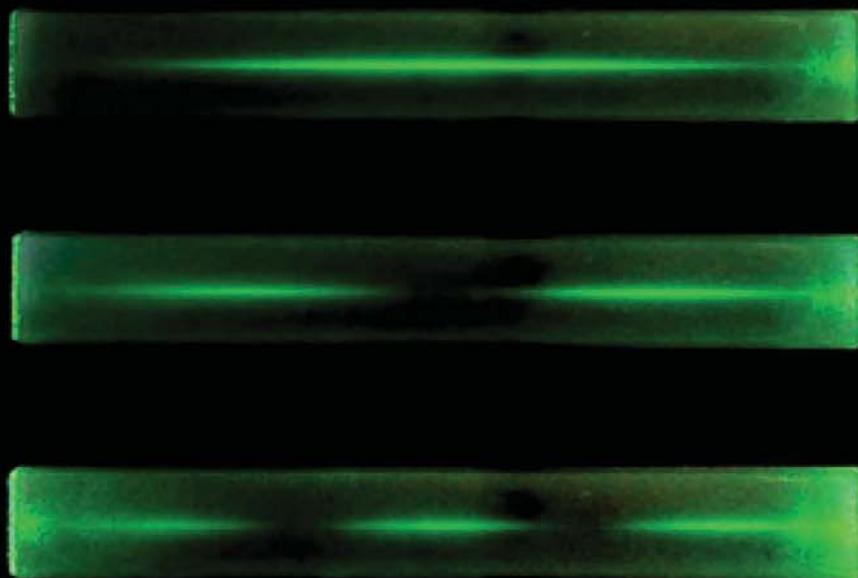


Christoph Schäfer

**Grundlegende experimentelle
Untersuchung und theoretische
Modellierung kaskadierter $\chi^{(2)}$ -Prozesse
und deren Anwendung zur Realisierung
neuartiger modengekoppelter Laser**



Cuvillier Verlag Göttingen
Internationaler wissenschaftlicher Fachverlag



**Grundlegende experimentelle Untersuchung und
theoretische Modellierung kaskadierter $\chi^{(2)}$ -Prozesse
und deren Anwendung zur Realisierung neuartiger
modengekoppelter Laser**





**Grundlegende experimentelle Untersuchung und
theoretische Modellierung kaskadierter $\chi^{(2)}$ -Prozesse
und deren Anwendung zur Realisierung neuartiger
modengekoppelter Laser**

Dissertation

Christoph Schäfer

Vom Fachbereich Physik der Technischen Universität Kaiserslautern
zur Verleihung des akademischen Grades „Doktor der
Naturwissenschaften“ genehmigte Dissertation

Betreuer: *Dr. habil. J. L'huillier*
Zweitgutachter: *Prof. Dr. R. Beigang*

Datum der wissenschaftlichen Aussprache: 24. Oktober 2012

D 386



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

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

1. Aufl. - Göttingen: Cuvillier, 2012

Zugl.: (TU) Kaiserslautern, Univ., Diss., 2012

978-3-95404-287-6

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2012

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2012

Gedruckt auf säurefreiem Papier

978-3-95404-287-6



Abstract:

Experimental investigation and theoretical modelling of cascaded $\chi^{(2)}$ -processes and their application to novel mode-locked lasers

A great variety of passive mode-locking techniques permit us to produce ultrashort picosecond or femtosecond laser pulses. The majority of techniques developed so far can be classified into two basic groups: The first group is based on saturable absorption, a property that can be obtained with specific dyes or with semiconductors. The second group is based on the nonlinear phase shift (NLP), provided by the optical Kerr-Effect, which can be exploited in several ways to mimic the action of a saturable absorber. Despite their individual benefits, all of these techniques have serious drawbacks, which are usually more pronounced for high average power lasers operating in the picosecond regime. For example, Kerr lens mode-locking (KLM) is generally not self-starting and requires a carefully designed cavity operating close to the stability limit. In addition, its application to picosecond lasers is not straightforward, as it tends to be less stable due to the weak third order nonlinearities of typical Kerr media and the lower peak power compared to femtosecond lasers. A major intrinsic drawback of semiconductor saturable absorber mirrors (SESAM's) is their residual absorption due to nonsaturable losses. To prevent a significant amount of heat, dissipated in the semiconductor layer structure, low modulation depths of only a view tenth of a percent are usually employed. This results in long pulse durations for high average power picosecond lasers.

Previously it has been recognized that those difficulties can be overcome, if *cascaded second order nonlinearities*, the aimed sequence of two second order nonlinear processes, are considered. The easiest and most widely studied cascaded second order process is phase-mismatched *second harmonic generation* (SHG). Due to a periodic energy exchange between the fundamental and the second harmonic wave, a kerr-like NLP is imprinted on the fundamental wave during the mismatched process. As one of its outstanding features, the phase shift per irradiance can be extraordinary large, even for quadratic media with low nonlinear coefficients of only a picometer per volt. Not only its magnitude, but also its sign can easily be adjusted by the phase-mismatch parameter, which offers additional flexibilities in designing ultrashort laser sources. Furthermore, the low residual absorption at the fundamental wave enables operation at high average power.

The subject of this thesis is the development of novel passive mode-locking techniques on the basis of phase-mismatched SHG. To demonstrate their capabilities for high average power solid-state lasers while keeping the benefits of a well-established laser technology, the active medium Nd:YVO₄ and its optimized pumping at 888 nm has been chosen.

In a first step, the NLP itself is investigated, which is imprinted on a picosecond 1064 nm probe beam arising from the cascade process in phase-mismatched lithium triborate (LBO), cut for type I temperature-tuned noncritical phase-matching. Using a fully automated, com-



puter controlled z-scan setup, the NLP is measured highly resolved in dependence of the phase-mismatch parameter. Excellent agreement with theoretical predictions based on the coupled wave equations of nonlinear optics has been observed. Additionally, parameter areas have been verified, where the NLP strongly deviates from a Kerr-like behavior and its accurate modelling by simply assuming an effective refraction index coefficient is not possible.

To achieve laser mode-locking, the NLP has to be transformed into nonlinear losses. In this thesis two basic different techniques are applied:

The first technique exploits the nonlinear wave front distortion of the fundamental laser beam, resulting in self-focusing or self-defocusing action. Inside of a laser cavity power dependent modesize variations are generated, that can be transformed into amplitude modulations in combination with suitable positioned intracavity hard or soft apertures. This *parametric Kerr lens mode-locking* (PKLM) was first demonstrated by Cerullo et al. in 1995. However, only a small number of mode-locked lasers using the PKLM technique have been demonstrated to date, and the capabilities for high average power mode-locked lasers have not yet been exploited. Furthermore, in the majority of cases, the authors employ a more complicated hybrid scheme based on the parametric Kerr lens as well as the *nonlinear mirror* technique [1] to ensure stable performance. In this thesis a purely soft-aperture PKLM mode-locked laser will be demonstrated, providing self-starting and longterm reliable cw mode-locking. A high average output power up to 15.4 W at 10.8 ps pulse duration and short pulses down to 5.7 ps at 11.4 W have been achieved. Crucial guidelines concerning the correct choice of SHG-mismatch as well as the optimum overlap ratio between lasermode and pumpbeam for optimum soft aperture performance are extracted from extensive investigations. These empiric guidelines are further confirmed by detailed numerical calculations.

The second technique is based on the fact that a mismatched type I SHG process can also induce a intensity dependent change of the fundamental wave's polarization state. Provided that the LBO crystal is surrounded by two polarizers and its principle axes are appropriately oriented, a simple arrangement with a nonlinear transmission coefficient can be realized. This basic effect has first been predicted in 1996 by Saltiel et al., but its application for laser mode-locking was only once demonstrated to a flashlamp pumped Nd:YAG laser. To the best of my knowledge, the first diode pumped laser, cw mode-locked using the nonlinear polarization rotation technique via mismatched type I SHG is presented in this thesis. On the basis of the Jones-vector formalism of optics detailed analytical expressions will be derived, exactly describing the mode-locking drivingforce. From these equations crucial conditions are deduced for the first time concerning the nonlinear crystal's and also the gain medium's properties. Self-starting and long-term reliable mode-locking, providing very short pulses down to 2.7 ps at 9.9 W and high average output powers up to 20.6 W at 7.3 ps pulse duration have been achieved. An excellent agreement with the theoretical formalism has been observed.

The results of this thesis clearly demonstrate that second order cascading is a high potential technology for present and future high-power ultrashort laser sources.



Kurzzusammenfassung:

Eine Vielzahl passiver Modenkopplungsverfahren erlauben uns heute ultrakurze Laserimpulse im Pikosekunden- oder Femtosekundenbereich zu erzeugen. Die Mehrzahl dieser Verfahren lässt sich vereinfacht in zwei Gruppen einteilen: Die erste Gruppe basiert auf sättigbarer Absorption, eine Eigenschaft, die bestimmte Farbstoffe oder Halbleitermaterialien aufweisen. Die zweite Gruppe nutzt die nichtlineare Phasenverschiebung (NLP), induziert durch den optischen Kerr-Effekt, welche auf vielfältige Weise umgewandelt werden kann, um das Prinzip eines sättigbaren Absorbers nachzuahmen. Trotz ihrer individuellen Vorteile zeigen alle Verfahren Schwachstellen, deren Tragweite im Besonderen für Pikosekunden-Laseroszillatoren hoher mittlerer Leistung zum Vorschein kommt. Die Kerr-Linsen Modenkopplung (KLM) zum Beispiel ist im Allgemeinen nicht selbststartend und setzt hohe Anforderungen an das Laserresonatordesign. Für Pikosekundenlaser erweist sich die KLM zumeist als nicht stabil infolge der niedrigen nichtlinearen Koeffizienten typischer Kerr-Medien und der im Vergleich zu Femtosekundenlasern niedrigeren Impulsspitzenleistung. Einer der Nachteile sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel (SESAM) ist die durch nichtsättigbare Verluste in der Halbleiterabsorberschicht deponierte Strahlungsleistung. Um einen schädigenden Wärmeeintrag zu verhindern, kommen daher SESAM's mit niedrigen Modulationstiefen von meist weniger als einem Prozent zum Einsatz. Sehr lange zeitliche Impulsdauern sind die Folge.

Neuartige optisch nichtlineare Phänomene müssen daher betrachtet werden, die sowohl hohe und ultraschnelle Verlustmodulationen bei gleichzeitig vernachlässigbaren linearen Absorptionsverlusten gewährleisten. Ein vielversprechender Ausgangspunkt bildet das *second order cascading*, die sukzessive Abfolge zweier nichtlinearer Prozesse zweiter Ordnung. Die einfachste und am häufigsten verwendete Variante eines kaskadierten Prozesses zweiter Ordnung ist die phasenfehlangepasste *second harmonic generation* (SHG). Infolge einer periodischen An- und Abregung der zweiten Harmonischen erfährt die Fundamentalwelle eine NLP durch den phasenfehlangepassten SHG-Prozess. Die außergewöhnlich hohe Phasenverschiebung pro Intensität, selbst für Materialien mit niedrigen nichtlinearen Koeffizienten von weniger als einem Pikometer pro Volt, ist dabei nur eine der herausragenden Merkmale.

Gegenstand dieser Arbeit ist die Entwicklung neuer Modenkopplungsverfahren auf der Basis phasenfehlangepasster SHG. Um das Potenzial dieser Technologie im Besonderen für Laseroszillatoren mit hoher mittlerer Ausgangsleistung zu demonstrieren, wurde das Lasermaterial Nd:YVO₄ sowie dessen optimierte Anregung bei 888 nm verwendet.

In einem ersten Schritt erfolgt zunächst die detaillierte Charakterisierung der NLP eines 1064 nm Probestrahls, induziert durch einen phasenfehlangepassten Typ I SHG-Prozess in Lithiumtriborat (LBO). Ein vollautomatisierter Z-Scan-Messaufbau ermöglichte hochaufgelöste Messungen der NLP in Abhängigkeit der Phasenfehlanpassung. Eine exzellente Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen der NLP auf Basis der gekoppelten Amplitudengleichungen der nichtlinearen Optik wird verzeichnet. Des Weiteren werden Parameterbereiche

identifiziert, für welche die NLP signifikant von einem typisch Kerr-ähnlichen Verhalten abweicht und eine vereinfachte Beschreibung durch einen effektiven nichtlinearen Brechungskoeffizienten nicht zulässig ist.

Modenkopplung erfordert eine geeignete Umwandlung der NLP in eine Amplitudenmodulation. In dieser Arbeit werden hierzu zwei vollkommen unterschiedliche Ansätze gewählt:

Das erste Verfahren nutzt die durch den SHG-Prozess hervorgerufene nichtlineare räumliche Wellenfrontstörung und die daraus resultierende Selbstfokussierung oder Selbstdefokussierung des Fundamentalstrahls. Resonatorintern können somit leistungsabhängige Strahlparameter der Resonatormode erzeugt und mit Hilfe geeignet platzierter Aperturen in eine Amplitudenmodulation transformiert werden. Dieses Prinzip der *Parametrischen Kerr-Linsen Modenkopplung* (PKLM) wurde erstmals 1995 demonstriert, fand seit dieser Zeit jedoch nur wenig Anwendung. Darüberhinaus wurde die PKLM meist nur in Kombination weiterer Modenkopplungsverfahren, wie z.B. dem *nonlinear mirror mode-locking* [1], hybrid verwendet.

In dieser Arbeit wird ein ausschließlich PKLM modengekoppelter Nd:YVO₄ Laseroszillator mit Verstärkungs-Blende (*soft-aperture*) entwickelt. Selbststartende und langzeitstabile Modenkopplung bei erstmals hohen mittleren Ausgangsleistungen bis zu 15,4 W mit einer zeitlichen Impulsdauer von 10,8 ps und kurze zeitliche Impulsdauern von 5,7 ps mit 11,4 W mittlerer Leistung wurden erreicht. Empirisch gewonnene Auslegungsrichtlinien bezüglich der optimalen Wahl der Phasenfehlanpassung, sowie der Optimierung des soft-aperture Mechanismus im aktiven Medium werden formuliert und durch numerische Berechnung verifiziert.

Das zweite Verfahren basiert auf einer intensitätsabhängigen Änderung des Polarisationszustandes der Fundamentalwelle, induziert durch den phasenfehlangepassten Typ I SHG Prozess. Ist der phasenfehlangepasste LBO-Kristall von zwei Polarisatoren umgeben und das Hauptachsensystem des doppelbrechenden LBO-Kristalls geeignet orientiert, kann eine optische Anordnung mit intensitätsabhängigem Transmissionskoeffizienten realisiert werden. Dieser Effekt wurde erstmals 1996 theoretisch beschrieben, seine Verwendung zur Laser-Modenkopplung war jedoch bislang auf einen blitzlampengepumpte Nd:YAG Laser beschränkt. In dieser Arbeit wird, nach bestem Wissen, der erste diodengepumpte, mittels nichtlinearer Polarisationsrotation via Typ I SHG kontinuierlich modengekoppelte Laser demonstriert. Basierend auf dem Jones-Vektor Matrix-Formalismus erfolgt eine analytische Berechnung der Selbst-Amplitudenmodulation eines ultrakurzen Lichtimpulses, hervorgerufen durch die verwendete optische Anordnung. Anhand der Gleichungen werden erstmalige Bedingungen formuliert, welche die Eigenschaften des nichtlinearen Kristalls sowie des aktiven Mediums betreffen. Selbststartende und langzeitstabile Modenkopplung bei gleichzeitig hohen mittleren Ausgangsleistungen bis zu 20,6 W mit einer zeitlichen Impulsdauer von 7,3 ps und sehr kurze zeitliche Impulsdauern von 2,7 ps mit 9,9 W mittlerer Leistung wurden erreicht.

Die Ergebnisse dieser Arbeit bestätigen das hohe Potenzial des *second order cascading* für die Realisierung derzeitiger sowie zukünftiger Hochleistungs-Ultrakurzpuls-Laserstrahlquellen.



Publikationen

Zeitschriftenbeiträge

1. C. Schäfer, C. Fries, C. Theobald und J.A. L’huillier: *parametric Kerr lens mode-locked, 888 nm pumped Nd:YVO₄ laser*. Opt. Lett. 36, 2674-2676 (2011).
2. C. Schäfer, C. Theobald, R. Wallenstein und J.A. L’huillier: *Effects of spatial hole burning in 888 nm pumped, passively mode-locked high-power Nd:YVO₄ lasers*, aus der Sonderausgabe: *Special Issue: “Selected Papers Presented at the 2010 Spring Meeting of the Quantum Optics and Photonics Section of the German Physical Society”*. Appl. Phys. B 102, 523-528 (2011).
3. F. Lehnhardt, C. Schäfer, C. Theobald, M. Nittmann, J. Bartschke, R. Knappe und J.A. L’huillier: *888 nm pumped 1342 nm Nd:YVO₄ oscillator Kerr-lens mode-locked using cascaded second-order nonlinearities*. Appl. Phys. B 106, 5-8 (2012). Rapid Communication.

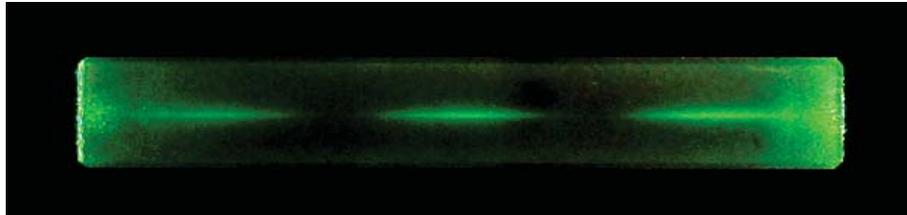
Tagungsbeiträge

1. C. Schäfer, C. Fries und J.A. L’huillier: *Parametric Kerr-lens mode-locking of a 888 nm pumped Nd:YVO₄ laser using cascaded second order nonlinearities*. Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications (NLO) 2011, paper: NThC5. OSA Technical Digest (CD).
2. C. Schäfer, C. Theobald, R. Wallenstein und J.A. L’huillier: *Passiv modengekoppelte, 888 nm gepumpte Nd:YVO₄ Hochleistungsoszillatoren*. DPG-Frühjahrstagung 2010, Hannover.

Preise

LUMERA LASER GmbH Kaiserslautern in Kooperation mit dem Photonik-Zentrum Kaiserslautern e.V. für die Entwicklung „Verfahren zur Erzeugung von ultrakurzen Laserimpulsen“. *Innovationspreis Rheinland-Pfalz 2011* in der Kategorie Kooperation. Verliehen von dem Ministerium für Wirtschaft, Klimaschutz, Energie und Landesplanung des Landes Rheinland-Pfalz in Kooperation mit den Arbeitsgemeinschaften der Industrie- und Handelskammern und Handwerkskammern.





The availability of a simple, adjustable, low-loss way to impress nonlinear phase shifts of either sign on a pulse is therefore a significant new degree of freedom for the design of short-pulse sources.

Frank Wise, 2002 [2]





Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	7
2.1	Allgemeine Einführung kaskadierter $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$ -Prozesse	8
2.2	Idealisierte Darstellung der nichtlinearen Phasenverschiebung via $\chi^{(2)} : \chi^{(2)}$.	12
2.3	Die nichtlineare Phasenverschiebung via phasenfehlangepasster Typ I SHG .	15
2.3.1	Die nichtlineare Phasenverschiebung in der Kleinsignal-Näherung . . .	18
2.3.2	Numerische Berechnung der nichtlinearen Phasenverschiebung	23
2.3.3	Die nichtlineare Phasenverschiebung eines ultrakurzen Impulses: Einfluss des Gruppengeschwindigkeit-Unterschiedes	27
3	Z-Scan Messungen zur Charakterisierung kaskadierter $\chi^{(2)}$-Prozesse in Lithiumtriborat	33
3.1	Grundlagen der Z-Scan Technik	34
3.2	Der experimentelle Z-Scan Messaufbau	41
3.3	Experimentelle Ergebnisse	44
3.3.1	Der experimentell bestimmte effektive nichtlineare Brechungsindex in Abhängigkeit der Phasenfehlangepassung	49
3.3.2	Die nichtlineare Phasenverschiebung in Abhängigkeit der Fundamentalleistung	52
3.3.3	Der effektive nichtlineare Brechungsindex in Abhängigkeit der Kristalllänge	54
4	Die parametrische Kerr-Linsen Modenkopplung	57
4.1	Experimentelle Ergebnisse	58
4.1.1	Experimenteller Aufbau	58
4.1.2	Experimentelle Charakterisierung der PKLM Modenkopplung	60
4.2	Untersuchung der Selbst Amplituden Modulation (SAM)	79
4.2.1	Das aktive Medium als soft-aperture	80
4.2.2	Die Kerr-Sensitivität des Resonators	88



5 Die Modenkopplung durch nichtlineare Polarisations-Rotation	99
5.1 Grundlagen der Polarisations-Rotation via phasenfehlangepasster Typ I SHG	100
5.1.1 Berechnung der nichtlinearen Transmissionsverluste	102
5.1.2 Die nichtlineare Verlustmodulation dT/dP	106
5.1.3 Der optimale Drehwinkel $\alpha_{opt}=35^\circ$	108
5.1.4 Die verbotenen Temperaturintervalle	110
5.1.5 Die Knotenregel	115
5.1.6 Betrachtung der spektralen Eigenschaften: Der Lyot-Filter	117
5.1.7 Messmethode zur Bestimmung der nichtlinearen Verlustmodulation dT/dP	122
5.2 Experimentelle Ergebnisse	123
5.2.1 Experimenteller Aufbau	123
5.2.2 Charakterisierung der LBO-Polarisator-Anordnung: resonatorextern .	127
5.2.3 Charakterisierung des cw-Laserbetriebs mit resonatorinterner LBO-Polarisator- Anordnung	130
5.2.4 Der modengekoppelte Betrieb	133
6 Zusammenfassung	149
Literaturverzeichnis	153



Kapitel 1

Einleitung

Passiv modengekoppelte Festkörperlaser, die ultrakurze Laserimpulse im Pikosekunden- oder Femtosekundenbereich emittieren, sind zu unverzichtbaren wissenschaftlichen und technischen Werkzeugen herangereift. Neben vielfältigen Anwendungsfeldern in Forschung, Medizin und Kommunikation leisten heute viele hundert dieser Geräte ihren Dienst in industriellen Produktionsanlagen.

Hohe Impulsspitzenleistungen ultrakurzer Laserimpulse erlauben zum einen die effiziente Frequenzkonversion infraroter Laserstrahlung in den sichtbaren oder ultravioletten Spektralbereich. Als sogenannte quasi-cw UV-Laser finden diodengepumpte, modengekoppelte und frequenzverdreifachte Pikosekundenlaser ihren Einsatz beispielsweise bei der Herstellung von elektrischen Leiterplatten mit dem Verfahren des *Laser Direct Imaging* (LDI). Anstelle einer traditionellen Belichtung über Fotomasken wird hier die Leiterbahn-Struktur mit höherer Auflösung direkt mittels fokussiertem Laserstrahl auf eine Fotolack beschichtete Platte geschrieben [3]. Desweiteren ermöglichen die hohen erreichbaren Leistungsdichten und vor allem die kurzen Wechselwirkungszeiten der Lichtimpulse mit der Materie einen präzisen und rückstandsfreien Abtrag kleinster Materialmengen, da ein schädigender Wärmeeintrag in das Material minimiert wird [4]. Die Mikromaterialbearbeitung hat sich daher als ein weiteres Hauptanwendungsgebiet von Ultrakurzpuls-Lasersystemen in der industriellen Fertigung entwickelt.

Nichtsdestotrotz sind heutige Ultrakurzpuls-Laser nach wie vor komplexe und vor allem kostenintensive Systeme. Derzeitige Entwicklungsanstrengungen richten sich daher auf eine Optimierung der Prozesseffizienz, um die tatsächlichen Kosten eines Ultrakurzpuls-Lasersystems zu senken und um neue Anwendungsfelder wirtschaftlich zu erschließen. So erfordert beispielsweise die Mikrostrukturierung großer Oberflächen höhere Materialabtragsraten, was neben einer Steigerung der Impulswiederholffrequenz in den Multi-Megahertzbereich vor allem eine Steigerung der mittleren Ausgangsleistung von Ultrakurzpuls-Lasersystemen erfordert [5, 6]. Gleiches gilt für das LDI, da eine Steigerung der mittleren UV-Leistung höhere Durchsatzraten an belichteten Leiterplatten ermöglicht. Unterstützt wird dieser Trend einerseits durch die

Entwicklung effizienter Verstärker, welche die Ultrakurzpuls-Laser zu immer höheren mittleren Leistungen befähigen [6–9]. Gleichzeitig steigt der Bedarf an leistungstärkeren aber wartungsarmen modengekoppelten Laseroszillatoren, die eine ausreichende Sättigung der nachfolgenden Verstärkerstufen bei möglichst wenigen Durchgängen und einen damit einfachen und robusten Aufbau gewährleisten.

Der modengekoppelte Laseroszillator bestimmt die wichtigsten laserphysikalischen Eigenschaften eines Ultrakurzpuls-Lasersystems, wie z.B. Impulsdauer, Impulswiederholrate, Strahlqualität oder Puls-zu-Puls-Stabilität. Vor allem jedoch die technische Zuverlässigkeit des Gesamtsystems wird in entscheidender Weise durch die Zuverlässigkeit des Oszillators bestimmt. Eine Steigerung der mittleren Ausgangsleistung setzt damit nicht nur hohe Anforderungen an das Lasermaterial und die Pumptechnologie, sondern erfordert robuste Modenkopplungsverfahren, auf der Basis langzeit- und leistungsstabiler Komponenten.

Die Erfindung und Entwicklung sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel (semiconductor saturable absorber mirror's, SESAM) vor 20 Jahren hat in entscheidender Weise zu einer Vereinfachung der Ultrakurzpuls-Laser beigetragen und den Weg für eine Kommerzialisierung dieser Laser geebnet. Ein Vorteil sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel besteht darin, deren makroskopische Parameter, wie z.B. die Sättigungsflussdichte [10–12], Modulationstiefe [11, 12], Relaxationszeit [13–17] und ferner die Absorptionswellenlänge [18–21] unabhängig vom Laserresonator zu kontrollieren und an die Bedürfnisse des jeweiligen Lasersystems anzupassen [11]. Darüberhinaus ist die weite Verbreitung der SESAMs vor allem auf deren unkomplizierte Handhabung, die Ausarbeitung konkreter Auslegungsrichtlinien zur Unterdrückung der unerwünschten Q-switch Modenkopplung [22, 23], sowie die Gewährleistung einer selbststartenden Modenkopplung in kommerziellen Systemen zurückzuführen.

Nachteile der SESAMs sind jedoch die langsame Wiederaufbauzeit der Absorptionsverluste nach Sättigung durch den ultrakurzen Impuls von einigen 10 bis mehreren 100 Piko- sekunden [24] sowie die häufig zu beobachtende zeitliche Degradation der SESAMs, infolge einer irreversiblen Änderung der Schichtstruktur mit zunehmender Betriebszeit des Lasers. Verschiedene Ursachen für die Alterung des Bauteils wurden in der Vergangenheit identifiziert [15, 17, 25–27]. Einer der möglichen Gründe ist die durch sättigbare und vor allem nichtsättigbare Verluste in der Halbleiterabsorberschicht aufgenommene Strahlungsleistung, welche durch nichtstrahlende Rekombination angeregter Ladungsträger in Wärme umgewandelt wird [15, 25, 26, 28]. Nichtsättigbare Verluste sind dabei das unerwünschte Nebenprodukt verschiedener Techniken [13–16, 29], wie z.B. der Niedertemperatur Molekularstrahlepita- xie, welche durch den gezielten Einbau von Störstellen in der Absorberschicht die benötigte schnelle Relaxation der in das Leitungsband angeregten Elektronen gewährleisten. Um den Wärmeeintrag auf ein tolerierbares Maß zu reduzieren werden daher niedrige SESAM Mo- dulationstiefen empfohlen [26, 30], da die nichtsättigbaren Verluste im Allgemeinen mit der Modulationstiefe des Absorberspiegels steigen [29]. Typische Modulationstiefen sättigbarer Halbleiterabsorberspiegel in Hochleistungslasern erreichen daher selten vier Prozent [27], liegen jedoch meist unter einem Prozent.

Wird die Formung von Impulsen in SESAM modengekoppelten Lasern nicht durch die Bildung zeitlicher Solitonen dominiert, ist die stationäre zeitliche Impulsdauer im wesentlichen das Ergebnis einer Balance zwischen der durch den SESAM hervorgerufenen Selbst-Amplitudenmodulation (SAM) sowie der spektralen Filterwirkung des Lasermediums mit endlicher Verstärkungsbandbreite (*Gain Narrowing*). Niedrige SESAM Modulationstiefen sowie langsame Relaxationszeiten des SESAM sind somit unmittelbar mit längeren zeitlichen Impulsdauern verbunden [24]. Im Besonderen in 888 nm gepumpten, SESAM modengekoppelten Nd:YVO₄ Hochleistungsoszillatoren werden niedrige SESAM Modulationstiefen zum entscheidenden Nachteil. Erst kürzlich identifizierten hier mehrere unabhängige Studien den starken Einfluss des Gain Narrowing sowie die gleichzeitig niedrigen SESAM Modulationstiefen als Ursache für sehr lange zeitliche Impulsdauern im Bereich zwischen 30 und 40 Piko-sekunden [31–34].

Neuartige Modenkopplungsverfahren werden daher benötigt, die eine schnelle Verlustmodulation mit hoher Stärke bei gleichzeitig niedrigen linearen Verlusten und niedrigen Anforderungen an das Laserresonator-Design vereinen.

Hervorragender Ausgangspunkt neuer Verfahren bilden sogenannte *kaskadierte Nichtlinearitäten zweiter Ordnung*. Optische Nichtlinearitäten zweiter Ordnung sind im allgemeinen für Dreiwellenmischprozesse wie z.B. die Summenfrequenzerzeugung (SFG), die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) oder Differenzfrequenzerzeugung (DFG) bekannt. Wesentliches Merkmal eines *kaskadierten* Prozesses zweiter Ordnung ist, dass die in dem ersten elementaren $\chi^{(2)}$ -Prozess erzeugte neue Frequenzkomponente eine der Eingangswellen des darauffolgenden Prozesses zweiter Ordnung bildet. Die Bedeutsamkeit der kaskadierten Prozesse für die nicht-lineare Optik beruht auf der Tatsache, dass sie eine äußerst effiziente Nachahmung optisch nichtlinearer Phänomene dritter Ordnung, wie z.B. des optischen Kerr-Effektes ermöglichen [35].

Die einfachste Variante zur Imitation des optischen Kerr-Effektes durch einen kaskadierten Prozess zweiter Ordnung erfolgt durch phasenfehlangepasste SHG in einem einzelnen nichtlinearen Kristall. Infolge der Phasenfehlanpassung und des daraus resultierenden periodischen Energieaustausches zwischen der Fundamentalwelle sowie der zweiten Harmonischen erfährt die Fundamentalwelle eine, mit der Propagation zunehmende, intensitätsabhängige Phasenverschiebung. Klare Alleinstellungsmerkmale dieser nichtlinearen Phasenverschiebung ist die enorme Effektstärke sowie die Möglichkeit deren Betrag wie auch Vorzeichen durch den meist einfach zugänglichen Prozessparameter der Phasenfehlanpassung zu variieren [36].

Obwohl die Existenz einer nichtlinearen Phasenverschiebung der Fundamentalwelle via SHG bereits in den Anfängen der Nichtlinearen Optik bekannt war [37, 38], wurde die Effektstärke unterschätzt und die Aussichten auf eine konkrete Anwendung als gering eingestuft. Entscheidende Aufmerksamkeit erlangte der grundlegende Effekt erst im Jahr 1989 mit dem experimentellen Nachweis hoher nichtlinearer Phasenverschiebung der Fundamentalwelle

größer π durch Belashenkov [39] und vor allem die detaillierte experimentelle Charakterisierung der Phasenverschiebung durch Z-Scan Messungen mit Kaliumtitanylphosphat (KTP) im Jahr 1990 durch DeSalvo [36, 40]. Seit dieser Zeit hat sich das *Second Order Cascading* als eigenständiges Teilgebiet der Nichtlinearen Optik etabliert und sein Potenzial im Besonderen für moderne Ultrakurzpuls-Laserstrahlquellen ist mittlerweile unumstritten [2].

Eine hohe nichtlineare Phasenverschiebung allein ist noch nicht ausreichend für die Modenkopplung eines Lasers. Dies wird erst durch eine geeignete Umwandlung in eine Amplitudenmodulation eines im Laserresonator umlaufenden Impulses möglich. Zwei vollkommen unterschiedliche Techniken sind hierzu bislang bekannt:

Ein Laserstrahl erfährt infolge der durch den phasenfehlangepassten SHG-Prozess induzierten nichtlinearen Phasenverschiebung eine intensitätsabhängige transversale Phasenstörung. Je nach Vorzeichen der Phasenverschiebung bewirkt das nichtlineare Material somit eine intensitätsabhängige Fokussierung oder Defokussierung der Fundamentalstrahlung [40]. Diese, häufig auch als *parametrische Kerr-Linse* [41] bezeichnete, nichtlineare Linsenwirkung erzeugt innerhalb des Laserresonators leistungsabhängige Strahlparameter der Resonatoreigenmode. Vollkommen analog zu dem Prinzip der KLM, können diese mit Hilfe geeignet platzierter Blenden (*hard* oder *soft aperture's*) in eine Modulation der Verluste bzw. Verstärkung umgewandelt werden. Man spricht daher auch von *parametrischer Kerr-Linsenmodenkopplung* (PKLM).

Die Verwendung eines phasenfehlangepassten SHG-Prozess als *effektives Kerr-Medium* bietet zahlreiche Vorzüge, welche vor allem auf die hohe Effekstärke der kaskadierten Nichtlinearität zurückzuführen ist. Im Vergleich zu bekannten Kerr-Medien gewährleisten ein bis zu zwei Größenordnungen höhere *effektive* nichtlineare Brechungsindexkoeffizienten eine zuverlässig selbststartende und stabile Modenkopplung, auch für Laseroszillatoren mit niedriger Impulsspitzenleistung [42]. Die typischerweise hohen Anforderungen an ein strikt optimiertes KLM-Resonatordesign werden entschärft, da die stärkere effektive Kerr-Linse eine möglicherweise nicht optimale Kerr-Sensitivität des Resonators kompensiert. Hohe benötigte Positioniergenauigkeiten, häufig im Submillimeterbereich [11, 43], von Kerr-Medium und Resonatorspiegeln werden somit vermieden. Des weiteren entfällt die Notwendigkeit einer starken Fokussierung der Resonatoreigenmode in das nichtlineare Material, was häufig einen starken Astigmatismus der Resonatormode bewirkt und zusätzliche Techniken zur Astigmatismus-Kompensation erfordert [44]. Niedrigere benötigte Leistungsdichten im nichtlinearen Material weit unterhalb dessen Zerstörschwelle gewährleisten darüber hinaus eine hohe Zuverlässigkeit der nichtlinearen Komponente. Vernachlässigbare Absorptionsverluste der Fundamentalwelle schließlich verhindern einen signifikanten Wärmeeintrag und erlauben Anwendungen mit hoher mittlerer Leistung.

Die erste Demonstration eines PKLM modengekoppelten Lasers erfolgte im Jahre 1995 durch G. Cerullo und Mitarbeiter [45]. Das Verfahren fand seit dieser Zeit jedoch nur wenig Aufmerksamkeit [42, 46, 47]. Vor allem aber das Potenzial für Anwendungen hoher mittlerer