



Klemens Jesse

Femtosekundenlaser

Einführung in die Technologie
der ultrakurzen Lichtimpulse

2. Auflage

 Springer Vieweg



Femtosekundenlaser

Klemens Jesse

Femtosekundenlaser

Einführung in die Technologie der
ultrakurzen Lichtimpulse

2. Aufl. 2016

Klemens Jesse
Bad Homburg
Deutschland

ISBN 978-3-662-49356-4 ISBN 978-3-662-49357-1 (eBook)
DOI 10.1007/978-3-662-49357-1

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Springer Vieweg

© Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2016

Das Werk einschließlich aller seiner Teile ist urheberrechtlich geschützt. Jede Verwertung, die nicht ausdrücklich vom Urheberrechtsgesetz zugelassen ist, bedarf der vorherigen Zustimmung des Verlags. Das gilt insbesondere für Vervielfältigungen, Bearbeitungen, Übersetzungen, Mikroverfilmungen und die Einspeicherung und Verarbeitung in elektronischen Systemen.

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in diesem Werk berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, dass solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften. Der Verlag, die Autoren und die Herausgeber gehen davon aus, dass die Angaben und Informationen in diesem Werk zum Zeitpunkt der Veröffentlichung vollständig und korrekt sind. Weder der Verlag noch die Autoren oder die Herausgeber übernehmen, ausdrücklich oder implizit, Gewähr für den Inhalt des Werkes, etwaige Fehler oder Äußerungen.

Gedruckt auf säurefreiem und chlorfrei gebleichtem Papier

Springer ist Teil von Springer Nature
Die eingetragene Gesellschaft ist Springer Berlin Heidelberg

Vorwort

Seit den unermüdlichen Anstrengungen von Wissenschaftlern, Zeitphänomene auf immer kürzeren Skalen messen zu wollen, ist man in einen Mikrokosmos vorgedrungen, der immer kleinere und kompaktere Maße annimmt. 1999 wurde der Nobelpreis für die schnellste Zeitlupenkamera der Welt vergeben, an einen Physiko-Chemiker vom California Institute of Technology, den gebürtigen Ägypter *Ahmed Zewail*, der seiner Meinung nach mit guten Genen ausgestattet wurde, welche ihm zu seinen Erfolgen verhelfen, und der erstmals in der Geschichte der Kurzzeitphysik tiefere Einblicke in die Abläufe einer vorher unzugänglichen Welt von Molekülen und Atomen gestattete. Möglich machen dies Femtosekundenlaser, und sie sind im Begriff, die internationalen Märkte zu erobern. Die Charakteristika eines Femtosekundenlasers sind extrem kurze Pulsdauern, hohe räumliche Kohärenz und ein breites optisches Spektrum. Dieses Buch gewährt zunächst einen Einblick in die theoretischen Grundlagen der neuen, alle möglichen Anwendungen revolutionierenden Technologie, um dann die Vorzüge von Femtosekundenlasern – von der schmerzfreien Kariesentfernung, hochpräzisen Materialbearbeitung bis hin zur Augenmedizin oder dem Automobilbau darzustellen. Ein besonderes Kapitel beschreibt den Einsatz in der Medizintechnik. Femtosekundenlaser arbeiten mit ultrakurzen Lichtimpulsen, die nur einige Millionstel Teile einer Milliardstel Sekunde andauern. Sie können Materialien sehr exakt und mit deutlich geringerer Wärmebelastung als andere Laserarten behandeln und werden immer kleiner, stabiler und kompakter als noch vor 30 Jahren. Auch Aspekte der Femtosekundentechnologie wie die Herstellung, Sensorik und Optoelektronik werden von den Wissenschaftlern ins Auge gefasst. Diese Art von Lasern sind auch für die Industrie von hohem Interesse, denn neue Werkstoffe wie faserverstärkte Verbundstoffe, hochfeste Stähle, temperaturempfindliche Biomaterialien oder gehärtete Dünngläser lassen sich nur schwer mit konventionellen Werkzeugen bearbeiten. Für die Technik liegt die Bedeutung z. B. darin, dass sehr kleine und „saubere“ zwei- und dreidimensionale Mikrostrukturen (Lasermikrotechnik) erzeugt werden. Ultrakurze Lichtpulse können über Multifotonenabsorption mit Werkstoffen wechselwirken und dadurch eine „kalte Bearbeitung“ ermöglichen. Die optischen Technologien werden in der nächsten Dekade, wie von Analysten vorhergesagt wird, weltweit auf ein Marktvolumen von etwa 800 Mrd. € anwachsen und viele sichere Arbeitsplätze schaffen. Ich möchte mit diesem Buch die Fundamente für Neueinsteiger legen, aber auch darüber hinaus gehende Informationen für den

„Insider“ liefern. Das elektrische Zeitalter ist im 21. Jahrhundert vom Foton abgelöst worden, und eine Revolution bahnt sich mit dem zeitlich kohärenten und korrelierten Licht an, die verschiedenste Bereiche des heutigen Alltags berühren wird. Eine neue Generation von leistungsstarken Faserlasern entsteht. 2015 hat *Ahmed Zewail* dazu aufgerufen, das internationale Jahr des Lichts zu feiern. Mit der Neuauflage von diesem Buch möchte ich mich hiermit anschließen.

Bad Homburg, im März 2016

Klemens Jesse

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Geschichte der Kurzzeittechnik	3
	Literatur	10
3	Theoretische Grundlagen	11
3.1	Methoden der Erzeugung	13
3.1.1	Aktives Modenkoppeln	17
3.1.2	Passives Modenkoppeln	18
3.1.3	Phasen-Modulation	20
3.1.4	Code-Pulse-Modelocking	20
3.1.5	Synchrones Pumpen	21
3.1.6	Hybride Modenkoppel-Techniken	24
3.1.7	„Moving Mirror“-Modenkoppeln	24
3.1.8	Feedback Controlled Modelocking	25
3.1.9	Optische Kompressionstechniken	25
3.2	Ausbreitungseigenschaften von ultrakurzen Impulsen	29
3.3	Nichtlineare optische Effekte	32
3.3.1	Frequenzverdopplung	35
3.3.2	Frequenzverdreifachung	37
3.3.3	Selbstfokussierung	39
3.3.4	Selbstphasenmodulation	40
3.3.5	Vierwellen-Mischen	40
3.3.6	Raman-induzierter Kerreffekt	42
3.3.7	Mehrfotonenprozesse	43
3.4	Techniken zur Messung von Femtosekundenergebnissen	44
3.4.1	Anrege- und Nachweistechiken	44
3.4.2	Anrege-Entleere-Nachweistechnik	46
3.4.3	Fotonenecho	47
3.4.4	Z-Scan-Methode	48

6.3.5	Grenze der Pulsformung	114
6.3.6	Adaptive Pulsformung	115
	Literatur	116
7	Femtosekundenoptiken und -instrumente	117
7.1	Femtosekundenoptiken	117
7.1.1	Spiegel	118
7.1.2	Interferenzfilter	118
7.1.3	Das Lyot-Filter	119
7.1.4	Das $\lambda/4$ -Plättchen	120
7.1.5	Brewster-Polarisatoren	120
7.1.6	Glan-Thompson-Prisma	121
7.1.7	Pellin-Broca-Prisma	121
7.1.8	Die Keramikapertur	121
7.1.9	Die Dünnschichtpolarisatoren	122
7.1.10	Die Pockelszelle	122
7.1.11	Die Kerrzelle	122
7.1.12	Der Faraday-Modulator	123
7.1.13	Akustooptischer Modulator	123
7.1.14	Nichtlineare Optik	124
7.1.15	Adaptive Optik	125
7.1.16	Attosekundenoptik	126
7.2	Femtosekundeninstrumente	129
7.2.1	Verstärkersysteme	129
7.2.2	Optisch parametrischer Oszillator/Verstärker	135
7.2.3	Strecker und Kompressor	137
7.2.4	Der Cavity-Dumper	138
7.2.5	Monochromatoren	139
7.2.6	Mikroskope	140
7.2.7	Fabry-Perot-Interferometer	142
7.2.8	Gires-Tournois-Interferometer	143
7.2.9	Michelson-Interferometer	144
7.2.10	Femtosekunden Sagnac Interferometrie	145
	Literatur	145
8	Anwendungen von Femtosekundenlasern	147
8.1	Femtowissenschaft	147
8.2	Femtochemie	149
8.3	Femtobiologie	176
8.4	Femto-Welt	187
8.5	Attophysik	188
8.6	Attowissenschaft	192

8.7	Medizin	194
8.8	Optische Kohärenztomografie	202
8.9	Pharmazie	205
8.10	Spektroskopie	206
8.11	Materialforschung	211
8.12	Materialbearbeitung	213
8.13	Verbrennungsforschung	215
8.14	Telekommunikationstechnik	216
8.15	Nanotechnologie	222
8.16	Umwelttechnik und Meteorologie	224
8.17	Kalter Abtrag von Korrosionen	226
8.18	Messtechnik	227
8.19	Optoelektronik	228
8.20	Datenverarbeitung	230
8.21	Femtonik	232
8.22	Clusterphysik	233
8.23	Oberflächen- und Grenzflächenphysik	235
8.24	Plasmaphysik	237
8.25	Industrielle Anwendungen	238
8.26	Sensorik und optischer Frequenzkamm	239
8.27	Hybrid-Mopa-Technologie	241
8.28	Anwendungen in der integrierten Optik	242
8.29	Tribologische Anwendungen	243
8.30	Physik der kondensierten Materie	244
8.31	Biomedizin	245
8.32	Kalte kontrollierte Ensembles	246
8.33	Innovationsschub durch hochenergetische Femtosekundenlaser	247
8.34	Hologramm	249
8.35	Winzige Strukturen mittels Femtosekundenlaser	250
8.36	Hochleistungsforschungsanlage	251
8.37	Laser knipst ums Eck	251
8.38	Die Femtos kommen!	252
	Literatur	253
9	Ausgewählte Beispiele	257
	Literatur	267
10	Ausblick	269
	Glossar	271
	Sachverzeichnis	289

Die Kunst der Hochgeschwindigkeitsfotografie nahm 1877 ihren Anfang, als Eadweard Muybridge als Ergebnis einer Wette eine Reihe von Schnappschüssen von einem galoppierenden Pferd aufnahm, um zu beweisen, dass das Pferd zu einem Zeitpunkt alle Hufe in der Luft hatte. Indem man die Bewegung des Pferdes einfriert, kann man auf direkte Weise die Bilder studieren und etwas über Galoppieren lernen. Die ultrakurze Zeitskala von Femtosekunden ist die Zeitskala von elementaren chemischen Reaktionen und von elektronischen und Kernbewegungen in Molekülen: wenn chemische Bindungen in chemischen Reaktionen gebildet oder gebrochen werden, wenn Moleküle sich umordnen, um neue Moleküle zu bilden, oder wenn Energie von einem Molekül zum anderen transportiert wird, passieren all diese Prozesse auf einer Femtosekundenskala. Daher beruht das fundamentale Verständnis von chemischen oder biologischen Vorgängen letztendlich auf einem gründlichen Verständnis der ultrakurzen Prozesse.

Die rasche Entwicklung der Pikosekunden- ($1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$) und Femtosekundentechnik ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) seit den Siebzigerjahren gestattete, rasch ablaufende, fundamentale Vorgänge innerhalb der Materie zu untersuchen. Jahrtausende lang hat die Menschheit versucht, Vorgänge auf einer immer feineren Zeitskala zu verfolgen. Um sich eine Vorstellung von dieser Größenordnung zu machen, kann man folgendes betrachten: Wird die aus dem entfernten Weltraum beobachtete Erdkugel bis auf ein einziges Atom oder Molekül auf der Erdoberfläche „gezoomt“, so erlebt man eine Reise im Raum um 15 Größenordnungen. Eine analoge Reise entlang der Zeitkoordinate erlauben ultrakurze Laser und zwar in eine Welt, in welcher einzelne Molekülschwingungen, das dynamische Verhalten der Elektronen in Halbleitern oder auch der zeitliche Ablauf der Fotosynthesereaktion beobachtet werden können. Auch folgende Vergleiche können diese Zeitspanne erklären: Eine Minute verhält sich zu einer Femtosekunde wie eine im Alter des Universums enthaltene Minute. Wenn man einen propagierenden Laserpuls betrachtet, legt er in 1 fs gerade mal den Hundertsten Teil des Durchmessers eines menschlichen Haars zurück. Man muss be-

denken, dass das Licht die Strecke zum Mond etwa in einer Sekunde zurücklegt. Zurzeit ist es möglich, mit einfachem Aufwand Lichtimpulse im Sichtbaren und im nahen Ultraviolett mit Dauern von nur wenigen optischen Zyklen zu erzeugen. Mit der Erfindung der Femtosekudentechnik bahnte sich eine Revolution in der Evolution geformter Pulse an, so z. B. die kohärente Kontrolle von Molekülen. Es gelang nicht nur das Studium der grundlegenden Dynamik der chemischen Bindung, die kohärente Kontrolle mit geformten Laserimpulsen und die Optimierung von Produktionsabläufen, sondern auch gänzlich neue Gebiete entstanden, wie die „Femtochemie“ oder „Femtobiologie“. Optische Technologien gelten als Schrittmacher für viele Zukunftsmärkte des 21. Jahrhunderts und die Märkte mit Lasern und Optik wachsen unaufhaltsam. Die gezielte Synthese hochreiner Arzneistoffe in hoher Ausbeute und das ohne störende Nebenprodukte, d. h. ein primärer Wunsch von Pharmaforschern könnte dank des „lernfähigen“ Femtosekundenlasers bald Wirklichkeit werden. Die effiziente Herstellung von Werkteilen im Automobilreich ohne Schmelzschäden und die Optimierung der Verbrennung im Motorraum mit Hilfe hochqualitativer Düsen, das Verhindern des thermischen Ausfransens beim Bohren mit Femtosekundenlasern, die gezielte Hautkrebsbekämpfung und vor allem neue Methoden in der nichtlinearen Optik, in den Materialwissenschaften und der Spektroskopie seien hier zu nennen. Die Femtosekunderspektroskopie kann interessante Aspekte von der Interferenz freier Elektronen bis hin zu wachsenden Sonnenblumen aufzeigen. Gegen Ende des zwanzigsten Jahrhunderts wurde das neue Instrument entwickelt: der Femtosekundenlaser liefert ultrakurze Lichtblitze, mit welchen nicht nur chemische Reaktionen in Echtzeit beobachtet werden können, sondern auch Reaktionsmechanismen und die Formung freier Elektronenwellenpakete in das Blickfeld der Physiko-Chemiker rücken. Dabei spielen über evolutionäre Verfahren geformte Laserpulse eine besondere Rolle. Diese „schlau“ Fotonen revolutionären zurzeit viele Forschungsgebiete in Physik, Chemie, Biologie und Technik. Bei geringen Pulsenergien und hoher Zeitauflösung besitzen Femtosekundenlaser extrem hohe Intensitäten. Diese Eigenschaften eröffnen Portale in der nichtlinearen Spektroskopie und in Biologie und Medizin. Der Femtosekundenlaser ist nicht nur ein faszinierendes Gerät geworden, sondern *die* technische Revolution im 21. Jahrhundert, deren Möglichkeiten noch bei weitem nicht ausgeschöpft sind.

Die Zeit ist die als Übergang von Gegenwart zu Vergangenheit und von Zukunft zu Gegenwart erlebte allgemeinste Form der Veränderungen in der Natur (objektive Zeit), im menschlichen Bewusstsein (Erlebniszeit) und in der Geschichte (historische Zeit). Die Zeitmessung ist aus der Astronomie hervorgegangen und durch die Entwicklung der Uhr fortschreitend verfeinert worden. Im Folgenden sollen zuerst einige historische Konzepte untersucht werden, die der Messung schneller Phänomene zugrunde liegen. Wir wollen auch versuchen aufzudecken, warum Forscher und Ingenieure in der Vergangenheit an raschen Abläufen interessiert waren, und wie einige ihrer Motive und Verfahren sich von heutigen unterscheiden. Es soll die Frage beantwortet werden, warum Femtosekunden-Lichtquellen so attraktiv geworden sind und wohin die Märkte in Zukunft tendieren. Um ein Intervall von kurzer Dauer messen zu können, muss man in erster Linie in der Lage sein, Zeit zu messen. Dies kann geschehen, indem man einen periodischen Vorgang wie z. B. das Verstreichen eines Tages immer wieder misst. Die Priester in Mesopotamien und in Ägypten waren die ersten Gelehrten um 2025 v. Ch., die kürzere aber auch längere Zeitabschnitte messen konnten. Der erste Kalender eines Jahres wurde mit einem sog. Gnomon, das zu den ersten astronomischen Werkzeugen gehörte, realisiert. In den ägyptischen Städten war die Sonnenuhr mit dem senkrechten Steinobelisk öffentlich zugänglich. Um 1580 v. Ch. verwendeten die Ägypter bereits eine Wasseruhr, die mit Hilfe der fallenden Tropfen verhältnismäßig präzise die Zeit maß. Ein Fortschritt der Sonnenuhren war die 730 v. Ch. unter dem König der Juden Ahas gebaute große Sonnenuhr, die im Unterschied zu den bisher üblichen Sonnenuhren mit der senkrechten Schattenstange eine Stange parallel zur Erdachse aufwies. In Griechenland musste jedem Redner vor Gericht die gleiche Redezeit zugewiesen werden, was mit einem Gerät namens KLEPSYDRA ermöglicht wurde, d. h. durch das Abtropfen des Wassers aus einem Saugheber. Um 850 n. Ch. fertigte *Pazificus*, Priester aus Verona, die erste mechanische Raduhr an, angetrieben durch ein langsam sinkendes Gewicht. Im 11. Jahrhundert wurde die Schlaguhr

erfunden, die nur einmal zu einer bestimmten Stunde schlug. 1288 besaß der Londoner Westminster seine erste Turmschlaguhr. Nach dem Jahre 1290 wurden immer mehr Uhren auf Rathaus- und Kirchtürmen mit Zifferblättern ausgestattet. Im 15. Jahrhundert kamen die ersten Stehuhren und Zimmeruhren als kostbare Spielzeuge in die Häuser der Patrizier. 1656 entdeckte der holländische Naturwissenschaftler *Christian Huygens* die Pendeluhr, die genauso pünktlich wie die bisher benutzten Sonnenuhren wurde. Das Prinzip dieser mechanischen Uhr ging eigentlich auf eine Idee von *Galileo Galilei* im Jahre 1636 zurück, der erkannt hatte, dass die Zeit der Schwingung von der Länge des Pendels abhängt. Er hat die Idee nicht mehr umsetzen können. 1821 hat der französische Physiker *Dominique Francois Jean Arago* die Arretieruhr bzw. Stoppuhr erfunden. Die zeitliche Entwicklung eines elektrischen Funkens wurde von *Wheatstones* mechanischer Strekkamera im Jahre 1834 dargestellt (Abb. 2.1) [1, 2].

Ein rotierender Spiegel versetzt das zu späteren Zeiten emittierte Licht zu einer unterschiedlichen räumlichen Position. Die Länge des Bildes und die Kenntnis der Winkelgeschwindigkeit des Spiegels ergeben die Messung der Lebensdauer des Funkens. Indem er diese mechanische Technik benutzte, war *Wheatstone* in der Lage, zu zeigen, dass einige der elektrischen Funken weniger als 10^{-6} s dauerten. Eine andere Streaking-Methode hat *Foucault* 1850 und 1862 verwendet, um die Lichtgeschwindigkeit zu sehr hoher Genauigkeit zu bestimmen [3–5]. Der schottische Elektriker *Alexander Bain* konstruierte 1844 die erste elektrische Uhr. Um die Arbeitszeit in Fabriken zu kontrollieren, benutzte man 1885 Kontrolluhren, die die Anwesenheit der Arbeiter ausdrückten. Im 19. Jahrhundert kamen die ersten Probe-, d. h. Nachweistechniken zum Einsatz, die sehr analog zu heutigen Anrege-Nachweis-Experimenten waren. *Töpler* kombinierte die Stroboskop- und

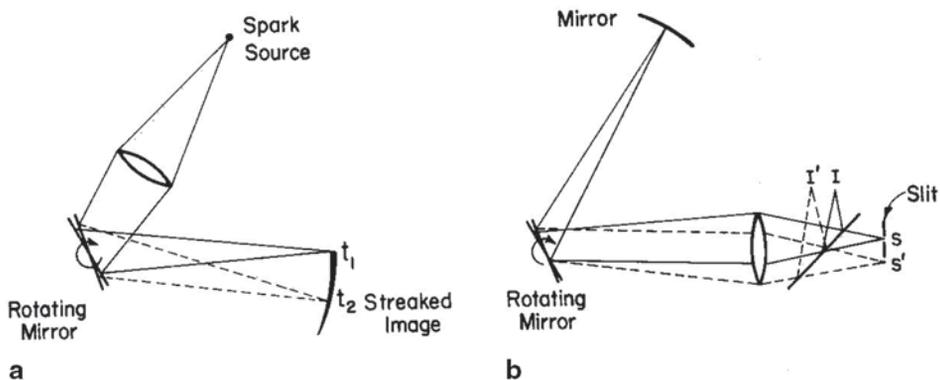


Abb. 2.1 **a** Mechanische Strekkamera von Wheatstone 1834. Rotierender Spiegel versetzt das Licht, welches zu späteren Zeiten zu unterschiedlichen räumlichen Positionen emittiert wird. Die Länge des Bildes und die Kenntnis der Winkelgeschwindigkeit des Spiegels ergeben die Messung der Lebensdauer. **b** Foucaults Apparat zur Messung der Lichtgeschwindigkeit. Licht wird von der Position S durch einen rotierenden Spiegel zu einem festen Spiegel und dann wieder zurück reflektiert und wird bei I' nachgewiesen. Wegen der endlichen Lichtgeschwindigkeit wird das Bild versetzt

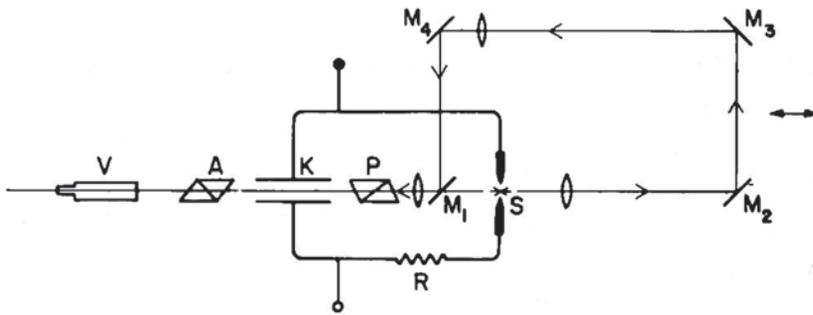


Abb. 2.2 Ein elektrischer Puls erzeugt einen Funken S und aktiviert einen Kerr dc Shutter K. Das Licht des Funkens wird durch eine variable Verzögerungsstrecke (Spiegel M) und durch die Kerrzelle aus Polarisator P_1 der CS_2 -Zelle und Analysator A kollimiert. Wenn die optische Verzögerung mit dem Triggern der Doppelbrechung in der Kerrzelle zusammenfällt, wird ein Bild für den Betrachter sichtbar. Bei zu langer Verzögerung tritt kein Licht durch die Kerrzelle (nach *Abraham* und *Lemoine*)

Schlierentechnik und konnte damit Bilder von rasch flackernden Flammen und von Brechungsindexänderungen in Flüssigkeiten messen. 1867 verwendete er einen Lichtfunken von weniger als zwei Mikrosekunden, um eine Schallwelle zu erzeugen, die er dann fotografierte, indem er einen zweiten Funken gleicher Dauer wie den ersten einsetzte. Mit Hilfe eines elektrischen Schaltkreises konnte dieser Funke, der das Ereignis triggerte, zu beliebiger Zeit gegenüber dem ersten Funken verzögert werden. *Kerr* erkannte 1875, dass ein dc elektrisches Feld, wenn es auf eine bestimmte isotrope Substanz einwirkt, Doppelbrechung induziert [6]. Ab dem Jahre 1899 erkannten *Abraham* und *Lemoine* nicht nur, dass der Kerreffekt zum Messen von Zeitintervallen benutzt werden konnte, sondern sie entwickelten eine Apparatur, die in der Lage war, ein Intervall von 10^{-9} s zu messen (Abb. 2.2) [7, 8].

Die erste benutzbare elektrische Uhr stammte 1918 vom amerikanischen Elektromechaniker *Henry Ellis*. Grundlage der 1929 vom amerikanischen Uhrmacher *Warren Alvin Marrison* erfundenen Quarzuhr war die um etwa 1880 von den Brüdern *Pierre* und *Paul Jacques Curie* aus Frankreich entdeckten Piezoelektrizität. Die Atomuhr von 1946 zählt die Schwankungen des Atoms Cäsium. Darauf bezieht sich die Definition einer Sekunde in der SI-Tabelle. Um Kinetiken chemischer Reaktionssysteme verfolgen zu können, müssen diese aus dem Gleichgewicht z. B. durch Temperatur oder Druckeinwirkung gebracht werden. Übliche Mischmethoden sind aber sehr begrenzt in ihrer Geschwindigkeit ($< 100 \mu\text{s}$). Die Idee von *Eigen* (Chemie-Nobelpreis 1967) war es, das System auf andere Weise schnell aus dem Gleichgewicht zu bringen. Er konnte einen wässrigen Elektrolyten durch elektrische Entladung eines Kondensators schlagartig erwärmen und damit einen Temperatur-Sprung durchführen. Die Zeitauflösung der Relaxationsmethode lag bei $1 \mu\text{s}$, was einer Heizleistung von 50 MW entspricht. Mit den heutigen Laserquellen lässt sich noch schneller und eleganter aufheizen. Mit einer Zeitauflösung von Nanosekunden bis Subpikosekunden konnten *Grübele et al.* im IR das wässrige Lösungsmittel aufheizen und

die Proteinfaltung studieren [9], und *Hochstrasser et al.* einen kurzlebigen Farbstoff mit hoher innerer Konversion im Sichtbaren durch „Pumpen“ optisch anregen und die schnelle Wärmeabgabe an das Lösungsmittel studieren [10]. Seit den bahnbrechenden Arbeiten von *M. Eigen* 1954 haben sich die Uhren zur Messung schneller Zeiten erheblich verbessert. 1957 brachte die Firma *Hamilton* die erste elektrische Armbanduhr auf den Markt, die durch eine kleine sog. Knopf-Batterie mit Strom versorgt wurde. Besonders seit Erfindung des Lasers 1960 durch *Maiman* sind ganz neue Gebiete in der transienten Absorptionsmessung und der Untersuchung schneller Kinetiken erschlossen worden. Man kann eine Reaktion auch starten, indem man schlagartig eine neue reaktive Spezies erzeugt (Populationsprung). *Porter und Norrish (R.G.W. Norrish, G. Porter, Chemie-Nobelpreis 1967)* haben mit der Blitzlichtfotolyse angeregte Molekülzustände erzeugt und dadurch eine fotochemische Reaktion ausgelöst [11]. Die Blitzlampe entlud sich in weniger als 10 μs . Im Vergleich dazu besitzen heutige Laserpulse Dauern von Nanosekunden bis 6 fs in verschiedenen Zeit- und Spektralbereichen. In der Puls-Radiolyse erzeugt ein gepulster Elektronenstrahl aus einem Beschleuniger (1–10 MeV) Radikale (100 ps). Die fotochemische Reaktion kann über die Edukt- und Produkt-Konzentrationsverteilungen oder ihre elektrische Leitfähigkeit mit Hilfe der optischen Spektroskopie analysiert werden. Die Cäsiumuhren, die seit 1967 die Sekunde definieren, haben in jüngster Zeit Konkurrenz durch Frequenzstandards mit einzelnen Ionen bekommen. Wir wollen an dieser Stelle kurz abschweifen und diese neuen Standards beschreiben. Die 13. Generalkonferenz für Masse und Gewicht definierte im Jahr 1967 die Sekunde als das 9 192 631 770-fache der Schwingungsdauer einer charakteristischen Resonanz des Cäsiumatoms. Mit Cäsiumatomuhren vermochte man damals die Sekunde auf 12 Dezimalstellen genau zu bestimmen. Bis heute wurden die Messverfahren so weit verbessert, dass die weltbeste Cäsiumuhr eine Genauigkeit von 15 Dezimalstellen erreicht. Nach 30 Mio. Jahren würde eine solche Uhr höchstens eine Sekunde falsch gehen, und für manche Anwendung reicht auch diese Genauigkeit nicht aus. Eine Alternative verspricht eine Atomuhr mit nur einem Ion als Taktgeber. Präzise Uhren dienen in der Wissenschaft der genauen Bestimmung von Naturkonstanten und der Überprüfung fundamentaler Gesetze. So wird z. B. das Meter über die Laufzeit von Licht bestimmt. Die Idee für eine genauere Uhr ist einfach: je höher die Frequenz der atomaren Schwingung, desto präziser die Uhr. In jüngsten Arbeiten verwendet man Resonanzfrequenzen, die um einen Faktor 100.000 höher als die der Mikrowellenstrahlung in der Cäsiumuhr liegen. Die neue Technik der Zeitmessung muss es gelingen, 10^{15} Schwingungen der Lichtwellen pro Sekunde genau auszuzählen. Mit einer Elektronik lassen sich mehrere hundert Terahertz nicht auflösen, man verwendet daher eine Kombination aus speziellen Lasern und Mikrowellengeneratoren. Vor einigen Jahren entwickelte die Arbeitsgruppe von *Thomas Udem* und *Theodor Hänsch* vom Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching ein „Uhrwerk“, das die Schwingungen des Lichts direkt mit denen der Cäsiumatomuhr in Relation setzt. Das Herzstück dieses Uhrwerks ist ein Femtosekundenlaser, der pro Sekunde mehrere Millionen Laserpulse aussendet. Dieser sog. Frequenzkammgenerator emittiert Millionen von Spektrallinien mit exakt gleichem Frequenzabstand. Auf diese Weise lassen sich periodische Schwingungen aus ganz

unterschiedlichen Frequenzbereichen wie mit einem Getriebe koppeln: die Wiederholrate der Pulse von einigen hundert Megahertz wird elektronisch mit der Cäsiumfrequenz verglichen, und die Laserfrequenz dient als Referenz für die Schwingung des optischen Frequenzstandards. Der Schritt in Richtung präziserer Uhren mit der Femtosekudentechnik ist ebenso bedeutend wie die Erfindung der Quarzuhr. Die Arbeitsgruppen von *Jim Bergquist* und *Leo Hollberg* vom National Institute of Standards and Technology in Boulder, Colorado, speicherten ein Quecksilberion in einer Ionenfalle und kühlten es auf ein tausendstel Grad über dem absoluten Nullpunkt ab. Dieses Ion besitzt in der Valenzschale nur ein einziges Elektron. Durch Resonanz mit Laserstrahlung konnte das Elektron in ein höheres Energieniveau angehoben werden. Eine elektronische Regelung sorgte dafür, dass die Laserfrequenz mit der charakteristischen Frequenz des Ions übereinstimmte. Mit Hilfe des Frequenzkammgenerators verglichen die Forscher diese Schwingung mit der Cäsiumatomuhr. Die Genauigkeit der Messung liegt bei 14 Dezimalstellen. Mit der gleichen Präzision haben *Harald Telle* und *Christian Tamm* an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt die Resonanzfrequenz eines Ytterbiumions bestimmt. Jedoch ist die Ionenfalle störanfällig gegenüber elektrischen Streufeldern, da die Ionen eine Ladungsverteilung aufweisen. Deshalb benutzte die Arbeitsgruppe von *Herbert Walther* am MPI für Quantenoptik ein Indiumion, dessen beide relevanten Energieniveaus durch elektrische Streufelder nicht beeinflusst werden. Die Präzision der Messung liegt bei 13 Dezimalstellen. Optische Frequenzstandards, die statt auf Ionen auf neutralen Atomen beruhen, dürften bald in Betracht der Wissenschaftler kommen. Vor dem Jahr 2010 wird aber kaum eine Neudefinition der Sekunde kommen, auch wenn die optische Messtechnik weiter ausreift. Aber nun kehren wir ins Jahr 1967 zurück und betrachten in einer Art Rückblende die rasante Entwicklung der Chronoskopie, die uns ins heutige Jahr fortträgt, in dem Femtosekundenlaser zum neuen Standard zählen. 1969 erschufen die Forschungslaboratorien der amerikanischen Marine eine Atomuhr, die durch die Schwingungszahl eines Aluminiummoleküls funktionierte. Die Abweichung des Ganges betrug eine Sekunde in 1,7 Mio. Jahren. 1971 schlug die Stunde der Ultrakurzzeitphysik, als im Labor *Fy Bell Telephone* ein Laser entwickelt wurde, der es ermöglichte, Lichtblitze zu generieren, die nur eine Pikosekunde andauern. Technisch gesehen, können so kurze Blitze zum Messen der Ultrakurzzeiten ausgenutzt werden. Es gibt keinen mechanischen Versatz, keine rotierenden Spiegel oder sich ausdehnende Geräteteile in der Pikosekudentechnik. Piko- und Femtosekundenereignisse sind zu schnell für mechanische Vorrichtungen, und ein sorgfältiges Einstellen des Abstandes ist somit notwendig. Ein einfacher Vergleich zeigt die Nutzbarkeit von Pikosekundenpulsen: eine Gewehrkartridge, die sich mit einer Geschwindigkeit von 1000 m/s bewegt, legt gerade einmal 10 \AA in 1 ps zurück, weniger als der Durchmesser eines größeren Moleküls. Eine Pikosekunde, oder 10^{-12} s , ist nur ein Billionstel einer Sekunde: im Vergleich heutiger theoretisch-physikalischer Konzepte, die die Geschwindigkeit des Lichts als die obere Grenze der Propagation von Energie ansehen, ist eine Pikosekunde die Zeit, die das Licht braucht, um gerade einmal 0.3 mm weit zu reisen. Die Heisenbergrelation setzt den Kurzzeitphysikern aber eine messbare Grenze im Ultravioletten-Sichtbaren-Infrarot. In den ersten Tagen der Pikosekudentechnik wurden funda-

mentale Prozesse in Materie studiert. Dazu gehörten der freie Zerfall von Molekülschwingungen und Orientierungsfluktuationen in Flüssigkeiten, der Phononenzerfall, Excitonenzerfall und Migrationsprozesse in Festkörpern, das Wachstum und der Zerfall von Plasmen in Gasen und Festkörpern, der Ladungstransfer und andere nichtstrahlende Transferprozesse zwischen Molekülen, Temperaturfluktuationen und vieles mehr. Nichtlineare Phänomene ließen sich aufgrund der Tatsache studieren, dass ein gewöhnlicher Laser ein Terawatt (10^{12} W) erzeugt. Neben ihren Kurzzeit- und Hochleistungseigenschaften unterscheiden sich Pikosekundentechniken von vorangehenden Methoden in wenigstens zwei Aspekten: das erste ist die weitergehende Miniaturisierung. Je feiner die zeitliche Auflösung sein sollte, desto größer war die Sorgfalt, kleinere Abstände und Laufzeiten einzustellen. Dies betrifft vor allem die Elektronik von Kameras. Die Auflösung einer Streakkamera hängt vom Abstand der Elektroden ab, der für die Geschwindigkeitsdispersion der Elektronen verantwortlich ist. Die Fähigkeit der cw-modengekoppelten Farbstofflaser insbesondere kontrollierte Pulsemission zu gewährleisten, wobei jeder Puls die gleiche Amplitude, die gleiche Dauer, und das in regelmäßigen Zeitabständen aufweist, ergab letztendlich ein verlässliches Werkzeug, da repetitive Probentechniken möglich wurden. Die Verkürzung der Laserpulse im Femtosekundenbereich brachte noch leistungsfähigere Systeme Ende der 80er Jahre auf den Markt. Zu erwähnen sei hier der Titan-Saphir-Laser, der Pulse um 100 fs aussendet. Mit Hilfe von Verstärkern können diese Pulse stark in ihrer Amplitude angehoben werden. In den letzten 10 Jahren hat sich die Femtosekundentechnik etabliert und wartet mit immer interessanteren Anwendungen auf. Heutige Trends zielen in Richtung kürzerer und kürzerer Pulse und auf immer höhere Leistungen. Ein typisches transientes modernes Absorptionsspektrometer mit ca. 100 fs Zeitauflösung besteht aus einem Titan-Saphir-Laser (76 MHz), dessen Pulse in einem regenerativen Verstärker nachverstärkt und an einem Strahlteiler in einen Anregungs- und Abfragepuls aufgespalten werden. Diese werden über eine Verzögerungseinheit zueinander verzögert. In einem nichtlinearen Kristall kann man das Licht frequenzverdoppeln oder in einem optisch parametrischen Oszillator (OPO) andere für die Anregung der Probe günstige Wellenlängen erzeugen. Der Abfragepuls wird aufgrund von Dispersionseffekten im Kurzzeitspektrometer komprimiert, erzeugt in einer Küvette Wasser oder in einem Saphir-Plättchen ein Weißlichtspektrum (550–1000 nm), das in einem Spektrometer selektiert werden kann und anschließend die durch den Anregepuls aus dem Gleichgewicht gebrachte Probe Punkt für Punkt abtastet und mit Hilfe eines Detektors die Absorptionsänderungen ermittelt. Die Trends der Impulsverkürzung können nicht beliebig im sichtbaren Spektralbereich fortgesetzt werden, da die Unschärferelation die Grenze bei 1 fs setzt und gravierende Dispersionsprobleme auftreten können. Wir befinden uns mit heutigen Femtosekundentechniken an der Grenze von propagierender hoher Pulsleistung in Materialien, gesetzt durch nichtlineare optische Effekte und die Zerstörung der Probe. Die Zeitauflösung von Lasern im Röntgenbereich ist wesentlich kürzer (10^{-18} s bei 1 keV). Harte Röntgenlaser, die von Femtosekundenlasern gepumpt werden, haben eine weit größere Auswirkung im

biologischen Anwendungsbereich z. B. für holografische Zwecke als in der Chronoskopie. Auch die Foton-Foton-Wechselwirkung im Vakuum rückt ins Interesse der Kurzzeitphysiker. Die Vergangenheit lehrt uns, dass neben grundsätzlichen Fragen eher esoterische auftreten, und dass die Überraschung unvermeidlich sein kann, wenn man an die Entwicklung der Kurzzeittechnik in den letzten 100 Jahren denkt. Der Fortschritt im Messen von kurzen Zeitintervallen seit 1600 ist in Abb. 2.3 dargestellt.

Eine rasante Entwicklung und Verbesserung der in diesem Buch vorgestellten Techniken erfolgte in den letzten 20 Jahren. 1999 hat *A. Zewail* vom Caltech in Südkalifornien den Nobelpreis für seine revolutionären Arbeiten auf dem Gebiet der chemischen Bindung mit Femtosekundenlasern bekommen. Er prägte den Titel des neuen Gebietes mit „Femtochemie“, und die „Femtobiologie“ ist nur der verwandte Klon, mit welcher ein Portal ins neue Jahrtausend aufgestoßen wurde, dessen Dimension nicht abzusehen ist. Einen Eintrag ins Guinnessbuch der Rekorde hat die Erzeugung von 4 fs kurzen Pulsen im Jahre 1999 erhalten. Ein kurzer Laserpuls besitzt ein breites Frequenzspektrum. Die Erzeugung von 5 fs kurzen Pulsen erfordert eine spektrale Breite von 300 nm, was nahezu dem gesamten sichtbaren Spektrum entspricht. Jedoch ist die spektrale Breite nur eine notwendige, nicht aber hinreichende Bedingung für die Erzeugung kurzer Pulse. Es kommt auch auf eine korrekte Phasenbeziehung der beteiligten Farben zueinander an. Der neue Zweig „Femtosekundenoptik“ geht von diesen und anderen Charakteristika aus.

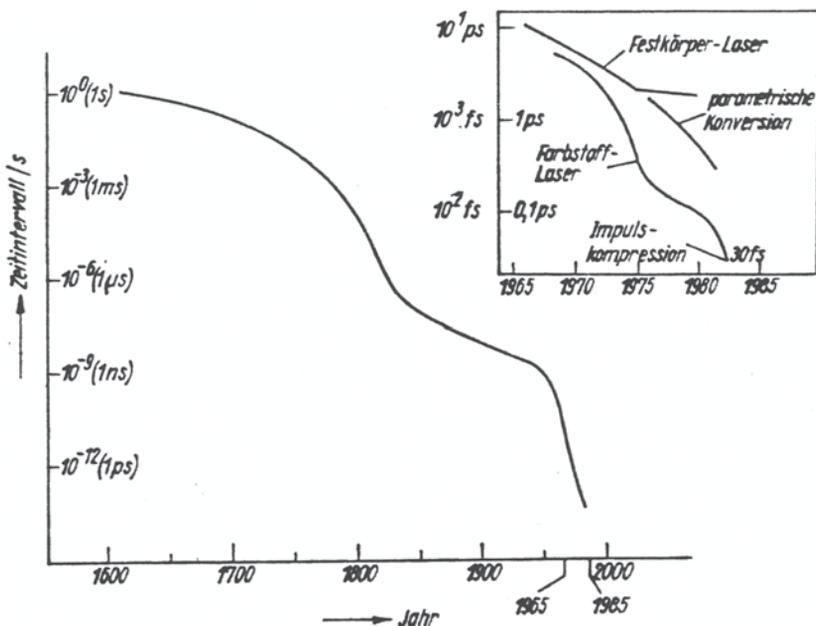


Abb. 2.3 Der Fortschritt im Messen kurzer Zeitintervalle. In der letzten Dekade gab es eine rasante Verbesserung (nach *Shapiro*)

Literatur

1. C. Wheatstone, Phil. Trans. 583 (1834)
2. C. Wheatstone, Phil. Mag. **6**, 61 (1835)
3. L. Foucault, Compt. Rend. **30**, 551 (1850)
4. L. Foucault, Compt. Rend. **55**, 501 (1862)
5. L. Foucault, Compt. Rend. **55**, 792 (1862)
6. J. Kerr, Phil. Mag. und J. Sci. **50**, 337 (1875)
7. H. Abraham, J. Lemoine, Compt. Rend. **129**, 206 (1899)
8. H. Abraham, J. Lemoine, Ann. Chim. **20**, 264 (1900)
9. M. Grübele, J. Sabelko, R. Ballew, J. Ervin, Accounts Chem. Res. **31**, 699 (1998)
10. C.M. Phillips, Y. Mizautani, R.M. Hochstrasser, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **92**, 7292 (1995)
11. G. Porter, Proc. Roy. Soc. (London) **A200**, 284 (1950)

Viele Pikosekudentechniken finden auch bei der Impulsverkürzung im Sub-Pikosekundenbereich ihre Anwendung. Zu den im Femtosekundenbereich praktizierten Impulsverkürzungstechniken gehören die Pulskompression, der Einsatz eines CPM-Ringlasers (CPM=colliding pulse modelocking), das passive Modenkoppeln und die Verwendung optisch parametrischer Systeme. Es ist nun über drei Dekaden her, dass Pikosekunden-Laserimpulse zuerst durch passives Modenkoppeln von Mocker und Collins [1] und dann mit Hilfe eines Nd:Glaslasers von DeMaria et al. [2] erzeugt wurden. Seitdem sind die Techniken für die Erzeugung verlässlicher bandbreite-limitierter Dauern von wenigen Femtosekunden weiterentwickelt worden. Perfekte Modenkopplung stellt eine der beiden völlig organisierten Zustände des Betriebs eines Lasers dar. Während ultrakurze Pulse zuerst in Farbstofflasern durch synchrones Pumpen mit Pulszügen von modengekoppelten Rubinlasern erzeugt wurden, und nach Frequenzverdopplung in Nd:Glaslasern, sind die kürzesten Pulse mit passiv modengekoppelten Systemen erreicht worden. Der Titan-Saphir-Laser beruht auf dem Prinzip des Kerr-Lens-Modelocking, einer Art des passiven Modenkoppelns sehr ähnlich zu dem eines Sättigbaren Absorbers in einem Farbstofflaser, und emittiert Pulse unterhalb 100 fs. Mit verschiedenen Kompressionsmethoden und Frequenzverschiebungen im Spektralanteil des Pulses kommt man der Attosekundengrenze näher ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). Ein österreichisch-deutsches Physikerteam hat Messungen in den bisher kürzesten Zeitintervallen vorgenommen: Die Wissenschaftler konnten Ereignisse unterscheiden, die nur 100 Attosekunden auseinander lagen. Ihre Arbeiten werden im Fachmagazin „Nature“ präsentiert. Der Vorstoß zu solch kurzen Zeiteinheiten könnte neue Einblicke in die ungeheuer schnellen Vorgänge der atomaren Welt gewähren. In Abb. 3.1 sind die bisher bekannten chemischen, physikalischen und biologischen Prozesse auf einer sehr kurzen Zeitskala dargestellt.

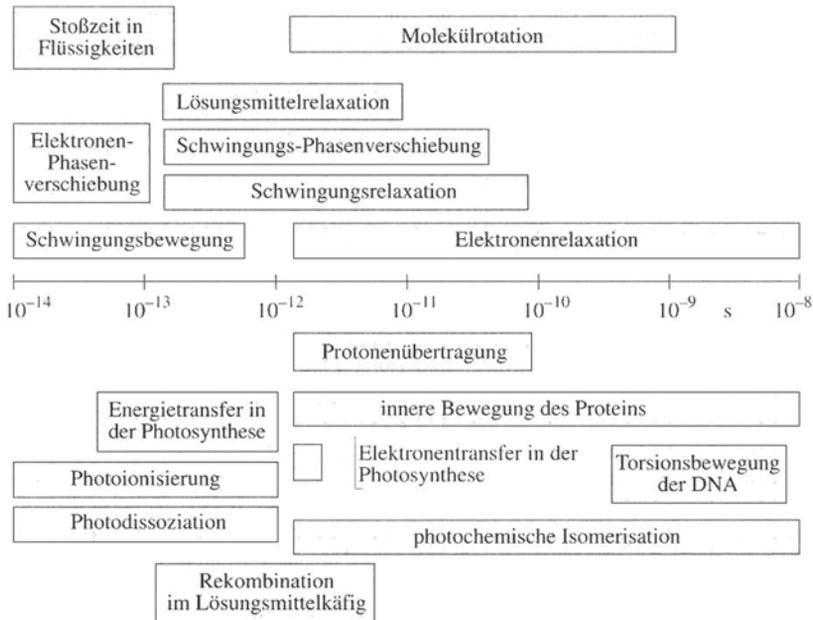


Abb. 3.1 Zeitskalen für chemische und biologische Elementarvorgänge im Zeitbereich 10 ns–10 fs

Was versteht man nun unter Modenkopplung, dem verantwortlichen Vorgang der Impulsverkürzung? Zu jeder transversalen Mode einer Laserkavität gehört ein Satz von longitudinalen Moden, jede davon hat dieselbe Form der räumlichen Energieverteilung in einer senkrechten Ebene, aber unterschiedliche Verteilungen entlang der Resonatorachse. Ist die Phase aller axialen Moden gleich, so hat die Feldstärke aller Moden an der gleichen Stelle im Resonator ihr Maximum, und die totale Feldstärke nimmt an dieser Stelle ihren größten Wert an, während die Feldstärke wegen der unterschiedlichen Frequenzen der einzelnen Moden im statistischen Mittel Null ist. Theoretische Modelle sind in den letzten Jahren genug verfeinert worden, so dass die Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten sehr gut ist. Die Untersuchung der Wechselwirkung von kohärentem Licht auf einer Femtosekundskaala ist hinreichend erfolgt. Im Folgenden wird nun näher auf den Erzeugungsprozess und die Möglichkeiten der Modenkopplung eingegangen, indem ein einfacher mathematischer Formalismus für das Zeitprofil eines kurzen Pulses abgeleitet wird und die passiven, aktiven und hybriden Modenschalter beschrieben werden. Am Schluss dieses Kapitels sollen Methoden der Femtosekundenpuls-Verstärkung und die Grenzen, die die linearen und nichtlinearen Eigenschaften der Lasermedien setzen, zur Sprache kommen. Ebenso werden theoretische und experimentelle Ergebnisse der Frequenzkonversion von Femtosekundenpulsen in Spektralbereiche des UV, VUV und IR durch harmonische Erzeugung von Oberwellen in Kristallen und Flüssigkeiten und durch nichtlineares optisches Mischen betrachtet.

3.1 Methoden der Erzeugung

Bevor wir die Möglichkeiten der Pulserzeugung diskutieren, ist es notwendig, eine angemessene mathematische Beschreibung der optischen Pulse zu etablieren und die angewandte Terminologie zu definieren. Es müssen zwei Bedingungen erfüllt sein, damit longitudinale Moden im Resonator eines Lasers anschwingen können: 1. sie müssen oberhalb der Laserschwelle liegen und 2. in das Verstärkungskurvenprofil passen (Abb. 3.2).

Unter einem longitudinalen Mode versteht man im Gegensatz zum transversalen diejenigen Photonen, welche parallel und nicht schräg zur Resonatorachse laufen. Diese Bedingung beinhaltet mathematisch, dass das Produkt aus Einwegverstärkung G , Verlustfaktor V (Reflexions-, Streu-, Absorptions-, Beugungs- und Auskoppelverluste) und Rückkopplungsfaktor R mindestens Eins sein muss: $G V R > 1$. Die Resonanzbedingung für die im linearen Resonator stehenden Wellen lautet: $f_m = m \cdot c / (2 L)$, $m = 1, 2, 3, \dots$. Dabei ist c die Lichtgeschwindigkeit, L die Resonatorlänge und m der longitudinale Modenindex. Praktisch bedeutet dies, dass nur die Wellen im Resonator anschwingen können, die an den Endpunkten des Resonators einen Knoten bilden. Zwei schwingende und benachbarte Moden haben dann den Frequenzabstand $c/2L$. Die Moden eines 2 m langen Resonators eines Argonionenlasers mit einem Brechungsindex von annähernd 1 befinden sich daher in einem Abstand von 75 MHz, so dass aufgrund der o. g. Verstärkungsbedingung 130 Eigenschwingungen möglich sind. Entsprechend ausgelegte Laserresonatoren mit einer Apertur erlauben einen alleinigen transversalen Modenbetrieb. Durch Hinzufügen von intra-kavitäts-frequenz-selektiven Komponenten kann ein longitudinaler, oder ein reiner transversaler Modenbetrieb erreicht werden. Besitzt das Lasermedium eine große Bandbreite, so resultieren Femtosekundenpulse. Das elektrische Feld und das komplexe Signal einer ebenen Welle eines optischen Pulses an einem bestimmten Punkt im Raum lassen sich durch ein Paar von Fourier-Integralen beschreiben.

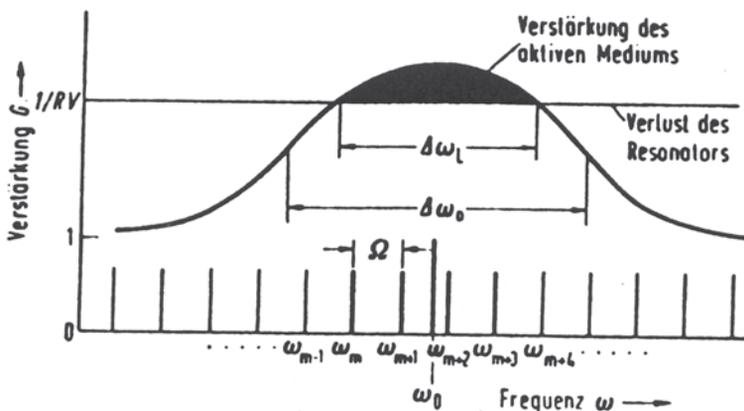


Abb. 3.2 Verstärkungsprofil und axiale Moden in einem breitbandigen Laserresonator

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} e(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \quad (3.1)$$

$$e(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) \exp(i\omega t) dt \quad (3.2)$$

$$\begin{aligned} V(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\infty} 2e(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} v(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \end{aligned} \quad (3.3)$$

Durch Umformung in Ausdruck (3.3) werden die Amplituden der negativen Frequenzkomponenten unterdrückt und die Amplituden der positiven Frequenzen verdoppelt.

Die Annahme sind dabei komplexe Funktionen $V(t)$ und $v(\omega)$ für die Frequenz- und die Zeitdomäne des Pulses mit $a(\omega)$ als spektraler Amplitude und $\phi(\omega)$ als spektraler Phase. Im quasi-monochromatischen Fall variieren $A(t)$ und $\phi(t)$ nur wenig mit der Zeit. Die Intensität ist dann

$$I(t) = V(t) V^*(t) = A^2(t) \quad (3.4)$$

Die spektrale Intensität verhält sich analog dazu. Nach dem Parsevalschen Theorem ist die Gesamtenergie eines Pulses proportional zum Bereich des spektralen oder zeitlichen Intensitätsprofils. Das Ergebnis unterstreicht die vollkommene Symmetrie zwischen der Frequenz- und Zeitbeschreibung eines optischen Pulses. Die Unschärferelation stellt eine Beziehung zwischen Bandbreite und zeitlicher Dauer eines Pulses her:

$$(\Delta\omega \cdot \Delta t)/2 \pi \geq K \quad (3.5)$$

wobei K eine Konstante in der Größenordnung von Eins ist, welche von der Pulsform abhängt. Die kürzesten erreichbaren Pulse bezeichnet man als „bandbreite-begrenzt“ oder „fourier-limitiert“:

$$\Delta t = 2\pi K(\Delta\omega)^{-1} \quad (3.6)$$

Der Zusammenhang von Pulsdauer t_p und spektraler Bandbreite für einige Impulsformen lautet (Tab. 3.1):

Diese Impulsbandbreite kann höchstens die Breite der Verstärkungsbandbreite $\Delta\nu_G$ des jeweiligen Lasermediums haben, so dass $\Delta\nu_G$ die entscheidende Größe ist, die die untere Grenze der erreichbaren Impulsdauer bestimmt. Für Farbstoffe ist die Verstärkungsbandbreite relativ groß, so dass sich Farbstofflaser besonders gut zur Erzeugung von ultrakurzen Lichtimpulsen eignen. In Tab. 3.2 sind typische Parameter für einige Lasermedien zusammengefasst.

Tab. 3.1 Relation von Pulsdauer und Pulsform

$I(t)$	$\Delta\nu \cdot t_p$
1; für $0 \leq t \leq t_p$	0,886
$\exp(-(4 \ln 2) t^2/t_p^2)$	0,441
$\operatorname{sech}^2(1,76 t/t_p)$	0,315
$\exp(-(\ln 2) t/t_p)$; $t \geq 0$	0,11

Tab. 3.2 Eigenschaften einiger Ultrakurzzeitlaser

Lasertyp	$\Delta\nu_G$	τ_{\min}	$\Delta\nu_G \tau_{\min}$
He-Ne	1,5 GHz	600 ps	0,9
Ar+	5–8 GHz	100 ps	0,5
Nd:YAG	120 GHz	30 ps	3,6
Farbstoff	10^{13} – 10^{14} Hz	< 100 fs	ca. 1,0
Ti:Sa	176 MHz	< 100 fs	

Die Pulse eines Nd:YAG-Lasers sind bei weitem nicht fourierbegrenzt. Wenn man die elektrischen Felder der unabhängig voneinander schwingenden Moden überlagert, erhält man unter Annahme gleicher Feldamplituden, jedoch individueller Phasenlagen und Frequenzen f , eine *statistische* bzw. *chaotische* Modenstruktur. Die im Phasen- und Amplitudenverhalten fluktuierenden Moden erzeugen ein sog. „Gaußsches Rauschen“, das mit dem thermischen Rauschen verglichen werden kann. Eine Folge von ultrakurzen Pulsen ist eine sprunghafte Änderung in der Lichtintensität und kann im Multimodenbetrieb des Argonionenlasers durch eine aktive Modensynchronisation realisiert werden, indem die einzelnen Wellenauslenkungen zur gleichen Zeit entweder ihr Maximum oder Minimum erreichen. Die Amplituden liegen dann alle in der gleichen Phasenebene. Mit jedem Umlauf im Resonator reproduziert sich der Puls d. h. mit $2 L/c$. Analog zu einem Beugungsgitter kommen die kürzesten Pulse durch die maximal mögliche Anzahl überlagerter Teilwellen zustande, die alle phasenrichtig geschaltet sein müssen. Für einen Argonionenlaser erhält man fourierlimitierte Pulse von etwa 100 ps mit einer Energie von 13 nJ.

Die maximale Intensität ergibt sich bei der Überlagerung von N unabhängig schwingenden Moden mit $I_m = N I_o$. Da die Phasenkonstanten, die die Schwingungszustände charakterisieren im Falle der Korrelation alle Null sind, kann man durch Umformung unter Anwendung einfacher trigonometrischer Beziehungen zeigen, dass

$$|E(t)| = |E_0| \frac{\sin(N\pi\Delta\nu \cdot t)}{\sin(\pi\Delta\nu \cdot t)} \quad (3.7)$$

Den zeitlichen Intensitätsverlauf erhält man durch Quadrieren von Ausdruck (3.7). Der Verlauf eines Pulses ist in Abb. 3.3 dargestellt.

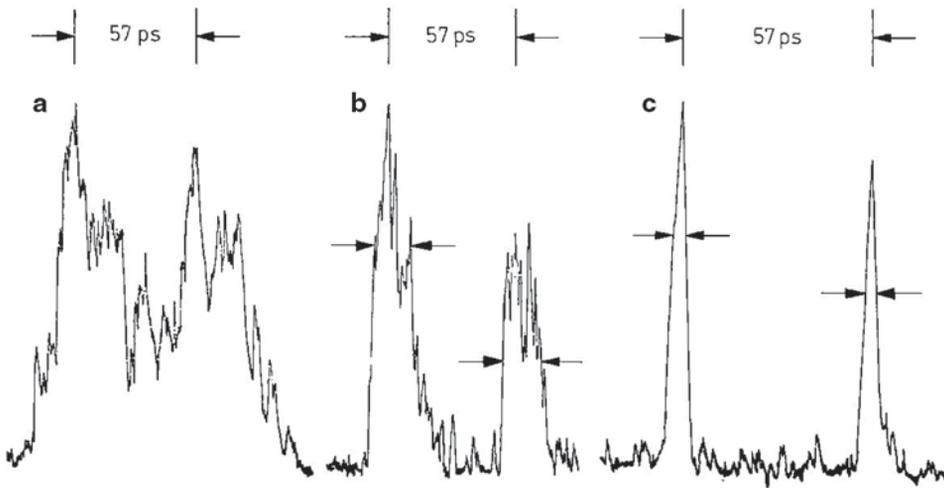


Abb. 3.3 Mit einer Streackamera aufgenommen. Entwicklung eines Farbstofflaserpulses (a) Rauschen, Fluktuationen beim Starten des Pulszuges (b) nach 30 Umläufen (c) 2 ps Puls nach 35 Umläufen (nach *Adrain*)

Weitere, den Impulszugverlauf charakterisierende Größen ergeben sich durch Auswertung dieses Ausdrucks

$$\text{das Intensitätsmaximum} \quad I_m = I_0 N^2 \quad (3.8)$$

$$\text{die Impulslänge} \quad \tau = T/N = 1/(\Delta\nu N) \quad (3.9)$$

$$\text{die Periodizität der Intensität} \quad T = c/(2 L n) \quad (3.10)$$

Um einen Modenkoppelbetrieb zu erreichen, ist es notwendig, ein Bauteil einzufügen, welches die spektralen Amplituden und Phasen miteinander korreliert. Dann ist die perfekte Modenkoppelsituation hergestellt. Während Prozeduren für das Erreichen eines guten Modenkoppels über die Jahre empirisch entstanden sind, war ein detailliertes Verständnis für die involvierten Prozesse beim Messen der Pulse mit einer elektronisch-optischen Streackamera notwendig. Frühe Experimentatoren haben zahlreiche Fehlerreports von isoliert erzeugten Pikosekunden- und Sub-Pikosekundenpulsen damit aufgenommen, weil sie versäumt haben, Vorsichtsmaßnahmen bei der Anwendung nichtlinearer Korrelationstechniken zu ergreifen. In einem anderen Kapitel wollen wir die Messmethoden für das Pulsintensitätsprofil $I(t)$ ausführlich besprechen. Welche Möglichkeiten stehen dem Laseringenieur und -physiker zur Verfügung, um die Moden eines Lasers zu synchronisieren und optische Pulse bis in den Attosekundenbereich zu verkürzen? In den kommenden Kapiteln sollen die wichtigsten Methoden vorgestellt und diskutiert werden. Neben aktiven und passiven Modenkoppeltechniken gibt es auch hybride, die eine Kombination von beiden vorsehen.

3.1.1 Aktives Modenkoppeln

Ein „Modelocking“, d. h. eine Phasenkopplung der oszillierenden Lasermoden lässt sich durch periodisch veränderliche Verluste im Resonator erreichen. Dabei bezeichnet man dies als aktive bzw. passive Verlustmodulation, je nachdem, ob die Modulation von einer äußeren Quelle oder vom Laser selber herrührt. Möglich wird die aktive Verlustmodulation durch die periodische Änderung der Transmissions-Eigenschaften eines Modulators, der in den Resonator eingebracht wird. Diese Art der Phasenkopplung wird üblicherweise bei kontinuierlichen Lasern (z. B. Edelgasionenlasern) angewendet. Der Modulator basiert dabei auf dem akustooptischen Effekt. Die 514,5-nm-Emissionslinie des Argonionenlasers besitzt eine Linienbreite von 10 GHz, so dass eine Einwegverstärkung der Lichtemission über eine große spektrale Bandbreite erfolgen kann. Die zur Linienbreite beitragenden Effekte sind die natürliche Linienbreite (s. Heisenbergsche Unschärferelation), die Dopplerverbreiterung und die Druckverbreiterung. Aus der differentiellen Form der Dispersionsrelation kann die Bandbreite zu $\Delta\lambda = 8.83 \cdot 10^{-3}$ nm berechnet werden. Die Modensynchronisation lässt sich aktiv mit Hilfe eines akustooptischen Modulators praktizieren. Ein von dem Frequenzsynthesizer erzeugtes elektrisches Wechselfeld mit einer auf den Modenabstand abgestimmten Treiberfrequenz $\nu_{\text{tr}} = \Delta\nu/2$ wird in einen LiNbO_3 -Kristall eingekoppelt und ruft dort durch die dielektrische Polarisierung mechanische Längskontraktionen (Elektrostriktion) hervor. Diese longitudinalen Dichteschwingungen werden auf das Quarz-Prisma, in welchem die Piezo-Keramik eingebunden ist, übertragen, und durch Reflexionen an den Begrenzungsflächen entstehen stehende Ultraschallwellen, die die Brechzahl des Quarzmaterials periodisch entsprechend der Schallwellenlänge $\lambda_s = 0.148$ mm (Longitudinalgeschwindigkeit = 5570 m/s bei Raumtemperatur) modulieren. Da in den Gebieten gesteigerter Dichte die Phase der Welle mehr geändert wird als in Domänen verminderter Dichte, entsteht ein „optisches Phasengitter“, an dem das Licht gebeugt und um den Betrag der akustischen Frequenz verschoben wird. Die Resonatorfotonen passieren den Modulator zweimal während des Maximums des HF-Signals, so dass Seitenbänder im Abstand $\Delta\nu = 2 \nu_{\text{tr}}$ resultieren, welche die freischwingenden Moden synchronisieren. Der akustooptische Modulator wirkt daher wie eine Art Schalter, der die Resonatorfotonen in Takt mit der doppelten Treiberfrequenz bringt. Die in der geschlossenen Phase des Schalters d. h. in den Nulldurchgängen der stehenden akustischen Schwingung in das Prisma eintretenden Fotonen laufen aus der Resonatorachse heraus und gehen daher bei der Verstärkung verloren (Verlustmodulation). Die Wechselwirkung von Resonatorfotonen und Kristallfononen im Quarzprisma kann quantitativ durch die *Raman-Nath-Approximation* erfasst werden. Im *Raman-Nath-Fall* ergeben sich vier zur nullten Ordnung symmetrische Beugungsordnungen (Ordnung l_q) unter dem Winkel $\alpha_l = l_q / \lambda_s$. Da der Piezokristall unter einem Winkel von 36° geschnitten ist, wird auch eine transversale Wellenverteilung im Ultraschallfeld möglich. Eine Koinzidenz von transversalen und longitudinalen Moden wird vermieden, da die transversalen Phasen teils gegenphasig zu den longitudinalen laufen und eine andere Polarisierung besitzen. Die Dämpfung der transversalen Moden liegt unterhalb 50 dB. Der Treiber liefert eine Frequenz zwischen 5

und 160 MHz mit hoher Phasenreinheit und Frequenzstabilität bei einer Auflösung von 100 Hz. Ein Lock-in-Regelkreis im Treiber „lockt“ die akustische Resonanzfrequenz entsprechend der getriebenen HF-Frequenz. Die ersten Laser enthielten eine Regelelektronik nach Klahn et al. mit einem Richtkoppler, einem phasenempfindlichen Lock-in-Detektor und einem spannungsgeregeltem Dämpfungsglied. Der Richtkoppler gibt das verstärkte HF-Signal an den Modulator ab und empfängt von diesem das HF-Echosignal. Im Phasendetektor wird entsprechend der Phasendifferenz zwischen diesen Signalen eine proportionale Ausgangsgröße erzeugt. Im Resonanzfall hat die relative Phase ihren Nulldurchgang und außerhalb der Resonanz erfolgt über die Steuerung des Dämpfungsgliedes eine Korrektur der Prismen-temperatur durch eine Änderung des HF-Leistungspegels. Die Transmissionsfunktion lautet:

$$U(\phi) = K_d V \cos \quad (3.11)$$

wobei $K_d \approx 2 \text{ V}$, $f = 37.564 \text{ MHz}$ und V die Verstärkung ist. Das Treibersignal steuert auch den akustooptischen Auskoppler an. Beim aktiv modengekoppelten Nd-Glaslaser erreicht man Pulsbreiten bis herunter zu 5 ps mit sehr hohen Spitzenleistungen ($< 10^{10} \text{ W}$) bei einer Wellenlänge von $1,06 \mu\text{m}$. Besonders gut zur Erzeugung kurzer Laserpulse eignen sich Farbstoff- und Farbzentrenlaser, da sie eine große Bandbreite ihres Verstärkungsprofils ($> 10^{13} \text{ 1/s}$) besitzen. Mit der aktiven Modenkoppel-Technik erzielt man Pulsdauern zwischen 10 und 50 ps, was der Laufzeit durch den Modulator entspricht. Will man hingegen in den Femtosekundenbereich vordringen, muss man passive Modenkoppel-Techniken und andere optische Kompressionstechniken anwenden. Auch Hybridtechniken haben sich hier bewährt.

3.1.2 Passives Modenkoppeln

Bei der passiven Phasenkopplung wird die periodische Verlustmodulation durch einen sättigbaren Absorber (organische Farbstoffe) hervorgerufen, der in den Resonator eingebracht wird. Eine weitere Pulskompression im Farbstofflaser erreicht man durch das passive Modenkoppeln in einem zusätzlichen Farbstofffreistrahl (z. B. DODCI=3,3'-Diethyl Oxadicyanin Iodid). Dieser Farbstoff bewirkt wegen der sehr schnellen „Transmissionsmodulation“ der Resonatorstrahlung eine Reduzierung der Pulsdauer auf wenige Pikosekunden. Ist die Intensität des Laserlichts hoch genug, so ist die Absorber-Transmission nicht mehr konstant gleich T_0 (Kleinsignal-Transmission), sondern nimmt in Abhängigkeit von der Lichtintensität höhere Werte an, da der Grundzustand des Absorbers durch die Anregung mit dem intensiven Licht teilweise entleert wird (Ausbleichen des Absorbers). Dieses nichtlineare Transmissionsverhalten bewirkt, dass die Fluktuationen (des Ensembles der statistischen Fluktuationen im Multimodebetrieb) mit höherer Intensität eine geringere Absorption erfahren als diejenigen mit kleinerer Intensität. Dabei

muss die Intensität im nichtlinearen Bereich der Transmissionskurve liegen, d. h. für in Forschung und Technik eingesetzte Farbstoffe bei 10^6 – 10^7 W/m². Ist die Absorber-Relaxationszeit klein gegen die Impulsdauer, so ist die Sättigungs-Energie maßgeblich. Die kleineren Fluktuationsspitzen erfahren einen größeren Verlust und das „chaotische Rauschen“ eines Pulses geht nach wenigen Resonatorumläufen zurück, so dass sich ein Zug kurzer und stabiler Pulse etabliert. Der sättigbare Absorber fungiert als eine Art optischer Schalter, der durch den im Resonator umlaufenden Puls geöffnet und geschlossen wird. Außer der Unterdrückung der kleineren Fluktuationen hat er noch eine zweite Aufgabe: da die Flanken der Impulse aufgrund ihrer niedrigen Intensität eine stärkere Absorption erfahren als die Impulsspitzen, werden die Flanken steiler und damit die Pulsdauer geringer. Die Lebensdauer des angeregten Zustandes des Absorbers muss klein gegen die Pulsdauer sein. Der durch den vorderen Teil des Absorbers ausgebleichte Absorber muss schnell genug in den Grundzustand relaxieren, um die Hinterflanke des Pulses zu beeinflussen. Das Phasenrauschen eines modengekoppelten cw-Farbstofflasers, d. h. Schwankungen in der Pulsbreite, liegt üblicherweise im Femtosekundenbereich, und das Amplitudenrauschen beträgt etwa 0,2%. Für einen stabilen Arbeitsbereich des Farbstofflasers muss das effektive Wirkungsquerschnittsverhältnis $S = \sigma_a F_v / (\sigma_v F_a)$ zwischen 1,5 und 2 liegen. Dabei sind F_a und F_v die Strahlquerschnitte im Absorber- bzw. Verstärkerfarbstoff und σ_a und σ_v die entsprechenden Absorptionsquerschnitte. Der Absorberfarbstoff DODCI ist trotz der kurzen Relaxationszeit von 1 ns im Vergleich zu DQOCI (= 1,3' – Diethyl 4,2' Quinolyloxacarboxyanin Iodid) mit $\tau_r = 10$ ps für das aktiv/passiv-System nicht geeignet. Dies zeigen Rechnungen, die das aktiv/passiv-System simulieren und wobei ersichtlich ist, dass hier ausgeprägte unerwünschte Satellitenimpulse auftreten [3]. Die dadurch mit einer Dauer von 1,5–2 ps erzeugten Pulse lassen sich im Bereich 570–600 nm durchstimmen. Durch den Zusatz von Malachitgrün lassen sich die Pikosekundenpulse noch weiter verkürzen. Watanabe et al. haben zuerst in einem rein passiv modengekoppelten Farbstofflaser den Kompressionsmechanismus von Femtosekundenpulsen durch Malachitgrün (MG) beobachtet und systematisch untersucht [4]. Sie haben festgestellt, dass die Pulslänge bei Zugabe von MG bis zu einer Konzentration von $1,5 \cdot 10^{-6}$ Mol/l stetig abnahm und einem Grenzwert von 0,34 ps zustrebte. Im Vergleich zu anderen Absorberfarbstoffen stellte sich ein sehr stabiler Modenkoppelbetrieb ein. Erklärt wird die Pulskompression durch MG mit dem größeren Absorptionsquerschnitt und der sehr schnellen Absorptionsrückkehrzeit ($\tau_r = 2.1$ ps). Mit zunehmender MG-Konzentration konnte auch eine Verschiebung der Zentralwellenlänge zu kürzeren Wellenlängen festgestellt werden, nämlich von 614 zu 608 nm. In einem hybrid-modengekoppelten Farbstofflaser lassen sich auf diese Weise die Pulse von 2 ps auf etwa 320 fs (sech²) verkürzen. Die Pulsenergie liegt bei 7 nJ, und die Zentralwellenlänge ist um etwa 4 nm in den kurzwelligeren Bereich verschoben. Eine besondere Form der passiven Phasenkopplung, bei der sich zwei in einem Ringresonator gegenseitig umlaufende Impulse im Absorberfarbstoff überlagern und so beeinflussen, dass kürzere Pulsdauern resultieren (CPM=code-pulse-mode-locking), wird in Abschn. 3.1.4 ausführlich diskutiert.

3.1.3 Phasen-Modulation

Eine weitere Möglichkeit zur Phasenkopplung besteht in der direkten Phasenmodulation des Laserlichts durch einen elektro-optischen Kristall innerhalb des Resonators.

3.1.4 Code-Pulse-Modelocking

Falls die Relaxationszeit des Absorbers kleiner als die Impulsdauer ist, wird das Licht vor allem im Bereich der Flanken absorbiert, während das Impulsmaximum quasi unverändert passieren kann, da es den Absorber aufgrund seiner hohen Intensität ausbleicht (Sättigung des Absorbers). Bei passiv phasengekoppelten Festkörperlasern sind die Impulsdauern etwas länger als die Relaxationszeit der verwendeten Absorber ($\tau_r = 10$ ps; Impulsdauer 30 ps). Im Vergleich dazu sind die Pulse von passiv phasengekoppelten Farbstofflasern 3–4 Größenordnungen kürzer als die Absorberrelaxationszeit. Eine deutliche Verkürzung der Farbstofflaser-Impulse kann durch eine ringförmige Resonator-Geometrie erreicht werden, indem sich zwei gegensinnig umlaufende Laserpulse im Absorber-Medium (DODCI) überlagern, wodurch ein optisches Phasengitter entsteht, das die Trägerfrequenz des Impulses moduliert (Abb. 3.4). Man spricht im Zusammenhang mit der Frequenzmodulation auch von einem sog. „chirp“. Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) lässt sich mit Hilfe einer Vier-Prismen- oder, wie sich zeigen lässt, auch Zwei-Prismen-Anordnung so einstellen, dass eine wirksame Impulsverkürzung und Diskriminierung des chirps auftritt.

Bei der Impulsformung ist auch das Phasen- und Frequenzverhalten der Lichtimpulse zu berücksichtigen. Eine Änderung der Trägerfrequenz des Pulses um $\Delta\omega$ beeinflusst durch Kombination mit der GVD die Impulslänge. Die Herkunft des chirps sei hier zusammengefasst.

Der vom Lösungsmittel Ethylenglykol verursachte up-chirp beruht auf einer Selbstphasenmodulation (SPM) infolge Kerr-Effektes; der Resonator bewirkt eine negative GVD; die Selbstphasenmodulation im Absorber DQOCI führt durch die Änderung der Besetzungszahlen zu einem down-chirp; im Verstärkerfarbstoff bedingt die SPM einen up-chirp, dessen Betrag um einen Faktor 4–5 kleiner als der vom Absorber verursachte

Abb. 3.4 Schema eines CPM-Ringlasers. Verstärker und Absorber befinden sich im Abstand ein Viertel der Ringperipherie

