

Ultrakurze Laserpulse

Erzeugung und Anwendung

Seit einigen Jahren sind Ultrakurz-
puls laser vom Entwicklungsstadium zu
nützlichen Instrumenten herangereift,
die in der Hochfeldphysik und der Metro-
logie Anwendung finden. Heute decken
Ultrakurzpulslaser das gesamte Spektrum
ab zwischen Pulsenergien im sub- μJ -
Bereich bei Repetitionsraten von einigen
MHz und hochenergetischen Pulsen mit
Spitzenleistungen im Terawattbereich
bei Wiederholraten von einigen kHz.

Begriffe wie „kurz“ und „ultrakurz“ sind
sehr relativ. Innerhalb von weniger als drei
Jahrzehnten konnte die experimentell er-
reichbare Zeitskala von Nanosekunden auf
Femtosekunden verringert werden ($1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$, $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$). Vor kurzem wurde
schließlich sogar die Femtosekunden-Bar-
riere durchbrochen, als Röntgenpulse mit
200 Attosekunden Dauer ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) ge-
neriert und damit Vorgänge innerhalb eines
Atoms beobachtet werden konnten. Egal ob
Stroboskopie, breitbandige Laserpulse oder
kohärente Attosekunden-Röntgenpulse, es
sind immer Lichtpulse, die die größtmög-
liche Auflösung vorgeben (Abb. 1). Nach
dem „Jahrhundert des Elektrons“ sind das
Wissen und die Kontrolle über das Licht ge-
genwärtig und sicher auch zukünftig für den
Fortschritt in Forschung und Technologie
maßgeblich bestimmend.

Ultrakurze Laserpulse im Zeit- und Frequenzraum

Das elektromagnetische Feld ultrakurzer
Pulse besteht aus nur wenigen optischen
Oszillationen. Eine Schwingungsperiode
der weit verbreiteten Titan:Saphir-Laser
mit einer Wellenlänge von 800 nm beträgt
nur 2,7 fs. Der gegenwärtige Rekord der Puls-
dauer liegt bei Titan-Saphir-Systemen mit
externer Pulskompression bei 3,7 fs [1]. Die
theoretische Grenze für die Dauer eines frei
propagierenden Pulses ist eine vollständige

DIE AUTOREN

THOMAS METZGER

Thomas Metzger stu-
dierte Maschinenwesen
an der TU Stuttgart. Die
Diplomarbeit fertigte er
bei der Laser- und Medizin-Technologie
GmbH in Berlin an. Seit 2002 ist er wissen-
schaftlicher Mitarbeiter in der Gruppe um
Ferenc Krausz; bis 2003 am Institut für Pho-
tonik der TU Wien, danach am Max-Planck-
Institut für Quantenoptik in Garching.



JENS RAUSCHENBERGER

Jens Rauschenberger
(1977) studierte Physik an
der ETH Zürich. Seine Di-
plomarbeit fertigte er am
JILA, University of Colorado
an. Seit 2003 ist er wissen-
schaftlicher Mitarbeiter, zuerst am Institut für
Photonik der TU Wien, später am Max-Planck-
Institut für Quantenoptik in Garching.



ALEXANDER APOLONSKI

Alexander Apolonski
(1955) studierte Physik an
der Novosibirsk State
University und promovierte
1988 am Institute of
Automation and Electro-
metry (Siberian Branch of the Russian
Academy of Sciences). Seit 1999 arbeitet er in
der Gruppe um Ferenc Krausz. In dieser Zeit
hat er 21 Arbeiten veröffentlicht.



Prof. Ferenc Krausz
Department für Physik
Ludwig-Maximilians-Universität München
Am Coulombwall 1, 85748 Garching
Max-Planck-Institut für Quantenoptik
Hans-Kopfermann-Str. 1, D-85748 Garching
Tel: +49 89 32905-602
E-Mail: ferenc.krausz@mpq.mpg.de
Web: www.mpq.mpg.de/attosec

KARL SCHMID

Karl Schmid studierte
Physik an der TU Wien
und an der Universidad
Autónoma de Madrid.
Seine Diplomarbeit fertigte er am Institut
für Photonik der TU Wien an. Seit 2004 ist er
wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Gruppe
um Ferenc Krausz in Garching.



ANDRIUS BALTUŠKA

Andrius Baltuška (1971)
studierte Physik an der
Universität Vilnius. Im Jahr
2000 promovierte er an
der Staatsuniversität von
Groningen und forschte
danach in der Laserphysik
und Laserspektroskopie an der Universität
Tokio und an der TU Wien. Seit 2004 ist er
wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Gruppe
um Ferenc Krausz.



FERENC KRAUSZ

Ferenc Krausz ist Inha-
ber des Lehrstuhls für
Experimentalphysik an
der Ludwig-Maximilians-
Universität München und
Direktor am Max-Planck-
Institut für Quantenoptik
in Garching. Die Arbeiten seiner Forschungs-
gruppe auf dem Gebiet der Erzeugung,
Messung und Anwendung von ultrakurzen
Röntgenpulsen im Attosekundenbereich
erregten weltweites Aufsehen. Dies und der
darauf folgende Einsatz von Attosekunden-
pulsen zur Beobachtung ultraschneller Elek-
tronenbewegungen innerhalb der Atome
führten zur Geburt des neuen Forschungs-
gebietes „Attosekundenphysik“.



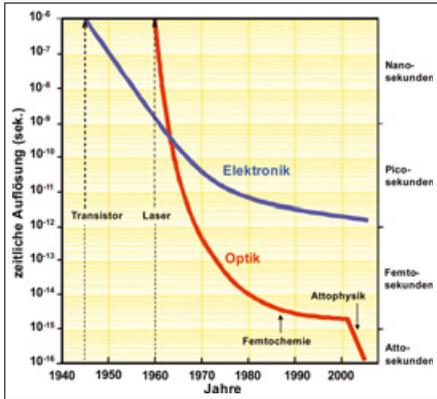


ABBILDUNG 1: Entwicklung der Messtechnik im ultrakurzen Zeitbereich. Lichtpulse geben seit einigen Jahrzehnten die größtmögliche zeitliche Auflösung vor.

optische Oszillation [2]. Allerdings können eventuell Wellenzüge mit weniger als einer Oszillation lokal auf einem Target synthetisiert werden.

Ultrakurze Pulse haben eine große Bandbreite, die umgekehrt proportional zur Pulsdauer τ_p ist (Abb. 2). Bandbreiten im Bereich von 200 THz sind üblicherweise erforderlich, um 5-fs-Pulse im sichtbaren oder nahen infraroten Spektralbereich zu generieren.

Untersucht man das Spektrum eines modengekoppelten Lasers genauer, so wird sichtbar, dass es aus vielen einzelnen Linien besteht, ähnlich einem Kamm. Man spricht daher auch von einem Frequenzkamm (Abb. 2b). Der Abstand zwischen jeweils zwei benachbarten Linien ist genau gleich, er entspricht der Pulswiederholrate f_r des Lasers. Der Frequenzkamm hat demnach zwei Freiheitsgrade: zum einen die generelle Position

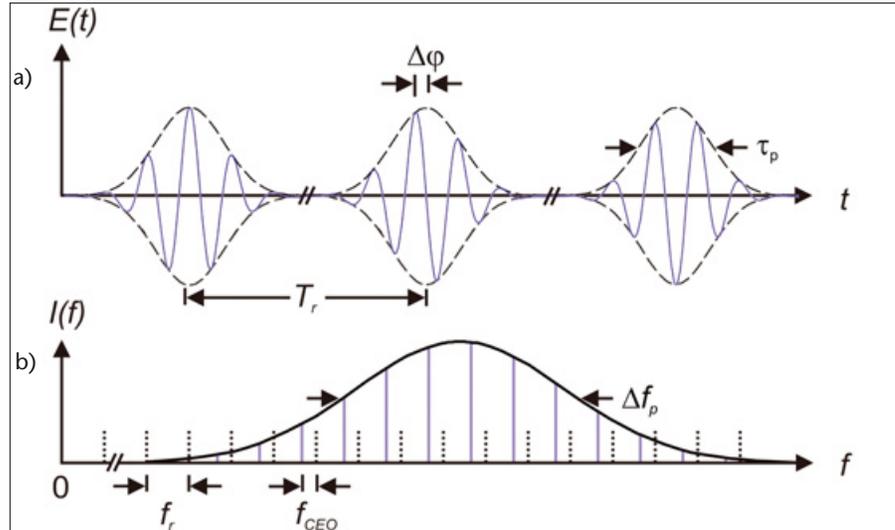


ABBILDUNG 2: a) Zeitbereichsdarstellung eines Pulszugs. Die relative Phase zwischen der Trägerwelle und der Pulseinhüllenden ändert sich von Puls zu Puls um $\Delta\phi$. T_r bezeichnet die Periode des Pulszugs, τ_p die Halbwertsbreite des Pulses. b) Im Frequenzraum sind die Kammlinien äquidistant mit Abstand $f_r=1/T_r$. Der gesamte Kamm ist gegenüber ganzzahligen Vielfachen von f_r um f_{CEO} versetzt. Die spektrale Breite Δf_p ist umgekehrt proportional zur Pulsdauer $\tau_p \sim 1/\Delta f_p$ [3].

des Kamms im Frequenzbereich gegeben durch die so genannte Offsetfrequenz f_{CEO} , zum anderen der Abstand f_r zwischen den Linien des Kamms. Der Versatz des Kamms um die Offsetfrequenz bewirkt im Zeitbereich, dass die Schwingungen des elektrischen Feldes innerhalb der Pulseinhüllenden nicht fest stehen, sondern von Puls zu Puls um eine Phase $\Delta\phi$, die so genannte Carrier-envelope Phase (CEP), verschoben werden (Abb. 2a). Gelingt es, diese beiden Parameter, f_r und f_{CEO} , zu kontrollieren, so ist die Position jeder Kammlinie genau festgelegt. Damit steht sozusagen ein Lineal im Frequenzraum zur Verfügung mit dem Messungen von optischen Frequenzen durchgeführt werden können [3].

Anwendungen

Optische Spektroskopie

Ultrakurze Pulsdauern erlauben eine hohe zeitliche Auflösung und können daher benutzt werden, um schnelle chemische und physikalische Prozesse zu visualisieren. Pump-probe und Photonecho Methoden wurden benutzt, um Relaxations- und Energietransferprozesse auf einer Zeitskala von Femtosekunden zu untersuchen. Dabei wird ein Puls verwendet, um ein Probematerial anzuregen, und ein weiterer (Abtast-)Puls dient dazu, die dynamischen Veränderungen auszulesen. Der Einsatz von 5-fs-Pulsen ermöglicht die direkte Messung von Prozessen in der atomaren Elektronenhülle,

die innerhalb von $\sim 1,5$ fs ablaufen. Im Jahr 1999 wurde der Nobelpreis in Chemie an A. H. Zewail vergeben für seine Arbeiten über Photo-Dissoziations-Dynamik, die mit Femtosekundenpulsen durchgeführt wurden.

Ultrabreite Spektren

Ein breites Spektrum ermöglicht eine hohe räumliche Auflösung für optische Kohärenztomographie (OCT), ein Verfahren zur nicht-invasiven Bildgebung in biologischen Systemen. OCT nutzt Interferometrie mit niedriger Kohärenz, um ein zweidimensionales Bild der optischen Rückstreuung von Mikrostrukturen im Gewebe darzustellen und benötigt keine kurzen Pulse. Allerdings ist die räumliche Auflösung umgekehrt proportional zur Bandbreite der verwendeten Pulse.

Das breitbandige Spektrum modengekoppelter Laser findet darüber hinaus noch auf dem Gebiet der Frequenzmetrologie Anwendung. Die Frequenzmessung von Licht ist schon seit mehreren Jahrzehnten Gegenstand der Forschung. Der Grund hierfür ist, dass die Vermessung der Frequenz des bei einem atomaren Übergang emittierten Lichts mit immer größerer Genauigkeit Einblicke in die Struktur eines Atoms erlaubt. Aufbauend auf diesem atomaren Übergang können zum Beispiel hochgenaue optische Uhren entwickelt werden, die wahrscheinlich in naher Zukunft Cäsium-Atomuhren als Zeitstandards ablösen werden. Anfänglich wurde dieses Ziel mittels harmo-

DIE FIRMA

MPQ – Max-Planck-Institut für Quantenoptik

Garching bei München

Das Max-Planck-Institut für Quantenoptik gehört zu den weltweit führenden Forschungsinstituten auf dem Gebiet experimenteller und theoretischer Grundlagenforschung im Bereich der Licht-Materie-Wechselwirkung sowie der Entwicklung neuer Lasersysteme und deren Anwendung in der Atom- und Plasmaphysik. Insgesamt 200 Mitarbeiter sind in den Abteilungen Attosekunden- und Hochfeldphysik, Laserchemie, Laserphysik, Laserspektroskopie, Quantendynamik und Theorie tätig. Weitere Infos unter www.mpg.de

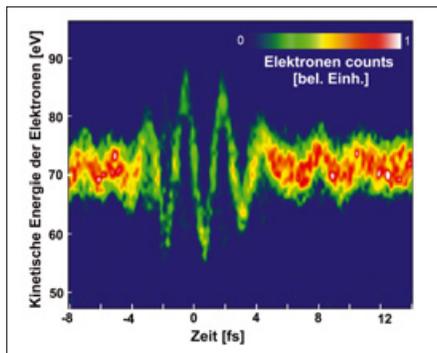


ABBILDUNG 3: Elektrisches Feld eines 5-fs-Pulses bei 760 nm; aufgenommen mit einer Attosekunden-Streak-Kamera [5].

nischer Frequenzketten verfolgt, die aus in Reihe geschalteten Frequenzvervielfachern bestehen und so, ausgehend vom Zeitstandard einer Cäsium-Atomuhr, optische Frequenzen messbar machten. Allerdings waren diese Frequenzketten komplexe und kostspielige Aufbauten, die mehrere Räume ausfüllten. Mit dem Einsatz von modengekoppelten Lasern wurden optische Frequenzmessungen deutlich einfacher. Der Einsatz von Frequenzkämmen erfordert – wie beschrieben – die Kontrolle von zwei Parametern, der Wiederholrate f_r und der Offsetfrequenz f_{CEO} (Abb. 2) [3]. Während die Wiederholrate einfach mess- und stabilisierbar ist, ist dies bei der Offsetfrequenz nicht der Fall. Sie muss mittels eines aufwändigen, so genannten nichtlinearen Interferometers gemessen und dann stabilisiert werden. Im Jahr 2000 wurde dies erstmals erreicht und mittlerweile sind komplett CE-phasenstabilisierte Lasersysteme kommerziell erhältlich. Für ihre Arbeiten zur Erzeugung und Anwendung von Frequenzkämmen wurde 2005 eine Hälfte des Physik-Nobelpreises an John L. Hall und Theodor W. Hänsch vergeben.

Hochfeldphysik

Bei Wechselwirkungen zwischen Licht und Materie, die besonders empfindlich auf das elektrische Feld und nicht auf seine Einhüllende reagieren [2], spielen Pulse weniger optischer Zyklen eine besonders wichtige Rolle. Die meisten dieser Prozesse sind sogar abhängig von einzelnen Zyklen des wirkenden Laserpulses und werden bei jedem Halbzyklus wiederholt. Das heißt, dass ein aus vielen optischen Zyklen bestehender Femtosekundenpuls ein und dasselbe Ereignis viele Male hervorruft.

Mit einem phasenstabilisierten 5-fs-Laserpuls in Kosinusform, einer Pulsenergie von rund 0,2 mJ und unter Verwendung eines Bandpassreflektors im Bereich der höchsten

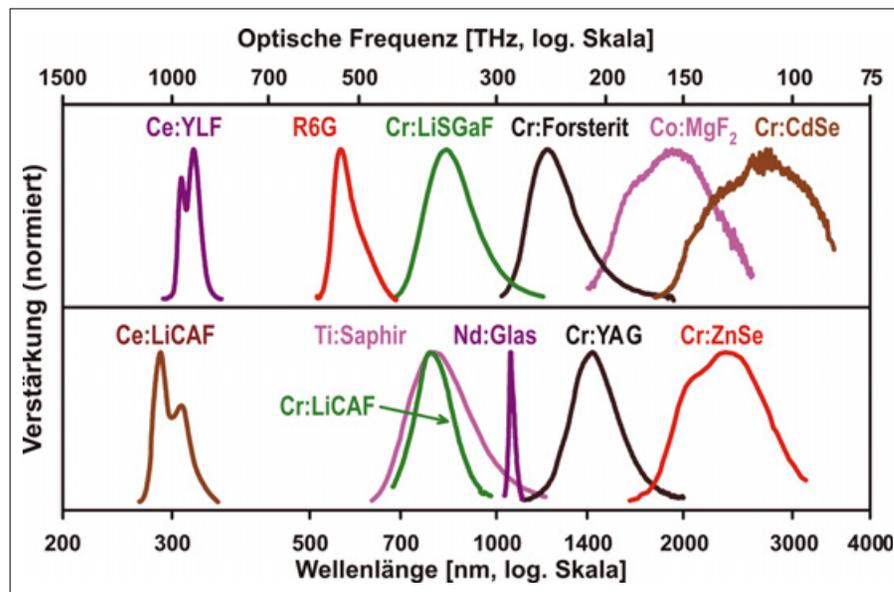


ABBILDUNG 4: Übersicht von breitbandigen Lasermaterialien. Die Wellenlänge und Frequenz sind auf einer logarithmischen Skala aufgetragen, um die relative Bandbreite $\Delta\lambda/\lambda_0$ zu erhalten (R6G: Rhodamin 6G Dye-Lösung in Ethanol) [1].

Röntgenphotonenenergie ist es möglich, einzelne, rund 250 Attosekunden dauernde, Pulse zu erzeugen [4]. Solche, durch ein Laserplasma generierte, weiche Röntgenpulse erzielen die momentan höchstmögliche zeitliche Auflösung. Durch Ionisation eines Gases mit einem 250-as-Puls und unter Verwendung eines nachfolgenden 5-fs-Pulses, war es zum ersten Mal möglich, den zeitlichen Verlauf des elektrischen Felds eines Laserpulses direkt darzustellen (Abb. 3) [5]. Der Schwerpunkt für zukünftige Entwicklungen im Bereich der Hochfeldphysik mit ultrakurzen Pulsen liegt dabei auf der Maximierung der Pulsspitzenintensität. Ein 5-fs-Puls mit einer Pulsenergie von 5 mJ erzielt eine Pulsspitzenleistung von 1 TW. Seit kurzer Zeit existieren Methoden zur Selektion einzelner Zyklen aus Pulsen mit vielen Zyklen, allerdings ist diese Selektion mit erheblichen Verlusten der Pulsenergie behaftet. Der rationellste Weg zur Erzeugung hoher Lichtintensitäten besteht darin, Pulse mit einem einzelnen Zyklus bei gleichzeitig höherer Pulsenergie zu erzeugen. Unter anderem wird erwartet, dass Pulse mit einem einzigen Zyklus und einer Pulsspitzenleistung von mehreren Terawatt kohärente Attosekundenpulse im Bereich harter Röntgenstrahlung ermöglichen. Bei Intensitäten oberhalb von 10^{18} W/cm² können sie zur Erzeugung von relativistischen fs-Elektronenpulsen verwendet werden. Solche ultrakurzen Röntgen- und Elektronenpulse könnten wiederum benutzt werden, um 4-dimensionale (räumlich und zeitlich) Beugungsbilder von Ladungsverteilungen

auf Oberflächen, in Festkörpern, Molekülen oder einzelnen Atomen zu erzeugen.

Methoden zur Erzeugung von Pulsen mit wenigen optischen Zyklen

Als 1991 der erste passiv modengekoppelte Ti:Saphir-Laser vorgestellt wurde, begann eine neue Ära der Femtosekundenlasertechnologie. Modenkopplung mittels Kerr-Linsen-Effekt führt zu einer dramatischen Verkürzung der erzielbaren Pulsdauer [1], und ermöglicht es in einem Ti:Saphir-Laser mit einer typischen Wiederholrate von 100 MHz rund 2 Millionen longitudinale Moden zu erzeugen, mit denen Pulsdauern von bis zu 5 fs erzielt werden können. Auch wenn Ti:Saphir zurzeit das etablierteste Lasermaterial für Ultrakurzpulslaser ist, gibt es eine ganze Reihe von ebenfalls viel versprechende Lasermaterialien mit einer relativen Bandbreite von $|\Delta\lambda/\lambda_0| > 0,25$ (Abb. 4). Zum Beispiel wurden bereits einige direkt diodengepumpte Oszillatoren auf Basis von Cr³⁺-dotierten Materialien vorgestellt. Typischerweise liegt die Pulsenergie von modengekoppelten Oszillatoren mit Pulsdauern unter 10 fs im Bereich von 2–5 nJ.

Ebenso können Lichtpulse unter 10 fs durch externe Kompression entstehen, eine Methode, die 1981 eingeführt wurde und auf einer Wechselwirkung von Selbstphasenmodulation (SPM) und der Dispersion von Gruppenlaufzeiten (GDD) basiert. Erreicht wird dies durch Propagation des kurzen Pulses in einer optischen „single-mode“-Glas-

faser. 1987 wurden mit Hilfe dieser Technik 6 fs bei einer Wellenlänge von 620 nm erreicht. Mittels verbesserter ultrabreitbandiger Dispersionskompensation konnten 1997 Pulsdauern von 4,5 fs bei 800 nm demonstriert werden. Die Verwendung von „single-mode“-Glasfasern limitiert die Pulsenergie auf einen Bereich von wenigen Nanojoule. Eine leistungsstarke Methode zur Pulskompression, die im Bereich von unter einem Millijoule funktioniert und auf SPM-induzierter spektraler Verbreiterung in einer mit Edelgas gefüllten Faser basiert, wurde 1996 vorgestellt. Zurzeit werden mittels Hohlfasern 8 fs-Pulse mit einigen Millijoule erreicht. Adaptive Kompression eines in zwei gasgefüllten Hohlfasern erzeugten Superkontinuums erzeugte Pulsdauern von 3,8 fs. Erst kürzlich konnte gezeigt werden, dass ein Puls mit rund 0,5 mJ durch Filamentbildung in Argongas soweit spektral verbreitert wurde, dass er auf etwa 4 fs hinab komprimiert werden konnte. Diese Technik hat gegenüber Hohlfasern den entscheidenden Vorteil, dass sie einfacher zu justieren und unempfindlich gegenüber Strahlversatz ist [6]. Darüber hinaus kann Frequenzkonversion in nichtlinearen optischen Kristallen dazu benutzt werden, Pulse mit zwei optischen Zyklen zu erzeugen. 1994 wurde die ultrabreitbandige, nichtkollineare Phasenan-

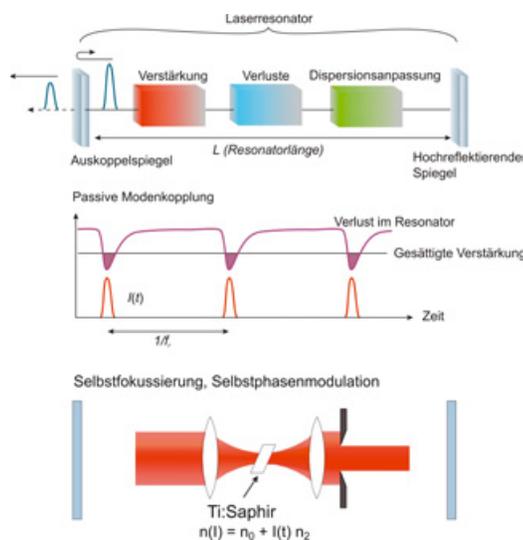
passung in BBO, gepumpt durch einen frequenzverdoppelten fs-Ti:Saphir-Laser, entdeckt. Nicht kollineare optische parametrische Verstärker (OPA), basierend auf BBO-Kristallen und gepumpt mit schmalbandigen Pulsen im spektralen Bereich zwischen 340 und 530 nm unterstützen Bandbreiten von 120–200 THz. Mit Hilfe von Ti:Saphir-Verstärkersystemen im Bereich von 100–200 fs, die gleichzeitig als Pump- und Seedquelle dienen, konnten OPAs mit 4 fs und einigen Mikrojoule Pulsenergie aufgebaut werden. Hier wurde der Seedpuls durch Weißlichterzeugung (SPM) in einem Saphirfenster erzeugt. Eine Variation der OPA-Technologie, die so genannte optische parametrische Verstärkung von gechirpten Pulsen (OPCPA), ist momentan einer der aussichtsreichsten Kandidaten im Bereich der fs-Laserforschung, da OPCPA über ein sehr großes Entwicklungspotenzial bezüglich hochenergetischer und breitbandiger Pulse, bei gleichzeitig hoher mittlerer Leistung, verfügt (s. u.). Eine Vielzahl an Techniken zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse, die auf der Synthese verschiedener kohärenter Frequenzbänder beruhen, wurde vorgeschlagen und teilweise experimentell demonstriert. Ein Beispiel dafür ist die kohärente Überlagerung eines Spektrums mit seiner zweiten Harmonischen. Die Hauptvoraussetzung für die ko-

härente Überlagerung zweier unterschiedlicher Pulse ist, dass jeder der beiden Pulse eine konstante Phasendifferenz zwischen der Pulseinhüllenden und der Trägerwelle aufweist (CEP). Im angeführten Beispiel der Überlagerung eines Pulses mit seiner zweiten Harmonischen ist das im Allgemeinen nicht erfüllt, es sei denn der fundamentale Puls ist CE-phasenstabilisiert. In synchron gepumpten optisch-parametrischen Oszillatoren (OPO) können kollineare phasengleiche Strahlen mit unterschiedlicher Trägerfrequenz auf verschiedene Arten durch Kombination von Signal-, Idler- und Pumpimpulsen, sowie deren Harmonischen, erreicht werden. Die Harmonischen-Pulse werden hierbei in einem nichtlinearen Kristall generiert. Die kohärente Überlagerung verschiedener optischer Harmonischer aus einem OPO wurde bereits erreicht und könnte möglicherweise zu einem Pulszug mit Pulsdauern unterhalb einer Femtosekunde führen. Ein experimenteller Nachweis dieser kurzen Pulse steht jedoch noch aus. Einige Vertreter der Vielfarben-Pulssynthese benutzen Raman-Seitenbänder. Im Jahr 2000 wurde in molekularem Deuterium (D_2) ein Ramanspektrum erzeugt, welches sich über 50.000 cm^{-1} erstreckte. Das Spektrum besteht aus 17 zueinander kohärenten Seitenbändern, deren Abstand voneinander durch die fundamentale Vibrationsfrequenz von D_2 gegeben ist und die sich über einen Wellenlängenbereich von 2,94 mm bis 195 nm erstrecken. Die Grundidee beruht auf der Ausnutzung von Ramanübergängen mit hinreichender Kohärenz, sodass die Erzeugungslänge und die maximale Länge, die sich aus dem Phasenversatz ergibt, von gleicher Ordnung sind. Diese Kohärenz wird erreicht indem man die Übergänge in den molekularen Vibrationspektren mit zwei schmalbandigen Lasern anregt, deren optische Frequenzen sich um die der Energiedifferenz des Übergangs entsprechende Frequenz unterscheiden. 2005 wurde unter Benutzung von sieben Seitenbändern von D_2 eine Kette von Pulsen erzeugt die eine Spitzenleistung von jeweils 1 MW bei Pulsdauern von 1,6 fs zeigten, was ein wenig mehr als einem optischen Zyklus entspricht. Der zeitliche Abstand zwischen den Pulsen betrug 11 fs. Eine weitere Methode der Erzeugung von Seitenbändern basiert auf der Anregung molekularer Bewegungen in ramanaktiven Gasen. Bei diesem Prinzip regt ein erster hochintensiver Lichtpuls, dessen Pulsdauer kleiner ist als die molekulare Oszillationsperiode, eine kohärente molekulare Schwin-

INFOKASTEN

Der Ultrakurzpulsozillator

Um einen ultrakurzen Puls durch ein breitbandiges Verstärkermittel zu erzeugen, wird ein nichtlinearer Prozess benötigt, der den Laser in einen gepulsten Betriebszustand zwingt. Durch Modenkopplung wird im Laser eine phasenkohärente Anregung vieler longitudinaler Moden ermöglicht. Die intensitätsabhängige Kerr-Linse sorgt innerhalb des Resonators für Verluste, die relativ groß sind für niedrige Intensitäten, aber deutlich kleiner sind für kurze Pulse hoher Intensität. Der oszillierende Puls sättigt die Laserverstärkung bis zu einem Grad, der gerade noch ausreicht die Verluste des Lasers selbst zu kompensieren.



gung (Rotation oder Vibration) an. Ein zweiter, relativ schwacher Puls, der zeitlich verzögert auf den ersten folgt, trifft nun auf ein Medium mit stark variierendem Brechungsindex und erfährt dementsprechend während seiner Fortbewegung eine starke Phasenmodulierung, die wiederum zur Bildung von Stokes- und Anti-Stokes Seitenbandfrequenzen führt. Mit diesem Prinzip ist es möglich bei der zentralen Wellenlänge von 400 nm Pulse mit 3,8 fs Pulsdauer und 1,5 mJ Energie zu erzeugen.

Ein viel versprechender Ansatz zur Synthesisierung von Pulsen mit einem kontinuierlichen Spektrum und einer Pulsdauer eines einzigen optischen Zyklus beruht auf der Phasenkopplung (phase-locking) von Laserresonatoren, die auf unterschiedlichen aktiven Medien mit zueinander verschobenen Verstärkungsbandbreiten basieren. Viele Versuche, mehrere modengekoppelte Laser miteinander zu synchronisieren, sind bis heute demonstriert worden. Zum Beispiel Ti:Saphir und Cr:Forsterit. Die breitbandige Verstärkung solcher kombinierter modengekoppelter Laserpulse stellt sich jedoch als äußerst schwierig heraus.

Dispersionskompensation bei hoher Bandbreite

Die Kontrolle der Dispersion innerhalb des Laseroszillators, sowie ihre Kompensation bei der Kompression von Pulsen außerhalb des Resonators, sind unabdingbar für die Erzeugung von Lichtpulsen mit einer Dauer von nur wenigen optischen Zyklen. Ein ideal komprimierter Puls hat eine flache spektrale Phase. Typischerweise werden die erste und zweite Ableitung der spektralen Phase, die Gruppenverzögerung (GD) und die Gruppenverzögerungsdispersion (GDD), verwendet, um anzugeben, wie viel Dispersion kompensiert werden muss. Die Gruppenverzögerung hat die Einheit Femtosekunden und entspricht der Zeitverzögerung, die sich zwischen zwei Wellenpaketen mit unterschiedlicher zentraler Wellenlänge aufbaut, während sie durch ein dispersives und/oder nichtlineares Medium propagieren. Die Einheit der GDD ist fs². Da die meisten optischen Materialien und Laserkristalle positive oder „normale“ Dispersion zeigen, werden optische Elemente mit negativer oder „anormaler“ Dispersion zur Kompensation benötigt um Laserpulse zu komprimieren.

Die am besten untersuchten Elemente dieser Art sind Paare von Beugungsgittern und Prismenpaare. Schon in den frühen neun-

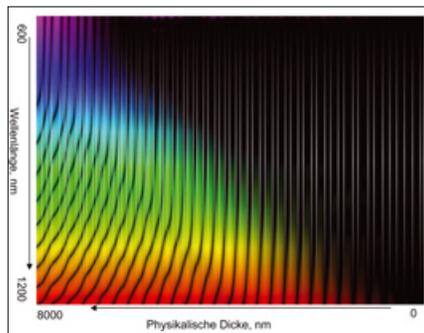


ABBILDUNG 5: Mehrlagiger gechirpter dielektrischer Spiegel (Entwurf Vlad Yakovlev). Die Farben repräsentieren die Amplitude des elektrischen Feldes, das von links in den Spiegel eindringt. Infrarote Anteile des Spektrums werden von tieferliegenden dielektrischen Schichten reflektiert und somit zeitlich stärker verzögert als rote. Die vertikalen weißen Linien stellen die einzelnen dielektrischen Schichten mit alternierendem Brechungsindex dar.

ziger Jahren war es mit im Brewsterwinkel geschliffenen Prismenpaaren und einem Ti:Saphir Oszillator möglich etwa 10 fs lange Pulse zu erzeugen. Ein bedeutender Schritt gelang nachdem Fortschritte in der Erzeugung von mehrlagigen optischen Schichten die Herstellung von breitbandigen „gechirpten“ Spiegeln ermöglichten (Abb. 5) [7]. Seit ihrer Einführung im Jahr 1994 wurden diese dielektrischen Spiegel immer weiter bezüglich ihrer Reflektivität, der Glätte der Dispersionskurve, ihrer Widerstandsfähigkeit gegenüber hohen Lichtintensitäten und der optischen Bandbreite verbessert. Moderne gechirpte dielektrische Spiegel unterstützen eine spektrale Bandbreite einer vollen optischen Oktave. Besonders für praktische Anwendungen ist die ausschließliche Verwendung von gechirpten Spiegeln zur Dispersionskompensation von Vorteil, da sie sehr kompakte, robuste Bauweisen erlauben, deren Dispersionseigenschaften von der Strahljustage weitgehend unabhängig sind. Speziell angefertigte gechirpte Spiegel erlauben die Kompression auf ~5 fs sowohl von Pulsen direkt aus einem breitbandigen Ti:Saphir-Oszillator, als auch von verstärkten Pulsen in einer gasgefüllten Hohlleiter ausbreitert wurde.

Ultrakurzpulslaser mit externer Pulskompression benötigen häufig aktiv gesteuerte Amplituden- und Phasenmodulatoren. Die Technik der räumlichen Lichtmodulation (SLM – spatial light modulator) ermöglicht die unabhängige Variation der Gruppen-

verzögerung bei verschiedenen optischen Frequenzen. Sie beruht entweder auf einem programmierbaren Flüssigkristallmodulator, einem akusto-optischen Modulator, einem flexiblen Spiegel in der Fourier-Ebene einer Beugungsgitter- oder Prismenpaar-basierter Dispersionsstrecke. Einen Sonderfall stellt der Pulsformer DAZZLER dar, der nur aus einem akusto-optischen Modulator besteht und ohne eine Dispersionsstrecke auskommt.

Titan:Saphir-Oszillator mit hohen Pulsenergien

Konventionelle fs-Titan:Saphir-Oszillatoren funktionieren mit negativer Dispersion (so genanntes Soliton-Regime) und erzeugen Pulse mit höchstens 5 nJ Energie. Diese Grenze ist durch Instabilitäten vorgegeben, die bei hoher Intensität im Titan:Saphir-Kristall auftreten. Man könnte nun den Puls innerhalb des Resonators strecken (bis in das Pikosekundenregime bei vergleichsweise breitem Spektrum), um so die Intensität zu senken und die Limitierung zu umgehen. Genau dies ist der Fall, wenn ein Ti:Saphir-Oszillator mit positiver Dispersion betrieben wird (Regime der gechirpten Pulse). Die Pulse müssen allerdings außerhalb des Resonators komprimiert werden. Diese Methode erzielt annähernd fourier-limitierte sub-50-fs-Pulse. Die pulsformenden Mechanismen sind für beide Regimes deutlich unterschiedlich. Die Schwelle, an der Instabilitäten auftreten, kann angehoben werden, falls ein langer gechirpter Puls im Oszillator umläuft, wobei die Verschiebung proportional zum Chirp ist.

Der nächste Schritt zu höherer Pulsenergie E folgt aus der Gleichung $E = P_{av} \cdot T_{cav}$, wobei P_{av} die durchschnittliche Laserleistung, $T_{cav} = 2L/c$ die Periode des Resonators, L die Resonatorlänge und c die Lichtgeschwindigkeit ist. Hierbei ist P_{av} proportional zur Pumpleistung und umgekehrt proportional zu den Verlusten im Resonator, wobei hauptsächlich die Qualität der Spiegel relevant ist. Der derzeit leistungsstärkste Pump Laser liefert 18 W bei 532 nm und realistische Resonatorlängen liegen bei rund 150 m mit einer Wiederholrate von 1 MHz. Solch lange Resonatoren sind wie in Abb. 6 abgebildet aufgebaut. Die integrierte Verzögerungsstrecke vergrößert den Weg im Resonator, erlaubt aber ebenfalls eine kompakte Bauweise. Dennoch verliert der Oszillator an Langzeitstabilität, wenn der Resonator verlängert wird, woraus sich eine maximal realisierbare Resonatorlänge ableiten lässt. Wenn eine Konversionseffizi-

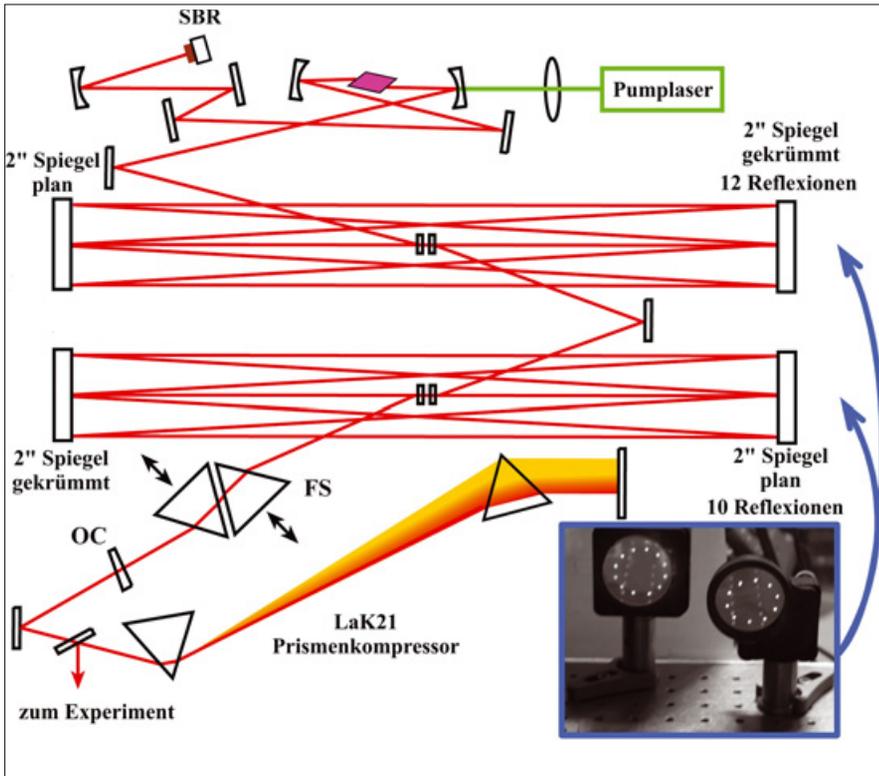


ABBILDUNG 6: Schematischer Aufbau des 3-MHz-Titan:Saphir-Oszillators mit einer Verzögerungsstrecke mit zwei Spiegelpaaren. Kleines Bild: Spiegel der Verzögerungsstrecke mit Reflexionen des Strahls (SBR: sättigbarer Bragg-Spiegel zur Modenkopplung, OC: Auskoppelspiegel, FS: Quarzglas-Prismen).

enz von 20% angenommen wird, resultiert dies mit den erwähnten Parametern in eine Pulsenergie von 3,5 μJ . Der in Abb. 6 dargestellte Oszillator liefert Pulse von 40 fs Dauer und 500 nJ Energie bei einer Wiederholrate von 2 MHz und einer Pumpleistung von 9 W bei 532 nm. Diese Pulsenergie ist für viele Anwendungen im Bereich der Materialbearbeitung bereits ausreichend. Nach spektraler Aufweitung in einer Hohlfaser und nachfolgender Komprimierung können diese Pulse sub-10 fs Dauer und 300 nJ Energie erreichen. Mit diesen Pulsen wird ein weites Feld an Anwendungsmöglichkeiten erschlossen, insbesondere innerhalb der nichtlinearen Optik. Mit dem realisierten Laseroszillator wurde eine hundertfache Steigerung der Pulsenergie im Vergleich zu konventionellen Oszillatoren erreicht. Oberhalb dessen setzt teilweiser Dauerstrichbetrieb ein oder es kommt zu einem Auseinanderbrechen des Pulses im Resonator. Dies bedeutet, dass der soliton-ähnliche Puls nicht mehr Energie von der Pumpstrahlung aufnehmen kann. Um die Grenzen des Regimes der gechirpten Pulse auszuloten, muss daher das Laserlicht schwächer in den Titan:Saphir-Kristall fokussiert werden.

Überhöhungsresonatoren

Eine weitere Methode, mehr Leistung zu erhalten, ohne ein komplexes Verstärkersystem zu benutzen, ist mit Überhöhungsresonatoren gegeben. Hierbei werden die Pulse aus einem Laseroszillator in einen weiteren Resonator hoher Güte eingekoppelt, der allerdings kein aktives Verstärkungsmedium enthält. Darin werden die Pulse „gespeichert“, sodass bei jedem Umlauf jeder neu eintreffende Puls mit dem in der Spiegelanordnung bereits umlaufenden Puls konstruktiv interferiert und auf diese Weise die Leistung des umlaufenden Pulses viele hundert Mal größer werden kann. Überhöhungsresonatoren, die im Dauerstrichbetrieb funktionieren, sind schon seit langer Zeit bekannt und werden z. B. zur Effizienzsteigerung nichtlinearer Konversion eingesetzt. Ein solches Resonatorsystem für Femtosekundenpulse zu realisieren ist eine deutlich schwierigere Problemstellung, da nicht nur die Modenanpassung beachtet, sondern auch die Wiederholrate und die carrier-envelope Phase an den Oszillator angepasst werden muss. Ein solches System ist 2002 erstmals demonstriert worden. Hiermit lassen sich Pulsenergien von $\sim 5 \mu\text{J}$ bei Pulsdauern von 50 fs und Wiederholraten von 100 MHz realisieren. Die Spitzenintensität ist

groß genug, um in einem Gastarget Harmonische hoher Ordnung zu generieren, was ein alternativer Weg zur Erzeugung von extremer Ultraviolett-, bzw. weicher Röntgenstrahlung darstellt. Diese Methode bietet gegenüber Verstärkersystemen den Vorteil einer um fünf Größenordnungen höheren Wiederholrate und ermöglicht erstmals hochpräzise Spektroskopie und Frequenzmetrologie in diesem Spektralbereich.

OPCPA für Pulse mit wenigen optischen Zyklen

Der bewährte Weg zu intensiven Lichtpulsen mit wenigen optischen Zyklen für die Anwendung in der Hochfeldphysik führte über die spektrale Verbreiterung von verstärkten Pulsen in gasgefüllten Hohlfasern. Diese Methode ist jedoch mit starken Energieverlusten verbunden und kaum zu Pulsenergien im Multimillijoulebereich skalierbar. Im Gegensatz zu Lasermedien ist die Verstärkungsbandbreite für die nichtkolleare optische parametrische Verstärkung in manchen nichtlinearen Kristallen – im speziellen BBO – außerordentlich groß und reicht für die Verstärkung von Pulsen mit einer Dauer von zwei optischen Zyklen im sichtbaren Spektralbereich aus.

Da der nichtlineare Kristall die Pumpenergie nicht wie ein Laserkristall speichert, ist es für effiziente Verstärkung unter Verwendung eines schmalbandigen Pump Lasers notwendig, die zu verstärkenden breitbandigen Pulse auf die Dauer der Pumppulse zu strecken. Diese parametrische Verstärkung von gechirpten Pulsen (OPCPA – Optical Parametric Chirped Pulse Amplification) wurde 1991 erstmals vorgeschlagen, demonstriert [8] und eröffnet einen viel versprechenden Weg hin zu kompakten Ultrakurzpulslasersystemen mit ultrahoher Spitzenleistung. Die entscheidenden Vorteile von OPCPA sind neben der großen Verstärkungsbandbreite die geringe thermische Belastung der nichtlinearen Kristalle sowie die im Vergleich zu Lasermedien sehr hohe Verstärkung in einem Durchgang durch den Kristall (Abb. 7).

Für OPCPA-Systeme mit hoher Ausgangsleistung ist es aus Gründen der Pump effizienz günstiger, einen eigenständigen multi-kHz Pikosekunden-Pump Laser zu verwenden, der auf die Erzeugung von hochenergetischen schmalbandigen Pulsen optimiert ist. Im Gegensatz zu den bereits erwähnten OPA-Systemen, die Pulse mit zwei Schwingungszyklen erzeugen, wo sowohl Pump- als auch Seedpuls von der gleichen sub-200-fs-Ti:Saphirquelle geliefert werden,

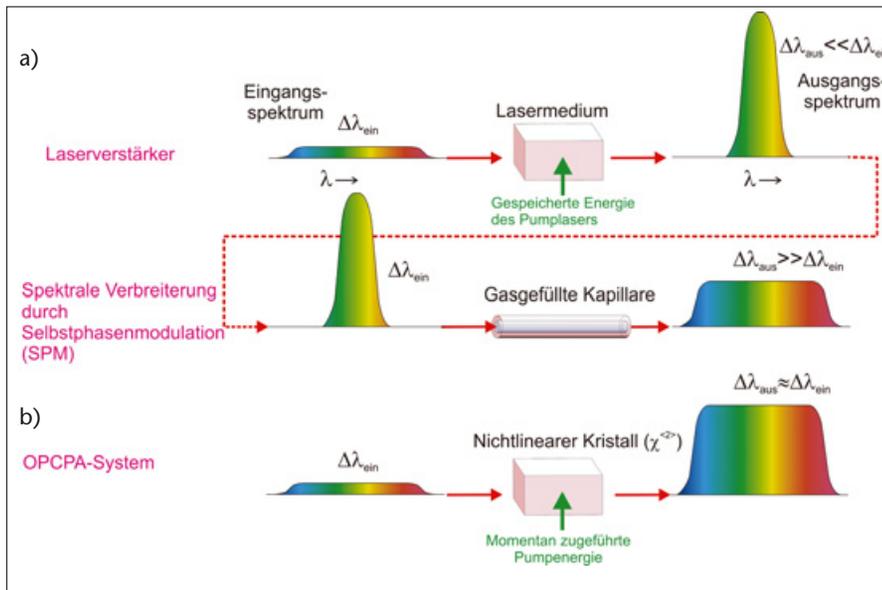


ABBILDUNG 7: Vergleich zwischen (a) einem Laserverstärker (CPA) und (b) einem OPCPA-System. Im CPA-System wird die Breite des Spektrums im Verstärker erheblich vermindert. Ultrakurze Laserpulse können nach einer solchen Verstärkung nur durch zusätzliche spektrale Verbreiterung erzielt werden. In einer OPCPA ist die Verstärkung zugleich breitbandig und sehr hoch (mehrere Größenordnungen). Die Bandbreite des verstärkten Pulses ist ausreichend für ultrakurze Pulsdauern.

tritt bei Systemen mit separaten Pikosekunden-Pumplasern das besondere Problem der Pump-Seed-Synchronisierung auf. Bei kürzlich demonstrierten OPCPA-Systemen wurde sowohl aktive, als auch passive Synchronisierung eingesetzt. Bei diesen Systemen wurden Nd:YAG- und Nd:YLF-pumplaser verwendet. Bei aktiver Synchronisierung wurden die Wiederholraten des Ti:Saphir-Seed-Oszillators und des Seed-Oszillators des Pumplasers zueinander oder zu einer externen Uhr mit einer Präzision von einigen Pikosekunden phasengekoppelt. Im Fall der passiven Seed-Pump-Synchronisierung wurde vor kurzem das direkte optische Seeding von regenerativen Verstärkern – basierend auf Nd:YAG, Nd:YLF und Yb:KGW – mittels eines breitbandigen Ti:Saphir-Oszillators demonstriert. Diese Entwicklung hat die Zuverlässigkeit der gegenwärtigen OPCPA Systeme stark verbessert. Im nahen Infrarot wurden breitbandige multi-mJ-Pulse und sub-10-fs-komprimierte-Pulse mit Terawatt Spitzenleistung erzeugt.

Eine weitere OPCPA-Entwicklung beschäftigt sich mit einer Quelle von ultrakurzen Pulsen im infraroten Spektralbereich mit kHz-Wiederholraten, von der erwartet wird, dass sie die Ausbeute an Harmonischen hoher Ordnung gegenüber den bisher verwendeten im nahen Infrarot stark verbessert. Die Seedpulse für diese OPCPA stammen aus Differenzfrequenzerzeugung (zwischen den Rändern des Spektrums) von Pulsen eines 5-fs-800-nm-Ti:Saphir-Oszillators in einem

periodisch gepolten LiNbO₃-Kristall. Die Differenzfrequenzstrahlung ist intrinsisch CE-phasenstabilisiert und benötigt daher keine aktive Phasenstabilisierung der Seedpulse. Diese Quelle wird derzeit entwickelt und liefert momentan eine Pulsenergie von 100 μJ. Das Spektrum erstreckt sich von 1500 bis 3000 nm und entspricht komprimiert etwa 15 fs im infraroten Spektrum, wobei die Periode einer optischen Oszillation 7 fs beträgt.

Fazit

Anwendungen von Pulsen mit wenigen optischen Zyklen reichen von der Biomedizin bis hin zur relativistischen Physik. Die Erzeugung solcher Pulse im nahen infraroten Bereich (im Bereich der Wellenlänge von Ti:Saphir) ist heute gut erforscht. Neue, direkt lasergepumpte Lasermaterialien und breitbandige, parametrische Verstärker bieten die Möglichkeit, die Ultrakurzpulstechnologie in andere Wellenlängenbereiche zu verschieben und zu höheren Pulsenergien zu erweitern. Dies gilt insbesondere für den infraroten Bereich. Oszillatoren mit niedriger Wiederholrate (einige MHz) bei Pulsenergien im μJ-Bereich und OPCPAs mit hoher mittlerer Leistung (im kHz-Bereich), haben ein enormes Entwicklungspotenzial und ermöglichen eine breitenwirksame Einführung von kompakten und justagearmen Lasersystemen für Anwendungen in Industrie und Forschung.

Danksagung

Wir danken Nobuhisa Ishii und Vladimir Pervak für die Unterstützung bei der Erstellung dieses Manuskripts.

Literatur

- [1] F.X. Kärtner (hrsg.), Few-cycle Laser Pulse Generation and Applications (Springer-Verlag, Berlin 2004).
- [2] T. Brabec und F. Krausz, Nonlinear Optical Pulse Propagation in the Single-Cycle Regime, Phys. Rev. Lett. **78**, 3282–3284, (1997).
- [3] S.T. Cundiff, Phase stabilization of ultrashort optical pulses, J. Phys. D: Appl. Phys. **35**, R43–R59, (2002).
- [4] A. Baltuška, M. Uiberacker, E. Goulielmakis, R. Kienberger, V.S. Yakovlev, T. Udem, T.W. Hänsch und F. Krausz, Phase-Controlled Amplification of Few-Cycle Laser Pulses, IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron. **9**, 972–989, (2003).
- [5] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuška, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher und F. Krausz, Direct Measurement of Light Waves, Science **305**, 1267–1269, (2004).
- [6] U. Keller, Recent developments in compact ultrafast lasers, Nature **424**, 831–838, (2003).
- [7] G. Steinmeyer, D. Sutter, L. Gallmann, N. Matuschek und U. Keller, Frontiers in Ultrashort Pulse Generation: Pushing the Limits in Linear and Nonlinear Optics, Science **286**, 1507–1512, (1999).
- [8] R. Butkus, R. Danielius, R. Dubietis, A. Piskarskas und A. Stabinis, Progress in chirped pulse optical parametric amplifiers, Appl. Phys. B **79**, 693–700, (2004)