

Abschlussbericht

zum Teilvorhaben Optimierte Quellen und $SU(1,1)$ Interferometrie für ETPA

im Verbundprojekt Exploiting Entangled Two-Photon Absorption (E^2TPA)

Zuwendungsempfänger: Universität Paderborn

Förderkennzeichen des Teilvorhabens: 13N16352

Laufzeit des Vorhabens: 01.07.2022 – 30.06.2025

Teil I: Kurzbericht

Dieses Forschungsprojekt hatte das Ziel, die experimentelle Realisierung und Bewertung der verschränkten Zweiphotonenabsorption (Englisch: *entangled two-photon absorption, ETPA*) mit molekularen Absorbern zu untersuchen. ETPA ist eine innovative Technik innerhalb der Quantenspektroskopie, die verschränktes Licht nutzt, um molekulare Übergänge effizienter zu adressieren als klassisches Licht. Im Gegensatz zur herkömmlichen Zweiphotonenabsorption (TPA), bei der zwei Photonen zufällig gleichzeitig auf ein Molekül treffen müssen, ermöglicht ETPA durch die starke Zeit-Frequenz-Verschränkung von Photonenpaaren sowie deren Paarkorrelation – wenn ein Photon am Absorber ist, muss das andere auch da sein – eine präzisere und potenziell effizientere Anregung. Dies ist besonders vorteilhaft bei lichtempfindlichen Proben wie lebenden Zellen.

Zu Projektbeginn bestand jedoch Unsicherheit in der wissenschaftlichen Gemeinschaft, ob ein messbarer Quantenvorteil bei ETPA tatsächlich erreichbar ist. Widersprüchliche experimentelle Ergebnisse ließen keine klare Aussage zu. Das vorliegende Projekt setzte daher gezielt auf die Entwicklung hochpräziser Quantenlichtquellen, den Aufbau eines neuartigen Messsystems und die systematische Analyse der Nachweisgrenzen, um diese Diskrepanz endgültig aufzulösen.

Im Rahmen des Projekts wurden zwei Arten von Quantenlichtquellen für ETPA entwickelt: eine spektral degenerierte Typ-0-Quelle (im Einsatz beim Projektpartner Universität Genf) und eine nicht-degenerierte Typ-II-Quelle in periodisch gepoltem Lithiumniobat. Beide Quellen wurden mittels eines speziell entwickelten Design-Toolkits optimiert, um eine möglichst breite Bandbreite (bis zu 7,5 THz) und hohe Helligkeit zu erreichen. Dabei zeigte sich, dass die nicht-degenerierte Quelle zwar geringere Effizienz aufweist, aber den entscheidenden Vorteil bietet, dass Signal- und Idler-Photonen unterscheidbar sind – eine Voraussetzung für neuartige Messmodi. Die Quellen wurden im Labor charakterisiert und ihre Leistung bei steigender Pumpleistung untersucht. Dabei zeigte sich ein kritischer Effekt: Bei hohen Lichtleistungen tritt Photorefraktion im Lithiumniobat auf, die durch freie Ladungsträger verursachte Strukturverzerrungen im Kristall hervorruft. Diese führt zu einer Veränderung des Brechungsindex und einer Absorption, die die maximale erreichbare Helligkeit der Quelle begrenzt.

Um die ETPA-Messungen durchzuführen, wurde ein neuartiges nichtlineares Interferometer auf Basis eines gefalteten $SU(1,1)$ -Interferometers konzipiert und realisiert. Dieses System ermöglicht es, die Interferenz von Photonenpaaren mit hoher Sichtbarkeit zu messen und erlaubt eine präzise Bestimmung der Korrelationszeit – ein entscheidender Parameter für die Quanteneffizienz. Die Messungen zeigten, dass die Korrelationszeit der erzeugten Photonenpaare bei unter 100 Femtosekunden liegt, was im Einklang mit theoretischen Vorhersagen steht. Zudem wurde die Methode zur Selbstkalibration des Spektrometers demonstriert.

Die zentrale Frage war: Lässt sich ein ETPA-Signal nachweisen? Dazu wurden mehrere Messverfahren verglichen, darunter die „nicht-degenerierte Trennung“, die „degenerierte Trennung“ und die „degenerierte Abschwächung“. Dazu wurde ein ab-initio-Modell entwickelt, das die Nachweisgrenze für ETPA in einem gegebenen Messaufbau quantifiziert. Die Ergebnisse zeigen: Unter Berücksichtigung realer experimenteller Bedingungen – insbesondere der Dunkelzählrate von Detektoren und der Ein-Photonen-Absorption – konnte kein signifikantes ETPA-Signal nachgewiesen werden. Die experimentellen Daten liegen unterhalb der erwarteten Nachweisgrenze für einen Quantenvorteil.

Dieser Befund ist von großer Bedeutung: Er zeigt, dass der derzeitige Stand der Technik – insbesondere die verfügbaren Quellen, Detektoren und Materialien – nicht ausreicht, um einen messbaren Quantenvorteil bei ETPA zu erzielen. Dennoch stellt das Projekt einen entscheidenden Fortschritt dar. Es hat erstmals ein systematisches Verständnis dafür geschaffen, welche technologischen Hürden noch zu überwinden sind. Dazu gehören:

- Präzise Anpassung der Zeit-Frequenz-Verschränkung an spezifische Absorber,
- Entwicklung von Quellen mit höherer Effizienz und geringeren Verlusten,
- Verbesserung von Einzelphotonendetektoren mit niedrigerer Dunkelzählrate,
- Optimierung der Materialien hinsichtlich Photorefraktionsstabilität.

Die Ergebnisse wurden in mehreren Fachartikeln veröffentlicht und werden weiterhin zur Diskussion auf internationalen Konferenzen beitragen. Zudem hat das Projekt die Zusammenarbeit mit führenden Projektpartnern intensiviert und dazu beigetragen, ein starkes wissenschaftliches Netzwerk aufzubauen. Die Technologie der Quantenspektroskopie ist ein Schlüsselbereich für zukünftige Quantenansätze in der Biomedizin, Materialforschung und Sensorik. Deutschland ist hier weltweit führend, und dieses Projekt hat wesentlich dazu beigetragen, die nationale Forschungsstärke zu stärken.

Zusammenfassend zeigt das Projekt, dass ETPA zwar ein vielversprechendes Konzept ist, aber noch erheblichen Forschungsbedarf hat, bevor es in der Praxis Anwendung finden kann. Die Erkenntnisse sind daher nicht nur wissenschaftlich bedeutend, sondern auch von strategischer Bedeutung für die technologische Souveränität Deutschlands im Bereich der Quantentechnologien.

Teil II: Ausführlicher Sachbericht

Zusammenfassung: Dieses Projekt untersuchte die experimentelle Realisierung der verschränkten Zweiphotonenabsorption (ETPA) mit molekularen Absorbern, einer Methode zur präzisen, lichtschonenden Spektroskopie. ETPA nutzt verschränktes Quantenlicht, um molekulare Übergänge effizienter zu adressieren als klassisches Licht – besonders vorteilhaft bei lichtempfindlichen Proben wie Zellen.

Zur Umsetzung wurden helle Photonenpaarquellen in periodisch gepoltem Lithiumniobat entwickelt. Eine nicht-degenerierte Typ-II-Quelle ermöglichte die Unterscheidung von Signal- und Idler-Photonen, was neue Messmodi erlaubt. Die Quelle erreichte eine Bandbreite von bis zu 7,5 THz, ist jedoch bei hohen Leistungen durch Photorefraktion begrenzt.

Ein neuartiges gefaltetes SU(1,1)-Interferometer wurde aufgebaut, um die Interferenz von Photonenpaaren mit hoher Sichtbarkeit zu messen. Die Korrelationszeit der Paare lag bei unter 100 fs, was mit theoretischen Vorhersagen übereinstimmt. Zudem wurde eine Methode zur Selbstkalibration des Spektrometers etabliert.

Bei der systematischen Analyse verschiedener Messverfahren (u. a. „nicht-degenerierte Trennung“) konnte kein signifikantes ETPA-Signal nachgewiesen werden. Ein ab-initio-Modell bestätigte, dass die derzeitigen technischen Grenzen – insbesondere die Dunkelzählrate von Detektoren und Materialverluste – den Quantenvorteil verdecken.

Trotzdem liefert das Projekt einen entscheidenden Beitrag: Es klärt, dass ETPA zwar ein vielversprechendes Konzept ist, aber erst mit verbesserten Quellen, stabileren Materialien und besseren Detektoren praktisch nutzbar wird. Die Ergebnisse stärken die Forschungsposition Deutschlands in der Quantenspektroskopie und legen die Grundlage für zukünftige Entwicklungen.

1. Motivation und Arbeitsplan

Dieses Projekt hatte zum Ziel, verschränkte Zweiphotonenabsorption (Englisch: entangled two-photon absorption; ETPA) für molekulare Absorber experimentell zu untersuchen. Zweiphotonenabsorption (Englisch: two-photon absorption; TPA) ist eine Spektroskopietechnik, mit der sich räumliche Auflösung jenseits konventioneller Absorptionsspektroskopie erreichen lassen. Da allerdings bei TPA zwei Photonen gleichzeitig auf die Probe treffen müssen, sind die im Experiment erreichbaren Raten limitiert. Üblicherweise überwindet man dies durch die Verwendung heller, ultrakurzer Laserpulse. Bei lichtempfindlichen Proben, zum Beispiel lebenden Zellen, ist dieser Ansatz jedoch keine Alternative. ETPA ist eine Erweiterung von TPA, bei der verschränktes Quantenlicht zum Einsatz kommt. Durch die strikten Paarkorrelationen von Photonenpaaren aus parametrischer Fluoreszenz ist sichergestellt, dass zwei Photonen immer gleichzeitig auftreten. Weiterhin kann durch Zeit-Frequenz-Verschränkung erreicht werden, dass sowohl die Summenfrequenz als auch die differentielle Ankunftszeit der Photonen scharf bestimmt ist. Hierdurch lässt sich prinzipiell ein Effizienzgewinn im Vergleich zu TPA erreichen. Zu Projektbeginn gab es Uneinigkeit in der Community hinsichtlich der tatsächlichen Realisierbarkeit von ETPA mit molekularen Absorbieren. Widersprüchliche Ergebnisse ließen keine klare Aussage darüber zu. Eines der Ziele dieses Teilvorhabens war es, diese Widersprüche konklusiv aufzulösen.

In diesem Projekt sollte ETPA für molekulare Absorber mit breiten Absorptionsbanden untersucht werden. Dazu sollten optimale Quellen konzipiert und realisiert werden. Insbesondere war ein Ziel, eine breitbandige Zweifarben-Quelle mit starker Zeit-Frequenz-Verschränkung zu entwickeln. Weiterhin sollten diese in einem ETPA-Experiment mit Rhodamin 6G (einem Laserfarbstoff) als Absorber getestet werden. Dazu wurde ein neuartiger Messaufbau auf Basis eines sogenannten nichtlinearen Interferometers konzipiert, welcher neue Operationsmodi ermöglicht. Die Arbeiten waren gemäß dem Arbeitsplan auf zwei Arbeitspakete (APs) verteilt und innerhalb der APs in Arbeitsschritte unterteilt.

		1/1	2/1	3/1	4/1	1/2	2/2	3/2	4/2	1/3	2/3	3/3	4/3
AP1 - Optimierte Quellen für ETPA	AP1.1: Modellierung und Optimierung	Optimierte Quellenparameter											
	AP1.2: Aufbau Quelle			Experimenteller Aufbau									
	AP1.3: Einbau PicoQuant Laser	Übergabe Laser durch PicoQuant											
	AP1.4: Performance-Evaluation Quelle					Quelle verifiziert							
	AP1.5: Aufbau und Schulung PicoQuant							Übergabe Quelle an PicoQuant					
AP2 - ETPA Experimente	AP2.1: Planung und Konzeptionierung	Fertiges Interferometerdesign											
	AP2.2: Aufbau Interferometer			Experimenteller Aufbau									
	AP2.3: Charakterisierung Interferometer					Interferometer verifiziert							
	AP2.4: Upgrade Interferometer							Interferometer & optimierte Quelle					
	AP2.5: ETPA Messungen											ETPA Messungen	
		Technisches Teilziel			Übergabepunkt			Halbzeitmeilenstein					

AP1 – Optimierte Quellen für ETPA deckt hierbei die Entwicklung der Quantenlichtquelle ab, während sich die Arbeiten in AP2 – ETPA Experimente auf die experimentelle Realisierung fokussierten.

2. Darstellung der Arbeiten

AP1.1: Modellierung und Optimierung

Spektral degenerierte Typ 0 Quellen sowie spektral nicht-degenerierte, dispersionsangepasste Typ II Quellen in Lithiumniobatwellenleitern werden modelliert und auf große Bandbreiten sowie Helligkeiten hin optimiert.

Es wurden zwei Photonenpaarquellen entwickelt, um ETPA direkt über Messungen eines Fluoreszenzsignals nachzuweisen. Die Anforderungen an die Quellen sind: möglichst kurze Korrelationszeit bei scharfer Energie (hohe Zeit-Frequenz-Verschrankung) und möglichst hohe absolute Helligkeit (kurze Messzeiten).

Die Korrelationszeit beschreibt den mittleren Zeitabstand zwischen den beiden Photonen innerhalb eines Paares und ist von besonderer Bedeutung, da diese direkt in den Quantenvorteil eingeht und somit essenziell für die zu zeigende Effizienzsteigerung ist. Die absolute Helligkeit der Quelle beschreibt die Anzahl der produzierten Photonenpaare und führt damit zu einem Signal über dem Rauschlevel.

Da die Gesamtenergie eines jeden erzeugten Photonenpaares direkt von der Wellenlänge und Bandbreite des Pumpasers abhängt wurde diese bisher nur nachrangig betrachtet. Die Pumpwellenlänge wurde für alle neu entwickelten Quellen, in Abstimmung mit dem Verbundpartner PicoQuant, auf 532nm festgelegt.

Um die Helligkeit zu maximieren, werden Wellenleiterquellen verwendet, welche im Gegensatz zu den etablierten Volumenkristallen einen geringeren Strahlquerschnitt bei größerer Wechselwirkungslänge und somit um Größenordnungen höhere Effizienzen aufweisen. Zusammen mit leistungsstarken Pumplasern kann so die absolute Helligkeit maximiert werden. Große Interaktionslängen führen jedoch im Allgemeinen zu einer geringen Bandbreite der erzeugten Photonen, was wiederum eine lange Korrelationszeit zur Folge hat. Dieser Effekt lässt sich auf die unterschiedliche Gruppengeschwindigkeiten der erzeugten Pulse im Kristall zurückführen und somit durch Anpassung der Gruppengeschwindigkeiten vermeiden.

Es werden zwei Ansätze verfolgt: Zum einen wird eine spektral degenerierte Typ 0 Quelle verwendet, welche im Lauf des Projekts beim Verbundpartner Universität Genf verifiziert werden soll. Da die erzeugten Photonen naturgemäß ununterscheidbar sind, haben sie die gleiche Gruppengeschwindigkeit und es wird breitbandiges Licht mit kurzer Korrelationszeit erzeugt. Zudem sind Typ 0 Prozesse in periodisch gepoltem Lithiumniobat besonders effizient, da mit d_{33} der größte Eintrag des nichtlinearen Tensors genutzt wird. Die Ununterscheidbarkeit von Signal-

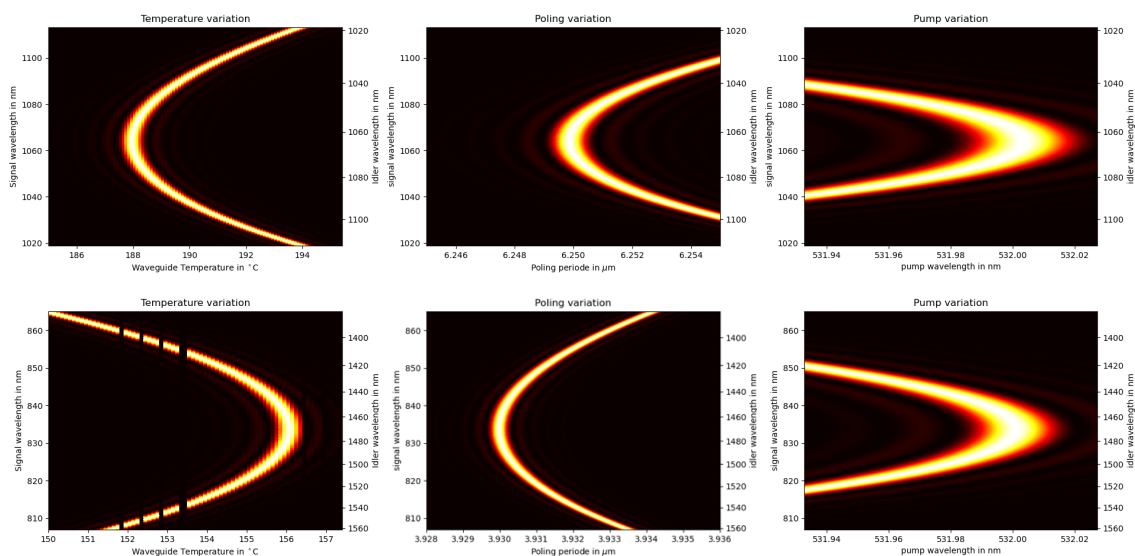


Abb. 1. Modellierung von Wellenleiterparametern für helle breitbandige PDC-Quellen. Es ist die Abhängigkeit des Signal- und Idler-Spektrums (vertikale Achse) von Temperatur (links), Polungsperiode (mitte) und Pumpwellenlänge (rechts) für einen degenerierten Typ 0 (oben) und einen Gruppengeschwindigkeitsangepassten Typ 2 Prozess (unten) gezeigt.

und Idler-Photonen bringt jedoch auch Nachteile, da sie nicht separat voneinander kontrolliert werden können. So ist es nicht möglich einen zusätzlichen Zeitversatz oder Verluste in nur einem Arm einzubringen.

Der Zweite Ansatz ist eine nicht-degenerierte Typ II Quelle, welche in Paderborn zum Einsatz kommt. Hier haben Signal- und Idler-Photonen unterschiedliche Polarisierungen, wobei durch Ausnutzen der Doppelbrechung von Lithiumniobat gleiche Gruppengeschwindigkeiten für Signal und Idler erzielt werden. Mit diesem Verfahren können ebenso große Bandbreiten und damit vergleichbar kleine Korrelationszeiten erzielt werden. Jedoch zu Lasten der Effizienz, da der nun verwendete d_{31} Eintrag des nichtlinearen Tensors kleiner ist, was eine Reduktion der Effizienz um den Faktor 30 gleichkommt. Durch die hohe Effizienz des Wellenleiters kann dieser Nachteil gegenüber Volumenkristallen jedoch überkompensiert werden. Zudem wird durch die Unterscheidbarkeit von Signal und Idler deterministische Manipulation des Lichtfeldes ermöglicht. Es kann somit bei konstantem Photonenfluss ein Fluoreszenzsignal in Abhängigkeit von einem Zeitversatz und damit von der Korrelation der Photonenpaare gemessen werden. Dies ist essenziell für die neuen ETPA Messmodi, welche in diesem Projekt verfolgt werden.

Für beide Ansätze wurden, mittels eines im Rahmen des Projektes entwickelten Designtoolkits, optimale Fabrikationsparameter bestimmt. Das Tool-Kit ermöglicht es dem Nutzer schnell einen Überblick über einen großen Parameterraum zu erlangen, um die ideale Konfiguration für die gewünschte Anwendung zu finden. Ein solcher Parameterscan für beide Ansätze ist in Abb. 1 gezeigt.

AP1.2: Aufbau Quelle

Ein experimenteller Aufbau zur Charakterisierung der Quelle (AP1.1) sowie späterer ETPA Messung in der Standard-Konfiguration wird konzipiert und realisiert. Die Quelle erreicht ein Bandbreite von 7,5 THz und eine Effizienz von $0,66 \times 10^{12}$ Hz/W [1].

Es wurde ein optischer Aufbau zur Vermessung der Quellen sowie zur Messung von klassischer und verschränkter Zweiphotonenabsorption erstellt. Zudem wurden robuste Justageverfahren für alle drei Anwendungen entwickelt. Ein Dauerstrich Pumpplaser einer Wellenlänge von 518nm wird für einen vorläufigen Aufbau verwendet. In diesem Aufbau werden praktische Erfahrungen gesammelt. Im weiteren Lauf des Projekts werden Pumpplaser mit einer Wellenlänge von 532nm zum Einsatz kommen (AP1.3). Die Quellenmodellierung wird dementsprechend angepasst und weitere Proben hergestellt und evaluiert (AP1.4).

Der Laser wird mittels einer asphärischen Linse in den temperaturstabilisierten 40mm langen Wellenleiter eingekoppelt, siehe Abb. 2. Hier können, zur Justage, Kalibrierung und Messung von klassischer Zweiphotonenabsorption, auch Laserpulse von ca. 200fs Pulsdauer bei 835nm und 1350nm Zentralwellenlänge in den Wellenleiter eingekoppelt werden (linkes Rechteck). Dieses klassische Licht stimmt somit in Wellenlänge und räumlicher Mode exakt mit dem erzeugten Quantenlicht überein. Das im Wellenleiter erzeugte Licht wird nun mittels einer weiteren asphärischen Linse kollimiert und das verbleibende Pumplicht herausgefiltert, bevor Signal und Idler durch einen dichroitischen Spiegel getrennt werden. Der Idler Strahl läuft durch eine computergesteuerte Delayline, welche bis zu 170ps Zeitversatz einführen kann. Nun werden beide Strahlen auf einem weiteren dichroitischen Spiegel überlagert, mittels

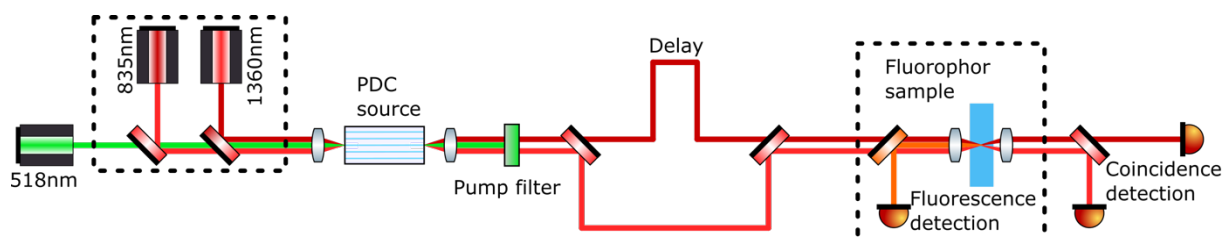


Abb. 2. Optischer Aufbau zur Charakterisierung der Photonenpaarquellen sowie zur Messung von Zweiphotonenabsorption.

einer asphärischen Linse in der Rhodamin 6G Lösung fokussiert und mit einer weiteren asphärischen Linse wieder kollimiert (rechtes Rechteck). Das erzeugte Fluoreszenzlicht wird in Epidetektion durch die erste Linse gesammelt, spektral gefiltert, um eine ungewollte Detektion von Signal oder Idler hier auszuschließen, und mittels Spektrometer oder Einzelphotonen-detektoren detektiert. Die Photonenpaare werden nun auf einem letzten dichroitischen Spiegel getrennt und mittels Spektrometer oder Einzelphotonendetektoren detektiert.

Zur Charakterisierung der Quelle wurde die Rhodamin 6G Probe sowie die zugehörigen Linsen aus dem Aufbau entfernt. Es wurden zunächst die spektralen Eigenschaften der Signal-Photonen in Abhängigkeit der Wellenleiter Temperatur untersucht. Die gemessenen Spektren sind in Abb. 5 zu finden. Wie erwartet (Abb. 1 und Abb. 3) wurden bei geringer Temperatur zwei schmalbandige Peaks im Signalspektrum aufgenommen (dunkelblau), welche bei Erhöhung der Temperatur aufeinander zu wandern (orange) und schließlich, am idealen Arbeitspunkt (violett), zu einem breiten Maximum verschmelzen. Wird die Temperatur noch weiter erhöht, so verringert sich zunächst nur die Bandbreite (hellblau) und schließlich auch die Effizienz des Prozesses (gelb), da der Prozess nun nicht mehr ideal phasenangepasst ist.

Um das Theoretische Modell zu validieren, wurden die gemessenen Bandbreiten zusammen mit den theoretisch berechneten Bandbreiten über der Wellenleitertemperatur aufgetragen (Abb. 4). Da das gemessene Spektrum aufgrund von finiten Fabrikationstoleranzen immer breiter als das Modell ist, wird im Modell ein kürzerer Wellenleiter (25mm) verwendet. Zudem gibt es eine Abweichung von -20°C zwischen Modell und Messung, welche in Abb. 4 entfernt wurde.

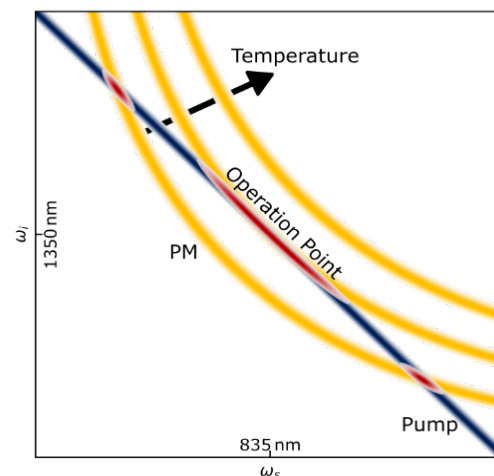


Abb. 3 Schematische Darstellung der Temperaturabhängigkeit. Wird die Temperatur des Wellenleiters erhöht verschiebt sich die Phasenanpassungskurve (gelb) relativ zur Pumpe (blau) und ändert damit den Überlapp der beiden Funktionen (rot) welcher dem erzeugten Spektrum entspricht

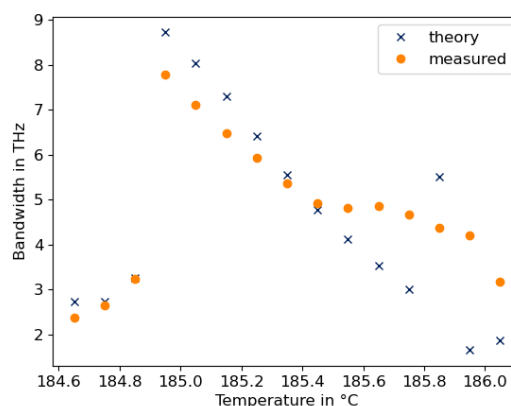


Abb. 4. Gemessene und berechnete Bandbreite der erzeugten Photonenpaare in Abhängigkeit von der Wellenleitertemperatur.

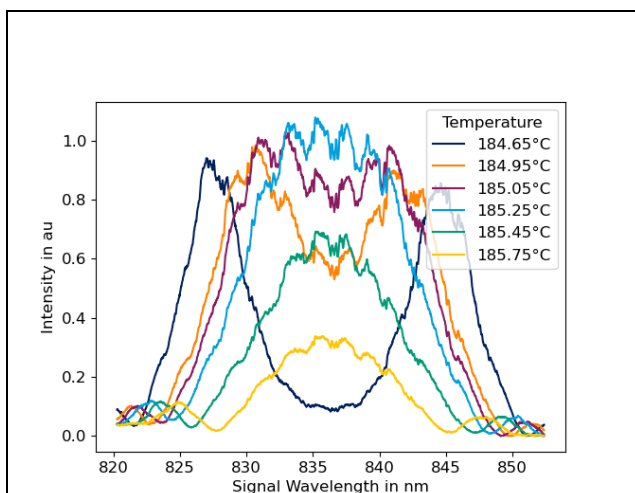


Abb. 5. Gemessene Signal Spektren bei verschiedenen Wellenleitertemperaturen.

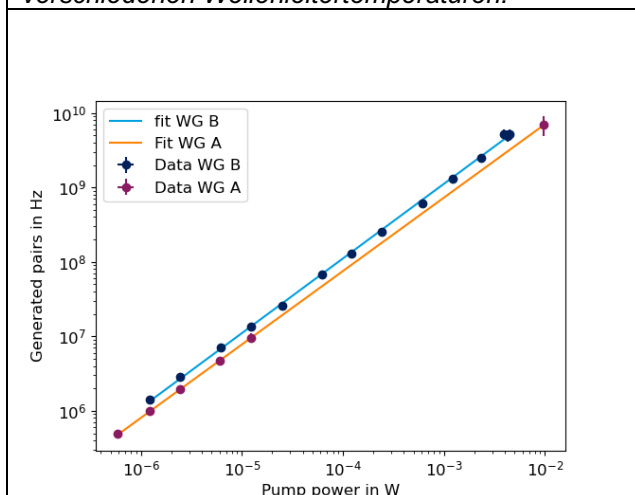


Abb. 6. Gemessenen Helligkeit der Quelle. Es wurde die erzeugte Paarrate zweier Wellenleiter in Abhängigkeit der eingebrachten Pumpleistung bestimmt. Wellenleiter A zeigt höhere maximale Helligkeit während B höhere Effizienz zeigt.

waren dabei in beiden Wellenleitern durch die Leistung und Koppeffizienz des Pumplasers begrenzt. Die Ergebnisse der Quellencharakterisierung sind in [1] veröffentlicht.

AP1.3: Einbau PicoQuant Laser

Ein gepulster Pumplaser mit einer Wellenlänge von 532nm und programmierbarer Pulsdauer wurde von Verbundpartner PicoQuant entwickelt und in den Quellenaufbau (AP1.2) integriert.

Es wurde temporär ein gepulster Pumplaser mit einer Wellenlänge von 532nm durch den Verbundpartner PicoQuant geliefert und der optische Aufbau auf diesen Laser sowie die neue Quelle vorbereitet, sodass die neuen Wellenleiter (optimiert für 532 nm) mit minimalem Aufwand im bestehenden Aufbau charakterisiert werden können. Der neue Laser liefert zudem höhere Leistung bei einem symmetrischeren Strahlquerschnitt, was die maximale Helligkeit der Quelle deutlich erhöhen sollte.

Weiterhin wurde ein programmierbarer ns-laser vom Projektpartner PicoQuant geliefert und in den Messaufbau integriert, wodurch die zur Verfügung stehende Pumpleistungsdichte um ein

Diese lässt sich durch den nicht kalibrierten Temperatursensor und eine kleine Abweichung der Pumpwellenlänge erklären. Der Sprung der Bandbreiten bei 184,9°C entsteht durch das Verschmelzen der zwei Maxima zu einem bei dieser Temperatur (Arbeitspunkt). Bis zu einer gemessenen Temperatur von 185,45°C (grün in Abb. 5) stimmen beide Bandbreiten sehr gut überein. Die größere gemessene Bandbreite bei höheren Temperaturen lässt sich durch Imperfektionen der periodischen Polung und damit verbundene spektrale Artefakte in Form von Nebenmaxima in der Phasen Anpassung erklären, welche nun durch die verschobene Pumpfunktion überhöht werden. Das lokale Maximum der berechneten Bandbreite bei 185,85°C kann analog durch Überlapp der Pumpfunktion mit dem ersten Nebenmaximum der Phasen Anpassung erklärt werden.

Als nächstes wurde die Helligkeit zweier Wellenleiter gemessen. Dazu wurde die Quelle jeweils auf eine Bandbreite von 7,5THz eingestellt und die Raten von Signal und Idler sowie der Koinzidenzen zwischen den Beiden gemessen. Mit diesen Daten ist es möglich sämtliche Transmissions- und Detektionsverluste auszugleichen und so die erzeugten Paarraten zu bestimmen, welche in Abb. 6 über der durch den Wellenleiter transmittierten Pumpleistung aufgetragen ist. Wellenleiter A zeigt hier die größere maximale Paarrate von $(7 \pm 2) \cdot 10^9 \text{ Hz}$ bei einer Effizienz von $0,66 \cdot 10^{12} \text{ Hz/W}$ gegenüber Wellenleiter B, welcher eine geringere maximale Rate $(5,1 \pm 0,8) \cdot 10^9 \text{ Hz}$ jedoch höhere Effizienz von $1,14 \cdot 10^{12} \text{ Hz/W}$ zeigt. Die Maximalen Paar-raten

Vielfaches erhöht wurde. Zwar ist die erreichte Leistungsdichte weit unter der Zerstörschwelle des Wellenleiters, reicht jedoch aus, dass reversible, nichtlinear leistungsabhängige Materialveränderungen, insbesondere Photorefraktion und Absorptionstransienten, massive Auswirkungen auf die Quellenperformance haben. Aus diesem Grund wurde die Performance der Quelle bei den nun erreichbaren Leistungsdichten wiederholt (siehe AP1.4).

AP1.4 – Performance Evaluation Quelle

Entwicklung und Charakterisierung neuer, optimierter Wellenleiterproben sowie Optimierung des experimentellen Aufbaus. Hohe Photonenflüsse sind essenziell für ETPA, allerdings zeigt eine entsprechende Messreihe, dass absolute Flussdichten aufgrund polaronischer Effekte in Lithiumniobat limitiert sind und ein Redesign der Quellen erfordern.

Wellenleiterprobe: Aufgrund der einfacheren Verfügbarkeit entsprechender Laser wurde in Rücksprache mit den Verbundpartnern, insbesondere PicoQuant, entschieden, die Laserwellenlänge des Pumpasers von 514nm zu 532nm zu verschieben. Da diese Zentralwellenlänge nicht mit der Polungsperiode der bisher in AP 1.2 hergestellten Quellen kompatibel ist, wurden am Standort nach dem erprobten Muster neue Quellen hergestellt.

In diesem Zuge wurde, aufbauend aus Erfahrungen aus AP1.2, ebenfalls die Breite der Wellenleiter von 7 μm auf 5 μm verringert. Dadurch verringert sich die Anzahl der geführten räumlichen Moden bei Pump- und Signal-Wellenlänge erheblich, was die Justage deutlich vereinfacht. Zudem sollte der nun stärkere Einschluss der Felder die Effizienz der Quelle erhöhen.

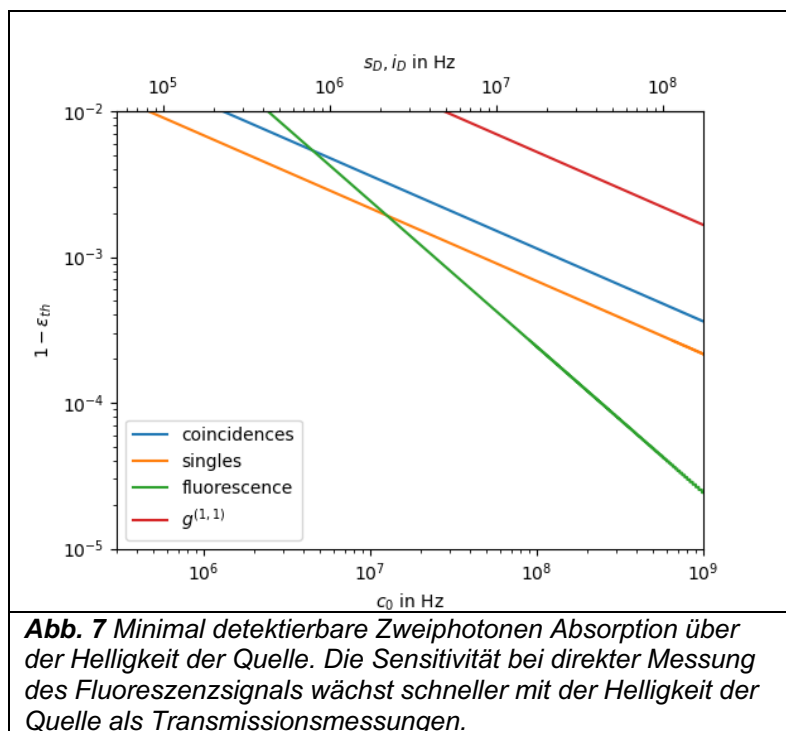
Es wurden der Arbeitspunkte des Gesamtsystems aus Wellenleiter, Pumpaser und Wellenleiterofen für alle Polungsperioden bestimmt und in Tabelle 1 aufgelistet. Aufbauend auf diesen Messdaten wurden Antireflektionsbeschichtungen für die Endfacetten der Wellenleiter konzipiert.

Tabelle 1 Gemessene Arbeitspunkte der Quelle mit dem von PQ zur Verfügung gestellten Laser.

Wellenleiter	Polungsperiode	Temperatur	Signalwellenlänge	Idlerwellenlänge
16C	3,91 μm	403,1 K	832 nm	1474 nm
17B	3,92 μm	418,0 K	835 nm	1466 nm
13C	3,93 μm	432,7 K	838 nm	1456 nm
14C	3,94 μm	446,5 K	843 nm	1443 nm
15C	3,95 μm	460,3 K	846 nm	1434 nm

Verlustoptimierung: Da im ETPA-Experiment die Photonenpaardichte im Probenvolumen relevant ist muss das gesamte optische System von der Quelle bis zur Probe darauf optimiert werden. Hier sind zunächst optische Verluste zu nennen, welche einer direkten Reduktion der Paarrate gleichkommen. Weiterhin führen Verluste auch zu einem Verlust der Photonenzahlkorrelationen und einem höheren Rauschen – verursacht durch Einzelphotonen – in Transmissionsmessungen. Daher wurde der Aufbau auf so wenige Komponenten wie nötig reduziert, wodurch zudem auch die mechanische Stabilität verbessert werden konnte. Zu Beginn des Projekts wurde sich bewusst für eine größere Flexibilität durch die größere Zahl an Freiheitsgraden entschieden. Nach den ersten Erfahrungen konnte der Aufbau im Projektverlauf optimiert werden.

Des Weiteren ist die zeitliche Verlängerung der Pulse durch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion zu beachten. Hier stellt der Wellenleiter mit ca. 7000 fs^2 , gemessen in AP2.3, den größten Anteil dar. Da dies jedoch nur zu einer Verdopplung der Korrelationszeit führt, wird von der Integration eines Pulscompressors in den Messaufbau abgesehen, da dieser wiederum Verluste und eine verringerte Stabilität des Aufbaus bedingt.



Transmissionsmessungen (singles, coincidences und die Korrelationsfunktion $g^{(1,1)}$) sowie Fluoreszenzmessungen (fluorescence) doppelt logarithmisch über der in der Quelle erzeugten Photonenpaarrate aufgetragen. Man sieht, dass die Sensitivität der Fluoreszenz Detektion schneller mit der Helligkeit der Quelle anwächst als die der Transmissionsmessungen. Anders als bei Transmissionsmessungen, wächst der Hintergrund bei der Fluoreszenzmethode nicht mit der Helligkeit der Quelle an. Zudem ist bei dieser Methode die Helligkeit der Quelle nicht durch die Detektoren begrenzt. Aus diesen Gründen wurde die Transmissionsmessung aus dem Messaufbau (AP1.2) entfernt, was den optischen Aufbau weiter vereinfacht. Zudem können nun Linsen mit größerer numerischer Apertur verwendet werden und damit die Effizienz der Fluoreszenzdetektion erhöht werden.

Probenevaluation: Durch die Verwendung kurzwelligen Pumplichts ist zu erwarten, dass die Performanz der Quellen bei hohem Photonenfluss durch Photorefraktion beeinflusst wird. Der genaue Mechanismus der Photorefraktion hängt vom Material, der Wellenlänge und Leistung der Lichtfelder, evtl. Materialbeimischungen (Dotierung) ab und kann sich im Detail unterscheiden. Die typischen Mechanismen für Photorefraktion funktionieren wie folgt: Durch Ein- oder Mehr-Photonenabsorption beispielsweise aus tiefen Störstellen („Deep traps“; Herkunft: intrinsische oder extrinsische Defekte, gewollte oder ungewollte Dotierung, usw.) oder durch Anregung über die Bandlücke werden freie Ladungsträger erzeugt. Diese können nun abhängig vom Material, der Wellenlänge und Leistungsdichte, usw. verschiedene Einflüsse auf den Kristall haben:

Die erzeugten, freien Ladungsträger verzerren lokal die umgebene Kristallstruktur. Dies führt zu einem zusammenziehen oder auseinanderdrücken („Polarisieren“) der Kristallstruktur. Man spricht daher auch von (freien) „Polaronen“. Ein Polaron ist ein Quasi-Teilchen, dass aus der lokalen Verzerrung des Kristallgitters und dem Ladungsträger besteht. Diese Strukturänderung des Kristallgitters kann eine Änderung des Brechungsindex, aber auch der Absorptionsspektren des Materials bewirken, die wiederum als zusätzliche optische Verluste die Leistungsgrenzen eines optischen Bauteils senken.

Messmethodik: Grundsätzlich gibt es zwei Messmethoden, die für ETPA in Frage kommen. Zum einen kann die Absorption der Probe als Abschwächung des transmittierten Lichtes beobachtet werden, oder es kann Fluoreszenzlicht welches von der Probe erzeugt wird detektiert werden. Um die beiden Ansätze zu vergleichen, wurde ein einfaches theoretisches Modell des Messaufbaus erstellt und die mit beiden Ansätzen erreichbare Sensitivität bestimmt. Dazu wurden die erwarteten Signalraten sowie die jeweiligen Messunsicherheiten unter realistischen Annahmen für Transmissions- und Detektions-Effizienzen bestimmt. Aus dieser Messunsicherheit kann nun die Minimale detektierbare ETPA-Stärke $1 - \epsilon_{th}$ abgelesen werden. In Abb. ist $1 - \epsilon_{th}$ für

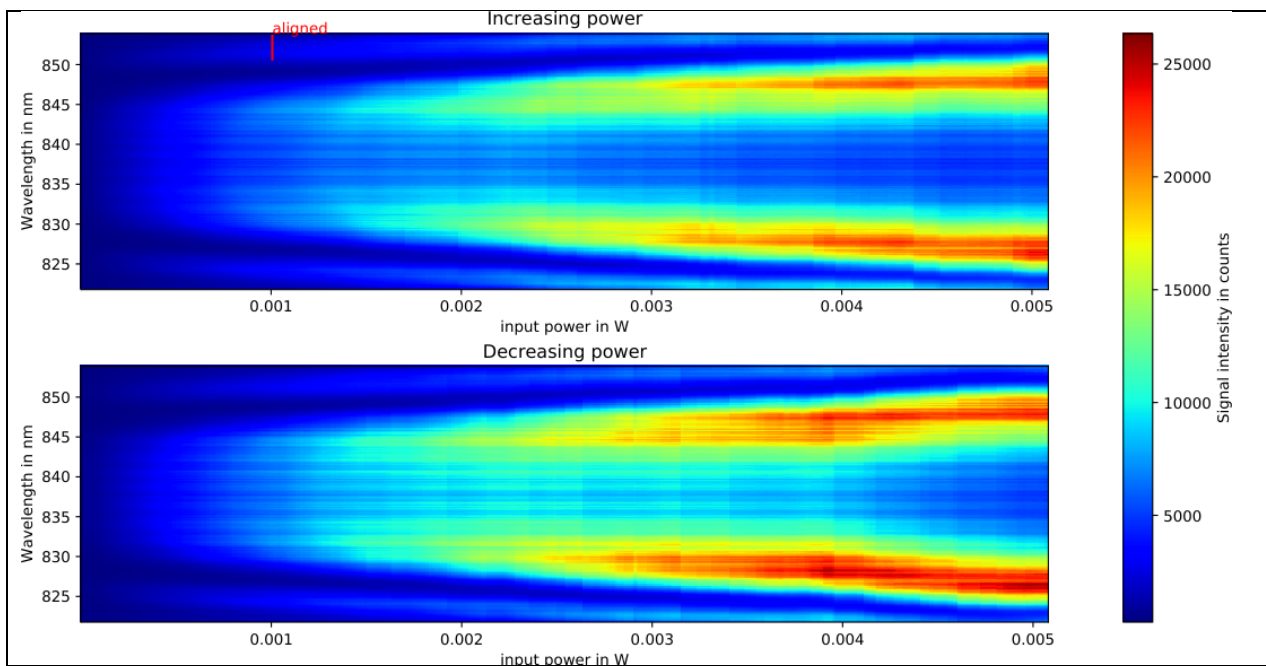


Abb. 8 Gemessenes signal Spektrum über der Pumplaserleistung im Wellenleiter. Das Spektrum ändert sich signifikant mit der Pumpleistung, was auf Photorefraktion zurückzuführen ist. Zudem steigt die spektrale Intensität des erzeugten Lichtes ab einer Leistung von ca. 4 mW nicht weiter an.

Die Änderung des Brechungsindex lässt sich in der Verschiebung des gemessenen PDC Spektrums in Abb. 8 erkennen. Hier wurden das Spektrum des Signal-Arms der PDC für steigende (oben) und fallende (unten) Pumpleistungen gemessen und gegen die Pumpleistung aufgetragen. Die Quelle wurde durch Anpassung der Temperatur bei kleiner Pumpleistung auf den Arbeitspunkt breitbandiger Emission [1] eingestellt. Erhöht man nun die Pumpleistung spaltet sich das Spektrum, analog zu einer Absenkung der Temperatur, in zwei schmalbandige Peaks auf. Senkt man nun die Pumpleistung wieder ab, verschmelzen die zwei Peaks wieder zu einem Breitbandigen Spektrum.

Auch zusätzliche optische Verluste (Absorption) lassen sich in dieser Messreihe beobachten, da die Intensität des erzeugten Lichtes ab einer Pumpleistung von etwa 4mW nicht weiter anwächst. Um diese Beobachtung zu verifizieren, wurden klassische Transmissionsspektren des Wellenleiters, in Abhängigkeit der Intensität des grünen Pumplasers, aufgenommen. In Abb. 9 ist eines dieser Transmissionsspektren (rot) zusammen mit dem PDC-Spektrum (grün) aufgetragen. Man erkennt deutlich den Überlapp zwischen dem polaronischen Absorptionsband und dem Signalband der PDC. Die Stärke der Absorption hängt hier von der Leistung des Grünen Pumplasers ab

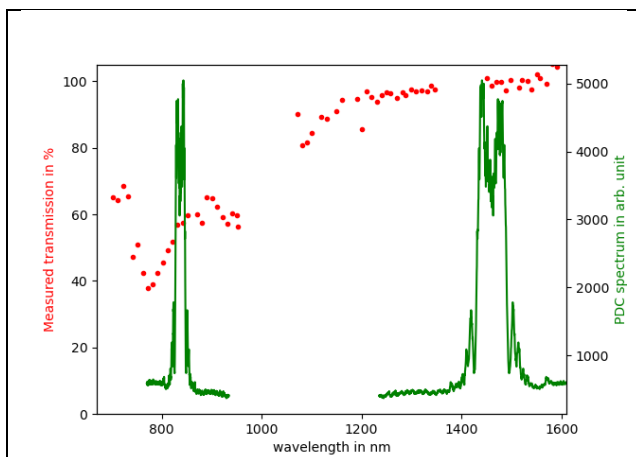


Abb. 9 Vergleich eines PCD Spektrums (grün) mit einem gemessenen Infrarot Absorptionsspektrum (rot).

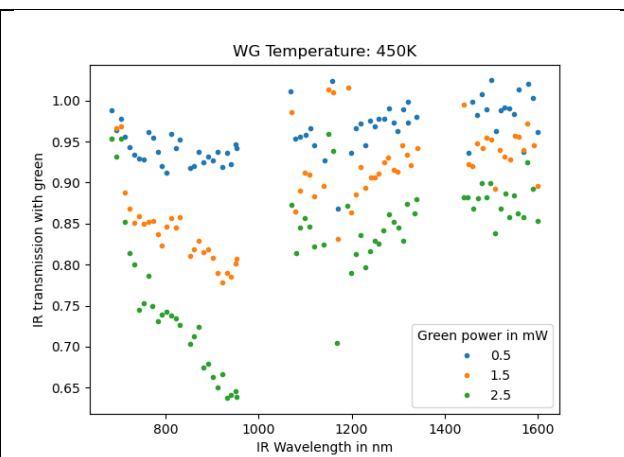


Abb. 10 Infrarotabsorptionsspektren gemessen bei unterschiedlichen Leistungen des grünen Pumplasers.

(Abb. 10). Dies führt zu einer Limitierung der erreichbaren Quellenhelligkeit.

Aus technischen Gründen ist es in dem verwendeten Materialsystem nicht möglich die Anzahl der Störstellen z.B. durch Magnesiumoxid-Dotierung zu verringern, sodass nur eine Verkürzung der Lebensdauer durch Heizen der Wellenleiter möglich ist. Da die Phasen Anpassung jedoch auch temperaturabhängig ist, erfordert diese höhere Temperatur eine komplette Überarbeitung des Quellendesigns (AP1.1). Zudem stellen diese Temperaturen (200°C) deutlich höhere Anforderungen an die Temperaturbeständigkeit sämtlicher Bauteile.

AP1.5 – Aufbau und Schulung PicoQuant

Entfällt aufgrund der Entscheidung von Verbundpartner PicoQuant, die experimentellen Arbeiten aufgrund der geringen kommerziellen Erfolgsaussichten von ETPA nicht weiterzuverfolgen.

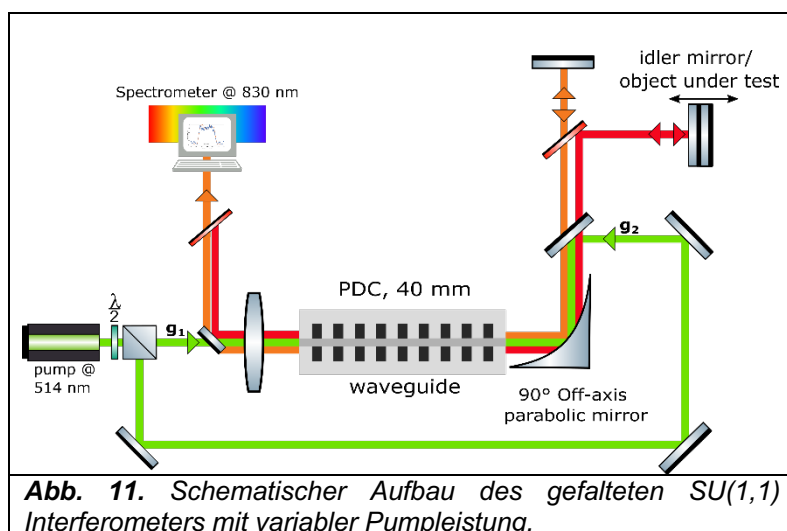
AP2.1 – Planung und Konzeptionierung

Ein SU(1,1)-Interferometer wurde modelliert und geplant. Es arbeitet bei den Wellenlängen der entwickelten Photonenpaarquelle (AP1.2) und kann für spektroskopische Messungen sowie Absorptionsmessungen eingesetzt werden.

Es wurde ein SU(1,1)-Interferometer in einer gefalteten Michelson-Geometrie entworfen und in Betrieb genommen. Dieses besteht in einem traditionellen Layout aus zwei aufeinander abgestimmten breitbandigen Typ II PDC Quellen, welche die Rolle von Strahlteilern in einem regulären Interferometer übernehmen. In der gefalteten Konfiguration kann ein einzelner Wellenleiter für beide Quellen verwendet werden, wodurch sichergestellt wird, dass beide die gleichen spektralen Eigenschaften aufweisen. Da ein Dauerstrichlaser als Pumpe verwendet wird, muss nur die Pfadlänge von Signal und Idler aufeinander abgestimmt werden, vorausgesetzt die Pfadlängendifferenz zwischen Pumplaser und den Signal- und Idler-Feldern ist kürzer als die Kohärenzlänge des Pumplasers. Dies ermöglicht es, das Pumplicht direkt an der Endfacette des Wellenleiters zu reflektieren, was zum einen den optischen Aufbau und dessen Justage erheblich vereinfacht und zum anderen bedeutet, dass das Pumplicht bei einer ETPA-Messung nicht im Probenraum als Konkurrenzsignal zur Fluoreszenz vorhanden ist.

Eine Herausforderung dieses Ansatzes ist der Verlust innerhalb des Interferometers, welcher die

Sichtbarkeit des Interferenzmusters verringert. In theoretischer Modellierung sowie ersten Messungen konnte gezeigt werden, dass solche Verluste durch Anpassen der Pumpleistung in der zweiten Quelle kompensiert werden können. Sind die Verluste innerhalb des Interferometers bekannt kann eine angepasste Beschichtung auf den Wellenleiter aufgebracht werden, um die ideale Pumpleistung in die zweite Quelle zu reflektieren.



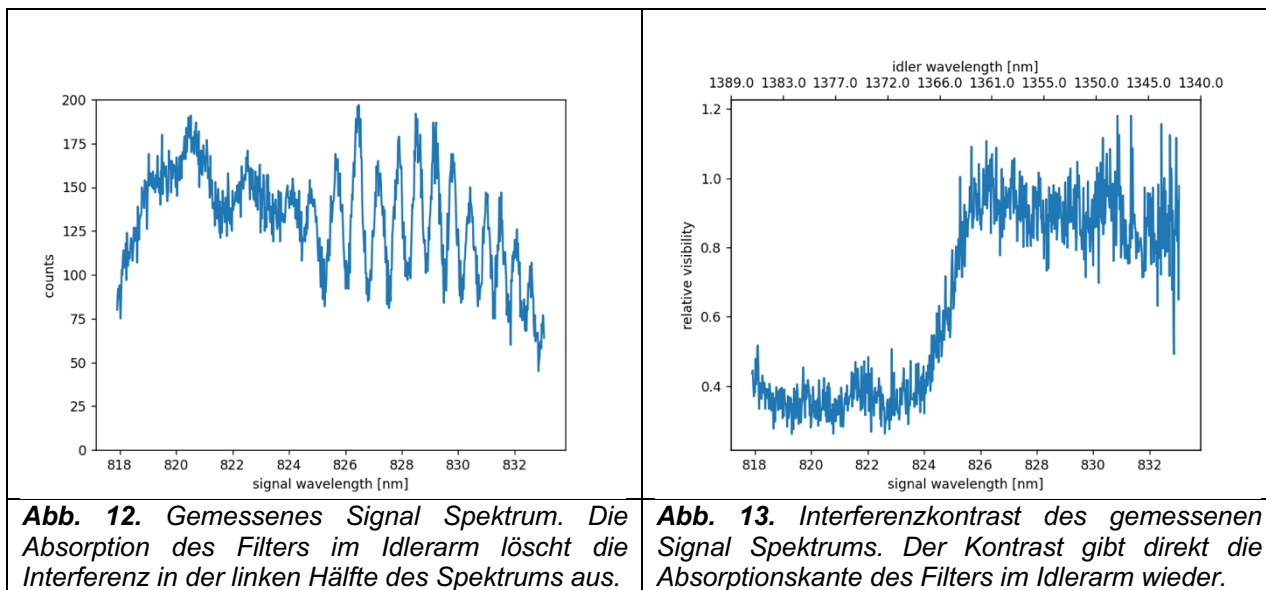


Abb. 12. Gemessenes Signal Spektrum. Die Absorption des Filters im Idlerarm löscht die Interferenz in der linken Hälfte des Spektrums aus.

Abb. 13. Interferenzkontrast des gemessenen Signal Spektrums. Der Kontrast gibt direkt die Absorptionskante des Filters im Idlerarm wieder.

AP2.2: Aufbau Interferometer

Das SU(1,1)-Interferometer wurde aufgebaut und verifiziert. Dazu wurde die Sichtbarkeit der Interferenz in gemessenen Spektrogrammen optimiert. Ein idealer Operationspunkt kann durch geeignete Wahl der Pumpstärken der beiden PDC-Prozesse erreicht werden.

Es wurde ein SU(1,1) Interferometer auf Basis von periodisch gepolten Wellenleitern aufgebaut wie in **Error! Reference source not found.** dargestellt. Hier kommt eine dauerstrich Pumplaser bei 514 nm zum Einsatz, was wiederum eine leichte Variation der Polungsperiode nach sich zieht. Der Pumplaser wird zunächst in zwei Strahlen mit variablen Intensitäten aufgeteilt. Der erste Teilstrahl wird in Vorwärtsrichtung mittels einer asphärischen Linse in den Wellenleiter eingekoppelt und erzeugt hier Signal und Idler Paare mit der parametrischen Verstärkung g_1 . Die erzeugten Paare werden mittels eines Parabolspiegels kollimiert und mit einem dichroische Spiegel aufgeteilt. Der langwelligere Idler interagiert nun

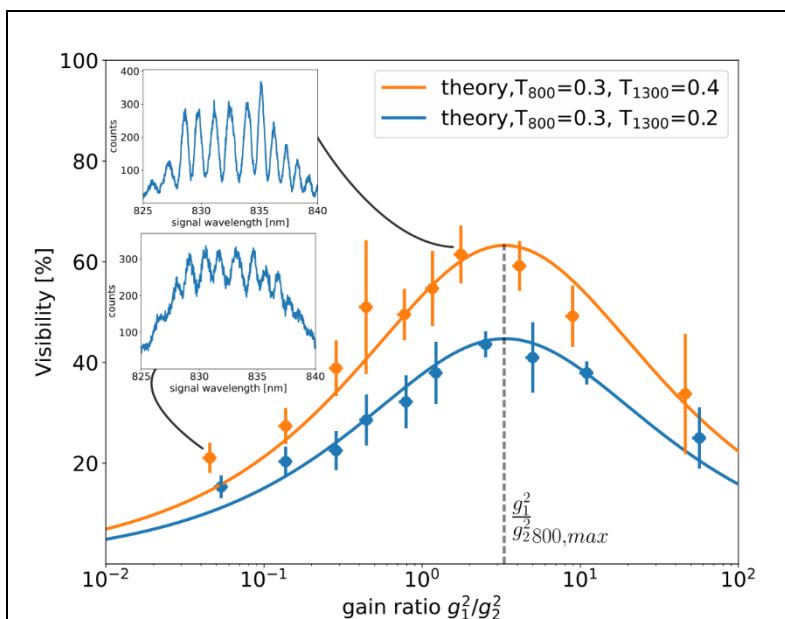


Abb. 15 Gemessener des Interferenzkontrast über dem Verhältnis der Pumpleistung in Vor- und Rückwärtsrichtung.

mit der Probe und wird dann zurück in den Wellenleiter reflektiert, während der Signalstrahl direkt zurück in den Wellenleiter reflektiert wird. Hier werden Signal und Idler nun mit dem zweiten Pumpstrahl und den davon in Rückwärtsrichtung mit dem Verstärkungsfaktor g_2 erzeugten Photonenpaaren überlagert, was zur Interferenz der Erzeugungswahrscheinlichkeiten führt. Um Signale durch Fabry-Perot Interferenz innerhalb des Wellenleiters zu unterdrücken, wurden beide Endfacetten mit Antireflexbeschichtungen für alle drei Wellenlängen versehen. Am

Ausgang des Interferometers wird das Signal-Licht entweder mit einem Spektrometer oder einem Photonendetektor gemessen.

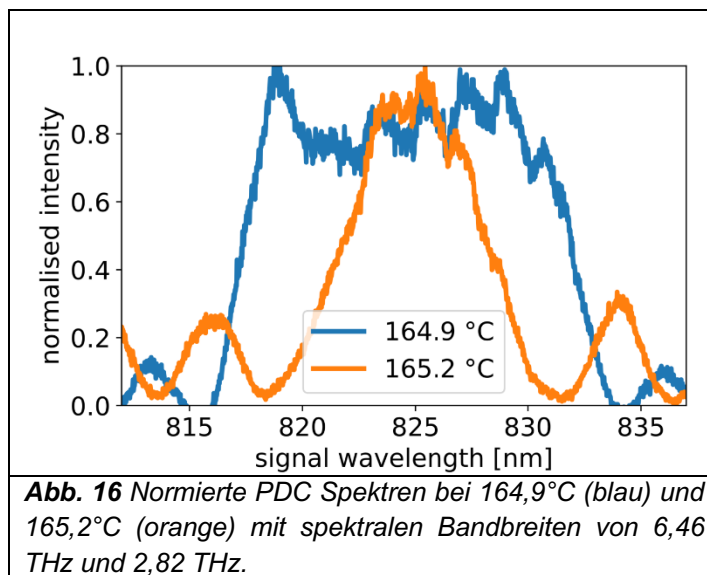
In Abb. ist ein spektrales Interferogramm, gemessen im Signalarm, dargestellt. Man erkennt deutlich die Interferenzstreifen in der rechten Hälfte des Spektrums. Diese Interferenz kann nur zustande kommen, wenn Signal und Idler in beiden Quellen interagieren, somit kann der Kontrast des Interferogramms Aufschluss über die Transmission in einem oder beiden Interferometerarmen und damit die Transmission des Absorbers liefern, siehe Abb. .

Durch geschicktes Anpassen des Verhältnisses g_1/g_2 lässt sich der Interferenzkontrast maximieren, wie in den Insets in Abb. gezeigt ist. Wenn $g_1 > g_2$ ist werden im ersten PDC-Prozess mehr Photonen erzeugt als im zweiten. Somit können die Propagations- und Kopplungs-Verluste zwischen den beiden PDC-Prozessen teilweise kompensiert werden [2].

In Abb. ist die Sichtbarkeit der Interferogramme für eine Transmission des Signal-Armes von $t_{800} = 0,3$ sowie Transmissionen im Idler-Arm von $T_{1300} = 0,4$ und $T_{1300} = 0,2$ über dem Verhältnis g_1^2/g_2^2 aufgetragen. Die maximale Sichtbarkeit des Interferogramms wird erreicht, wenn g_1^2/g_2^2 dem inversen der Transmission t_{800} im detektierten Signal-Arm entspricht. Die maximal erreichbare Sichtbarkeit wird dabei durch die Transmission im nicht detektierten Idler-Arm limitiert.

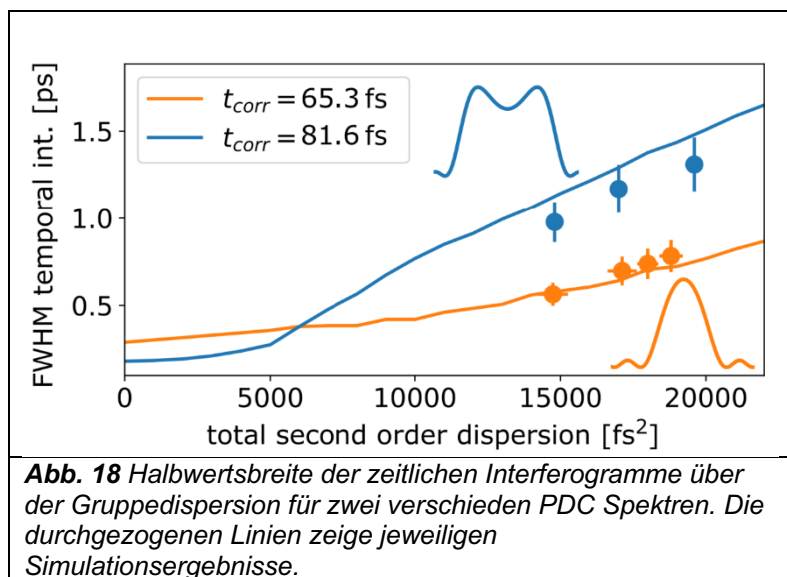
AP2.3: Charakterisierung Interferometer

Das SU(1,1)-Interferometer wurde charakterisiert. Dazu wurde die Korrelationszeit der PDC-Quellen bestimmt. Diese Methode kann nicht nur zur Quellencharakterisierung sondern auch zur Selbstkalibration des Spektrometers verwendet werden.



Mit Hilfe des SU(1,1) Interferometers aus AP2.2 wurde die Korrelationszeit der Erzeugten Photonenpaare sowie die Gruppendispersion der Quelle bestimmt. Um die Gruppendispersion des Aufbaus zu bestimmen, wurden spektrale Interferogramme aufgenommen, siehe Abb. a). Da der Abstand der Interferenzstreifen von der Dispersion abhängt wurde durch leichtes Verstimmen der Armlängen lineare Dispersion eingeführt, um die Anzahl der Messbaren Interferenzstreifen zu maximieren. Der Abstand der Streifen wird zudem durch die Quadratische

Phase moduliert. Aus dieser Modulation ließ sich die Gruppendispersion der beiden Wellenleiter von $14800 \pm 240 \text{ fs}^2$ bestimmen. Diese Stimmt qualitativ mit der aus dem



Wellenleitermodell berechneten Dispersion von 10893 fs^2 überein. Die Abweichung von ca. $+4000 \text{ fs}^2$ wird vermutlich durch die verwendeten Optiken, allen voran die Beschichtungen der Wellenleiterendfacetten, verursacht. Als Nächstes wurde zusätzliche Dispersion im nicht detektierten Idler Arm hinzugefügt, sowie die Bandbreite der Quelle verändert (vgl. Abb. 16) und die spektrale Messung wiederholt. Mit der nun bekannten Gesamtdispersion kann die Korrelationszeit aus der Breite eines zeitlichen Interferogramms

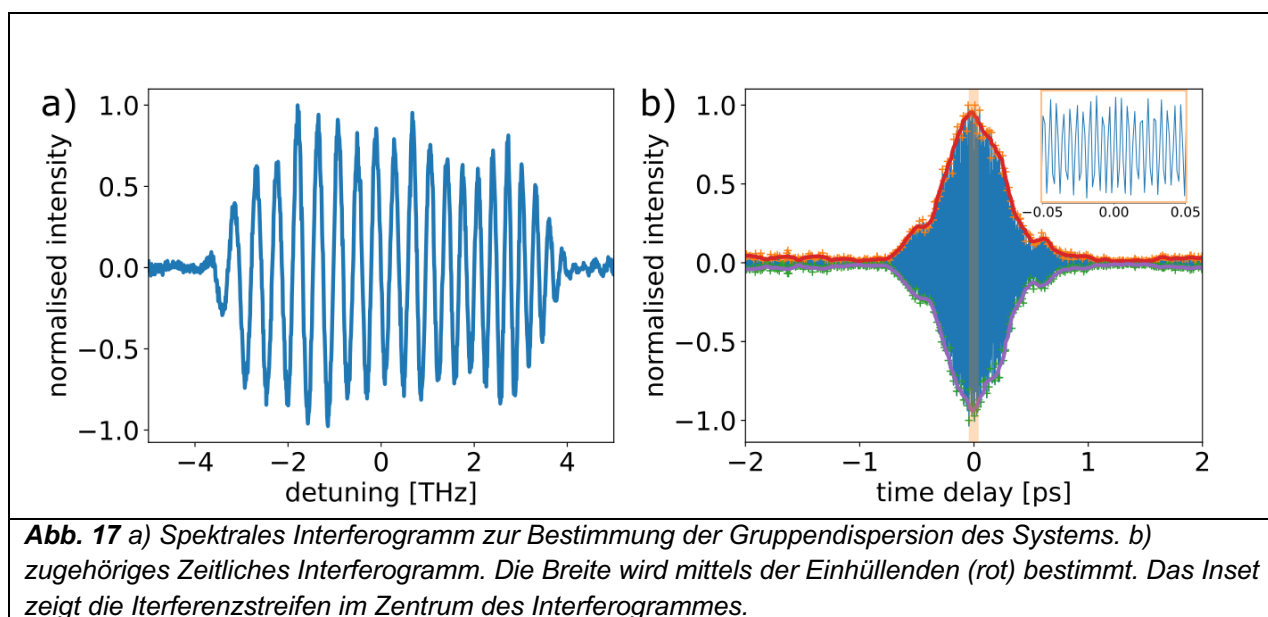
bestimmt werden. Dazu wurde das Spektrometer durch eine Lawinen-Photodiode ersetzt und die Photonenzahl in Abhängigkeit des Längenunterschieds der Interferometerarme gemessen.

Ein solches zeitliches Interferogramm ist in Abb. b) dargestellt. In Abb. wurden die gemessenen Breiten über der Gesamtdispersion aufgetragen und mit einer Modellrechnung basierend auf den gemessenen Spektren verglichen. Daraus können Korrelationszeiten von $73,5 \text{ fs}$ für das schmale und $177,5 \text{ fs}$ für das breitere Spektrum bestimmt werden. Diese weichen durch die Dispersion des optischen Aufbaus von den minimalen Fourier-limitierten Korrelationszeiten von $65,3 \text{ fs}$ für das schmale und $81,6 \text{ fs}$ für das breitere Spektrum ab. Zudem weist das schmale Spektrum aufgrund eines kleineren Zeit-Bandbreiten-Produktes eine kürzere Korrelationszeit auf.

Eine detaillierte Beschreibung der Methode und der Ergebnisse wurde veröffentlicht [3].

AP2.4: Upgrade Interferometer

Die Funktionalität des nichtlinearen Interferometers wurde um eine weitere Messmethode – die IC Konfiguration – erweitert. Eine Studie zeigt, dass die IC Konfiguration für einen integrierten OCT Sensor besser geeignet ist als die SU(1,1) Konfiguration.



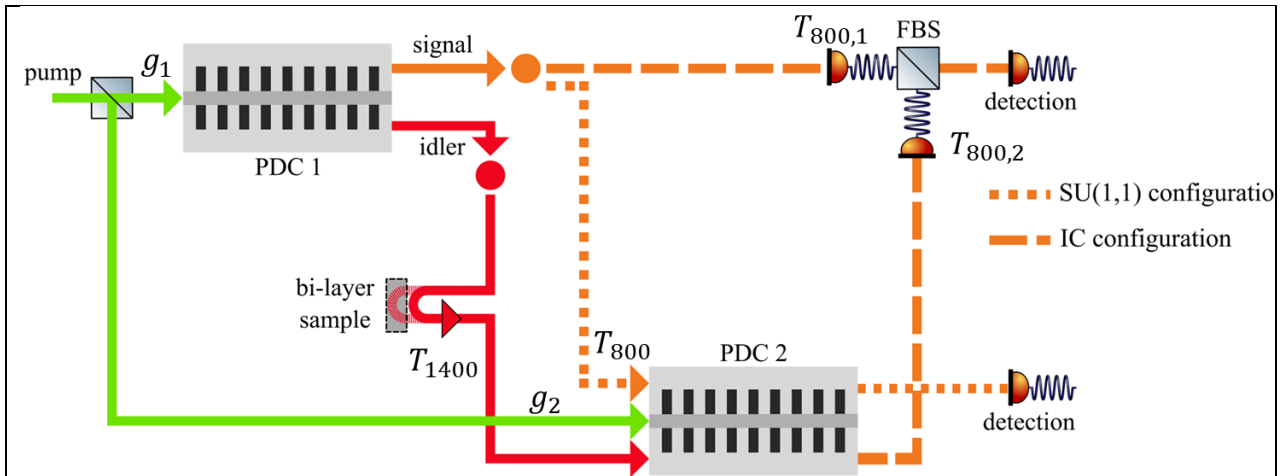


Abb. 18 Schematische Darstellung des interferometrischen Aufbaus für OCT Messungen. Je nach Wahl der Messmethode werden beide erzeugte Strahlen durch die zweite PDC-Quelle geleitet (SU(1,1)) und der Signalstrahl hinter der 2. Quelle detektiert, oder es wird nur der Idlerstrahl in die 2. PDC-Quelle geleitet (IC). Die beiden Signalstrahlen interferieren dann an einem Faserstrahlteiler (FBS).

Mit dem optimierten Interferometer aus AP2.2 und AP2.3 wurden Optische Kohärenztomographie (Englisch: optical coherence tomography; OCT) Messungen in zwei experimentellen Konfigurationen durchgeführt.

OCT ist eine weit verbreitete Methode zur hochauflösenden Bildgebung in axialer Richtung und wird insbesondere zur Untersuchung von Mehrschichtsystemen mit verschiedenen Reflektivitäten und Abständen zwischen den Grenzflächen eingesetzt. Dazu wird das zu untersuchende Objekt in einen Arm des Interferometers eingebracht und ein Interferogramm abhängig von der Pfadlänge des anderen Arms aufgenommen. Ist die Pfadlängendifferenz beider Arme kleiner als Kohärenzlänge des Lichtes, so ist ein Interferenzkontrast messbar. Die Kohärenzlänge des Lichtes bestimmt somit die axiale Auflösung.

In der SU(1,1) Konfiguration werden Signal und Idler aus der ersten PDC-Quelle in die zweite PDC-Quelle eingekoppelt (siehe Abb. 18). Sind die beiden PDC-Quellen identisch, so interferieren die Erzeugungswahrscheinlichkeiten in beiden Quellen, welche als Modulation der Intensität in beiden

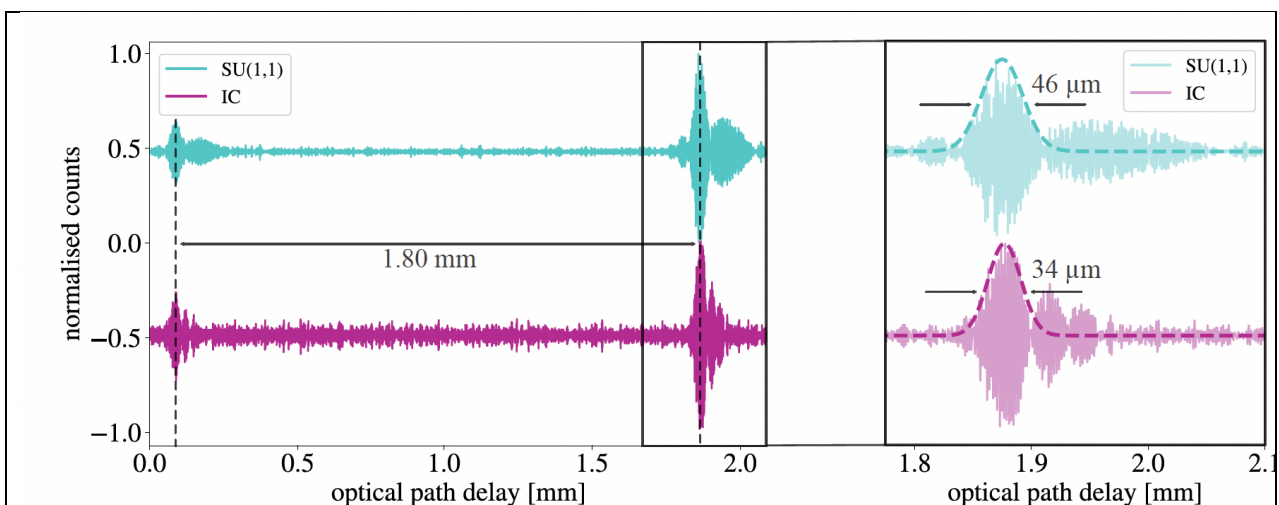


Abb. 19 Messung von zeitlichen Interferogrammen für OCT in SU(1,1) und IC Konfiguration. Der Abstand der beiden Peaks ist der Schichtabstand. Der vergrößerte Bildausschnitt auf der rechten Seite zeigt die Auflösung der Messmethoden.

Strahlen messbar ist.

In der Induced Coherence (IC) Konfiguration wird nur der Idlerstrahl in die zweite PDC-Quelle eingekoppelt, während die Signalstrahlen aus beiden Quellen extern an einem Strahlteiler überlanger werden

Nun wird ein Testobjekt, hier zwei reflektierende Schichten im Abstand von ca. 1,8 mm, zwischen den beiden PDC-Quellen in den Idlerarm eingebracht.

Die gemessenen Interferogramme sind in Abb. 19 dargestellt. Aus dem Abstand der Peaks lässt sich der Abstand der Schichten, für SU(1,1) und IC, ablesen. Beide Konfigurationen ergeben 1,8mm. Die axiale Auflösung lässt sich aus der Breite der Interferogramme in Abb. 19 ablesen und ist durch die Kohärenzlänge des Lichtes gegeben. Da diese durch die Dauer der verwendeten Pulse gegeben ist, ist die Auflösung stark von der Gruppendispersion innerhalb des Interferometers abhängig. In der IC Konfiguration wird eine höhere Auflösung (34µm) erreicht, da der Signalstrahl nicht durch den zweiten Wellenleiter propagiert und die Dispersion des Wellenleiters somit weniger stark zu Buche schlägt. Die SU(1,1) Konfiguration zeigt hingegen eine schlechtere Auflösung (46µm). Somit ist die IC Konfiguration in einem integrierten OCT System der SU(1,1) Konfiguration vorzuziehen. Eine detaillierte Beschreibung des Interferometers ist in [4] zu finden.

AP2.5: ETPA Messungen

Es wurden ETPA-Messungen durchgeführt, es konnte jedoch kein Fluoreszenzsignal, welches eindeutig durch verschränkte Photonenpaare erzeugt wurde, nachgewiesen werden. Aus diesem Grund wurde eine ab initio Modellierung von drei ETPA-Messverfahren entwickelt, um die Nachweisgrenze von ETPA-Fluoreszenz in einem gegebenen Messaufbau zu bestimmen.

Um ein ETPA-Signal nachzuweisen, müssen mindestens zwei Messungen durchgeführt werden: Eine mit maximal verschränkten Photonenpaaren, im folgenden Signal (S) genannt, und eine mit minimaler Verschränkung (Background B).

Nur wenn die Messwerte für Signal und Background innerhalb der Messunsicherheit (ΔS und ΔB) nicht übereinstimmen kann ETPA nachgewiesen werden, was dem Erfüllen der Ungleichung

$$S - B \geq \Delta S + \Delta B$$

Im Folgenden werden S und B für ausgewählte Messverfahren bestimmt, um dann quantitative Aussagen zur Sensitivität dieser zu treffen.

Da auch zwei nicht verschränkte Photonen („Classic Two Photon Absorption“; CTPA) oder ein einzelnes Photon („Hot Band Absorption“; HBA) absorbiert werden können muss die Photonenflussdichte am Ort des Absorbers konstant bleiben. Mit bekannten experimentellen Parametern können die Signalraten für all diese Prozesse bestimmt werden.

Dazu definieren wir zunächst die erzeugte Paar-Rate c_0 , welche durch optische Verluste $\eta_{s/i}$ zur reduzierten Paar-Rate am Ort des Absorbers c_a wird, um daraus die zu erwartenden Fluoreszenzraten f für alle erwarteten Prozesse via klassischer Streuungstheorie zu bestimmen.

Für die klassische Zwei-Photonenabsorption (CTPA) ergibt sich:

$$f_c = \frac{N_t \sigma_c}{A^2 T^2} s_a i_a = \epsilon_{TPA} \eta_s \eta_i c_0^2$$

Wobei Teilchenzahl N_t , klassischer zwei-Photonen Absorptionsquerschnitt σ_c , bestrahlte Fläche A und Pulsdauer T zu der optischen Dichte ϵ_{TPA} für TPA zusammengefasst werden.

Für die verschränkte Zwei-Photonenabsorption (ETPA) ergibt sich analog:

$$f_e = \frac{N_t \sigma_c}{AT A_e T_e} c_a = \epsilon_{ETPA} \eta_s \eta_i c_0$$

mit der Korrelationszeit T_e und Korrelationsfläche A_e und der „verschränkten“ optischen Dichte ϵ_{ETPA} . Vergleicht man nun diese optischen Dichten findet man den wohlbekannten Quantenvorteil für ETPA

$$\frac{\epsilon_{ETPA}}{\epsilon_{TPA}} = \frac{AT}{A_e T_e},$$

welcher hier in einem einheitlichen Framework hergeleitet wird.

Zuletzt muss noch die Fluoreszenz durch Ein-Photonenabsorption weitab der Absorptionslinie (HBA) berücksichtigt werden, welche durch die Signal- (Idler-) Photonenzahl s_a, i_a am Ort des Absorbers und einen wellenlängenabhängigen Absorptionsquerschnitt $\sigma_{HBA_s/i}$ beschrieben wird

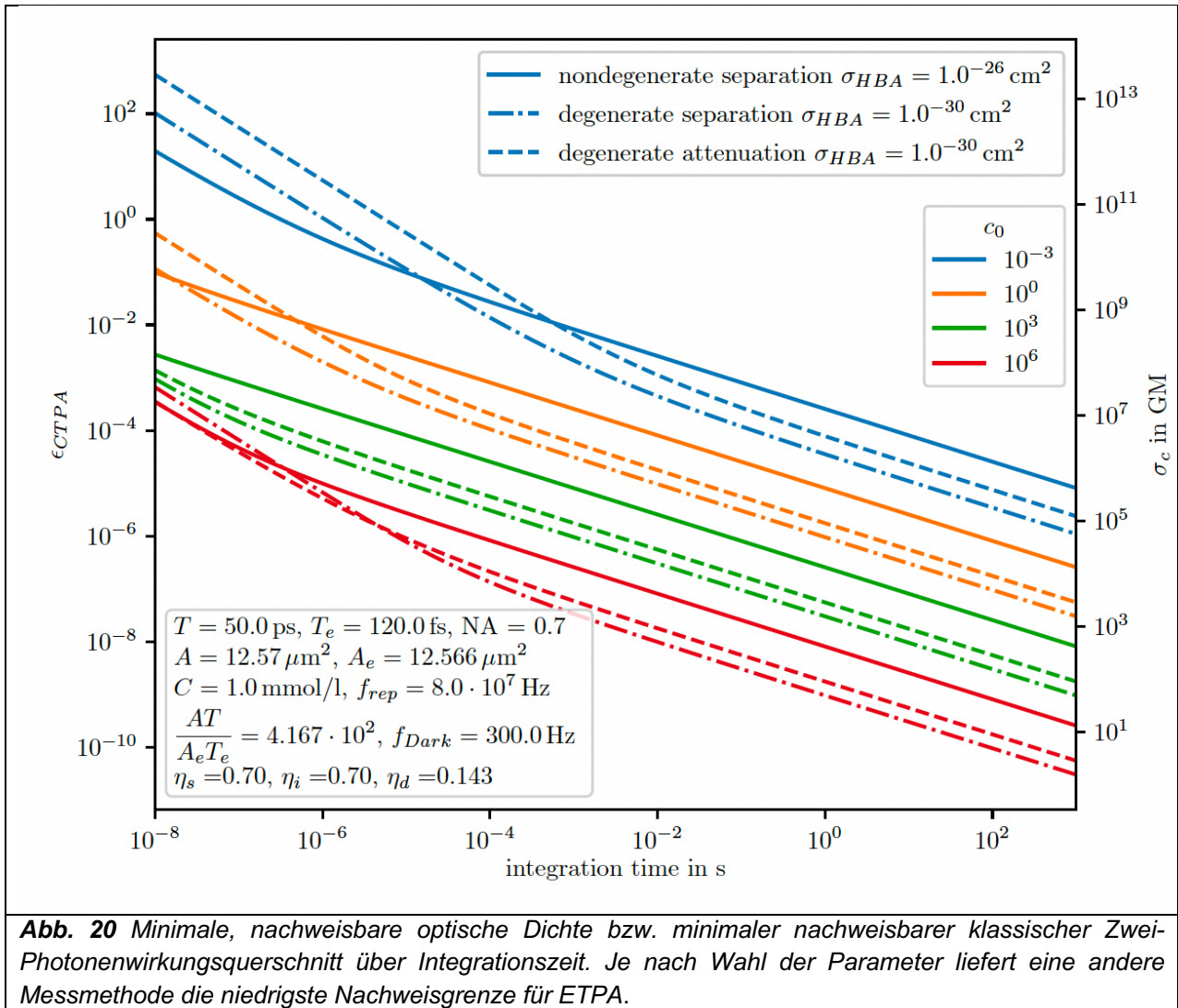
$$f_{HBA} = \frac{N_t \sigma_{HBA_s}}{AT} s_a + \frac{N_t \sigma_{HBA_i}}{AT} i_a = \epsilon_{HBA_s} \eta_s c_0 + \epsilon_{HBA_i} \eta_i c_0$$

Die zwei-Farben-Quelle aus AP1.4 ermöglicht es alle verschränkten Paare zeitlich ausreichend weit voneinander zu trennen und damit ETPA zu komplett zu unterdrücken. Aus den obigen Gleichungen lässt sich unter Berücksichtigung bekannter experimenteller Parameter eine kleinste noch detektierbare optische Dichte ϵ_{TPA} berechnen.

In Abb. 20 wurde diese minimale optische Dichte für verschiedene Messmethoden gegen die Integrationszeit aufgetragen. Diese Methoden („nondegenerate separation“, „degenerate separation“, „degenerate attenuation“) unterscheiden sich in der Art und Weise in welcher der Background B gemessen wird. Bei der „nondegenerate separation“ Methode werden die Paarphotonen deterministisch aufgetrennt und gegeneinander verzögert. Bei der „degenerate separation“ Methode werden die (ununterscheidbaren) Paarphotonen probabilistisch aufgeteilt und gegeneinander verzögert. Bei der „degenerate attenuation“ Methode schließlich werden Abschwächungen in den Pumpstrahl und die erzeugten Photonenteile eingefügt. In den beiden letzten Verfahren kann das ETPA-Signal nicht komplett unterdrückt werden, was auf den ersten Blick zu einer geringeren Sensitivität führen sollte. Dieser Nachteil lässt sich jedoch nur bei niedrigen Paar-Raten (blau) und kurzer Integrationszeit beobachten.

Bei höheren Paar-Raten dominiert bei der „nondegenerate separation“ Methode die Ein-Photonen-Fluoreszenz (HBA) das Signal. Da der Ein-Photonen Absorptionsquerschnitt σ_{HBA} stark wellenlängenabhängig ist, maximiert eine frequenz-degenerierte Quelle den Abstand der Anregungsfrequenz ν zur Ein-Photonen-Absorptionsfrequenz ν_{max} und minimiert damit σ_{HBA} .

Wenngleich eine längere Integrationszeit immer zu einer erhöhten Sensitivität führt, kann die Wahl der optimalen Messmethode die Integrationszeit um mehrere Größenordnungen verringern. Das hier gezeigte Theorie Framework ermöglicht es somit nicht nur die erwartete Nachweisgrenze für ETPA zu bestimmen, sondern auch zu berechnen welche Messmethode am besten geeignet ist.



3. Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Personalkosten (0812)	Finanzierung des an der Forschung beteiligten Personals. Ein Doktorand, der die konzeptionellen, theoretischen und experimentellen Arbeiten durchgeführt hat.
Gegenstände bis 410€ (0831)	Optische und optomechanische Komponenten, welche im Experiment verbaut wurden.
Dienstreisen (0846)	Reisen zu nationalen und internationalen Konferenzen zur Dissemination der Projektergebnisse. Weiterhin Reisen zu den Verbundtreffen zur gemeinsamen Diskussion des Projektfortschritts.

4. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Verschränkte Zweiphotonenabsorption ist eine vielversprechende experimentelle Methodik im Feld der Ultrakurzpuls-Quantenspektroskopie. Grundsätzlich wird davon ausgegangen, dass Quantenlicht mit einer angepassten Zeit-Frequenz-Verschränkung in der Lage ist, atomare und molekulare Übergänge effizienter zu adressieren als dies mit klassischem Licht möglich ist. Dies führt dazu, dass ein Ziel-Signallevel mit weniger eingestrahlt Licht erreicht werden kann. Insbesondere bei photosensitiven Proben—zum Beispiel lebende Zellen—kann dies Vorteile mit sich bringen, da keine Probenschädigung aufgrund hoher Lichtleistungen stattfindet (Stichwort: Phototoxizität).

Zu Projektbeginn gab es innerhalb der wissenschaftlichen Community einen aktiven Diskurs zum Nutzen verschränkter Zweiphotonenabsorption im Kontext molekularer Absorber. Widersprüchliche experimentelle Ergebnisse ließen keine klare Antwort auf die Frage, ob ein Quantenvorteil beobachtbar sei, zu. Im Rahmen des Projekts, wurde ein experimentelles System entwickelt, welches die systematischen Fehlerquellen anderer Realisierungen ausschaltet und somit eine klare Antwort auf die obige Frage erlaubt. Ein entsprechendes Theoriemodell wurde entwickelt. Sowohl Experiment als auch Theorie ergeben, dass mit dem momentanen Stand der Technik kein Quantenvorteil beobachtet werden kann.

Um verschränkte Zweiphotonenabsorption in die Anwendung zu bringen, braucht es daher weitergehende Forschungsarbeiten, sowohl auf theoretischer Seite als auch im Experiment. So muss beispielsweise die Zeit-Frequenz-Verschränkung präzise auf den jeweiligen Absorber angepasst werden. Entsprechende Quellen müssen entwickelt werden. Weiterhin müssen bessere Detektoren mit niedrigerem Rauschen entwickelt und zur Marktreife gebracht werden. Insbesondere die Dunkelzählrate von Einzelphotonendetektoren ist ein limitierender Faktor für praktische verschränkte Zweiphotonenabsorption.

Die Projektarbeiten konnten den Stand der Technik im Hinblick auf verschränkte Zweiphotonenabsorption deutlich voranbringen. Erstmals wird klar verstanden, welche Schritte nötig sind, um diese Technologie zukunftssicher zu machen. Somit leistet dieses Projekt einen wichtigen Beitrag zur Technologie-Souveränität Deutschlands.

5. Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die Ergebnisse werden im Sinne des Verwertungsplans wie folgt weiterverwertet:

- Wissenschaftliche Ergebnisse werden auf Konferenzen und in Fachjournalen veröffentlicht.
- Aus dem Projekt entstandene Ergebnisse werden, wo möglich, durch Patente geschützt.
- Weiterhin haben die Arbeiten des Gesamtverbunds zu einem starken Zusammenschluss internationaler Forschungspartner geführt. Nachfolgende Arbeiten können, wenn möglich, in einem nationalen Projekt fortgeführt werden. Deutschland ist im Bereich der Quantenspektroskopie weltweit führend und ein nationaler Zusammenschluss starker Forschungspartner ist ein wichtiger Schritt auf dem Weg hin zu einer neuen Quantentechnologie.

6. Fortschritt bei anderen Stellen

Uns sind keine Ergebnisse dritter bekannt, welche die hier erarbeiteten Ergebnisse wiederholen oder darüber hinausgehen.

7. Veröffentlichungen

[1] R. Pollmann, F. Roeder, V. Quiring, R. Ricken, C. Eigner, B. Brecht, C. Silberhorn, "Integrate, bright broadband, two-colour parametric down-conversion source", *Opt. Exp.* **32**, 23945-23955 (2024).

[2] F. Roeder, R. Pollmann, M. Stefskzy, M. Santandrea, K.-H. Luo, V. Quiring, R. Ricken, C. Eigner, B. Brecht, Ch. Silberhorn, "Measurement of Ultrashort Biphoton Correlation Times with an Integrated Two-Color Broadband SU(1,1)-Interferometer", *PRX Quantum* **5**, 020350 (2024).

[3] F. Roeder, A. Gnanavel, R. Pollmann, O. Brecht, M. Stefszky, L. Padberg, C. Eigner, C. Silberhorn, B. Brecht, "Ultra-broadband non-degenerate guided-wave bi-photon source in the mid-infrared", *New J. Phys.* **26**, 123025 (2024).

[4] R. Pollmann, F. Roeder, C. Silberhorn, B. Brecht, "Limitations of Entangled Two-Photon Absorption detection", arXiv:2512.19261 (2025).

[5] F. Roeder, R. Pollmann, V. Quiring, C. Eigner, B. Brecht, C. Silberhorn, "Towards integrated sensors for optimized OCT with undetected photons", arXiv:2508.05320 (2025).