entstehung mit dem vorgestellten einfachen Modell noch nicht erklärt werden kann.

⁸„Kurz“ sind in in diesem Sinne Lichtpulse, die abgeklungen sind, noch bevor die atomaren Fragmente den Bereich des Lichtfokus verlassen können. In diesem Fall kann kein adiabatischer Übertrag der ponderomotiven Zitterenergie U_p auf die finale kinetische Energie der Fragmente erfolgen.

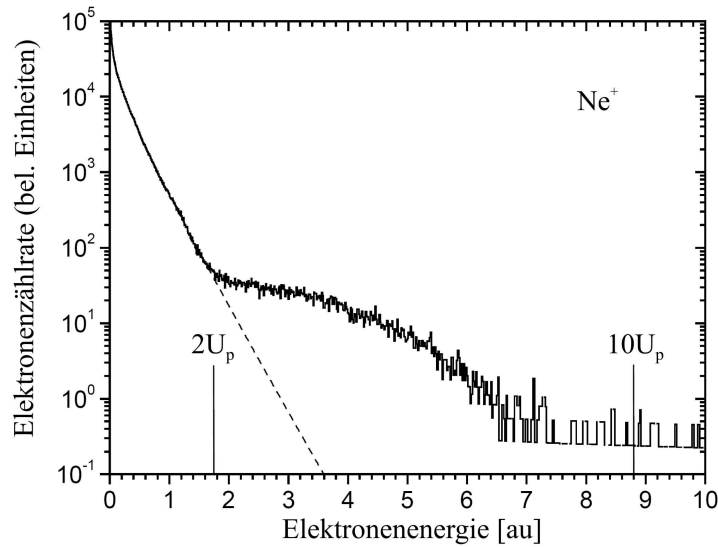


Abbildung 4.9: Einzelionisationsrate von Neon-Atomen in Abhängigkeit von der Elektronenenergie. Die gestrichelte Linie ist ein Gauß-Fit. Die Elektronenenergien jenseits von $2U_p$ entstehen durch Rekollisions-Prozesse. (Die Messung wurde durchgeführt mit 23 fs Lichtpulsen einer Zentralwellenlänge von 795 nm bei einer Spitzenintensität von $0,4 \text{ PW/cm}^2$. Daten aus [Jes04a].)

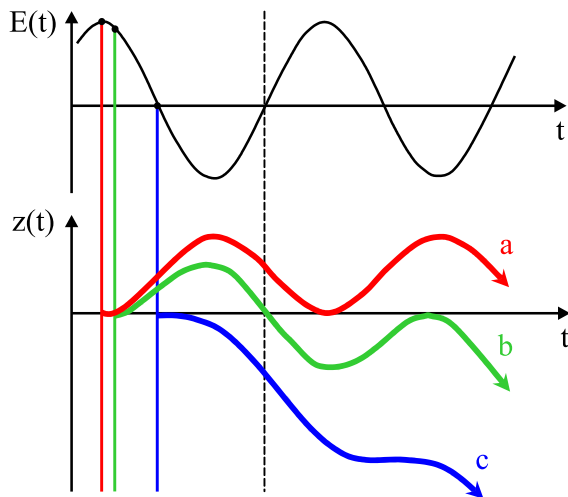


Abbildung 4.10: Klassische Bewegung eines geladenen Teilchens im periodischen Feld des Lichtes $E(t) = E_0 \sin(\omega t)$. **a)** Das Teilchen wird zum Zeitpunkt höchster Feldstärke ($\phi = 90^\circ$) freigesetzt. Es oszilliert ohne Driftgeschwindigkeit um seine Ruhelage, mit einer mittleren kinetischen Energie von U_p . **b)** Das Teilchen wird kurz nach der maximalen Feldstärke ($\phi \approx 107^\circ$) freigesetzt. Es passiert seinen Entstehungsort ($z = 0$) noch einmal mit der maximal möglichen kinetischen Energie von $E_{\text{kin}} \approx 3,17 U_p$ zum Zeitpunkt eines sehr kleinen elektrischen Feldes. **c)** Das Teilchen wird beim Nulldurchgang des Feldes ($\phi = 180^\circ$) erzeugt. Es kehrt nicht mehr zum Entstehungsort zurück und erhält die maximal mögliche Driftenergie von $2U_p$. (Def. $U_p := q^2 E_0^2 / 4m\omega^2$)

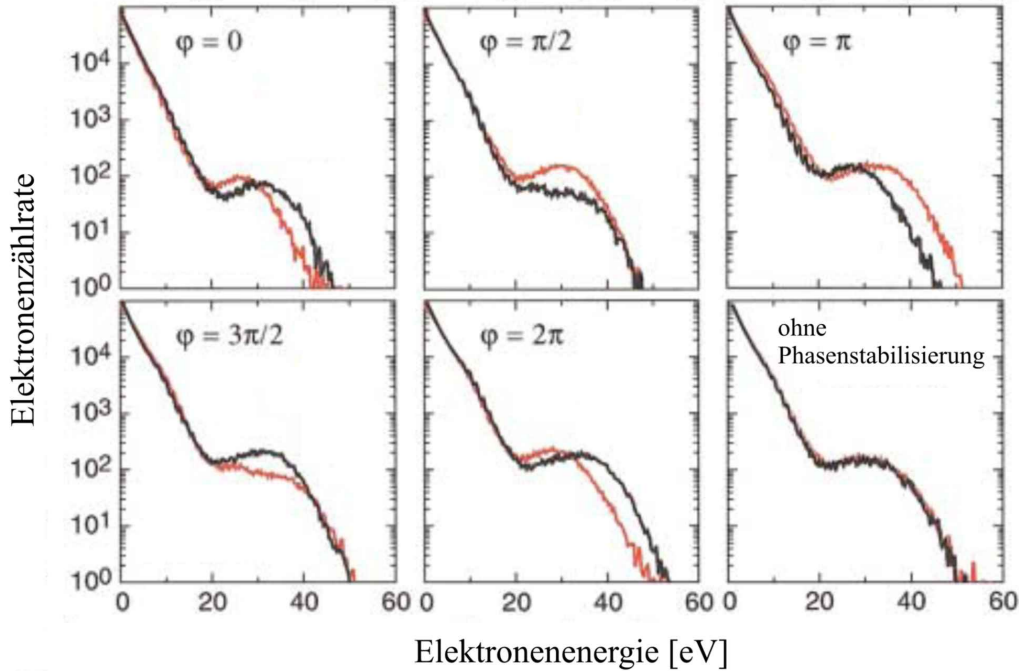


Abbildung 4.11: Photoelektronenspektren bei der Einfach-Ionisation (*above threshold ionisation*, ATI) von Xenon-Atomen. Die schwarze Linie zeigt die Elektronen, die den linken Elektrodendetektor erreichen, die rote Linie zeigt die Elektronen, die den rechten Detektor erreichen („Stereo-ATI“). Man erkennt wie die Zählrate der Plateau-Elektronen stark von der CEO-Phase φ des ionisierenden Lichtpulses abhängt. (Die Messung wurde durchgeführt mit 5 fs Lichtpulsen einer Zentralwellenlänge von 760 nm bei einer Spitzenintensität von $0,1 \text{ PW/cm}^2$. Daten aus [Pau03].)

Betrachtet man gedanklich allerdings die Photoelektronen genauer, die kurz nach der Feldspitze des Lichtpulses ($\phi \approx 107^\circ$, Abb. 4.10b) ionisiert werden und mit hoher Geschwindigkeit ($E_{\text{kin}} \approx 3,17 U_p$) nochmals am Ort des Mutterions vorbeikommen, dann wird deutlich, dass diese dort elastisch gestreut werden können unter einem Winkel von bis zu 180° . Damit können sie im für sie jetzt umgepolten Feld, das sich nahezu im Nulldurchgang befindet (vgl. Abb. 4.10c), noch einmal maximal beschleunigt werden und gewinnen zusätzlichen Driftimpuls von bis zu $\sqrt{2m_e \cdot 2U_p}$. Ihre maximale Endenergie beträgt daher⁹ $E_{\text{kin}} \approx 10 U_p$, damit kann das Plateau der Photoelektronen in Abbildung 4.9 jenseits von $2 U_p$ erklärt werden.

Die Richtung, die das ionisierte Elektron nach dieser Rekollision mit seinem Mutterion erhält, hängt davon ab, in welche Richtung dieses Elektron ursprünglich vom Lichtfeld beschleunigt wurde. Diese Beschleunigungsrichtung kann mit der Feldrichtung des Lichtpulses zum Zeitpunkt der Tunnelionisation und damit mit der CEO-Phase des Lichtes eingestellt werden. So wird verständlich, wieso die Emissionsrichtung der Plateau-Elektronen von

⁹ $E_{\text{kin}} = p^2/2m_e = (\sqrt{2m_e \cdot 2U_p} + \sqrt{2m_e \cdot 3,17 U_p})^2/2m_e \approx 10 U_p$

der CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses abhängt, wie es in Abbildung 4.11 dargestellt ist. Auch die Emissionsrichtung der häufigeren niederenergetischen Photoelektronen in Abbildung 4.11 hängt von der CEO-Phase ab, jedoch weniger stark. Diese Asymmetrie ergibt sich direkt aus der intensitätsabhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit (Gl. 4.3, vgl. Kap. 4.1.1) bei einem räumlich asymmetrischen, ionisierenden Lichtpuls mit stabiler CEO-Phase.

Die räumlichen Asymmetrien in den Zählraten der Einfachionisation werden in dem im Abschnitt 4.1.4 diskutierten „Stereo-ATI Spektrometer“ dazu genutzt, die „absolute“ Phase der ionisierenden Lichtpulse zu bestimmen. Dabei gilt es aber zu beachten, dass je nach betrachteter Photoelektronenenergie die maximale Asymmetrie mit Lichtpulsen unterschiedlicher „absoluter“ Phase erreicht wird und dass die Form der beobachteten Spektren vom verwendeten Target-Atom abhängt. Deshalb muss zur Bestimmung der CEO-Phase aus diesen Spektren auf eine theoretische Simulation des Ionisationsprozesses vertraut werden.

4.2.2 Theorie der nichtsequentiellen Doppelionisation

Die Doppelionisation von Atomen im Lichtfeld ist weitaus komplexer als die Einfachionisation (s. Übersichtsartikel [Dör04]). Als erste Näherung kann die Doppelionisation als Abfolge von zwei unabhängigen Einzelionisationen beschrieben werden, der sogenannten „sequentiellen Doppelionisation“. Bei hohen Lichtintensitäten wird damit der Doppelionisationsprozess gut beschrieben, aber bei kleineren Intensitäten wird so die Ionisationsrate um Größenordnungen unterschätzt (s. Abb. 4.8).

Bei diesen niedrigen Lichtintensitäten findet hauptsächlich ein andersartiger Doppelionisationsprozess statt, die „nichtsequentielle Doppelionisation“. Deren Haupteigenschaften können mit dem oben erwähnten Rekollisionsmodell [Cor93] gut beschrieben werden: Das erste Elektron durchtunnelt die Barriere im quasistatischen Lichtfeld, und wird danach als freies klassisches Teilchen im elektrischen Feld des Lichtes stark beschleunigt. In einem dritten Schritt passieren einige dieser Elektronen (Abb. 4.10b) mit hoher kinetischer Energie den Aufenthaltsort ihres Mutterions und können dieses durch Stoß entweder in einen angeregten Zustand versetzen oder sogar ein zweites Elektron freisetzen. Zum Zeitpunkt dieser zweiten Ionisation befindet sich das Lichtfeld nahe bei seinem Nulldurchgang, das zweite Elektron erhält also den maximal möglichen Driftimpuls vom Feld (Abb. 4.10c). Es sei noch bemerkt, dass dieser Rekollisionsprozess nur bei Photoionisation mit exakt linear polarisiertem Licht möglich ist, ansonsten verfehlt das zuerst ionisierte Elektron sein Mutterion.

Dieses Modell der nichtsequentiellen Doppelionisation beschreibt gut die beobachteten Impulsspektren von Neon-Ionen nach Doppelionisation in Abbildung 4.12. Die Doppelhückerstruktur stammt daher, dass das Ion bei dem beschriebenen Prozess den Rückstoßimpuls von zwei Elektronen aufammelt, die in dieselbe Richtung emittiert werden, deshalb trägt es vorzugsweise einen nicht-verschwindenden Endimpuls davon.

Mit diesem Rekollisionsmodell wird auch die Abhängigkeit der Ionenimpulse bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von der CEO-Phase des ionisierenden Lichtpulses

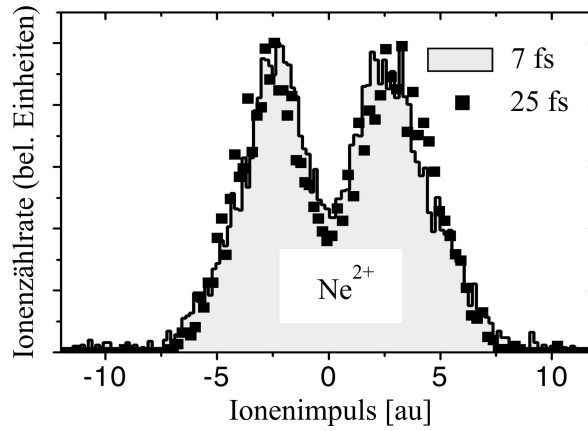


Abbildung 4.12: Doppelionisationsrate von Neon-Atomen in Abhängigkeit vom Longitudinal-Impuls der erzeugten Ne^{2+} -Ionen. Diese Doppelhückerstruktur ist charakteristisch für die nichtsequentielle Doppelionisation. (Die Messung wurde durchgeführt mit 25 fs und 7 fs Lichtpulsen einer Zentralwellenlänge von ca. 800 nm bei einer Spitzenintensität von $0,8 \text{ PW/cm}^2$. Daten aus [Rud04].)

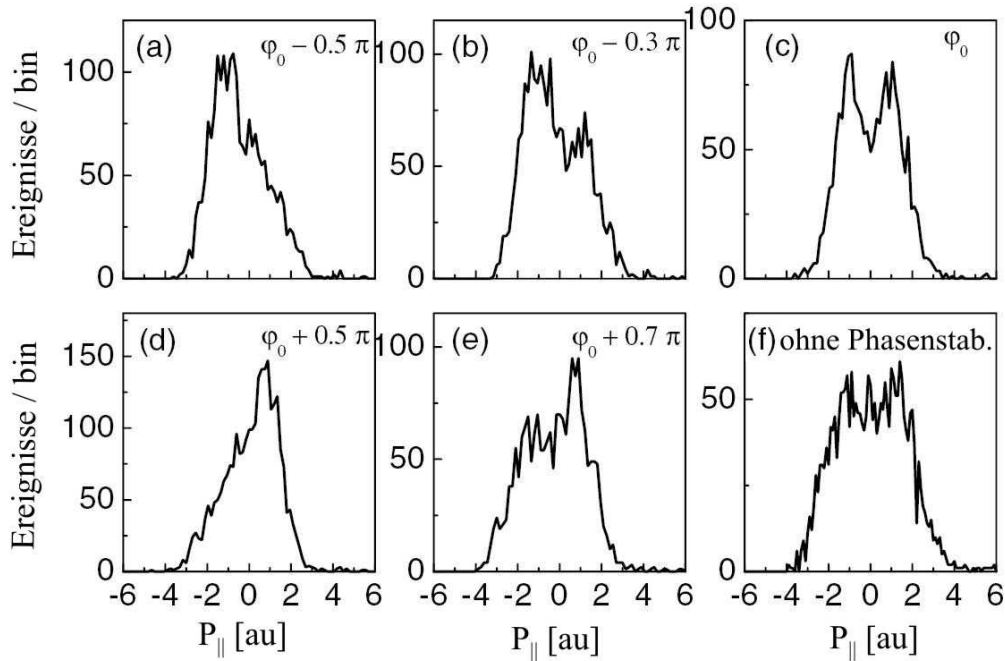


Abbildung 4.13: Doppelionisationsrate von Argon-Atomen in Abhängigkeit vom Longitudinal-Impuls des Ions im Bereich der nichtsequentiellen Doppelionisation für (a)-(e) unterschiedliche CEO-Phasen des ionisierenden Lichtpulses und (f) ohne Stabilisierung der CEO-Phase. (Die Messung wurde durchgeführt mit 5-fs-Pulsen einer Zentralwellenlänge von 760 nm und einer Spitzenintensität von $0,35 \text{ PW/cm}^2$. Daten aus [Liu04].)

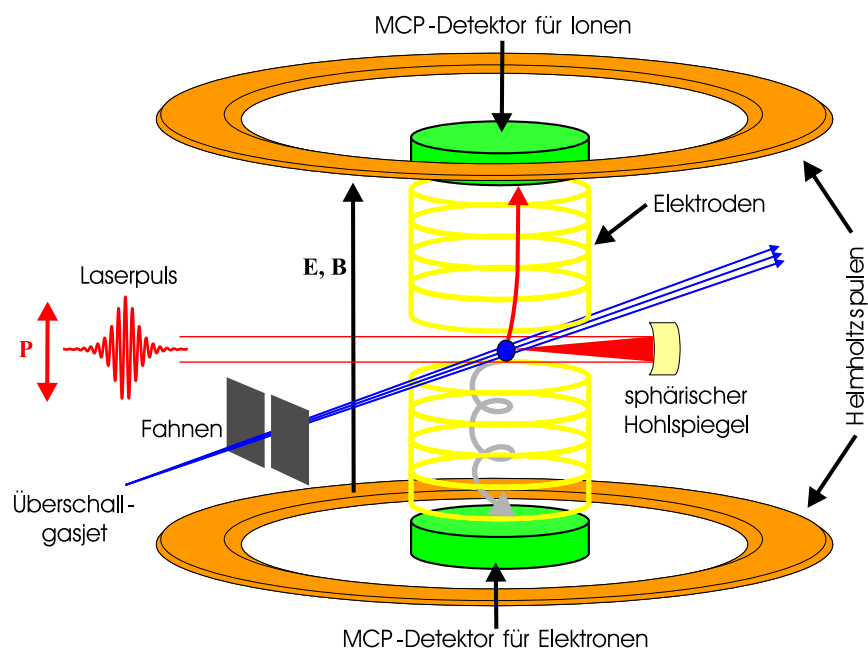


Abbildung 4.14: Schematischer Aufbau des Reaktionsmikroskops: In einer Vakuumkammer wird ein kurzer Lichtpuls in einen kalten Gasstrahl fokussiert. Die Ionisationsfragmente werden mit elektrischen und magnetischen Feldern auf zwei ortsempfindliche Detektoren gelenkt, wo ihr Auftreffort und ihre Flugzeit registriert werden. Mit den beiden Fahnen kann der Atomstrahl auf einen kleinen Raumbereich vor dem Lichtfokus eingeschränkt werden. (Druck in Reaktionskammer: 2×10^{-11} mbar, verwendete Absaugspannung $E = 2$ V/cm, Magnetfeld $G = 5$ Gauß, Beschleunigungsstrecke 30 cm (Ionen) und 20 cm (Elektronen), Vielkanaldetektoren (MCPs) mit \varnothing 127 mm (Ionen) und \varnothing 86 mm (Elektronen), dahinter ortsempfindliche *delay lines* der Firma Roentdek, Temperatur des Gasstrahls ≈ 1 mK durch Überschallexpansion an $30 \mu\text{m}$ Düse und nachfolgender Kollimation durch zwei Skimmer mit $200 \mu\text{m}$ und $400 \mu\text{m}$ Durchmesser im Abstand von 2,1 m, Brennweite des sphärischen Gold-Hohlspiegels $f = 75$ mm.)

verständlich, wie sie in Abbildung 4.13 dargestellt ist. Bei ultrakurzen Lichtpulsen mit nur wenigen Zyklen findet der erste Ionisationsprozess hauptsächlich in der stärksten Feldspitzen des Pulses statt und die Richtung des beschleunigenden Lichtfeldes kann deshalb mit der CEO-Phase eingestellt werden (vgl. Kap. 4.1.1). Daher ist auch die Flugrichtung dieses Elektrons bei der Rekollision und folglich die Emissionsrichtung des zweiten Elektrons (und damit die des doppelt geladenen Ions) von der CEO-Phase abhängig.

4.2.3 Messaufbau: Das Reaktionsmikroskop

Um im Rahmen dieser Arbeit die Energien und Impulse der Ionisationsfragmente zu bestimmen, wurde ein sogenanntes „Reaktionsmikroskop“ verwendet. Die zugrunde liegende Messtechnik hat sich in vielen unterschiedlichen Messungen bewährt und ist auch als COLTRIMS (*cold target recoil ion momentum spectroscopy*) bekannt. Sie soll in diesem Abschnitt nur kurz skizziert werden (Übersichtsartikel in [Ull03, Jes04b]).

Abbildung 4.14 zeigt schematisch den Aufbau des verwendeten Reaktionsmikroskops. In einer Vakuumkammer wird ein Lichtstrahl in einen kalten Gasstrahl fokussiert. Die Dichte des Gasstrahls ist so eingestellt, dass sich höchstens ein einzelnes Atom im Fokusbereich befindet. Senkrecht zu diesen beiden Strahlen, entlang der sog. Spektrometerachse, werden die erzeugten Ionen und Elektronen mit einem elektrischen Feld auf einen ortsempfindlichen Detektor beschleunigt und dort nachgewiesen. Ein zusätzliches Magnetfeld sorgt dafür, dass auch die Elektronen mit ihren wesentlich höheren Geschwindigkeiten, auf einer Spiralbahn den Detektor erreichen. Es werden sowohl die Auftrefforte auf den Detektoren, wie auch die Zeitdauern zwischen dem Einfall des Lichtpulses und dem Nachweis der Fragmente, von einem elektronischen Aufbau vorverarbeitet und mit einem Computer aufgezeichnet. Dabei können auch mehrfache Treffer der Detektoren gehandhabt werden.

Aus den aufgezeichneten Daten kann der gesamte vektorielle Impuls aller entstandenen geladenen Teilchen rekonstruiert werden (s. z. B. [Fis03]). Da im Rahmen dieser Arbeit nur die Impulskomponente der Ionen entlang der Spektrometerachse betrachtet wurde, wird an dieser Stelle nur auf dessen Berechnung eingegangen. Das magnetische Feld hat keinen Einfluss auf die longitudinalen Flugzeiten, so dass nur die gleichmässige Beschleunigung im angelegten E-Feld berücksichtigt werden muss. Außerdem sind die im Ionisationsprozess entstehenden Impulse wesentlich kleiner als die Impulse, die durch das angelegte E-Feld erzeugt werden. Daher kann die Abhängigkeit der Flugzeit t vom Anfangsimpuls $P_{||}$ in der Umgebung der mittleren Flugzeit t_0 linearisiert werden und der Longitudinalimpuls des q -fach geladenen Ions ergibt sich als

$$P_{||} [\text{au}] \approx 8,04 \cdot 10^{-3} \cdot q \cdot E [\text{V/cm}] \cdot \Delta t [\text{ns}], \quad (4.4)$$

dabei ist E die verwendete Absaugspannung im Reaktionsmikroskop und Δt der Unterschied zwischen der gemessenen Flugzeit des Ions und der durch die Absaugspannung verursachten mittleren Flugzeit.

Für das durchgeführte phasenabhängige Ionisationsexperiment wurde der ultrakurze Lichtpuls aus dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (Kap. 2.3, Abb. 2.7) mit einer Pulsenergie von $27 \mu\text{J}$ in dieses Reaktionsmikroskop fokussiert. Die nötige Abschwächung wurde durch Reflektion an zwei breitbandigen Strahlteilern und durch eine einstellbare Iris-Blende erreicht. Der Lichtstrahl wurde auf einen Strahldurchmesser von ca. $2w_0 = 12 \mu\text{m}$ fokussiert, das ergibt bei der Zentralwellenlänge von 760 nm eine Rayleigh-Länge von $z_0 = 150 \mu\text{m}$. Die Polarisation des Lichtes wurde mit einer breitbandigen Viertelwellenplatte exakt linear und parallel zur Spektrometerachse des Reaktionsmikroskops eingestellt. Die Position der justierbaren Glaskeile im Kapillar-Spiegel-Kompressor wurde auf eine maximale Ionen-zählrate im Reaktionsmikroskop optimiert, um dort den kürzest möglichen Lichtpuls zu Verfügung zu haben.

4.2.4 Einfluss der Gouy-Phase

Wie schon in Kapitel 1.2.4 diskutiert wurde, ändert sich die CEO-Phase eines Lichtpulses, während er durch den Fokus propagiert. Sowohl die in Kapitel 4.1 vorgestellte

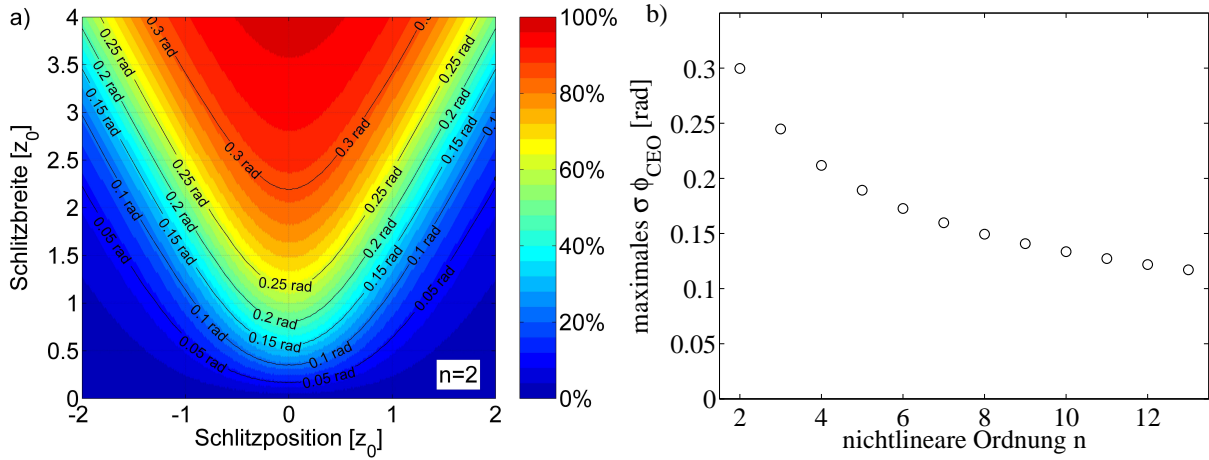


Abbildung 4.15: Einfluss der Gouy-Phase auf eine phasenabhängige Messung im Lichtfokus. **a)** Der Fokus-Bereich, der zur Messung beiträgt, wird durch einen Schlitz reduziert, dessen Position entlang des Lichtwegs und dessen Breite veränderlich sind (z_0 ist die Rayleigh-Länge). Farbiger dargestellt ist die dadurch verursachte Reduktion der Gesamtzählrate für einen nichtlinearen Prozess zweiter Ordnung ($n = 2$, d. h. lokale Zählrate \propto Lichtintensität²). Durch beschriftete Konturen ist die mit ihrer lokalen Zählrate gewichtete Standardabweichung $\sigma\phi_{\text{CEO}}$ derjenigen CEO-Phasen dargestellt, welche weiterhin zur Messung beitragen. Man erkennt am fast parallelen Verlauf der Zählrate mit den Phasenmittellinien, dass das Verhältnis der beiden aufgetragenen Größen nahezu unabhängig ist von den Eigenschaften des Schlitzes. **b)** Für nichtlineare Prozesse verschiedener Ordnung n ist für den Fall eines unendlich breiten Schlitzes die resultierende gewichtete Standardabweichung $\sigma\phi_{\text{CEO}}$ der CEO-Phase aufgetragen. Eine phasenabhängige Messung ohne Schlitz würde die CEO-Phase über $\pm\sigma\phi_{\text{CEO}}$ mitteln. (Für die gesamte Simulation wurde die cw-Gouy-Phase verwendet.)

phasenabhängige THz-Messung wie auch die hier vorgestellte atomphysikalische Messung wurden im Lichtfokus durchgeführt. Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit der Einfluss dieser CEO-Phasenänderung entlang der Lichtpropagationsrichtung (in diesem Abschnitt vereinfachend „Gouy-Phase“ genannt) untersucht.

Für die in Abbildung 4.15 dargestellte numerische Simulation wurde die Variation der Gouy-Phase für cw-Licht verwendet, die die realen Verhältnisse im hier auftretenden Fokus gut beschreibt. Die beiden anderen in Kapitel 1.2.4 erwähnten Variationen der Gouy-Phase führen zu nahezu identischen Resultaten.

Eine Möglichkeit, den störenden Effekt der Gouy-Phase auf phasenabhängige Messungen im Fokus zu reduzieren, ist die Einschränkung des zur Messung beitragenden Fokalbereiches mittels eines Schlitzes. Bei der Messung im Reaktionsmikroskop wurden hierzu zwei exakt positionierbare Metallfahnen verwendet (s. Abb. 4.14). Der offene Bereich zwischen den beiden Fahnen bildet einen Schlitz, mit dem der Atomstrahl beschnitten wird.

Abbildung 4.15a zeigt, welchen Einfluss ein solcher Schlitz an unterschiedlicher Stelle entlang der Lichtpropagationsrichtung und mit unterschiedlicher Breite hat. Zum einen reduziert er die Anzahl der Ereignisse, die weiterhin zur Messung beitragen können. Zum

ändern verringert er auch wie beabsichtigt die Streuung $\sigma\phi_{\text{CEO}}$ der CEO-Phasen dieser Ereignisse. Unerwarteter Weise kann man in der Abbildung erkennen, dass das Verhältnis zwischen der verringerten Gesamtzählrate und der Streuung der CEO-Phasen der weiterhin beitragenden Ereignisse nahezu konstant ist:

$$\frac{N_{\text{mit Schlitz}}}{N_{\text{max}}} = \frac{\sigma\phi_{\text{CEO, mit Schlitz}}}{\sigma\phi_{\text{CEO, max}}}. \quad (4.5)$$

In Abbildung 4.15b ist daher für nichtlineare Prozesse unterschiedlicher Ordnung die maximal mögliche Streuung $\sigma\phi_{\text{CEO, max}}$ aufgetragen, wie sie ohne Verwendung eines Schlitzes entstünde.

Die Einfachionisation und die nichtsequentielle Doppelionisation von Neon-Atomen sind bei der hier verwendeten Lichtintensität von $1,4 \text{ PW/cm}^2$, bei der die nichtsequentielle Doppelionisation gerade einsetzt, Prozesse, deren Zählrate ungefähr quadratisch von der Lichtintensität abhängen (s. Abb. 4.8). Aus Abbildung 4.15 kann man daher für $n = 2$ ablesen, dass ohne die Verwendung des Schlitzes bei der Messung über eine CEO-Phase von $\pm 0,3 \text{ rad}$ gemittelt würde. Bei der Durchführung der Messung wurde die Gesamtzählrate mit den Fahnen auf 50% reduziert, daher wurde nur noch über $\pm 0,15 \text{ rad}$ gemittelt, was unterhalb der Messgenauigkeit des dritten f-2f-Interferometers für die CEO-Phase der ultrakurzen Pulse liegt (vgl. Kap. 3.3.4).

Bei der Durchführung der THz-Messung (Kap. 4.1) wurde das beitragende Reaktionsvolumen in der Umgebung des Fokus nicht eingeschränkt. Die dort relevante Einfachionisation von Stickstoffmolekülen ist in der Umgebung der verwendeten Lichtintensität von ca. 4 PW/cm^2 ein nichtlinearer Prozess der Ordnung 2,5 [Kre06]. Man liest in Abbildung 4.15b ab, dass dabei über eine CEO-Phase von $\pm 0,27 \text{ rad}$ gemittelt wurde, was nur zu einer sehr kleinen, im vorgestellten Experiment irrelevanten Auswaschung des phasenabhängigen THz-Signals führte.

4.2.5 Messergebnisse: Einzelionisation von Neon

Mit dem oben beschriebenen Reaktionsmikroskop (Kap. 4.2.3) und dem Schlitz zur Einschränkung des Reaktionsvolumens (Kap. 4.2.4) wurde bei einer Lichtintensität¹⁰ von $1,4 \text{ PW/cm}^2$ die Photoionisation von Neon-Atomen untersucht. Zeitgleich wurde mit dem Phasenregelkreis (Kap. 3.2.1) die CEO-Phase der Lichtpulse langsam ($2\pi/\text{min}$) durchgeföhren und mit dem dritten f-2f-Interferometer (Kap. 3.3) die CEO-Phase gemessen und mitprotokolliert. Aus den aufgezeichneten Flugzeiten der Neon-Ionen bis zum Teilchen-Detektor wurde mit Formel (4.4) der Longitudinal-Impuls der Ionen bestimmt. Die hier gezeigten Messdaten für die Einzel- und Doppelionisation wurden simultan mit einer Datenrate von 480 Ereignissen pro Sekunde innerhalb von knapp 2 Stunden mit einem Computer aufgezeichnet.

In Abbildung 4.16a sind die resultierenden Impulsspektren der einfach geladenen Neon-Ionen gezeigt. Im Vergleich mit Abbildung 4.9 erkennt man nur ein kleines Impulsintervall

¹⁰Die Lichtintensität im Fokus wurde berechnet aus dem cutoff-Impuls der einfachgeladenen Ne^+ -Ionen in Abbildung 4.16a von $p_{\text{cutoff}} = 3,7 \text{ au} = 2\sqrt{U_p}$.

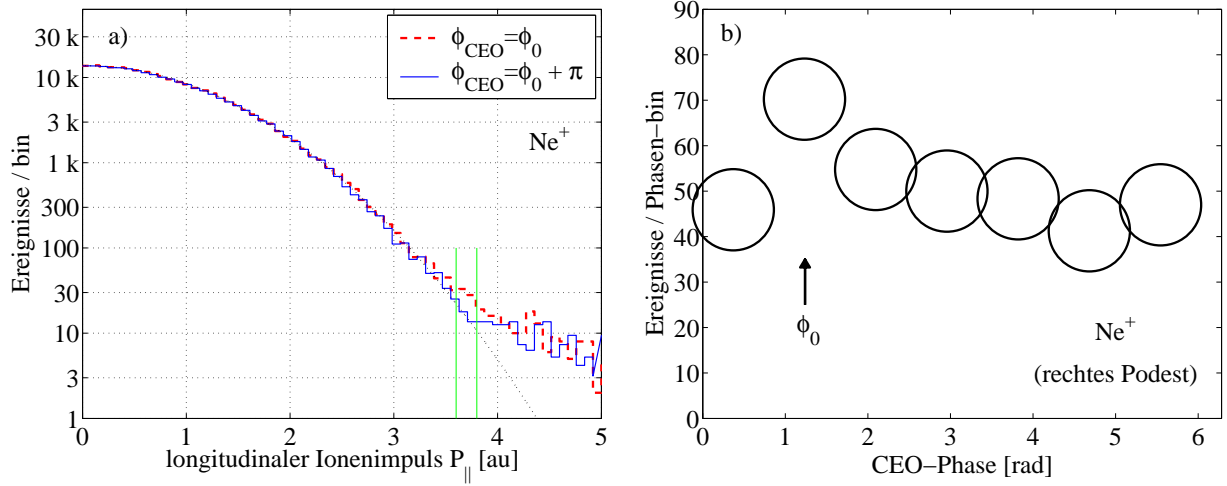


Abbildung 4.16: Messung der phasenabhängigen Einzelionisation von Neon-Atomen. **a)** Longitudinalimpuls der Ne^+ -Ionen nach Einzelionisation für zwei verschiedene CEO-Phasen des ionisierenden Lichtpulses und ein Gauß-Fit (punktierte schwarze Linie) an die Spektren. In der Umgebung der beiden senkrechten grünen Linien liegen die Rekollisionsereignisse. (Beide Kurven integrieren über ein Phasenintervall von $\Delta\phi_{\text{CEO}} = 1$ rad.) **b)** Anzahl der Rekollisionsereignisse (grün markiertes Impulsintervall aus a zwischen 3,6 au und 3,8 au) in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Der Radius der Kreise gibt die Messgenauigkeit an. Die Messdaten sind verträglich mit einer Sinus-förmigen Modulation dieser Zählrate in Abhängigkeit von der CEO-Phase, sie sind aber nicht signifikant. Der Pfeil markiert die CEO-Phase ϕ_0 aus Abbildung a. (Die Zählrate wurde über 0,85 rad geglättet, was der Intervallgröße auf der Phasenachse entspricht. Für die gesamte Messung wurden nur Ereignisse berücksichtigt, deren Ionen-Transversalimpuls sie als Einzelionisationsereignis kennzeichnet.)

mit Rekollisionsereignissen, die von dem Gauß-Fit abweichen, und noch nicht vom Hintergrundrauschen verdeckt werden. Die Zählrate dieser Rekollisionsereignisse ist in Abbildung 4.16b für verschiedene CEO-Phasen aufgetragen. Aufgrund der schlechten Statistik für diese wenigen Rekollisionsereignisse ergibt sich ein Zählratenverlauf mit großem statistischen Messfehler. Der Verlauf ist mit einer Zählratenmodulation, die von der CEO-Phase abhängt verträglich (vgl. Abb. 4.11 für Xenon-Atome), aber zum Beweis dieser Modulation reicht die Signifikanz der dargestellten Daten nicht aus.

Abbildung 4.17 zeigt die gemessene Asymmetrie in der räumlichen Emission der gesamten niederenergetischen Ne^+ -Ionen. Die Asymmetrie ist in diesem Fall relativ klein, doch aufgrund der größeren Anzahl dieser Ereignisse ist der statistische Fehler im Verlauf des Asymmetrieparameters noch kleiner, und man kann eine signifikante Abhängigkeit dieser Asymmetrie von der CEO-Phase erkennen. Man erkennt weiterhin, dass die CEO-Phase maximaler Asymmetrie dieser niederenergetischen Ionen sich deutlich unterscheidet von der CEO-Phase maximaler Asymmetrie der höherenergetischen Rekollisions-Ionen. Diese Verschiebung ist aus der Theorie bekannt (vgl. Kap. 4.2.1).

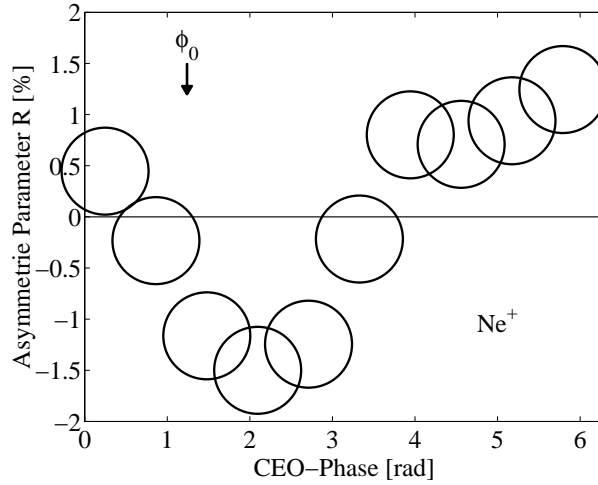


Abbildung 4.17: Asymmetrie der phasenabhängigen Einzelionisation von Neon. Dargestellt ist der Asymmetrie-Parameter $R := (N_{\text{links}} - N_{\text{rechts}}) / (N_{\text{links}} + N_{\text{rechts}})$ in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Der Radius der Kreise gibt die Messgenauigkeit an. Die Messdaten unterstützen im Rahmen ihrer Genauigkeit einen periodischen Verlauf der Asymmetrie in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Die CEO-Phase ϕ_0 entspricht der aus Abbildung 4.16. Man erkennt daher, dass die maximale Asymmetrie bei einer unterschiedlichen CEO-Phase liegt wie bei den dortigen Rekollisions-Ereignissen. (N_{links} : Ionenimpuls zwischen -3 au und 0 au, N_{rechts} : Ionenimpuls zwischen 0 au und 3 au. Glättung der Zählrate über 0,6 rad, was der Intervallgröße auf der Phasenachse entspricht. Die mittlere Asymmetrie über alle Ereignisse wurde auf 0% verschoben, um eine leichte Asymmetrie der Messmethode auszugleichen.)

4.2.6 Messergebnisse: nichtsequentielle Doppelionisation von Neon

Das Verhältnis zwischen beobachteten Einzelionisationen und Doppelionisationen betrug in der gesamten Messung 0,07%, woraus man ablesen kann (vgl. Abb. 4.8), dass die Doppelionisationen im nichtsequentiellen Bereich stattfinden. Die in Abbildung 4.18 erkennbare Doppelhöckerstruktur in den Impulsspektren der doppelt geladenen Ionen, bestätigt den nichtsequentiellen Charakter der beobachteten Doppelionisation (vgl. Abb. 4.12).

Abbildung 4.18 zeigt die longitudinalen Impulsspektren der Ne^{2+} -Ionen für vier verschiedene CEO-Phasen der ionisierenden Lichtpulse. Es ist deutlich erkennbar, wie in Abhängigkeit von der CEO-Phase der linke oder der rechte Höcker stärker hervortritt, bzw. für andere CEO-Phasen die Symmetrie erhalten bleibt. Die Asymmetrie wird bei der direkten Gegenüberstellung in Abbildung 4.19a besonders deutlich.

Der Asymmetrie der beiden Höcker der nichtsequentiellen Doppelionisation, wie sie in Abbildung 4.19b dargestellt ist, ist deutlich größer als die der Einfachionisation ohne Rekollision. Man erkennt deutlich die signifikante Modulation dieser Asymmetrie in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Hierbei ist die CEO-Phase der maximalen Asymmetrie im Rahmen der Messgenauigkeit wieder dieselbe wie die der Rekollisionsereignisse bei

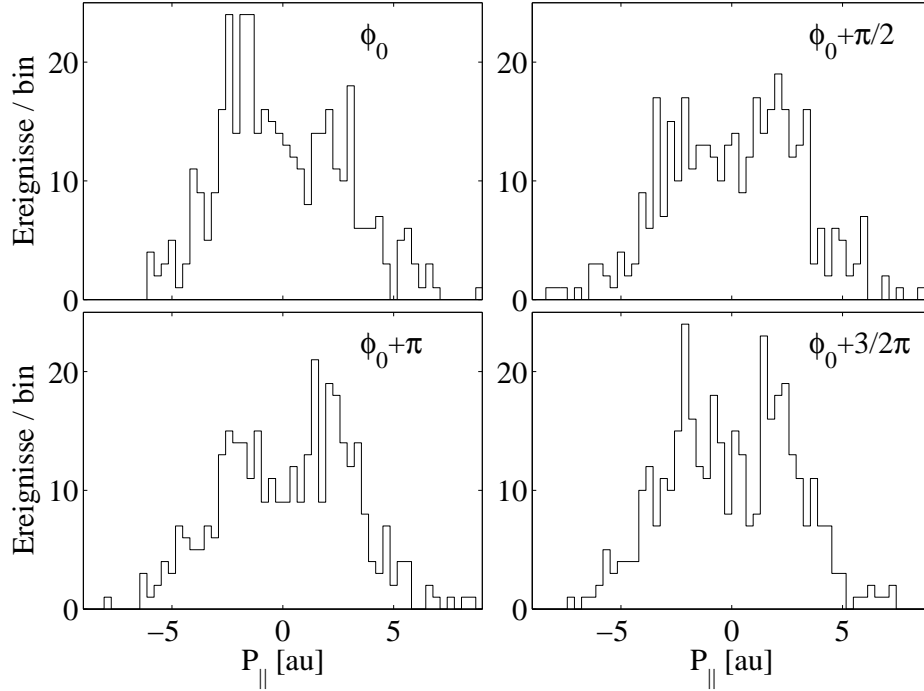


Abbildung 4.18: Messung der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon-Atomen in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Dargestellt ist für vier verschiedene CEO-Phasen die Verteilung der Longitudinalimpulse der Ne^{2+} -Ionen. Bei ϕ_0 ist der linke Peak höher, bei $\phi_0 + \pi$ ist der rechte Peak höher. Die Impulsverteilung bei den beiden anderen CEO-Phasen ist nahezu symmetrisch. (Alle vier Kurven integrieren über ein Phasenintervall von $\Delta\phi_{\text{CEO}} = 1$ rad. Die CEO-Phase ϕ_0 ist so gewählt wie in Abb. 4.16a. Für die gesamte Messung wurden nur Ereignisse berücksichtigt, deren Ionen-Transversalimpuls sie als Doppelionisationsereignis kennzeichnet.)

der Einfachionisation (vgl. Abb. 4.16b).

4.2.7 Diskussion der Messergebnisse

Die Ergebnisse der atomphysikalischen Messung mit ultrakurzen Lichtpulsen kontrollierter CEO-Phase, wie sie im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, lassen sich wie folgt zusammenfassen:

Die Beobachtung phasenabhängiger Effekte bei Neon-Atomen bedarf sehr langer Messzeiten. Denn entweder sind die phasenabhängigen Effekte sehr klein (Asymmetrie in der Neon-Einzelionisation ohne Rekollision), oder die phasenabhängigen Ereignisse treten relativ selten auf (ca. 0,1% bei der Rekollision nach Neon-Einzelionisation und bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon) und müssen aus der durch die Messapparatur beschränkten Anzahl der Gesamt Ereignisse herausgefiltert werden.

Trotzdem konnte in dieser Arbeit erstmalig bei Neon-Atomen die Abhängigkeit verschiedener Ionisationsprozesse von der CEO-Phase des Lichtpulses nachgewiesen werden.

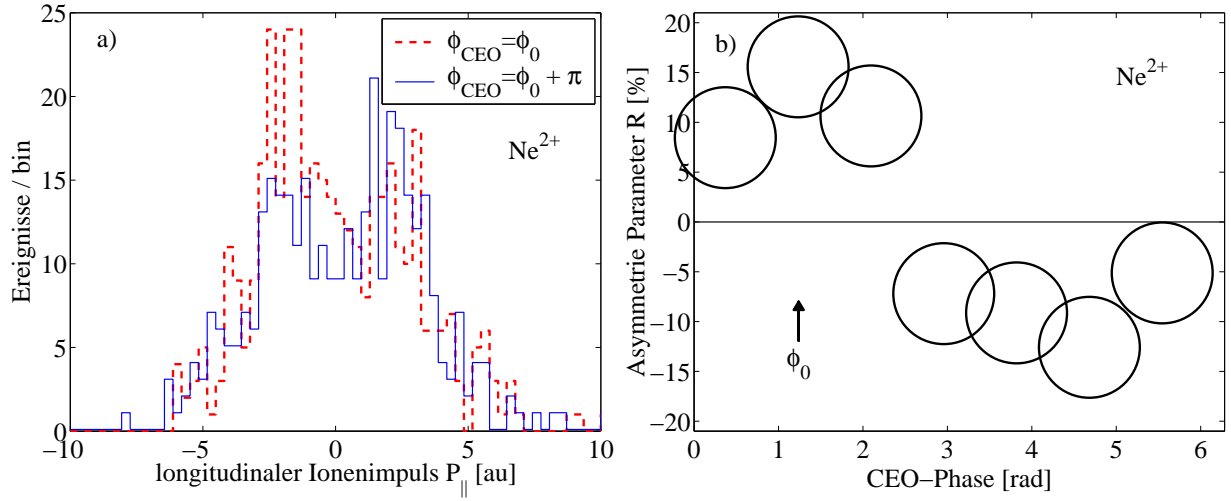


Abbildung 4.19: Phasenabhängige Asymmetrie der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon. **a)** Direkter Vergleich der beiden maximal asymmetrischen Ne^{2+} -Impulsspektren aus Abbildung 4.18. **b)** Darstellung des Asymmetrie-Parameters $R := (N_{\text{links}} - N_{\text{rechts}})/(N_{\text{links}} + N_{\text{rechts}})$ in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Der Radius der Kreise gibt die Messgenauigkeit an. Die Messdaten unterstützen im Rahmen ihrer Genauigkeit einen sinusförmigen Verlauf der Asymmetrie in Abhängigkeit von der CEO-Phase. Die CEO-Phase ϕ_0 entspricht der aus Abbildung 4.16, die maximale Asymmetrie liegt daher bei derselben CEO-Phase wie die der Rekollisions-Ereignisse. (N_{links} : Ionenimpuls zwischen -3,55 au und -0,65 au, N_{rechts} : Ionenimpuls zwischen 0,65 au und 3,55 au. Glättung der Zählrate über 0,85 rad, was der Intervallgröße auf der Phasenachse entspricht. Die mittlere Asymmetrie über alle Ereignisse wurde auf 0% verschoben, um eine leichte Asymmetrie der Messmethode auszugleichen.)

Es wurde eine signifikante Phasenabhängigkeit in der Emissionsrichtung der niederenergetischen Ne^+ -Ionen nach Einfachionisation beobachtet. Bei den höherenergetischen Ne^+ -Ionen wurden Anzeichen einer Phasenabhängigkeit nachgewiesen, die aufgrund der geringen statistischen Messgenauigkeit noch nicht signifikant sind. Und bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von Neon wurde eine signifikante Phasenabhängigkeit in der Emissionsrichtung des Ne^{2+} -Rückstoßions beobachtet.

Die beobachteten Effekte erlauben weiterhin die rückwirkende Bestimmung der „absoluten Phase“ der ionisierenden Lichtpulse, wenn man die Theorie der zugrunde liegenden Prozesse geklärt hat [Pau03, Liu04]. Aufgrund der limitierten Zählrate des verwendeten Reaktionsmikroskops im Vergleich zum ATI-Stereo-Spektrometer ist dabei jedoch Langzeitstabilisierung durch ein f-2f-Interferometer wie in Kapitel 3.3 oder die Phasenbestimmung durch THz-Erzeugung in Luft (Kap. 4.1) weiterhin nötig.

Eine längere Messzeit, wie sie das aufgebaute Messsystem grundsätzlich erlaubt, wird die genauere Untersuchung der Phasenabhängigkeit der genannten Effekte ermöglichen. Das verwendete Reaktionsmikroskop erlaubt es auch, die vektoriellen Impulse der Photoelektronen sowie den transversalen Impuls des Rückstoßions zu untersuchen. Auch Korrelationen zwischen den entstehenden Ionisationsfragmenten können untersucht werden. Um

den statistischen Fehler all dieser mehrfach differentiellen Wirkungsquerschnitte auf einen sinnvollen Wert zu reduzieren, ist lediglich eine größere Anzahl aufgezeichneter Ionisationsereignisse nötig, die durch eine längere Messzeit gewonnen werden kann.

Das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute Lasersystem zur Erzeugung ultrakurzer hochintensiver Laserpulse mit stabiler CEO-Phase ermöglicht es also, Einblick in Prozesse zu erlangen, die sich auf einer Zeitskala von 100 as ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) abspielen. Die vorgestellten Ionisationsexperimente sind gängige Modellsysteme für theoretische Berechnungen in der Mehrteilchen-Quantendynamik. Um deren komplexe Modelle auch auf solch ultrakurzen Zeitskalen zu verifizieren, sind die vorgestellten Experimente hilfreich. Mit Experimenten wie diesen wird es in Zukunft möglich sein, ein grundlegendes Verständnis der zeitabhängigen Quantenmechanik von Mehrteilchensystemen, wie z. B. Atomen, zu gewinnen.

Weiterhin sind die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten atomphysikalischen Prozesse von großer Bedeutung für das junge und sehr vielversprechende Forschungsgebiet der Atto-Wissenschaft (*attoscience*). Als aktuelle Beispiele für dieses schnell wachsende Gebiet seien hier nur die tomographische Abbildung einer atomaren Wellenfunktion [Kie04] und die direkte Vermessung des elektrischen Feldes einer Lichtwelle [Gou04] genannt. Diese Messungen beruhen auf der sogenannten Hohen-Harmonischen-Erzeugung (*high harmonic generation*, HHG). Dabei können isolierte XUV-Pulse mit Pulsdauern von bis zu 250 as erzeugt werden, was eine noch genauere Zeitauflösung bei der Untersuchung der quantenmechanischen Bewegung von Materie und deren Manipulation erlauben wird.

Ausblick

Die in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse über die phasenabhängige Erzeugung von THz-Strahlung in einem Luftplasma und das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute Lasersystem zur Erzeugung ultrakurzer, hochintensiver und phasenstabiler Lichtpulse eröffnen eine Vielzahl neuer Möglichkeiten bei der Erforschung der Wechselwirkung von Laserstrahlung mit Materie. Im Folgenden werden beispielhaft die beiden Themenbereiche näher diskutiert, die Gegenstand dieser Arbeit waren:

Zum einen wird das Signal-zu-Rausch Verhältnis der in Kapitel 4.1.4 diskutierten neuartigen THz-Messmethode zur Bestimmung der „absoluten“ Phase von Lichtpulsen durch die dort vorgestellte Verbesserung des elektronischen Messprinzips um mehr als eine Größenordnung gesteigert werden können. Damit kann mit der THz-Methode die „absolute“ Phase in einer wesentlich kürzeren Zeitspanne gemessen werden, als mit der bisher etablierten Stereo-ATI-Methode, deren Messdauer durch die geringere Targetdichte prinzipiell nach unten beschränkt ist. Der Messaufbau der neuen THz-Methode ist außerdem wesentlich einfacher und kompakter als das für die Stereo-ATI-Methode benötigte Vakuumsystem mit Elektronendetektoren. Daher könnte die THz-Methode bald zum gängigen experimentellen Mittel werden für die reproduzierbare Bestimmung der „absoluten“ Phase, selbst bei der Untersuchung, die einer stundenlangen Messzeit bedürfen.

Zum zweiten wird das aufgebaute phasenstabile Lasersystem in Kombination mit der am MPI-K etablierten Reaktionsmikroskop-Messtechnik die detaillierte Untersuchung der Dynamik von quantenmechanischen Mehrteilchenprozessen in Atomen und Molekülen ermöglichen. Mit dieser Kombination lassen sich die CEO-phasenabhängigen und vollständig differentiellen Photoionisationsquerschnitte bestimmen von allen Targets, die als kalte Gasstrahlen zur Verfügung gestellt werden können. Damit können die aktuellen Theorien zur Berechnung dieser quantendynamischen Mehrteilchensysteme auf ihre Gültigkeit überprüft und verbessert werden. Hierzu seien nur einige Beispiele genannt:

Bei der nichtsequentiellen Doppelionisation von Edelgas-Atomen (vgl. Kap. 4.2.2) kann man durch die Festlegung der CEO-Phase der ionisierenden Lichtpulse den Zeitpunkt des ersten Ionisationsereignisses genau festlegen. Durch die bekannte Pulsform des Lichtpulses ist damit auch die Richtung und Geschwindigkeit dieses zuerst ionisierten Elektrons zu dem Zeitpunkt bekannt, wenn es mit seinem Mutterion rekollidiert. Durch die Messung der Ionisationsrichtung und -energie des daraufhin freigesetzten zweiten Photoelektrons wird eine Untersuchung dieses Rekollisionsprozesses unter genau bekannten Randbedingungen möglich. Ohne Phasenstabilisierung könnten dabei nur die über alle möglichen Rekollisi-

onsbedingungen gemittelten Wirkungsquerschnitte gemessen werden. Bisher wurden, z. B. in dieser Arbeit erstmals an Neon, nur die phasenabhängigen Longitudinalimpulse der bei diesem Prozess entstehenden Ionen untersucht.

Die nichtsequentielle Mehrfachionisation (Drei-, Vierfachionisation, ...) kann von der Quantentheorie bis jetzt nicht berechnet werden. Ein stark vereinfachendes Modell [Liu05] beschreibt diesen Prozess wieder durch eine Rekollision des ersten Photoelektrons mit dem Mutterion. Die dabei auf das Ion übertragene Energie führt zu einer „thermischen“ Anregung der Elektronenwolke. Nach einer gewissen Zeit Δt , dem Fit-Parameter dieses Modells, werden dann weitere Elektronen „abgedampft“. Mit einem phasenstabilen Lasersystem kann nun die Existenz und der Wert dieser Verzögerungszeit Δt bestimmt werden: Wie oben sind durch die bekannte CEO-Phase der Zeitpunkt, die Richtung und die Geschwindigkeit des zuerst ionisierten Elektrons bei der Rekollision mit dem Mutterion bekannt. Durch die sehr schnell veränderliche Intensitätseinhüllende des Lichtpulses werden sich verschiedene Zeitverzögerungen bis zur Freisetzung der weiteren Photoelektronen deutlich in den Messdaten niederschlagen. Es kann also Δt gemessen werden und dieses einfache theoretische Modell der nichtsequentiellen Mehrfachionisation überprüft werden.

Zuletzt seien noch Anrege-Abfrage Experimente an Wasserstoffmolekülen genannt. Mit dieser Messmethode kann man durch zwei aufeinanderfolgende kurze Lichtpulse einstellbaren Zeitabstandes im Reaktionsmikroskop die Kernwellenfunktion eines schwingenden Moleküls zeitabhängig aufnehmen [Erg05]. Der erste Lichtpuls ionisiert das Molekül und das zurückbleibende Molekül-Ion beginnt zu schwingen. Der darauffolgende Lichtpuls separiert dann die beiden Wasserstoffkerne und überträgt deren momentane Ortsverteilung in eine messbare Driftimpulsverteilung. Die Zeitauflösung bei dieser Messung der zeitabhängigen Kernwellenfunktion ist dabei beschränkt durch die Pulsdauern der beteiligten Lichtpulse (~ 6 fs). Mit phasenstabilen Lichtpulsen ist nun zu erwarten, dass sowohl der Anregungszeitpunkt wie auch der Abfragezeitpunkt des Prozesses viel genauer als durch die Dauer der Pulseinhüllenden festgelegt werden kann. Dadurch könnten eventuell zeitliche Strukturen sichtbar werden, die deutlich kleiner sind als die optische Pulsdauer.

Die zuletzt vorgestellte Messtechnik lässt sich mit dem vorhandenen Reaktionsmikroskop, das mehrere Teilchen in Koinzidenz nachweisen kann, auch auf größere Moleküle übertragen. Damit entsteht die Möglichkeit zur Messung der zeitlichen Entwicklung von komplexen molekularen Kernwellenfunktionen mit unerreicht hoher Zeitauflösung im sub-Femtosekunden Bereich.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde ein Lasersystem aufgebaut und charakterisiert, das ultrakurze und hochintensive Lichtpulse mit stabiler Träger-Einhüllenden-Phase erzeugt. Diese Lichtpulse wurden genutzt, um ein neuartiges Verfahren zur Bestimmung der „absoluten Phase“ durch Erzeugung von Terahertzstrahlung in einem Luftplasma zu demonstrieren. Weiterhin wurde mit diesen Lichtpulsen die Phasenabhängigkeit von Photoionisationsprozessen an Neon-Atomen untersucht.

Für das Lasersystem wurde ein neuer Seed-Lasersoszillator auf Basis von Titan-Saphir aufgebaut, dessen Träger-Einhüllenden-Phase mit einem f - $2f$ -Interferometer stabilisiert wird. Die Ausgangspulse dieses Laseroszillators sind mit einer Pulsdauer von 20 fs und einer vergleichsweise hohen Pulsenergie von 6 nJ zur weiteren Verstärkung in einem Multipass-Verstärker geeignet.

Der Multipass-Verstärker wurde zur Verwendung mit dem neuen Seed-Lasersoszillator angepasst. Weiterhin wurde ein f - $2f$ -Interferometer zur Messung der Träger-Einhüllenden-Phase der verstärkten Lichtpulse entwickelt, sowie ein Regelkreis zur Stabilisierung der Phase aufgebaut. Es resultieren Lichtpulse einer Dauer von 28 fs mit einer Pulsenergie von $500 \mu\text{J}$, deren Träger-Einhüllenden-Phase mit einer Genauigkeit von 0,2 rad bekannt ist.

Der darauf folgende Kapillar-Spiegel-Kompressor wurde umgebaut, um die Pulsdauer auf 6,5 fs zu verkürzen; die Pulsenergie beträgt dann $150 \mu\text{J}$ bei einer Pulswiederholrate von 2,8 kHz. Mit einer interferometrischen Autokorrelation und einer SPIDER-Messung wurde der zeitliche Verlauf dieser Pulse exakt charakterisiert. Die Träger-Einhüllenden-Phase dieser ultrakurzen Lichtpulse wird mit einem weiteren neu aufgebauten f - $2f$ -Interferometer gemessen und mit einer Genauigkeit von 0,3 rad bestimmt. Damit ist der elektrische Feldverlauf dieser Pulse vollständig bekannt, die Messungenauigkeit im Zeitverlauf beträgt nur 120 as. Die typischerweise von diesen Pulsen im Fokus erzeugte Feldstärke in der Größenordnung von GV/cm ist vergleichbar mit inneratomaren Feldstärken und reicht zur Mehrphotonenionisation von Atomen und Molekülen aus.

Für die in diesem Lasersystem auftretenden optischen Effekte der Dispersion, der Selbstphasenmodulation und der Gouy-Phase wurde der Einfluss auf die Träger-Einhüllenden-Phase theoretisch und teilweise experimentell untersucht. Systematische Messfehler der f - $2f$ -Messtechnik durch Dispersion und Selbstaufteilung konnten identifiziert und quantifiziert werden, sie lassen sich durch eine Verringerung der Pulsenergieschwankungen deutlich reduzieren.

In einem ersten Experiment wurde mit den Lichtpulsen des Lasersystems ein Plasma in Umgebungsluft erzeugt, und es konnte dabei erstmalig die Erzeugung von Terahertzstrahlung durch diesen Prozess nachgewiesen werden [Kre06]. Dies ist außerdem die erste optische Gleichrichtung, die in einem räumlich isotropen Medium erreicht werden konnte; die Inversionssymmetrie wird hierbei vom Lichtpuls selbst gebrochen. Mit Terahertz-Emissions-Spektroskopie wurde die Abhängigkeit der erzeugten Terahertzamplitude von der Träger-Einhüllenden-Phase der ionisierenden Lichtpulse untersucht. Diese Abhängigkeit verläuft Kosinus-förmig und stimmt im Rahmen der Messgenauigkeit mit einer einfachen Theorie des Ionisationsprozesses und der Plasmadynamik überein.

Mit einer Langzeitmessung des Terahertz-Signals konnte verifiziert werden, dass die aufgebaute Phasenmessung mit dem f - $2f$ -Interferometer im Messzeitraum von 73 Minuten keiner signifikanten Drift unterliegt. Weiterhin kann mit der neu demonstrierten THz-Methode die „absolute Phase“ der Lichtpulse bestimmt werden. Innerhalb von 10 Sekunden lässt sich die Phase von 8-fs-Pulsen mit einer Genauigkeit von 0,25 rad bestimmen. Diese Genauigkeit ist schon jetzt vergleichbar mit der zuvor konkurrenzlosen Stereo-ATI Methode zur Bestimmung der „absoluten“ Phase und kann durch eine angepasste Elektronik auf einfache Weise stark verbessert werden, womit die Stereo-ATI Methode deutlich übertroffen werden könnte.

In einem zweiten Experiment wurde die Multiphotonenionisation von Neon-Atomen bei einer Lichtintensität von $1,4 \text{ PW/cm}^2$ in einem Reaktionsmikroskop untersucht, mit dem vollständig differentielle Photoionisationsquerschnitte gemessen werden können. Bei der Einfachionisation wurden erste Anzeichen einer Phasenabhängigkeit in der Verteilung der Ionenimpulse entlang der Lichtpolarisationsrichtung in der Umgebung des klassischen cut-off-Impulses beobachtet. Weiterhin wurde eine signifikante Phasenabhängigkeit in der Emissionsrichtung von einfach geladenen Neon-Ionen beobachtet.

Die Doppelionisation von Neon-Atomen findet in diesem Intensitätsbereich hauptsächlich über den korrelierten Prozess der nicht-sequentiellen Doppelionisation statt. Im Rahmen dieser Arbeit konnte erstmals bei Neon eine signifikante Phasenabhängigkeit in der Emissionsrichtung des Ne^{2+} -Rückstoßions aus diesem Prozess beobachtet werden, die bisher nur von Argon-Atomen bekannt war.

Durch längere Messzeiten, die das aufgebaute Lasersystem ermöglicht, können in Zukunft vollständig differentielle Photoionisationsquerschnitte im Reaktionsmikroskop auf ihre Phasenabhängigkeit hin untersucht werden. Zusammen mit der nun genau bekannten Pulsform und der Träger-Einhüllenden-Phase der Lichtpulse sind dann alle Randbedingungen des Ionisationsprozesses bekannt und die Messergebnisse werden zu einem detaillierteren Verständnis der zugrunde liegenden atomphysikalischen Prozesse führen.

Auf diese Weise werden die in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse zur Bestimmung der „absoluten“ Phase mittels der neuartigen THz-Methode, sowie das aufgebaute phasenstabile Lasersystem, bei Messungen im Reaktionsmikroskop wahrscheinlich schon bald zu neuen Erkenntnissen der Vielteilchen-Quantendynamik führen. Damit werden neue Einblicke in die Wechselwirkung von intensiven Lichtfeldern mit Materie auf sub-Femtosekunden Zeitskalen ermöglicht.

Anhang A

Software zur Phasenstabilisierung

A.1 Software zur Phasenstabilisierung des Multipass-Verstärkers

In Abbildung A.1 ist die graphische Benutzeroberfläche der Software „UMStableCEO“ zur Stabilisierung der CEO-Phase hinter dem Multipass-Verstärker dargestellt (vgl. Kap. 3.2.2). Im Menüpunkt *Settings* können alle nötigen Parameter der Datenerfassung, der Phasenberechnung sowie die Parameter des Regelkreises verändert werden. Dort kann außerdem eine Funktion zum automatischen Beenden der Regelung bei einem zu undeutlichen Interferenzsignal und zu deren Wiederaufnahme aktiviert werden („Unlock/Relock“ Funktion), sowie die Parameter für die zwei möglichen Phasenrampen eingestellt werden. Die häufiger benötigten Einstellungen können auch über die Knöpfe am oberen Bildschirmrand verändert werden.

Im oberen linken Bildschirmteil ist das aktuelle Spektrum aus dem Gitterspektrometer dargestellt. Der für die Phasenberechnung verwendete Bereich ist darin durch zwei vertikale Linien markiert und im darunterliegenden Bildschirmteil nochmals dargestellt. Oben in der Mitte wird der Betrag der FFT aus diesem Spektrum gezeigt und darunter die dazugehörige FFT-Phase. Die für den *least-square* Fit verwendeten Datenpunkte sind blau markiert, die resultierende Parabel ist rot eingezeichnet und die Stelle, an der die CEO-Phase abgelesen wird, ist mit einem roten Punkt markiert.

Im rechten Bildschirmteil sind oben die letzten 200 Messungen der CEO-Phase in einem Zeigerdiagramm dargestellt, ebenso sind dort der Mittelwert und die Standardabweichung dieser letzten Messungen gezeigt. Darunter ist der zeitliche Verlauf der CEO-Phase in den letzten 20 Sekunden mit roten Punkten aufgetragen. Die aktuellen 200 Werte liegen in dem grau markierten Bereich. Der Sollwert der Phase ist durch eine rote Linie markiert. Für jede Phasenmessung ist mit einem grünen Punkt die „Güte“ dieser Messung dargestellt, sie ist proportional zu der Höhe des FFT-Peaks im Zeitbereich. Falls dieser Wert unter einer einstellbaren Schwelle liegt (grüne Linie), wird am Monitor-Ausgang kein Phasenwert ausgegeben und der Phasen-Wert nicht für die Regelschleife berücksichtigt.

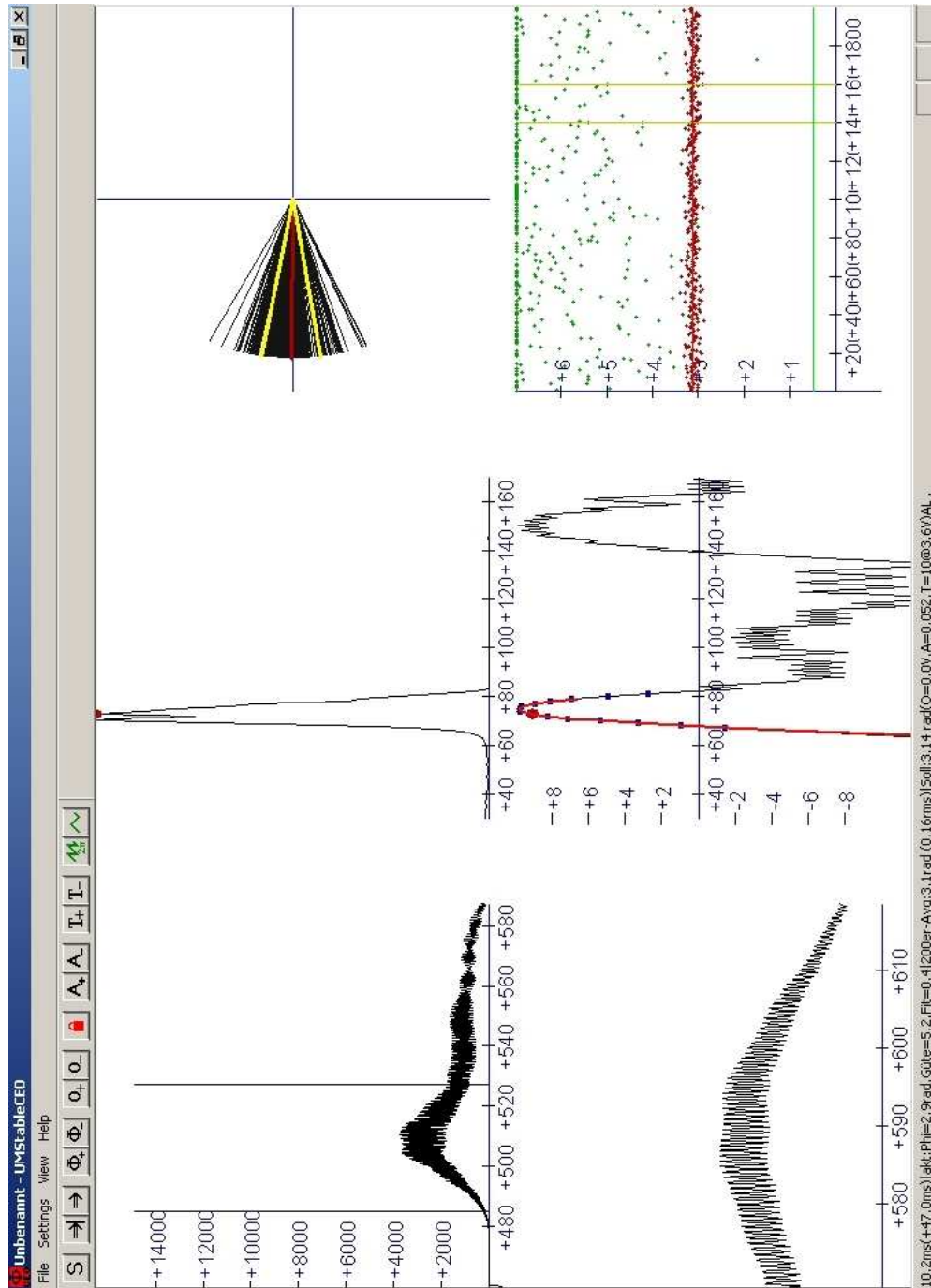


Abbildung A.1: Graphische Benutzeroberfläche der Software „UMStableCEO“ zur Phasenstabilisierung der Lichtpulse aus dem Multipass-Verstärker (s. Kap. 3.2.2).

A.2 Software zur dritten Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse

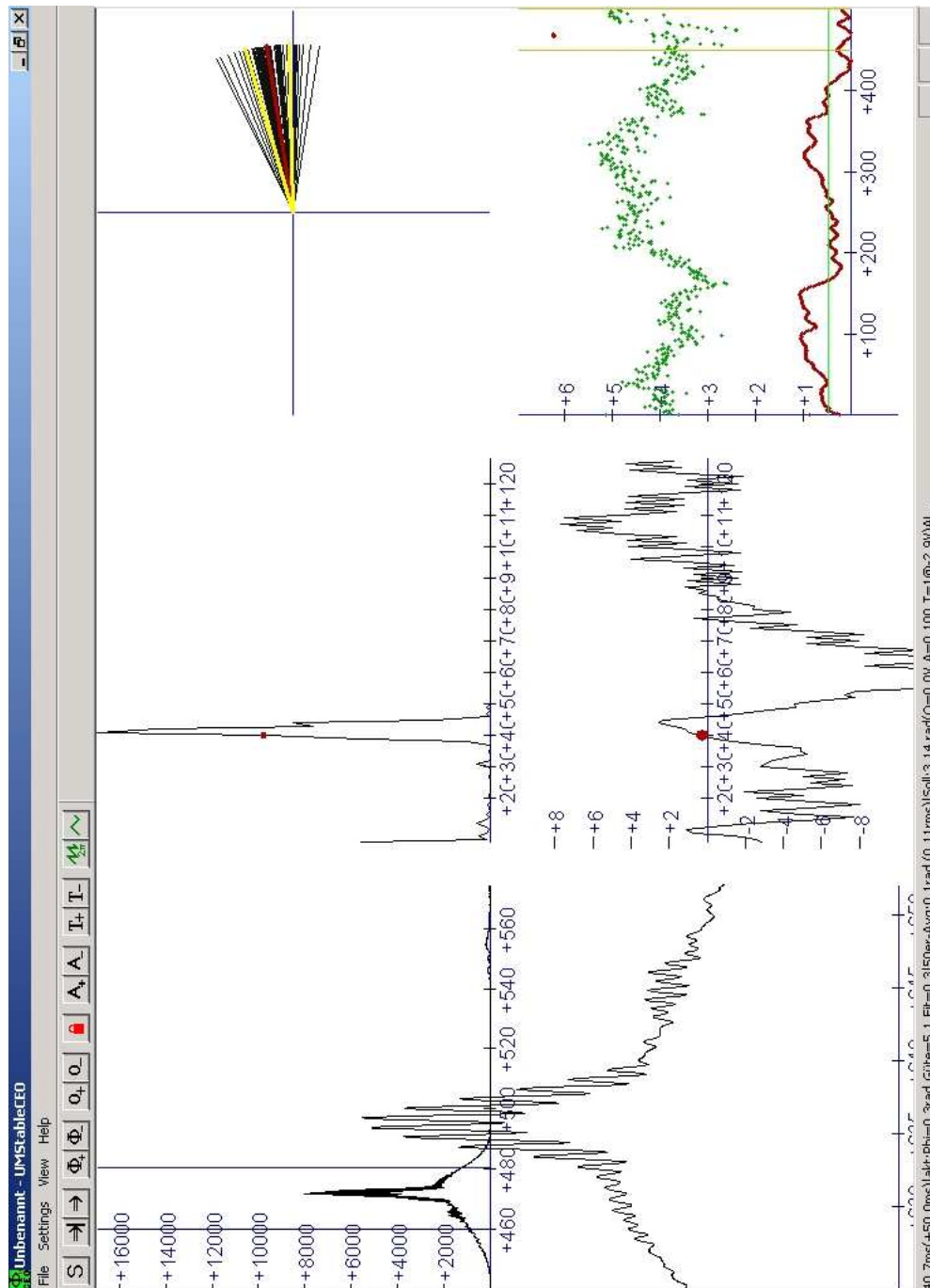


Abbildung A.2: Graphische Benutzeroberfläche der Software „UMStableCEOZwei“ zur Phasenmessung der ultrakurzen Lichtpulse nach dem Kapillar-Spiegel-Kompressor (s. Kap. 3.3.2).

Anhang B

Atomare Einheiten

In der Atomphysik werden häufig *atomare Einheiten* verwendet (Einheitensymbol „a.u.“ oder kurz „au“). Die Basiseinheiten dieses Systems entsprechen den jeweiligen Größen für ein Elektron im Grundzustand des Wasserstoffatoms:

Basiseinheiten

$a_0 = 1 \text{ au} = 5,2918 \cdot 10^{-11} \text{ m}$	Bohrscher K-Schalenradius des Wasserstoff-Atoms
$m_e = 1 \text{ au} = 9,1094 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Ruhemasse des Elektrons
$q_e = e = 1 \text{ au} = 1,6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$	Ladung des Elektrons
$2 \text{ Ry} = E_H = 1 \text{ au} = 27,2144 \text{ eV}$ $= 4,3597 \cdot 10^{-18} \text{ J}$	doppelte Grundzustandsenergie im Wasserstoff
$\hbar = 1 \text{ au} = 1,0546 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$	Drehimpulsquantum

Folgende Umrechnungsfaktoren zwischen atomaren Einheiten und anderen gängigen Einheiten sind hilfreich:

Umrechnungsfaktoren

Zeit	$t [\text{s}] = 4,134 \cdot 10^{16} \cdot t [\text{au}]$
Geschwindigkeit	$v [\text{m/s}] = 4,571 \cdot 10^{-7} \cdot v [\text{au}]$
Impuls	$p [\text{kg m/s}] = 5,018 \cdot 10^{23} \cdot p [\text{au}]$
Lichtgeschwindigkeit	$c = e^2/(\hbar\alpha) = 137,036 \text{ au}$

weitere Umrechnungsfaktoren

E-Feldstärke	$E [\text{V/cm}] = 27,4\sqrt{I [\text{W/cm}^2]}$
ponderomotive Energie	$I = 1 \text{ PW/cm}^2 \Rightarrow U_p = 59,7 \text{ eV}$ (mit $\lambda = 800 \text{ nm}$)

Literaturverzeichnis

- [Agr95] G. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, San Diego, 1995).
- [Amm86] M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Sov. Phys. JETP **64**, 1191–1194 (1986).
- [Apo04] A. Apolonski, P. Dombi, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, T. Udem, C. Lemell, K. Torizuka, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch, F. Krausz, *Observation of Light-Phase-Sensitive Photoemission from a Metal*, Phys. Rev. Lett. **92**, 073902 (2004).
- [Bal03a] A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, F. Krausz, *Attosecond control of electronic processes by intense light fields*, Nature **421**, 611–615 (2003).
- [Bal03b] A. Baltuska, M. Uiberacker, E. Goulielmakis, R. Kienberger, V. S. Yakovlev, T. Udem, T. W. Hänsch, F. Krausz, *Phase-Controlled Amplification of Few-Cycle Laser Pulses*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **9**, 972–989 (2003).
- [Bin05] T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, K. X. Kärtner, U. Morgner, *Prism-based Pulse Shaper for Octave Spanning Spectra*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **41**, 1552–1557 (2005).
- [Bin06] T. Binhammer, *Erzeugung und Anwendung geformter Laserpulse mit oktavbreitem Spektrum*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2006).
- [Bor88] Z. Bor, *Distortion of femtosecond laser pulses in lenses and lens systems*, J. Mod. Opt. **12**, 1907–1918 (1988).
- [Boy03] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 2003), 2. Auflage.
- [Bra91] T. Brabec, C. Spielmann, F. Krausz, *Mode locking in solitary lasers*, Opt. Lett. **16**, 1961–3 (1991).
- [Bra93] T. Brabec, S. M. J. Kelly, *Third-order dispersion as a limiting factor to mode locking in femtosecond solitary lasers*, Opt. Lett. **18**, 2002–2004 (1993).

- [Bra00] T. Brabec, F. Krausz, *Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics*, Rev. Mod. Phys. **72**, 545–91 (2000).
- [Che99] Y. Chen, F. Kärtner, U. Morgner, S. Cho, H. Haus, E. Ippen, J. Fujimoto, *Dispersion-managed mode locking*, J. Opt. Soc. Am. **B 16**, 1999–2004 (1999).
- [Cor89] P. B. Corkum, N. H. Burnett, F. Brunel, *Above-threshold ionization in the long-wavelength limit*, Phys. Rev. Lett. **62**, 1259–1262 (1989).
- [Cor93] P. B. Corkum, *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994–7 (1993).
- [Dal60] A. Dalgarno, A. E. Kingston, *The refractive indices and Verdet constants of the inert gases*, Proc. of the Royal Soc. of London **A 259**, 424–431 (1960).
- [Dem93] W. Demtröder, *Laserspektroskopie* (Springer, Berlin, 1993), 3. Auflage.
- [Die00] P. Dietrich, F. Krausz, P. B. Corkum, *Determining the absolute carrier phase of a few-cycle laser pulse*, Opt. Lett. **25**, 16–18 (2000).
- [Dom04] P. Dombi, A. Apolonski, C. Lemell, G. G. Paulus, M. Kakehata, R. Holzwarth, T. Udem, K. Torizuka, J. Burgdörfer, T. W. Hänsch, F. Krausz, *Direct measurement and analysis of the carrier-envelope phase in light pulses*, New Journal of Physics **6**, 39 (2004).
- [Dör04] R. Dörner, H. Schmidt-Böcking, T. Weber, T. Jahnke, M. Schöffler, A. Knapp, M. Hattass, A. Czasch, L. P. H. Schmidt, O. Jagutzki, *Double ionization by one and many photons*, Rad. Phys. Chem. **70**, 191–206 (2004).
- [Dra04] S. Draxler, *Lineare und nichtlineare Interferometrie zur Präzisionsvermessung von Mikrostrukturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2004).
- [Ebe88] J. H. Eberly, J. Javanainen, *Above-threshold ionisation*, Eur. J. Phys. **9**, 265–275 (1988).
- [Ein91] *Die Bibel, Einheitsübersetzung* (Verlag Katholisches Bibelwerk, Stuttgart, 1991).
- [Erg05] T. Ergler, A. Rudenko, B. Feuerstein, K. Zrost, C. D. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Time-Resolved Imaging and Manipulation of H₂ Fragmentation in Intense Laser Fields*, Phys. Rev. Lett. **95**, 093001 (2005).
- [Erg06] T. Ergler, *Photoionisations-Experimente mit Atomen und kleinen Molekülen im Reaktionsmikroskop*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2006).
- [Feu00] B. Feuerstein, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Nonsequential multiple ionization in intense laser pulses: interpretation of ion momentum distributions within the classical ‘rescattering’ model*, J. Phys. **B 33**, L823 (2000).

- [Fis03] D. Fischer, *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2003).
- [For02] T. M. Fortier, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, R. S. Windeler, *Long-term carrier-envelope phase coherence*, Opt. Lett. **27**, 1463 (2002).
- [For03] T. M. Fortier, D. J. Jones, S. T. Cundiff, *Phase stabilization of an octave-spanning Ti:sapphire laser*, Opt. Lett. **28**, 2198–2200 (2003).
- [For04] T. M. Fortier, P. A. Roos, D. J. Jones, S. T. Cundiff, R. D. R. Bhat, J. E. Sipe, *Carrier-Envelope Phase-Controlled Quantum Interference of Injected Photocurrents in Semiconductors*, Phys. Rev. Lett. **92**, 147403 (2004).
- [Fuj05a] T. Fuji, J. Rauschenberger, A. Apolonski, V. S. Yakovlev, G. Tempea, T. Udem, C. Gohle, T. W. Hänsch, W. Lehnert, M. Scherer, F. Krausz, *Monolithic carrier-envelope phase-stabilization scheme*, Opt. Lett. **30**, 332–334 (2005).
- [Fuj05b] T. Fuji, J. Rauschenberger, C. Gohle, A. Apolonski, T. Udem, V. S. Yakovlev, G. Tempea, T. W. Hänsch, F. Krausz, *Attosecond control of optical waveforms*, New Journal of Physics **7**, 116 (2005).
- [Gae00] A. L. Gaeta, *Catastrophic Collapse of Ultrashort Pulses*, Phys. Rev. **84**, 3582–3585 (2000).
- [Gae02] A. L. Gaeta, *Nonlinear propagation and continuum generation in microstructured optical fibers*, Opt. Lett. **27**, 924–926 (2002).
- [Goh05] C. Gohle, J. Rauschenberger, T. Fuji, T. Udem, A. Apolonski, F. Krausz, T. W. Hänsch, *Carrier envelope phase noise in stabilized amplifier systems*, Opt. Lett. **30**, 2487–9 (2005).
- [Goo04] P. M. Goorjian, S. T. Cundiff, *Nonlinear effects on the carrier-envelope phase*, Opt. Lett. **29**, 1363–5 (2004).
- [Gou90] L. G. Gouy, *Sur une propriété nouvelle des ondes lumineuses*, C. R. Acad. Sci. Paris **110**, 1251 (1890).
- [Gou04] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, *Direct Measurement of Light Waves*, Science **305**, 1267–1269 (2004).
- [Hel03] F. W. Helbig, G. Steinmayer, U. Keller, *Carrier-Envelope Offset Phase-Locking With Attosecond Timing Jitter*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **9**, 1030–1040 (2003).

- [Hol03] K. W. Holman, R. J. Jones, A. Mariana, S. T. Cundiff, J. Ye, *Detailed Studies and Control of Intensity-Related Dynamics of Femtosecond Frequency Combs From Mode-Locked Ti:Sapphire Lasers*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **9**, 1018–1024 (2003).
- [Iac99] C. Iaconis, I. Walmsley, *Self-referencing Spectral Interferometry for Measuring Ultrashort Optical Pulses*, IEEE Journ. of Quantum Electron. **35**, 501–9 (1999).
- [Jes04a] V. L. B. de Jesus, B. Feuerstein, K. Zrost, D. Fischer, A. Rudenko, F. Afaneh, C. D. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Atomic structure dependence of non-sequential double ionization of He, Ne and Ar in strong laser pulses*, J. Phys. **B 37**, L161–7 (2004).
- [Jes04b] V. L. B. de Jesus, A. Rudenko, B. Feuerstein, K. Zrost, C. D. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Reaction-Microscopes Applied to Study Atomic and Molecular Fragmentation in Intense Laser Fields: Non-Sequential Double Ionization of Helium*, J. Electr. Spec. Rel. Phen. **141**, 127–142 (2004).
- [Jon00] D. Jones, S. Diddams, J. Ranka, A. Stentz, R. Windeler, J. Hall, S. Cundiff, *Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Modelocked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis*, Science **288**, 635–9 (2000).
- [Kär98] F. Kärtner, J. A. der Au, U. Keller, *Mode-Locking with slow and fast saturable absorbers—what’s the difference*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **4**, 159–168 (1998).
- [Kär01] F. Kärtner, U. Morgner, R. Ell, T. Schibli, J. Fujimoto, E. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, *Ultrabroadband Double-Chirped Mirror Pairs for Octave Spectrum Generation*, J. Opt. Soc. Am. **B 18**, 882–5 (2001).
- [Kel65] L. V. Keldysh, *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Sov. Phys. JETP **20**, 1307–1314 (1965).
- [Kel96] U. Keller, *Ultrakurzzeit-Laserphysik* (Vorlesungsmanuskript, ETH Zürich, 1996).
- [Kie04] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, S. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, *Atomic transient recorder*, Nature **427**, 817 (2004).
- [Kil05] A. Killi, *Cavity-Dumping in solitär modengekoppelten Femtosekunden-Laseroszillatoren*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2005).
- [Kli06] M. F. Kling, C. Siedschlag, A.-J. Verhoef, J. I. Khan, M. Schultze, T. Uphues, Y. Ni, M. Uiberacker, M. Drescher, F. Krausz, M. J. J. Vrakking, *Control of Electron Localization in Molecular Dissociation*, Science (accepted) (2006).

-
- [Kre06] M. Kreß, T. Löffler, M. D. Thomson, R. Dörner, H. Gimpel, K. Zrost, T. Ergler, R. Moshhammer, U. Morgner, J. Ullrich, H. G. Roskos, *Determination of the Carrier–Envelope Phase of Few-Cycle Laser Pulses with Terahertz–Emission Spectroscopy*, *Nature Physics* **2**, im Druck Mai (2006).
- [Lar98] S. Larochelle, A. Talebpour, S. L. Chin, *Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field*, *J. Phys.* **B 31**, 1201–1214 (1998).
- [Leh85] H. J. Lehmeier, W. Leupacher, A. Penzkofer, *Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N₂ determined by third harmonic generation*, *Opt. Commun.* **56**, 67–72 (1985).
- [Lep95] L. Lepetit, G. Chériaux, M. Joffre, *Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy*, *J. Opt. Soc. Am.* **B 12**, 2467–2474 (1995).
- [Lin04] F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius, F. Krausz, *Gouy Phase Shift for Few-Cycle Laser Pulses*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 113001 (2004).
- [Lin05] F. Lindner, M. G. Schätzel, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, F. Krausz, D. B. Milošević, D. Bauer, W. Becker, G. G. Paulus, *Attosecond Double-Slit Experiment*, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 040401 (2005).
- [Liu04] X. Liu, H. Rottke, E. Eremina, W. Sandner, E. Goulielmakis, K. O. Keeffe, M. Lezius, F. Krausz, F. Lindner, M. G. Schätzel, G. G. Paulus, H. Walther, *Non-sequential Double Ionization at the Single–Optical–Cycle Limit*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 263001 (2004).
- [Liu05] X. Liu, C. F. de Morisson Faria, W. Becker, P. B. Corkum, *Attosecond electron thermalization by laser-driven electron recollision in atoms* (2005), arXiv: physics/0506187.
- [Löf00] T. Löffler, F. Jacob, H. G. Roskos, *Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air*, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 453–455 (2000).
- [Mad02] L. B. Madsen, *Gauge invariance in the interaction between atoms and few-cycle laser pulses*, *Phys. Rev.* **A 65**, 053417 (2002).
- [Mar64] E. A. J. Marcatili, R. A. Schmeltzer, *Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission and Lasers*, *Bell System Technical Journal* **43**, 1783–1809 (1964).
- [Mes99] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser* (B. G. Teubner, Stuttgart, 1999), 1. Auflage.

- [Mor01] U. Morgner, R. Ell, G. Metzler, T. Schibli, F. Kärtner, J. Fujimoto, H. Haus, E. Ippen, *Nonlinear optics with phase-controlled pulses in the sub-two-cycle regime*, Phys. Rev. Lett. **86**, 5462–5 (2001).
- [Mor03a] U. Morgner, *Erzeugung und Propagation optischer Laserpulse - Optische Nachrichtentechnik 4* (Vorlesungsmanuskript, Universität Heidelberg, 2003).
- [Mor03b] U. Morgner, *Nichtlineare Optik* (Vorlesungsmanuskript, Universität Heidelberg, 2003).
- [Müc04] O. D. Mücke, T. Tritschler, M. Wegener, U. Morgner, F. X. Kärtner, G. Khitrova, H. M. Gibbs, *Carrier-wave Rabi flopping: role of the carrier-envelope phase*, Opt. Lett. **29**, 2160–2162 (2004).
- [Nis96] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, *Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique*, Appl. Phys. Lett. **68**, 2793–2795 (1996).
- [Nis98] M. Nisoli, S. Stagira, O. De Silvestri, O. Svelto, S. Sartania, Z. Cheng, G. Tempea, C. Spielmann, F. Krausz, *Toward a Terawatt-Scale Sub-10-fs Laser Technology*, IEEE Journ. of Sel. Topics in Quantum Electron. **4**, 414–420 (1998).
- [Pau01] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villorosi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, S. D. Silvestri, *Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses*, Nature **414**, 182–184 (2001).
- [Pau03] G. G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius, F. Krausz, *Measurement of the Phase of Few-Cycle Laser Pulses*, Phys. Rev. Lett. **91**, 253004 (2003).
- [Pau05a] G. G. Paulus, *A Meter of the “Absolute” Phase of Few-Cycle Laser Pulses*, Laser Physics **15**, 843–854 (2005).
- [Pau05b] G. G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuška, F. Krausz, *Measurement of the phase of few-cycle laser pulses*, J. of Mod. Opt. **52**, 221–232 (2005).
- [Pla04] T. A. Planchon, S. Ferré, G. Hamoniaux, G. Chériaux, J.-P. Chambaret, *Experimental evidence of 25-fs laser pulse distortion in singlet beam expanders*, Opt. Lett. **29**, 2300–2302 (2004).
- [Por02] M. A. Porras, *Diffraction effects in few-cycle optical pulses*, Phys. Rev. **E 65**, 026606 (2002).
- [Pro97] M. Protopapas, C. H. Keitel, P. L. Knight, *Atomic physics with super-high intensity lasers*, Rep. Prog. Phys. **60**, 389–486 (1997).

- [Ree03] W. H. Reeves, D. V. Skryabin, F. Biancalana, J. C. Knight, P. S. J. Russell, F. G. Omenetto, A. Efimov, A. J. Taylor, *Transformation and control of ultra-short pulses in dispersion-engineered photonic crystal fibres*, Nature **424**, 511–515 (2003).
- [Rit04] E. Rittweger, *Zeitliche Formung von Femtosekunden-Laserpulsen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2004).
- [Roo05] P. A. Roos, X. Li, R. P. Smith, J. A. Pipis, T. M. Fortier, S. T. Cundiff, *Solid-state carrier-envelope phase stabilization via quantum interference control of injected photocurrents*, Opt. Lett. **30**, 735–737 (2005).
- [Rud04] A. Rudenko, K. Zrost, B. Feuerstein, V. L. B. de Jesus, C. D. Schröter, R. Moshammer, J. Ullrich, *Correlated Multielectron Dynamics in Ultrafast Laser Pulse Interactions with Atoms*, Phys. Rev. Lett. **93**, 253001 (2004).
- [Rus03] P. Russell, *Photonic Crystal Fibers*, Science **299**, 358–362 (2003).
- [Sch04] M. G. Schätzel, F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, E. Goulielmakis, A. Baltuška, M. Lezius, F. Krausz, *Long-term stabilization of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses*, Appl. Phys. (2004).
- [Sci05] The Royal Swedish Academy of Sciences, *Advanced information on the Nobel Prize in Physics 2005*, <http://nobelprize.org/physics/laureates/2005/phyadv05.pdf> (2005).
- [Sie86] A. Siegman, *Lasers* (University Science Books, Mill Valley, 1986).
- [Smo06] M. Smolarski, A. Staudte, M. Schöffler, O. Jagutzki, R. Dörner, P. Schlup, P. R. Eckle, A. Aghajani-Talesh, J. Biegert, U. Keller, *Ionisationen von Edelgasen mit ultrakurzen zirkular polarisierten Laserpulsen (Vortrag A 18.5)*, in *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft zur AMOP-Frühjahrstagung* (2006).
- [Spe91] D. E. Spence, W. Sibbett, *Femtosecond pulse generation by a dispersion-compensated, coupled-cavity, mode-locked Ti:sapphire laser*, J. Opt. Soc. Am. **B 8**, 2053–60 (1991).
- [Sti06] G. Stibenz, N. Zhavoronkov, G. Steinmeyer, *Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament*, Opt. Lett. **31**, 274–276 (2006).
- [Sve98] O. Svelto, *Principles of Lasers* (Plenum Press, New York, 1998), 4. Auflage.
- [Tri05] T. Tritschler, K. D. Hof, M. W. Klein, M. Wegener, *Variation of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses owing to the Gouy phase: a solid-state-based measurement*, Opt. Lett. **30**, 753 (2005).

- [Ude99] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, *Absolute Optical Frequency Measurement of the Cesium D_1 Line with a Mode-Locked Laser*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3568–3571 (1999).
- [Ude02] T. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, *Optical frequency metrology*, Nature **416**, 233–237 (2002).
- [Ull03] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*, Rep. Prog. Phys. **66**, 1463–1545 (2003).
- [Wit04] S. Witte, R. T. Zinkstok, W. Hogervorst, K. S. E. Eikema, *Control and precise measurement of carrier-envelope phase dynamics*, Appl. Phys. **B 78**, 5–12 (2004).
- [Xu96] L. Xu, C. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz, T. Hänsch, *Route to phase control of ultrashort light pulses*, Opt. Lett. **21**, 2008–10 (1996).
- [Zro05] K. Zrost, *Wechselwirkung von Atomen und kleinen Molekülen mit intensiven Laserpulsen*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2005).

Danksagung

An erster Stelle möchte ich meinem Doktorvater Uwe Morgner danken, der mir diese interessante Doktorarbeit in der Optik ermöglicht und mich in die Welt der Kurzpulslaser eingeführt hat. Er war jederzeit ansprechbar und stand mir mit Rat und Tat zur Seite. Durch seine optimistische Art hat er mich oftmals neu motiviert.

Meinen Doktoranden-Kollegen Thomas Binhammer, Sebastian Dewald und Alexander Killi danke ich für das ausgezeichnete Arbeitsklima, das durch ihre stete Hilfsbereitschaft und die Offenheit zur detaillierten Diskussion geschaffen wurde.

Allen übrigen Kollegen und ehemaligen Kollegen sei hier für die Bereicherung unseres Gruppenlebens gedankt, speziell in den Vier-Uhr Kaffeepausen und beim wöchentlichen Kochen. Ich denke dabei besonders an Jochen Dörring, Stefan Gorenflo, Lenin Jacome, Eva Rittweger, Simone Draxler, Tino Lang, Martin Siegel, Andy Steinmann und Guido Palmer.

Ich danke unserem Institutsdirektor Joachim Ullrich für die förderlichen und angenehmen Rahmenbedingungen meiner Doktorarbeit. Der Feinmechanik-Werkstatt, sowie der Ausbildungs- und der Elektronik-Werkstatt sei für die zügige Erfüllung aller Sonderwünsche herzlich gedankt.

Markus Krefß und Torsten Löffler von der Universität Frankfurt danke ich für die kreative und angenehme Zusammenarbeit während der THz-Messungen. Ebenso danke ich Robert Moshhammer und Artem Rudenko, die mir die Atomphysik nahe gebracht, und mir bei der Verwendung des Reaktionsmikroskops geholfen haben.

Für das Korrekturlesen dieser Arbeit danke ich Thomas Binhammer, Martin Siegel, Matthias Klein, Stephan Wildermuth und meiner Freundin Charlotte Hadtstein.

Ohne die Unterstützung durch meine Eltern und meine Freunde wäre meine Arbeit sicherlich nicht in dieser Weise möglich gewesen.

Wir wissen, daß Gott bei denen, die ihn lieben, alles zum Guten führt.

Römer 8,28a [Ein91]

Lebenslauf

- geboren am 14. Januar 1976 in Bonn
- Familienstand: ledig

Schulbildung

- 1982-1986: Grundschule Pfingstweide, Ludwigshafen am Rhein
 - 1986-1992: Wilhelm-von-Humboldt Gymnasium, Ludwigshafen am Rhein
 - 1992-1995: Engelsburg Gymnasium, Kassel
22. Juni 1995: Abitur

Grundwehrdienst

- 1995-1996: Grundwehrdienst, Instandhaltungs-Tätigkeit in Aachen und Kassel

Universitäre Ausbildung

- Oktober 1996: Beginn des Studiums der Physik an der Universität Heidelberg
- Juli 1998: **Abschluss des Vordiploms (Note: sehr gut)**
- August 1999 – Mai 2000:
Fulbright Stipendiat an der *University of Illinois at Urbana-Champaign* (USA), Mitarbeit in der Arbeitsgruppe von Laura Greene zum Thema: „Supraleitung in ultradünnen Metallfilmen“
- September 2001 – August 2002:
Diplomarbeit bei Jörg Schmiedmayer (Universität Heidelberg) zum Thema „Magnetische Oberflächenfallen für Atom-Interferometer“
- 5. September 2002: Erlangung des **Physik-Diploms mit Auszeichnung**
- seit Januar 2003: Doktorand am Max-Planck-Institut für Kernphysik
Thema ist die „Erzeugung und Anwendung intensiver ultrakurzer Lichtpulse mit stabiler Träger-Einhüllenden-Phase“

Praktika

- Sommer 1998:
Praktikum in der *Zentralen Forschung* der Siemens AG, München
Arbeitsbereich: Lesegeräte für RF-Tags und für Strichcodes auf Wafern
- Mai – Juli 2000:
Praktikum bei Lucent Technologies (*Bell Laboratories*) in Murray Hill, NJ, USA
Arbeitsbereich: Entwicklung und Charakterisierung von durchstimmbaren, schnell modulierbaren Laserdioden für die Hochgeschwindigkeits-Telekommunikation