

Femtosekundenlaser: Sind die Grenzen schon erreicht?

Ch. Spielmann, M. Lenzner, A. Stingl, R. Szipöcs, F. Krausz

Neue Festkörperlasermaterialien und Modenverkopplungstechniken haben zu einer neuen Generation von Ultrakurzpulslasern geführt, die Femtosekundenpulse mit einer bisher unerreichten Stabilität, Reproduzierbarkeit und Verlässlichkeit liefern. Dieser Artikel beschreibt die prinzipielle Funktionsweise dieser Systeme und die neuesten Entwicklungen, die es erlauben, 8-Femtosekunden-Pulse aus einem Laseroszillator zu erzeugen.

1. Einleitung

Die Ultrakurzzeit-Meßtechnik hat in den letzten 25 Jahren durch die Entwicklung von Lasern, die Pulse mit einer Dauer im Piko- bzw. Femtosekundenbereich emittieren, einen bemerkenswerten Aufschwung erfahren. Erstmals konnten physikalische, chemische und biologische Vorgänge im Zeitbereich unterhalb von 10^{-9} s bis herab zu einigen 10^{-14} s untersucht werden, die bis dahin als unmeßbar kurz galten. Über die Jahre gelang es, die Zeitauflösung durch noch kürzere Pulse immer weiter zu verbessern. Die Fortschritte in den letzten Jahren erlaubten erstmals die Erzeugung hochstabiler Pulse unter 10 fs Dauer direkt aus einem Oszillator. In diesem Artikel soll eine kurze

Übersicht über die letzten Entwicklungen in der Ultrakurzpuls-Lasertechnik präsentiert werden.

Die Erzeugung von Laserimpulsen kürzer als die Resonatorumlaufzeit basiert auf der Tatsache, daß in einem Laser eine große Anzahl von longitudinalen Moden angeregt werden kann. Im freilaufenden Betrieb schwingen diese Moden mit willkürlicher Phase an. Das Ausgangssignal ist in diesem Fall ein stark fluktuierendes Gleichsignal. Mittels eines zusätzlichen Modulators können die einzelnen Moden miteinander verknüpft werden, d. h. ihre Phasenlage wird fixiert [1]. In einem solchen *modenverknüpften* Laser interferieren dann alle Moden nur einmal während eines Resonatorumlaufes konstruktiv, während sie sich für alle anderen Zeiten gegenseitig auslöschen. Dieser Zustand kann durch eine – zum Resonatorumlauf synchrone – periodische Modulation des Resonatorverlustes herbeigeführt werden. Das Ausgangssignal ist dann ein Pulszug mit einer Repetitionsrate, die der inversen Resonatorumlaufzeit entspricht. Je nachdem, ob diese Amplitudenmodulation extern oder vom Puls selbst eingeführt wird, spricht man von aktiver oder passiver Modenverkopplung. Aktiv modenverknüpfte Laser waren die ersten, die kurze Pulse geliefert haben [1]. Mit dieser Methode ist jedoch, bedingt durch die begrenzte Modulationstiefe, nur die Erzeugung von Pikosekunden-Impulsen möglich.

In einem passiv modenverknüpften Laser wird die Amplitudenmodulation durch Wechselwirkung mit einem nichtlinearen Element vom Puls selbst erzeugt. Ein solches Element kann ein sättigbarer Absorber sein, dessen Wirkung sich idealisiert folgendermaßen beschreiben läßt [2, 3]:

$$I(t) = I_0 - \alpha I(t), \quad (1)$$

wobei $I(t)$ der momentane, I_0 ein linearer konstanter Verlust, α die Modulations-

stärke und $I(t)$ die Intensität ist. Hier wird angenommen, daß sich der Verlust instantan mit der Intensität ändert, d. h. die Relaxationszeit des Absorbers ist unendlich kurz.

Die ersten passiv modenverknüpften Laser waren Festkörperlaser mit einem Farbstoff als sättigbarem Absorber. Damit gelang es bereits in den späten sechziger Jahren, Pikosekundenimpulse zu erzeugen [4]. Doch die endliche Relaxationszeit von verfügbaren Absorbern verhinderte bald eine weitere Verkürzung der Pulse. Bei Pulsdauern kürzer als die Absorber-Relaxationszeit (\approx einige ps) kann nur die Vorderflanke des Pulses effektiv geformt werden. Dieses Problem ließ sich dadurch umgehen, daß man ab Anfang der siebziger Jahre Farbstoffe als aktives Medium verwendete [5]. In einem modenverknüpften Farbstofflaser sättigt der Puls nicht nur den Absorber, sondern auch die Verstärkung. In diesem Fall hat der Absorber nur noch die Aufgabe, die Vorderflanke zu formen, während der schnelle Abbau der Inversion im Verstärker die abfallende Flanke bestimmt. Die Relaxationszeit des Absorbers spielt daher, im Gegensatz zu den Festkörperlasern, wo man auf einen „schnellen“ Absorber angewiesen ist, keine Rolle mehr. Aus diesem Grund waren Farbstofflaser bis zum Beginn der neunziger Jahre die einzig verlässliche Quelle von Femtosekundenimpulsen.

2. Femtosekunden-Festkörperlaser

Ende der achtziger, Anfang der neunziger Jahre wurde eine Reihe neuer breitbandiger Festkörperlaser-Materialien entwickelt, die alle potentielle Kandidaten für Femtosekundenlaser waren. Wegen der Notwendigkeit eines a priori nicht verfügbaren, „schnellen“ Absorbers brachte erst die Nutzung der Kerr-Nichtlinearität einen Durchbruch in der Festkörper-Ultra-

Dr. Christian Spielmann, Dr. Matthias Lenzner, Dipl.-Ing. Andreas Stingl und Univ. Doz. Dr. Ferenc Krausz, Abteilung Quantenelektronik und Lasertechnik, Technische Universität Wien, Gußhausstraße 27–29, 1040 Wien. Dr. Robert Szipöcs Optical Coating Laboratory, Research Institut for Solid State Physics, P. O. Box 49, H-1525 Budapest

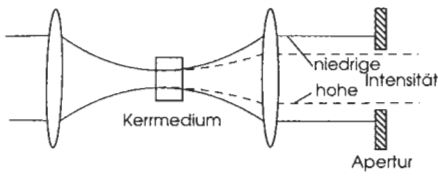


Abb. 1: Prinzipieller Aufbau eines Kerr-lens-Modulators. Durch Selbstfokussierung werden Strahlen hoher Intensität so modifiziert, daß sie beim Durchgang durch eine nachfolgende Apertur einen geringeren Verlust erleiden als Strahlen mit niedriger Intensität.

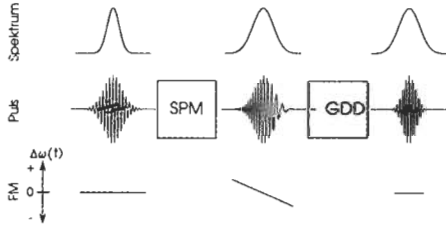


Abb. 2: Solitonartige Pulsformung. Dargestellt sind das Spektrum, der Puls im Zeitbereich und die Frequenzmodulation (FM) beim Durchgang durch Elemente mit Selbstphasenmodulation (SPM) und negativer Gruppenverzögerungsdispersion (GDD).

kurzpuls-Lasertechnologie. Der Kerr-Effekt modifiziert die Brechzahl $n(x, y, t)$ transparenter optischer Medien zu:

$$n(x, y, t) = n_0 + n_2 I(x, y, t) \quad (2)$$

wobei n_0 die lineare, n_2 die nichtlineare Brechzahl und $I(x, y, t)$ die Intensität ist. Durch die nichtlineare Brechzahl werden sowohl die zeitlichen als auch die räumlichen Charakteristiken eines Pulses (nahezu instantan) modifiziert. In Kombination mit einem linearen Verlustelement läßt sich damit ein „künstlicher schneller“ Absorber realisieren. Die erfolgreichste Umsetzung dieses Konzeptes benutzt den räumlichen Effekt und wird als *Kerr-lens* (oder auch *self mode-locking* (KLM) [6] bezeichnet. Ein Laserstrahl mit Gaußschem Intensitätsprofil erzeugt in einem Kerr-Medium nach Gl. 2 eine transversale Modulation der Brechzahl. Dadurch ändert sich die optische Weglänge, das Produkt aus Brechzahl und Materialdicke, über den Strahlquerschnitt. Dies entspricht genau den Verhältnissen bei einer herkömmlichen Linse, bei der allerdings die Brechzahl konstant ist und die Materialdicke variiert. Der Strahl selbst erzeugt also eine Linse (Selbstfokussierung), deren Brennweite von der momentanen Intensität abhängt. Eine richtig angebrachte Apertur hinter dem Kerr-Medium stellt für höhere Intensitäten einen geringeren Verlust als für kleinere dar. Die prinzipielle Funktionsweise eines op-

tischen Kerr-Modulators ist auch aus Abb. 1 ersichtlich. Das Verhalten der Kombination von Kerr-Medium und Apertur entspricht somit genau dem in Gl. 1 beschriebenen des idealen „schnellen“ sättigbaren Absorbers [2, 7]. Ein Kerr-Modulator öffnet daher die Möglichkeit, Femtosekundenimpulse in Festkörperlasern zu erzeugen.

Trifft man jedoch keine weiteren Maßnahmen, so lassen sich auch mit KLM nur Pikosekundenimpulse erzeugen. Die Ursache dafür ist die Pulsverlängerung durch die positive Gruppenverzögerungsdispersion (*group delay dispersion*, GDD) von Resonatorbestandteilen, die durch Selbstphasenmodulation im Kerr-Medium noch verstärkt wird. Positive GDD heißt definitionsgemäß, daß die Laufzeit für höhere Frequenzkomponenten größer als für niedrigere ist. Selbstphasenmodulation ist eine Folge der zeitlichen Änderung der Brechzahl, durch die neue, zeitlich getrennte Frequenzkomponenten erzeugt werden. Die niedrigeren Frequenzkomponenten werden an der Vorderflanke, die höheren an der Hinterflanke des Pulses generiert. Durch den kombinierten Effekt von positiver GDD und Selbstphasenmodulation kommt es zu einer starken Pulsverlängerung.

Um diese Pulsverlängerung zu vermeiden, muß die Materialdispersion kompensiert werden. Wird die Dispersion nicht nur kompensiert, sondern sogar überkompensiert, so daß netto eine negative GDD entsteht, kommt es zu einer Pulsverkürzung wie in Abb. 2 dargestellt. Diese Pulsformung bezeichnet man in Anlehnung an die Solitontheorie als „solitonartige Pulsformung“ [2, 7]. Sie ist in passiv modenverkoppelten Festkörperlasern der dominante Pulsformungsmechanismus und bestimmt auch die stationäre Pulsdauer τ [2]:

$$\tau \sim \frac{|D|}{\Phi W} \quad (3)$$

wobei D die negative Netto-GDD in einem Resonatorumlauf, Φ ein Maß für die Selbstphasenmodulation und W die Pulsenergie ist. Wie aus der Gl. 3 ersichtlich ist, spielt in der ersten Näherung KLM keine Rolle für die erzielte Pulsdauer. Eine genauere Analyse ergibt jedoch, daß KLM für die Formung der Pulse aus dem Rauschen in der Anfangsphase der Modenverkopplung und für die Stabilität des stationären Zustandes unabdingbar ist. Mit der Kombination von KLM und solitonartiger Pulsformung konnte in einer Reihe von Festkörperlasern Femtosekundenpulse erzeugt werden (für eine Übersicht siehe z. B. [2]).

3. Der Titan-Saphirlaser

Die bisher erfolgreichste Realisierung eines Festkörper-Femtosekundenlasers ist der KLM Titan:Saphir-Laser (Ti:S-Laser). Dies hängt mit den einzigartigen spektroskopischen und thermischen Eigenschaften von Ti:S zusammen. Ein typischer Aufbau wird in Abb. 3 gezeigt. Der Ti:S-Kristall ist sowohl Verstärker- als auch Kerr-Medium. Gepumpt wird üblicherweise mit einem Argon-Ionenlaser oder einem frequenzverdoppelten Neodym-Laser. Ein vertikaler Schlitz in einem der Resonatorarme bildet die notwendige Apertur für KLM. Im anderen Arm sorgt ein Prismenpaar für die negative GDD. Obwohl auch das Prismenmaterial eine positive Material-GDD hat, läßt sich zeigen, daß die durch Winkeldispersion verursachten unterschiedlichen optischen Wege in einer solchen Anordnung letztlich zu einer negativen GDD führen. Deren Wert hängt sowohl vom verwendeten Prismenmaterial als auch vom Abstand der beiden Prismen ab.

Eine Inspektion von Gl. 3 ergibt, daß bei Reduktion der Nettodispersion D gegen 0 auch die Pulsdauer gegen 0 gehen würde. Doch die kürzesten Pulse der ersten realisierten Systeme waren einige 10 fs lang. Was sind nun die Limitierungen, die eine weitere Verkürzung verhindern? Die Verstärkungsbandbreite kann ausgeschlossen werden, da sie bei Ti:S eine Pulsdauer von ca. 3–4 fs erlauben würde. Die Bandbreite der im Laser verwendeten dielektrischen Spiegel wirkt sich auch erst für sub-10fs-Pulse begrenzend aus.

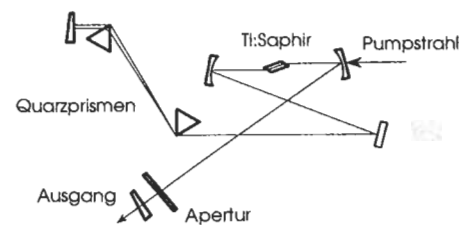


Abb. 3: Aufbau eines Ti:Saphir-Oszillators mit Prismen zur Dispersionskompensation.

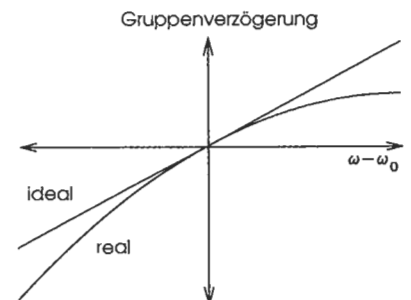


Abb. 4: Idealer und realer Verlauf der Gruppenverzögerung als Funktion der Frequenz.

Als die hauptsächlich Limitierung wurde die Abweichung der Gruppenverzögerung von einer linearen Funktion (wie in Abb. 4 dargestellt) identifiziert. Der selbstphasenmodulierte Puls läßt sich dadurch nicht mehr optimal komprimieren und Gl. 3 verliert damit ihre Gültigkeit. Diese Abweichungen werden unter dem Begriff „Dispersion höherer Ordnung“ subsumiert. Durch die Wahl eines geeigneten Prismenmaterials und der Laserwellenlänge kann diese minimiert werden.

Diese Erkenntnis hat zur Entwicklung von Quarzprismen-kompensierten Ti:S-Lasern geführt, die erstmals Pulse im 10 fs-Bereich ermöglicht haben. Sowohl die an der TU Wien gemessenen 10,3 fs [7], als auch die an der Washington State University erreichten 8,5 fs [8] trugen, durch die restliche unkompenzierte Dispersion höherer Ordnung, eine ausgeprägte Phasenmodulation. Die dadurch entstandene Abweichung von einem idealen Puls manifestierte sich in einer Verdopplung des Pulsdauer-Bandbreite-Produkts, bezogen auf den theoretischen Minimalwert.

4. Dispersionskompensation mit Spiegeln

Einer Verringerung der Pulsdauer auf das durch die Bandbreite von Ti:S vorgegebene Limit von 3–4 fs stehen sowohl die Limitierung durch die unkompenzierte Dispersion höherer Ordnung durch das Prismenpaar als auch die endliche Bandbreite der dielektrischen Spiegel entgegen. Eine Lösung beider Probleme bringen die neuartigen breitbandigen, dispersiven Spiegel, die in der Literatur als *chirped mirrors* eingeführt wurden [9]. Bisher hatten dielektrische Standardspiegel lediglich die Aufgabe, einen Laserresonator zu formen. Bei ihrem Design wurde streng darauf geachtet, daß sie eine vernachlässigbare Dispersion haben, um im Femtosekundenbetrieb nicht störend zu wirken. Im Gegensatz dazu weisen dispersive Spiegel nicht nur eine bis zu 50% größere Bandbreite, sondern auch eine wohldefinierte Dispersion auf. Sie lassen sich daher gleichzeitig für Rückkopplung als auch für die Kompensation der Dispersion einsetzen [10]. Solche dispersiven Spiegel wurden erstmals vom Research Institute for Solid State Physics in Budapest und der Technischen Universität Wien entwickelt und zur Dispersionskontrolle in einem Laseroszillator eingesetzt.

Hochreflektierende dielektrische Standardspiegel bestehen aus bis zu zwanzig alternierenden, gleich dicken $\lambda/4$ -Schichten aus Materialien mit hoher und niedri-

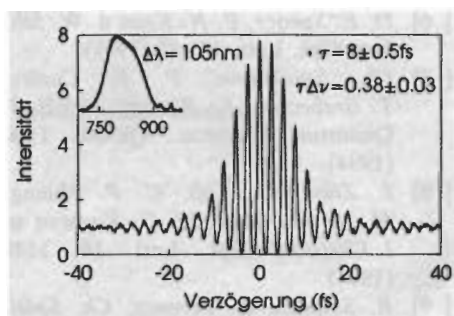


Abb. 5: Autokorrelation und Spektrum (Insert) aus einem Ti:Saphir-Laser mit dispersiven Spiegeln. Aus der gemessenen Autokorrelation kann auf die Impulsdauer von 8 fs geschlossen werden. Aus der spektralen Breite $\Delta\lambda$, Mittenwellenlänge und Pulsdauer wird das Pulsdauer-Bandbreitenprodukt ($\tau \cdot \Delta\nu$) berechnet, welches ein Maß für die Pulsqualität ist (vgl. Text).

ger Brechzahl. Die dispersiven Spiegel bestehen aus bis zu fünfzig Schichten, wobei – für negative GDD – die Schichtdicke während des Herstellungsprozesses so variiert wird, daß die oberen Schichten für die hohen Frequenzen und die unteren Schichten für die niedrigeren hochreflektierend sind. Da die unterschiedlichen Frequenzkomponenten an unterschiedlichen Stellen reflektiert werden, kommt es zu einem Laufzeitunterschied, der einer negativen GDD entspricht. Durch das Design der Schichtstruktur können die Dispersions-eigenschaften des Spiegels in einem großen Bereich frei gewählt werden.

Mit Hilfe dieser Spiegel wurde ein Resonator aufgebaut, der lediglich aus einem dünnen (2 mm) Ti:S-Kristall, den dispersiven Spiegeln und einer Apertur besteht und somit die einfachste Realisierung eines Femtosekundenlasers bildet. In einem Umlauf werden sieben bis acht Reflexionen an den dispersiven Spiegeln benötigt, da der Wert der GDD pro Reflexion begrenzt ist. Entsprechend Gl. 3, wird mit dem Wert von D die Pulsdauer eingestellt, wobei sich D allerdings bei Verwendung der dispersiven Spiegel nur in diskreten Schritten ändern läßt. Um eine feinere Abstufung zu erreichen, wurden verschiedene Spiegel mit unterschiedlichen Dispersionswerten kombiniert, dadurch gelang es, eine Pulsdauer von 8 fs zu erzielen (Abb. 5). Das Pulsdauer-Bandbreiten-Produkt ist – im Gegensatz zu einem prisma-kompensierten Ti:S Laser [7, 8] – mit einem Wert von 0,38 sehr nahe dem theoretischen Minimalwert von 0,32. Diese hervorragende Pulsqualität ist darauf zurückzuführen, daß es keine Dispersion höherer Ordnung gibt.

Neben der Erzeugung der bisher weltweit kürzesten Pulse – direkt aus einem Oszillator – haben spiegel-kompensierte (*mirror dispersion controlled*, MDC) Oszilla-

toren auch den Vorteil, daß sie kompakter und daher auch stabiler aufgebaut werden können. Die Stabilität der Pulsparameter ist für die erzielbare Zeitauflösung in der Spektroskopie genau so wichtig wie die Dauer. Mit Hilfe hochstabiler Pulse aus einem MDC-Oszillator gelang es erstmalig in einem Experiment eine Sub-Femtosekunden-Zeitauflösung zu demonstrieren [12]. Eine weitere Optimierung der dispersiven Spiegel, sowohl in bezug auf Dispersion als auch auf Bandbreite hat das Potential zur Erzeugung von noch kürzeren Pulsen.

5. Ausblick

Mit Hilfe neuer Modenverkopplungstechniken, Lasermaterialien und Dispersionskompensationstechniken gelang es erstmals, reproduzierbare und verlässliche Femtosekundenlaser mit einer bislang unerreichten Pulsdauer zu entwickeln. Da diese Pulse innerhalb der Halbwertsbreite nur noch drei optische Schwingungen ausführen, ergeben sich daraus sowohl für Theoretiker als auch für Experimentatoren eine Reihe von interessanten Fragestellungen. Kann der Puls und seine Ausbreitung weiterhin noch durch Einhüllende und Trägerfrequenz sinnvoll beschrieben werden? Läßt sich die Pulslänge – außerhalb des Resonators – unter die Dauer eines optischen Zyklus reduzieren? Wenn ja, welche neuen Effekte sind aufgrund des quasi-Gleichanteils von einem hochintensiven elektrischen Feld bei der Wechselwirkung mit Materie zu erwarten? Diese und ähnliche Fragen stellen eine große Herausforderung für die Ultrakurzzeitphysik dar. Die bisherigen Resultate und die zu erwartenden Fortschritte geben Anlaß zur Vermutung, daß die Verwendung von Femtosekundenimpulsen ein erweitertes Anwendungsgebiet in Forschung und Entwicklung finden wird.

Danksagung

Wir danken Herrn Prof. Dr. A. J. Schmidt für seine Unterstützung und K. Ferencz für die Herstellung der dispersiven Spiegel. Diese Arbeit wurde durch den Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung in Österreich und den Jubiläumsfonds der Österreichischen Nationalbank unterstützt.

Literatur

- [1] L. E. Hargrove, R. L. Fork u. M. A. Pollack, Appl. Phys. Lett. 5, 4 (1964).

- [2] *F. Krausz, M. E. Fermann, T. Brabec, P. F. Curley, M. Hofer, M. H. Ober, Ch. Spielmann, E. Wintner u. A. J. Schmidt, IEEE J. Quantum Electron. QE-28, 2097 (1992).*
- [3] *E. P. Ippen, Appl. Phys. B B 58, 159 (1994).*
- [4] *A. J. DeMaria, D. A. Stetser u. A. Heynau, Appl. Phys. Lett. 8, 174 (1966).*
- [5] *E. P. Ippen, C. V. Shank u. A. Dienes, Appl. Phys. Lett. 21, 348 (1972).*
- [6] *D. E. Spence, P. N. Kean u. W. Sibbett, Opt. Lett. 16, 42 (1991).*
- [7] *Ch. Spielmann, P. F. Curley, T. Brabec u. F. Krausz, IEEE J. Quantum Electron. QE-30, 1100 (1994).*
- [8] *J. Zhou, G. Taft, C. P. Huang, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn u. I. Christov, Opt. Lett. 19, 1149 (1994).*
- [9] *R. Szipöcs, K. Ferencz, Ch. Spielmann u. F. Krausz, Opt. Lett. 19, 202 (1994).*
- [10] *Interferometer auf Dünnschichtbasis als Spiegel und zur Dispersionskompensation über eine begrenzte Bandbreite wurden bereits Mitte der 80er Jahre eingesetzt, vgl. J. Heppner u. J. Kuhl, Appl. Phys. Lett. 47, 453 (1985).*
- [11] *A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann, F. Krausz u. R. Szipöcs wird veröffentlicht in Opt. Lett.*
- [12] *Ch. Spielmann, R. Szipöcs, A. Stingl u. F. Krausz, Phys. Rev. Lett. 73, 2308 (1994).*