

VU Research Portal

Terawatt-intensity few-cycle laser pulses

Witte, S.M.

2007

document version

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

citation for published version (APA)

Witte, S. M. (2007). *Terawatt-intensity few-cycle laser pulses: Optical parametric chirped pulse amplification and frequency comb spectroscopy*.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

E-mail address:

vuresearchportal.ub@vu.nl

SAMENVATTING

Een onderwerp in de laserfysica dat sterk in de belangstelling staat, is de mogelijkheid om het elektrische veld van licht te kunnen controleren en manipuleren, en het produceren van steeds kortere lichtpulsen met een gecontroleerde golfvorm. Met behulp van zulke pulsen kan een "ultra-hoge-snelheids-camera" worden gebouwd, waarmee de snelste processen in de natuur kunnen worden gevolgd. In principe zal de kortste lichtpuls die kan worden gemaakt altijd minimaal een halve oscillatie van het elektrische veld bevatten. Dit betekent dat snellere pulsen alleen kunnen worden gemaakt met licht dat een kortere golflengte heeft, zoals extreem-ultraviolet of zachte Röntgenstraling. De productie van ultrakorte Röntgenpulsen is mogelijk door middel van hoge-harmonische generatie in een gasvormig medium, met behulp van extreem sterke laserpulsen met een gecontroleerd elektrisch veld.

Een andere grote uitdaging in de atoomfysica is het meten van absolute overgangsfrequenties in atomen, ionen en moleculen met een steeds hogere precisie. Zulke zeer nauwkeurige metingen laten een directe vergelijking toe tussen experimentele observaties en theoretische voorspellingen over de structuur van materie. Ook kunnen ze gebruikt worden voor de ontwikkeling van preciezer werkende atoomklokken, en voor het detecteren van mogelijke tijdsafhankelijke variaties van fundamentele constanten. De ontwikkeling van de frequentiekam heeft op dit gebied tot een ware revolutie geleid, maar de impact van deze uitvinding is tot op heden beperkt gebleven tot het ultraviolet, het zichtbare en het nabij-infrarode spectrale gebied, waar smalbandige continue lasers beschikbaar zijn. Een doel van het onderzoek dat wordt beschreven in dit proefschrift is de ontwikkeling van methodes voor frequentiekam-spectroscopie bij veel hogere frequenties. In dit frequentiebereik (dat bekend staat als het extreem-ultraviolet) bevinden zich veel overgangen in atomen en ionen die van fundamentele fysische interesse zijn. Echter, het ontwikkelen van de smalbandige continue lasers, die vooralsnog nodig zijn voor precisie metingen, stuit op grote technologische problemen in dit frequentiegebied.

Voor het verwezenlijken van deze doelen is een lasersysteem ontwikkeld dat in staat is om ultrakorte laserpulsen te genereren met een extreem hoog piekvermogen, terwijl de fase-coherentie en de frequentiekam-structuur van de pulsen behouden blijft. Fase-stabiele paren van deze intense, breedbandige pulsen kunnen vervolgens worden gebruikt voor hoge-resolutie frequentie metingen. Daarnaast zijn zulke krachtige ultrakorte fase-gecontroleerde laserpulsen uitermate geschikt voor de productie van coherente Röntgenstraling met een pulsduur van minder dan een femtoseconde (10^{-15} seconden). Een meer gedetailleerde achtergrond en motivatie van het onderzoek dat wordt gepresenteerd in dit proefschrift is te vinden in hoofdstuk 1, samen met een beschrijving van de indeling.

Naast de theoretische achtergrond van de fysica en de voortbewegingseigenschappen van ultrakorte laserpulsen, bevat hoofdstuk 2 ook een beschrijving van alle as-

pecten van het frequentiekam-lasersysteem dat we hebben gebouwd. Deze frequentiekamlaser vormt de basis van onze spectroscopie-experimenten. De modes van de frequentiekam zijn gestabiliseerd ten opzichte van een GPS-gecontroleerde Rb-klok, waarmee een absolute frequentie-nauwkeurigheid van 10^{-11} (gemiddeld over 10 seconden) gehaald wordt. De faseverschuiving tussen de draaggolf en de omhullende pulsform is gestabiliseerd met een precisie van beter dan $1/40^{\text{ste}}$ (RMS) van een optische periode, met behulp van f -naar- $2f$ interferometrie en snelle electronica.

In hoofdstuk 3 wordt een experiment gepresenteerd dat de praktische haalbaarheid van hoge-resolutie frequentiemetingen met breedbandige laserpulsen aantoonst. We laten zien dat paren van fase-stabiele pulsen uit een frequentiekam oscillator kunnen worden versterkt en in frequentie opgeconverteerd, zonder de onderlinge fase-coherentie tussen de pulsen te verliezen. Deze pulsen kunnen vervolgens worden gebruikt voor nauwkeurige frequentiemetingen. We gebruiken de fase-coherentie tussen de individuele pulsen om quantum-interferentie in krypton atomen te induceren, waarmee een specifieke atomaire overgang coherent wordt geëxciteerd. Door middel van een meting van de hoeveelheid atomen in de aangeslagen toestand als functie van de fase en het tijdsverschil tussen de laserpulsen kan vervolgens de overgangsfrequentie worden bepaald. Wij hebben een absolute frequentiebepaling uitgevoerd van de krypton $4p^6 \rightarrow 4p^5 5p[1/2]_0$ twee-foton overgang in het diep-ultraviolet bij een golflengte van 2×212.55 nm, met een nauwkeurigheid van 3.5 MHz (1×10^{-9} relatieve nauwkeurigheid). Hiervoor gebruikten we intense picoseconde laserpulsen met een spectrale bandbreedte van ongeveer 1 THz en een piekvermogen van enkele megawatts. We hebben isotopieverschuivingen gemeten met een nauwkeurigheid van ~ 150 kHz. Deze methode om overgangsfrequenties te meten combineert de hoge piekintensiteit van de individuele pulsen met de hoge resolutie die wordt bepaald door de totale duur en fase-coherentie van de volledige pulstrein. Hierdoor kan hoge-resolutie frequentiekam-spectroscopie worden toegepast in golflengtegebieden waar smalbandige continue lasers niet beschikbaar zijn.

Nu deze methode voor het meten van frequenties succesvol is gebleken, is een belangrijke volgende stap voor de verdere ontwikkeling van deze technologie het opbouwen van geschikte lasersystemen. Een veelbelovende kandidaat voor het versterken van ultrakorte laserpulsen naar extreme intensiteiten, zonder verlies van fase-coherentie, is niet-collineaire optische parametrische gechirpte puls versterking (in het Engels afgekort tot NOPCPA). Deze techniek is gebaseerd op het proces van optische parametrische versterking (OPA), waarbij een foton van hoge energie uit een zogenaamde pomppuls wordt opgesplitst in twee fotonen met een lagere energie in een niet-lineair optisch medium. Dit OPA-proces kan effectief als een versterker werken door de niet-lineaire interactie te voeden met een zwakke laserpuls die fotonen bevat met de juiste energie. In dat geval zal er energieoverdracht plaatsvinden van de hoog-vermogen pomppuls naar de geïnjecteerde puls met het lage vermogen. Optische parametrische versterking kan worden opgeschaald voor de productie van extreem hoog-vermogen pulsen door de techniek te combineren met het principe van gechirpte puls versterking (CPA). In een CPA schema wordt een ultrakorte puls eerst in de tijd verlengd door middel van een dispersief bundelpad (in het Engels een "pulse stretcher" genaamd), om het piekvermogen te verlagen voordat versterking plaatsvindt. Deze verlengde

puls wordt versterkt, en vervolgens weer in de tijd gecompriemd in een bundelpad met tegengestelde dispersie in vergelijking met de stretcher. De combinatie van OPA en CPA in een niet-collineaire geometrie staat bekend als NOPCPA, en deze techniek heeft verscheidene interessante eigenschappen die fase-stabiele versterking van extreem breedbandige pulsen naar hoog vermogen mogelijk maakt.

De theorie van parametrische versterking wordt uitgelegd in het eerste deel van hoofdstuk 4. Voor het tweede deel van dit hoofdstuk zijn numerieke simulaties uitgevoerd aan een realistisch NOPCPA versterker-systeem, om de optimale waarden te vinden voor de belangrijkste parameters in zo'n systeem. Een computersimulatie-programma is ontwikkeld dat gebaseerd is op het split-step Fourier algoritme, waarmee zowel dispersie als niet-lineaire effecten tijdens pulspropagatie te modelleren zijn in meerdere versterkingsstappen. De simulaties vertonen een goede overeenkomst met de experimentele situaties (die in de latere hoofdstukken beschreven worden). We vinden verscheidene effecten die specifiek zijn voor NOPCPA (m.a.w. die niet voorkomen in conventionele versterkers die werken op basis van populatie-inversie), zoals golflengte-afhankelijke verzadiging en de noodzaak voor nauwkeurige synchronisatie van de pomp-puls met de puls die moet worden versterkt.

Om het gewenste versterkersysteem voor ultrakorte terawatt-laserpulsen te ontwikkelen zijn verschillende NOPCPA systemen opgebouwd en systematisch onderzocht. Als onderdeel van deze ontwikkelingen zijn verscheidene optische deelsystemen opgebouwd, zoals een verlengings- en compressiesysteem voor ultrakorte laserpulsen met een spectrale bandbreedte van 400 nm, en een Nd:YAG pomplaser die tot 160 mJ per puls kan leveren bij een golflengte van 532 nm en een pulsduur van 60 ps. Verder zijn de benodigde diagnostische systemen ontworpen en opgebouwd, zoals een SPIDER-systeem voor het meten van de pulsduur met sub-femtoseconde resolutie, en opstellingen voor het karakteriseren van het puls-contrast en de fase-stabiliteit. De meeste van deze onderdelen van het totale NOPCPA-systeem worden in detail beschreven in hoofdstuk 5.

De drie verschillende experimenteel gerealiseerde NOPCPA-implementaties worden behandeld in hoofdstukken 6–8. In hoofdstuk 6 wordt een NOPCPA-systeem gepresenteerd dat 0.1 mJ, 11.8 fs pulsen op 1 kHz herhalingsfrequentie produceert. Met behulp van spectrale interferometrie zijn kwantitatieve metingen uitgevoerd aan de fase-stabiliteit van de versterkte pulsen. Uit deze metingen blijkt dat het NOPCPA versterkingsproces minder dan 100 mrad faseruis toevoegt ($<1/60^{\text{ste}}$ van een optische periode), wat bevestigt dat NOPCPA inderdaad gebruikt kan worden voor het versterken van fase-stabiele frequentiekam pulsen.

Hoofdstuk 7 presenteert een systeem dat de pulsintensiteit naar een veel hoger niveau tilt: Met behulp van de NOPCPA-techniek hebben wij het eerste lasersysteem gebouwd dat sub-10 fs pulsen produceert met een piekvermogen van meer dan een terawatt, bij een herhalingsfrequentie van 30 Hz. De totale parametrische fluorescentie wordt ruim beneden 1% gehouden. Slechts drie versterkerstappen zijn nodig om het terawatt-vermogen te halen, en de vereiste verlengingsfactor van de pulsen is $\sim 10^3$. Hierdoor kan het versterkersysteem opmerkelijk compact gehouden worden, en is op dit moment een van de kleinste terawatt-versterkers ter wereld.

Het prototype terawatt-systeem uit hoofdstuk 7 is verbeterd en aangepast om nog kortere pulsen te leveren bij nog hoger vermogen, wat wordt beschreven in hoofdstuk 8. Door de versterker te injecteren met pulsen uit een nieuwe, door onszelf ontwikkelde ultra-breedbandige Ti:Saffier laser die 6.2 fs pulsen kan leveren, kan de versterker-output worden opgestuwd naar zijn theoretisch voorspelde maximale spectrale bandbreedte. Verder is een nieuwe pomplaser ontwikkeld, waarmee ook het vermogen verder verhoogd wordt. Dit systeem produceert 7.6 fs pulsen met een piekvermogen van 2 terawatt. Deze pulsen worden gecomprimeerd tot op 5% van hun Fourier-gelimeerde pulsduur van 7.3 fs, door middel van een pulscompressor op basis van tralies en adaptieve spectrale fasecontrole. Het pulscontrast is gekarakteriseerd met behulp van een op parametrische interactie gebaseerde meetopstelling, die geschikt is voor ultrakorte laserpulsen. Uit deze metingen blijkt dat het contrast tussen de hoofdpuls en de fluorescentie-achtergrond 2×10^{-8} is.

Hoofdstuk 9 sluit dit proefschrift af. In dit hoofdstuk worden verschillende mogelijkheden gepresenteerd om de vorm van de pomppuls te optimaliseren voor NOPCPA, gebaseerd op multiplexen van pulsen en het kantelen van het pulsfront. Een nieuwe opstelling voor parametrische versterking wordt voorgesteld, op basis van pulsen met een gekanteld pulsfront in plaats van in de tijd verlengde pulsen. Deze implementatie van parametrische versterking kan gebruikt worden als een compacte en flexibele opstelling voor frequentiekam-spectroscopie met ultrakorte laserpulsen. Tenslotte wordt de huidige status van frequentiekam-spectroscopie in het extreem-ultraviolet uiteengezet, en worden de vooruitzichten voor precisieingen met ons NOPCPA-systeem besproken.