# SPIDER als Instrument zur Untersuchung der Laser-Plasma-Wechselwirkung an Gasjet-Targets im sub-10-fs Regime

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Thomas Fischer aus Düsseldorf

2007

Aus dem Institut für Laser- und Plasmaphysik der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Gedruckt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Referent: Prof. Dr. Oswald Willi Koreferent: Prof. Dr. Ulrich Samm

Tag der mündlichen Prüfung: 07.02.2008

# Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Wechselwirkung von few-cycle Laserpulsen mit einer Pulsdauer von weniger als 10fs und einer Intensität von einigen  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> mit Gasen bei Neutralteilchendichten von  $1,35\cdot10^{19}$  cm<sup>-3</sup> ...6,75\cdot10^{19} cm<sup>-3</sup>  $\triangleq 0,5bar...2,5bar$  untersucht. Aufgrund des sehr guten Kontrastverhältnisses (>10<sup>5</sup> für Zeiten t >1ps und >10<sup>8</sup> für t >6ps) [24] des hier verwendeten Lasers und des damit quasi nicht existenten Vorplasmas konnte die Wechselwirkung des Laserfeldes mit dem neutralen Gas und somit die Entstehung des Plasmas in seiner Anfangsphase untersucht werden. Da aufgrund der geringen Dichte in einem Zeitraum von wenigen Femtosekunden (fs) die hydrodynamische Expansion und sogar Stoßionisation vernachlässigt werden können, war es hier erstmals möglich, den Einfluss der Feldionisation auf die Propagation des Laserpulses direkt zu untersuchen.

Es ist bekannt [32], dass es bei der Wechselwirkung starker Laserfelder mit Materie durch die auftretenden Ionisationsprozesse zu einer Blauverschiebung des Laserpulses kommt. Im Gegensatz zu anderen Experimenten [6], bei denen lediglich das Spektrum des Laserpulses und somit die Einhüllende des elektrischen Feldes vermessen wurde, ist es in dieser Arbeit erstmalig gelungen, den Einfluss der Ionisation auf die spektrale Phase zu messen.

Möglich wurden diese Untersuchungen durch die Verwendung des aus der Laserdiagnostik bekannten SPIDER-Konzepts [7], [8]. Hierbei handelt es sich um ein interferometrisches Messverfahren, das es erlaubt, Rückschlüsse auf die spektrale Phase eines Laserpulses zu ziehen. Mit dem Bau eines solchen Apparates und der Konzeption eines Gasjetexperiments zur Messung der Pulsphase vor und nach der Plasmainteraktion ist es gelungen, den Phasenbeitrag der Blauverschiebung zu vermessen. Hierbei wurde eine Dichteabhängigkeit der Dispersion zweiter Ordnung (D<sub>2</sub>) beobachtet. Für niedrige Neutralteilchendichten ist dieser Wert stark negativ, steigt bei höheren Dichten an und wird bei der Interaktion mit He schließlich sogar positiv.

Unterstützt durch 1D- und 2D-PIC-Simulationen [35], [40], [41] ist es gelungen, eine Erklärung für diesen Effekt zu finden: Bedingt durch den proportionalen Zusammenhang zwischen der Blauverschiebung und dem Gradienten der Elektronendichte kommt es beim Überschreiten einer jeden Ionisationsstufe zu einer starken Verschiebung der Momentanfrequenz des Laserpulses. Hierdurch bildet sich im Puls vor jeder Ionisationsstufe ein Bereich mit positivem Chirp ( $D_2 > 0$ ) und hinter jeder Ionisationsstufe entsteht ein Bereich mit negativem Farbverlauf ( $D_2 < 0$ ). Aufgrund der Intensitätsverteilung im Puls (maximale Intensität in der Pulsmitte) dominieren hierbei die Farbverläufe im Bereich der höchsten Ionisationsstufe den Beitrag zur spektralen Phase. Wie die PIC-Simulationen gezeigt haben, kommt es durch die Laser-Plasma-Wechselwirkung zu einer Deformation des Laserpulses (s. auch [40]), die mit steigender Dichte stark zunimmt. Dies führt zu einer Abnahme der Feldamplitude in der vorderen Flanke des Pulses. Als Folge dieses Effekts wird die letzte Ionisationsstufe vom Anfang des Pulses immer weiter zur Pulsmitte hin verschoben. So gewinnt die vordere, steigende Flanke des durch die Blauverschiebung verursachten Farbverlaufs immer stärker an Bedeutung. Das führt dazu, dass bei Helium das Pulszentrum schließlich von der steigenden Flanke dominiert wird. Dies wird als Vorzeichenwechsel des D<sub>2</sub>-Koeffizienten gemessen.

Durchgeführt wurden die Messungen an dem Düsseldorfer GW-Lasersystem. Dieses Ti:Sa-System mit einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_0 = 800nm$  stellt Laserpulse mit einer Pulslänge  $\tau < 10 \, fs$  und Pulsenergien von etwa 60µJ bei einer Repetitionsrate von 1kHz zur Verfügung. Durch Fokussierung der Pulse mit Hilfe eines Parabolspiegels auf einige wenige µm konnten so im Fokus Intensitäten von einigen  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> erreicht und die Ionisation von He, Ne, N<sub>2</sub> und Ar durch die Wechselwirkung mit diesen few-cycle Pulsen untersucht werden.

Diese neue Methode zur Untersuchung des Einflusses von Plasmen auf die Phase von Laserpulsen eröffnet zukünftigen Experimenten neue Perspektiven, um neue Effekte, wie beispielsweise die Pulskompression, direkt zu messen und nachzuweisen, deren Existenz von der theoretischen Physik vorhergesagt wird [42], deren Nachweis bis jetzt jedoch nur indizienhaft möglich war [43]. So kann diese neue Messmethode dazu dienen, das Verständnis über die Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie weiter zu vertiefen.

# Abstract

This thesis deals with the interaction between few cycle laser pulses with a duration of about 10fs of an intensity of a few times  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> and gases with neutral densities of  $1,35 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3} \dots 6,75 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3} \triangleq 0,5 \text{ atm} \dots 2,5 \text{ atm}$ . Due to the very good contrast (>10<sup>5</sup> for t >1ps and >10<sup>8</sup> for t >6ps) [24], virtually no pre-plasma was produced. Therefore one was able to examine the interaction of the laser field with neutral gas and to study the production of plasma at its very beginning. For the first time, it was possible to observe directly how field ionization influences the propagation of laser pulses, because hydro-dynamic expansion and effects such as impact ionization could be neglected with regard to the gas density and the short interaction time of only a few femtoseconds (fs).

It is known that the interaction of strong laser fields with matter leads to ionization induced blueshifting [32]. In contrast to other experiments [6], where only the spectrum of the laser pulse and thus the envelope of the electric field were measured, the phase contribution induced by laser-plasma-interaction was successfully measured in this thesis for the first time. These experiments became possible due to the use of a Spider apparatus, an instrument usually applied in laser diagnostics [7], [8]. It is an interferometric device for analysing the spectral phase of a laser pulse. By building such a Spider and performing gasjet experiments, it was possible to measure the pulse phase before and after the plasma interaction, and thus to determine the phase contribution of the blueshift. During the experiments, a pressure dependency of the  $D_2$ -coefficient of the phase was observed. This value is strongly negative for low neutral densities. It increases for higher densities. In the case of the interaction with Helium, the value finally becomes even positive.

With the help of 1D- and 2D-PIC-simulations [35], [40], [41], an explanation of this dependency was found. Every time the ionization threshold is exceeded, the linear relation between the blueshifting and the gradient of the electron density leads to a strong upshift of the laser frequency. Consequently, in front of the threshold a positive chirp  $(D_2 > 0)$  is induced, and a negative one  $(D_2 > 0)$  afterwards. Due to the intensity distribution within the pulse (highest intensity in the pulse center), the phase contribution is dominated by the chirp within the region of the highest ionization level. As shown by PIC-simulations, the laser-plasma-interaction causes a deformation of the pulse (also see [40]), which strongly increases with the increase of neutral density. This deformation results in a decrease of intensity in front of the pulse. As a consequence, the threshold of the last ionization level is reached at a later time within the pulse. So the positive chirp, induced at the pulse front, gains in importance. In

the case of the Helium measurements, this effect becomes so strong that a change in the sign of the  $D_2$ -coefficient was observed.

These experiments were performed with the GW laser system in Duesseldorf. This Ti:Sa laser has a central wavelength of  $\lambda_0 = 800nm$  and a pulse duration of  $\tau < 10 fs$  at pulse energies of approximately 60µJ. The system operates at a repetition rate of 1kHz. By using a parabolic mirror, intensities of a few times  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> at focus were reached and the interaction of few cycle pulses with He, Ne, N<sub>2</sub> und Ar was examined.

The method introduced here opens the door to a large variety of further experiments. For example, it is planned to measure directly the compression of a Ti:Sa pulse, an effect that is predicted by theory [42] and was observed only indirectly so far [43]. So this new method might help to get a deeper understanding of the phenomena of laser-matter-interaction.

# Inhaltsverzeichnis

Zus	ammenfas	sung	1
Abs	stract		3
Inh	altsverzeic	hnis	5
Abl	oildungsve	przeichnis	7
1	Einleitun	g	. 10
2	Beschreil	oung von Laserpulsen	. 13
	2.1 Die	Amplitudenfunktion	. 14
	2.2 Die	Phasenfunktion	. 16
	2.3 Ga	սßsche Optik	. 19
3	Wechselv	virkung von Laserpulsen mit Materie	. 23
	3.1 Sel	bstphasenmodulation (SFM)	. 23
	3.2 Ion	isation	. 25
	3.2.1	Multi-Photonen-Ionisation (MPI)	. 27
	3.2.2	Tunnelionisation	. 28
	3.3 Pro	pagation im Plasma	. 30
	3.3.1	Plasmadispersion – Brechungsindex im Plasma	. 30
	3.3.2	Blauverschiebung	. 31
4	Experime	enteller Aufbau	. 34
	4.1 Fur	hktionsweise eines SPIDER-Apparates	. 35
	4.2 Ko	nstruktion des SPIDER-Apparates	. 37
	4.2.1	Die zeitliche Aufspaltung – Erzeugung des Doppelpulses	. 37
	4.2.2	Die spektrale Verschiebung - Summenfrequenzbildung in BBO	. 37
	4.2.3	Der komplette Aufbau des SPIDER-Apparates	. 42
	4.2.4	Berechnung der einzustellenden Parameter	. 43
	4.2	4.1 Berechnung der Schnittwinkel und der Dicke des nichtlinearen Kristalls	. 44
	4.2	4.2 Der Pulsabstand – Einstellung des Michelson Interferometers	. 55
	4.2	4.3 Berechnung der Gitter für den Strecker	. 58
	4.3 Das	s verwendete Lasersystem	. 63
	4.4 Der	Aufbau der Targetkammer	. 66
	4.4.1	Der Fokus	. 67
	4.4.2	Die Gasdüse	. 71

5	Durchgeführte Messungen			
	5.1 Messung der Materialdispersion von BK7		75	
	5.2	Me	ssung des Einflusses von Gastargets auf den Laserpuls	
	5.2.1 Untersuchungen an Helium (He)			
	5.2.1.1 Phasenmessung			
	5.2.1.2 Fehlerbetrachtung			
	5.2.1.3 Untersuchung des Spektrums			
	5.	.2.2	Untersuchungen an Neon (Ne)	
	5.	.2.3	Untersuchungen an Argon (Ar)	
	5.	.2.4	Untersuchungen an Stickstoff (N <sub>2</sub> )	91
6	PIC-	Sim	ulationen	
	6.1	PIC	C-Simulationen an Helium	
	6	.1.1	1D-PIC-Simulation des He-Gasjetexperiments	
	6	.1.2	2D-PIC-Simulation des He-Gasjetexperiments	
	6	.1.3	Einfluss der Laserintensität auf die gemessene Phase	
	6.2 PIC-Simulationen der Neon-Messungen			
	6.3	PIC	C-Simulationen der Argon-Messungen	
	6.4	PIC	C-Simulationen der Stickstoff-Messungen	
7	Interpretation			
	7.1 Interpretation der Helium-Messungen		109	
	7.2 Interpretation der Neon-Messungen		117	
	7.3 Interpretation der Argon-Messungen			
	7.4 Interpretation der Stickstoff-Messungen			
8	Schl	ussfo	blgerungen und Ausblick	
9	Anhang			
	9.1	Ion	isationspotentiale zur BSI-Theorie	
	9.2	Ma	thematische Beschreibung Michelson-Interferogramm	
	9.3	Ma	thematische Beschreibung SPIDER-Interferogramm	
10	Literaturverzeichnis			
11	Danksagung13			

# Abbildungsverzeichnis

Abb. 1 – Auswirkung der Phase auf die Pulsdauer	17
Abb. 2 – Pulslänge in Abhängigkeit von D2	
Abb. 3 – Intensitätsverteilung eines Gaußschen Strahls	19
Abb. 4 – Fokussierung von Gaußstrahlen	
Abb. 5 – Verformung des zeitlichen Pulsprofils eines 10fs-Pulses durch SFM	24
Abb. 6 – Selbstphasenmodulation - Abhängigkeit des Spektrums von $\phi_{max}$	
Abb. 7 – Grafik zur BSI-Theorie	
Abb. 8 – Grafik zur Veranschaulichung der Blauverschiebung	
Abb. 9 – Michelson-Interferometer	
Abb. 10 – Einfluss der Phase auf die SPIDER-Interferogramme	
Abb. 11 – Blockschaltbild eines SPIDER-Apparates	
Abb. 12 – Erzeugung von $\Delta \Omega$ mittels SFG	
Abb. 13 – Nichtkolinearer Strahlverlauf zur Summenfrequenzerzeugung	41
Abb. 14 – Schematischer Aufbau des SPIDER-Apparates	
Abb. 15 – Geometrie des doppelbrechenden Kristalls	
Abb. 16 – Nichtkolinearer Strahlverlauf im BBO-Kristall	47
Abb. 17 – Phasenfehlanpassung	51
Abb. 18 – Gruppengeschwindigkeitsfehlanpassung	
Abb. 19 – Pulsverlängerung	54
Abb. 20 – Beugung am Gitter	55
Abb. 21 – Inverser Gitterkompressor	60
Abb. $22 - Gitterabstand für D_2 = 46.000 fs^2$	
Abb. 23 – Das Femto-Lasersystem	64
Abb. 24 – Vergleich der Spektren vor und nach der Faser	65
Abb. 25 – Schematischer Aufbau des Gasjetexperiments	66
Abb. 26 – Aufnahme des optimierten Fokus	68
Abb. 27 – Strahlradius in Abhängigkeit von z	70
Abb. 28 – Die Überschalldüse	73
Abb. 29 – Gemessenes SPIDER-Interferogramm	75
Abb. 30 – Fouriertransformation des SPIDER-Signals	76
Abb. 31 – Spektrale Verschiebung der beiden fs-Pulse	78
Abb. 32 – Phasenbeiträge von BK7 in Abhängigkeit von der Materialdicke	79

Abb. 33 – Vergleich der Fundamentalen und des 2 <i>w</i> -Signals	. 80
Abb. 34 – Gemessene Phasenbeiträge von BK7	. 80
Abb. 35 – SPIDER-Interferogramm nach dem He-Gasjet für Obar und 25bar	. 81
Abb. 36 – Druckabhängigkeit der spektralen Phase	. 82
Abb. 37 – Phasenverschiebung durch Heliumgasjet	. 83
Abb. 38 – D <sub>2</sub> -Koeffizient vs. Neutralteilchendichte im Heliumgasjet	. 84
Abb. 39 – Fehlerbetrachtung für $D_2$	. 85
Abb. 40 – Heliummessung mit Fehlerbalken	. 85
Abb. 41 – Laserspektren nach der Interaktion mit dem Heliumgasjet	. 86
Abb. 42 – Abhängigkeit der D <sub>2</sub> -Werte von der Neutralteilchendichte für Neon	. 88
Abb. 43 – Blauverschiebung der Neon-Spektren in Abhängigkeit der Neutralteilchendichte	. 88
Abb. 44 – Intensitätsverschiebung des Spektrums bei der Interaktion mit Neon	. 89
Abb. 45 – Abhängigkeit der D2-Werte von der Neutralteilchendichte für Argon	. 90
Abb. 46 – Intensitätsverschiebung des Spektrums bei der Interaktion mit Argon	. 90
Abb. 47 – Abhängigkeit der D2-Werte von der Neutralteilchendichte für Stickstoff	. 91
Abb. 48 – Intensitätsverschiebung des Spektrums bei der Interaktion mit Stickstoff	. 91
Abb. 49 – Spektrum und elektrisches Feld des simulierten Laserpulses	. 94
Abb. 50 – Spektrale Phase als Ergebnis der PIC-Simulation für He	. 95
Abb. 51 – Spektrale Phase als Ergebnis der PIC-Simulationen für He	. 96
Abb. 52 – Vergleich der gemessenen mit den theoretischen $D_2$ -Koeffizienten	. 97
Abb. 53 – Vergleich der simulierten Spektren mit den experimentellen Ergebnissen	. 99
Abb. 54 – Simulierter Laserpuls	100
Abb. 55 – Spektrale Phase der OOPIC-Simulation	101
Abb. 56 – Plasmakanal für Helium nach L=36µm	102
Abb. 57 – Einfluss der Laserintensität auf die gemessene Phase	104
Abb. 58 – Simulation und Messung der Dichteabhängigkeit der D <sub>2</sub> -Werte von Neon	104
Abb. 59 – Simulierte Spektren des Neonexperiments	105
Abb. 60 – Simulation und Messung der Dichteabhängigkeit der D <sub>2</sub> -Werte für Argon	106
Abb. 61 – Simulierte Spektren des Argonexperiments	106
Abb. 62 – Simulation und Messung der Dichteabhängigkeit der D <sub>2</sub> -Werte für Stickstoff	107
Abb. 63 – Simulierte Spektren des Stickstoffexperiments	108
Abb. 64 – Zum E-Feld zugehörige Elektronendichte	112
Abb. 65 – Farbverlauf im Puls für niedrige und hohe Dichten im Vergleich	113
Abb. 66 – E-Feld und Elektronendichte für Neon	118

Abb. 67 – Chirp und D <sub>2</sub> -Werte nach der Propagation durch Neon	119
Abb. 68 – E-Feld und Elektronendichte für Argon	
Abb. 69 – Chirp und D <sub>2</sub> -Werte nach der Propagation durch Argon	
Abb. 70 – E-Feld und Elektronendichte für Stickstoff	
Abb. 71 – Chirp und D <sub>2</sub> -Werte nach der Propagation durch Stickstoff	

# 1 Einleitung

In den letzten Jahren sind Kurz- und Ultrakurzpulslaser immer mehr in den Fokus des wissenschaftlichen Interesses gerückt. Durch die extrem kurze Einwirkzeit und die damit verbundene stark lokalisierte Wechselwirkungszone haben diese Pulse in den Bereichen der Mikromaterialbehandlung und der Lasermedizin ein großes Interesse geweckt [51]. Heute können Laserpulse erzeugt werden, in denen das elektrische Feld nur noch einige wenige male oszilliert (sogenannte few-cycle Pulse), woraus sich Pulslängen in der Größenordnung von wenigen Femtosekunden (fs) ergeben.

Die große spektrale Bandbreite und die kurzen Wechselwirkungszeiten machen few-cycle Pulse zudem für die Grundlagenforschung sehr interessant. Neben Anwendungen in der zeitaufgelösten Spektroskopie [48] eignen sie sich zur Erzeugung kurzlebiger, punktförmiger Röntgenquellen, die bei zeitaufgelösten Strukturanalysen zum Einsatz kommen [49].

Darüber hinaus wird in verschiedenen Forschungsgruppen versucht, durch die Wechselwirkung von Ultrakurzpulslasern mit unterkritischen Plasmen Elektronen, Protonen und Ionen zu beschleunigen, um so monoenergetische Teilchenstrahlen hoher Intensität zu erzeugen [43], [50], die in der Krebstherapie von großer Bedeutung sind. Hierbei versucht man, sich durch die Wechselwirkung mit dem Plasma die starken elektrischen Felder innerhalb des Pulses zu Nutze zu machen. Dadurch sollen zukünftig Beschleunigeranlagen kompakter und vor allem kostengünstiger hergestellt werden können [52], [53], [54], [55].

Durch die Erzeugung höherer Harmonischer ist man des weiteren bestrebt, Attosekundenpulse zu erzeugen und so der Physik das Tor zu noch kürzeren Zeitskalen zu öffnen [56].

Trotz dieser vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten sind noch viele Aspekte der Laser-Plasma-Wechselwirkung im few-cycle Regime unerforscht. Schwerpunkt der hier vorgelegten Arbeit ist deshalb die Untersuchung der Wechselwirkung von few-cycle Laserpulsen mit unterkritischen Plasmen. Es wird der Einfluss der Feldionisation von Helium, Neon, Argon und Stickstoff auf die Propagation eines Ti:Sa Laserpulses mit einer Pulslänge <10fs und einer Pulsenergie von 60µJ untersucht. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf der Implementation eines neuen diagnostischen Verfahrens zur interferometrischen Untersuchung der Laser-Plasma-Wechselwirkung, welches zukünftig auch in weiteren Experimenten genutzt werden kann, um je nach eingestelltem Parameterregime andere Effekte einer genaueren Untersuchung zu unterziehen. Hierzu wird im ersten Teil dieser Arbeit das bereits aus der Laserdiagnostik bekannte Konzept des SPIDER (engl.: Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) erstmalig auf die Plasmaentstehung angewandt [7], [8], um eine komplette Charakterisierung des Pulses sowohl vor als auch nach der Interaktion zu ermöglichen. Durch einen Vergleich dieser Messungen können dann Rückschlüsse auf die zugrundeliegenden Interaktionsprozesse gezogen werden.

Um eine Interpretation der durchgeführten Messungen zu erleichtern, wird durch den verwendeten Laser ein Parameterregime präpariert, das es erstmalig erlaubt, den Einfluss der Feldionisation auf den Puls, von anderen Ionisationsprozessen ungestört, direkt zu untersuchen. Durch ein sehr gutes Kontrastverhältnis in Verbindung mit einer verhältnismäßig geringen Pulsenergie kann bei den hier vorgestellten Experimenten die Entstehung eines Vorplasmas vernachlässigt werden [24]. Somit interagiert der Puls direkt mit dem neutralen Gas und ionisiert dieses über die Feldionisation. Aufgrund der kurzen Pulsdauer und der geringen Dichte können während dieser Interaktion Stoßprozesse im Medium vernachlässigt werden.

Basierend auf diesen Annahmen werden im zweiten Teil der Arbeit Simulationen mit PIC-Codes durchgeführt [35], [40], [41], die schließlich eine Interpretation der Messungen erlauben.

Im Einzelnen gliedert sich diese Arbeit wie folgt:

- Kapitel zwei widmet sich der mathematischen Beschreibung von Laserpulsen. Die Bedeutung von Amplituden- und Phasenfunktion f
  ür eine komplette Charakterisierung eines Laserpulses werden aufgezeigt. Wichtige Gr
  ößen wie Intensit
  ät, Pulsl
  änge und Pulsenergie werden vorgestellt.
- Im dritten Kapitel wird zunächst auf die Wechselwirkung von Laserpulsen mit neutraler Materie eingegangen. In Abhängigkeit von der Intensität werden verschiedene Effekte wie Selbstphasenmodulation, Multi-Photonen-Ionisation oder Tunnelionisation vorgestellt. Anschließend wird die Propagation eines Pulses durch ein Plasma behandelt.
- In Kapitel vier wird der experimentelle Aufbau beschrieben, wie er in dieser Arbeit Verwendung fand. Zunächst wird die Funktionsweise eines SPIDER-Apparates erklärt. Es werden die Überlegungen dargelegt, die zur Konstruktion des verwendeten SPIDERs nötig waren. Anschließend werden das Lasersystem und der Aufbau der Targetkammer vorgestellt.
- In Kapitel fünf schlie
  ßlich werden die durchgef
  ührten Messungen pr

  äsentiert. Nach der Vermessung der Materialdispersion von BK7 zu Kalibrierungszwecken werden die Messungen an Helium, Neon, Argon und Stickstoff pr

  äsentiert.

- Kapitel sechs widmet sich numerischen Simulationen, die mit den PIC-Codes PSC und OOPIC durchgeführt wurden, um ein besseres Verständnis der aufgenommenen Messdaten zu ermöglichen.
- Basierend auf den Ergebnissen aus den Messungen und den Simulationen wird in Kapitel sieben eine Interpretation der Messdaten geliefert. Es wird beschrieben, wie die auftretende Feldionisation zu einer Deformation des Pulses und somit zu einer Änderung der Blauverschiebung führt. Der Zusammenhang dieser Änderung mit der gemessenen Phasenfunktion des Pulses wird aufgezeigt.
- Kapitel acht fasst abschließend die Hauptaussagen dieser Arbeit zusammen und gibt einen kurzen Ausblick auf zukünftig geplante Experimente.

## **2** Beschreibung von Laserpulsen

In der vorliegenden Arbeit geht es um die Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie. Für ein tieferes Verständnis dieser Wechselwirkungsprozesse und der zu ihrer Beobachtung verwendeten Messgeräte ist es unerlässlich, sich zunächst darüber Gedanken zu machen, wie man Laserpulse und deren Ausbreitung im Raum beschreiben kann.

Anders als bei kontinuierlich strahlenden Lasern, bei denen im optimalen Fall nur eine Mode anschwingt und sich so ein monochromatischer Wellenzug ausbildet, setzt sich ein Laserpuls aus einer Vielzahl monochromatischer Wellenzüge zusammen.

Das elektrische Feld E(t) einer monochromatischen Welle der Kreisfrequenz  $\omega_0$  wird in der Zeit beschrieben durch die Gleichung

$$E(t) = A \cdot \cos[\omega_0 t + \phi]. \tag{1.1}$$

Hierbei bezeichnet A die Amplitude der Welle und  $\phi$  steht für deren Phase. Geht man von der reellen Beschreibung E(t) zu der oft gebräuchlicheren komplexen Beschreibung des Feldes  $\varepsilon(t)$  über, erhält man entsprechend den Ausdruck

$$\varepsilon(t) = A \cdot e^{i[\omega_0 t + \phi]}.$$
(1.2)

Durch Überlagerung mehrerer solcher Wellenzüge (math.: Summation/Integration) bildet sich im zeitlichen Verlauf ein Puls aus:

$$\tilde{\varepsilon}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega) e^{i[\omega t + \phi(\omega)]} d\omega = \int_{-\infty}^{\infty} \underbrace{A(\omega) e^{i\phi(\omega)}}_{\tilde{\varepsilon}(\omega)} e^{i\omega t} d\omega = FT[\tilde{\varepsilon}(\omega)]$$
(1.3)

Wie Gleichung (1.3) zu entnehmen ist, handelt es sich hierbei im Wesentlichen um eine komplexe Fourier-Transformation des Terms  $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ , der als komplexes, spektrales elektrisches Feld, oder oft auch als Amplitudenspektrum bezeichnet wird. Somit existieren mit den Größen  $\tilde{\varepsilon}(\omega)$  und  $\tilde{\varepsilon}(t)$  in der Frequenz- bzw. Zeitdömäne zwei komplexe Beschreibungen, die durch Fourier-Transformationen ineinander überführt werden können:

$$\widetilde{\varepsilon}(\omega) = A(\omega)e^{i\phi(\omega)} \qquad \varepsilon(\omega) = \widetilde{\varepsilon}(\omega) \cdot e^{i\omega t} = A(\omega)e^{i\phi(\omega)}e^{i\omega t} 
IFT \ FT \qquad (1.4) 
\widetilde{\varepsilon}(t) = A(t)e^{i\phi(t)} \qquad \varepsilon(t) = \widetilde{\varepsilon}(t) \cdot e^{i\omega t} = A(t)e^{i\phi(t)}e^{i\omega t}$$

#### 2.1 Die Amplitudenfunktion

Zur Beschreibung von Laserpulsen wird die Amplitudenfunktion  $A(\omega)$  oftmals als Gaußfunktion angenommen; man spricht dann vom sogenannten Gaußpuls. In der Frequenzdomäne gilt somit:

$$A(\omega) = E_0 \cdot e^{-\left(\frac{\omega - \omega_0}{\xi_{E,\omega}}\right)^2}, \quad FWHM_{E,\omega} = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \xi_{E,\omega}.$$
(1.5)

 $(\boldsymbol{\zeta}_{E,\omega})$  sei die 1/e-Breite der elektrischen Feldamplitude in der Frequenzdomäne und FWHM<sub>E, \u03c6</sub> die zughörige volle Halbwertsbreite.  $E_0$  gibt die maximale Feldamplitude an.)

Oftmals ist man jedoch nicht an der Beschreibung des E-Feldes - hier gegeben durch das Amplitudenspektrum  $\tilde{\varepsilon}(\omega)$  - interessiert, sondern an der reell messbaren Größe, dem Intensitätsspektrum  $I(\omega)$ , welches meist vereinfachend lediglich als Spektrum bezeichnet wird. Zwischen Amplitudenspektrum und Intensitätsspektrum gilt folgender Zusammenhang:

$$I = \left\langle \left| \vec{S} \right| \right\rangle = \left\langle \left| \vec{E} \times \vec{H} \right| \right\rangle^{\varepsilon_r = \mu_r = 1} \frac{\varepsilon_0 c}{2} A^2 = \frac{\varepsilon_0 c}{2} \left| \vec{\varepsilon} \right|^2$$
(1.6)

$$I \sim \left| \tilde{\varepsilon} \right|^2. \tag{1.7}$$

(S: Energiestromdichte, E: reelles elektrisches Feld, H: reelles magnetisches Feld,  $\varepsilon_0$ : Influenzkonstante, c: Lichtgeschwindigkeit)

Dabei folgt aus der Quadrierung der Gauß-Amplitude für die Halbwertsbreite (FWHM) der Intensität:

$$FWHM_{I,\omega} = \sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \xi_{E,\omega} = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \frac{\xi_{E,\omega}}{\sqrt{2}} = \frac{1}{\sqrt{2}} FWHM_{E,\omega}.$$
 (1.8)

Das bedeutet, dass sich durch die Quadrierung des Gaußprofils die Halbwertsbreite der Intensität gegenüber der Halbwertsbreite der Feldamplitude um den Faktor  $\frac{1}{\sqrt{2}}$  reduziert.

Wie bereits dargelegt, ergibt sich die Beschreibung des Pulses in der Zeitdomäne aus der Beschreibung im Frequenzraum durch eine Fouriertransformation. Für die Fouriertransfomation einer e-Funktion gilt allgemein [2]

$$e^{-Ax^2} \xrightarrow{FT} \frac{1}{\sqrt{2A}} \cdot e^{\frac{-x^2}{4A}}.$$
(1.9)

Betrachtet man der Einfachheit halber einen bandbreitenbegrenzten Gaußpuls ( $\phi = 0$ ) mit Amplitude  $E_0 = 1$ , so gilt für die Fouriertransformation dieses Pulses:

$$E(\omega) = e^{-\frac{\omega^2}{\xi_{E,\omega}^2}} \xrightarrow[A:=\frac{1}{\xi_{E,\omega}^2} E(t) = \frac{\xi_{E,\omega}}{\sqrt{2}} \cdot e^{-\frac{t^2}{4\xi_{E,\omega}^2}} \xrightarrow[q]{\xi_{E,\omega}} \frac{\xi_{E,\omega}}{q} \cdot e^{-\frac{t^2}{\xi_{E,\omega}^2}} (1.10)$$

Das heißt, dass sich die  $\frac{1}{e}$ -Breite des zeitlichen Pulsverlaufes  $\xi_{E,t}$  aus der  $\frac{1}{e}$ -Breite der Frequenzbeschreibung  $\xi_{E,\omega}$  ergibt zu

$$\xi_{E,t} = \frac{2}{\xi_{E,\omega}}.\tag{1.11}$$

Analog zu den Betrachtungen in der Frequenzdomäne kann man auch in der Zeitdomäne die Intensität  $I(t) \sim E(t)^2$  und die entsprechenden Halbwertsbreiten /  $\frac{1}{e}$ -Breiten einführen. Zusammenfassend kann man festhalten:

$$\xi_{E,\omega} \to FWHM_{E,\omega} = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \xi_{E,\omega}$$

$$\xi_{I,\omega} = \frac{\xi_{E,\omega}}{\sqrt{2}} \to FWHM_{I,\omega} = \frac{1}{\sqrt{2}} FWHM_{E,\omega} = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \xi_{I,\omega} = \sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \xi_{E,\omega}$$

$$\xi_{E,t} = \frac{2}{\xi_{E,\omega}} \to FWHM_{E,t} = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \xi_{E,t}$$

$$\xi_{I,t} = \frac{\xi_{E,t}}{\sqrt{2}} = \frac{\sqrt{2}}{\xi_{E,\omega}} \to FWHM_{I,t} = \frac{1}{\sqrt{2}} FWHM_{E,t} = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \xi_{I,t} .$$
(1.12)

Diese Zusammenstellung wird sich später als nützlich erweisen, wenn es darum gehen wird, wichtige Parameter für die Diagnostik herzuleiten, die z.T. sowohl von der zeitlichen als auch der spektralen Charakteristik der zu untersuchenden Pulse abhängen. Ein wichtiges Ergebnis dieser Zusammenstellung lässt sich allerdings direkt ableiten, das sogenannte Pulslänge-Bandbreite-Produkt.

Betrachtet man einen Gaußpuls der Pulslänge  $\tau = FWHM_{I,t}$  und der zugehörigen Bandbreite

 $\Delta v = \frac{1}{2\pi} FWHM_{I,\omega}, \text{ so gilt für einen bandbreitenbegrenzten Puls } (\phi = 0)$ 

$$\tau \cdot \Delta \nu = \frac{2\sqrt{\ln 2} \cdot \frac{\sqrt{2}}{\xi_{E,\omega}} \times \sqrt{2\ln 2} \xi_{E,\omega}}{2\pi} = \frac{4\ln 2}{2\pi} = 0,441$$
(1.13)

und für nicht bandbreitenbegrenzte Pulse gilt entsprechend

$$\tau \cdot \Delta \nu > \frac{4\ln 2}{2\pi} = 0,441.$$
 (1.14)

## 2.2 Die Phasenfunktion

Wie (1.4) zu entnehmen ist, benötigt man für die komplette Beschreibung eines Laserpulses nicht nur die Amplitudenfunktion  $A(\omega)$ , sondern auch die zugehörige Phase  $\phi(\omega)$ . Diese ist für das E-Feld einer sich in x-Richtung ausbreitende Welle  $E = A \cdot \cos(\omega t + \phi)$  allgemein gegeben durch den Ausdruck

$$\phi = k \cdot x \,. \tag{1.15}$$

Mit der Wellenzahl  $k = \frac{2 \cdot \pi}{\lambda} = \frac{n(\omega) \cdot \omega}{c_0}$  kann man dies umschreiben zu

$$\phi(\omega) = \frac{x}{c_0} \cdot \omega \cdot n(\omega) . \qquad (1.16)$$

Da der Brechungsindex  $n(\omega)$  in der Regel eine materialabhängige Größe ist, die meist eine komplizierte Frequenzabhängigkeit aufweist, entwickelt man die Phase zur einfacheren mathematischen Behandlung in eine Taylorreihe und erhält dann einen Ausdruck der Form

$$\phi(\omega) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\omega - \omega_0)^m}{m!} \underbrace{\left(\frac{\partial^m}{\partial \omega^m} \phi(\omega)\right)_{\omega = \omega_0}}_{D_m} = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\omega - \omega_0)^m}{m!} \cdot \underbrace{\frac{x}{c_0} \left(\frac{\partial^m}{\partial \omega^m} \omega \cdot n(\omega)\right)_{\omega = \omega_0}}_{D_m}$$
(1.17)
$$= \underbrace{\phi(\omega_0)}_{D_0} + (\omega - \omega_0) \underbrace{\phi'(\omega_0)}_{D_1} + \frac{(\omega - \omega_0)^2}{2} \underbrace{\phi''(\omega_0)}_{D_2} + \dots + \frac{(\omega - \omega_0)^n}{n!} \underbrace{\left(\frac{\partial^n}{\partial \omega^n} \phi(\omega)\right)_{\omega = \omega_0}}_{D_n}.$$



**Abb. 1** – Auswirkung der Phase auf die Pulsdauer Dargestellt sind das Spektrum eines Gaußpulses mit einer FWHM von 100nm bei  $\lambda_0$ =800nm (links), sowie die zugehörigen E-Felder E(t) für Phasen von  $D_2$ =0fs<sup>2</sup> (Mitte) und  $D_2$ =100fs<sup>2</sup> (rechts).

Hierbei beschreiben die Koeffizienten  $D_0$  und  $D_1$  das Fortschreiten der Phase bzw. des Pulses. Sie haben keine Auswirkung auf die Pulsform und sollen deshalb an dieser Stelle nicht weiter diskutiert werden.

 $D_2$  schließlich beschreibt die Dispersion der Gruppengeschwindigkeit und somit die Pulsverlängerung. Betrachtet man beispielsweise, wie in Abb. 1 dargestellt, einen Puls mit einer Bandbreite von *FWHM* = 100*nm* bei einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_0 = 800nm$  und somit einer minimal möglichen Pulslänge von 9,4fs einmal ohne Phasenbeitrag ( $\phi = 0$ ) und einmal mit einem Beitrag von  $D_2 = 100 fs^2$  ( $\phi = 0.5(\omega - \omega_0)^2 \cdot D_2$ ), so zeigt sich diese Verlängerung sehr deutlich.

Nach [3] lässt sich der Einfluss eines Phasenbeitrages zweiter Ordnung auf das zeitliche Pulsprofil beschreiben durch

$$E(t, D_2) = E_A(t, D_2) \cdot e^{i \lfloor \omega_0 t - \phi(t, D_2) \rfloor}, \qquad (1.18)$$

wobei die Amplitude  $E_A(t, D_2)$  und die Phase  $\phi(t, D_2)$  des Pulses gegeben sind durch

$$E_{A}(t, D_{2}) = \frac{E_{0} \cdot \xi_{I,t}}{\sqrt[4]{\left(\xi_{I,t}^{4} + D_{2}^{2}\right)}} \cdot e^{-\left(\frac{t \cdot \xi_{I,t}}{\sqrt{2 \cdot \left(\xi_{I}^{4} + D_{2}^{2}\right)}\right)^{2}}$$
(1.19)

und

$$\phi(t, D_2) = -\frac{D_2}{2 \cdot \left(\xi_{I,t}^4 + D_2^2\right)} \cdot t^2 + \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{D_2}{\xi_{I,t}}\right).$$
(1.20)

Darüber hinaus kann man aus (1.20) noch den zeitlichen Verlauf der Trägerfrequenz über den Puls (den Chirp) ableiten zu

$$\omega(t, D_2) = \frac{\partial}{\partial t} \left( \omega_0 t - \phi(t, D_2) \right) = \omega_0 + \frac{D_2}{\left(\xi_I^4 + D_2^2\right)} \cdot t$$
(1.21)

und aus (1.19) kann man auf die Pulslänge  $\Delta_{I,Streck}t$  in Abhängigkeit von D<sub>2</sub> und der Länge des bandbreitenbegrenzten Pulses  $\Delta_{I,0}t$  schließen. Nach [3] erhält man für die Länge des gestreckten Pulses den Ausdruck

$$\underline{\Delta}_{I,streck} t = \Delta_{I,0} t \cdot \sqrt{1 + \left( \left( 2 \cdot \sqrt{\ln 2} \right)^2 \frac{D_2}{\Delta_{I,0} t^2} \right)^2}$$

$$\approx \Delta_{I,0} t \cdot \sqrt{1 + 7,69 \left( \frac{D_2}{\Delta_{I,0} t^2} \right)^2} \quad .$$
(1.22)

Für einen 10fs langen Puls, der durch ein 1 mm dickes Glasfenster  $(D_2(BK7) = 446 \text{ fs}^2 \text{ cm}^{-1})$ geht, bedeutet dies z.B. eine Verlängerung auf rund 16fs (s. Abb. 2).



**Abb. 2** – Pulslänge in Abhängigkeit von  $D_2$ Dargestellt ist die zeitliche Streckung eines anfänglich 10fs langen Laserpulses beim Durchgang durch ein 1 mm dickes Glasfenster (BK7).

Betrachtet man nicht nur Phasenbeiträge zweiter, sondern auch höherer Ordnung (kubisch, 4ter, 5ter,...), so erzeugen diese zusätzliche Pulsdeformationen, deren ausführliche Behandlung den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde. Eine gute Beschreibung dieser Phänomene findet man jedoch in [4].

#### 2.3 Gaußsche Optik

Nachdem nun bekannt ist, wie Laserpulse durch Amplituden- und Phasenfunktion beschrieben werden können, soll es im folgenden Kapitel darum gehen, wie Laserpulse im Experiment geführt werden. Besonderes Augenmerk wird hierbei auf die mathematische Behandlung der Fokussierung von Laserstrahlen gelegt, werden im Experiment doch erst hierdurch die nötigen Intensitäten erreicht, um neutrale Materie zu ionisieren. Besonders für das spätere Verständnis von Messergebnissen ist es deshalb unerlässlich, sich mit der Fokussierung des Strahls näher zu beschäftigen, da die erreichbare Intensität ( $I_0$ ) im Fokus einen wichtigen Parameter für die Modellierung von Ionisationsprozessen, die im darauffolgenden Kapitel theoretisch behandelt werden sollen, darstellt.

A.E. Siegman hat in [5] gezeigt, dass die Ausbreitung von Laserstrahlen durch die Gesetze der Gaußschen Optik beschrieben werden kann. Er untersuchte die Ausbreitung von Gaußschen Strahlen, also von sphärischen Wellen, die sich in z-Richtung ausbreiten und dabei in transversaler Richtung (senkrecht zur Ausbreitungsrichtung) eine Gauß verteilte Feldamplitude (1.23) besitzen. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 3 graphisch dargestellt.



**Abb. 3** – Intensitätsverteilung eines Gaußschen Strahls (*E*<sub>0</sub>: max. Feldstärke auf der Achse, w: 1/e-Breite des transversalen E-Feldes, r: radialer Abstand zur z-Achse)

Durch Anwendung des Huygensschen Prinzips fand Siegman eine einfache analytische Beschreibung, welche das Verhalten von Laserstrahlen bei der Fokussierung durch optische Elemente wie Linsen oder Parabolspiegel beschreibt. Da die Herleitung dieser Zusammenhänge in [5] sehr gut dargestellt ist und den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde, sollen an dieser Stelle nur die wichtigsten Ergebnisse von Siegmans Betrachtungen zusammengefasst werden. Abb. 4 zeichnet ein Bild des Sachverhaltes, wie er bei der Fokussierung von Laserstrahlen zu beobachten ist.



**Abb. 4** – Fokussierung von Gaußstrahlen Gezeigt ist der Strahlverlauf eines Gaußschen Strahls im Bereich des Fokus. Ausgehend von der Strahltaille ( $w_0$ ) weitet sich der Strahl beugungsbedingt. In einer Entfernung von  $z_R=0,5$  b zur Strahltaille ist der Strahlradius um den Faktor  $\sqrt{2}$  angewachsen. Für große z nähert sich der Strahldurchmesser asymptotisch dem Winkel  $\Theta$ .

Der wichtigste Parameter in diesem Zusammenhang ist die Strahltaille  $w_0$ . Sie gibt die 1/e-Breite des elektrischen Feldes am Ort des geringsten Strahldurchmessers (im Fokus) an. Von dort aus weitet sich der Strahl beugungsbedingt und folgt dabei dem Gesetz

$$w(z) = w_0 \left[ 1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}.$$
 (1.24)

Für den Radius der sphärischen Wellenfronten gilt hierbei

$$R(z) = z \left[ 1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z}\right)^2 \right], \qquad (1.25)$$

und für  $z \to \infty \left(z \gg \frac{\pi w_0^2}{\lambda}\right)$  nähert sich der Strahldurchmesser asymptotisch dem Winkel

$$w(z \to \infty) = \frac{\lambda z}{\pi w_0} \tag{1.26}$$

$$\Rightarrow \theta[rad] = \frac{w(z)}{z} = \frac{\lambda}{\pi \omega_0}.$$
 (1.27)

Ein zweiter wichtiger Parameter in diesem Zusammenhang ist der sogenannte konvokale Parameter b oder die Rayleighlänge  $z_R$ 

$$z_R = \frac{b}{2} = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\lambda} \,. \tag{1.28}$$

Sie gibt an, nach welcher Strecke  $z_R$  der Strahlradius um den Faktor  $\sqrt{2}$  und somit die Querschnittsfläche  $(A = \pi r^2)$  des Strahls um den Faktor 2 zugenommen haben. Über diese Distanz können der Strahlradius als quasi konstant und somit die Wellenfronten des Strahls als planar angenommen werden! Mit der Rayleighlänge kann (1.24) zudem vereinfachend umgeschrieben werden zu

$$w(z) = w_0 \left[ 1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}.$$
 (1.29)

Da die Lichtleistung P (Gesamtleistung) des Pulses über die Querschnittsfläche A mit der Intensität I des Pulses verknüpft ist, kann man

$$I = \frac{P}{A} \Longrightarrow P = \int_{0}^{\infty} I(r) \cdot 2\pi r \, dr \tag{1.30}$$

herleiten und anschließend mit Formel (1.6), die das radiale elektrische Feld (1.23) mit der Intensitat I(r) verknüpft, P schreiben als

$$I(r) = \frac{c_0 \varepsilon_0}{2} \left( E_0 \cdot e^{-\left(\frac{r}{w}\right)^2} \right)^2 = \frac{c_0 \varepsilon_0}{2} \cdot E_0^2 \cdot e^{-2\left(\frac{r}{w}\right)^2} = I_0 \cdot e^{-2\left(\frac{r}{w}\right)^2}$$
(1.31)

$$P = \int_{0}^{\infty} I_{0} \cdot e^{-2\left(\frac{r}{w}\right)^{2}} \cdot 2\pi r \ dr = \frac{\pi I_{0}w^{2}}{2}.$$
 (1.32)

Daraus erhält man schließlich die gesuchte Größe

$$I_0(z) = \frac{2}{\pi} \frac{P}{w^2(z)},$$
 (1.33)

welche die Intensität des Strahls auf der Achse (r=0) in Abhängigkeit vom Fokusabstand z angibt. Jetzt ist die physikalisch messbare Größe die Intensität  $(I = \langle |S| \rangle)$ , also der zeitlich gemittelte Energiefluss und nicht das für Detektoren (z.B. CCDs) viel zu schnell oszillierende elektrische Feld. Damit ist w(z) als 1/e-Breite des elektrischen Feldes eine schwer zu fassende Größe, so nützlich es auch für die mathematische Beschreibung der Gaußschen Optik sein mag. Mit den Überlegungen aus (1.12) ist es jedoch möglich, die 1/e-Breite des elektrischen Feldes  $(\xi_E)$  mit der Halbwertsbreite der zugehörigen Intensitätsverteilung (*FWHM*<sub>I</sub>) zu verbinden. Somit gilt

$$FWHM_{I} = \sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \xi_{E} \Leftrightarrow \xi_{E} = \frac{FWHM_{I}}{\sqrt{2 \ln 2}}$$

$$\Rightarrow I_{0}(z) = \frac{4 \ln 2}{\pi} \cdot \frac{P}{FWHM_{I}^{2}} = \ln 2 \cdot \frac{P}{\pi \left(\frac{FWHM_{I}(z)}{2}\right)^{2}} \quad (1.34)$$

Damit lässt sich durch Messen der Pulsleistung und der Querschnittsfläche des Strahls, gegeben durch die Halbwertsbreite der radialen Intensitätsverteilung, die Intensität  $I_0(z)$  auf der Achse bestimmen.

# **3** Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie

Nachdem nun bekannt ist, wie Laserpulse und deren Propagation beschrieben werden können, wird sich der folgende Abschnitt mit der Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie beschäftigen. Hierbei soll zunächst die Wechselwirkung bei mittleren Laserintensitäten und der dabei auftretende nichtlineare Beitrag zweiter Ordnung zum Brechungsindex sowie die daraus resultierende Selbstphasenmodulation diskutiert werden, bevor in einem weiteren Abschnitt unterschiedliche Ionisationsmodelle vorgestellt werden. Daran anschließend folgt eine kurze Beschreibung der Propagation des Laserpulses im Plasma.

#### 3.1 Selbstphasenmodulation (SFM)

Bedingt durch die hohen Intensitäten von einigen  $10^{16} W cm^{-2}$ , wie sie in den hier vorgestellten Experimenten erreicht werden, kommt es zu einem zusätzlichen, intensitätsabhängigen Anteil des Brechungsindex *n* [22]

$$n = n_0 + \Delta n(I)$$
  
=  $n_0 + \tilde{n}_2 \cdot I(t) + ...$  (1.35)

und somit zu einer Intensitätsabhängigkeit der Phasengeschwindigkeit v<sub>Ph</sub>

$$v_{Ph} = \frac{c_0}{n} = \frac{c_0}{n_0 + \tilde{n}_2 \cdot I(t)}.$$
(1.36)

Das bedeutet, dass für positive  $\tilde{n}_2$  die Phasengeschwindigkeit mit zunehmender Intensität abnimmt. Für einen Puls mit zeitlichem Gaußprofil heißt dies, dass die Pulsflügel schneller laufen als der Mittelteil des Pulses. Der vordere Teil des Pulses wird auseinander gezogen und der hintere Teil zusammengestaucht. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 5 graphisch dargestellt.

Man sieht sehr gut, wie der Puls im hinteren Teil zusammengeschoben wird, neue blaue Farbanteile entstehen und wie der Puls im vorderen Teil auseinander gezogen wird, woraus neue rote Farbanteile resultieren. Dieser Effekt spiegelt sich entsprechend in der Phase des zeitlichen Pulses wieder

$$\phi(t) = k \cdot z = \frac{\omega_0}{c_0} \cdot n \cdot z = \frac{\omega_0}{c_0} \left[ n_0 + \tilde{n}_2 I(t) \right] z.$$
(1.37)



**Abb. 5** – Verformung des zeitlichen Pulsprofils eines 10fs-Pulses durch SFM Bedingt durch die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex propagieren die Flanken langsamer als das Zentrum des Pulses. Hierdurch kommt es zu einer Deformation des Pulses.

Die bekannte, intensitätsunabhängige Phase wird durch den Term  $\Delta \phi(I) = \frac{\omega_0}{c_0} \tilde{n}_2 I(t) z$ modifiziert. Hierbei wird die maximale Phasenverschiebung  $\phi_{\text{max}}$  für die Spitzenintensität  $I_0$ des Pulses erreicht. Mit  $\phi_{\text{max}} = \frac{\omega_0}{c_0} \tilde{n}_2 I_0 z$  lässt sich der zusätzliche Phasenbeitrag beschreiben durch

$$\Delta\phi(I) = \phi_{\max} \cdot \frac{I(t)}{I_0} \,. \tag{1.38}$$

In Abb. 6 ist der Einfluss dieses zusätzlichen Phasenbeitrages in Abhängigkeit von  $\phi_{max}$  graphisch dargestellt. Sehr deutlich ist zu sehen, wie das Spektrum mit zunehmendem  $\phi_{max}$  durch die neugebildeten Farben (vergleiche Abb. 5) breiter wird und sich eine Modulation des Spektrums ausbildet.

Den zur Berechnung von *n* bzw.  $\phi_{max}$  benötigten Parameter  $\tilde{n}_2$  kann man z.B. bei [34] nachschlagen. In Tab. 1 sind die  $n_2$ -Werte für die wichtigsten Gase zusammengestellt.

Gas	$\tilde{n}_2$
Не	$\sim 7 \cdot 10^{-21}$
Ne	$\sim 9 \cdot 10^{-21}$
Ar	$\sim 10^{-19}$
Kr	$\sim 5 \cdot 10^{-19}$
Xe	$\sim 10^{-18}$
N <sub>2</sub>	$\sim 10^{-19}$

**Tab. 1** –  $n_2$ -Werte für einige Gase im Überblick



**Abb.** 6 – Selbstphasenmodulation - Abhängigkeit des Spektrums von  $\phi_{max}$ Deutlich ist zu sehen, wie das Spektrum mit zunehmendem  $\phi_{max}$  durch die neugebildeten Farben breiter wird und sich eine Modulation des Spektrums ausbildet.

#### 3.2 Ionisation

Bei noch höheren Laserintensitäten erreicht man schließlich den Punkt, an dem die elektrischen Felder des Laserpulses in die Größenordnung der atomaren Felder kommen, welche die Elektronen an die Atomrümpfe binden. Um eine Abschätzung der hierfür benötigten Laserintensität anzugeben, bietet sich eine Betrachtung des Wasserstoffatoms an. Aufgrund seiner sehr einfachen Struktur mit nur einem Proton im Kern und einem Elektron in der Hülle kann das atomare elektrische Feld des H-Atoms als einfaches, radiales Coulombfeld angenommen werden. Die Elektrostatik findet als Beschreibung für das elektrische Feld einer Punktladung Q (Atomkern) am Ort  $\vec{r}'$ 

$$\vec{E}(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot Q \cdot \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{\left|\vec{r} - \vec{r}'\right|^3} \quad \text{oder skalar:} \quad E(r) = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{Q}{r^2}.$$
(1.39)

Aus dem Bohrschen Atommodell ist der Radius der Elektronenbahn im Wasserstoffatom bekannt

$$a_{B} = \frac{4\pi\varepsilon_{0}\hbar^{2}}{m_{e}e^{2}} = 5,29 \cdot 10^{-11}m, \qquad (1.40)$$

(E0: Dielektrizitätskonstante, me: Masse Elektron, e: Elementarladung, ħ: Plancksche Konstante)

und somit  $(r = a_B)$  kann man das atomare, elektrische Feld des H-Atoms abschätzen zu

$$E_{a(tomic)} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{e}{a_B^2} \approx 5.1 \cdot 10^{11} \frac{V}{m}.$$
 (1.41)

Mit Hilfe von (1.6) erhalten wir hieraus die zur Ionisation von Wasserstoff benötigte Laserintensität  $I_a$ 

$$I_a = \frac{\mathcal{E}_0 c}{2} E_a^2 \approx 3,51 \cdot 10^{16} \frac{W}{cm^2}, \qquad (1.42)$$

d.h. ein Laser mit einer Intensität  $I > I_a$  wird elementaren Wasserstoff ionisieren. Allerdings beobachtet man sehr häufig ein Eintreten der Ionisation bei Laserintensitäten weit unterhalb dieses Schwellenwertes.

Zur Erklärung dieser Beobachtung entwickelten Bethe und Salpeter ein einfaches Modell, das die Ionisation bei niedrigeren Intensitäten mit einer durch das Laserfeld hervorgerufenen Verformung des Kernpotentials erklärt [36]. Ein Bild dieses Modells ist in Abb. 7 dargestellt.



**Abb.** 7 – Grafik zur BSI-Theorie Durch das Laserfeld kommt es zu einer Deformation des ursprünglichen Potentials. Hierdurch kann eine Ionisation bereits bei Intensitäten unterhalb von  $I_a$  erreicht werden.

Durch eine Superposition des Kernpotentials V mit dem Laserfeld E

$$V(x) = -\frac{Ze^2}{x} - eEx$$
(1.43)  
(Z: Ordnungszahl)

kommt es zu einer Absenkung ( $V_{max}$ ) des Kernpotentials. Wird  $V_{max}$  größer als die Bindungsenergie  $E_{bind}$  des Elektrons, kann dieses das Atom verlassen. Das hierzu nötige Laserfeld wird als  $E_{krit.}$  bezeichnet. Abhängig von der jeweiligen Bindungsenergie des Elektrons finden Bethe und Salpeter folgenden Ausdruck für  $E_{krit.}$ 

$$E_{krit.} = \frac{E_{bind}^2}{4Ze^3}.$$
 (1.44)

Hieraus kann man mit (1.6) einen Ausdruck für die Laserintensität  $I_{BSI}$  (engl.: Barrier Suppression Ionization) angeben, ab der ein Auftreten der jeweiligen Ionisationsstufe zu erwarten ist

$$I_{BSI} = \frac{\pi^2 c \varepsilon_0^3 E_{bind}^4}{2Z^2 e^6} \,. \tag{1.45}$$

Für Edelgase wurde die Gültigkeit dieser Gleichung für verschiedene Laserintensitäten nachgewiesen [37]. Für die hier verwendeten Gase sind die aus (1.45) errechneten Werte für  $I_{BSI}$  im Anhang in Tab. 2 zusammengefasst.

#### 3.2.1 Multi-Photonen-Ionisation (MPI)

Diese Erklärung von Bethe und Salpeter reicht allerdings nicht aus, da auch weit unterhalb von I<sub>BSI</sub> bereits eine durch Laserfelder hervorgerufene Ionisation beobachtet werden kann. Eine mögliche Erklärung für diese Beobachtung liefert der Photoeffekt. Bereits 1905 sagte Albert Einstein (\* 14. März 1879 in Ulm; † 18. April 1955 in Princeton, USA; 1921 Nobelpreis für Physik) voraus, dass ein Photon in der Lage ist, ein Elektron aus der Elektronenschale eines Atoms zu lösen, wenn seine Energie  $E_{Photon} = \hbar \omega$  dem energetischen Abstand zwischen der Elektronenenergie und dem Potentialwall des Atoms entspricht. 1916 wurde diese Vorhersage Einsteins experimentell durch Robert Andrews Millikan (\* 22. März 1868 in Morrison, Illinois, USA; † 19. Dezember 1953 in San Marino bei Pasadena, Kalifornien, USA; 1923 Nobelpreis für Physik) bestätigt.

Allerdings stellt sich bei der Anwendung dieses Modells auf die Ionisation von Materie durch Laserstrahlung das Problem, dass die zur Ionisation benötigten Energien im Bereich mehrerer eV liegen, was Laserwellenlängen weit im UV- oder gar im Röntgenbereich voraussetzt. Ist der Photonenfluss im Laserstrahl jedoch stark genug, ist es statistisch möglich, dass mehrere Photonen gleichzeitig ein Atom treffen und somit ein n-faches der einfachen Photonenergie zur Ionisation des Atoms zur Verfügung steht. 1965 wurde dieser als Multi-Photonen-Ionisation bezeichnete Effekt erstmalig beobachtet. Die hierzu benötigten Laserintensitäten lassen sich grob zu  $> 10^{10} W / cm^2$  abschätzen.

Eng mit diesem Effekt verbunden ist der Effekt der Above-Threshold-Ionization (ATI), bei dem ein Elektron nicht nur die Energie von so vielen Photonen absorbiert, wie für das Überwinden des Potentialwalls nötig wäre, sondern zusätzlich die Energie weiterer Photonen aufnimmt. Dies führt im Elektronenspektrum zu Peaks, die jeweils um ein Vielfaches von  $E_{Photon} = \hbar \omega$  auseinander liegen.

#### 3.2.2 Tunnelionisation

Übersteigt die Laserintensität den für die MPI benötigten Wert von  $10^{10}W/cm^2$  deutlich und nähert sich dem Bereich der BSI, ist die Wirkung des Laserfeldes auf das Coulombfeld des Kerns bereits bei Werten unterhalb von I<sub>BSI</sub> nicht mehr zu vernachlässigen. Wie im Rahmen der BSI-Theorie erläutert wurde wird das atomare elektrische Feld durch das Laserfeld abgeschwächt (s. Abb. 7). Allerdings lehrt die Quantenphysik, dass bereits vor Erreichen von *I<sub>BSI</sub>* das Elektron die Möglichkeit hat, den Potentialwall zu durchtunneln. Hierdurch ergibt sich ein Intensitätsbereich zwischen der MPI und der BSI, in dem die Ionisationsprozesse durch quantenmechanische Effekte dominiert werden. Dieser als Tunnel- oder Feldionisation bezeichnete Effekt wurde 1965 von Leonid Veniaminovich Keldysh theoretisch untersucht. Für die zu erwartenden Ionisationsraten findet Keldiysh [29], [38], [39] für Wasserstoffähnliche Systeme den Ausdruck

$$\Gamma = 4\omega_a \left(\frac{E_{ion}}{E_h}\right)^{\frac{5}{2}} \frac{E_a}{E_L(t)} \exp\left[-\frac{2}{3} \left(\frac{E_{ion}}{E_h}\right)^{\frac{3}{2}} \frac{E_a}{E_L(t)}\right].$$
(1.46)

Hierbei bezeichnen  $E_{ion}$  und  $E_h$  die Ionisationsenergien des betrachteten Elektrons bzw. des Wasserstoffatoms (vgl. Tab. 2).  $E_a$  bezeichnet die atomare Feldstärke (s. (1.41)),  $E_L$ repräsentiert das Laserfeld und  $\omega_a$  schließlich bezeichnet die atomare Frequenz gegeben durch

$$\omega_a = \frac{m_e e^4}{\hbar^3} = 4,16 \cdot 10^{16} \frac{1}{s} \,. \tag{1.47}$$

(me: Masse Elektron, e: Elementarladung, ħ: Plancksche Konstante)

Zur Abgrenzung von Tunnelionisation und Multi-Photon-Ionisation führte er den nach ihm benannten Keldysh-Parameter ein [29]:

$$\gamma = \omega_L \sqrt{\frac{2E_{ion}}{I_L}} \sim \sqrt{\frac{E_{ion}}{\Phi_{Pond}}}.$$
(1.48)

Hierbei steht  $E_{Ion}$  für die benötigte Ionisationsenergie, und  $\omega_L$  bzw.  $I_L$  geben die Kreisfrequenz bzw. die Intensität des Laserpulses an.  $\Phi_{Pond}$  bezeichnet das sogenannte Ponderomotive Potential des Laserpulses, also die von einem oszillierenden Elektron aufgenommene mittlere Bewegungsenergie, gegeben durch

$$\Phi_{Pond} \left[ eV \right] = \frac{e^2 E_L^2}{4m_e \omega_L^2} = 9,33 \cdot 10^{-14} \cdot I \left[ \frac{W}{cm^2} \right] \cdot \lambda^2 \left[ \mu m^2 \right].$$
(1.49)

Laut Keldysh löst für  $\gamma < 1$  die Tunnelionisation die Multi-Photon-Ionisation als dominierenden Effekt ab. Dies geschieht bei Laserintensitäten in der Größenordnung von etwa  $10^{14}W/cm^2$  [30].

Für die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente, welche bei Laserintensitäten von etwa  $1 \cdot 10^{16} W / cm^2$  durchgeführt wurden, ist davon auszugehen, dass die Ionisationsprozesse durch Tunnelionisation dominiert sind. Zu späteren Zeiten der Plasmaentwicklung mag es in Abhängigkeit von der Gasdichte zu einer weiteren Ionisation des Gases durch Stöße der freien Elektronen mit den Atomen des Hintergrundgases oder den Ionen des Plasmas kommen. Dies geschieht bei den betrachteten Dichten von einigen  $10^{19}$ cm<sup>-3</sup> jedoch zu Zeiten t, die wesentlich größer sind als die Pulsdauer des Laserpulses  $\tau \le 10 fs$  und somit keinen Einfluss auf die Propagation des Pulses selbst haben. Deshalb soll an dieser Stelle auf eine nähere Betrachtung dieser Effekte verzichtet werden. Statt dessen werden im nächsten Kapitel die Propagation eines Laserpulses durch ein Plasma und die dabei auftretenden Effekte beschrieben.

Um die Propagation eines Laserpulses in einem Plasma zu beschreiben, gilt es die Maxwellgleichungen zu lösen. Diese lauten in SI-Einheiten:

$$\nabla \cdot D = \rho \qquad (D \text{ ist Quellenfeld})$$

$$\nabla \cdot B = 0 \qquad (QuellIfreiheit von B)$$

$$\nabla \times E = -\frac{\partial B}{\partial t} \qquad (Induktionsgesetz)$$

$$\nabla \times H = j + \frac{\partial D}{\partial t} \qquad (Durchflutungsgesetz).$$
(1.50)

Mit den zugehörigen Materialgleichungen

$$B = \mu_0 \left( H + M \right)^{lin.Medien} = \mu_0 \mu_r \cdot H$$

$$D = \varepsilon_0 E + P^{lin.Medien} = \varepsilon_0 \varepsilon_r E$$
(1.51)

findet [33] unter den Annahmen, dass die Ströme im Plasma nur von den Elektronen erzeugt werden und die Felder einer  $e^{i[\omega_0 t + k \cdot x]}$  Abhängigkeit folgen die Plasmadispersionsrelation

$$\omega_0^2 - c^2 k^2 = \frac{e^2 n_e}{\varepsilon_0 m_e} = \omega_{pl}^2 . \qquad ; \quad \omega_{pl} = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\varepsilon_0 m_e}} \qquad (1.52)$$

Hierbei steht  $\omega_{pl}$  für die sogenannte Plasmafrequenz, also für diejenige Frequenz, mit der die Elektronen im Plasma vor dem "starren" Ionenhintergrund schwingen und  $n_e$  gibt die Elektronendichte an.

#### 3.3.1 Plasmadispersion – Brechungsindex im Plasma

Betrachtet man (1.52) genauer, stellt man fest, dass diese Gleichung nur dann physikalisch sinnvoll lösbar ist, wenn gilt, dass  $\omega_0 > \omega_{pl}$  ist, da sonst  $k = \sqrt{(\omega_0^2 - \omega_{pl}^2)/c^2}$  komplex wird. Aus dieser Bedingung kann man eine wichtige Größe, die sogenannte kritische Elektronendichte

$$n_{krit} = \frac{\mathcal{E}_0 m_e}{e^2} \omega_o^2, \qquad (1.53)$$

herleiten. Bei dieser Dichte gilt  $\omega_0 = \omega_{pl}$ . Übersteigt die Elektronendichte im Plasma diesen Wert, kann ein Laserstrahl im Plasma nicht weiter propagieren und wird reflektiert.

Für einen Ti:Sa-Laser bei  $\lambda_0 = 800nm$  beträgt die kritische Dichte  $n_{krit} \approx 1,73 \cdot 10^{21} cm^{-3}$ . In den hier vorgestellten Experimenten wurden im Gasjet Elektronendichten von einigen  $10^{19} cm^{-3}$  erreicht. Das bedeutet, der Laser konnte sich im Plasma ungehindert ausbreiten. In diesem Fall kann man aus (1.52) den Brechungsindex des Plasmas und damit den zusätzlichen Phasenbeitrag, den der Puls beim Durchgang durch das Plasmas erfährt, berechnen. Der Brechungsindex *n* ist allgemein gegeben durch

$$n = \frac{c_0}{v_{Ph}}.$$
;  $v_{Ph} = \lambda \cdot f = \frac{\omega}{k}$  (1.54)

Aus (1.52) erhält man

$$\omega_0 = \sqrt{c^2 k^2 + \omega_{pl}^2} \Longrightarrow v_{ph} = \sqrt{c^2 + \frac{\omega_{pl}^2}{k^2}}$$
(1.55)

und somit für den Brechungsindex des Plasmas

$$n_{pl} = \frac{c_0}{\sqrt{c_0^2 + \frac{\omega_{pl}^2}{k^2}}} = \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{\omega_{pl}^2}{\omega_0^2 - \omega_{pl}^2}}} = \frac{1}{\sqrt{\frac{\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega_{pl}^2}}} = \sqrt{1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega_0^2}}.$$
 (1.56)

Mit der Definition für  $\omega_{Pl}$  kann man dies noch umschreiben zu

$$n_{Pl} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{krit}}} \,. \tag{1.57}$$

## 3.3.2 Blauverschiebung

Die bis jetzt dargestellten Überlegungen basieren auf dem Modell eines bereits vorgeformten Plasmas, durch das der Laserpuls propagierte. In vielen Experimenten trifft der Laserpuls jedoch nicht auf ein bereits existierendes Plasma, sondern auf neutrale Materie, und muss diese erst noch ionisieren. Durch die dabei auftretenden Änderungen in der Elektronendichte und dem daraus resultierenden zeitlich variablen Brechungsindex ergibt sich eine Blauverschiebung des Laserpulses [32], [6]. Betrachtet man für eine elektromagnetische Welle den Übergang zwischen zwei Medien mit unterschiedlichem, aber zeitlich konstantem Brechungsindex n (Abb. 8, Fall I), so ändert sich beim Übergang von Medium 1 in Medium 2 gemäß der Beziehung  $c_{Vakuum} = n_{Medium} \cdot c_{Medium}$  die Ausbreitungsgeschwindigkeit c der Welle. Als Folge der geänderten Lichtgeschwindigkeit kommt es bei konstanter Frequenz zu einer Änderung der Wellenlänge  $(c = \lambda \cdot f)$ . Folgt anschließend der umgekehrte Übergang von Medium 2 zurück in Medium 1, kommt es zu einer erneuten Anpassung der Wellenlänge an die Lichtgeschwindigkeit in Medium 1, und die Welle liegt in der gleichen Form vor wie zu Beginn dieses Experimentes.

Betrachtet man dagegen einen Puls, der von Medium 1 in einen Bereich mit zeitlich und räumlich variierendem Brechungsindex übergeht, so ändert sich dieses Bild (Abb. 8, Fall II). Durch den variablen Brechungsindex befinden sich zur Zeit t verschiedene Bereiche des Pulses in Bereichen mit unterschiedlichem Brechungsindex. Durch die Kopplungsmechanismen innerhalb des Pulses ist die Pulslänge festgelegt, so dass eine Änderung der Wellenlängen wie im zuvor diskutierten Fall nicht möglich ist. Statt dessen kommt es hier zu einer Anpassung der Frequenzen. Folgt anschließend wieder der Übergang zurück in Medium 1 mit konstantem Brechungsindex  $n_1$ , so kommt es wie im Fall I zu einer Änderung der Wellenlängen. Diese orientieren sich nun aber an den neuen, durch n(t)verschobenen Frequenzen. Das heißt, im Gegensatz zu den vorigen Überlegungen bleibt diesmal am Ende des Experimentes eine Farbverschiebung erhalten, die als Blauverschiebung des Pulses beobachtet wird.



**Abb. 8** – Grafik zur Veranschaulichung der Blauverschiebung Bei der Propagation des Pulses durch einen Bereich mit variablem Brechungsindex, wie er beispielsweise durch Ionisationsprozesse entsteht, kommt es zu einer Blauverschiebung des Laserpulses.

Um diesen Sachverhalt mathematisch zu fassen, geht man aus von der Beschreibung einer sich in z-Richtung ausbreitenden, ebenen Welle. Deren E-Feld ist gegeben durch:

$$E = E_0 e^{i\phi(t)} = E_0 e^{i(\omega t - kz)} = E_0 e^{i(\frac{\omega t - n(t)k_0z}{\phi(t)})}$$
(1.58)

Hier zeigt sich die im obigen Bild angesprochene Festsetzung der Wellenlänge  $\left(k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}\right)$ . Für die effektive Frequenz gilt somit in Abhängigkeit des zeitlich variierenden Brechungsindexes n(t)

$$\phi(t) = \omega t - n(t) k_0 z \qquad \Rightarrow \omega_{eff}(t) := \frac{\Delta \phi}{\Delta t} = \omega - k_0 z \cdot \frac{dn(t)}{dt}. \tag{1.59}$$

Daraus folgt für die Blauverschiebung an einer bestimmten Stelle t im Puls

$$\Delta\omega(t) = \omega - \omega_{eff}(t) = k_0 z \cdot \frac{dn(t)}{dt} \quad \text{oder relativ:} \quad \frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{k_0 z}{\omega} \cdot \frac{dn(t)}{dt} = \frac{z}{c} \cdot \frac{dn(t)}{dt}. \quad (1.60)$$

Das Problem der Modellierung der Blauverschiebung ist also äquivalent zu der Berechnung des Brechungsindex n(t) im Plasma. Mit (1.57) kann man schreiben

$$n_{Pl} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{krit}}} \approx 1 - \frac{1}{2} \cdot \left(\frac{n_e}{n_{krit}}\right) \qquad ; \sqrt{1 - x} \approx 1 - \frac{1}{2}x + \dots \quad (1.61)$$

und erhält so für die Blauverschiebung

$$\omega_{eff} = \omega + \frac{k_0 z}{2n_{krit}} \cdot \frac{dn_e(t)}{dt} \quad ; \frac{dn(t)}{dt} = -\frac{1}{2n_{krit}} \frac{dn_e(t)}{dt} \quad (1.62)$$

$$\frac{\Delta\omega}{\underline{\omega}} = \frac{z}{c} \cdot \frac{dn(t)}{dt} = \frac{z}{c} \left( \frac{1}{2 \cdot n_{krit}} \frac{dn_e(t)}{dt} \right) = \frac{z}{2c \cdot n_{krit}} \frac{dn_e(t)}{dt}.$$
(1.63)

# 4 Experimenteller Aufbau

Wie bereits im einführenden Kapitel gesehen, gibt es verschiedenste Effekte, die bei der Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie eine Rolle spielen können. Allerdings sind die vorgestellten Modelle entwickelt worden, um die Wechselwirkung von Laserpulsen zu beschreiben, die zeitlich über viele optische cycles ( $\tau > 10 fs$ ) ausgedehnt sind. Sie beruhen z.T. auf Annahmen wie der "slowly varying envelope approximation", deren Gültigkeit für Pulse mit einer Pulslänge  $\tau < 10 fs$  noch nicht geklärt ist.

Im Folgenden soll deshalb die Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie in diesem neuen sub-10-fs Regime näher untersucht werden. Dabei möchte ich mich zunächst auf die Wechselwirkungsprozesse in einem Gasjet, d.h. auf unterkritische Plasmen, konzentrieren. In diesem Kapitel wird es deshalb um die Konzeption eines Experimentes gehen, das die genauere Untersuchung dieser Wechselwirkungsprozesse erlaubt.

Bereits aus früheren Experimenten [6] ist bekannt, dass es bei der Wechselwirkung von Laserpulsen mit Gasjets aufgrund des vom Laser selbst erzeugten zeitlich veränderlichen Brechungsindexes zu einer Blauverschiebung des Pulses kommt. Allerdings erlauben rein spektroskopische Untersuchungen, wie ich sie in meiner Diplomarbeit bereits durchgeführt habe, nur einen teilweisen Einblick in das Geschehen.

Wie bekannt ist, wird das elektrische Feld eines Laserpulses beschrieben durch einen Ausdruck der Form:

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \mathcal{A}(\omega)e^{i\phi(\omega)}.$$
 (1.64)

Das heißt für eine komplette Beschreibung des Pulses wird nicht nur die Amplitude  $A(\omega)$ benötigt, welche man aus spektroskopischen Messungen gewinnen kann, sondern auch die Phase  $\phi(\omega)$  des Pulses. Seit einigen Jahren ist die Technik des SPIDER bekannt [7], und seit kurzem gibt es auch SPIDER-Apparate, die für die Vermessung von Laserpulsen im sub-10-fs Regime eingesetzt werden können [8]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde diese Technik, die bis heute erfolgreich in der Laserdiagnostik eingesetzt wird, erstmalig in einem Plasmaexperiment zum Einsatz gebracht, um direkt den Einfluss der Plasmaentstehung auf die Phase eines sub-10-fs Pulses zu messen.

Im nächsten Abschnitt soll es zunächst um die grundlegenden Prinzipien und Funktionsweisen eines SPIDER-Apparates gehen. Im darauffolgenden Abschnitt möchte ich dann die für eine technische Umsetzung dieser Prinzipien nötigen Überlegungen vorstellen, bevor ich abschließend den kompletten experimentellen Aufbau, angefangen vom
verwendeten Lasersystem über den Aufbau der Experimentierkammer bis hin zur Detektion der Messignale mit dem SPIDER, vorstelle.

## 4.1 Funktionsweise eines SPIDER-Apparates

Das Akronym SPIDER steht im Englischen für Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction. Entsprechend handelt es sich bei einem SPIDER um einen interferometrischen Aufbau. Das bekannteste Interferometer ist wohl das nach Albert Abraham Michelson (\* 19.12.1852 in Strelno, Provinz Posen; † 09.05.1931 in Pasadena, Kalifornien; 1907 Nobelpreis für Physik) benannte Michelson-Interferometer. Bei diesem Aufbau (Abb. 9) werden zwei Repliken eines Laserpulses  $E_{\omega}(\omega) = E_A(\omega) \cdot e^{i[\omega t + \phi(\omega)]}$  miteinander zur Interferenz gebracht, die unterschiedlich lange Wege *L1* und *L2* zurückgelegt haben. Über die Lichtgeschwindigkeit rechnet sich dieser Wegunterschied  $\Delta L = L2 - L1$  in einen Laufzeitunterschied  $\tau = \frac{\Delta L}{c}$  zwischen den beiden Pulsen um. Dies führt im Spektrum



zu Interferenzstreifen mit einem konstanten Abstand zwischen aufeinanderfolgenden Maxima von  $\Delta \omega = \frac{2\pi}{\tau}$ .

$$S_{Michel}(\omega) \sim E_A^2(\omega) + E_A^2(\omega) \cdot \cos(\omega \cdot \tau)$$
(1.65)

(mathematische Beschreibung eines Michelson-Interferogramms, Herleitung s. Anhang)

So erhält man aus einem Michelson-Interferogramm Informationen über den Laufzeitunterschied der beiden Pulsrepliken, was diese Technik für Weglängenmessungen geeignet macht; Informationen über die Phase des Ausgangspulses sind mit diesem Aufbau jedoch nicht zu erhalten.

Schafft man es, die beiden Pulse nicht nur zeitlich um einen Betrag  $\tau$  voneinander zu trennen, sondern sie auch spektral um eine Betrag  $\Delta\Omega$  gegeneinander zu verschieben, ändert sich das Bild. Die Interferenzstreifen sind nicht länger äquidistant.

$$S(\omega) \sim |E_{A}(\omega + \Delta\Omega)|^{2} + |E_{A}(\omega)|^{2} + 2|E_{A}(\omega + \Delta\Omega) \cdot E_{A}(\omega)| \cdot \cos[\phi(\omega + \Delta\Omega) - \phi(\omega) - \omega\tau]$$
(1.66)

(mathematische Beschreibung eines SPIDER-Interferogramms, Herleitung s. Anhang)

In dem oszillatorischen Term, der für die Bildung der Interferenzstreifen verantwortlich ist, taucht neben dem von Michelson bekannten  $\omega \tau$  auch der Differenzterm

$$\phi_{\text{Diff}} = \phi(\omega + \Delta\Omega) - \phi(\omega) \tag{1.67}$$

auf. Dies führt zu einer Modulation des Streifenabstandes in Abhängigkeit der Phase  $\phi$  des einfallenden Laserpulses. Dies sieht man sehr gut, wenn man einmal die SPIDER-Signale für einen bandbreitenbegrenzten Puls ( $\phi(\omega) = 0$ ) und einmal für einen Puls, der durch 10cm Glas gelaufen ist, gegenüber stellt (Abb. 10).



**Abb. 10** – Einfluss der Phase auf die SPIDER-Interferogramme SPIDER-Interferogramme für einen Gaußpuls bei  $\lambda_0$ =800nm, FWHM=100nm. Zur besseren Verdeutlichung des Effekts wurde der Pulsabstand mit  $\tau$ =100fs<sup>2</sup> sehr klein gewählt. Die spektrale Verschiebung beträgt  $\Delta\Omega$ =2.5e12 rad/s. Schwarz: bandbreitenbegrenzter Puls, rot: Puls nach 10cm BK7

Durch Analyse der Streifenabstände in einem SPIDER-Interferogramm kann man auf die spektrale Phase des ursprünglichen Laserpulses rückschließen. Auf den genauen Rekonstruktionsalgorithmus zur Analyse der SPIDER-Signale werde ich später noch im Detail eingehen, wenn es darum gehen wird, die tatsächlich gemessenen Interferogramme auszuwerten. Zunächst soll es darum gehen, den Aufbau eines solchen Gerätes zur Aufzeichnung der gewünschten Interferogramme zu beschreiben.

### 4.2 Konstruktion des SPIDER-Apparates

Wie im vorangehenden Abschnitt gezeigt wurde, kann ein SPIDER im Wesentlichen durch folgendes Blockschaltbild dargestellt werden (Abb. 11):



Abb. 11 – Blockschaltbild eines SPIDER-Apparates Der ursprüngliche Laserpuls wird in zwei Repliken aufgespalten, die sowohl im Zeitraum als auch im Frequenzraum gegeneinander verschoben werden. Anschließend wird das Interferogramm mit einem Spektrometer aufgezeichnet.

Der ankommende Laserpuls wird aufgespalten in zwei Pulse, die sowohl in der Zeit- als auch in der Frequenzdomäne gegeneinander verschoben werden. Durch anschließende Überlagerung dieser beiden Pulse entsteht im Spektrometer das gewünschte Interferenzbild. Für die Konstruktion eines solchen Apparates bedeutet dies also zum einen, dass man es schaffen muss, einen Doppelpuls mit definiertem Pulsabstand  $\tau$  zu generieren, und dass man zum anderen diese beiden Pulse gegeneinander noch um den Betrag  $\Delta\Omega$  spektral verschieben muss.

### 4.2.1 Die zeitliche Aufspaltung – Erzeugung des Doppelpulses

Wie bereits in 4.1 erläutert, lassen sich der Doppelpuls und die zeitliche Aufspaltung der beiden Pulse sehr gut mit einem Michelson-Interferometer erreichen. Hier kann man durch Einstellen der Armlängen  $L_1$  bzw.  $L_2$  den Wert für  $\tau$  sehr genau kontrollieren. Folglich ist es sinnvoll, den SPIDER-Apparat auf einem solchen Interferometer aufzubauen.

Schwieriger ist es, anschließend die aus dem Interferometer erhaltenen Pulse noch spektral gegeneinander zu verschieben. Um dies zu erreichen, macht man sich den Effekt der Summenfrequenzbildung in einem nichtlinearen Kristall, wie z.B. BBO, zu Nutze.

## 4.2.2 Die spektrale Verschiebung - Summenfrequenzbildung in BBO

Im Vakuumfall gilt für die elektrische Verschiebung  $\vec{D}$ :

$$\vec{D} = \mathcal{E}_0 \vec{E} . \tag{1.68}$$

 $(\varepsilon_0: Dielektrizitätskonstante, elektrische Feldkonstante, Vakuum Permitivität)$ 

In Materie muss diese einfache Definition, wie bereits in (1.51) angedeutet, erweitert werden. Dieser Gleichung liegt die Vorstellung zu Grunde, dass die elektrische Feldstärke  $\vec{E}$  einer elektromagnetischen Welle, die in ein Medium eindringt, eine Kraft auf die im Medium elastisch gebundenen Elektronen ausübt. Dadurch beginnen die Elektronen im Medium mit der Lichtfrequenz zu oszillieren. Die Summe aller Momente der so entstandenen Dipole (pro Volumeneinheit) wird als elektrische Polarisation  $\vec{P}$  bezeichnet, und man schreibt die dielektrische Verschiebung im Medium wie bereits angegeben als

$$\vec{D} = \underbrace{\varepsilon_0 \vec{E}}_{Vakuumanteil} + \vec{P}.$$
(1.69)

Im isotropen Fall schreibt man oft vereinfachend

$$\vec{D} = \underbrace{\varepsilon_0 \varepsilon_r}_{=:\varepsilon} \vec{E}$$
(1.70)

und fasst somit den Einfluss des Mediums in der relativen Permitivität  $\varepsilon_r$  zusammen.

Die so entstandenen elektrischen Dipole wirken wie Sender (Hertzsche Dipole) und sind dadurch Ausgangspunkt einer neuen elektromagentischen Welle, die in ihrer Frequenz mit der Ursprungswelle übereinstimmt, deren Phase aber aufgrund der Trägheit des Mediums gegenüber der Ursprungswelle verschoben ist. Diese Phasenverschiebung macht sich nach außen als veränderte Lichtgeschwindigkeit bemerkbar und findet ihren Ausdruck im bekannten Brechungsindex n des Materials.

In der klassischen Optik wird angenommen, dass ein linearer Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feld  $\vec{E}$  und der induzierten Polarisation  $\vec{P}$  besteht.

$$\vec{P} = \vec{P}_{L(inear)} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$$
(1.71)

Hierbei bezeichnet  $\chi^{(1)}$  die sogenannte elektrische Suszeptibilität (lat.: susceptibilis – Übernahmefähigkeit), das ist eine dimensionslose Stoffkonstante, die frequenzabhängig sein kann. Für den Zusammenhang zwischen  $\varepsilon_r$  und  $\chi^{(1)}$  gilt:

$$\vec{D} = \underbrace{\varepsilon_0 \varepsilon_r}_{=:\vec{\varepsilon}} \vec{E} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}_L = \varepsilon_0 \vec{E} + \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$$

$$\varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} = \varepsilon_0 \left(1 + \chi^{(1)}\right) \vec{E}$$

$$\varepsilon_r = \left(1 + \chi^{(1)}\right) .$$
(1.72)

Mit

$$\varepsilon_0 \mu_0 = \frac{1}{c^2} \wedge \varepsilon_0 \varepsilon_r \mu_0 \mu_r = \frac{1}{v^2} \implies \frac{\sqrt{\varepsilon_0 \varepsilon_r \mu_0 \mu_r}}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}} = \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} = \frac{c}{v} = n$$
(1.73)

(µ: Influenzkonstante, c: Lichtgeschwindigkeit, v: Lichtgeschwindigkeit im Medium)

lässt sich hieraus für den Fall  $\mu_r = 1$  eine einfache Beziehung zwischen der Suszeptibiliät und dem Brechungsindex herleiten. Es gilt

$$n = \sqrt{\varepsilon_r} = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} . \tag{1.74}$$

Im anisotropen Fall behalten diese Gleichungen ihre Gültigkeit, allerdings werden dann die Größen  $\varepsilon_r \to \vec{\varepsilon}_r$  und  $\chi^{(1)} \to \vec{\chi}^{(1)}$  zu Tensoren zweiter Stufe (3×3-Matrix).

Bei hohen Intensitäten, wie sie bei den in dieser Arbeit verwendeten Laserpulsen auftreten, reicht obige lineare Beziehung (1.71) nicht mehr aus, um das Verhalten des Mediums zu beschreiben. Sie muss um einen nichtlinearen Anteil  $\vec{P}_{NL}$  ergänzt werden. Bleiben die betrachteten Feldstärken unterhalb der Zerstörschwelle des Mediums, kann man die Polarisation eines verlustfreien Mediums in einer Taylorreihe entwickeln. Es gilt dann:

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} = \mathcal{E}_0 \left( \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right) = \sum_{n=1}^{N} \vec{P}^{(n)} .$$
(1.75)

Es ist wichtig zu bemerken, dass diese Näherung nur für verlustfreie Medien gilt. Ist diese Bedingung nicht erfüllt, ist der Zeitverlauf von  $\vec{P}$  und  $\vec{E}$  aufgrund der Phasenverschiebung zwischen  $\vec{E}$  und  $\vec{P}$  unterschiedlich und die mathematische Beschreibung wird deutlich komplizierter [9]. Dazu kommen im allgemeinen Fall auch noch magnetische Effekte, wie z.B. der Faraday-Effekt, welche die Polarisation beeinflussen können. Diese sollen hier aber ebenfalls nicht weiter berücksichtigt werden.

Die neu auftretenden nichtlinearen Terme in der Polarisation sind verantwortlich für eine Reihe neuer Effekte, wie der Erzeugung von Harmonischen oder der Bildung von Summenbzw. Differenzfrequenzen. Betrachtet man beispielsweise eine monochromatische Kosinuswelle  $(E = A \cdot \cos(\omega t))$ , die in ein verlustfreies Medium eintritt, und berücksichtig für die Polarisation neben dem linearen Term  $P^{(1)}$  auch den quadratischen Beitrag  $P^{(2)}$ , so erhält man

$$P = \varepsilon_0 \left[ \chi^{(1)} A \cdot \cos(\omega t) + \left( \chi^{(2)} A \right) A \cdot \cos^2(\omega t) \right]$$
(1.76)

und mit [2]

$$\cos^{2}(x) = \frac{1}{2} (1 + \cos(2x))$$
(1.77)

folgt schließlich

$$P = \underbrace{\varepsilon_{0} \chi^{(1)} A \cdot \cos\left(\omega t\right)}_{P_{L}=P^{(1)}} + \underbrace{\frac{\varepsilon_{0}}{2} \left(\chi^{(2)} A\right) A}_{P_{gleich}} + \underbrace{\frac{\varepsilon_{0}}{2} \left(\chi^{(2)} A\right) A \cdot \cos\left(2\omega t\right)}_{P_{2\omega}}.$$
(1.78)

Das heißt, in der Polarisationswelle tauchen neben der Grundwelle mit der Frequenz  $\omega$  auch ein Gleichanteil sowie ein Beitrag bei der doppelten Frequenz  $2\omega$  auf. Da die Polarisationswellen ihrerseits wieder elektromagnetische Wellen abstrahlen, ist somit nach dem Kristalldurchgang neben dem eingestrahlten Licht auch eine Welle mit doppelter Frequenz zu beobachten. Dieser Effekt wird als Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG engl.: second harmonic generation) bezeichnet.

Analog erhält man für ein eingestrahltes Feld, das aus zwei monochromatischen Wellen zusammengesetzt ist  $(E = E_1(\omega_1) + E_2(\omega_2))$ , neben den SHG-Signalen bei  $2\omega_1$  und  $2\omega_2$ auch Signale bei den Frequenzen  $(\omega_1 + \omega_2)$  und  $(\omega_1 - \omega_2)$ , die als Summen- (SFG - engl. sum frequency generation) bzw. als Differenzsignal (DFG – engl.: difference frequency generation) bezeichnet werden.

Dieser Effekt lässt sich nun nutzen, um die für den SPIDER benötigte Frequenzverschiebung zwischen den beiden Pulsrepliken aus dem Michelson-Interferometer zu erzeugen. Hierzu erzeugt man durch einen zusätzlichen Beamsplitter vor dem Michelson-Interferometer eine dritte Replik des einfallenden fs-Laserpulses und streckt diese mit Hilfe eines dispersiven Mediums auf einige Picosekunden. Durch den so induzierten Chirp werden die Farben in dem gestreckten Puls sortiert. Überlagert man nun den Doppelpuls aus dem Michelson-Interfermoter mit diesem gestreckten Puls in einem nichtlinearen Kristall, so erzeugen die beiden nur wenige Femtosekunden langen Pulse (Zentralfrequenz  $\omega_0$ ) aufgrund ihrer zeitlichen Separation jeweils mit einem anderen Teil des gestreckten Pulses ein SFG-Signal.



**Abb. 12** – Erzeugung von  $\Delta\Omega$  mittels SFG Der Doppelpuls aus dem Michelson-Interferometer wird mit dem gestreckten Puls gemischt. Aufgrund der zeitlichen Trennung der beiden fs-Pulse wechselwirken diese mit unterschiedlichen Teilen

des gestreckten Pulses. So entsehen SFG-Signale

bei  $(\omega_0 + \omega_1)$  und  $(\omega_0 + \omega_2)$ .

Hierbei kann der Frequenzbeitrag des gestreckten Pulses aufgrund des starken Chirps über die Dauer eines der beiden fs-Pulse jeweils als konstant angenommen werden. So entstehen schließlich zwei Pulse bei den Zentralfrequenzen  $\omega_{SFG(1,2)} = \omega_0 + \omega_{1,2}$  (Abb. 12), die im Frequenzbereich gegeneinander um den Betrag  $\Delta\Omega = |\omega_2 - \omega_1|$  verschoben sind.

Zu berücksichtigen ist hierbei jedoch, dass bei einem kolinearen Strahlverlauf, wie er in Abb. 12 skizziert ist, sowohl die SHG-Signale des Doppelpulses und des gestreckten Pulses  $(2\omega_0)$  als auch die gesuchten SFG-Signale  $(\omega_0 + \omega_{1,2} \approx 2\omega_0)$  in die gleiche Richtung laufen und so im Spektrometer nicht voneinander zu trennen sind. Dazu kommt noch die verbleibende Laserstrahlung bei  $\omega_0$ , die aufgrund der hohen Intensität zu zusätzlichen Problemen führen kann und ebenfalls in die gleiche Richtung wie das Nutzsignal läuft.

Um diesen Problemen zu entgehen, bietet sich eine nichtkolineare Anordnung an, wie sie in Abb. 13 skizziert ist. Hierbei werden die beiden Strahlen unter einem Winkel  $\alpha$  in den Kristall geschickt. Bei dieser Geometrie addieren sich die k-Vektoren der einzelnen Pulse vektoriell zum k-Vektor des SFG-Signals (Impulserhaltung). Dadurch läuft das Nutzsignal getrennt von den übrigen Pulsen auf der Winkelhalbierenden zwischen den einfallenden Strahlen und kann durch den Einsatz einer einfachen Blende von der restlichen Strahlung getrennt werden.



**Abb. 13** – Nichtkolinearer Strahlverlauf zur Summenfrequenzerzeugung Links: Doppelpuls und gestreckter Puls treffen unter dem Winkel  $\alpha$  auf den Kristall. Die einzelnen SHG-Signale verlassen den Kristall getrennt vom SFG-Signal (Winkelhalbierende) und können ausgeblendet werden. Rechts: zugehöriges Diagramm der Impulserhaltung  $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$ .

# 4.2.3 Der komplette Aufbau des SPIDER-Apparates

Mit den Überlegungen aus den vorangegangenen Abschnitten lässt sich für den SPIDER somit das folgende Setup realisieren (Abb. 14).



Abb. 14 – Schematischer Aufbau des SPIDER-Apparates Detaillierte Beschreibung s. Text

Das einfallende Licht (Strahlhöhe auf dem Tisch h=100mm) wird über die Spiegel M1 und M2 in die Apparatur eingekoppelt. Hierbei dienen die nachgeschalteten Blenden B1 und B2 sowohl der Lagekontrolle des Strahls als auch der Begrenzung des Strahldurchmessers innerhalb des SPIDER auf 5mm. Anschließend wird der Strahl am Beamsplitter BS1 das erste Mal aufgespalten. 90% des einfallenden Lichtes passieren den Beamsplitter und gelangen in den Strecker, wo der Puls durch zwei Gitter von anfänglich ca. 10fs auf etwa 10ps gestreckt wird. Hierbei ändert sich durch den Dachspiegel DS1 die Strahlhöhe von anfänglich 100mm auf 90mm am Ausgang des Streckers, so dass der rückläufige Strahl den Spiegel S1 (Spiegelhöhe 90mm) trifft und in das Periskop PS gelenkt wird. Dieses dreht zum einen die Polarisation des gestreckten Strahls, so dass dessen Polarisation nun gegenüber derjenigen des Doppelpulses um 90° gedreht ist, und ändert zum anderen ein zweites mal die Strahlhöhe auf nun 110mm.

Die restlichen 10% des Strahls gelangen nach der Reflektion an BS1 über den Verschiebetisch T1, der es später erlaubt, das Delay zwischen dem gestreckten Puls und dem Doppelpuls Michelson-Interferometer. Dieses einzustellen. in das besteht aus den beiden Verschiebetischen T2 und T3, sowie den beiden Beamsplittern BS2 und BS3, die den Strahl jeweils im Verhältnis 1:1 aufteilen. Die beiden Arme des Interferometers sind so eingestellt, dass die beiden Pulse einen Wegunterschied von etwa 230µm durchlaufen, wodurch ein Doppelpuls mit einem Pulsabstand von ca. 800fs entsteht. Durch Justage auf die beiden Blenden B2 und B3 am Ausgang des Interferometers kann sichergestellt werden, dass die beiden Teilstrahlen parallel geführt werden.

Am Beamsplitter BS4 treffen schließlich der gestreckte Puls (h=110mm) und der Doppelpuls (h=100mm) wieder aufeinander und werden über eine goldbeschichtete, 90°-offaxis Parabel mit einer Brennweite von EFL=50,8mm (EFL – engl.: effective focal length) in den Kristall fokussiert. Durch den Höhenunterschied zwischen den beiden Strahlen von  $\delta h = 10mm$  und der Brennweite der Parabel von EFL=50,8mm ergibt sich zwischen den beiden Strahlen somit ein Nichtkolinearitätswinkel  $\alpha$  von:

$$\sum_{\alpha/2} \delta_{h/2} \implies \alpha = 2 \arctan\left(\frac{\delta h}{2}\right) \approx 11,24^{\circ}$$
 (1.79)

Nachdem die ungewünschten SFG-Signale durch eine Schlitzblende separiert wurden, wird das SPIDER-Signal durch eine Linse auf den Eintrittsspalt des Spektrometers fokussiert und schließlich von einer CCD aufgezeichnet.

Zusätzlich kann hinter Blende B3 eine Faseroptik eingesetzt werden, die es zusammen mit einem zweiten Spektrometer erlaubt, parallel zum SPIDER-Signal das Michelson-Signal in der Fundamentalen aufzuzeichnen. Hieraus kann später der Pulsabstand  $\tau$  zwischen den beiden fs-Pulsen ermittelt werden (vergleiche (1.65)).

## 4.2.4 Berechnung der einzustellenden Parameter

Im Folgenden möchte ich detaillierter auf das Design einiger Bauteile eingehen. Insbesondere wird hierbei das Augenmerk auf den nichtlinearen Kristall zur Frequenzkonversion sowie auf den einzustellenden Pulsabstand und die Wahl der Gitter für den Strecker gelegt. Dies sind die Parameter, die das Auflösungsvermögen des SPIDER maßgeblich beeinflussen.

4.2.4.1 Berechnung der Schnittwinkel und der Dicke des nichtlinearen Kristalls

Wie in 4.2.2 dargelegt wurde, soll der nichtlineare Beitrag zur Polarisation in einem BBO-Kristall genutzt werden, um die spektrale Verschiebung  $\Delta\Omega$  zwischen den beiden fs-Pulsen zu erreichen.

Die Gitterstruktur eines Kristalls wird allgemein beschrieben durch die drei kürzesten linear unabhängigen Vektoren  $\vec{e}_x$ ,  $\vec{e}_y$  und  $\vec{e}_z$ , welche je zwei Punkte des Kristallgitters miteinander verbinden. Diese Grundvektoren spannen die Elementarzelle des Kristalls auf. Jeden anderen Punkt  $\vec{r}$  des Kristallgitters erreicht man durch Addition dieser *Grundvektoren*  $\vec{r} = \sum n_i \vec{e}_i$ .

Neben den durch diese Vektoren ausgezeichneten Richtungen x, y und z gibt es bei vielen Kristallen weitere ausgezeichnete Richtungen, die sich aus Symmetrien des Kristalls ergeben. Verbindet man zwei Punkte des Kristallgitters durch eine Gerade und kann den Kristall um die so entstandene Achse um einen Winkel  $\alpha < 360^{\circ}$  drehen, so dass man durch diese Rotation ein symmetrisches (in vollem Umfang identisches) Bild erhält, spricht man von einer *Symmetrieachse*. In der Nomenklatur der Kristallographie unterscheidet man zwischen zwei-, drei-, vier- und sechszähligen Symmetrieachsen. Das bedeutet, nach jeweils einer Drehung um  $\frac{360^{\circ}}{n} = 180^{\circ}$ ,  $120^{\circ}$ ,  $90^{\circ}$ ,  $60^{\circ}$  wird der Kristall in sich selbst überführt. Anderszählige Symmetrieachsen sind nicht vorstellbar, da aus z.B. fünf- oder siebenzähligen Elementen keine Raumgitter aufgebaut werden können: Nur mit Rechtecken oder gleichseitigen

keine Raumgitter aufgebaut werden können: Nur mit Rechtecken oder gleichseitigen Rhomben (zweizählig), gleichseitigen Dreiecken (dreizählig), Quadraten (vierzählig) oder gleichseitigen Sechsecken (sechszählig) lässt sich eine Raumebene vollständig ausfüllen.

Darüber hinaus zeichnet sich ein Kristall durch seine optischen Eigenschaften aus. So ist bei vielen Kristallen zu beobachten, dass die Lichtgeschwindigkeit und damit der Brechungsindex von der Ausbreitungsrichtung und der Polarisation der einfallenden elektromagnetischen Welle abhängen. Gleichzeitig gibt es in diesen Kristallen eine ausgezeichnete Richtung, die sogenannte *optische Achse*. Für elektromagnetische Wellen, die sich in Richtung der optischen Achse ausbreiten, ist keine Abhängigkeit der Lichtgeschwindigkeit von der Polarisation der Welle festzustellen. Je nachdem, ob der Kristall eine oder zwei dieser Vorzugsrichtungen aufweist, spricht man von uni- oder biaxialen Kristallen. Des weiteren ist für das Verständnis der folgenden Abschnitte der Begriff der *Hauptebene* von Bedeutung. Sie bezeichnet diejenige Ebene, welche durch die optische Achse und den k-Vektor der einfallenden Welle aufgespannt wird.

Bei dem in den hier vorgestellten Experimenten verwendeten BBO-Kristall handelt es sich um einen uniaxialen Kristall, dessen optische Achse zudem mit der z-Achse des Kristalls zusammenfällt. Damit ergibt sich für den nichtkolinearen Strahlverlauf im Kristall folgendes Bild (Abb. 15).



**Abb. 15** – Geometrie des doppelbrechenden Kristalls Die einfallenden Strahlen (rot) erzeugen durch Summenfrequenzbildung das SPIDER-Signal (blau) im 2 $\omega$ -Bereich. Hierbei spalten sich die Pulse in einen senkrecht und einen parallel zur Hauptachse polarisierten Anteil auf. Durch geeignete Wahl des Winkels  $\Theta$  kann eine Phasenfehlanpassung vermieden werden.

Wie bereits angedeutet hängt die Lichtgeschwindigkeit im Kristall von der Polarisation der einfallenden Welle ab. Hierbei sind zwei Fälle zu unterscheiden. Im ersten Fall schwingt das elektrische Feld der Welle senkrecht zur Hauptebene  $(E_{\perp})$ . Da in diesem Fall der E-Vektor keine Komponenten in z-Richtung aufweist, ist dieser Fall unabhängig vom Winkel  $\theta$ . Ein solcher Strahl wird als ordentlicher Strahl (franz.: rayon ordinaire, o-Strahl) bezeichnet. Für diesen Fall kann ein von  $\theta$  unabhängiger Brechungsindex  $n_o$  angegeben werden. Er verknüpft die Lichtgeschwindigkeit für einen senkrecht zur optischen Achse polarisierten Strahl mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit:  $n_0 = \frac{c}{v_e}$ .

Im zweiten Fall schwingt das einfallende E-Feld in der Hauptebene  $(E_{\parallel})$ . Abhängig vom Winkel  $\theta$ , ändern sich die Projektionen auf die z-Achse bzw. auf die xy-Ebene. Ein solcher Strahl wird als außerordentlicher Strahl (franz.: rayon extraordinaire, e-Strahl) bezeichnet. Die Ausbreitung eines e-Strahls wird durch einen von  $\theta$  abhängigen Brechungsindex  $n_e(\theta)$  charakterisiert. Besonders ausgezeichnet ist hierbei der Brechungsindex bei  $\theta = 90^{\circ}$ .

In diesem Fall schwingt das E-Feld nicht nur in der Hauptebene, sondern auch parallel zur optischen Achse. Für einen Strahl mit komplett parallel ausgerichtetem E-Feld gilt:

$$n_e\left(90^\circ\right) = \frac{c}{v_{\parallel}} \,.$$

Jeder nicht senkrecht oder parallel zur Hauptebene polarisierte Strahl zerfällt beim Übergang in den Kristall in je einen o- und einen e-polarisierten Teilstrahl, die sich aufgrund der unterschiedlichen Brechzahlen  $n_o$  und  $n_e$  unter unterschiedlichen Winkeln im Kristall ausbreiten. Dieses Phänomen wird als Doppelbrechung bezeichnet.

Die Differenz der Brechzahlen  $\Delta n = n_e - n_o$  ist ein Maß für die Doppelbrechung; das Vorzeichen wird als optischer Charakter (oder optische Orientierung) bezeichnet. Beta-Bariumborat ist ein optisch negativer Kristall, d.h. hier ist  $n_o$  größer als  $n_e$  (90°).

Zur Beschreibung der Winkel und Wellenlängenabhängigkeit der unterschiedlichen Brechungsindizes  $n_o(\lambda)$  und  $n_e(\theta, \lambda)$  entwickelte 1871 W. Sellmeier die nach ihm benannten Sellmeiergleichungen [10]

$$n_o^2(\lambda) = A_o + \frac{B_1^o}{(\lambda[\mu m])^2 - B_1^o} - \frac{C_1^o}{C_2^o - (\lambda[\mu m])^2}$$
(1.80)

$$n_{e}^{2}(\lambda) = n_{e}^{2}(\lambda, 90^{\circ}) = A_{e} + \frac{B_{1}^{e}}{(\lambda[\mu m])^{2} - B_{1}^{e}} - \frac{C_{1}^{e}}{C_{2}^{e} - (\lambda[\mu m])^{2}}$$
(1.81)

$$n_{e}(\lambda,\theta) = n_{o}(\lambda) \sqrt{\frac{1 + \tan^{2}(\theta)}{1 + \frac{n_{o}^{2}(\lambda) \cdot \tan(\theta)}{n_{e}^{2}(\lambda)}}}$$
(1.82)

Hierbei sind die materialspezifischen Konstanten  $A_i$ ,  $B_i$  und  $C_i$  empirisch zu ermitteln und z.B. in [25] oder im Schott-Glaskatalog [26] tabelliert. Der Hersteller Castech gibt in seinen Produktspezifikationen [27] für BBO an:

$$n_0^2 = 2.7359 + \frac{0.01878}{\left(\lambda[\mu m]\right)^2 - 0.01822} - 0.01354 \cdot \left(\lambda[\mu m]\right)^2$$
(1.83)

$$n_e^2 = 2.3753 + \frac{0.01224}{\left(\lambda[\mu m]\right)^2 - 0.01667} - 0.0151 \cdot \left(\lambda[\mu m]\right)^2.$$
(1.84)

In 4.2.2 wurde bereits die nichtkolineare Geometrie vorgestellt, die in den hier dargestellten Experimenten Verwendung findet. Im optimalen Fall gilt:

$$\vec{k}_{SFG} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \,. \tag{1.85}$$

Aufgrund der Polarisations-, Theta- und Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindexes wird es im allgemeinen Fall einer solchen nichtkolinearen Geometrie jedoch zu einer Fehlanpassung  $\Delta \vec{k}$  kommen (Abb. 16), so dass statt (1.85) gilt:



**Abb. 16** – Nichtkolinearer Strahlverlauf im BBO-Kristall Zu erkennen ist, dass aufgrund der Polarisations-, Theta- und Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindexes nicht  $\vec{k}_{SFG} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$  gilt. Es kommt zur Ausbildung einer Fehlanpassung  $\Delta \vec{k}$ .

$$\vec{k}_{SFG} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \Delta \vec{k} . \tag{1.86}$$

Hierbei richtet sich  $\vec{k}_{SFG}$  so aus, dass die Phasenfehlanpassung  $\Delta \vec{k}$  minimal wird. Dies bedeutet, dass  $\Delta \vec{k}$  parallel zu  $\vec{k}_{SFG}$  ausgerichtet ist. Für einen optimalen Impulsübertrag von den einfallenden Strahlen auf das SFG-Signal muss es das Ziel sein, den Beitrag  $\Delta \vec{k}$ möglichst klein zu halten. Für den Fall  $\Delta k = 0$  spricht man von sogenannter Phasenanpassung. Diese ist durch geeignete Wahl des Winkels  $\theta$  sowie des Nichtkolinearitätswinkels  $\alpha$  zu erreichen. Es gilt:

$$\vec{s} := \Delta \vec{k} + \vec{k}_{SFG} \tag{1.87}$$

und mit dem Kosinussatz im Dreieck  $\Delta ABC$  erhält man für  $\Delta k = 0$ 

$$0 = \sqrt{\frac{n_1^2(\lambda_1)}{\lambda_1^2} + \frac{n_2^2(\lambda_2)}{\lambda_2^2} + \frac{n_1(\lambda_1)}{\lambda_1} \cdot \frac{n_2(\lambda_2)}{\lambda_2} \cdot \cos(\alpha)} - \frac{n_{SFG}(\lambda_{SFG})}{\lambda_{SFG}}.$$
 (1.88)

Da die Brechungsindizes je nach Polarisationsrichtung der beiden einfallenden Strahlen 1 und 2 sowie des erzeugten SFG-Signals nicht nur von  $\lambda$ , sondern für e-polarisierte Strahlen auch von Theta abhängen, können so über Gleichung (1.88) eine Relation zwischen diesen beiden Parametern hergeleitet und geeignete Wertepaare ( $\alpha$ , $\theta$ ) für eine Phasenanpassung gefunden werden. Hierfür ist neben der Polarisation der einfallenden Strahlen, die man im Experiment vorgeben kann, auch die Polarisation des SFG-Signals entscheidend. Um hierüber eine Aussage treffen zu können, ist es erforderlich, sich noch einmal mit der grundlegenden Beziehung zwischen den eingestrahlten elektrischen Feldern und der Polarisation im Medium (Gleichung (1.75)) auseinanderzusetzen.

In Abschnitt 4.2.2 wurde gezeigt, wie sich aus Gleichung (1.75) in einfacher Weise die Entstehung von SHG- (vgl. (1.78)) bzw. SFG-Signalen ableiten lässt, ohne näher auf die tatsächliche Struktur des Suszeptibilitätstensors  $\chi^{(2)}$  einzugehen. Dies soll jetzt nachgeholt werden.

Zur Erinnerung ist hier noch einmal Gleichung (1.75) aufgeführt (wegen fortlaufender Nummerierung der Formeln hier als Gleichung (1.89) genannt)

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} = \varepsilon_0 \left( \chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \dots \right) = \sum_{n=1}^{\infty} \vec{P}^{(n)} .$$
(1.89)

Wie [10] ausführt, gilt allgemein, dass die Suszeptibilitätskoeffizienten n-ter Ordnung durch einen Tensor (n+1)-ter Stufe repräsentiert werden.

Der nichtlineare Beitrag zweiter Ordnung  $\vec{P}^{(2)} = \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} \vec{E} \vec{E}$  wird entsprechend durch den Tensor dritter Stufe  $\vec{\chi}^{(2)}$ , im allgemeinen Fall also durch eine  $3 \times 3 \times 3$ -Matrix mit 27 Einträgen beschrieben. Diese verbindet die 9 Einträge des quadratischen Feldstärketerms  $\vec{E}\vec{E} = \vec{E} \otimes \vec{E}$  mit den drei Komponenten der nichtlinearen Polarisation  $\vec{P}^{(2)}$ . In Komponenten wird  $\vec{P}^{(2)}$  beschrieben durch

$$P_i^{(2)} = \varepsilon_0 \sum_{jk} \chi_{i,j,k}^{(2)} E_j E_k .$$
(1.90)

Da das E-Feld mit sich selbst multipliziert wird, spielt die Reihenfolge der Feldkomponenten keine Rolle  $(E_j E_k = E_k E_j)$ . Entsprechend müssen die Terme  $E_j E_k$  und  $E_k E_j$  jeweils den gleichen Beitrag zur Summe  $\sum_{jk}$  liefern. Dies bedeutet für den Tensor  $\chi^{(2)}$  somit, dass gelten muss:

$$\chi_{i,j,k}^{(2)} = \chi_{i,k,j}^{(2)}.$$
(1.91)

Da die Indizes i, j und k im  $\mathbb{R}^3$  die Werte 1, 2, 3 (bzw. x, y, z) durchlaufen, ergeben sich aus dieser Bedingung neun Nebenbedingungen, die die Anzahl der unterschiedlichen Elemente für  $\vec{\chi}^{(2)}$  von 27 auf 18 reduzieren. Um dieser Vereinfachung Rechnung zu tragen, hat sich die Schreibweise der d-Koeffizienten eingebürgert. Mit Hinblick auf (1.78), wo gezeigt wurde, dass die Erzeugung der Oberwellen im Wesentlichen durch den Term  $P_{2\omega} = \frac{\varepsilon_0}{2} (\chi^{(2)} A) A \cdot \cos(2\omega t)$  beschrieben wird, schreibt man zunächst

$$\chi_{i,j,k}^{(2)} = 2 \cdot d_{i,j,k} \,. \tag{1.92}$$

Anschließend führt man unter Berücksichtung der Symmetrie aus (1.91) stellvertretend für die Indizes j und k den Index l ein, wobei gilt:

und kann damit für den d-Tensor vereinfachend schreiben

$$\vec{d} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix}$$
(1.93)

Diese d-Koeffizienten sind stoffspezifisch und können für einige wichtige Stoffe unter anderem in [10], [11] nachgelesen werden. Oft werden diese Angaben auf den Wert  $d_{36}(KDP) = 0,44 \ pm \cdot V^{-1}$  bezogen. Der Hersteller Castech gibt für den in dieser Arbeit verwendeten BBO-Kristall z.B. an:

$$d_{11} = 5,8 \cdot d_{36} (KDP)$$
  
$$d_{31} = 0,05 \cdot d_{11}$$
  
$$d_{22} < 0.05 \cdot d_{11}$$

(d-Koeffizienten für BBO, die nicht aufgeführten Koeffizienten sind gleich Null)

Nach [10] lässt sich mit Hilfe des  $\vec{d}$ -Tensors die für die Summenfrequenzbildung verantwortliche Polarisation schreiben als

$$\vec{P}_{SFG} = \begin{pmatrix} P_x^{(2)} \\ P_y^{(2)} \\ P_z^{(2)} \end{pmatrix} = 2\varepsilon_0 \cdot \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_x(\omega_2)E_z(\omega_1) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_x(\omega_2)E_y(\omega_1) \end{pmatrix} . (1.94)$$

Setzt man in diese Gleichung die d-Koeffizienten für BBO ein, erhält man für die Polarisation des SFG-Signals

$$\vec{P}_{SFG}(BBO) = 2\varepsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} \cdot E_x(\omega_1) E_x(\omega_2) \\ d_{22} \cdot E_y(\omega_1) E_y(\omega_2) \\ d_{31} \cdot E_x(\omega_1) E_x(\omega_2) \end{pmatrix}.$$
(1.95)

Aufgrund des nicht verschwindenden  $d_{31}$ -Koeffizienten wird das SFG-Signal im BBO-Kristall immer einen Beitrag in z-Richtung haben und ist somit e-polarisiert. Die Beiträge in x- und y-Richtung erklären sich durch den Winkel  $\theta$ , durch den das E-Feld des SFG-Signals zwar in der Hauptebene, aber nicht zwangsweise parallel zur z-Achse schwingt.

Nachdem nun die Polarisationsrichtung des SFG-Signals bekannt ist, bleibt noch zu klären, wie die einfallenden Strahlen polarisiert werden müssen.

Hierzu gilt es zu bedenken, dass man zwischen zwei Typen der SFG-Bildung unterscheidet. Bei den sogenannten Typ I Prozessen sind beide einfallenden Strahlen gleich polarisiert. Bei den Prozessen des Typs II sind die einfallenden Strahlen entsprechend senkrecht zueinander polarisiert. [7] gibt an, dass die spektrale Bandbreite im o-Ast der Typ II Wechselwirkung im Allgemeinen wesentlich größer ist, als die Bandbreite bei einem Typ I Prozess in einem Kristall gleichen Materials und gleicher Dicke. Im Gegenzug ist dafür allerdings die Bandbreite im e-Ast entsprechend kleiner. Für einen BBO-Kristall von  $30\mu m$  Dicke gibt er für eine SFG vom Typ II beispielsweise an, dass die Konversionseffizienz im Bereich von 660nm bis 1000nm um lediglich 20% variiert, wohingegen beim Typ I Prozess dieses Wellenlängenintervall nur von 750nm bis 880nm geht.

Berücksichtigt man, dass in den hier durchzuführenden Experimenten Laserpulse mit Pulsdauern <10fs benutzt werden sollen, ist eine große spektrale Bandbreite für den Ast, in dem die beiden komprimierten Teilpulse aus dem Michelson-Interferometer laufen, wünschenswert. Für den gestreckten Puls ist dies nicht erforderlich, da von diesem nicht das gesamte Spektrum, sondern nur ein kleines Frequenzintervall in der Größe von  $\Delta\Omega$  benötigt wird.

Diese Überlegungen führen zu dem Schluss, dass für den in dieser Arbeit verwendeten SPIDER eine SFG vom Typ II sinnvoll ist. Dabei sollten die Polarisationsrichtungen in den einzelnen Ästen wie folgt gewählt werden:

1. Doppelpuls mit großer Bandbreite: o-Strahl 
$$\Rightarrow n_1(\lambda_1) = n_{1,o}(\lambda_1)$$
  
2. gestreckter Puls: e-Strahl  $\Rightarrow n_2(\lambda_2) = n_{2,e}(\lambda_2, \theta)$  (1.96)  
3. SFG-Signal: e-Strahl  $\Rightarrow n_{SEG}(\lambda_{SEG}) = n_{SEG,e}(\lambda_{SEG}, \theta)$ .

Mit diesem Ergebnis kann man zu Gleichung (1.88) zurückkehren und den in Abb. 17 dargestellten Zusammenhang zwischen  $\alpha$  und  $\theta$  für die Phasenanpassung im BBO-Kristall herleiten.





Damit steht für  $\theta$  ein breites Fenster zur Verfügung, in dem Phasenanpassung möglich ist. Möchte man jedoch eine unnötige Streckung des SFG-Signals vermeiden, ist es unumgänglich, neben der Anpassung der Phasengeschwindigkeiten  $v_{Ph}$  auch eine Anpassung der Gruppengeschwindigkeiten  $v_g$  (GVM – engl.: group-velocity mismatch) vorzunehmen.

Da der gestreckte Puls  $k_2$  für die kurze Dauer eines der fs-Pulse als monochromatisch und unendlich ausgedehnt angesehen werden kann, braucht nur eine Anpassung zwischen dem Doppelpuls und dem Summensignal eingestellt zu werden. Hierbei ist zu beachten, dass  $\vec{v}_{g,1}$ und  $\vec{v}_{g,SFG}$  in unterschiedliche Richtungen weisen (vgl. Abb. 16). Folglich gilt es für die Optimierung der GVM die Projektion von  $\vec{v}_{g,1}$  auf  $\vec{v}_{g,SFG}$  zu betrachten. Zu lösen ist demnach

$$v_{g,1} \cdot \cos\left(\alpha_1\right) = v_{g,SFG}. \tag{1.97}$$

Unter der Annahme  $\Delta k = 0$  gilt für den Winkel  $\alpha_1$  (s. Abb. 16)

$$\alpha_{1} = \arcsin\left(\frac{k_{2}}{k_{SFG}}\sin\left(\alpha\right)\right)$$
(1.98)

und nach [10] gilt für die Gruppengeschwindigkeit

$$v_{Ph} = \frac{c_0}{n}$$

$$v_g = v_{Ph} - \lambda \frac{dv_{Ph}}{d\lambda} .$$
(1.99)

Durch Einsetzen der entsprechenden Brechungsindizes (Sellmeiergleichungen) aus (1.83) und (1.84) in (1.99) lässt sich aus (1.97) unter Zuhilfenahme von (1.98) die in Abb. 18 dargestellte Beziehung zwischen  $\alpha$  und  $\theta$  unter der Nebenbedingung verschwindender GVM herleiten.



Abb. 18 – Gruppengeschwindigkeitsfehlanpassung

Rot: Zusammenhang zwischen Phasenanpassungswinkel  $\theta$  und Nichtkolinearitätswinkel  $\alpha$  unter der Nebenbedingung verschwindender Gruppengeschwindigkeitsfehlanpassung für nichtkolineare SFG in BBO. Schwarz: Entsprechende Kurve für verschwindende Phasenfehlanpassung. Durch den Schnittpunkt der beiden Kurven sind  $\alpha$  und  $\Theta$  eindeutig festgelegt.

Da für den Betrieb des SPIDER optimaler Weise sowohl eine Anpassung der Phasen- als auch der Gruppengeschwindigkeiten eingestellt wird, sind durch diese beiden Randbedingungen die Winkel  $\alpha$  und  $\theta$  eindeutig festgelegt.

$$\theta = 0.8645 \doteq 49,53^{\circ}$$
  

$$\alpha = 0.2054 \doteq 11,77^{\circ}$$
(1.100)

Nachdem somit der Schnittwinkel des Kristalls festgelegt ist, bleibt die Frage nach der Dicke des Kristalls. Hierzu gilt es zu berücksichtigen, dass Laserpulse mit einer Pulslänge kleiner 10fs untersucht werden sollen. Für diese ist die Pulsverlängerung aufgrund von Materialdispersion beim Durchgang durch ein Medium nicht mehr zu vernachlässigen. Für die Abhängigkeit der Pulslänge von der Materialdispersion gilt (siehe Gleichung (1.22))

$$\Delta_{I,streck} t \approx \Delta_{I,0} t \cdot \sqrt{1 + 7,69 \left(\frac{D_2}{\Delta_{I,0} t^2}\right)^2} . \tag{1.101}$$

Der e-polarisierte gestreckte Puls ist bereits so lang, dass der Einfluss des Kristalls auf die Pulslänge vernachlässigt werden kann. Für den o-polarisierten Doppelpuls lässt sich der benötigte Wert für D<sub>2</sub> mit Hilfe der Sellmeiergleichung (1.83) für den Brechungsindex  $n_0(\lambda)$ sowie der Taylorentwicklung der Phasenfunktion (1.17) berechnen. Es gilt

$$D_{m} = \frac{x}{c_{0}} \left( \frac{\partial^{m}}{\partial \omega^{m}} \omega \cdot n(\omega) \right)_{\omega = \omega_{0}} \Rightarrow D_{2} = \frac{x}{c_{0}} \left( \frac{\partial^{2}}{\partial \omega^{2}} \omega \cdot n(\omega) \right)_{\omega = \omega_{0}}$$
(1.102)  
$$n_{0}^{2} = 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda [\mu m]^{2} - 0.01822} - 0.01354 \cdot \lambda [\mu m]^{2}.$$

Mit  $\lambda(\omega) = \frac{2\pi c}{\omega}$  ergibt sich für die Zentralwellenlänge des Ti:Sa-Lasers  $\lambda_0 = 800nm$  ein  $D_2$  von

$$D_2(BBO) = 764 \frac{fs^2}{cm}$$
 (1.103)

Nimmt man an, dass der Ausgangspuls eine Länge von  $\Delta_{I,0}t = 10 fs$  hat, ergibt sich mit diesem Wert für  $D_2$  der in Abb. 19 dargestellte Zusammenhang zwischen Kristalldicke und Pulslänge.

Betrachtet man die Kristalldicke nicht nur mit Blick auf eine mögliche Pulsverlängerung, sondern auch unter experimentellen Gesichtspunkten, so stellt man fest, dass bei einer Kristalldicke von etwa  $30\mu m$  die Grenze erreicht ist, bis zu der heute Kristalle mit einer Oberflächengüte von  $\lambda_{10}$  hergestellt werden können, ohne dass zusätzliche Trägersubstrate benötigt werden und die dank entsprechender Halterungen im experimentellen Alltag trotz der nur geringen Dicke unproblematisch in der Handhabung sind.



**Abb. 19** – Pulsverlängerung Pulslänge eines ursprünglich 10fs langen Ti:Sa@800nm-Pulses in Abhängigkeit der Kristalldicke.

Beim Durchgang durch einen Kristall dieser Dicke verlängert sich ein 10fs-Puls laut Gleichung (1.101) auf 10,02fs. Dies entspricht einer zu vernachlässigenden Abweichung von 0,2%, so dass unter dem Gesichtspunkt einer einfachen Handhabbarkeit im Experiment und in Anlehnung an [8] für den in dieser Arbeit verwendeten Kristall eine Kristalldicke von  $30\mu m$  gewählt wurde.

Damit sind die benötigten Parameter ( $\theta = 49,53^{\circ}$ ,  $\alpha = 11,77^{\circ}$ ,  $d = 30\mu m$ ) für den Kristall bekannt. In den folgenden beiden Abschnitten soll es um den Pulsabstand  $\tau$  zwischen den beiden fs-Pulsen und den Chirp/die Streckung des langen Pulses gehen, also um die beiden Größen, aus deren Zusammenspiel im Kristall sich letztlich die Frequenzverschiebung  $\Delta\Omega$ ergibt. 4.2.4.2 Der Pulsabstand – Einstellung des Michelson Interferometers

Hier geht es zunächst um die Einstellung des Pulsabstandes  $\tau$ , da diese im Wesentlichen von der Wahl des verwendeten Spektrometers und der angeschlossenen CCD abhängt.

Für die hier vorgestellten Experimente stand ein abbildender Gitterspektrograph in Czerney-Turner-Anordnung mit einer Ausgangsbrennweite von f = 257mm zur Verfügung. Das verwendete Gitter hat eine Gitterkonstante von  $g = 1200 mm^{-1}$  ("Linien" pro mm) und ist für eine Wellenlänge von 300nm geblazed. Daran angeschlossen ist eine vakuumgekapselte, back-illuminated CCD mit einer Auflösung von  $2048 \times 512$  Pixeln bei einer Pixelgröße von  $13,5 \times 13,5 \mu m^2$ . Um das thermische Rauchen zu reduzieren und auch schwache Signale gut detektieren zu können, wird der Chip bis auf  $-70^{\circ}C$  heruntergekühlt. Aufgrund der Kapselung des Chips sind Verunreinigungen durch Niederschläge aus der Raumluft (Kühlfalle) nicht zu befürchten, so dass die Kamera ohne zusätzliche Vakuumapparaturen auskommt. Um die Detektion von Signalen im UV-Bereich zu ermöglichen, ist die Kapselung aus Quarzglas gefertigt. Zusätzlich ist auf dem Chip eine spezielle UV/AR-Beschichtung aufgebracht, die die Quanteneffizienz im blauen und UV-Bereich erhöht.

Nach [12] gilt für die lineare Dispersion eines Gitters Gleichung (1.104), wobei d den Abstand der Gitterstriche und m die Beugungsordnung angibt. Die Lage des Winkels  $\beta$  ist Abb. 20 zu entnehmen.

$$r \cdot D = \frac{r \cdot \partial \beta}{\partial \lambda} \stackrel{b:=\frac{l}{r}}{=} \frac{\partial l}{\partial \lambda} = \frac{r \cdot m}{d} \sec(\beta) = g \cdot m \cdot r \cdot \sec(\beta).$$
(1.104)





Die einfallende Wellenfront trifft unter dem Winkel  $\alpha$  auf das Gitter. Aufgrund der auftretenden Interferenzeffekte breitet sich die gebeugte Wellenfront unter dem Winkel  $\beta$  zur Gitternormalen aus.

Für das verwendete Gitter gilt  $g = 1200 \, mm^{-1}$ , m = 1 und r = f = 257 mm. Außerdem gilt für kleine Winkel  $\sec(\beta) \approx 1$ . Damit folgt schließlich

$$\frac{\partial l}{\partial \lambda} \approx 1200 \frac{1}{mm} \cdot 257mm = 308.400.$$
(1.105)

Dies bedeutet, dass eine Wellenlängenänderung von  $\Delta \lambda = 1nm$  einer Strecke von  $\Delta l(1nm) = 308.400 \cdot \Delta \lambda = 308, 4\mu m$  (~ 23*Pixel*) im Spektrum (d.h. auf der CCD) entspricht. Nachdem somit das Auflösungsvermögen des Spektrometers mit 23*pix/nm* bekannt ist, gilt es zu überlegen, wie breit das zu erwartende SPIDER-Signal sein wird.

Betrachtet man für eine einfache Abschätzung vereinfachend den Prozess der SHG statt des kompliziert zu beschreibenden Falls der SFG, so ist aus (1.78) bekannt, dass im Zeitraum gilt

$$E_{2\omega}(t) \sim E_{\omega}^{2}(t), \qquad (1.106)$$

bzw. mit  $I \sim E^2$ 

$$I_{2\omega}(t) \sim I_{\omega}^2(t). \tag{1.107}$$

Geht man von einem Gaußprofil für den zeitlichen Pulsverlauf aus, so bedeutet diese Quadrierung eine Verkürzung des  $2\omega$ -Signals gegenüber dem  $\omega$ -Signal um (vgl. (1.12))

$$FWHM_{I(t),2\omega} = \frac{1}{\sqrt{2}} FWHM_{I(t),\omega}.$$
 (1.108)

Physikalisch liegt diese Pulsverbreiterung in der Nichtlinearität des SHG-Prozesses begründet. Der Prozess funktioniert umso effizienter, je höher die Intensität ist. Folglich wird in der Mitte des Pulses (Bereich hoher Intensität) effizient  $2\omega$ -Strahlung erzeugt, wohingegen in den zeitlich vor- bzw. nachgelagerten Flanken aufgrund der niedrigeren Intensitäten die Umwandlungseffizienz stark abnimmt. Somit ist der  $2\omega$ -Puls zeitlich kürzer als der Ausgangspuls. Dies bedingt über das Pulslänge-Bandbreiten-Produkt (1.13) aber eine spektrale Verbreiterung des  $2\omega$ -Signals gegenüber dem  $\omega$ -Signal um den reziproken Faktor, so dass im Frequenzraum gilt

$$FWHM_{I(\omega),2\omega} = \sqrt{2} \cdot FWHM_{I(\omega),\omega}.$$
(1.109)

Leider ist der Zusammenhang zwischen  $\omega$  und  $\lambda$  nicht linear, so dass für die Umrechnung von  $\Delta \omega \rightarrow \Delta \lambda$  noch berücksichtig werden muss:

$$\lambda = 2\pi \frac{c}{\omega} \implies \omega^2 = \frac{4\pi^2 c^2}{\lambda^2}$$
(1.110)

$$\left|\frac{\partial\lambda}{\partial\omega}\right| = 2\pi \frac{c}{\omega^2} = \frac{\lambda^2}{2\pi c} \implies \Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{2\pi c} \cdot \Delta\omega.$$
(1.111)

Setzt man nun (1.109) in (1.111) ein, so erhält man unter Berücksichtigung von  $\lambda_{2\omega} = \frac{1}{2} \lambda_{\omega}$ 

$$\Delta \lambda_{2\omega} = \frac{\left(\frac{1}{2}\lambda_{\omega}\right)^{2}}{2\pi c} \cdot \sqrt{2} \cdot FWHM_{I(\omega),\omega} = \frac{1}{\sqrt{8}} \cdot \frac{\lambda_{\omega}}{2\pi c} \cdot FWHM_{I(\omega),\omega} .$$
(1.112)

Das heißt, das  $2\omega$ -Spektrum ist um den Faktor  $\frac{1}{\sqrt{8}}$  schmaler als das Spektrum des ursprünglichen Laserpulses. Für den hier verwendeten Laserpuls mit einer Bandbreite von  $\Delta_{I,\omega} = 100nm$  bedeutet dies eine Bandbreite des  $2\omega$ -Signals von

$$\Delta\lambda_{2\omega} = \frac{1}{\sqrt{8}} \Delta\lambda_{\omega} = 35, 4nm. \qquad (1.113)$$

Bei einer errechneten Auflösung von 23 pix/nm bedeutet dies eine Gesamtzahl von 815 Pixeln über die Strecke des  $2\omega$ -Spektrums.

[13] hat detaillierte Untersuchungen zum Einfluss von Rauschen auf das SPIDER-Signal in Abhängigkeit der Wahl des Pulsabstandes und der spektralen Verschiebung  $\Delta\Omega$ durchgeführt. Hierzu hat er ein numerisches SPIDER-Modell im PC erzeugt und die SPIDER-Signale für unterschiedliche Rauschpegel, die er dem Ausgangspuls aufgeprägt hat, miteinander verglichen. Bei diesen Untersuchungen hat sich gezeigt, dass für eine stabile Evaluation der Phase aus den SPIDER-Interferogrammen die Auswertung von mindestens 20 bis 30 Interferenzstreifen empfehlenswert ist, wobei jeder Interferenzstreifen mit etwa 15 Pixeln aufgelöst werden sollte. Da es sich bei der empfohlenen Anzahl der Interferenzstreifen nur um eine Mindestangabe handelt und der Einfluss von Rauschen möglichst gering gehalten werden soll, ist es das Ziel möglichst viele Interferenzstreifen für die Evaluation der Phase heranzuziehen. Geht man von 50 zu analysierenden Streifen aus, so ergibt sich bei einer Gesamtzahl von 815 Pixeln unter dem Spektrum eine Zahl von 16 Pixeln pro Streifen, was ebenfalls leicht über dem empfohlenen Wert von 15 liegt. Für den Abstand der Interferenzstreifen untereinander bedeutet dies

$$\Delta \lambda_{Streifen} = \frac{35, 4nm}{50} = 0, 7nm.$$
(1.114)

Geht man von einer Zentralwellenlänge des  $2\omega$ -Signals von 400nm aus, erhält man hieraus einen einzustellenden Pulsabstand  $\tau$  von

$$\tau = \frac{\lambda^2}{c \cdot \Delta \lambda} = \frac{(400nm)^2}{3 \cdot 10^8 \frac{m}{s} \cdot 0,7nm} = 0,76\,ps\,, \qquad (1.115)$$

bzw.

$$\underline{\Delta L} = \tau \cdot c_0 = 0,76 \, ps \cdot 3 \cdot 10^8 \, \frac{m}{s} = \underline{228 \mu m} \,. \tag{1.116}$$

Neben den Daten für den Kristall sind somit auch die Einstellungen für den Doppelpuls bekannt und es fehlt als letzter Parameter für die SFG und damit die Erzeugung des SPIDER-Signals die spektrale Verschiebung  $\Delta\Omega$  und damit die Streckung des langen Pulses. Dieser Punkt wird im nächsten Abschnitt behandelt.

## 4.2.4.3 Berechnung der Gitter für den Strecker

Wie bereits in Abschnitt 4.2.2 erläutert wurde, wird die für den Betrieb des SPIDER nötige Frequenzverschiebung  $\Delta\Omega$  durch Summenfrequenzbildung der beiden fs-Teilpulse mit den unterschiedlichen Teilen einer gestreckten Replik des Ausgangspulses erzeugt.

Gemäß des Whitaker Shannon Sampling Theorems [14] lässt sich ein Signal der Länge t nur dann komplett auflösen, wenn gilt:

$$t \le T = \frac{2\pi}{\Delta\Omega}.\tag{1.117}$$

Bei einer festen Pulslänge  $\tau_p$  gibt diese Bedingung die obere Grenze für  $\Delta\Omega$  vor. Gleichzeitig darf  $\Delta\Omega$  nicht zu klein gewählt werden, da sonst die zu rekonstruierende Phase  $\phi(\omega)$  an den Stellen  $\omega$  und  $\omega + \Delta\Omega$  kaum noch voneinander zu unterscheiden ist und das Signal im Rauschen untergeht.

[13] hat bei seinen Untersuchungen zum Einfluss von Rauschen auf das SPIDER-Signal nicht nur den Einfluss des Pulsabstandes, sondern auch den Einfluss der spektralen Verschiebung auf das Signal zu Rausch Verhältnis näher betrachtet. Dabei hat er entdeckt, dass es bei der Wahl von  $\Delta\Omega$  ein breites Plateau ( $\Delta\Omega/\Delta_I\omega_0 = 4\%$  ... 35%) gibt, über das die Einflüsse von Störungen auf das SPIDER-Signal minimal sind.

[15] hat Untersuchungen an einem 5fs-Ti:Sa@800nm-Puls durchgeführt. Der in diesen Experimenten verwendete Puls hatte eine Bandbreite von  $\Delta v = 133THz$ , womit theoretisch sogar eine Pulslänge von 3.3fs (Pulslänge-Bandbreite-Produkt:  $\tau_p \cdot \Delta_l v \approx 0.441$ ) möglich gewesen wäre. Die spektrale Verschiebung betrug in diesem Fall  $\Delta v = 2.81THz$ , woraus sich mit  $\Delta v / \Delta_l v_0 \approx 3\%$  eine relative Verschiebung ergibt, die sogar noch leicht unterhalb der von [13] empfohlenen Grenze von 4% liegt. Um diese Verschiebung zu erreichen, hat [15] den einfallenden Puls bei zweimaligem Durchgang durch einen 10cm langen TF5-Glasblock mit einem  $D_2$  von insgesamt 46.000 fs<sup>2</sup> gestreckt.

Überträgt man diesen Wert auf den Puls von 10fs Länge, der in den vorgestellten Experimenten verwendet wurde, so ergibt sich mit (1.21) eine relative Verschiebung der beiden Teilpulse von.

$$\frac{\Delta v}{\Delta_{t} v_{0}} = \frac{2.4THz}{44.1THz} \approx 5.4\%$$
(1.118)

Für den gestreckten Puls ergibt sich daraus mit (1.22) eine Länge von

$$\Delta_{I,streck} t = \Delta_{I,0} t \cdot \sqrt{1 + 7,69 \left(\frac{D_2}{\Delta_{I,0} t^2}\right)^2} = 18,2\,ps \,. \tag{1.119}$$

In der Regel wird diese Streckung in SPIDER-Apparaten durch die Verwendung entsprechend langer Glasblöcke unter Ausnutzung der Materialdispersion erzielt. Dieses Konzept hat allerdings zwei entscheidende Nachteile. Zum einen sind entsprechend lange Glasblöcke nur schwer in ausreichender optischer Qualität, d.h. ohne Schlierenbildungen, herzustellen und entsprechend teuer. Zum anderen ist ein solcher Aufbau starr; ein entsprechend gebauter SPIDER ist auf bestimmte Laserparameter (Zentralwellenlänge, Bandbreite) ausgelegt. Soll der Apparat nicht nur für die hier vorgestellten Experimente eingesetzt werden, ist eine größere Flexibilität wünschenswert. Die Zentralwellenlänge der zu untersuchenden Pulse bleibt durch die Wahl des nichtlinearen Kristalls für die Frequenzkonversion zwar eine feste Größe, gestaltet man die Pulsstreckung und damit den Wert für  $\Delta\Omega$  aber variabel, kann der hier vorgestellte SPIDER für die Diagnose von Ti:Sa-Pulsen verschiedenster Bandbreite eingesetzt werden. So wird in dem hier genutzten Lasersystem beispielsweise das Spektrum eines kommerziellen CPA-Lasers mit einer Pulslänge von ca. 30fs und einer Bandbreite von 35nm durch Selbstphasenmodulation in einer Hohlfaser auf die benötigten 100nm verbreitert, um Pulse mit einer Pulslänge unter 10fs zu ermöglichen. Des weiteren sind zukünftig Ausbaustufen geplant, die Pulsenergien von einigen Joule in 20fs und damit einer Bandbreite von etwa 50nm haben sollen.

Um den SPIDER optimal an diese unterschiedlichen Bedingungen/Bandbreiten anpassen zu können, ist es unerlässlich, neben dem Pulsabstand der fs-Pulse auch die Streckung des langen Pulses und damit  $\Delta\Omega$  variabel zu halten. Dies wird möglich durch den Einsatz eines Gitterpaares anstelle des sonst üblichen Glasblockes als dispersivem Element. Da der SPIDER im Messbetrieb keine beweglichen Teile enthält, die Justage des Streckers für einen gegebenen Laser also nur einmal durchgeführt werden muss, fällt der zusätzliche Justageaufwand im Vergleich zu der gewonnenen Variabilität nicht weiter ins Gewicht. Somit gilt es, einen Gitterstrecker zu konstruieren, der mit einem D<sub>2</sub> von 46.000fs<sup>2</sup> den einfallenden 10fs-Puls ( $\lambda_{blau} = 750nm$ ,  $\lambda_0 = 800nm$ ,  $\lambda_{rot} = 850nm$ ) auf 18,2ps streckt. Eine Skizze dieses Streckers ist in Abb. 21 zu sehen.



#### Abb. 21 – Inverser Gitterkompressor

Der inverse Gitterkompressor besteht aus zwei gleichen, parallel zueinander ausgerichteten Reflexionsgittern und einem Endspiegel, der den einfallenden Strahl in sich selbst zurück reflektiert. Durch den unterschiedlich langen Weg, den unterschiedliche Wellenlängen in dieser Anordnung zurücklegen, kommt es zu einer Sortierung der Farben im Puls. Bei einem zuvor komprimierten Puls führt dies zu einer zeitlichen Streckung. Das Prinzip des vorgestellten Aufbaus beruht auf der Tatsache, dass der "rote" Anteil des einfallenden Laserpulses einen längeren optischen Weg hat als der "blaue" Anteil. Aus diesem Wegunterschied ergibt sich eine räumliche und somit auch zeitliche Streckung des Pulses.

Der Strecker besteht im Wesentlichen aus zwei identischen Reflexionsgittern, die im Abstand D (für  $\lambda = \lambda_0$ ) exakt parallel zueinander ausgerichtet sind. Für einen unter dem Winkel  $\alpha$  auf das erste Gitter treffenden Strahl kann man in Abhängigkeit von der Wellenlänge einen Ausdruck für den Dispersionsbeitrag zweiter Ordnung dieser Anordnung herleiten. [3] findet hierfür den Ausdruck

$$D_2 = -2 \cdot \frac{D}{c} \cdot \frac{\lambda}{2\pi \cdot c} \cdot \left(\frac{\lambda \cdot g}{\cos(\beta_0)}\right)^2$$
(1.120)

Damit kann man sich überlegen, welchen Gitterabstand D und welchen Einfallswinkel  $\alpha$ bzw. Reflexionswinkel  $\beta_0$  man für ein gegebenes Gitterpaar (g) und eine gegebene Zentralwellenlänge  $\lambda = 800nm$  einstellen muss, um den gewünschten Phasenbeitrag von  $D_2 = 46.000 fs^2$  zu erhalten.

Da die Beugungseffizienz von Reflexionsgittern nach Herstellerangaben für kleine Gitterkonstanten stark einbricht ( $R < 60\% \ f\ddot{u}r \ g < 1000 mm^{-1}$ ), die Intensität des Pulses durch die Streckung jedoch bereits um mehrere Größenordnungen abnimmt, wurden für den hier vorgestellten Aufbau zwei 3x3 cm<sup>2</sup> Sinusgitter mit einer Gitterkonstanten von  $g = 1200 mm^{-1}$  und einer Beugungseffizienz für die erste Ordnung von R>90% gewählt.

Mit diesen Angaben  $(D_2 = 46.000 fs^2, \lambda = 800 nm, g = 1200 mm^{-1})$  lässt sich aus (1.120) eine Beziehung zwischen  $\beta_0$  und dem Gitterabstand D herleiten. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 22 graphisch dargestellt. Wie man sieht, nimmt der Gitterabstand mit zunehmendem  $\beta_0$ schnell ab. Um eine Justage der Gitter zu ermöglichen, ist jedoch ein Mindestabstand von D > 1cm vonnöten. Andernfalls ist es nahezu unmöglich, den Strahlverlauf des IR-Strahls zwischen den Gittern zu verfolgen. Auch liegen dann die Reflexe der verschiedenen Beugungsordnungen so dicht zusammen, dass sie nicht mehr voneinander getrennt werden können. Auf der anderen Seite darf  $\beta_0$  auch nicht zu klein gewählt werden, da sonst der am ersten Gitter gebeugte Strahl senkrecht auf das zweite Gitter trifft und den Strecker nicht mehr



**Abb. 22** – Gitterabstand für  $D_2=46.000fs^2$ Zusammenhang zwischen Gitterabstand D und Winkel  $\beta_0$  für ein Gitterpaar mit 1200 Linien pro Millimeter und einem gewünschten  $D_2$  von  $46.000fs^2$ . Für den SPIDER wurden gewählt:  $\beta_0=5,13^\circ$  und D=1,75cm.

in Richtung des Endspiegels verlassen kann. Um diesen Anforderungen Rechnung zu tragen, wurde in dem hier verwendeten Aufbau ein Gitterabstand von D=1,75cm gewählt. Dementsprechend ergibt sich  $\beta_0 = 5.13^\circ$ , und mit Hilfe der Gittergleichung erhält man für den Einfallswinkel:

$$\alpha = \arcsin\left(g \cdot \lambda - \sin\left(\beta\right)\right) = 60,54^{\circ}. \tag{1.121}$$

Bleibt noch zu überprüfen, ob bei dieser Parameterwahl das gesamte, am ersten Gitter gebeugte, Spektrum auf das zweite Gitter passt, oder ob das Signal an den Rändern abgeschnitten wird. Nimmt man an, dass das Laserspektrum mit einer FWHM von 100nm um  $\lambda_0 = 800nm$  zentriert ist, so erhält man aus der Gittergleichung folgende Beugungswinkel für die Ränder des Spektrums:

$$\beta_{rot} \left( \lambda = 850 nm \right) = \arcsin\left(g \cdot \lambda - \sin\left(\alpha\right)\right) = 8,59^{\circ}$$
  

$$\beta_{blau} \left( \lambda = 750 nm \right) = \arcsin\left(g \cdot \lambda - \sin\left(\alpha\right)\right) = 1,68^{\circ}.$$
(1.122)

Damit errechnet sich die Länge des Spektrums auf dem zweiten Gitter zu

$$L_{1} = D_{0} \cdot \tan(\beta_{rot}) - D_{0} \cdot \tan(\beta_{blau}) = 2, 1mm, \qquad (1.123)$$

so dass selbst bei einem Strahldurchmesser von 5mm das gesamte Spektrum problemlos auf den 3x3cm<sup>2</sup> großen Gittern Platz findet und keine Teile des Strahls abgeschnitten werden.

Entsprechend gilt für den Abstand des unter dem Winkel  $\alpha = 60,54^{\circ}$  einfallenden Strahls und des am stärksten abgelenkten roten Teils des Spektrums in der Ebene des zweiten Gitters

$$L_{2} = D_{0} \cdot \tan(\alpha) - D_{0} \cdot \tan(\beta_{rot}) = 2,83cm, \qquad (1.124)$$

so dass es ohne weiteres möglich ist, den einfallenden Strahl am zweiten Gitter vorbei in den Strecker einzukoppeln, wenn man das spektral aufgespaltene Signal auf Gitter zwei mittig positioniert.

### 4.3 Das verwendete Lasersystem

Aufbau und Funktionsweise der eingesetzten Hauptdiagnostik wurden dargelegt. In den nächsten beiden Abschnitten folgt die Beschreibung des Gesamtaufbaus des hier durchgeführten Experimentes zur Untersuchung der Wechselwirkung von sub-10-fs-Laserpulsen mit Targets unterkritischer Dichte (Gasjets). Hierzu soll zunächst das verwendete Düsseldorfer GW-Lasersystem als Quelle der zu untersuchenden fs-Laserpulse und anschließend der Aufbau der Targetkammer als Interaktionszone mit dem Gasjet vorgestellt werden.

Das Düsseldorfer GW-Lasersystem basiert auf einem kommerziellen Ti:Saphir CPA (engl.: Chirped Pulse Amplification – kurz CPA [16], [17]) System. Die ultrakurzen Laserpulse werden in einem Ti:Sa-Oszillator erzeugt, der von einem frequenzverdoppelten, diodengepumpten Nd:YAG-Laser kontinuierlich gepumpt wird. In dem Oszillator schwingt dabei ein etwa 100nm breites ( $\lambda_0 = 790nm$ ) Spektrum an, dessen Moden passiv mittels Kerr-Linsen-Effekt [18], [19] gekoppelt werden. Durch den Einsatz gechirpter Spiegel [20], die speziell auf das Design des Oszillators abgestimmt sind, wird der Phasenbeitrag der optischen Bauteile im Resonator kompensiert, so dass am Ausgang Pulse mit einer Länge von ca. 10fs und einer Repetitionsrate von 80 MHz vorliegen. Die Durchschnittsleistung des Strahls liegt bei ca. 400mW, woraus sich eine Energie von etwa 5nJ pro Puls errechnet.

Um die Energie der Pulse zu erhöhen, werden sie in einen 9-Pass-Verstärker eingekoppelt. Dazu werden die Pulse unter Ausnutzung der Materialdispersion eines 5cm langen SF57 Glasblocks zunächst auf eine Pulslänge  $\tau > 10 ps$  gestreckt. Zusätzlich zu diesem Glasblock wird ein akkusto-optischer Modulator (Dazzler [21]) durchlaufen, der aufgrund seines einstellbaren Phasenbeitrages eine Optimierung des anschließenden Verstärkungsprozesses und der letztlich erreichbaren Pulslänge ermöglicht. So gestreckt laufen die Pulse neunmal durch einen zweiten Ti:Sa-Kristall, der durch zwei Durchläufe eines gepulsten ( $\tau \approx 200ns$ ) Nd-YLF-Lasers (frequenzverdoppelt) optisch gepumpt wird. Die Repetitionsrate dieses Pumplasers liegt bei 1kHz und stellt somit den limitierenden Faktor für die Repititionsrate des Gesamtsystems dar. Um die Repetitionsraten des Oszillators und des Verstärkers einander anzupassen, wird eine Pockelszelle mit zwei gekreuzten Polarisatoren eingesetzt, die passend zu jedem Pumppuls des Nd-YLF genau einen Puls des 80MHz Pulszuges aus dem Oszillator durchlässt. Die übrigen Oszillatorpulse werden geblockt und können dem Verstärkerkristall keine Energie entziehen.

Die von der Pockelszelle durchgelassenen und verstärkten Pulse jedoch werden anschließend in einem Prismenkompressor rekomprimiert, so dass am Ausgang des Verstärkers Pulse mit einer Pulslänge von ca. 25fs, bei einer Repetitionsrate von 1kHz, mit einer Energie von etwa 800µJ pro Puls (Durchschnittsleistung 800mW) zur Verfügung stehen. Hierbei ist die spektrale Bandbreite der Pulse aufgrund des gain-narrowings im Ti:Sa-Kristall auf *FWHM*  $\approx$  50*nm* begrenzt, was auch die deutlich erhöhte Pulslänge von 25fs im Vergleich zu den ursprünglichen 10fs der Oszillatorpulse erklärt. Eine Skizze dieses kommerziellen Lasersystems ist in Abb. 23 dargestellt.



#### Abb. 23 – Das Femto-Lasersystem

Funktionsskizze des Femto-Lasersystems: Im unteren Drittel ist die Erzeugung der Pulse durch den Ti:Sa Oszillator und ihre Streckung durch den SF57 Glasblock dargestellt. In der Mitte ist der Multi-Pass-Verstärker zu sehen und im oberen Drittel ist die zeitliche Rekomprimierung der Pulse durch den eingesetzten Prismenkompressor skizziert. Wie aus dem Pulslänge-Bandbreiten-Produkt (1.13) zu ersehen ist, reicht die Bandbreite dieses kommerziellen System von ca. 50nm nicht aus, um Laserpulse mit Pulslängen  $\tau < 10 fs$ zu erzeugen. Hierfür werden Bandbreiten von  $\Delta \lambda_{FWHM} > 100nm$  benötigt. Dies wird in Düsseldorf erreicht, indem man die 25fs-Pulse mit Hilfe einer Linse (f = 1m) in eine 250 $\mu m$ durchmessende, ein Meter lange, mit Neon gefüllte  $(p_{Ne} \approx 2bar)$  Hohlfaser einkoppelt. Durch die Fokussierung und die damit erreichten hohen Intensitäten kann der nichtlineare, intensitätsabhängige Brechungsindex  $n_2(I)$  des Edelgases nicht mehr vernachlässigt werden und Selbstphasenmodulation tritt auf [22] (s. auch Kapitel 3.1), in deren Folge sich das Laserspektrum verbreitert. Ein Vergleich der Laserspektren vor und nach der Hohlfaser ist in Abb. 24 zu sehen. Hingewiesen werden muss darauf, dass diese spektrale Verbreiterung auf Kosten der Pulsenergie geht. Ca. 50% der eingekoppelten Energie geht auf dem Weg durch die Hohlfaser verloren, so dass die Pulse hinter der Faser zwar die gewünschte spektrale Breite, aber nur noch 400 $\mu J$  Pulsenergie besitzen.



**Abb. 24** – Vergleich der Spektren vor und nach der Faser Deutlich ist die Verbreiterung des Spektrums nach der Faser zu erkennen. Ebenfalls gut zu erkennen ist die durch die Selbstphasenmodulation entstandene Modulation des Spektrums (vgl. auch Kapitel 3.1).

Um die gewünschte Pulslänge von unter 10fs zu erreichen, werden die Pulse abschließend durch einen Kompressor, bestehend aus einem Set von acht, speziell für diesen Laser angefertigten, gechirpten Spiegeln, geleitet, an dessen Ende sie schließlich mit einer Pulslänge von 7fs bis 8fs in die Beamline zu den Targetkammern eingekoppelt werden. Wichtig ist hierbei, dass dieser letzte Kompressor und die gesamte anschließende Beamline unter Vakuum gehalten werden, da die ultrakurzen Pulse ansonsten aufgrund der Dispersion der Luft wieder auseinander laufen würden.

# 4.4 Der Aufbau der Targetkammer

Nach dem Passieren der Beamline werden die Laserpulse in die Targetkammer eingekoppelt. Aufgrund von Reflexionsverlusten in Kompressor und Beamline steht in der Targetkammer letztlich eine Pulsenergie von  $E_{Puls} = 60 \mu J$  zur Verfügung. Eine Skizze des grundlegenden experimentellen Setups ist in Abb. 25 zu sehen.

Der ankommende Puls wird über einen hochreflektiven, dielektrischen Spiegel (optimiert für 22.5°) auf einen goldbeschichteten 45°-off-axis Parabolspiegel mit einer effektiven Brennweite von  $f_{EFL} = 119mm$  gelenkt. Dieser fokussiert den Strahl 750µm über eine Gasdüse, wobei der Fokus so platziert wurde, dass er am Anfang des Gasjets liegt. Auf diese Weise kann der Strahl im Vakuum, ohne Beeinflussung durch das Gas oder entstehendes Plasma (Defokussierung), optimal fokussiert werden und erreicht beim Eintritt in das Gas seine maximale Intensität.



Abb. 25 – Schematischer Aufbau des Gasjetexperiments Der einfallende Laserstrahl wird über eine Parabel in den Gasjet fokussiert und anschließend über eine Linse rekollimiert, bevor er in den SPIDER eingekoppelt wird. Zu Diagnosezwecken kann vor der Linse ein zusätzlicher Spiegel in den Strahlengang eingebracht werden, der das Licht auf eine CCD umlenkt.

Um nicht die gesamte Kammer mit Gas zu fluten, arbeitete die Düse gepulst und war so getriggert, dass sie sich 5ms vor Eintreffen des Laserpulses für eine Dauer von 10ms öffnete. Durch den Einsatz zweier Turbomolekularpumpen mit vorgeschalteten Drehschieberpumpen war es so möglich, in der Kammer einen Druck von einigen  $10^{-5} - 10^{-4} mbar$  aufrechtzuerhalten, wenn man die Repetitionsrate der Düse je nach Gasart und eingestelltem Düsenvordruck auf  $\frac{1}{4}Hz - \frac{1}{10}Hz$  begrenzte.

Hinter dem Gasjet wurde der Laserstrahl durch eine 1" Linse mit einer Brennweite von f = 30mm wieder rekollimiert, durch ein BK7-Fenster aus der Experimentierkammer ausund anschließend in den SPIDER eingekoppelt.

#### 4.4.1 Der Fokus

Eine der wichtigsten Charakteristiken für Laser-Plasma-Experimente ist der Laserfokus. Um möglichst hohe Intensitäten zu erzielen, ist es notwendig, einen möglichst kleinen und astigmatismusfreien Fokus zu erzeugen.

Zur Kontrolle der Fokusqualität wurde deshalb ein zusätzlicher Spiegel (FS) in den Strahlengang hinter der Düse gefahren, der es erlaubte, den Fokus über ein Objektiv (f# = 2, f=100mm, Vergrößerung ca. 40x) auf einen Beamprofiler (12bit CCD) abzubilden. Durch gezieltes Kippen und Verfahren der Parabel war es möglich, eine Fehlstellung der Parabel bezüglich der Strahllage des einfallenden Strahls zu beseitigen und den dadurch bedingten Astigmatismus auszugleichen. Eine Aufnahme des optimierten Fokus ist in Abb. 26 zu sehen. Zur Größenkalibrierung dieser Aufnahmen wurde ein Gitter (TG) mit einem Linienabstand von 0,5cm in den Strahlengang eines parallel zum Ti:Sa verlaufenden Justagelasers (aufgeweiteter HeNe-Laser) gefahren. Die Messung des Abstandes der so erzeugten Beugungsmaxima auf der CCD ermöglichte es, die Größenkalibrierung der Fokusaufnahmen durchzuführen (s. Abb. 25r). Der Fokusdurchmesser kann somit mit einer Halbwertsbreite von  $FWHM_1 \approx 4.3\mu m$  angeben werden.

Zusammen mit den Überlegungen zur Geometrie der Fokussierung aus 1.3 lässt sich hieraus die Spitzenintensität  $I_0$  im Fokus berechnen. Laut (1.34) gilt:

$$I_0(z) = \ln 2 \cdot \frac{P}{\pi \left(\frac{FWHM_I(z)}{2}\right)^2}.$$
(1.125)





$$d = f \cdot \tan\left(\beta\right)$$

Abb. 26 – Aufnahme des optimierten Fokus Links: Aufnahme des Ti:Sa-Fokus nach dem Astigmatismusausgleich. Rechts: Skizzen zur Erklärung der Kalibrierungsmessung: Durch den Beugungswinkel  $\beta$  und die Brennweite f ist der Abstand der Beugungsmaxima eindeutig festgelegt.

Definiert man die Leistung P des Pulses als

$$P_{Puls} = \frac{E_{Puls}}{\tau},\tag{1.126}$$

wobei  $\tau$  die Pulslänge  $\left(\tau = FWHM_{I(t)}\right)$  angibt, so erhält man

$$I_0(z) = \ln 2 \cdot \frac{E_{Puls}}{\tau \cdot \pi \left(\frac{FWHM_I(z)}{2}\right)^2},$$
(1.127)

und mit den Werten  $E_{Puls} = 60 \mu J$ , t = 10 fs,  $FWHM_I = 4.3 \mu m$  folgt schließlich

$$I_0(z) = \ln 2 \cdot \frac{60\mu J}{10 \, fs \cdot \pi \left(\frac{4.3\mu m}{2}\right)^2} = 2,8 \cdot 10^{16} \frac{W}{cm^2}.$$
 (1.128)

Eine weitere wichtige Kenngröße in Bezug auf die Fokusqualität ist die Rayleighlänge. Nach Formel (1.28) berechnet sich diese für einen beugungsbegrenzten Gaußschen Strahl aus der Strahltaille und der Zentralwellenlänge des Lasers.

Im Vergleich zu perfekten Gaußstrahlen zeichnen sich reale Strahlen jedoch durch eine größere Divergenz im Fernfeld und einen größeren Fokusdurchmesser im Nahfeld aus. [5] fand heraus, dass die Gesetze der Gaußschen Optik auch für reale Strahlen ihre Gültigkeit behalten, wenn man diese um einen als M<sup>2</sup>- oder Strahlqualitätsfaktor bezeichneten Korrekturfaktor ergänzt. Dieser berechnet sich als Quotient aus dem Divergenzwinkel des realen Strahls und des zugehörigen Gaußstrahls.

$$M^{2} = \frac{\theta_{real}}{\theta_{Gau\beta}}$$
(1.129)

Ergänzt um diesen Faktor ergibt sich für die Rayleighlänge (vgl. (1.28)) der Ausdruck

$$z_{RM} = \frac{\pi \cdot w_{0M}^2}{M^2 \lambda}.$$
(1.130)

Hierbei bezeichnet  $w_{0M}$  die Größe der Strahltaille des realen Strahls. Mit  $z_{RM}$  erhält man dann für die z-Abhängigkeit des Strahlradius (vgl. (1.29)) den bekannten Ausdruck

$$w_M(z) = w_{0M} \left[ 1 + \left(\frac{z}{z_{RM}}\right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}.$$
 (1.131)

Mit Hilfe dieser Informationen wird jetzt der M<sup>2</sup>-Faktor des verwendeten Laserpulses ermittelt. Durch Einsetzen von (1.130) in (1.131) erhält man bei bekanntem  $w_{0M}$  und  $\lambda$  einen Ausdruck, der nur noch von z und M<sup>2</sup> abhängt. Nutzt man die beschriebene Fokusdiagnostik, um den Strahlradius für verschiedene z-Positionen zu ermitteln, so erhält man eine Kurve der Form

$$w_{M}(z) = w_{0M} \left[ 1 + \left( M^{2} \frac{z \cdot \lambda}{\pi \cdot w_{0M}^{2}} \right)^{2} \right]^{\frac{1}{2}}.$$
 (1.132)

Führt man unter Variation von  $M^2$  einen Fit der Messwerte durch, erhält man hieraus den gesuchten Wert für  $M^2$ . Das Ergebnis dieser Messung ist in Abb. 27 zu sehen.

Für den verwendeten Justagelaser (s. Abb. 25) ergibt sich ein fast perfekter Gaußscher Strahlverlauf mit einem  $M^2 \sim 1$ . Der Ti:Sa dagegen wird trotz Fokusoptimierung deutlich schlechter fokussiert. Das gemessene  $M^2$  beträgt hier etwa 1,4.



**Abb. 27** – Strahlradius in Abhängigkeit von z Gemessener Strahlradius für verschiedene Abstände vom Fokus. Durch einen Fit mit Formel (1.132) können die  $M^2$ -Parameter für den Justagelaser und den Ti:Sa-Puls ermittelt werden. Aufgrund der geringeren Intensität wurden diese Messungen nicht bei voller Leistung sondern mit der ASE (engl.: Amplified Spontaneous Emission) des Verstärkers durchgeführt.

Mit diesem Wert und den bekannten Laserparametern  $FWHM_1 = 4, 3\mu m$  und  $\lambda_0 = 800nm$ wird nun die Rayleighlänge des Fokus bestimmt. Aus Formel (1.130) erhält man

$$z_{RM} = \frac{\pi \cdot w_{0M}^2}{M^2 \lambda} = 36 \mu m \,. \tag{1.133}$$

Um die richtige Positionierung des Fokus über der Düse zu ermöglichen, war die Düse in allen drei Raumdimensionen verfahrbar gehaltert, so dass die Strahllage nach erfolgter Fokusoptimierung nicht mehr verändert zu werden brauchte, sondern stattdessen die Düse in die gewünschte Position, relativ zum Fokus, gefahren werden konnte.

Zur Lagekontrolle war am hinteren Ende der Düse (in Ausbreitungsrichtung des Lasers gesehen) ein Wolframdraht mit 50µm Durchmesser angebracht, der bei richtiger Positionierung der Düse in der x,z-Ebene den Fokus komplett abschattete, so dass das Abbild des Fokus auf der CCD der Fokusdiagnostik verschwand. Auf diese Weise war sichergestellt, dass der Laserstrahl in der x,z-Ebene mittig über der Düse lag.

Zur Kontrolle der Fokusposition in der y,z-Ebene stand eine zweite Diagnostik zur Verfügung, die Teil eines zweiten Experimentes war, welches die Entwicklung des Plasmas mit Hilfe von Interferenz- und Schlierenoptik untersuchte [44]. Diese Diagnostik erlaubte es, die Düse mit einem senkrecht zum Laserstrahl (in negativer x-Richtung) verlaufenden,
frequenzverdoppelten Probenstrahl auf einer zusätzlichen Kamera abzubilden. Hierdurch war es möglich, die Düse unter direkter optischer Kontrolle in der z,y-Ebene zu verfahren und so zu positionieren, dass der Fokus wie gewünscht am Anfang des Gasjets in einer Höhe von 750µm über der Düsenkante lag. In Abb. 28 rechts ist als Ergebnis der Interferenzmessungen aus [44] ein Phasendiagramm des Düsenstrahls gezeigt.

# 4.4.2 Die Gasdüse

Nachdem der Aufbau der Targetkammer und die wichtigsten Parameter des Laserfokus bekannt sind, soll in diesem Abschnitt genauer auf die verwendete Gasdüse und somit auf das Gastarget eingegangen werden, das in den vorgestellten Experimenten zum Einsatz gekommen ist.

Wie bereits beschrieben wurde, ist es wichtig, dass die Propagation von sub-10-fs Laserpulsen unter Vakuum stattfindet, da der Puls ansonsten aufgrund der Dispersion auseinander laufen würde. Um dennoch die Interaktion eines solchen Pulses mit Gasen untersuchen zu können, ist der Einsatz einer Gasdüse im Vakuum notwendig. Hierbei ist es wünschenswert, innerhalb des erzeugten Gasjets ein möglichst homogenes Dichteprofil zu erzeugen. Auch ist es wichtig, einen möglichst steilen Übergang zwischen Vakuum und dem mit Gas gefüllten Bereich zu erzeugen, damit der Laserpuls nicht schon vor Erreichen der maximalen Gasdichte durch Dispersions- und Ionisationseffekte zu stark beeinflusst wird.

Bei der Verwendung von Düsen, bei denen das Gas mit Geschwindigkeiten unterhalb der Schallgeschwindigkeit in das Vakuum expandiert, stellt gerade dieser Vakuum-Gas-Übergang ein Problem dar. In Flussrichtung des Gasstroms nimmt die Gasdichte exponentiell mit dem Abstand zur Düse ab. Dies stellt für ein Laser-Gas-Experiment noch kein Problem dar. Der Laserstrahl kann so ausgerichtet werden, dass er sich senkrecht zur Flussrichtung in einem konstanten Abstand Düsenoberfläche ausbreitet. Durch die zur geringe Ausbreitungsgeschwindigkeit ist die Expansion des Gases senkrecht zur Flussrichtung allerdings nicht zu vernachlässigen. Hierdurch bildet sich in Ausbreitungsrichtung des Lasers (senkrecht zur Flussrichtung) ein Gauß-förmiges Dichteprofil aus. Folglich propagiert der Laserstrahl in den Flügeln der Dichteverteilung, also bereits weit vor Erreichen der maximalen Gasdichte, durch einen mit Neutralgas gefüllten Bereich, in dem es durch Ionisationsprozesse zu einer nicht unerheblichen Beeinflussung des Pulses kommt.

Um diesem Problem zu entgehen, schlägt [46] die Verwendung einer Überschalldüse vor. Dadurch dass sich das Gas nun in Flussrichtung wesentlich schneller ausbreitet als senkrecht zum Gasstrom, reduziert sich die Divergenz des Gasjets. Bei Überschallausbreitung ist diese allein von der Machzahl abhängig. Für den Öffnungswinkel eines solchen Gasstroms findet [46] den Ausdruck

$$\sin\left(\alpha\right) = \frac{1}{M}.\tag{1.134}$$

Hierbei bezeichnet  $\alpha$  den Öffnungswinkel des ins Vakuum propagierenden Gasstroms und M steht für die Machzahl der Ausbreitung in Flussrichtung.

Das heißt, durch Wahl der Machzahl ist es möglich, die Divergenz des Strahls zu reduzieren. So gelingt es, in der senkrecht zur Flussrichtung gelegenen Ausbreitungsrichtung des Lasers das Gauß-förmige Dichteprofil der Unterschalldüse in ein wesentlich steileres stufenförmiges Profil für den Fall der Überschalldüse zu überführen.

Um eine Düse zu konstruieren, die einen Überschallgasjet erzeugt, gilt es, die Dynamik eines solchen Gasstroms zu bedenken. Die Flussrate eines isentropischen Masseflusses zwischen zwei Reservoiren mit den Drücken  $p_1 < p_0$  ist im eindimensionalen Fall gegeben durch den Ausdruck

$$\dot{m} = \frac{dm}{dt} = \frac{p_0 \psi A^*}{\sqrt{kR_s T_0}} \,. \tag{1.135}$$

Hierbei steht  $A^*$  für die minimale Querschnittsfläche der Verbindung zwischen den beiden Reservoiren, k=1+2/f bezeichnet die adiabtische Konstante des Gases,  $R_S$  steht für die spezielle Gaskonstante und  $T_0$  schließlich gibt die Temperatur in Kelvin an. Für ein bestimmtes Gas und eine gegebene Geometrie bei konstanter Temperatur ist der Massefluss also einzig vom Flussfaktor  $\psi$  abhängig. Dieser ist gegeben durch

$$\Psi = \sqrt{\frac{2k^2}{k-1} \left(\frac{p_1}{p_0}\right)^{\frac{2}{k}} \cdot \left(1 - \left(\frac{p_1}{p_0}\right)^{\frac{k-1}{k}}\right)}.$$
(1.136)

Für den Fall der Expansion ins Vakuum  $(p_1 \ll p_0)$  erreicht dieser Ausdruck ein Maximum bei

$$\psi = k \left(\frac{2}{k+1}\right)^{\frac{k+1}{2(k-1)}}.$$
(1.137)

Somit erhält man für die Expansion eines Gases ins Vakuum einen maximalen Massefluss, der bei konstantem Hintergrunddruck  $p_0$  und konstanter Temperatur einzig von der minimalen Querschnittsfläche der Düse abhängt.

$$\dot{m} = p_0 \sqrt{\frac{k}{R_s T_0}} \left(\frac{2}{k+1}\right)^{\frac{k+1}{2(k-1)}} A^*$$
(1.138)

Dieser maximale Fluss wird dann erreicht, wenn der Gasstrom bei Erreichen von  $A^*$  einfache Schallgeschwindigkeit erreicht. Nimmt nach der Passage der Engstelle bei  $A^*$  die Querschnittsfläche wieder zu, bedeutet dies einen weiteren Anstieg der Flussgeschwindigkeit in den Überschallbereich hinein. Für diese Expansion gilt nach [46] das Flächen-Machzahl-Verhältnis

$$\frac{A}{A^*} = \frac{1}{M} \left( \frac{2 + (k-1)M^2}{k+1} \right)^{\frac{k+1}{2(k-1)}}.$$
(1.139)

Für den Bau einer Überschalldüse muss also sichergestellt werden, dass der Gasstrom beim Passieren der engsten Stelle gerade Schallgeschwindigkeit erreicht und dass anschließend der Düsenquerschnitt sich kontinuierlich erweitert.



#### Abb. 28 – Die Überschalldüse

Links: Konstruktionsskizze der Überschalldüse: In schwarz ist das kommerzielle Magnetventil dargestellt. Blau gezeichnet ist der von R. Jung gefertigte Düsenaufsatz zur Erzeugung des Überschallgasjets. Deutlich zu erkennen ist die charakteristische, sich zum Vakuum hin kontinuierlich verbreiternde Düsenform. Rechts: Phasendiagramm des erzeugten Gasjets (von R. Jung - [44]) In Abb. 28 links ist eine Konstruktionsskizze der in dieser Arbeit verwendeten Düse gezeigt. Diese basiert auf einem kommerziellen Magnetventil [47], das bei Hintergrunddrücken bis 85bar eine theoretische Repetitionsrate von 120Hz erlaubt. Aufgrund der begrenzten Pumpkapazitäten und des relativ kleinen Vakuumgefäßes wurden im Experiment allerdings nur Repetitionsraten von 0,1Hz-0,25Hz erreicht. Zur Erzeugung des Überschallgasjets diente ein im Rahmen einer weiteren Arbeit gefertigter und optimierter Düsenkopf [44]. Sehr gut ist in der Zeichnung der für Überschalldüsen charakteristische, sich zum Vakuum hin kontinuierlich erweiternde Düsenauslass zu erkennen. Damit war es möglich, bei einem Düsendurchmesser von 1mm einen Gasjet mit einer Machzahl von M = 3,3 zu erzeugen. Das Übersetzungsverhältnis zwischen Düsenvordruck und dem tatsächlich erreichten Druck im Gasjet betrug für die in dieser Arbeit verwendete Fokusposition (750 $\mu m$  über der Düse) 1:10. In Abb. 28 rechts ist ein Bild des erzeugten Gasjets gezeigt (mit freundlicher Genehmigung von R. Jung).

# 5 Durchgeführte Messungen

Nachdem nun der Aufbau der durchgeführten Experimente bekannt ist, soll im Folgenden vorgestellt werden, welche Messungen im Einzelnen mit diesem Aufbau durchgeführt wurden. Hierzu wird in Kapitel 5.1 zunächst am Beispiel von einfachen BK7-Glasblöcken, welche in diesem Experiment statt des Plasmas in den Strahlengang eingebracht wurden, das Messverfahren vorgestellt, das später auch in den eigentlichen Plasmaexperimenten angewendet wurde. Im Gegensatz zu den noch zu untersuchenden Einflüssen des Plasmas ist der Einfluss von BK7 (normale Materialdispersion) auf den Laserpuls theoretisch gut verstanden [23]. Damit erlaubt dieses Experiment einen direkten Vergleich der erhaltenen Messwerte mit bereits bekannter Theorie und somit eine Abschätzung der Qualität des Messverfahrens. Im darauf folgenden Abschnitt werden die Messergebnisse der Untersuchungen an den Gasjets vorgestellt.

### 5.1 Messung der Materialdispersion von BK7

Wie in Abb. 25 dargestellt, wurde in diesem Experiment der dispersive Einfluss von BK7-Glas auf die Ausbreitung des Laserspulses untersucht. Hierzu wurde der gleiche optische Aufbau verwendet, wie er auch bei den späteren Plasmaexperimenten im Gasjet zum Einsatz kam. Allerdings wurde der Gasjet durch Glasblöcke entsprechender Dicke (d = 0cm bis 4cm) ersetzt. Diese konnten jedoch nicht wie der Gasjet im Fokus des Lasers positioniert werden, da sie aufgrund der hohen Intensitäten im Fokus zerstört worden wären. Deshalb wurden sie hinter dem Fokus in den wieder rekollimierten Strahl gestellt. Ein typisches SPIDER-Interferogramm für den Vakuumfall (kein Gas, kein zusätzliches Glas im Strahlengang), wie es mit diesem Aufbau aufgezeichnet wurde, ist in Abb. 29 zu sehen.



Abb. 29 – Gemessenes SPIDER-Interferogramm Links: das Spektrum der Fundamentalen, rechts: zugehöriges SPIDER-Interferogramm.

$$S(\omega) = |E_{A}(\omega + \Delta \omega)|^{2} + |E_{A}(\omega)|^{2} + 2|E_{A}(\omega + \Delta \omega) \cdot E_{A}(\omega)| \cdot \cos[\phi(\omega + \Delta \omega) - \phi(\omega) - \omega\tau]$$
(1.140)

$$= D^{(dc)}(\omega) + D^{(-ac)}(\omega)e^{-i\tau\omega} + D^{(ac)}(\omega)e^{i\tau\omega}$$

mit

$$D^{(dc)} = \left| E_A \left( \omega + \Delta \omega \right) \right|^2 + \left| E_A \left( \omega \right) \right|^2$$
  

$$D^{(-ac)} = \left| E_A \left( \omega + \Delta \omega \right) \cdot E_A \left( \omega \right) \right| \cdot e^{i(\phi(\omega + \Delta \omega) - \phi(\omega) - \omega\tau)}$$
  

$$D^{(+ac)} = \left| E_A \left( \omega + \Delta \omega \right) \cdot E_A \left( \omega \right) \right| \cdot e^{-i(\phi(\omega + \Delta \omega) - \phi(\omega) - \omega\tau)}$$
  
(1.141)

Die gesuchte Phaseninformation ist in den beiden ac-Termen kodiert. Führt man eine Fouriertransformation des SPIDER-Signals durch, so ergibt sich aus dem dc-Term ein um Null zentriertes Signal, und die beiden ac-Terme erzeugen Peaks bei  $\pm \tau$ . Dieser Sachverhalt ist in Abb. 30 graphisch dargestellt.



**Abb. 30** – Fouriertransformation des SPIDER-Signals Schwarz: Fouriertransformation des SPIDER-Signals, gut zu erkennen sind der dcund die beiden ac-Peaks; rot: Gaußfilter 4ter-Ordnung, grün: herausgefiltertes ac(+)-Signal.

Filtert man durch den Einsatz eines Super-Gaußfilters 4ter Ordnung den Term  $D^{(+ac)}$  aus dem Signal heraus, so erhält man nach erfolgter Rücktransformation in den Frequenzraum den isolierten Term

$$D^{(+ac)} = \left| E_A(\omega + \Delta \omega) \cdot E_A(\omega) \right| \cdot e^{-i(\phi(\omega + \Delta \omega) - \phi(\omega) - \omega\tau)}, \qquad (1.142)$$

aus dem man durch Bildung der Argumentfunktion den Phasenbeitrag

$$\phi(\omega + \Delta \omega) + \phi(\omega) - \omega \tau \tag{1.143}$$

isolieren kann. Um den linearen Term  $\omega \tau$  in (1.143) zu eliminieren, bietet es sich an, diesen mit Hilfe eines Michelson-Interferometers direkt zu messen. Denkt man an den Aufbau des SPIDERS (Abb. 14) zurück, so ergibt sich diese Möglichkeit, indem man hinter die Blende B3 ein zusätzliches Spektrometer stellt. Auf diese Weise kann das durch den Beamsplitter BS4 transmittierte Signal genutzt werden, um neben dem SPIDER-Signal mit dem gleichen Schuss ein Michelson-Interferogramm der Fundamentalen aufzuzeichnen. Zu diesem Zweck wurde in den hier vorgestellten Aufbau hinter Blende B3 ein Faserspektromter integriert, welches einen Wellenlängenbereich von 400nm bis 950nm erfassen kann.

Nach erfolgter Subtraktion des linearen Terms  $\omega \tau$  bleibt nur noch der Differenzphasenterm

$$\phi_{\text{Diff}} = \phi(\omega + \Delta \omega) + \phi(\omega) \tag{1.144}$$

übrig, aus dem sich gemäß des folgenden Schemas [7] durch einfache Summation die gesuchte Phase rekonstruieren lässt:

$$\phi(\omega_{0} - 2\Delta\omega) = -\Delta\phi(\omega_{0} - \Delta\omega) - \Delta\phi(\omega_{0})$$

$$\phi(\omega_{0} - \Delta\omega) = -\Delta\phi(\omega_{0})$$

$$\phi(\omega_{0}) = 0$$

$$\phi(\omega_{0} + \Delta\omega) = \Delta\phi(\omega_{0} + \Delta\omega)$$

$$\phi(\omega_{0} + 2\Delta\omega) = \Delta\phi(\omega_{0} + 2\Delta\omega) + \Delta\phi(\omega_{0} + \Delta\omega)$$
(1.145)

Man setzt die Phase an einem Punkt (Zentralwellenlänge des Lasers) auf Null und summiert anschließend die Werte für  $\phi_{Diff}$  in Schritten der spektralen Verschiebung  $\Delta \omega$  auf. Durch diese Methode der Rekonstruktion erhält man einen Datensatz mit *n* Stützstellen im Abstand von  $\Delta \omega$ . Da der Differenzphasenterm jedoch aufgrund des hohen Auflösungsvermögens des Spektrometers an wesentlich mehr Stellen bekannt ist, verzichtet man auf diese Weise auf Information. Berücksichtigt man aber, dass der Differenzphasenterm  $\phi_{Diff}$  für kleine  $\Delta \omega$ näherungsweise der ersten Ableitung der Phase entspricht,

$$\frac{\phi_{\text{Diff}}}{\Delta \omega} = \underbrace{\frac{\phi(\omega) - \phi(\omega + \Delta \omega)}{\Delta \omega}}_{\text{Differenzeny optimat}} \approx \frac{d\phi(\omega)}{d\omega}$$
(1.146)

sieht man, dass man die Phase aus  $\phi_{Diff}$  auch durch die Berechnung des folgenden Integrals bestimmen und so den Differenzphasenterm an allen aufgezeichneten Stellen auswerten kann.

$$\phi(\omega) \approx \frac{1}{\Delta \omega} \int \phi_{Diff}(\omega) d\omega \qquad (1.147)$$

Für die korrekte Normierung des Integrals ist abschließend noch die genaue Kenntnis von  $\Delta \omega$  vonnöten. Allerdings kann die spektrale Verschiebung, genauso wie der lineare Phasenbeitrag  $\omega \tau$ , direkt aus dem Experiment bestimmt werden. Hierzu blockt man abwechselnd je einen Arm des Michelson-Interferometers und zeichnet so getrennt das Summenfrequenzsignal für je einen der beiden Doppelpulse auf. Trägt man diese gegeneinander auf, lässt sich aus diesem Bild (s. Abb. 31) direkt die spektrale Verschiebung ablesen. In dem hier dargestellten Fall beträgt sie  $1,5 \cdot 10^{13} rad/s$ . Damit liegt die relative Verschiebung (vgl. (1.118)) bei 5.4% und somit innerhalb des empfohlenen Bandes minimaler Rauschanfälligkeit [13] und ist gleichzeitig klein, so dass die in (1.147) gemachte Näherung ihre Gültigkeit behält.



**Abb. 31** – Spektrale Verschiebung der beiden fs-Pulse Links: die gemessenen Spektren mit der spektrale Verschiebung, rechts: Arm 2 um  $\Delta \omega$ =1.5·10<sup>13</sup>rad/s verschoben.

Will man mit dieser Methode den Einfluss eines optischen Bauteils oder später den Einfluss des Plasmas auf den Laserpuls vermessen, muss man das SPIDER-Interferogramm im Vakuumfall aufzeichnen und anschließend in der gleichen Anordnung die Messung mit den zusätzlichen optischen Komponenten wiederholen. Mit dem hier beschriebenen Verfahren erhält man so aus Formel (1.147) eine Referenzphase (Vakuumfall) und die Phase des beim Glasdurchgang modifizierten Laserpulses. Da sich die Phasenbeiträge der einzelnen Komponenten additiv verhalten, folgt durch Subtraktion der Referenzphase von der Phase des modifizierten Pulses der Phasenbeitrag der eingebrachten optischen Elemente. In Abb. 32 ist das Ergebnis einer solchen Messung für unterschiedlich dicke Glasblöcke (BK7) dargestellt. Man sieht sehr deutlich den im wesentlichen parabelförmigen Verlauf der spektralen Phase und die Zunahme der Parabelstreckung mit steigender Materialdicke.

Betrachtet man Abb. 32, fällt jedoch auf, dass die Angaben für die Phase noch im Bereich des blauen  $2\omega$ -Spektrums des SPIDER-Signals und nicht im Bereich des ursprünglich vermessenen Laserpulses liegen. Das heißt, um tatsächlich die Phase des Original-Pulses angeben zu können, muss das Signal noch in den Frequenzbereich des Laserspektrums verschoben werden. Hierzu benötigt man den Frequenzanteil des gestreckten Pulses, um den die ursprünglichen fs-Pulse bei der SFG verschoben wurden.



**Abb. 32** – Phasenbeiträge von BK7 in Abhängigkeit von der Materialdicke Deutlich zu sehen ist der im wesentlichen parabelförmige Verlauf der spektralen Phase und die Zunahme der Parabelstreckung mit steigender Materialdicke (die Phasen sind noch im 2ω-Raum geplottet).

Ähnlich wie bei der spektralen Verschiebung  $\Delta \omega$  zwischen den beiden Laserpulsen erhält man diesen Wert aus dem Vergleich der Spektren der Fundamentalen und des in den  $2\omega$ -Bereich konvertierten Signals. Durch die parallele Messung mit dem Faserspektrometer bei  $\omega$ und dem Spektrometer des SPIDERs bei  $2\omega$  erhält man ein Bild wie in Abb. 33 gezeigt. Verschiebt man die  $\omega$ -Achse mit den aus dieser Betrachtung erhaltenen Werten, so ergibt sich schließlich das in Abb. 34 (links) gezeigte Bild.



**Abb. 33** – Vergleich der Fundamentalen und des 2ω-Signals Sehr gut ist zu sehen, dass die Konversion des ω-Spektrums in den 2ω-Bereich im gesamten Frequenzbereich des Laserpulses gut funktioniert. Auch bestätigt diese Messung noch einmal den Wert für die spektrale Verschiebung, wie sie bereits aus Abb. 31 bekannt ist.

Für einen Vergleich der gemessenen Phasen mit theoretischen Vorhersagen ist man an einer Darstellung der Phasen durch die  $D_i$ -Koeffizienten wie in Kapitel 2.2 beschrieben interessiert. Aufgrund der im wesentlichen parabelförmigen Form der gemessenen Phasenbeiträge bietet es sich an, diese mit einem Taylorpolynom 3ter Ordnung (vgl. Formel (1.17)) zu fitten. Das Ergebnis dieser Überlegungen ist in Abb. 34 (rechts) dargestellt. Man sieht sehr deutlich, dass die gemessenen  $D_2$ -Werte in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Vorgaben sind. Aus einer linearen Regression erhält man einen gemessenen Wert von  $D_2 = (450 \pm 8) fs^2 / cm$ . Dies stimmt im Rahmen der Fehlertoleranz mit dem theoretischen Wert für BK7 von  $D_2 (BK7) = 446 fs^2 / cm$  überein.



**Abb. 34** – Gemessene Phasenbeiträge von BK7 Links: Phasenbeitrag von BK7 für verschieden dicke Glassubstrate. Rechts: Die zu den Kurven links gehörenden  $D_2$ -Werte im Vergleich mit den theoretischen Werten für BK7.

#### 5.2 Messung des Einflusses von Gastargets auf den Laserpuls

Nachdem im vorangehenden Kapitel durch den Vergleich zwischen Experiment und Modell in einem theoretisch gut verstandenen Fall gezeigt wurde, dass die geplante Messmethode und der neu gebaute SPIDER funktionieren, soll nun die Wechselwirkung des Laserpulses mit einem Gasjet untersucht werden. Hierzu wurden zunächst Untersuchungen an Helium (He) durchgeführt.

## 5.2.1 Untersuchungen an Helium (He)

### 5.2.1.1 Phasenmessung

Um eine Untersuchung der Druckabhängigkeit der Interaktion zu ermöglichen, wurde der Düsenvordruck  $p_{vor}$  von Obar bis 25bar in 5bar Schritten variiert. Bei einem Übersetzungsverhältnis von etwa 1:10 bedeutet das einen Druck von Obar bis 2.5bar in der Interaktionszone. Dies entspricht Neutralteilchendichten von 0 ...  $7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ . Wie bereits in 4.4 ausgeführt, wurde die Düse gepulst betrieben um ein Überlaufen der Kammer zu verhindern. Aufgrund des geringen Gewichts von Helium und seiner damit verbundenen schlechten Pumpbarkeit, lag die Repetitionsrate für die Heliummessungen bei 0.1Hz. Um ein gutes Signal zu Rausch Verhältnis zu erzielen, wurden die aufgenommenen SPIDER-Interferogramme über jeweils 40 Schüsse gemittelt, wodurch sich Messzeiten von 10min pro Interferogramm ergaben. Berücksichtigt man noch, dass zur Ermittlung der spektralen Verschiebung zusätzlich die Spektren der SFG-Signale der beiden Einzelpulse (Arm 1 und Arm 2) aufgenommen werden mussten, so ergibt sich pro Messpunkt eine reine Messzeit von insgesamt 30min.



**Abb. 35** – SPIDER-Interferogramm nach dem He-Gasjet für 0bar und 25bar Schwarz: Interferogramm im Vakuumfall; rot: Interferogramm nach Interaktion mit dem Gasjet.



Abb. 36 – Druckabhängigkeit der spektralen Phase Dargestellt ist der Verlauf der spektralen Phase für unterschiedliche Düsenvordrücke. Aufgrund der Modulation des Laserspektrums (SFM) ergeben sich zwei Bereiche, in denen die Auswertung des SPIDER-Signals, bedingt durch mangelnde Intensität und mangelnden Kontrast, zu Fehlern führt.

Um bei der Aufnahme mehrerer Messpunkte eine Vergleichbarkeit der experimentellen Rahmenbedingungen zu gewährleisten, wurde nach der Aufnahme eines jeden Messpunktes die Justage des Lasers (Energieoutput) überprüft und dieser ggf. nachjustiert.

Ein typisches SPIDER-Interferogramm, wie es hinter dem Gasjet aufgenommen wurde, ist in Abb. 35 (links) zu sehen. Den Einfluss des Gasjets erkennt man in einer Detailvergrößerung deutlich als Verschiebung der Fringes gegenüber dem Vakuumfall (Abb. 35 rechts).

In Abb. 36 ist die rekonstruierte Phase für verschiedene Drücke als Funktion der Frequenz dargestellt. Hierbei fällt zunächst auf, dass es in allen Phasenplots zwei Frequenzbereiche (2,29...2,32rad/s und 2,42...2,47rad/s) gibt, in denen das Signal stark einzubrechen scheint. Vergleicht man diesen Einbruch jedoch mit den zugehörigen Spektren der 2 $\omega$ -Signale (Abb. 33), so zeigt sich, dass diese Einbrüche genau in dem Bereich liegen, in dem aufgrund der starken Modulation des Laserspektrums auch die Intensität des 2 $\omega$ -Spektrums der frequenzverschobenen Teilpulse einbricht. Dies führt zu einem Intensitätseinbruch im SPIDER-Interferogramm (s. Abb. 35), der es dem Auswertungsalgorithmus erschwert, die Fringestruktur aufzulösen.

Dazu kommt ein zusätzlicher Kontrastverlust, der sich aus den steilen Intensitätsgradienten in diesem Bereich ergibt. Der Kontrast eines Interferogramms ist genau dann am höchsten, wenn die beiden überlagerten Pulse die gleiche Intensität aufweisen. Je größer der Intensitätsunterschied zwischen den beteiligten Pulsen ist, desto schlechter wird das Kontrastverhältnis. Durch die steilen Gradienten im Intensitätsprofil in Verbindung mit der benötigten spektralen Verschiebung werden in den betrachteten Bereichen gerade Pulsanteile mit stark unterschiedlichen Intensitäten überlagert. Dies führt neben dem reinen Intensitäts-



Abb. 37 – Phasenverschiebung durch Heliumgasjet Links: Bei niedrigen Drücken nimmt der Phasenbeitrag im roten Bereich zu, wohingegen er im blauen Teil abnimmt. Rechts: Bei hohen Drücken kehrt sich dieses Verhalten im Blauen um. Im Roten sind für höhere Drücke keine Tendenzen zu erkennen. Gestrichelt: Ergebnisse eines Polynomfits 3ter Ordnung.

zu einem zusätzlichen Kontrastverlust, der das Signal in diesen Bereichen nicht auswertbar macht. So müssen die starken Phasenschwankungen in den Bereichen 2,29...2,32rad/s und 2,42...2,47rad/s als numerische Artefakte betrachtet werden. Da diese ihren Ursprung in der Modulation des Laserspektrums haben, die aufgrund des Kompressorkonzepts des Düsseldorfer Lasersystems (Selbstphasenmodulation in der Hohlfaser) nicht vermeidbar ist, lassen sie sich auch durch geschicktes Experimentieren nicht umgehen.

Wertet man die gemessenen Phasen in den gut aufgelösten Bereichen außerhalb dieser beiden blinden Flecken aus, zeigt sich, dass die Druckabhängigkeit der spektralen Phasen anscheinend von zwei konkurrierenden Effekten dominiert wird.

Während der Zentralbereich der Phase scheinbar Druck unabhängig ist, beobachtet man bei niedrigen Drücken (bis etwa 15bar Vordruck) im roten Teil der Phase ein deutliches Ansteigen der Phase von etwa -0,25rad bis auf +0,5rad. Gleichzeitig nimmt die Phase im blauen Bereich von anfänglich etwa -0,15rad auf -0,75 bei 15bar ab (s. Abb. 37 links).

Bei einer weiteren Zunahme des Druckes ( $p_{vor} = 15...25bar$ ) kehrt sich dieses Verhalten um und der Phasenbeitrag steigt im Blauen auf etwa 1rad bei 25bar an. Im Roten ist eine solche Tendenzumkehr zunächst nicht zu beobachten. Hier scheint die Phase bis 20bar weiter zu steigen. Allerdings bricht der Phasenbeitrag bei 25bar dann stark ein (s. Abb. 37 rechts).

Entwickelt man, wie bereits bei den Glasblöcken beschrieben, die gemessenen Phasen in ein Taylorpolynom und ermittelt so den  $D_2$ -Koeffizienten des Pulses nach dem Plasmadurchgang, sieht man in diesem Bild ebenfalls eine deutliche Aufspaltung in zwei Druckbereiche. In Abb. 38 ist dies für 4 verschiedene Messreihen durchgeführt worden. Man sieht deutlich, dass für



**Abb.** 38 –  $D_2$ -Koeffizient vs. Neutralteilchendichte im Heliumgasjet Deutlich ist zu erkennen, dass die gemessenen  $D_2$ -Koeffizienten für Gasdichten bis  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  im Negativen liegen und dann bei höheren Dichten positiv werden.

Vordrücke bis 15bar der gemessene  $D_2$ -Koeffizient deutlich im negativen Bereich liegt, wohingegen er für Drücke oberhalb von 15bar positiv wird.

## 5.2.1.2 Fehlerbetrachtung

Aufgrund der hohen Intensitäten des Lasers und den damit zu erwartenden nichtlinearen Effekten (siehe z.B. Kap. 3.1), die Einfluss auf die zu messende Phase nehmen können, soll an dieser Stelle die Reproduzierbarkeit der Messungen überprüft und eine statistische Abschätzung für die Genauigkeit der durchgeführten Messungen gegeben werden.

Da Helium sehr schwer zu pumpen ist und die Turbomolekularpumpen bei den He-Messungen sehr stark belastet werden, wurden diese Messungen zur Schonung des Materials und des Heliumvorrates an Stickstoff durchgeführt. Der Versuchsaufbau war identisch mit dem aus Kapitel 5.2.1.1. In diesem Experiment wurde der  $D_2$ -Koeffizient für N<sub>2</sub> bei einem mittleren Düsenvordruck von 15bar aufgenommen. Diese Messung wurde unter gleichen Bedingungen 10x wiederholt. Das Ergebnis dieser Messreihe ist in Abb. 39 zu sehen.

Der Mittelwert dieser Messung berechnet sich zu

$$\bar{D}_2 = \frac{\sum D_i}{n} = -13.8 \, fs^2 \tag{1.148}$$

mit einer Standardabweichung von

$$s = \sqrt{\frac{\sum (D_i - \overline{D})^2}{n - 1}} = 2,94 fs^2.$$
(1.149)



**Abb. 39** – Fehlerbetrachtung für  $D_2$ Bei mehrfacher Wiederholung der gleichen Messung ( $N_2$ ,  $p_{vor}=15bar$ ) schwanken die Messwerte um den Mittelwert  $D_2=-14fs^2$ . Die maximale Abweichung vom Mittelwert beträgt hierbei  $5fs^2$ .

Hierbei beträgt die maximale Abweichung vom Mittelwert

$$\max(D_i - \overline{D}) = 5,2 fs^2$$
. (1.150)

Nimmt man diese maximale Abweichung als Toleranz für die einzelnen Messwerte eines Gasjetexperiments, ergibt sich für die Messungen am He-Gasjet das in Abb. 40 gezeigte Bild. Hierbei ist deutlich zu erkennen, dass der bereits im vorigen Kapitel beschriebene Anstieg des  $D_2$ -Wertes größer ist als der anzunehmende Fehler aufgrund der statistischen Schwankungen des Messsignals.



**Abb. 40** – Heliummessung mit Fehlerbalken Dargestellt sind die gemessenen  $D_2$ -Werte für die Heliummessungen. Wie zu erkennen ist, ist die Änderung des Signals aufgrund der Variation der Gasdichte deutlich größer als die Messunsicherheit.

#### 5.2.1.3 Untersuchung des Spektrums

Um einen ersten Eindruck von den beteiligten Wechselwirkungsmechanismen zu bekommen, die für diese Phasenverschiebung verantwortlich sind, wurden die Spektren des Lasers nach der Interaktion untersucht. In Abb. 41 (oben) sind sie für die in Frage kommenden Bereiche niedriger und hoher Neutralteilchendichte getrennt aufgetragen.

Betrachtet man zunächst den Bereich der niedrigen Dichten, so sieht man, wie mit ansteigender Dichte die Intensität im roten Teil des Spektrums ab und dafür im blauen Teil zunimmt. Ab einer Dichte von  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  kehrt sich dieser Effekt um. Nun nimmt die Intensität im blauen ab und steigt dafür im roten Teil des Pulses wieder an.



Abb. 41 – Laserspektren nach der Interaktion mit dem Heliumgasjet Die Spektren sind auf gleichen Energieinhalt normiert. Man sieht deutlich, wie für geringe Neutralteilchendichten (links) die Intensität im roten Teil des Pulses abund im blauen Teil des Pulses zunimmt. Bei höheren Dichten (rechts) kehrt sich dieser Effekt um. Auch hier ist weiterhin eine deutliche Blauverschiebung zu beobachten, aber verglichen mit den Spektren bei 410<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup> nimmt die Intensität im Blauen für höhere Dichten ab und steigt dafür im Roten wieder an.

Noch offensichtlicher wird dieser Effekt, wenn man nicht die Spektren, sondern die spektrale Verschiebung  $\Delta I := I(p) - I(0)$  betrachtet (Abb. 41 unten). Deutlich ist zu sehen, dass für Dichten bis  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  die Intensität im Roten abnimmt, während sie im Blauen zunimmt. Bei höheren Dichten ist diese Blauverschiebung immer noch zu beobachten, allerdings nimmt ab  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  dieser Effekt mit einem weiteren Anstieg der Neutralteilchendichte wieder ab.

### 5.2.2 Untersuchungen an Neon (Ne)

Um festzustellen, welchen Einfluss die Gassorte auf die gemessenen Ergebnisse hat, wurden die an Helium vorgestellten Messungen an Neon, Argon und Stickstoff wiederholt. In diesem Kapitel sollen zunächst die Ergebnisse der Untersuchungen an Neon vorgestellt werden. Danach folgen die Messungen an Argon und Stickstoff.

Betrachtet man die Dichteabhängigkeit der spektralen Phasen, so bietet sich bei Neon ein etwas anderes Bild als bei den Heliummessungen (s. Abb. 42). Auch in diesem Fall ist für niedrige Neutralteilchendichten zunächst eine Abnahme der  $D_2$ -Werte bei zunehmender Neutralteilchendichte zu beobachten. Im Vergleich zu den Heliummessungen fällt diese Abnahme jedoch deutlich stärker aus. Wurden bei Helium die kleinsten  $D_2$ -Koeffizienten im Mittel mit  $D_2 = -20 fs^2$  gemessen, so fallen diese für Neon bis auf etwa  $D_2 = -27 fs^2$ .

Wie bei Helium ist auch für Neon bei höheren Dichten ein Anstieg der  $D_2$ -Werte zu erkennen. Allerdings setzt dieser deutlich später ein als bei Helium. Ist bei Helium ein Ansteigen der  $D_2$ -Werte bereits im Bereich zwischen  $n_0 = 3 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  und  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  zu beobachten, zeigt sich eine deutliche Zunahme bei Neon erst im Bereich zwischen  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  und  $n_0 = 5 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ .

Der jedoch signifikanteste Unterschied zwischen den Phasenmessungen an Helium und Neon ist die Tatsache, dass im gesamten Messbereich kein Ansteigen der  $D_2$ -Koeffizienten bis hin zu positiven Werten zu beobachten ist. Im Gegensatz zu Helium, wo  $D_2$ -Werte von bis zu  $+10 fs^2$  gemessen wurden, ist bei Neon nur ein Anstieg bis auf etwa  $-6 fs^2$  bei  $n_0 = -7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  zu verzeichnen.



**Abb. 42** – Abhängigkeit der D<sub>2</sub>-Werte von der Neutralteilchendichte für Neon Zunächst fallen die D<sub>2</sub>-Werte, bis sie bei  $2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  ein Minimum durchlaufen. Danach steigen sie mit zunehmender Dichte kontinuierlich an. Es fällt auf, dass die Werte, anders als bei Helium, im gesamten untersuchten Bereich negativ bleiben.

Betrachtet man neben den Spider-Interferogrammen auch die aufgenommenen Spektren der Fundamentalen, so ist für Neon, wie auch schon bei Helium, eine deutliche Blauverschiebung des Pulses zu beobachten (s. Abb. 43).

Wie auch bei Helium zu beobachten war, nimmt die Intensität im blauen Bereich des Spektrums mit zunehmender Neutralteilchendichte zu. Anders als bei Helium setzt sich diese Tendenz jedoch auch bei hohen Dichten  $(n_0 > 4 \cdot 10^{19} cm^{-3})$  fort und ist nicht rückläufig wie am Beispiel des Heliums gesehen.

Ebenfalls anders als bei Helium nimmt die Intensität bei niedrigen Dichten nicht über den gesamten roten Bereich des Spektrums ab, sondern nur im Bereich der Zentralfrequenz  $(\omega_0 = 2,35 \cdot 10^{15} rad/s)$ . Daneben ist bei  $\omega = 2,28 \cdot 10^{15} rad/s$  eine deutliche Zunahme der



**Abb.** 43 – Blauverschiebung der Neon-Spektren in Abhängigkeit der Neutralteilchendichte Wie auch bei Helium zu beobachten war, nimmt die Intensität im blauen Bereich des Spektrums mit zunehmender Neutralteilchendichte zu. Anders als bei Helium setzt sich diese Tendenz jedoch auch bei hohen Dichten fort.



**Abb. 44** – Intensitätsverschiebung des Spektrums bei der Interaktion mit Neon Man erkennt deutlich die Blauverschiebung, die auch bei höheren Dichten weiter zunimmt.

Intensität zu erkennen. Dieser Effekt kehrt sich jedoch für höhere Dichten um, wohingegen der blauverschobene Anteil des Spektrums deutlich an Intensität gewinnt.

Deutlicher werden diese Effekte wenn man sich, wie aus Abb. 41 bekannt, nicht nur die Spektren, sondern die Intensitätsdifferenz  $\Delta I = I(p) - I_0$  anschaut (s. Abb. 44). In diesen Plots sieht man deutlich die Abnahme der spektralen Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge, die Zunahme der Intensität im Blauen und den Anstieg bei 2,28 · 10<sup>15</sup> rad/s, der bei höheren Neutralteilchendichten wieder verschwindet.

## 5.2.3 Untersuchungen an Argon (Ar)

Erhöht man Z weiter und wechselt von Neon auf Argon, ändert sich das Bild abermals. In Abb. 45 ist die Abhängigkeit der  $D_2$ -Werte von der Neutralteilchendichte für die Messungen an Argon gezeigt.

Hier ist gut zu erkennen, dass die  $D_2$ -Werte für niedrige Dichten stark negativ sind, dann ansteigen und bei etwa  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  ein Maximum durchlaufen, bevor sie für höhere Dichten wieder deutlich abfallen. Wie schon bei Neon wird die Schwelle zu positiven  $D_2$ -Werten im Maximum hier auch nicht überschritten. Vergleicht man diesen Verlauf mit den Neon-Messungen, fällt bei Argon besonders die Ausbildung des Maximums bei  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  auf, wohingegen die Werte für Neon mit zunehmender Dichte weiter ansteigen.

Auch für Argon kann man sich neben der spektralen Phase die Spektren des Laserpulses nach der Interaktion ansehen. In Abb. 46 ist die bereits aus den vorherigen Messungen bekannt Differenz  $\Delta I = I(p) - I_0$  aufgetragen.



**Abb. 45** – *Abhängigkeit der*  $D_2$ -*Werte von der Neutralteilchendichte für Argon Auch hier fällt auf, dass alle gemessenen*  $D_2$ -*Werte, ähnlich wie bei Neon, negativ sind. Allerdings steigen die Werte mit zunehmender Dichte nicht kontinuierlich an, sondern durchlaufen bei mittleren Gasdichten ein Maximum.* 

Wie bei Neon ist eine über den gesamten Dichtebereich zunehmende Blauverschiebung des Pulses zu beobachten. Anders als bei Neon nimmt hier jedoch die Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge nur bei den niedrigen Dichten ab. Dieses Verhalten erinnert an die Helium-Messungen. Auch dort wurde eine Abnahme der Intensität im Roten nur für kleine Dichten beobachtet. Anders als bei Helium findet für höhere Gasdichten aber keine Umkehr dieses Prozesses statt. Vielmehr nimmt bei steigender Neutralteilchendichte die Intensität in den bereits blauverschobenen Teilen des Spektrums wieder ab. Dafür kommen Spektralkomponenten hinzu, die noch weiter im Blauen liegen. Die Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge hingegen wird bei einer Erhöhung der Dichte über  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  hinaus nicht weiter verändert.



Abb. 46 – Intensitätsverschiebung des Spektrums bei der Interaktion mit Argon Deutlich ist eine Blauverschiebung des Spektrums zu beobachten. Bei höheren Dichten ändert sich jedoch die Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge kaum noch. Dafür nimmt die Intensität der bereits blauverschobenen Spektralanteile wieder ab und neue, noch weiter blauverschobene Farbanteile kommen hinzu.

#### 5.2.4 Untersuchungen an Stickstoff (N<sub>2</sub>)



**Abb. 47** – *Abhängigkeit der*  $D_2$ -*Werte von der Neutralteilchendichte für Stickstoff* Das beobachtete Verhalten ist dem von Argon sehr ähnlich. Alle Messwerte liegen im Negativen und bei mittleren Neutralteilchendichten wird ein Maximum durchlaufen.

Betrachtet man abschließend die Messungen für Stickstoff, so zeigt sich hier ein sehr ähnliches Bild zu den von Argon bekannten Ergebnissen. Wie in Abb. 47 zu sehen ist, nehmen die  $D_2$ -Werte auch bei Stickstoff zunächst zu, durchlaufen bei mittleren Dichten ein Maximum und fallen dann bei weiterer Zunahme der Neutralteilchendichte wieder ab. Genauso wie bei Argon werden positive Werte nicht erzielt. Im Unterschied zu Argon wird das beobachtete Maximum jedoch erst etwas später, im Bereich zwischen  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ und  $n_0 = 5 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ , erreicht.



Abb. 48 – Intensitätsverschiebung des Spektrums bei der Interaktion mit Stickstoff Wie auch bei den vorangegangenen Messungen ist in den Spektren eine deutliche Blauverschiebung zu beobachten. Bei höheren Dichten ändert sich, ähnlich wie bei Argon, die spektrale Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge nicht mehr signifikant. Dafür nimmt die Intensität der bereits blauverschobenen Spektralanteile wieder ab und neue, noch weiter blauverschobene Farbanteile kommen hinzu.

Auch die Abhängigkeit der Spektren von der Neutralteilchendichte ist dem von Argon bekannten Verhalten sehr ähnlich. Wie in Abb. 48 zu sehen ist auch hier eine Abnahme der Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge, verbunden mit einer Zunahme der Intensität im Blauen, zu beobachten. Ebenso wie bei Argon stagniert diese Abnahme bei höheren Dichten, ist aber nicht wie bei Helium rückläufig. Dafür nimmt bei höheren Gasdichten, analog zu den von Argon bekannten Beobachtungen, die Intensität in dem bereits blauverschobenen Teil des Spektrums ab. Dafür kommen neue, noch weiter ins Blaue verschobene Spektralkomponenten hinzu.

# 6 PIC-Simulationen

Zum besseren Verständnis der gemachten Beobachtungen wurden eindimensionale PIC-Simulationen mit dem von Hartmut Ruhl entwickelten Code PSC [35] durchgeführt und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Ergänzend wurden für Helium zweidimensionale Simulationen mit dem kommerziellen Code OOPIC Pro [40] durchgeführt. In der hier verwendeten Version 1.0 sind die ADK-Raten für Wasserstoff, Helium und Lithium implementiert. Diese Simulationen sollen im folgenden Kapitel vorgestellt werden. Dabei werden in der gleichen Reihenfolge wie bei den gemachten Messungen zunächst die Ergebnisse der Helium-Simulationen präsentiert, gefolgt von den Ergebnissen für Neon. Danach kommen die Ergebnisse der Simulationen für Argon und Stickstoff.

#### 6.1 PIC-Simulationen an Helium

### 6.1.1 1D-PIC-Simulation des He-Gasjetexperiments

Grundlegend kann man ein Plasma modellieren, indem man unter Berücksichtigung der Maxwellgleichungen für jedes Teilchen die zugehörige Bewegungsgleichung löst und so die Trajektorien eines jeden Teilchens individuell verfolgt. Dieser Ansatz hat gegenüber der Hydrodynamik den Vorteil, dass hier keine makroskopischen Größen wie Druck oder Existenz definiert werden zumindest ein Temperatur müssen. deren lokales thermodynamisches Gleichgewicht voraussetzt. Das ist eine Voraussetzung, die in den ersten Femtosekunden der Laser-Plasma-Wechselwirkung aber nicht erfüllt ist. Damit scheint dieser Ansatz für die hier geplanten Simulationen geeignet. In der Praxis scheitert die direkte Umsetzung dieses Konzeptes jedoch an der großen Zahl der zu simulierenden Teilchen. Um diesem Problem zu entgehen, fasst man bei der "Particle-In-Cell (PIC)"-Methode jeweils eine große Anzahl realer Teilchen zu einem sogenannten Quasiteilchen oder Makropartikel zusammen. Dieses Teilchen entspricht in Masse und Ladung jeweils der Gesamtheit aller in ihm vereinigten Teilchen.

Zu Beginn eines jeden Zeitschrittes werden aus der Verteilung der Quasiteilchen und deren jeweiligen Geschwindigkeiten die Raumladungen und Ströme berechnet. Mit diesen Informationen werden auf einem räumlichen Gitter die Maxwellgleichungen gelöst und so die elektromagnetischen Felder bestimmt, die benötigt werden, um die einzelnen Teilchen mit Hilfe der Lorentzformel zu verschieben. Hierbei erhält man die Felder am Ort eines jeden Quasiteilchens durch Interpolation, ausgehend von den soeben errechneten Lösungen an den umliegenden Gitterpunkten. Danach startet dieser Zyklus wieder von vorn. Das bedeutet, dass



Abb. 49 – Spektrum und elektrisches Feld des simulierten Laserpulses

die Wechselwirkung der Teilchen untereinander nicht direkt erfolgt, sondern über die sich aus der Ladungs- und Stromverteilung ergebenen Felder.

Für die hier vorgestellten Simulationen wurde der von Hartmut Ruhl entwickelte "Plasma Simulation Code (PSC)" benutzt [35]. Bei PSC handelt es sich um einen relativistischen, dreidimensionalen PIC-Code. Die modulare Bauweise des Codes erlaubt es, neben der reinen Teilchenbewegung im elektrischen Feld über weitere Programmbausteine auch die Feldionisation und binäre Stöße zu berücksichtigen. Hierbei wird die Feldionisation über die ADK-Raten der Tunnelionisation sowohl für die Neutralteilchen als auch für die einzelnen Ionenspezies implementiert; für die Simulation binärer Stöße steht ein Monte-Carlo-Modul zur Verfügung. Ausgeführt wurde der Code auf einem 64Bit System, mit zwei AMD Opteronprozessoren (Dual-Core, 2,6GHz), dem 24GB RAM zur Verfügung standen.

Da aufgrund des sehr guten Kontrastverhältnisses des Düsseldorfer Lasersystems (>  $10^5$  für Zeiten t >1ps und >10<sup>8</sup> für t >6ps) [24] die Bildung eines Vorplasmas ausgeschlossen werden und so die reine Wechselwirkung des Laserpulses mit dem im Fokusbereich homogen verteilten Hintergrundgas untersucht werden konnte und um Rechenzeit zu sparen, wurde in den hier vorgestellten Simulationen eine eindimensionale Version des Plasma-Simulation-Codes verwendet. Um die Ionisationsprozesse bei der Wechselwirkung des Pulses mit dem neutralen Hintergrundgas zu simulieren, wurde zunächst nur das Modul für die Tunnelionisation aktiviert, da wegen der geringen Gasdichten und der kurzen Pulsdauer davon ausgegangen werden kann, dass Stoßprozesse für die beobachtete Interaktion keine Rolle spielen. Die räumliche Auflösung lag bei 20 Gitterzellen pro Mikrometer, so dass die einzelnen Schwingungen des Laserfeldes gut aufgelöst werden konnten. Um ebenfalls eine gute zeitliche Auflösung der Interaktion zu gewährleisten, wurde für die Zeitschritte eine Schrittweite von  $\Delta t = 0, 1 fs$  gewählt.



**Abb. 50** – Spektrale Phase als Ergebnis der PIC-Simulation für He Links: Die bereits bekannten Ergebnisse der Messungen am Heliumgasjet, rechts: Die Phasen als Ergebnis der PIC-Simulationen. In der oberen Zeile sind die Ergebnisse für den Bereich niedriger Dichten ( $n_0 < 410^{-19}$  cm<sup>-3</sup>) gezeigt und in der unteren Zeile die Ergebnisse für hohe Gasdichten. Man sieht gut die Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment.

Der simulierte Laserpuls hatte ein Gaußprofil mit einer FWHM von  $\tau = 10 fs$  und einer Spitzenintensität von  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{16} W / cm^{-2}$  bei einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_0 = 800 nm$ . Die Propagationslänge des Pulses im Gas betrug  $L = 36 \mu m$ , was einer Rayleighlänge entspricht. Die Gasdichte des Neutralgases wurde zwischen Vakuum und  $7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  variiert. In Abb. 49 sind für den simulierten Laserpuls das elektrische Feld, sowie das Spektrum als Ergebnis einer Fouriertransformation dargestellt.

Aus der Fouriertransformation des E-Feldes erhält man ebenfalls die spektrale Phase des Laserpulses. Befreit man diese vom konstanten und linearen Offset, so ergibt sich das in Abb. 50 gezeigte Bild.

Links sieht man die bereits bekannten Ergebnisse der Messungen am Heliumgasjet und rechts daneben die zugehörigen Phasen als Ergebnis der PIC-Simulationen. Gerade im Bereich niedriger Neutralteilchendichten (Abb. 50 oben) ist die Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation sehr gut zu beobachten: Wie auch im Experiment nimmt in der Simulation die Phase im roten Bereich zunächst zu. Für  $\omega = 2,1\cdot 10^{15} rad/s$  steigt der Phasenbeitrag von anfänglich etwa -0,25rad bei  $n_0 = 1\cdot 10^{19} cm^{-3}$  auf ca. +0,5rad bei  $n_0 = 4\cdot 10^{19} cm^{-3}$ . Im blauen Bereich hingegen ist sowohl im Experiment als auch in der Simulation eine deutliche Abnahme des Phase mit zunehmender Neutralteilchendichte zu beobachten.

Auch im Bereich höherer Dichten (Abb. 50 unten) werden die Tendenzen aus den Messungen am Gasjet in den Simulationen sichtbar widergespiegelt. Deutlich ist zu erkennen, wie sich die Tendenz im blauen Bereich der Phase umkehrt und die Phase mit zunehmender Neutralteilchendichte ansteigt. Auch das anscheinend indefinite Verhalten im roten Bereich mit einem zunächst zu beobachtenden weiteren Anstieg der Phase, gefolgt von einem starken Sprung ins Negative spiegelt sich in den Simulationen wieder.

Im Experiment rekonstruiert man die spektrale Phase aus dem SPIDER-Interferogramm. Dieses hat als Einhüllende das Intensitätsspektrum  $I(\omega)$  des Laserpulses und nicht das

Amplitudenspektrum  $\tilde{\varepsilon}(\omega)$ . Da nach (1.7)  $I \sim |\tilde{\varepsilon}|^2$  gilt, ist dieses Intensitätsspektrum naturgemäß schmalbandiger als das zugehörige Amplitudenspektrum (siehe (1.12)). Die spektrale Phase aus den Experimenten lässt sich also nur über den zentralen Teil des Laserpulses rekonstruieren.

Aus den Simulationen hingegen kennt man das temporale elektrische Feld E(t) und kann so über eine Fouriertransformation direkt auf  $\tilde{\varepsilon}(\omega)$  schließen.



#### Abb. 51 – Spektrale Phase als Ergebnis der PIC-Simulationen für He Dargestellt sind die spektralen Phasen als Ergebnis der PIC-Simulationen für unterschiedliche Gasdichten. Gestrichelt eingezeichnet sind die Grenzen des durch die SPIDER-Messungen zugänglichen Spektralbereichs. Deutlich ist zu erkennen, dass die Änderungen der Phase am Rand des Spektrums, in einem Bereich, der experimentell nicht zugänglich ist, beginnen.

Dies erlaubt die Rekonstruktion der spektralen Phase über einen weiteren Bereich, als es im Experiment möglich wäre. Macht man sich diesen Umstand zu Nutze, indem man die spektrale Phase über den gesamten bekannten Bereich plottet und noch zusätzliche Zwischenwerte berechnet ( $n_0 = 3 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  bzw.  $n_0 = 6 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ , blau gezeichnet), so ergibt sich das in Abb. 51 gezeigte Bild.

Nun ist deutlich zu erkennen, dass bereits bei sehr niedrigen Dichten eine Zunahme der spektralen Phase im roten Bereich zu beobachten ist (Abb. 51 links). Dieser Effekt liegt aber außerhalb des durch das Experiment zugänglichen Spektralbereichs, so dass der Eindruck entstand, es würde beim Übergang von  $n_0 = 1 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  auf  $n_0 = 2 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  auf dieser Seite des Spektrums keine Änderung stattfinden. Auch ist in diesem Bild besser zu erkennen, wie sich die Abnahme der spektralen Phase im Blauen einem Maximum nähert, bevor sich dieser Effekt bei weiterer Zunahme der Teilchendichte umkehrt (Abb. 51 rechts). Gleichfalls ist die Abnahme der spektralen Phase im Roten bei hohen Dichten deutlich zu sehen, die ebenfalls am Rand des Spektrums ansetzt. Dadurch entstand im eingeschränkten Sichtbereich der experimentell rekonstruierten Phase ein indefinites Bild.

Entwickelt man nun die simulierten Phasen, wie zuvor die gemessenen Phasen, in eine Taylorreihe, um die  $D_i$ -Koeffizienten zu ermitteln, ergibt sich, wie in Abb. 52 zu sehen, eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment. Klar zeigt sich in der Simulation auch, dass die  $D_2$ -Werte für Teilchendichten bis etwa  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  im Negativen liegen, während sie für größere Teilchendichten deutlich positiv sind.



**Abb. 52** – Vergleich der gemessenen mit den theoretischen  $D_2$ -Koeffizienten Hier zeigt sich, dass die Abhängigkeit der  $D_2$ -Werte von der Gasdichte in den Simulationen gut reproduziert wird. Deutlich ist auch in den Simulationen zu erkennen, dass die Werte für geringe Dichten zunächst negativ sind und dann mit zunehmender Gasdichte ansteigen und schließlich positiv werden.

Neben den spektralen Phasen erhält man aus der Fouriertransformation des E-Feldes auch das Spektrum des simulierten Laserpulses nach der Interaktion mit dem Gasjet. In Abb. 53 sind die Ergebnisse dieser Überlegung zusammen mit den Ergebnissen aus den Experimenten dargestellt. Aufgetragen ist jeweils die Differenz  $\Delta I = I(p) - I(0)$ , also die durch die Laser-Plama-Wechselwirkung hervorgerufene Änderung des Spektrums als Funktion der Kreisfrequenz: In der oberen Zeile sind die Ergebnisse für den Bereich geringer Dichten zu finden und darunter die Ergebnisse für höhere Neutralteilchendichten. Auf der linken Seite sind jeweils die experimentell ermittelten Daten gezeigt, auf der rechten Seite die zugehörigen Ergebnisse der PIC-Simulation.

Hier ist deutlich zu sehen, dass auch im Fall der Spektren die grundlegenden Tendenzen aus den Experimenten durch die Simulation widergespiegelt werden. Für niedrige Dichten ist zu erkennen, dass die Intensität im roten Teilbereich des Spektrums ab- und dafür im blauen Teil des Spektrums zunimmt. Auch zeigen die Simulationen, dass für größere Dichten dieses Bild erhalten bleibt, sich die Tendenz aber umkehrt und nun die Intensität im Blauen wieder zurück geht, während sie im Roten erneut ansteigt.

Nicht abgebildet wird durch die Simulation jedoch die zusätzliche Modulation des Spektrums, wie sie im Experiment zu beobachten ist. Hier scheint es im roten Teil des Spektrums zwei Dips zu geben, wohingegen es in der Simulation nur einen durchgehenden Bereich geringerer Intensität gibt, der sich jedoch über den gleichen roten Spektralbereich erstreckt, der sich auch im Experiment durch eine geringere Intensität auszeichnet. Das Gleiche ist auch auf der blauen Seite des Spektrums zu beobachten: In der Simulation ist der gesamte blaue Bereich des Spektrums durch einen durchgehenden Bereich erhöhter Intensität gekennzeichnet, wohingegen dieser Bereich im Experiment durch zwei aufeinander folgende Peaks abgedeckt wird.

Betrachtet man jedoch noch einmal Abb. 41, wo die Spektren der experimentellen Ergebnisse und die Plots für  $\Delta I$  gegenübergestellt sind, wird deutlich, dass die Positionen der Dips bzw. Peaks in den Plots von  $\Delta I_{exp.}$  mit den durch die Selbstphasenmodulation in der Hohlfaser entstandenen Peaks der zugehörigen Laserspektren zusammenfallen. Das bedeutet, dass die Substruktur in den  $\Delta I$ -Plots der experimentellen Ergebnisse ihre Ursache in der Modulation der Ausgangsspektren hat. Da für die PIC-Simulationen das Laserspektrum als perfekt Gaußförmig angenommen wurde, ist damit auch erklärt, warum diese Modulation in den Simulationen nicht zu beobachten ist. Nichtsdestotrotz geben die Simulationen die spektrale Umverteilung der Energie qualitativ gut wieder.



**Abb. 53** – Vergleich der simulierten Spektren mit den experimentellen Ergebnissen Links: Die Ergebnisse der Messungen am Heliumgasjet. Rechts: Die Ergebnisse der PIC-Simulationen. In der oberen Zeile sind die Ergebnisse für den Bereich niedriger Dichten  $(n_0 < 410^{-19} \text{ cm}^{-3})$  gezeigt und in der unteren Zeile die Ergebnisse für hohe Gasdichten. Gut reproduziert wird die Blauverschiebung der Spektren. Auch in den Simulationen ist deutlich die Abnahme der spektralen Intensität im roten Bereich des Spektrums sowie die Zunahme der Intensität im Blauen zu beobachten. Ebenfalls ist die Umkehr dieses Prozesses bei höheren Dichten klar zu erkennen. Nicht wiedergegeben wird die Modulation des Spektrums, die auf die Selbstphasenmodulation des Pulses in der Hohlfaser des Lasersystems zurückzuführen ist.

# 6.1.2 2D-PIC-Simulation des He-Gasjetexperiments

Ergänzend zu den 1D-PIC Simulationen mit PSC wurden 2D Simulationen mit dem Code OOPIC Pro durchgeführt. Hierbei handelt es sich um einen kommerziellen Code der Tech-X Corporation [45], der bereits mehrfach eingesetzt wurde, um Plasma basierte Teilchenbeschleunigung [41] oder die Spektren von blauverschobenen Laserpulsen [40] zu untersuchen. Wie auch bei PSC wird hier die Feldionisation über die ADK-Raten implementiert. Dabei sind im Programmcode die ADK-Raten für Wasserstoff, Helium und Lithium enthalten. Darüber hinaus besitzt der Code ein Monte-Carlo Modul über das Stöße berücksichtigt werden können.



**Abb. 54** – Simulierter Laserpuls Dargestellt ist das elektrische Feld des simulierten Laserpulses zu Beginn der Simulation.

Von extremem Vorteil ist der sogenannte "moving window algorithm". Dieser reduziert den Speicherbedarf und den Rechenaufwand der Simulation deutlich, da die Simulationsbox nicht wie bei PSC den gesamte Propagationsbereich umfassen muss. Stattdessen bewegt sich die Simulationsbox hier mit dem Laserpuls mit, so dass nur der wesentlich kleinere Bereich, indem die tatsächliche Laser Plasma Wechselwirkung erfolgt im Rechner abgebildet werden braucht. Hierdurch geht zwar die Information über die Plasmaentwicklung zu späteren Zeiten verloren, ist man jedoch nur an der Propagation des Laserpulses und nicht an der zeitlichen Entwicklung des Plasmakanals interessiert, bietet dieses Ansatz großes Einsparpotential bei der benötigten Rechenleistung und dem benötigten Arbeitsspeicher. So konnten die hier präsentierten Simulationen auf einem Standard Linux-System mit einem AMD Athlon Prozessor mit 1,8GHz Taktfrequenz und 512MB RAM durchgeführt werden.

Hierbei wurde der Laserpuls wieder als Gaußpuls mit 10fs Länge (FWHM<sub>I</sub>) und einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_0 = 800 nm$  bei einer Spitzenintensität von  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{16} W/cm^{-2}$  angesetzt. Im Koordinatensystem der Simulation propagiert der Puls in x-Richtung, wobei sich der Gasjet in der x/y-Ebene ausbreitet. Der Puls selbst ist linear in z-Richtung polarisiert. Ein Bild des Pulses ist in Abb. 54 zu sehen.

Die verwendete Simulationsbox hat eine Ausdehnung von 512 Zellen in x- und 256 Zellen in y-Richtung, wobei die Laserwellenlänge mit 16 Gitterzellen aufgelöst wird. Für eine ausreichende zeitliche Auflösung beträgt das Zeitintervall zwischen zwei Iterationsschritten  $\Delta t = 0,165 fs$ .



**Abb. 55** – Spektrale Phase der OOPIC-Simulation Wie dargestellt ist die spektrale Phase aus den OOPIC-Simulationen in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen und den Daten der 1D Simulationen. Auch bei den 2D-Simulationen ist zu beobachten, dass die D<sub>2</sub>-Werte für kleine Dichten zunächst negativ sind, dann ab  $4 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  stark anwachsen und schließlich positiv werden.

Zur Simulation der Wechselwirkung des Laserpulses mit einem Heliumgasjet wird der Laserpuls zunächst im Vakuum generiert (linke Seite der Box) und wandert dann durch die Simulationsbox, bis er nach 25,2 $\mu$ m (8 Gitterzellen vor dem rechten Ende der Box) auf das Gas trifft. Hierbei steigt die Gasdichte über 4 Gitterzellen linear auf  $n_0$  an, so dass 4 Zellen vor dem ursprünglichen Ende der Box die maximale Gasdichte erreicht wird.

Durch diese propagiert der Puls dann für  $L = 36 \mu m$ , was einer Rayleighlänge entspricht. Um diese Propagation in der Simulationsbox beobachten zu können, wird der "moving window algorithm" 15 Zellen vor Erreichen des Boxendes aktiviert, so dass sich der Puls immer kurz vor dem rechten Ende der Box befindet. Dadurch wird nicht nur der Puls selbst, sondern auch ein möglichst großer Teil des erzeugten Plasmakanals in der Simulationsbox abgebildet. Das Monte-Carlo Modul bleibt hierbei deaktiviert, da Stöße und Stoßionisation in der kurzen Zeit der Pulspropagation keine Rolle spielen.

In Abb. 55 sind als Ergebnis dieser Simulationen die  $D_2$ -Werte der spektralen Phase im Vergleich mit den Werten der experimentellen Ergebnissen und der 1D-Simulationen zu sehen. Man erkennt sehr gut, wie auch bei den 2D-Simulationen die  $D_2$ -Werte zunächst im Negativen liegen, dann für Neutralteilchendichten größer als  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  stark anwachsen und schließlich positiv werden.

Ergänzend zu den bisherigen Ergebnissen erlaubt die 2D-Simulation auch einen Einblick in die Entstehung des Plasmakanals als Folge der Tunnelionisation. In Abb. 56 ist ein Bild des Kanals für verschiedene Neutralteilchendichte angefangen von  $n_0 = 1 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  bis  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  nach einer Propagation von  $L = 36 \mu m$  durch den Gasjet zu sehen.





**Abb.** 56 – Plasmakanal für Helium nach  $L=36\mu m$ Gezeichnet ist  $n_e/n_0$  für verschiedene Dichten des Neutralgases. Zur besseren räumlichen / zeitlichen Orientierung ist für  $n_0=1.10^{19} \text{ cm}^{-3}$  und  $n_0=6.10^{19} \text{ cm}^{-3}$ das elektrische Feld des ungestörten, durch Vakuum propagierten Laserpulses grau gezeichnet. Man erkennt deutlich, dass die zweite Ionisationsstufe mit zunehmender Dichte erst weiter hinten im Puls erreicht wird.

Gut zu erkennen ist, dass in den äußeren Bereichen des Kanals (transversal) nur einfach ionisiertes Helium auftritt, wohingegen im Zentrum des Kanals aufgrund der höheren Intensitäten die zweite Ionisationsstufe erreicht wird.

In longitudinaler Richtung kann man beobachten, dass das Neutralgas bei geringen Dichten bereits am Anfang des Kanals (rechte Seite der Box) bis zur zweiten Stufe ionisiert wird. Bei höheren Gasdichten ändert sich dieses Bild. Hier ist zu sehen, dass die zweite Ionisationsstufe erst zu späteren Zeiten erreicht wird. Besonders deutlich wird dies, wenn man, das Auftreten von  $He^{++}$  relativ zum hier grau gezeichneten elektrischen Feld des ungestörten, durch Vakuum propagierten Laserpulses betrachtet.

### 6.1.3 Einfluss der Laserintensität auf die gemessene Phase

Wie in Kapitel 5.2.1 ausgeführt wurde, dauert die Aufnahme eines kompletten Datenpunktes etwa 30 Minuten und die Aufnahme einer ganzen Messreihe demzufolge mehr als 3 Stunden. Obwohl nach jeder Messung der Energieoutput des Lasers kontrolliert und ggf. nachjustiert wurde, um konstante experimentelle Rahmenbedingungen zu gewährleisten, waren Schwankungen der Laserintensität über solch lange Zeiträume nicht auszuschließen. Wie die immer wieder durchgeführten Kontrollmessungen ergaben, wich die Laserleistung aufgrund der regelmäßigen Nachjustage jedoch niemals um mehr als 8% von dem zu Beginn der Experimente eingestellten Wert ab. Um den durch diese Schwankungen entstandenen Fehler in den gemessenen  $D_2$ -Werten abschätzen zu können, wurden mit dem 2D-Code OOPIC Simulationen des Heliumexperiments mit unterschiedlichen Pulsenergien gerechnet. Dabei wurde die Laserleistung um bis zu  $\pm 20\%$  bezogen auf  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{16} W cm^{-2}$  variiert. Das Ergebnis dieser Betrachtungen ist in Abb. 57 zu sehen. Wie der Grafik zu entnehmen ist, schwanken die D2-Werte aufgrund der Variation der Laserintensität nur geringfügig. Für Änderungen von  $\Delta I = \pm 0, 2 \cdot 10^{16} W cm^{-2} (\triangleq 8\%)$  weichen die  $D_2$ -Werte um nicht mehr als  $5 fs^2$ von den Ausgangswerten ab. Dies entspricht dem in Kapitel 5.2.1 ermittelten Wert für die maximale Unsicherheit des Messsignals. Lediglich bei  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  wird dieser Wert mit  $6fs^2$  bei einer Intensität von  $I_0 = 2, 3 \cdot 10^{19} Wcm^{-2}$  leicht überschritten. Selbst bei einer Variation der Laserintensität von 20% ist der grundlegende Verlauf der Dichteabhängigkeit  $D_2(n_0)$  klar zu erkennen. Für alle simulierten Datenreihen liegen die  $D_2$ -Werte im Bereich unterhalb von  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  deutlich im Negativen, steigen dann an und sind ab etwa



**Abb. 57** – Einfluss der Laserintensität auf die gemessene Phase Dargestellt ist die Änderung der  $D_2$ -Koeffizienten infolge einer Variation der Laserintensität. In blau aufgetragen die Ergebnisse bei einer Schwankung um  $\pm 8\%$ . Dies entspricht der maximalen Schwankung der Laserintensität während des Experiments. Zum Vergleich sind in rot die Ergebnisse bei einer Schwankung um bis zu 20% eingezeichnet.

 $n_0 = 5 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  positiv. Somit kann gestützt auf diese Ergebnisse, die Schwankung der Laserintensität über den Messzeitraum für die folgenden Betrachtungen vernachlässigt werden.

### 6.2 PIC-Simulationen der Neon-Messungen

Nachdem die Ergebnisse der Messungen an Helium sowohl in ein- als auch in zweidimensionalen Simulationen gut reproduziert wurden, sollen in diesem Kapitel die Ergebnisse der Neon-Messungen im PC nachgebildet werden.



**Abb. 58** – Simulation und Messung der Dichteabhängigkeit der  $D_2$ -Werte von Neon Wie im Experiment beobachtet reproduziert die Simulation gut den Abfall der  $D_2$ -Werte bei geringen Neutralteilchendichten und den anschließenden kontinuierlichen Anstieg.

Diese Simulationen basieren, wie schon bei Helium, auf der 1D-Version des Plasma-Simulations-Codes (PSC).

Ersetzt man hier die ADK-Raten von Helium durch diejenigen für Neon und lässt den Laserpuls wieder für eine Rayleighlänge durch das Gas propagieren, erhält man für die untersuchte Abhängigkeit der Phase von der Gasdichte das in Abb. 58 gezeigte Bild.

In guter Übereinstimmung mit den Messungen ist das beobachtete Verhalten durch die Simulation wiedergegeben. Man sieht sehr deutlich den Abfall der  $D_2$ -Werte bei niedrigen Dichten und den anschließenden Anstieg ab etwa  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ . Auch zeigt sich in der Simulation genau wie in den Messungen, dass die  $D_2$ -Werte für höhere Dichten zwar ansteigen, im beobachteten Dichtebereich bis  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  jedoch nicht wie von Helium bekannt ins Positive wechseln.

Betrachtet man ergänzend die simulierten Spektren, so erkennt man auch hier eine gute Reproduktion der wesentlichen Ergebnisse aus den Experimenten. In Abb. 59 sind die Ergebnisse der Simulation dargestellt. Gezeigt werden die Differenzplots  $\Delta I(n) = I(n) - I_0$ , also die durch das Plasma hervorgerufene Änderung des Spektrums in Abhängigkeit von der Neutralgasdichte. Deutlich ist zu erkennen, dass die spektrale Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge ab- und dafür im blauen Bereich des Spektrums zunimmt. Die Simulation gibt auch die im Experiment bei kleinen Dichten beobachtete Zunahme der Intensität im Roten gut wieder, sowie die anschließende Abnahme dieses Peaks bei höheren Dichten.



Abb. 59 – Simulierte Spektren des Neonexperiments Deutlich ist zu erkennen, dass die spektrale Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge ab- und dafür im blauen Bereich des Spektrums zunimmt. Die Simulation gibt auch die im Experiment bei kleinen Dichten beobachtete Zunahme der Intensität im Roten gut wieder, sowie die anschließende Abnahme dieses Peaks bei höheren Dichten.

Mit den gleichen Simulationsparametern wie für Helium und Neon kann man unter Berücksichtigung der geänderten ADK-Raten auch die Messungen für Argon im PC simulieren. Das Ergebnis dieser Rechnungen ist in Abb. 60 zu sehen. Hier ist die Abhängigkeit der  $D_2$ -Werte von der Neutralteilchendichte des Edelgases dargestellt.



**Abb. 60** – Simulation und Messung der Dichteabhängigkeit der  $D_2$ -Werte für Argon In Übereinstimmung mit dem Experiment ist auch in den Simulationen zu erkennen, dass die spektrale Phase im gesamten untersuchten Dichtebereich negativ ist. Ebenfalls gut wiedergegeben wird das Maximum im Bereich mittlerer Gasdichten.

Der Vergleich der gemessenen Werte mit den Ergebnissen der PIC-Simulation zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Rechnung. Deutlich ist zu erkennen, das wie in den Messungen auch in der Simulation die  $D_2$ -Werte bei geringen Dichten zunächst ansteigen und dann bei etwa  $n_0 = 4 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  ein Maximum durchlaufen, bevor sie bis  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ kontinuierlich abfallen.



**Abb. 61** – Simulierte Spektren des Argonexperiments Wie im Experiment ist auch in den Simulationen eine deutliche Blauverschiebung zu erkennen. Details siehe Text.
Betrachtet man die simulierten Spektren, so geben auch diese die wesentlichen Charakteristika der Messungen gut wieder. Vergleicht man die Ergebnisse aus Abb. 61 mit den experimentellen Befunden, zeigt sich auch hier die deutliche Abnahme der Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge, die bei höheren Dichten stagniert. Ebenso wird durch die Simulationen die starke Blauverschiebung wiedergegeben. Wie im Experiment ist in den Simulationen zu erkennen, dass die spektrale Intensität bei niedrigen Neutralteilchendichten zunächst im Bereich der Zentralwellenlänge ab- und dafür im blauen Teil des Spektrums zunimmt. Bei höheren Dichten kommen dann in Übereinstimmung mit den experimentellen Befunden weitere spektrale Komponenten im Blauen hinzu, während die Intensität im bereits blauverschobenen Teil des Spektrums wieder leicht abnimmt.

### 6.4 PIC-Simulationen der Stickstoff-Messungen

Wie von den experimentellen Ergebnissen zu erwarten, sind die Resultate der Simulationen für die Interaktion mit Stickstoff den Ergebnissen für Argon ähnlich. In Abb. 62 ist der simulierte Verlauf der  $D_2$ -Werte zu sehen. Er befindet sich in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Messungen. Man erkennt sehr gut den Anstieg der Werte bei geringen Dichten. Wie auch in den Messungen wird bei etwa  $n_0 = 5 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  ein Maximum durchlaufen, dass jedoch immer noch im Bereich negativer  $D_2$ -Werte liegt. Danach fallen die  $D_2$ -Werte bis  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  kontinuierlich ab.



**Abb.** 62 – Simulation und Messung der Dichteabhängigkeit der  $D_2$ -Werte für Stickstoff In guter Übereinstimmung mit dem Experiment ist auch in der Simulation ein deutliches Maximum der  $D_2$ -Werte bei mittleren Gasdichten zu beobachten.



**Abb. 63** – Simulierte Spektren des Stickstoffexperiments Deutlich ist die Abnahme der Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge zu sehen, die bei höheren Dichten stagniert. Ebenso wird die aus dem Experiment bekannte Änderung der Blauverschiebung in Abhängigkeit der Gasdichte gut wiedergegeben. Details hierzu siehe Text.

Abschließend bleibt noch ein Vergleich der simulierten Spektren mit den zugehörigen Messungen übrig. Auch hier ist wieder eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment zu beobachten. Wie in Abb. 63 zu sehen werden auch hier die wichtigsten Ergebnisse der Messungen durch die Simulationen wiedergegeben. Deutlich ist die Abnahme der Intensität im Bereich der Zentralwellenlänge zu sehen, die bei höheren Dichten stagniert. Ebenso wird die Blauverschiebung gut wiedergegeben: Zunächst nimmt die Intensität im Blauen zu, wohingegen für höhere Dichten der entstandene Peak wieder an Intensität verliert. Dies führt, wie im Experiment sowohl bei Stickstoff als auch bei Argon beobachtet, zu einer weiteren Zunahme der Blauverschiebung.

## 7 Interpretation

Nachdem die Ergebnisse der PIC-Simulationen vorgestellt wurden, die in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Befunden sind, soll im folgenden Kapitel eine Erklärung für die gemachten Beobachtungen gegeben werden. Es wird darum gehen zu verstehen, welchen Einfluss die Interaktion des Lasers mit dem Gasjet auf den Puls hat und wie dies Ausdruck in den beobachteten Variationen der spektralen Phase findet. Hierbei wird sich besonders die Betrachtung der aus den Simulationen erhaltenen elektrischen Felder E(t)als nützlich erweisen.

Zunächst wird eine Erklärung für die Ergebnisse der Heliummessungen gegeben. Dies erscheint sinnvoll, da hier eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment erzielt wurde und es durch die Nutzung von OOPIC möglich war ergänzend zu den eindimensionalen Simulationen auch zweidimensionale durchzuführen; sie gewähren durch die Abbildung des Plasmakanals einen zusätzlichen Einblick in die Interaktion.

Anschließend wird das für Helium entwickelte Erklärungsmodell mit Hilfe der Messungen an Neon, Argon und Stickstoff überprüft und bestätigt.

### 7.1 Interpretation der Helium-Messungen

Betrachtet man zunächst einmal die aufgenommenen Spektren und nicht die spektrale Phase, so fällt für alle Gase eine deutliche Blauverschiebung auf. Das ist ein Effekt, der für längere Laserpulse schon früher beobachtet wurde und dort gut verstanden ist [32], [40]. Um das Auftreten der Blauverschiebung zu verstehen, muss man sich die Situation vor Augen führen, die zu Beginn des Experiments vorliegt. Zuerst propagiert der Laserpuls durch Vakuum und wird durch eine Parabel fokussiert. Hierdurch steigt die Intensität im Puls bis zum Erreichen des Fokus auf  $I_0 \approx 3 \cdot 10^{16} W cm^{-2}$  an (s. Kapitel 4.4). Mit dieser Intensität trifft der Puls dann im Fokus auf neutrales Heliumgas. Aus der BSI-Theorie (s. Kapitel 3.2) weiß man, dass Helium spätestens bei Erreichen einer Intensität von  $1,5 \cdot 10^{15} W / cm^{-2}$  einfach bzw. ab  $8,8 \cdot 10^{15} W cm^{-2}$  zweifach ionisiert (vgl. Tab. 2). Bei einer Laserpulses vollständig ionisiert wird. Dies führt zu einem starken Anstieg der Elektronendichte und damit zu einer Variation des Brechungsindexes. Wie in Kapitel 3.3.2 ausgeführt wurde, ist eine solche Änderung des Brechungsindexes während der Pulspropagation Ursache einer ionisationsbedingten Blauverschiebung. Im Spektrum (s. Abb. 53) ist dies als Zunahme der Intensität im blauen

Teil des Spektrums bei gleichzeitiger Abnahme der Intensität im roten zu beobachten. Das heißt, für die Änderungen im Spektrum des Pulses sind maßgeblich die Ionisationsprozesse beim Auftreffen des Lasers auf das neutrale Gas verantwortlich.

Betrachtet man nun die aus den OOPIC-Simulationen erhaltenen Bilder des Plasmakanals (s. Kapitel 6.1.2), sieht man, dass es mit zunehmender Neutralgasdichte zu einer Änderung des Ionisationsverhaltens kommt. Relativ zum Laserpuls findet die Ionisation  $He \rightarrow He^+$  auch bei höheren Dichten am Anfang des Pulses statt. Mit zunehmender Dichte verschiebt sich der Übergang zur zweiten Ionisationsstufe jedoch vom Anfang des Pulses zur Pulsmitte hin. Da die Ionisation in den Computermodellen nicht auf Kollisionen und Stößen, sondern ausschließlich auf der Feldionisation beruht, ist es sinnvoll sich das elektrische Feld des Pulses und die von ihm erzeugte Ionisation genauer anzusehen.

Betrachtet man nur die Tunnelionisation losgelöst von der Pulspropagation oder der Einzelteilchenbewegungen im Plasma, kann man mit der von Keldysh entwickelten Formel für die Raten der Tunnelionisation (s. Kapitel 3.2.2) und den Ionisationspotentialen für Helium aus Tab. 2 ein stark vereinfachtes Modell entwickeln, dass es erlaubt, bei vorgegebenem elektrischem Feld E(t) und vorgegebener Neutralteilchendichte  $\rho_0$  die Elektronendichte  $n_e$  über den Laserpuls zu berechnen. Die Raten für die Einfach- bzw. Zweifachionisation des Heliums berechnen sich nach (1.46) zu

$$\Gamma = 4\omega_a \left(\frac{E_{ion}}{E_h}\right)^{\frac{5}{2}} \frac{E_a}{E_L(t)} \exp\left[-\frac{2}{3} \left(\frac{E_{ion}}{E_h}\right)^{\frac{3}{2}} \frac{E_a}{E_L(t)}\right].$$
(1.151)

$$E_{ion}(He \to He^+) = 24,59eV \tag{1.152}$$

$$E_{ion}(He^+ \to He^{++}) = 54,42eV$$
 (1.153)

$$E_a \approx 5.1 \cdot 10^{11} Vm^{-1} \tag{1.154}$$

$$\omega_a = 4.16 \cdot 10^{16} \, s^{-1} \tag{1.155}$$

Kann man, wie in dem hier betrachteten Fall, Rekombinationen vernachlässigen, berechnet sich die Besetzungsdichte einer Ionisationsstufe gemäß

$$\frac{dn_Z}{dt} = \Gamma_Z \cdot n_{Z-1} - \Gamma_{Z+1} \cdot n_Z \,. \tag{1.156}$$

#### Für Helium gilt also

$$\frac{dn_{He^+}}{dt} = \Gamma_1 \cdot n_{He^0} - \Gamma_2 \cdot n_{He^+}$$
(1.157)

$$\frac{dn_{He^{++}}}{dt} = \Gamma_2 \cdot n_{He^+}, \qquad (1.158)$$

wobei noch der Masseerhalt berücksichtigt werden muss

$$\rho_0 = n_{He^0} + n_{He^+} + n_{He^{++}} \,. \tag{1.159}$$

Die Gesamtelektronendichte ergibt sich schließlich aus den Besetzungsdichten  $n_{He^+}$  und  $n_{He^{++}}$ 

$$n_e = n_{He^+} + 2 \cdot n_{He^{++}} \,. \tag{1.160}$$

Setzt man dieses Modell in ein IDL-Programm um, ergibt sich für die elektrischen Felder der PSC-Simulationen das in Abb. 64 gezeigte Bild. Sehr deutlich sieht man, wie bei geringen Gasdichten die Ionisation des Gases nach Überschreiten der Ionisationsschwelle bei etwa t = -10 fs über den gesamten vorderen Teil des Laserpulses stattfindet. Der Übergang von der ersten zur zweiten Ionisationsstufe ist nahezu fließend. Für  $n_0 = 1 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  beginnt die Zweifachionisation bei  $t_1 = -5,9 fs$  und Vollionisation wird bei  $t_2 = -1,8 fs$  erreicht. Die Elektronendichte steigt hier über einen Bereich von  $\Delta t = 4,1 fs$  an. Dies deckt sich gut mit den Beobachtungen aus OOPIC, nach denen die Zweifachionisation bei geringen Dichten weit vorne im Puls ansetzt.

Betrachtet man nun das elektrische Feld bei höheren Dichten, so fällt eine starke Deformation des Pulses auf. Im vorderen Teil hat die Feldamplitude gegenüber dem ungestörten, Gaußförmigen Puls abgenommen. Dafür ist die Amplitude der fallende Flanke am Ende des Pulses stark angestiegen. Diese Änderung hat einen deutlichen Einfluss auf das Ionisationsverhalten. Wie man aus den Berechnungen ersehen kann, sind bei höheren Gasdichten die Übergänge zur ersten bzw. zweiten Ionisationsstufe zeitlich deutlich voneinander getrennt. Betrachtet man z.B. den Fall für  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ , so sieht man, dass die erste Ionisationsstufe noch immer bei t = -10 fs erreicht wird. Der Übergang zur zweiten Ionisationsstufe beginnt jedoch erst bei  $t_1 = -2$ , 7 fs. Vollionisation wird sogar erst in der Pulsmitte bei  $t_2 = 0 fs$  erreicht. Das bedeutet, bei höheren Dichten wird die zweite Ionisationsstufe nicht nur deutlich später erreicht, sondern gleichzeitig nimmt aufgrund der höheren Neutralteilchendichte auch der



-4

-20

-10

0

t [fs]

10









Neben dem E-Feld des Lasers (schwarz) ist die Elektronendichte (rot), ermittelt auf Basis der Tunnelionisationsraten, dargestellt. Sehr gut zu beobachten ist, wie bei niedrigen Gasdichten die Elektronendichte über den gesamten vorderen Teil des Laserpulses ansteigt. Bei Dichten die und höheren werden erste zweite Ionisationsstufe räumlich stärker voneinander getrennt. Dazwischen bildet sich ein Plateau konstanter Elektronendichte.

Betrachtet man das E-Feld, sieht man deutlich, wie der vordere Teil des Pulses im Bereich der stark ansteigenden Elektronendichte blau verschoben wird. Gleichzeitig ist zu beobachten, wie die Feldintensität im Bereich des Plateaus abnimmt.

0.0

20

Gradient der Elektronendichte im Bereich der zweiten Ionisationsstufe deutlich zu. Dort gilt:

$$\frac{d}{dt} \left( n_0 = 7 \cdot 10^{19} \, cm^{-3} \right) >> \frac{d}{dt} \left( n_0 = 1 \cdot 10^{19} \, cm^{-3} \right). \tag{1.161}$$

Um zu verstehen, wie diese Verschiebung der zweiten Ionisationsstufe Einfluss auf die gemessene spektrale Phase nimmt, muss man sich vergegenwärtigen, dass dieser Gradient in der Elektronendichte nach Formel (1.63) zu der bereits erwähnten Blauverschiebung des Laserpulses führt. Die Blauverschiebung sieht man in Abb. 64 sehr deutlich als eine verkürzte Periodendauer im Bereich der Ionisation. Man sieht, wie der vordere Teil des Pulses (vor Erreichen der Ionisationsschwelle) unverändert bleibt, dann die Frequenz aufgrund der Blauverschiebung ansteigt und schließlich im hinteren Teil des Pulses wieder auf den ursprünglichen Wert zurückkehrt. Das heißt, man wird im Puls immer zwei Bereiche mit einem Ionischiedlichen Farbverlauf beobachten. Zunächst gibt es einen Bereich mit einem Farbverlauf (Chirp) von rot nach blau. Einen solchen Verlauf bezeichnet man als positiven Chirp. Anschließend folgt ein Bereich mit einem rückläufigen Farbverlauf von blau nach rot, welchen man entsprechend als negativen Chirp bezeichnet.

In Abb. 65 links ist zur Illustration dieses Sachverhaltes der Frequenzverlauf des Laserpulses für zwei unterschiedliche Dichten aufgetragen. Sehr gut sieht man die durch die erste bzw. zweite Ionisationsstufe hervorgerufene Blauverschiebung und die damit einhergehenden Bereiche positiven bzw. negativen Chirps. Sehr gut ist auch zu sehen, dass für beide Fälle die Ionisation zu He<sup>+</sup> zur gleichen Zeit beginnt, dass die Ionisation zur zweiten Stufe bei höheren Dichten jedoch erst später einsetzt als bei niedrigeren Dichten.



**Abb. 65** – Farbverlauf im Puls für niedrige und hohe Dichten im Vergleich Links: Deutlich ist die Blauverschiebung hervorgerufen durch die Einfachbzw. Zweifachionisation zu erkennen. Rechts: Zentrum des Pulses mit einer höheren Zeitauflösung.

Da die Intensität im Laserpuls zur Pulsmitte hin (t=0fs) stark ansteigt, wird die spektrale Charakteristik des Laserpulses von dem Verhalten im Bereich der zweiten Ionisationsstufe dominiert. Eine Detailvergrößerung dieses Bereichs sieht man in Abb. 65 rechts.

Dort ist gut zu erkennen, wie durch die Verschiebung der Ionisationsstufe bei höheren Dichten das Zentrum des Pulses von einem Bereich positiven Chirps dominiert wird, wohingegen bei niedrigeren Dichten der positive Chirp bereits vor der Pulsmitte endet und das Pulszentrum von einem negativen Chirp dominiert wird. Auch ist zu beobachten, dass der Farbverlauf für große  $n_0$  im Bereich der steigenden Flanke aufgrund der größeren Gradienten in der Elektronendichte viel steiler verläuft als der Farbverlauf in der fallenden Flanke.

In Kapitel 2.2 wurde mit Gleichung (1.21) ein Ausdruck für den Zusammenhang zwischen den ermittelten  $D_2$ -Werten und dem daraus resultierenden Frequenzverlauf ermittelt. Wichtige Erkenntnisse aus dieser Gleichung sind:

- ein positiver Chirp stammt von einem positiven  $D_2$
- ein negativer Chirp stammt von einem negativen  $D_2$
- je steiler der Farbverlauf, desto größer der Betrag von D<sub>2</sub>.

Aus diesen Überlegungen heraus wird ersichtlich, wie durch die Verschiebung der Ionisationsstufen der Übergang von einem Puls mit negativen  $D_2$  zu einem Puls mit positiven  $D_2$  möglich wird. Die gemachten Beobachtungen lassen sich wie folgt erklären:

Bedingt durch die vom Puls selbst hervorgerufene Ionisation des Neutralgases kommt es zu einer Blauverschiebung des Laserpulses. Dadurch ergeben sich im Puls Bereiche mit einem positiven und solche mit einem negativen Chirp.

Bei geringen Dichten wird der Zentralbereich des Pulses von der fallenden Flanke der Blauverschiebung (negativer Chirp) dominiert. Dies führt in den gemessenen Phasen zu einem negativen D<sub>2</sub>.

Bei höheren Dichten kommt es zu einer Deformation des Laserpulses und damit zu einer Verschiebung der Ionisationsstufen relativ zum Puls. Hierdurch wird der Zentralbereich des Laserpulses bei höheren Dichten von der steigenden Flanke der Blauverschiebung dominiert. Dieser positive Chirp führt zu einem positiven  $D_2$ . Zusätzlich ist der positive Farbverlauf bei großen Dichten wesentlich steiler als der negative Farbverlauf an der fallenden Flanke, so dass auch unter diesem Gesichtspunkt der positive Beitrag zu  $D_2$  größer ausfällt als der negative.

Damit ist die beobachtete Änderung in der gemessenen Phase letztlich auf die Deformation des Pulses und die damit einhergehende Verschiebung der Ionisationsstufen relativ zum Puls zurückgeführt. Nicht erklärt ist bis jetzt jedoch, wie es zu der beobachteten Deformation des Pulses kommt. Von ihrer Struktur her erinnert sie an das von der Selbstphasenmodulation (s. Kapitel 3.1) her bekannte "Self-steepening". Wie [22] berichtet kann der Anteil des intensitätsabhängigen Brechungsindexes (s. (1.35)) bei der Propagation eines Pulses in einem polarisierbaren Medium so stark werden, dass der Laserpuls sich ähnlich zu dem hier beobachteten Fall verformt. Das heißt, die Anteile hoher Intensität werden aufgrund des intensitätsabhängigen Brechungsindexes gegenüber den Anteilen mit niedriger Intensität so stark gebremst, dass die Feldamplitude im vorderen Teil des Pulses ab- und statt dessen im hinteren Teil des Pulses zunimmt. Dadurch bildet sich am Ende des Pulses gegenüber dem ungestörten Gauß-förmigen Puls eine wesentlich steilere fallende Flanke aus, die diesem Effekt ihren Namen verleiht.

Allerdings beruht dieser Effekt auf der nichtlinearen Polarisation des Mediums. Also auf der Ausrichtung der inneratomaren Struktur der Materie im elektrischen Feld des Lasers. Dieser Effekt wird von einem PIC-Code jedoch nicht aufgelöst. PIC-Codes fassen mehrere Teilchen zu jeweils einem Makropartikel zusammen. Dabei werden Masse, Ladung und Impuls bzw. Geschwindigkeit der einzelnen Teilchen aufsummiert, deren innere Struktur bleibt jedoch unberücksichtig. So können Polarisationseffekte, wie die Selbstphasenmodulation oder das Self-steepening von einem PIC-Code nicht wiedergegeben werden.

Nichtsdestotrotz ergibt sich durch die Feldionisation des Mediums eine intensitätsabhängige Elektronendichte und damit ein intensitätsabhängiger Brechungsindex, der, wie gesehen, aufgrund der sich ändernden Phasengeschwindigkeit zu einer Blauverschiebung des Pulses führt. Berücksichtig man gleichzeitig, dass es durch den geänderten Brechungsindex nicht nur zu einer geänderten Phasengeschwindigkeit, sondern auch zu einer geänderten Gruppengeschwindigkeit kommt, kann man sich überlegen, dass dies ebenfalls zu einer Deformation des Pulses führen kann. Der vordere Teil des Pulses, der aufgrund seiner geringen Intensität durch neutrales oder einfach ionisiertes Gas propagiert, hat eine größere Gruppengeschwindigkeit als der intensivere Teil des Pulses, welcher durch eine größere Elektronendichte gebremst wird. Hierdurch läuft der vordere Teil des Pulses dem hinteren davon und die intensiveren Anteile, die immer stärker gebremst werden, sammeln sich am Ende des Pulses.

Um die Größe dieses Effekts abschätzen zu können, nehme man an, der Puls bestünde aus zwei Einzelpulsen: einem Puls  $P_1$  mit geringer Intensität, der ohne das Helium zu ionisieren

durch neutrales Gas propagiert, und einem Puls  $P_2$  mit hoher Intensität, der durch vollionisiertes Helium läuft. Für beide Pulse kann man berechnen, wieviel Zeit sie benötigen, um, wie in den Simulation angenommen, jeweils eine Rayleighlänge zurückzulegen.

Für Phasen- und Gruppengeschwindigkeit gilt (s. (1.99))

$$v_{Ph} = \frac{c_0}{n}$$

$$v_g = v_{Ph} - \lambda \frac{dv_{Ph}}{d\lambda}$$
(1.162)

Für den Brechungsindex im Plasma gilt

$$n = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{krit}}}, \qquad (1.163)$$

wobei die kritische Dichte als Funktion der Wellenlänge gegeben ist durch

$$n_{krit}\left(\lambda\right) = 4 \frac{\varepsilon_0 m_e \pi^2 c^2}{e^2 \lambda^2} \,. \tag{1.164}$$

Für den Puls  $P_1$  ( $\lambda_0 = 800nm$ ), der ohne das Gas zu ionisieren, also quasi im Vakuum eine Strecke von  $z_R = 36\mu m$  zurücklegt, ergibt sich hieraus eine Propagationszeit von

$$t_1 = \frac{z_R}{v_1} = 120 \, fs \,. \tag{1.165}$$

Nimmt man eine Elektronendichte von  $n_e = 12 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  an, wie sie sich bei zweifacher Ionisation für eine simulierte Neutralteilchendichte von  $n_0 = 6 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  ergibt, erhält man für den zweiten Puls  $P_2$  eine Propagationszeit von

$$t_2 = \frac{z_R}{v_2} = 125,03\,fs\,. \tag{1.166}$$

Das bedeutet, dass der Teil des Pulses, der aufgrund seiner höheren Intensität durch die volle Elektronendichte propagiert, bis zu 5fs gegenüber dem vorderen Teil des Pulses verzögert wird. Dies entspricht bei einem 10fs Puls einer halben Pulslänge und erklärt somit, wie es zu der beobachteten Deformation des Pulses und folglich zu der Verschiebung der Ionisationsstufen relativ zum Puls kommt.

#### 7.2 Interpretation der Neon-Messungen

Nachdem an Helium ein Erklärungsmodell entwickelt wurde, das die gemachten Beobachtungen erklärt, soll nun überprüft werden, ob dieses Modell auch die gemessene Druckabhängigkeit der Phase bei den Messungen mit Neon erklären kann.

Betrachtet man zunächst die elektrischen Felder des Laserpulses, wie man sie aus den PSC-Simulationen erhält (s. Abb. 66), sieht man auch hier eine mit zunehmender Dichte voranschreitende Deformation des Pulses, wie sie schon von den Beobachtungen an Helium her bekannt ist. Deutlich sieht man auch, dass bei höheren Dichten hierdurch die Ionisation der höheren Stufen wie schon bei Helium zu späteren Zeiten hin verschoben wird. Die einfache Ionisation beginnt in allen Fällen bei etwa t = -11 fs. Dies ist verständlich, da vor Ionisationsbeginn keine Elektronendichte vorhanden ist, die durch eine veränderte Gruppengeschwindigkeit zu einer Deformation des Pulses führen könnte. Das heißt, dass der Anfang des Pulses unverändert bleibt und somit die Intensitätsschwelle für die einfache Ionisation immer bei etwa t = -11 fs erreicht wird. Anders sieht dies für die höheren Ionisationsstufen aus. Bei geringen Dichten wird eine Dreifachionisation etwa in der Mitte des Pulses bei t = +2 fs erreicht. Bei höheren Dichten verschiebt sich dies weit in den hinteren Teil des Pulses. Bei einer Neutralteilchendichte von  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  wird das Ende der dritten Stufe erst bei t = +8 fs erreicht.

Betrachtet man den durch die erzeugten Elektronendichten hervorgerufenen Chirp des Pulses (s. Abb. 67 links), so erkennt man sehr gut den Beginn der Ionisation bei t = -11 fs und den Übergang der Ionisation zur zweiten Stufe bei etwa t = -5 fs. Auch ist zu erkennen, dass der Übergang von der zweiten zur dritten Stufe fließend stattfindet und sich im Farbverlauf kein zusätzlicher Peak ausbildet. Darüber hinaus fällt auf, dass mit zunehmender Dichte der Peak der letzten beiden Ionisationsstufen, wie von der Betrachtung der Elektronendichten zu erwarten, zu späteren Zeiten hin verschoben wird. Das Ende der Blauverschiebung fällt hierbei gut mit dem Ende der Ionisation bei etwa t = +8 fs zusammen.





**Abb. 66** – E-Feld und Elektronendichte für Neon Schwarz: Das elektrische Feld des Laserpulses. Deutlich ist mit zunehmender Gasdichte eine Deformation des Pulses zu beobachten.

Rot: Elektronendichte im Plasma, hervorgerufen durch die Feldionisation. Deutlich ist zu erkennen, dass die Einfachionisation immer bei etwa –11fs beginnt. Die höheren Ionisationsstufen hingegen werden mit zunehmender Gasdichte zu späteren Zeiten verschoben. Schaut man auf den Farbverlauf im Zentrum des Pulses bei t = 0 fs, so ist auffällig, dass das Zentrum für kleine Dichten zunächst deutlich von der fallenden Flanke, also von einem negativen Chirp, dominiert wird, der mit zunehmendem  $n_0$  immer steiler wird. Folglich wäre von diesem Bild zu erwarten, dass die gemessenen  $D_2$ -Werte bei  $n_0 = 1.10^{19} cm^{-3}$  zunächst negativ sind und bis 2 oder  $3.10^{19} cm^{-3}$  weiter ins Negative fallen.



**Abb. 67** – Chirp und  $D_2$ -Werte nach der Propagation durch Neon Links: Chirp des Pulses nach der Propagation durch Neon. Man erkennt deutlich, wie das Pulszentrum anfänglich von der negativen Flanke des zweiten Peaks dominiert wird, woraus sich negative  $D_2$ -Werte ergeben. Bei höheren Dichten hingegen gewinnt das lokale Maximum immer stärker an Bedeutung und die  $D_2$ -Werte nähern sich der Null. Rechts: Zugehöriger Verlauf der  $D_2$ -Werte.

Durch die Verschiebung der Ionisationsstufen wandert der Peak im Farbverlauf bei höheren Dichten langsam zu späteren Zeiten und die Pulsmitte wird immer stärker vom lokalen Maximum des Peaks dominiert. Entsprechend würde man aufgrund des weniger negativen Gradienten mit einem Ansteigen der  $D_2$ -Werte rechnen, das schließlich bei  $n = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  zu Werten nahe Null führt.

Vergleicht man dies mit den gemessenen Werten (s. Abb. 67 rechts), so zeigt sich eine gute Übereinstimmung der aus dem Farbverlauf getroffenen Vorhersagen mit dem tatsächlich gemessenen Verlauf der  $D_2$ -Werte: Zunächst startet die Messkurve im Negativen, fällt weiter, bis bei Dichten von 2 bis  $3 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  ein Minimum durchlaufen wird und die Kurve anschließend bis auf Werte knapp unter Null ansteigt.

Somit wird das gefundene Erklärungsmodell von den Neon-Messungen bestätigt und erlaubt ein gutes Verständnis der Prozesse, die schließlich zu der beobachteten Dichteabhängigkeit der  $D_2$ -Werte führen.

#### 7.3 Interpretation der Argon-Messungen

Im nächsten Schritt wird basierend auf den Überlegungen aus der Interpretation der Messungen an Helium und Neon eine Erklärung für die Messergebnisse am Argon-Gasjet gegeben.

Auch hier soll zunächst ein Blick auf die elektrischen Felder nach der Interaktion mit dem Gas einen ersten Einblick in die bei der Laser-Gas-Wechselwirkung stattfindenden Ionisationsprozesse geben. Betrachtet man Abb. 68, erkennt man wie bei Helium und Neon eine Deformation des Pulses bei steigender Gasdichte, die zu einer Änderung des Ionisationsverhaltens führt.

Auch hier ist, ähnlich den Beobachtungen an Neon, zunächst eine Trennung zwischen der ersten und zweiten Ionisationsstufe auszumachen, wohingegen die höheren Stufen nahtlos ineinander übergehen.

Anders als bei Neon führt hier die Deformation des Pulses nicht nur zu einer Verschiebung der Ionisationsstufen relativ zum Laserpuls, sondern geht sogar soweit, dass durch eine Absenkung der maximal erreichten Intensität auch die Gesamtanzahl der freigesetzten Elektronen abnimmt. So sinkt die maximal erreichte Ionisationsstufe von 4,5 bei einer Neutralteilchendichte von  $n_0 = 1 \cdot 10^{19} cm^{-3}$  auf etwa 4,1 bei  $n_0 = 7 \cdot 10^{19} cm^{-3}$ . Hierdurch verläuft der Anstieg der Elektronendichte mit zunehmendem Düsenvordruck deutlich flacher.

Dieses Verhalten schlägt sich auch im beobachteten Chirp des Pulses wieder (s. Abb. 69 links). Deutlich ist der Übergang von der ersten zur zweiten Ionisationsstufe bei etwa t = -7 fs zu erkennen. Durch den fließenden Übergang zwischen den höheren Ionisationsstufen, der mit einem kontinuierlich abnehmenden  $dn_e/dt$  bei einem maximalen Wert zwischen 4,1 und 4,5 in Sättigung geht, bildet sich eine langgezogene fallende Flanke im Farbverlauf, die für alle betrachteten Dichten den Puls beherrscht. Hiermit erklärt sich zunächst, dass sämtliche gemessenen  $D_2$ -Werte deutlich im Negativen liegen (s. Abb. 69 rechts).

Schaut man genauer auf das Pulszentrum bei t = 0 fs, so ist in dieser Flanke eine Schulter zu erkennen, die mit zunehmender Neutralteilchendichte immer weiter in das Zentrum hineingeschoben wird und dabei gleichzeitig immer stärker ausschmiert. Hierdurch wird das Pulszentrum bei niedrigen und hohen Dichten durch einen stark fallenden Farbverlauf dominiert, der sich in stark negativen  $D_2$ -Werten ausdrückt. Bei mittleren Dichten hingegen wird der generelle Einfluss dieser negativen Flanke durch das flache Plateau im Pulszentrum abgeschwächt. Dies ist in der Messkurve als Ansteigen der  $D_2$ -Werte bei mittleren Gasdichten zu beobachten.





Abb. 68 – E-Feld und Elektronendichte für Argon Schwarz: Das elektrische Feld des Laserpulses. Deutlich ist mit zunehmender Gasdichte eine Deformation des Pulses zu beobachten.

Rot: Elektronendichte im Plasma, hervorgerufen durch die Feldionisation. Deutlich ist bei niedrigen Gasdichten der fließende Übergang zwischen den Ionisationsstufen zu beobachten. Bei höheren Dichten hingegen bildet sich eine deutliche Stufe beim Übergang von der Einfach- zur Zweichfachionisation aus.



**Abb. 69** – Chirp und  $D_2$ -Werte nach der Propagation durch Argon Links: Chirp des Pulses nach der Propagation durch Argon. Deutlich ist eine negative Flanke zu erkennen, die das Pulszentrum beherrscht und zu negativen  $D_2$ -Werten führt. Bei mittleren Dichten bildet sich zudem eine Stufe aus, die zu einem Ansteigen der  $D_2$ -Werte führt. Rechts: Zugehöriger Verlauf der  $D_2$ -Werte.

Somit kann auch der bei Argon gemessene Verlauf der  $D_2$ -Kurve durch das veränderte Ionisationsverhalten und der daraus resultierten Änderung der Blauverschiebung gedeutet werden, das durch eine Deformation des Pulses bedingt ist.

## 7.4 Interpretation der Stickstoff-Messungen

Nachdem die Messungen an den Edelgasen gut mit dem vorgestellten Modell erklärt werden konnten, soll in diesem Kapitel geprüft werden, ob das Modell auch auf die Stickstoff-Messungen angewandt werden kann.

Betrachtet man zunächst wieder die elektrischen Felder des Laserpulses (Abb. 70), so fällt neben der erwarteten Deformation des Pulses auf, dass die einzelnen Ionisationsstufen bei zunehmender Dichte immer deutlicher voneinander getrennt werden. Der Übergang zwischen der ersten und zweiten Stufe bildet eine klare Stufenfunktion und der Übergang von Stufe II auf Stufe III bleibt zwar fließend, wird mit zunehmendem  $n_0$  aber auch deutlicher.

Im Chirp des Pulses (Abb. 71) spiegelt sich dieses Verhalten zum einen in einem deutlichen Peak bei t = -10 fs wieder, der von der ersten Ionisationsstufe hervorgerufen wird. Zum anderen entsteht durch den fließenden Übergang von Stufe II auf Stufe III eine langgezogene fallende Flanke, die wie bei Argon den Hauptteil des Pulses dominiert. Gleichzeitig bildet sich mit zunehmender Dichte auf dieser Flanke durch die zunehmende Trennung zwischen zweiter und dritter Stufe ein Plateau aus.





**Abb. 70** – E-Feld und Elektronendichte für Stickstoff Schwarz: Das elektrische Feld des Laserpulses. Deutlich ist mit zunehmender Gasdichte eine Deformation des Pulses zu beobachten.

Rot: Elektronendichte im Plasma, hervorgerufen durch die Feldionisation. Die einzelnen Ionisationsstufen werden bei zunehmender Gasdichte immer deutlicher voneinander getrennt. Der Übergang zwischen der ersten und zweiten Stufe bildet eine klare Stufenfunktion. Der Übergang von Stufe II auf Stufe III bleibt zwar fließend, wird mit zunehmendem  $n_0$  aber auch deutlicher sichtbar.



**Abb.** 71 – Chirp und  $D_2$ -Werte nach der Propagation durch Stickstoff Links: Chirp des Pulses nach der Propagation durch Stickstoff. Wie bei Argon ist eine negative Flanke zu beobachten, die den Puls dominiert und bei mittleren Dichten eine Schulter ausbildet. Rechts: Zugehöriger Verlauf der  $D_2$ -Werte.

Diese Entwicklung erklärt den gemessenen  $D_2$ -Verlauf. Durch die Dominanz der langgezogenen, fallenden Flanke sind die  $D_2$ -Werte zunächst negativ. Mit zunehmendem  $n_0$ verbreitert sich aber das Plateau in der Pulsmitte und führt so zu einem Ansteigen der  $D_2$ -Werte. Bei einem weiteren Ansteigen der Dichte schiebt sich dieses Plateau jedoch hinter die Pulsmitte und die steil abfallende Flanke am Ende der zweiten Ionisationsstufe führt zu einem erneuten Abnehmen der  $D_2$ -Werte.

## 8 Schlussfolgerungen und Ausblick

In dieser Arbeit ist es erfolgreich gelungen, das aus der Laserdiagnostik bekannte Konzept des SPIDER in der Plasmadiagnostik anzuwenden. Durch die Vermessung eines sub-10-fs Laserpulses vor und nach der Interaktion mit dem Plasma ist es im Rahmen eines Gasjetexperiments erstmalig gelungen, die Dichteabhängigkeit der spektralen Phase unter Verwendung der Gase Helium, Neon, Argon und Stickstoff zu untersuchen.

Aufgrund des sehr guten Kontrastverhältnisses des Pulses und der vergleichsweise geringen Maximalintensität von etwa  $I_0 = 3 \cdot 10^{16} W cm^{-2}$  konnte die Existenz eines Vorplasmas ausgeschlossen werden. Des weiteren erlaubte die Pulsdauer von nur wenigen Femtosekunden und die damit verbundene sehr kurze Interaktionszeit zwischen Laser und Plasma in Verbindung mit Neutralteilchendichten von einigen  $10^{19}$ cm<sup>-3</sup> sämtliche Stoßeffekte zu vernachlässigen. Somit ist es in den hier durchgeführten Experimenten gelungen, ein Parameterregime zu erzeugen, in dem die reine Feldionisation des Plasmas untersucht werden konnte.

Die gemessene Abhängigkeit der spektralen Phase von der Neutralteilchendichte wurde mittels ergänzend durchgeführter ein- und zweidimensionaler PIC-Simulationen mit den Codes PSC und OOPIC in guter Übereinstimmung mit dem Experiment wiedergegeben. Hierbei wurden in den Computermodellen sämtliche Stoßeffekte vernachlässigt. Die Tunnelionisation war über die entsprechenden ADK-Raten implementiert.

Die Spektren des Laserpulses nach der Interaktion zeigen eine deutliche ionisationsinduzierte Blauverschiebung, die durch die PIC-Simulationen ebenfalls gut wiedergegeben wird.

Mit Hilfe der aus den Simulationen erhaltenen elektrischen Felder ist es gelungen, eine Erklärung für die gefundene Dichteabhängigkeit der spektralen Phase zu finden.

Die Felder des Pulses zeigen bei zunehmender Neutralteilchendichte eine deutliche Abweichung von der ursprünglichen Gaußform. Hierbei nimmt die Feldamplitude im vorderen Teil des Pulses ab, wohingegen sie im hinteren Teil zunimmt. Ursache hierfür ist die mit zunehmender Intensität ansteigende Elektronendichte. Diese erzeugt eine Änderung des Brechungsindexes im Plasma, wodurch der intensivere Mittelteil des Pulses gegenüber dem vorderen Teil verzögert wird. Infolgedessen kommt es zu den beobachteten Veränderungen der Pulsform.

Diese Deformation wirkt sich auf das Ionisationsverhalten des Pulses aus. Eine einfache, auf den ADK-Raten basierende Abschätzung der Elektronendichte hat gezeigt, dass die höheren Ionisationsstufen mit zunehmender Dichte im Puls weiter nach hinten verschoben werden. Einzig der Beginn der Einfachionisation ist von diesem Effekt nicht betroffen. Dies ist verständlich, da vor Beginn der Ionisation keine Elektronendichte vorhanden ist, die über einen veränderten Brechungsindex zu einer Verformung des Pulses führen könnte. Das heißt, die Front des elektrischen Feldes wird durch die Dichtevariation nicht beeinflusst.

Da die beobachtete Blauverschiebung direkt proportional zum Gradienten der Elektronendichte ist, werden die Punkte maximaler Blauverschiebung parallel zu der Ionisation über den Puls verschoben. Hierdurch wird der Mittelteil des Pulses abhängig von Dichte und Gasart von unterschiedlichen Farbverläufen dominiert. Diese Änderung schlägt sich in der spektralen Phase als Variation der gemessenen  $D_2$ -Werte nieder. Ein positiver Chirp führt zu einer Zunahme der gemessenen  $D_2$ -Werte und ein negativer Chirp entsprechend zu einer Abnahme. Dieses Erklärungsmodell konnte für die gemachten Messungen an Helium, Neon, Argon und Stickstoff bestätigt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit ist es also erstmalig gelungen, die durch die Interaktion mit dem Gas hervorgerufene Änderung der spektralen Phase eines sub-10-fs Laserpulses zu messen. Dabei hat sich der  $D_2$ -Koeffizient der Phase als nützlicher Indikator für die Deformation des elektrischen Feldes erwiesen. In anderen Parameterregimen sollte die Messung der Pulsphase nach der Plasmainteraktion die Untersuchung weiterer Effekte ermöglichen. So wird für leicht relativistische Pulse beispielsweise eine Pulsverkürzung als Folge der Plasmainteraktion vorausgesagt [42]. Dieser Effekt konnte bisher nur indizienhaft nachgewiesen werden [43]. Durch eine Anwendung des hier vorgestellten Konzepts müsste es in zukünftigen Experimenten möglich sein, diesen Effekt durch eine Zunahme der spektralen Breite bei gleichzeitig konstanter Phase direkt zu messen. Somit bietet das hier vorgestellte Experiment auch für zukünftige Untersuchungen einen guten Ansatzpunkt.

# 9 Anhang

## 9.1 Ionisationspotentiale zur BSI-Theorie

Ionisationsstufe	Ionisationspotential [eV]	Laserintensität [W/cm <sup>-2</sup> ]	
$H \rightarrow H^+$	13,6	1,4.1014	
$He \rightarrow He^+$	24,6	1,5 <sup>.</sup> 10 <sup>15</sup>	
$\mathrm{He}^+ \rightarrow \mathrm{He}^{2+}$	54,4	8,8 <sup>-</sup> 10 <sup>15</sup>	
Ne -> Ne $^+$	21,6	8,7 <sup>.</sup> 10 <sup>14</sup>	
$Ne^+ \rightarrow Ne^{2+}$	41,0	2,8 <sup>.</sup> 10 <sup>15</sup>	
$Ne^{2+} -> Ne^{3+}$	63,5	7,2.10 <sup>15</sup>	
$Ne^{3+} -> Ne^{4+}$	97,1	2,2 <sup>-</sup> 10 <sup>16</sup>	
$\mathrm{Ne}^{4+}$ - $\mathrm{Ne}^{5+}$	126,2	4,1 <sup>-</sup> 10 <sup>16</sup>	
$Ne^{5+} -> Ne^{6+}$	157,9	6,9 <sup>.</sup> 10 <sup>16</sup>	
$Ar \rightarrow Ar^+$	15,8	2,5 <sup>-</sup> 10 <sup>14</sup>	
$\operatorname{Ar}^{+} \rightarrow \operatorname{Ar}^{2+}$	27,6	5,8 <sup>.</sup> 10 <sup>14</sup>	
$Ar^{2+} -> Ar^{3+}$	40,7	1,2.10 <sup>15</sup>	
$Ar^{3+} -> Ar^{4+}$	59,8	3,2.1015	
$Ar^{4+} -> Ar^{5+}$	75,0	5,1 <sup>-</sup> 10 <sup>15</sup>	
$Ar^{5+} -> Ar^{6+}$	91,0	7,6.1015	
$N \rightarrow N^+$	14,5	1,8 <sup>.</sup> 10 <sup>14</sup>	
$N^{+} \rightarrow N^{2+}$	29,6	7,7 <sup>.</sup> 10 <sup>14</sup>	
$N^{2+} \rightarrow N^{3+}$	47,4	2,3 <sup>-</sup> 10 <sup>15</sup>	
$N^{3+} \rightarrow N^{4+}$	77,5	9,0 <sup>-</sup> 10 <sup>15</sup>	
N <sup>4+</sup> -> N <sup>5+</sup>	97,9	1,5 <sup>-</sup> 10 <sup>16</sup>	
N <sup>5+</sup> -> N <sup>6+</sup>	552,1	1,0.1019	

	Tab. 2 -	BSI-Intensitäte	en für	einige	Gase
--	----------	-----------------	--------	--------	------

#### 9.2 Mathematische Beschreibung Michelson-Interferogramm

Wie in (1.3) beschrieben, wird das elektrische Feld eines Laserpulses beschrieben durch den Ausdruck

$$\tilde{\varepsilon}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \underbrace{A(\omega) e^{i\phi(\omega)}}_{\tilde{\varepsilon}(\omega)} e^{i\omega t} d\omega.$$
(1.167)

In einem Michelson-Interferometer wird der einfallende Puls  $\tilde{\varepsilon}_0(t)$ , wie in Kap. 4.1 ausgeführt, in zwei identische Pulse  $\tilde{\varepsilon}_1(t)$  und  $\tilde{\varepsilon}_2(t)$  aufgespalten. Das Feld nach dem Durchgang durch das Interferometer erhält man durch Überlagerung / Summation der beiden Einzelpulse zu

$$\tilde{\varepsilon}_{M}(t) = \tilde{\varepsilon}_{1}(t) + \tilde{\varepsilon}_{2}(t). \qquad (1.168)$$

Hierbei wird der zweite Puls gegenüber dem ersten um die Zeit  $\tau$  verzögert. Diese zeitliche Verschiebung kann im Zeitraum durch eine Filterfunktion  $S(\omega; \tau)$  beschrieben werden, so dass gilt

$$\widetilde{\mathcal{E}}_{1}(t) = \widetilde{\mathcal{E}}_{0}(t) 
\widetilde{\mathcal{E}}_{2}(t) = S(\omega; \tau) * \widetilde{\mathcal{E}}_{0}(t)$$
(1.169)

Nach [7] lautet die Fouriertransformierte  $\tilde{S}(\omega; \tau) = FT[S(\omega; \tau)] = e^{i\omega\tau}$ , so dass mit dem Faltungssatz im Frequenzraum gilt

$$\widetilde{\mathcal{E}}_{1}(\omega) = \widetilde{\mathcal{E}}_{0}(\omega) 
\widetilde{\mathcal{E}}_{2}(\omega) = \widetilde{\mathcal{E}}_{0}(\omega) \cdot e^{i\omega\tau}$$
(1.170)

Mit  $D \sim |E|^2$  folgt schließlich

$$D_{M}(\omega) \sim \left| \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) + \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) \cdot e^{i\omega\tau} \right|^{2} \\ \sim \left| \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) \right|^{2} + \left| \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) e^{i\omega\tau} \right|^{2} + 2 \cdot \left| \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) \cdot \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) \right| \cdot e^{i\omega\tau}.$$
(1.171)

Hieraus ergibt sich unmittelbar die bekannte reelle Beschreibung des Michelson-Signals

$$D_{M}(\omega) \sim |E_{0}(\omega)|^{2} + |E_{0}(\omega)|^{2} + 2 \cdot |E_{0}(\omega) \cdot E_{0}(\omega)| \cdot \cos(\omega\tau)$$
  
$$\sim |E_{0}(\omega)|^{2} [1 + \cos(\omega\tau)] \qquad (1.172)$$

## 9.3 Mathematische Beschreibung SPIDER-Interferogramm

Wie in Kapitel 4.1 ausgeführt wurde, basiert die Funktion des SPIDER-Apparates auf dem Prinzip eines Michelson-Interferometers. Allerdings wird beim SPIDER zusätzlich zu der zeitlichen Trennung der beiden Teilpulse  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  eine spektrale Verschiebung eingeführt. Diese kann nach [7] durch einen Filter  $N(t, \Delta \Omega)$  mit der Impulsantwort  $N(t, \Delta \Omega) = \exp(-i\Delta \Omega t)$  beschrieben werden. Damit schreibt sich (1.170) für den SPIDER

$$\tilde{\varepsilon}_{1}(\omega) = N(\omega - \Delta \Omega) * \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega)$$
  

$$\tilde{\varepsilon}_{2}(\omega) = \tilde{\varepsilon}_{0}(\omega) \cdot e^{i\omega\tau}$$
(1.173)

und für die reelle Beschreibung des SPIDER-Signals erhält man analog zu den Überlegungen aus 9.2 den Ausdruck

$$D_{S}(\omega) \sim |E_{0}(\omega - \Delta \Omega)|^{2} + |E_{0}(\omega)|^{2} + 2 \cdot |E_{0}(\omega - \Delta \Omega) \cdot E_{0}(\omega)| \cdot \cos[\phi(\omega - \Delta \Omega) - \phi(\omega) + \omega\tau].$$
(1.174)

## 10 Literaturverzeichnis

- J.-H. Kim, C.H. Nam *Plasma-induced frequency chirp of intense femtosecond lasers and its role in shaping high-order harmonic spectrallines* Physical Review A 65, 033801 (2002)
- [2] I.N. Bronstein *Taschenbuch der Mathematik* Harri Deutsch, Frankfurt a.M. (<sup>6</sup>2005)
- [3] J.-C. Diels, W. Rudolph *Ultrashort laser pulse phenomena* Academic Press, San Diego (2001)
- [4] A. Bartelt
   Steuerung der Wellenpaketdynamik in kleinen Alkaliclustern mit optimierten Femtosekundenpulsen
   Dissertation, Freie Universität Berlin (2002)
- [5] A.E. Siegman An Introduction to Lasers and Masers McGraw-Hill, New York (1971)
- [6] T. Fischer
   Optische Spektroskopie an Laser erzeugten Plasmen
   Diplomarbeit, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf (2003)
- [7] C. Iaconis, I.A. Walmsley Self-Referencing Spectral Interferometry for Measuring Ultrashort Optical Pulses IEEE Journal of Quantum Electronics 35, 501 (1999)
- [8] L. Gallmann, D.H. Sutter, N. Matuschek, G. Steinmeyer, U. Keller Characterization of sub-6-fs optical pulses with spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction Optics Letters 24, 1314 (1999)
- [9] F. Rotermund
   Erzeugung und Charakterisierung von abstimmbaren VUV- und MIR- Femtosekunden-Lichtimpulsen mittels Drei-Photonen parametrischer Prozesse in nichtlinearen
   Kristallen
   Dissertation, Technische Universität Berlin (2000)
- [10] L. Bergmann, C. Schaefer
   *Lehrbuch der Experimentalphysik, Bd. 3: Optik* de Gruyter, Berlin (<sup>9</sup>1993)
- [11] V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan, D.N. Nikogosyan Handbook of Nonlinear Optical Crystals Springer, Berlin (<sup>2</sup>1997)

- [12] C. Palmer, E. Loewen Diffraction Grating Handbook http://instructor.physics.lsa.umich.edu/advlabs/Atomic%20Spectroscopy/DiffGrating.pdf
- [13] M.E. Anderson, L.E.E. de Araujo, E.M. Kosik, I.A. Walmsley *The effects of noise on ultrashort-optical-pulse measurement using SPIDER* Applied Physics B 70, 85 (2000)
- [14] J.W. Goodman Introduction to Fourier optics McGraw-Hill, New York (<sup>2</sup>1996)
- [15] L. Li, S. Kusaka, N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita Amplitude and Phase Characterization of 5.0fs Optical Pulses Using Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction Japanese Journal of Applied Physics 40, 684 (2001)
- [16] D. Strickland, G. Mourou *Compression of amplified chirped optical pulses* Opt. Commun. 56, 219 (1985)
- [17] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, G. Mourou Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification IEEE J. Quantum Electron. 24, 398 (1988)
- [18] D.E. Spence, P.N. Kean, W. Sibbett
   60-fsec pulse generation from a self-modelocked Ti:sapphire laser
   Optics Lett. 16, 42 (1991)
- [19] T. Brabec, C. Spielmann, P.F. Curley, F. Krausz Kerr-lens mode locking Optics Lett. 17, 1292 (1992)
- [20] Z. Cheng, A. Fürbach, S. Sartania, M. Lenzner, C. Spielmann, F. Krausz Amplitude and chirp characterization of high-power laser pulses in the 5-fs regime Optics Lett. 24, 247 (1999)
- [21] P. Tournois *Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems* Opt. Commun. 140, 245 (1997)
- [22] S.A. Akhmanov, V.A. Vysloukh, A.S. Chirkin Optics of Femtosecond Laser Pulses American Institute of Physics, New York (1992)
- [23] H. Bach The properties of optical glass Springer, Berlin (1995)

- [24] J. Osterholz, F. Brandl, T. Fischer, D. Hemmers, M. Cerchez, G. Pretzler, O. Willi, S. J. Rose *Production of Dense Plasmas with sub-10-fs Laser Pulses* Phys. Rev. Lett. **96**, 085002 (2006)
- [25] M. L. Stitch, M. Bass *Laser handbook, Bd. 3*North Holland Publishing Co., Amsterdam (1979)
- [26] Schott AG Schott Glaskatalog http://www.schott.com/optics\_devices/german/download/
- [27] Fujian Castech Crystals, Inc. *Productinformation Castech* http://www.castech.com
- [28] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vettering, B.P. Flannery *Numerical Recipes in C++. The Art of Scientific Computing* Cambridge University Press, Cambridge (<sup>2</sup>2002)
- [29] L.V. Keldysh Ionization in the field of a strong electromagnetic wave Sov. Phys. JETP 20, 1307 (1965)
- [30] P. Lambropoulus Mechanisms for multiple ionization of atoms by strong pulsed lasers Phys. Rev. Lett. 55, 2141 (1985)
- [31] P. Gibbon Short Pulse Laser Interactions with Matter. An Introduction Imperial College Press, London (2005)
- [32] S.P. Le Blanc, R. Sauerbrey Spectral, temporal and spatial characteristics of plasma-induced spectral blue shifting and its application to femtosecond pulse measurement Journal of the Optical Society of America B 13, 72-88 (1996)
- [33] F.F. Chen Introduction to Plasma Physics Plenum Press, New York (1974)
- [34] Z. Cheng Generation, shaping, compression, characterization and application of intense ultrashort laser pulses Dissertation, Technische Universität Wien (2001)
- [35] H. Ruhl, M. Bonitz, D. Semkat An Introduction to Computational Methods in Many Particle Body Physics Rinton Press, Princeton (2006)

- [36] H.A. Bethe, E.E. Salpeter *Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms* Plenum Press, New York (1977)
- [37] T. Auguste, P. Monot, L.A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus
   *Multiply charged ions produced in noble gases by a 1 ps laser pulse at λ = 1053 nm* J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. 25, 4181 (1992)
- [38] A.M. Perelomov, V.S. Popov, M.V. Terentev Ionization of atoms in an alternating electric field, I Sov. Phys. JETP Lett. 23, 924 (1966)
- [39] A.M. Perelomov, V.S. Popov, M.V. Terentev Ionization of atoms in an alternating electric field, II Sov. Phys. JETP Lett. 24, 207 (1967)
- [40] D.A. Dimitrov, D.L. Bruhwiler, W. Leemans, E. Esarey, P. Catravs, C. Toth, B. Shadwick, J.R. Cary, R. Giacone Simulation of Laser Propagation and Ionization in l'OASIS Experiments. Advanced Accelerator Concepts: 10th Workshop AIP Conf. Proc. 647, 192-202 (2002)
- [41] D.L. Bruhwiler, D.A. Dimitrov, J.R. Cary, E.Esarey, W. Leemans Particle-in-cell simulations of tunneling ionization effects in plasma-based accelerators Physics of Plasmas 10, 2022 (2003)
- [42] O. Shorokhov, A. Pukhov
   Self-Compression of Laser Pulses in Plasma
   Phys. Rev. Lett. 91, 265002-1 (2003)
- [43] B. Hidding, K.-U. Amthor, B. Liesfeld, H. Schwoerer, S. Karsch, M. Geissler, L. Veisz, K. Schmid, J.G. Gallacher, S.P. Jamison, D. Jaroszynski, G. Pretzler, R. Sauerbrey *Generation of Quasi-monoenergetic Electron Bunches with 80-fs Laser Pulses* Phys. Rev. Lett. **96**, 105004 (2006)
- [44] R. Jung Laser-plasma interaction with ultra-short laser pulses Dissertation, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf (2007)
- [45] Tech-X Corporation *OOPIC Pro – User's Guide* http://www.txcorp.com/pdf/OOPIC\_Pro/OOPIC\_Pro\_UsersGuide.pdf
- [46] S. Semushin, V. Malka *High density gas jet nozzle design for laser target production* Review of Scientific Instruments 72, 2961 (2001)
- [47] Parker Hannifin Corp. *Produktinformation Parker* www.parker.com

- [48] A. M. F. Khangheshlaghi Manipulation and characterization of femtosecond laser pulses for cluster spectroscopy Dissertation, Albert-Ludwig-Universität Freiburg i. Br. (2007)
- [49] F. Brandl Elektronenbeschleunigung und Erzeugung von Röntgenstrahlung bei der Wechselwirkung hochintensiver few-cycle Laserpulse mit Festkörpern Dissertation, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf (2006)
- [50] O. Willi, T. Toncian, M. Borghesi, J. Fuchs, E. d'Humieres, P. Antici, P. Audebert, E. Brambrink, C. Cecchetti, A. Pipahl, L. Romagnani Laser triggered micro-lens for focusing and energy selection of MeV protons, Laser and Particle Beams 25, 71-77 (2007)
- [51] K. König, I. Riemann, F. Stracke, R. Le Harzic Nanoprocessing with nanojoule near-infrared femtosecond laser pulses Medical Laser Application 20, 169-184 (2005)
- [52] T. Katsouleas Electrons hang ten on laser wake Nature **431**, 515 (2004)
- [53] S. P. D. Mangles, C. D. Murphy, Z. Najmudin, A. G. R. Thomas, J. L. Collier, A. E. Dangor, E. J. Divall, P. S. Foster, J. G. Gallacher, C. J. Hooker, D. A. Jaroszynski, A. J. Langley, W. B. Mori, P. A. Norreys, F. S. Tsung, R. Viskup, B. R. Walton, K. Krushelnick *Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions* Nature **431**, 535 (2004)
- [54] C. G. R. Geddes, Cs. Toth, J. van Tilborg, E. Esarey, C. B. Schroeder, D. Bruhwiler, C. Nieter, J. Cary, W. P. Leemans *High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding* Nature 431, 538 (2004)
- [55] J. Faure, Y. Glinec, A. Pukhov, S. Kiselev, S. Gordienko, E. Lefebvre, J.-P. Rousseau, F. Burgy, V. Malka *A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams* Nature 431, 541 (2004)
- [56] S. Gordienko, A. Pukhov, O. Shokorov, T. Baeva *Relativistic Doppler Effect: Universal Spectra and Zeptosecond Pulses* Phys. Rev. Lett. **93**, 135002-1 (2004)

## 11 Danksagung

Abschließend möchte auch ich den Platz nutzen, um all denen zu danken, die mit zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Insbesondere danken möchte ich meinem Doktorvater Prof. O. Willi, der bei Fragen und Problemen stets ein offenes Ohr hatte und mir mit Rat und Tat zur Seite stand.

Mein Dank gilt auch Herrn Prof. G. Pretzler, der mit seiner unterstützenden Kritik, seinen Ideen und Vorschlägen einen entscheidenden Beitrag zum Erfolg dieser Arbeit geleistet hat.

Ebenso möchte ich Dr. J. Osterholz für die vielen inspirierenden Gespräche und Anregungen danken.

Der gleiche Dank gilt auch R. Jung, dem ich zudem für die gute Zusammenarbeit an der Targetkammer zu Dank verpflichtet bin.

Erwähnen möchte ich auch die Unterstützung durch die Werkstatt des Instituts für Laser- und Plasmaphysik unter der Leitung von M. Rosemann. Dies gilt gleichermaßen für die Elektronikwerkstatt, namentlich C. Bolten und H. Bormann.

Abschließend gilt mein Dank auch meinen Eltern Wolfgang und Gisela für ihre Geduld und jahrelange Unterstützung im Studium.

Und vielleicht den größten Dank schulde ich meiner Freundin Alexandra für ihr Verständnis und die liebevolle Unterstützung während all der Zeit. Gerade wenn es mal schwerer wurde und die Arbeit kein Ende nahm, war sie da, um mich zu unterstützen.