



50 JAHRE LASER

Die kürzesten Pulse der Welt

Laserpulse, die nur wenige Attosekunden dauern, ermöglichen „Schnappschüsse“ von ultraschnellen elektronischen Prozessen in Atomen.

Martin Schultze und Reinhard Kienberger

Wie schnell bewegt sich ein einzelnes Elektron beim Photoeffekt durch einen Festkörper? Wie „instantan“ reagieren Elektronen auf die Ionisation von Atomen oder Molekülen? Lässt sich die Dynamik von Wellenpaketen in Molekülen und damit das Ausbilden einer chemischen Bindung gezielt steuern? Nur mit den kürzesten jemals erzeugten Laserpulsen kann die Ultrakurzzeitphysik diese und weitere Fragen beantworten.

Es ist schon bemerkenswert, dass die optische Nachrichtenübertragung ein gutes Jahrhundert lang hinter den Radiowellen und der Elektronik zurückstehen musste. Licht musste ja nicht erst erfunden – eigentlich „gefunden“ – werden, es war ja da, bedingt durch unsere Fähigkeit, elektromagnetische Strahlung mit Wellenlängen zwischen 380 und 780 nm sehen zu können. Insbesondere seit der Beherrschung des Feuers diente Licht als Signal zur Informationsübertragung über weite Distanzen: Leuchttürme, Rauchzeichen, nautische Signalfahnen, die optische Telegraphie mit beweglichen Signalarmen, die bereits 1813 die 225 Kilometer zwischen Metz und Mainz in wenigen Minuten überbrückte, sind nur einige der eingesetzten Methoden. Just nach Erfindung der Glühbirne durch Thomas Alva Edison wies Heinrich Hertz 1886 die von James Clerk Maxwell 1864 postulierten Radiowellen nach. Da die Schaltraten der Glühbirnen viel geringer waren als von Radioquellen und keine Transmissionssysteme für Licht mit niedrigen Verlusten zur Verfügung standen, etablierte sich binnen kurzem die Signalübertragung über elektrische Kabel oder Radiosignale. Die spektakulären Fortschritte bei der Entwicklung von optischen Fasern mit extrem niedrigen Verlusten (Nobelpreis 2009 für Charles Kao) sowie von Halbleiter-basierten inkohärenten und kohärenten Lichtquellen (LEDs und Diodenlaser) führten Ende des letzten Jahrhunderts zur Rückkehr und zum Siegeszug der optischen Nachrichtenübertragung. Diese Quellen ermöglichen es, ausreichend kurze Pulse zu erzeugen, um extrem hohe Schalt- und Transmissionsraten erzielen zu können.

Die Bedürfnisse der Nachrichtentechnik haben maßgeblich die Entwicklung von Lichtquellen kurzer Pulsdauer getrieben. Forscher aus der Atom- und Molekülphysik sowie der Optik hatten einen Anteil an dieser Entwicklung und profitierten von ihr. Ab dem Un-



Ultrakurze Pulse weisen ein sehr breites Spektrum auf. Daher erscheint in diesem Experiment das Licht im Wesentlichen weiß. Das an Spiegeln reflektierte Streulicht schimmert rötlich (rechts) und das transmittierte Licht bläulich (links).

terschreiten der Pikosekunden-Schwelle für die Pulsdauern hat sich daraus ein eigenes Forschungsfeld, die Ultrakurzzeitphysik, entwickelt. Lichtpulse ultrakurzer Dauer sind ein Schlüsselwerkzeug, um Prozesse im Mikrokosmos zu untersuchen – für die „Femtosekunden-Chemie“ erhielt Ahmed Zewail 1999 den Nobelpreis. Die Gesetze der Quantenmechanik diktieren die Zeitdauer, auf der sich Abläufe in Atomen, Molekülen

KOMPAKT

- Modengekoppelte Festkörperlaser erlauben es in Verbindung mit der „chirped-pulse amplification“, Femtosekunden-Pulse mit Energien von einigen Millijoule zu erzeugen.
- Treffen solche Pulse auf Materie, können über die Erzeugung hoher Harmonischer kohärente Röntgenpulse entstehen, die nur 80 Attosekunden dauern.
- In Pump-Probe-Experimenten lassen sich mit diesen Pulsen ultraschnelle Prozesse in Atomen, Molekülen und Festkörpern untersuchen.

Dr. Martin Schultze, Department für Physik, Ludwig-Maximilians-Universität, Am Coulombwall 1, 85748 Garching, und Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Straße 1, 85748 Garching; Prof. Dr. Reinhard Kienberger, MPI für Quantenoptik, Garching, und Physik Department, Technische Universität München, James-Frank-Straße, 85748 Garching

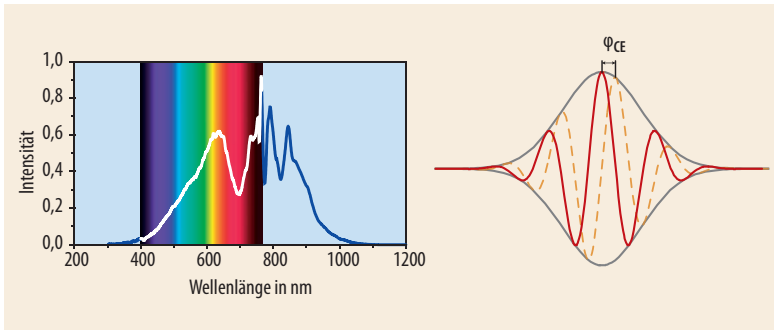


Abb. 1 Das Spektrum eines Laserpulses, der aus nicht wesentlich mehr als einer Oszillation des elektrischen Feldes besteht, umfasst mehr als eine Oktave, wie der Vergleich mit dem Empfindlichkeitsbereich unseres Auges zeigt (links). Bei

so kurzen Pulsen charakterisiert die Phase φ_{CE} zwischen der Intensitätseinhüllenden und der Trägerwelle (CE für carrier-envelope) die Wellenform und damit ihre Wirkung im Rahmen nichtlinearer Prozesse.

und Festkörpern abspielen. Elektronische Übergänge in Atomen können beispielsweise auf einer Skala von Femto- oder Attosekunden stattfinden, wobei sich eine Attosekunde (10^{-18} s) zu einer Sekunde etwa so verhält wie eine Sekunde zum Alter des Universums.

Aus der Fotografie wissen wir, dass ein Bild eines bewegten Motivs nur dann scharf wird, wenn die Belichtungszeit deutlich kürzer als die Bewegungsdauer ist. Die zeitliche Auflösung der genannten elektronischen Prozesse erfordert daher Pulsdauern unter einer Femtosekunde. Dies ist gar nicht so einfach, denn die Natur schenkt uns nichts: Elektromagnetische Pulse und somit auch Lichtpulse bestehen aus vielen Wellen unterschiedlicher Wellenlänge, die sich so aufaddieren, dass ein zeitlich begrenztes Signal, ein Puls, entsteht. Die Einhüllende, innerhalb derer das elektrische Feld mit der Trägerfrequenz oszilliert, bestimmt die Dauer diese Pulse (**Abb. 1**). Damit sich der Puls im Raum ausbreiten kann, muss die Trägerwelle zumindest eine Oszillation ausführen, sodass die Pulsdauer nach unten begrenzt ist.¹⁾ Bei einer gängigen Laserwellenlänge von 750 nm und damit einer Oszillationsperiode von etwa 2,5 fs erzielt man mit verstärkten Laserpulsen bei dieser Zentralwellenlänge heute eine Dauer von 3,3 fs. Viel mehr ist so nicht zu holen. Um noch kürzere Pulse zu erzeugen,

1) Würde das zeitliche Integral über den gesamten Feldverlauf eines Pulses nicht verschwinden, bliebe ein konstantes, in Raum und Zeit unendlich ausgedehntes Feld übrig. Das ist mit der Energieerhaltung nicht vereinbar.

sind kürzere Wellenlängen unter 20 nm nötig, die im Extrem-Ultraviolett (XUV) oder im Röntgenbereich liegen. Leider macht es uns die Natur hier wiederum nicht leicht: Für diese Wellenlängen existieren keine Materialien, die sich direkt als Lasermedien eignen. Neben aufwändigen Methoden wie Freie-Elektronen-Laser (FEL), also Großanlagen mit mehreren Hundert Metern Ausdehnung, kann kohärentes Licht durch eine nichtlineare Wellenlängenkonversion von sichtbaren Laserpulsen entstehen. Diese Erzeugung hoher Harmonischer (**Abb. 2**) bietet die Möglichkeit, Attosekundenpulse zu generieren. Bevor wir uns dieser Methode widmen, konzentrieren wir uns aber auf die Entstehung von ultrakurzen Laserpulsen mit knapp mehr als einem Oszillationszyklus der Trägerwelle.

Breites Spektrum, kurze Pulse

Laserpulse können sehr kurz werden, wenn sie ein sehr breites Spektrum besitzen. Bei der hohen Frequenz sichtbaren Lichts in der Größenordnung von Petahertz genügt bereits eine spektrale Breite von wenigen Terahertz, um Pulsdauern unter einer Pikosekunde zu erreichen. Dies lässt sich mittlerweile auf ganz unterschiedlichen Wegen realisieren. Weit verbreitet sind gütegeschaltete Systeme (Q-Switch Lasers für „Quality Switch“). Dabei ist ein Element im Laserresonator, das die Resonatorgüte aktiv oder passiv beeinflusst, dafür verantwortlich, dass der Laser gepulste Strahlung emittiert. Um noch kürzere Pulse zu erzeugen, hat sich eine Reihe technischer Ansätze etabliert, bei denen im Laserresonator verschiedene Wellenlängen synchron schwingen. Wenn bei diesen „modengekoppelten“ Lasern die Schwingungen der verschiedenen, vom Verstärkermedium unterstützten longitudinalen Resonatormoden eine konstante Phasenbeziehung haben, entsteht ein kurzer Puls. Dieser Puls ist umso kürzer, je mehr Frequenzen der Resonator zu koppeln vermag.

Nachdem zunächst Farbstofflaser die Kurzpulstechnik dominiert haben, dienen heutzutage bei praktisch allen Kurzpulslasern Festkörper, also Gläser und Kristalle, als Verstärkungsmedium. Im sichtbaren und na-

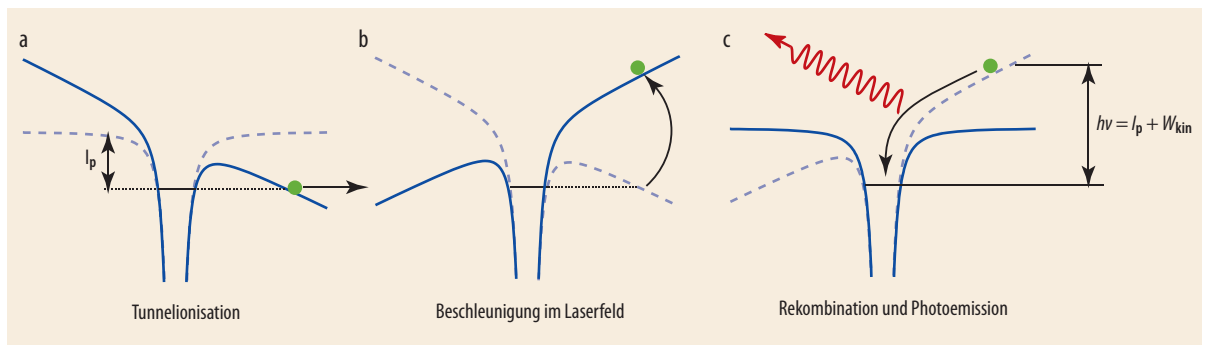


Abb. 2 Das von Paul Corkum 1993 aufgestellte „Drei-Stufen-Modell“ beschreibt, wie sich mit intensiven Laserpulsen hohe Harmonische erzeugen lassen. Das Feld des Lasers kann das Coulomb-Potential, welches das Elektron an den

Kern bindet, zunächst unterdrücken, sodass das Elektron aus dem Atom „tunnelt“ (a) und als freier Ladungsträger im Laserfeld beschleunigt wird (b). Da das elektrische Feld einmal pro Periode sein Vorzeichen wechselt, kehrt das Elektron

mit einer endlichen Wahrscheinlichkeit zum Kern zurück und kann dort strahlend rekombinieren (c). Die maximale Photonenenergie ist direkt proportional zur kinetischen Energie des Elektrons und kann über ein keV erreichen.

hen Infrarotbereich hat sich mit Titanionen dotierter Saphir ($\text{Ti}^{3+}:\text{Sa}$) als Lasermedium durchgesetzt. $\text{Ti}:\text{Sa}$ -Laser bieten neben der einfachen Handhabbarkeit von Festkörperlasern zwei entscheidende Vorteile: Sie lassen sich zum einen mit kommerziell weitverbreiteten frequenzverdoppelten Infrarotlasern pumpen und haben zum anderen eine vergleichsweise hohe Verstärkungsbandbreite. Um diese Bandbreite voll auszunutzen, gilt es, möglichst viele Moden im Resonator zu koppeln, um die Propagation eines möglichst kurzen Pulses gegenüber der Verstärkung kontinuierlicher Strahlung zu begünstigen. Neben dispersionskorrigierenden Elementen im Resonator sind dazu hauptsächlich sättigbare Absorber und auf dem Kerr-Effekt beruhende Konzepte in Gebrauch.

Sättigbare Absorber sind Halbleiter mit der besonderen Eigenschaft, sprunghaft ihre Reflektivität zu steigern, wenn die einfallende Strahlung eine bestimmte Intensität überschreitet. Ein solches Element im Laserresonator verbessert deshalb die Resonatorgüte selektiv für kurze Pulse und stellt das Modenkoppeln sicher. Eine andere verbreitete Technik, die sich auch mit sättigbaren Absorbern kombinieren lässt, ist das Kerr-Linsen-Modenkoppeln, das den intensitätsabhängigen Brechungsindex (Kerr-Effekt) bestimmter Materialien ausnutzt. Je kürzer, also intensiver ein eintreffender Puls im Material ist, desto stärkere Selbstfokussierung erfährt er. In Verbindung mit einer Blende stellt ein solches Material im Laserresonator ebenfalls sicher, dass kurze Pulse bei der Verstärkung bevorzugt werden. In Kombination mit geschirpten Spiegeln, die nach 1990 eingeführt wurden, gelang es mit dieser Methode, erstmals Pulsdauern unter 10 fs zu erreichen. Geschirpte Spiegel sind so beschichtet, dass verschiedene Wellenlängen unterschiedlich tief in die Spiegelbeschichtung eindringen. „Chirp“, englisch für „zwitschern“, bezieht sich darauf, dass sich Frequenzen – wie beim Gesang der Vögel – instantan ändern. Ein einfallender Lichtpuls, dessen spektrale Komponenten asynchron („geschirped“) sind, lässt sich so auf die minimale, durch sein Spektrum erlaubte Pulsdauer komprimieren. Mit solchen Techniken sind heute Oszillatoren möglich, deren optisches Spektrum beinahe eine ganze Oktave umfasst, sodass also das hochfrequente Ende des Spektrums doppelt so schnell schwingt wie das niederfrequente. Im hier besprochenen Beispiel reicht das Spektrum von 450 bis 1050 nm, was eine Pulsdauer von rund fünf Femtosekunden ergibt.

Modengekoppelte Laser sind für die Forschung aber nicht nur interessant, weil sie ultrakurze Laserpulse erzeugen. Der Laserresonator emittiert Pulse mit einer Wiederholrate, die der inversen Umlaufzeit innerhalb des Resonators entspricht und damit von seiner Länge abhängt. Typische Wiederholraten liegen bei 100 MHz. Das zugehörige Spektrum ist nun nicht kontinuierlich, sondern besteht aus diskreten exakt äquidistanten Linien, deren Abstand der Wiederholrate entspricht. Da diese im Vergleich zur spektralen Bandbreite sehr klein ist, sieht das Spektrum in **Abb. 1** kontinuierlich aus – um die Linien auflösen zu können, müsste das Spek-

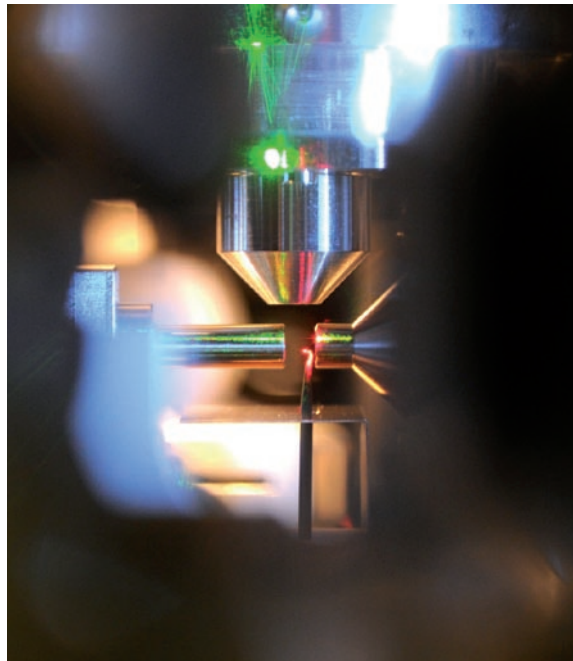


Abb. 3 Blick in eine Vakuumkammer für „pump-probe“-Experimente an Gasen: In der Vertikalen wird die Energie der befreiten Elektronen gemessen, in der Horizontalen werden die ionisierten Atomrümpfe nachgewiesen. Aus der schwarzen Düse (unten) strömt das Gas in die Wechselwirkungsregion.

rometer eine relative Auflösung von 10^{-7} haben. Eine Vielzahl von Experimenten in der hochaufgelösten Spektroskopie macht sich diese äquidistanten Linien, den Frequenzkamm, zunutze, für dessen Entwicklung Theodor Hänsch 2005 den Nobelpreis erhielt.²⁾ Eine technologisch bedeutsame Anwendung hat der Frequenzkamm auch bei der Erzeugung ultrakurzer Pulse selbst gefunden: Mithilfe einer Technik, die auf der Messung von Differenzfrequenzen zwischen den einzelnen Kammlinien beruht, lässt sich sicherstellen, dass jeder einzelne Laserpuls eine identische Wellenform aufweist. Warum das insbesondere bei Lichtpulsen mit einer Dauer von nur wenigen Feldzyklen von Bedeutung ist, verdeutlicht **Abb. 1**.

Moderne Kurzpulsoszillatoren erzeugen Pulsenergien von wenigen Nanojoule, geeignet fokussiert erreichen sie also Intensitäten von ca. 10^{11} W/cm^2 . Das ist zu gering, um zu deutlichen nichtlinearen Effekten oder gar zur Ionisierung von Materie zu führen (die Ionisationsschwelle der Edelgase liegt im Bereich von 10^{14} W/cm^2). Um kurze Pulse mit Intensitäten oberhalb dieser Schwelle zu erzeugen, bedarf es zusätzlichen Aufwands. Bei der „chirped-pulse amplification“ werden zunächst die spektralen Komponenten des Laserpulses gegeneinander verzögert, um ihn so zeitlich zu strecken und die Spitzenintensität gering zu halten. Dann verstärkt ein weiterer $\text{Ti}:\text{Sa}$ -Kristall den Puls. Hierbei muss die Wiederholrate des Oszillatorpulses durch Selektion („pulse picking“) deutlich auf einige Kilohertz reduziert werden, da bei einer millionfachen Verstärkung die auftretende thermische Energie nicht mehr problemlos aus dem Kristall abgeführt werden kann. Nach der Verstärkung müssen Gitter- oder Prismenkompressoren oder geschirpte Spiegel

2) vgl. das Interview mit Theodor Hänsch in diesem Heft.

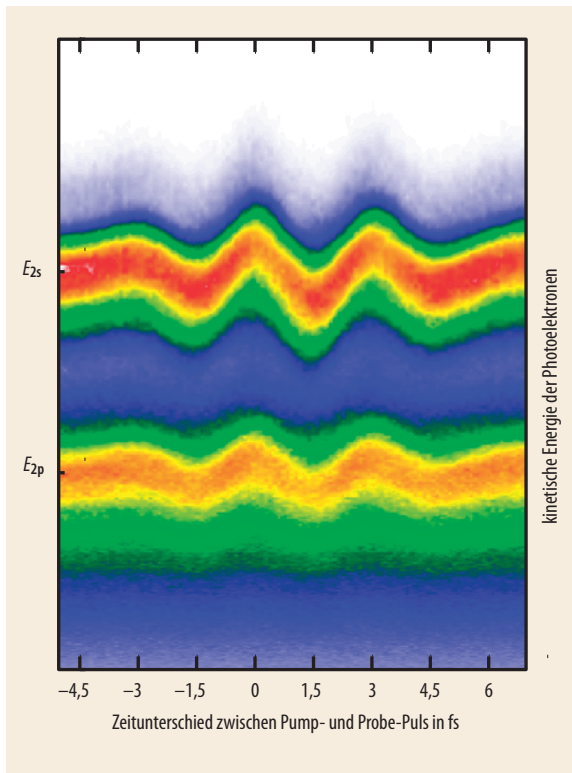


Abb. 4 Streaking-Spektrogramme entstehen, wenn ein as-Röntgenpuls (*Pump*) Photoelektronen aus Atomen entfernt, während diese ein sichtbarer Laserpuls (*Probe*) beleuchtet. Die vom Röntgenpuls befreiten Elektronen verlassen das Atom mit einer charakteristischen kinetischen Energie. Je nach Zeitverzögerung zwischen den beiden Pulsen modifiziert das elektrische Feld des Probe-Pulses die Elektronenenergie unterschiedlich stark. Rastert man den Probe-Puls mit dem Pump-Puls schrittweise ab und misst für jeden Schritt die Photoelektronenergie (Kreuz-Korrelations-Messung), ergibt sich ein Abbild des Verlaufs des elektrischen Feldes, ein „Oszilloskopbild“ des Laserpulses. Farblich kodiert ist die Zahl der Photoelektronen. Eine genauere Analyse zeigt eine Verzögerung von 20 as zwischen den Signalen der 2s- und 2p-Elektronen in Neon.

den zuvor eingeführten Zeitunterschied der einzelnen Wellenlängenkomponenten wieder kompensieren, um einen kurzen Laserpuls zu erhalten.

Leider reduziert der Verstärkungsprozess aber nicht nur die Wiederholrate, sondern engt wegen des natürlichen Verstärkungsfensters des Lasermediums auch die spektrale Bandbreite des Laserlichtes stark ein. Um Laserpulse nahe am Ein-Zyklus-Limit zu erhalten, muss dem Ausgang eines solchen Verstärkers deswegen ein System folgen, das zusätzliche Wellenlängenkomponenten auf beiden Seiten des Spektrums erzeugt. Die dazu in Gebrauch befindlichen Systeme beruhen auf dem nichtlinearen Prozess der Selbstphasenmodulation, bei welchem das Spektrum hochintensiver Laserpulse in einem Edelgas auf den oben erwähnten Bereich von 450 bis 1050 nm verbreitert wird. Durch abermalige Verwendung von geeichten Spiegeln erreichen moderne KurzpulsLasersysteme schließlich Pulsenergien von Millijoule bei Pulsdauern von weniger als 3,5 fs. Das elektrische Feld schwingt in einem solchen Puls zwar nur etwa 1,5-mal, fokussiert erreicht es aber eine Intensität bis 10^{18} W/cm², der keine Materie widerstehen kann.

Nutzt man solche Pulse, um hohe Harmonische zu erzeugen (Abb. 2), fällt ihre aus nur wenigen Wellenzyklen bestehende Struktur besonders ins Gewicht. Bei geeigneter Wahl der Phase zwischen Intensitätseinhüllender und der Schwingung der Trägerwelle ergeben sich Wellenformen mit hohem Feldstärkeunterschied zwischen benachbarten Maxima des Feldes. Da jeder einzelne Halbzyklus zur Emission von hohen Harmonischen führt, leuchtet es ein, dass der intensivste Halbzyklus auch die Photonen höchster Energie erzeugt. Filtert man diese Strahlung aus dem entstehenden Spektrum heraus, erhält man kohärente Röntgenpulse einer Dauer, die nur einem Bruchteil der Halbzyklusdauer des eigentlichen Laserpulses entspricht. Auf diese Weise entstanden die kürzesten je erzeugten Lichtblitze: Sie dauern nur 80 Attosekunden bei einer Zentralwellenlänge von 12 nm und enthalten etwa 10^8 Photonen pro Puls [1].

Der schnellste Fotoapparat

Attosekundenpulse erlauben die „Fotografie“ der schnellsten bekannten Prozesse im Mikrokosmos im Rahmen von „Pump-Probe“-Experimenten (Abb. 3). Ein erster Laserpuls startet dabei den zu untersuchenden Prozess, ein zweiter Laserpuls fragt nach einem definierten Zeitintervall seine Entwicklung ab. Aus der Aneinanderreihung vieler solcher Messungen mit veränderlichem zeitlichen Abstand der beiden Pulse lässt sich die Zeitentwicklung des untersuchten Vorgangs rekonstruieren.

Einerseits gelang es damit, vorhergesagte oder bekannte Prozesse in Echtzeit aufzulösen, andererseits wurden neue ultrakurze Phänomene gemessen, deren physikalischer Ursprung noch nicht verstanden ist. Zur ersten Kategorie zählt die Tunnelionisation, die nach einer Erklärung von Leonid Keldysh jeweils zum Zeitpunkt eines Feldmaximums eines Laserpulses stattfindet und somit zu einem stufenweisen Ionisationsverlauf führt [2]. Ebenso gelang es, die aus der spektralen Breite bekannte Zeitdauer eines Auger-Zerfalls in Krypton zu verifizieren [3] – wenn mehrere Prozesse stufenweise ablaufen, lässt sich nur mit dieser Methode feststellen, was wirklich vorgeht. In die zweite Kategorie fallen Transportmessungen an Elektronen in einem Festkörper. Bei der Ionisation von Wolfram kommen demnach Elektronen aus der 4f-Schale bzw. dem Leitungsband mit einer Zeitdifferenz von ca. 100 as an der Oberfläche an [4]. Ist dies ein reiner Transporteffekt oder Folge der Bandstruktur? Wie schnell bewegt sich ein einzelnes Elektron in einem Kristall? Lässt sich die Elektronik mithilfe dieses Wissens beschleunigen? Ähnlich unbekannt sind die exakten Abläufe bei der Elektronendynamik in Gasen und Molekülen: Wie „instantan“ reagieren Elektronen auf Ionisation? Gemäß dem Motto „Natura non facit saltus“ (Die Natur macht keine Sprünge) benötigt jede Reaktion eine gewisse Zeit. Dies war seit Aristoteles ein Grundprinzip der antiken Naturwissenschaften. Doch was bedeutet eigent-

lich „instantan“? Kürzlich wurde bei der Ionisation von Neon eine Verzögerung von etwa 20 as zwischen den 2s- und 2p-Elektronen gemessen [5] (Abb. 4). Dies ist übrigens das kürzeste jemals gemessene Zeitintervall. Hier eröffnet sich die faszinierende Möglichkeit, die Dynamik von Wellenpaketen in Molekülen zu verfolgen und damit vielleicht sogar chemische Bindungen zu steuern. Auch die momentan boomende molekulare Elektronik könnte von ultrakurzen Pulsen profitieren, wie auch andere Technologien. Zu klären, wie der Ladungstransfer in einer Photozelle verläuft, kann dabei helfen, schnellere und effizientere Prozesse auszunutzen. Und neue Einsichten für die Halbleiterelektronik sind zu erwarten, wenn es gelingt, die Bandlücken-Übergänge in Halbleitern zeitlich aufzulösen. Und schließlich stellt sich die Frage, wie genau die ultraschnelle Ladungsmigration in Biomolekülen, die den Energie- und Informationstransfer in lebenden Organismen bestimmt, abläuft. Auch hier lässt die Ultrakurzzeitphysik spannende Antworten erwarten.

Literatur

- [1] E. Goulielmakis et al., *Science* **320**, 1614 (2008)
- [2] M. Uiberacker et al., *Nature* **446**, 627 (2007)
- [3] R. Kienberger et al., *Nature* **427**, 817 (2004)
- [4] A. L. Cavalieri et al., *Nature* **449**, 1029 (2007)
- [5] M. Schultze et al., erscheint in *Science*

DIE AUTOREN



Reinhard Kienberger (FV Kurzzeitphysik und FV Quantenoptik/ Photonik, rechts) ist Professor für Experimentalphysik an der TU München und Leiter einer Nachwuchsgruppe für Attosekundendynamik am MPI für Quantenoptik in Garching. Er promovierte 2002 an der TU Wien bei Ferenc Krausz. 2004 verbrachte er ein Forschungsjahr am Stanford Linear Accelerator Center in Kalifornien. 2006 erhielt er den Sofja Kovalevskaja-Preis der Alexander von Humboldt-Stiftung, 2008 einen ERC Starting Grant. Reinhard Kienberger ist Vater von drei Kindern, mit denen er sich gerne in den Alpen aufhält.

Martin Schultze (FV Kurzzeitphysik) studierte an der ETH Zürich Physik und promovierte 2008 an der LMU München bei Ferenc Krausz. Seitdem ist er Postdoc in der Abteilung für Attosekundenphysik am MPI für Quantenoptik in Garching. Martin Schultze hält sich in seiner Freizeit gerne südlich der Alpen auf.