

Terahertz-Erzeugung in laserinduzierten Plasmen mit Few-Cycle-Laserpulsen

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften

Vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von: Markus Kreß
aus: Frankfurt am Main

FRANKFURT AM MAIN
OKTOBER 2006
(D F 1)

vom Fachbereich der

Johann Wolfgang Goethe – Universität als Dissertation angenommen.

Dekan:

Gutachter:

Datum der Disputation

Im Rahmen dieser Dissertation entstanden folgende Veröffentlichungen:

Kreß, M., Löffler, T., Eden, S., Thomson, M. und Roskos, H. G.
Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both
fundamental and second-harmonic wave
Opt. Lett. **29**, 1120-1122 (2004).

Löffler, T., Kreß, M., Thomson, M., and Roskos, H. G.
Efficient Terahertz Pulse Generation in Laser-Induced Gas Plasmas
Act. Phys. Pol. A, **107**, 99-108 (2005).

Kreß, M., Löffler, T., Thomson, M. D., Dörner, R., Gimpel, H., Zrost, K., Ergler, T.,
Moshhammer, R., Morgner, U., Ullrich, J., und Roskos, H. G.
Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-
emission spectroscopy
Nature Physics, **2**, 327-331 (2006).

Konferenzbeiträge:

Kreß, M., Löffler, T., Eden, S., und Roskos, H. G.
Generation of THz pulses by mixing of a fundamental and a second-harmonic wave in a
laser generated plasma - a microscopic description
CLEO Europe Technical Digest, EB2T (2003) München, Deutschland.

Kreß, M., Löffler, T., Thomson, M. D., Dörner, R., Gimpel, H., Zrost, K., Ergler, T.,
Moshhammer, R., Morgner, U., Ullrich, J., und Roskos, H. G.
Carrier-envelope phase dependent down-conversion of intense few-cycle laser-pulses to
terahertz frequencies
CLEO Technical Digest, CWC3 (2006) Long Beach, USA.

Kreß, M., Löffler, T., Thomson, M. D., Dörner, R., Gimpel, H., Zrost, K., Ergler, T.,
Moshhammer, R., Morgner, U., Ullrich, J., und Roskos, H. G.
Microscopic description for THz generation in plasmas induced by few-cycle laser pulses
CLEO Technical Digest, JWB42 (2006) Long Beach, USA.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	7
2. Few-Cycle-Laserpulse: Stand der Technik	9
2.1. Die CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen	11
2.2. Die CE-Phase eines propagierenden Laserpulses	12
2.3. CE-Phasenstabilisierung mit f-zu-2f-Interferometrie	14
2.4. CE-Phasenmessung mit Stereo-ATI	17
2.4.1. Betrachtung des Links-Rechts-Verhältnisses aller Elektronen	18
2.4.2. Alleinige Betrachtung der hochenergetischer Elektronen	19
3. THz-Erzeugung in laserinduzierten Plasmen mit Multi-Cycle-Laserpulsen	21
3.1. Elektro-optische THz-Detektion	23
3.2. Plasmaerzeugung durch Tunnel-Ionisation	24
3.3. THz-Abstrahlung durch Polarisierung des Plasmas	26
3.3.1. THz-Polarisation aufgrund von ponderomotiven Kräften	27
3.3.2. THz-Polarisation mit einer DC-Vorspannung	27
3.3.3. THz-Polarisation durch optische AC-Vorspannung	29
3.4. Modellierung der Plasmadichte und des Plasmavolumens	31
3.5. Experimentelle Abschätzung des Plasmavolumens mit einer CCD-Kamera	35
3.5.1. Das verwendete Multi-Cycle-Laserpulssystem	35
3.5.2. Visuelle Abschätzung des Plasmavolumens	35
3.6. Variation der Pulsenergie und Einfluss der Brennweite auf die THz-Erzeugung	40
4. Phänomenologischer Ansatz zur Beschreibung der THz-Erzeugung: Vier-Wellen-Gleichrichtung (FWR)	45
4.1. THz-Erzeugung mit optischer AC-Vorspannung im FWR Bild	46
4.2. THz-Erzeugung mit Few-Cycle-Pulsen betrachtet im FWR Bild	48
4.3. Diskussion der Gültigkeit der FWR Beschreibung für die THz-Erzeugung in Laserplasmen	50
5. Mikroskopisches Modell zur THz-Erzeugung in Laserplasmen	51
5.1. Asymmetrische Ionisation der Luft	51
5.1.1. Asymmetrische Ionisation mit der AC-Vorspannungsmethode	52
5.1.2. Asymmetrische Ionisation mit Few-Cycle-Laserpulsen	58
5.2. Bewegung der Elektronen im Plasma in Abhängigkeit ihres Ionisationszeitpunktes	62
5.3. Abschätzung der mittleren freien Weglänge und der Streuzeit der Elektronen	65
5.3.1. Elektron-Molekül-Streuung	65
5.3.2. Elektron-Ionen-Streuung	66

5.4. THz-Polarisation im Plasma unter Berücksichtigung des Ionisationszeitpunktes	67
5.4.1. THz-Polarisation mit Multi-Cycle-Laserpulsen	68
5.4.2. THz-Polarisation mit Few-Cycle-Laserpulsen	71
6. Experimentelle Untersuchung des Plasma-THz-Emitters mit Multi-Cycle-Laserpulsen	77
6.1. Einfluss der relativen Phase zwischen ω und 2ω auf die THz-Erzeugung . .	77
6.2. Variation des Luftdrucks	81
6.2.1. Druckbereich < 100 mbar: Vollständige Ionisation aller Moleküle .	83
6.2.2. Druckbereich 100 mbar bis 2 bar: Limitierung der Plasmadichte durch Plasmadefokussierung	84
6.2.3. Druckbereich > 2 bar: Verringerung der freien Weglänge der Elektronen durch Elektron-Molekülstreuung	85
7. Anwendung der THz-Emissionsspektroskopie zur Bestimmung der CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen	87
7.1. Das verwendete Few-Cycle-Laserpulssystem	87
7.2. Der verwendete THz-Aufbau	89
7.3. Durchführung und Auswertung	91
8. Die „absolute“ Phase	97
8.1. Diskussion zur Definition der „absoluten“ Phase	97
8.2. Vergleich Stereo-ATI und THz-Emissionsspektroskopie	98
8.3. Einfluss von Propagationseffekten auf die Absolutwertbestimmung der CE-Phase mit THz-Emissionsspektroskopie	99
8.3.1. Dispersion der CE-Phase im Plasma	99
8.3.2. Einfluss der Gouy-Phase auf die THz-Erzeugung mit Few-Cycle-Pulsen	101
8.3.3. Abschätzung der optischen Absorption durch die Plasmaerzeugung	102
9. Zusammenfassung	105
10. Ausblick	107
10.1. Verbesserung der CE-Phasenmessgenauigkeit	107
10.2. Abschätzung der maximal möglichen THz-Feldstärke	110
A. Anhang	111
A.1. Verzeichnis der Natur- und Materialkonstanten	111
A.2. Verzeichnis der verwendeten Variablen	112
Abbildungsverzeichnis	115
Literaturverzeichnis	119
Lebenslauf	125

1. Einleitung

Der THz-Frequenzbereich ist einer der zur Zeit wohl am intensivsten untersuchten Bereiche in der physikalischen Forschung, die sich mit elektromagnetischer Strahlung beschäftigt.

Trotz dessen ist der Technologiestand, bezüglich der Intensität von kohärenten THz-Quellen und der Sensitivität der verschiedenen THz-Detektionsmöglichkeiten, der Entwicklung der beiden angrenzenden Bereiche der GHz-Elektronik und der Laser-Spektroskopie in Hinblick auf die damit erzielte Genauigkeit in spektroskopischen Anwendungen, noch weit zurück.

Die Entwicklung neuer intensiverer THz-Quellen, wie es der in dieser Arbeit untersuchte Plasma-THz-Emitter ist, stellt damit eines der wichtigsten Aufgaben im Bereich der THz-Physik dar. Intensive THz-Quellen sind dabei nicht nur zur Ermöglichung von fundamentalwissenschaftlichen Experimenten von großer Bedeutung, sondern auch für bildgebende und spektroskopische Anwendungen, die gerade in Zeiten, in denen es einen zunehmenden Bedarf an einfachen Sicherheitskontrollen an öffentlichen Plätzen gibt, sehr stark an Bedeutung gewinnen.

Dabei stellt die THz-Bildgebung bei der Sicherheitskontrolle an Flughäfen eine neue Möglichkeit dar, die Sicherheitskontrolle der Fluggäste, die zur Zeit sehr zeitaufwändig durch das Abtasten der Fluggäste durchgeführt wird, durch eine die Kleidung durchleuchtende Methode mit THz-Strahlung, wie sie bereits bei der Gepäckkontrolle mit Hilfe von Röntgenstrahlung durchgeführt wird, schneller durchführen zu können und damit wirtschaftlicher zu gestalten. Man geht dabei davon aus, dass die THz-Bestrahlung im Gegensatz zur Röntgenbestrahlung, aufgrund ihres nicht-ionisierenden Charakters, keine Belastung eines lebenden Organismus darstellt.

Eine spektroskopische Anwendung auch im Bereich der Sicherheitskontrolle stellen die zerstörungsfreie Durchleuchtung von Paketen und Identifikation deren Inhalts anhand ihres Absorptionsspektrums, des sogenannten spektroskopischen Fingerabdrucks, dar.

Im Rahmen dieser Arbeit wird eine Anwendung der THz-Technologie vorgestellt, die von fundamentalwissenschaftlicher Bedeutung für ein weiteres, zur Zeit sehr intensiv untersuchtes Gebiet der Physik, der Attosekunden-Physik, sein könnte. THz-Physik und Attosekunden-Physik scheinen auf den ersten Blick nicht viel miteinander gemeinsam zu haben, da die charakteristischen Zeitskalen für beide Gebiete um mehrere Größenordnungen auseinander liegen (THz-Physik $\Leftrightarrow 10^{-12}$ sec, Attosekunden-Physik $\Leftrightarrow 10^{-15}$ sec bis 10^{-18} sec)¹. Eine Gemeinsamkeit beider Bereiche liegt in der großen Bedeutung von Few-Cycle-Pulsen². Im THz-Frequenzbereich ist es bereits mit der Standard-Technik der

¹Im Rahmen dieser Arbeit werden die gebräuchlichen Abkürzungen der Zeitskalen verwendet.

10^{-12} sec \Leftrightarrow ps; 10^{-15} sec \Leftrightarrow fs; 10^{-18} sec \Leftrightarrow as.

²Im Kontext dieser Arbeit wird der Begriff „Few-Cycle“ aus dem englischen übernommen, da es noch keine passende deutsche Bezeichnung für diese Pulse gibt. Few-Cycle-Pulse bezeichnen dabei im allgemeinen zeitlich kurze Pulse elektromagnetischer Strahlung, bei denen nur noch wenige Oszillationen

Anrege- und Abfrage-Methode (engl. pump-probe) etabliert, die elektrische Feldverteilung von Few-Cycle-Pulsen im Zeitbereich mit sehr guter Auflösung zu bestimmen, da es im wesentlichen die Pulsdauer des Abfragepulses ist, die das zeitliche Auflösungsvermögen begrenzt und hier Pulsdauern in der Größenordnung von 100 fs ausreichend sind, um eine Feldvariation auf einer Zeitskala von ps aufzulösen.

Um die Anrege- und Abfrage-Technik bei optischen Frequenzen anwenden zu können, benötigt man Pulsdauern, die deutlich kürzer als ein optischer Zyklus ($\sim 2,5$ fs) sind, also in der Größenordnung von 100 as liegen. Über eine beeindruckende experimentelle Demonstration der Anrege-Abfrage-Methode bei optischen Frequenzen wurde vor kurzem (2004) von Goulielmakis et. al [1] berichtet.

Im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit wird ein neuer Ansatz vorgestellt, eine für die Feldverteilung in einem Few-Cycle-Laserpuls entscheidende Größe, die trägereinhüllenden Phase (CE-Phase, engl. Carrier-Envelope-Phase), durch Konversion von optischen Frequenzen in den THz-Frequenzbereich, zu bestimmen. Im ersten Teil dieser Arbeit soll zunächst der Mechanismus der THz-Erzeugung in lasergenerierten Plasmen untersucht werden, wobei die im Rahmen dieser Arbeit gemachten Untersuchungen auf der Dissertation von Torsten Löffler [2] et. al aufbauen. Mit Hilfe der im ersten Teil gewonnenen Erkenntnisse soll dann im zweiten Teil die im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelte Methode zur THz-Erzeugung in mit Few-Cycle-Laserpulsen generierten Plasmen diskutiert werden. Zudem wird eine Anwendung dieser THz-Erzeugungsmethode zur CE-Phasenbestimmung von Few-Cycle-Laserpulsen vorgestellt und diskutiert.

der Trägerfrequenz in der Pulseinhüllenden stattfinden.

2. Few-Cycle-Laserpulse: Stand der Technik

Vergleichbar mit der Erfindung und der kontinuierlichen Weiterentwicklung des Lasers und der damit verbundenen Intensitätssteigerung von kohärenter optischer Strahlung, welche die Untersuchung eines neuen Gebiets der Physik, der nicht-linearen Optik, ermöglichte, eröffnet die Weiterentwicklung von Ultrakurzpulslasern, die immer kürzere Lichtpulse erzeugen, Möglichkeiten zur Untersuchung völlig neuer physikalischer Phänomene, die in dem neu entstehenden intensiv untersuchten Gebiet der Attosekunden-Physik erforscht werden.

Eine der wohl bahnbrechendsten Ereignisse für dieses Gebiet war die Erfindung des Titan:Saphir-(Ti:Sa-) Lasers [3] 1982 und in diesem Zusammenhang die Entdeckung der Kerr-Linsen-Modenkopplung [4, 5] 1991, welche zum ersten Mal ermöglichte, ultra-kurze Pulse direkt aus einem Laser ohne externe Kompression zu erzeugen. Der derzeitige Entwicklungsstand solcher Ti:Sa-Oszillatorlaser ermöglicht die Erzeugung von Laserpulsen mit den folgenden Beispielparametern: Pulsenergie ~ 2 nJ, Pulsdauer ~ 5 fs und Wiederholrate 65 MHz [6]. Mit anschließender Nachverstärkung [7], ebenfalls in Titan:Saphir, können sogenannte Riesenimpulse mit extrem hohen Intensitäten erzeugt werden, die es ermöglichen, nichtlineare Effekte hoher Ordnung zu untersuchen. Diese Nachverstärkung geht allerdings auf Kosten der Wiederholrate, die reduziert werden muss, wodurch das Verhältnis der Signalstärke zum Rauschniveau, dem sogenannten Signal-zu-Rauschverhältnis (SNR, engl. Signal-to-Noise-Ratio), für die Detektion verschlechtert wird. Zum anderen wird die Pulsdauer leicht verlängert, wodurch sich unter anderem das zeitliche Auflösungsvermögen in Anrege-Abfrage-Experimenten verschlechtert. Unter Verwendung von externer spektraler Verbreiterung von verstärkten Laserpulsen, beispielsweise durch Selbst-Phasen-Modulation in gasgefüllten Hohlkapillaren und anschließender zeitlicher Kompression bis an das Bandbreitenlimit [8], können optische Pulse erzeugt werden, deren Pulsdauer der Dauer eines einzelnen optischen Zykluses ($\sim 2,5$ fs) sehr nahe kommt.

Für diese sogenannten Few-Cycle-Laserpulse gewinnt ein Parameter an Bedeutung, der für Laserpulse, deren Pulsdauern größer als 10 fs sind, noch relativ bedeutungslos ist. Dieser Parameter ist die CE-Phase, die den Phasenunterschied zwischen der Trägerfrequenz und der Pulseinhüllenden und damit die explizite Feldverteilung im Laserpuls definiert. Die CE-Phase definiert die explizite Feldverteilung im Laserpuls für den Fall das der Laserpuls bis an sein Bandbreitenlimit zeitlich komprimiert und die Trägereinhüllenden-Funktion bekannt ist. Die Trägereinhüllenden-Funktion und der zeitliche Kompressionsgrad eines Pulses können durch etablierte Methoden wie beispielsweise FROG (engl. Frequency Resolved Optical Gating) [9] und SPIDER (engl. Spectral-Phase-Interferometry for Direct Electric-Field Reconstruction) [10] bestimmt werden. Zusätzlich kann mit diesen beiden Methoden die Phase der einzelnen Frequenzanteile bestimmt werden. Die CE-Phase ist mit diesen Methoden jedoch nicht direkt zugänglich.

Dass die CE-Phase erst für Pulse mit einer Pulsdauer von weniger als 10 fs von Bedeutung wird, liegt an der Tatsache, dass die Pulsdauer in die Größenordnung der optischen Periode kommt. Dadurch entsteht eine Asymmetrie in der Spitzenfeldstärke dieser Laserpulse von positiver zu negativer maximal erreichter Feldstärke. Die Stärke dieser Asymmetrie ist explizit von der CE-Phase abhängig.

Die CE-Phase ist in moden-gekoppelten Lasern ohne zusätzlichen Aufwand von Laserpuls zu Laserpuls verschieden. Deshalb waren moden-gekoppelte Laser für Spektroskopie mit extrem hoher Frequenz- bzw. Zeitauflösung nur von sehr eingeschränkter Verwendbarkeit, da die Lage des sogenannten Frequenzkamms, den eine Folge von Laserpulsen darstellt, bis auf genau den Faktor der CE-Phase unbestimmt war. Die Entwicklung einer Technik zur CE-Phasenstabilisierung von moden-gekoppelten Lasern [11, 12] ermöglichte die Verwendung solcher Laser mit ungeahnter Frequenzgenauigkeit und Zeitauflösung [11, 13]. Dies verdeutlicht sich im Zeitbereich in einer Bestimmung der Feldverteilung des optischen Pulses mit einer Präzision auf der Attosekunden-Zeitskala. Die CE-Phasenstabilisierung ermöglichte damit erstmals die Erzeugung von einzelnen elektromagnetischen Pulsen, deren Pulsdauer selbst im Bereich von etwa 100 as liegt, und eröffnet damit die Möglichkeit, neue physikalische Phänomene, die auf dieser Zeitskala liegen, zu untersuchen. Als Beispiele seien hier die Untersuchung atomarer und molekularer Elektronenorbitale [14] und die Erzeugung von intensiven definierten Elektronenpaketen [15, 16, 17, 18] genannt.

Für zahlreiche Experimente auf diesem Gebiet würde die Kenntnis des Absolutwerts der CE-Phase eine weitere wichtige Information liefern, die zur Überprüfung der den Experimenten zugrundeliegenden Theorien dienen kann. Als Beispiele seien hier ATI (engl. Above Threshold Ionisation) [19, 20], nicht-sequentielle lichtinduzierte Doppelionisation [21], Gouy-Phasenbestimmung [22] und Quanteninterferenz in Photoströmen [23] genannt. Die Standardmethode die zur Messung der CE-Phase im Zusammenhang mit der Stabilisierung der CE-Phase von modengekoppelten Lasern benutzt wird, ist die sogenannte Methode der f-zu-2f-Interferometrie [24]¹. f-zu-2f-Interferometrie ist eine sehr genaue Methode, um CE-Phasenänderungen zu bestimmen. Aufgrund von unvermeidlichen Dispersionseffekten innerhalb der Messapparatur ist eine Absolutbestimmung der CE-Phase mit dieser Methode mit einer so großen Ungenauigkeit verbunden, dass diese Methode in der Praxis nicht zur Absolutwertbestimmung der CE-Phase verwendet wird. Die einzige bislang experimentell demonstrierte und anerkannte Methode, die den Anspruch hat, den Absolutwert der CE-Phase zu bestimmen, ist die sogenannte Stereo-ATI-Methode² von Paulus et.al [19, 20].

Die im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelte Methode, basierend auf der THz-Emission aus Few-Cycle laserpulserzeugten Plasmen, stellt eine neue Möglichkeit dar, die CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen zu messen. Eine Diskussion der Frage, in wie weit diese neue Methode dazu verwendet werden kann, Rückschlüsse auf den Absolutwert der CE-Phase zu ziehen, soll in Kapitel 8, unter Berücksichtigung und im Vergleich zu den beiden genannten Methoden f-zu-2f-Interferometrie und Stereo-ATI, diskutiert werden.

¹Eine kurze Diskussion der Funktionsweise dieser Methode ist in Abschnitt 2.3 zu finden.

²Eine kurze Diskussion der Funktionsweise dieser Methode findet sich in Abschnitt 2.4.

2.1. Die CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen

Wie bereits erwähnt, gewinnt für Few-Cycle-Laserpulse ($\tau < 10$ fs) die CE-Phase an Bedeutung, die für Multi-Cycle-Laserpulse noch relativ bedeutungslos ist. Die CE-Phase bestimmt, wie sich die elektrische Feldstärke genau in einem Few-Cycle-Puls verteilt³. Damit hat die CE-Phase einen entscheidenden Einfluss darauf welche Spitzenfeldstärke in diesem Puls erreicht wird. Mathematisch kann man die elektrische Feldverteilung eines Few-Cycle-Pulses an einem festen Ort durch folgende Funktion beschreiben:

$$E_{opt}(t) = E_{opt}^0 A(t) \cos\left(\frac{2\pi c}{\lambda}t - \varphi_{CE}\right) \quad (2.1)$$

Die Funktion $A(t)$ beschreibt dabei den zeitlichen Verlauf der Pulseinhüllenden und wird meist über eine Gauß-Funktion der Form:

$$A(t) = \exp\left(-2 \ln 2 \frac{t^2}{\tau^2}\right) \quad (2.2)$$

ausreichend gut beschrieben. τ ist hierbei die volle Halbwertsbreite der Pulsdauer. Bei sehr kurzen Pulsen ($\tau < 3$ fs) kann eine Gaußsche-Einhüllende, in Abhängigkeit von der CE-Phase, bei einer Fourieranalyse, Frequenzanteile bei $\omega = 0$ enthalten, welche in der Realität nicht propagationsfähig sind und eine unphysikalische DC-Komponente darstellen [25]. In diesem Fall muss die Gaußfunktion für die Einhüllende strenggenommen durch eine andere Funktion ersetzt werden, die keine solchen DC-Anteile bei einer Fourieranalyse enthält. Diese kann beispielsweise auf numerischem Wege, aus einer Fouriertransformation eines realistischen Spektrums, erzeugt werden. Bei Pulsen, welche länger als 3 fs sind, sind die Fehler, die durch die vereinfachende Annahme einer Gaußschen-Einhüllenden entstehen, jedoch noch vernachlässigbar klein, so dass die Verwendung der Gleichung 2.2 gerechtfertigt ist. In Gleichung 2.1 ist E_{opt}^0 die Spitzenfeldstärke, welche im Puls erreicht wird, für den Fall, dass das Maximum der Gauß-Funktion und ein Maximum der Cosinus-Funktion zusammenfallen, dargestellt. Ob diese Maxima zusammenfallen, ist explizit von der CE-Phase φ_{CE} abhängig. Dies verdeutlicht die Abhängigkeit der in einem Few-Cycle-Laserpuls erreichten Spitzenfeldstärke von der CE-Phase. Viele Experimente in der nichtlinearen Optik, wie zum Beispiel die Erzeugung höherer harmonischer Frequenzen (HHG, engl. Higher Harmonic Generation) [26, 27] oder die Erzeugung von einzelnen Attosekunden-Pulsen [28, 29], sind stark von der Feldstärke abhängig und können damit über die CE-Phase gesteuert werden.

³Dies gilt unter der Annahme eines bis an sein Bandbreitenlimit begrenzten Pulses, dessen Pulseinhüllende bekannt ist.

2.2. Die CE-Phase eines propagierenden Laserpulses

Für einen propagierenden Laserpuls ist die CE-Phase in einem dispersiven Medium eine Funktion der Propagationslänge. Dies rührt daher, dass sich der Träger und die Einhüllende mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten, der Phasengeschwindigkeit v_{ph} und der Gruppengeschwindigkeit v_g , ausbreiten. Nur im Vakuum sind beide Geschwindigkeiten gleich. In dispersiven Medien gilt folgender Zusammenhang zwischen der Phasen- und der Gruppengeschwindigkeit

$$v_g = v_{ph} - \lambda \frac{dv_{ph}}{d\lambda} \quad (2.3)$$

oder auch

$$n_g = n_{ph} + \lambda \frac{dn_{ph}}{d\lambda}, \quad (2.4)$$

wobei n_g den Gruppenbrechungsindex und n_{ph} den Phasenbrechungsindex bezeichnen. Die Zeitspanne t^* die der Träger und der Puls zurücklegen müssen um genau eine Entfernung von $\lambda/2$ voneinander zu haben berechnet sich einfach durch

$$t^* = \frac{1}{2} \frac{\lambda}{v_{ph} - v_g}. \quad (2.5)$$

In Luft entspricht die Phasengeschwindigkeit nahezu der Vakuumlichtgeschwindigkeit c . Damit kann die Weglänge d_π , die ein Laserpuls in einem dispersiven Medium zurücklegen muss, um eine CE-Phasenänderung von $\Delta\varphi_{CE} = \pi$ zu erfahren, über

$$d_\pi \simeq c \cdot t^* \quad (2.6)$$

berechnet werden und damit ergibt sich

$$d_\pi = \frac{1}{2} \frac{c\lambda}{v_{ph} - v_g}. \quad (2.7)$$

Gleichung 2.9 lässt sich weiter mit 2.3 zu 2.8

$$d_\pi = \frac{1}{2} n_{ph}^2 \left| \frac{dn_{ph}}{d\lambda} \right|^{-1} \quad (2.8)$$

vereinfachen. Für Luft kann der Brechungsindex näherungsweise gleich eins gesetzt werden, so dass sich Gleichung 2.8 zu

$$d_{\pi} = \frac{1}{2} \left| \frac{dn_{ph}}{d\lambda} \right|^{-1} \quad (2.9)$$

vereinfacht. Luft hat eine relativ geringe Dispersion von $dn_{ph}/d\lambda \simeq -7,4 \text{ m}^{-1}$ [30] (bei $\lambda = 750 \text{ nm}$), woraus sich eine charakteristische Weglänge, $d_{\pi} \simeq 6,8 \text{ cm}$ ergibt. Für Quarzglas ($dn_{ph}/d\lambda \simeq -1,9 \cdot 10^4 \text{ m}^{-1}$ bei $\lambda = 750 \text{ nm}$) beträgt die charakteristische Weglänge nur $d_{\pi} \simeq 26 \mu\text{m}$ [31].

2.3. CE-Phasenstabilisierung mit f-zu-2f-Interferometrie

In diesem Abschnitt soll kurz die Funktionsweise der f-zu-2f-Methode [24, 33] zur Stabilisierung der CE-Phase auf prinzipieller und möglichst anschaulicher Basis beschrieben werden, um anschließend die Frage zu klären, ob diese Methode einen Absolutwert der CE-Phase liefern kann.

In dispersiven Medien, also auch in Luft, ist der Brechungsindex eine Funktion der Wellenlänge. Dies hat zur Folge, dass die Phasengeschwindigkeiten der einzelnen Frequenzkomponenten eines ultrakurzen Laserpulses verschieden zur Gruppengeschwindigkeit des Pulses sind. Aus diesem Grund verschiebt sich das elektrische Feld unter der Einhüllenden von Puls zu Puls. Dies ist gleichbedeutend mit einer sich von Puls zu Puls ändernden CE-Phase.

Im Frequenzraum stellt eine unendliche Folge von Laserpulsen einen sogenannten Frequenzkamm dar [34]. Der Abstand der Kammlinien ist durch die Wiederholrate des Lasers bestimmt. Durch den Unterschied der Gruppengeschwindigkeit des Pulses im Resonator zu den Phasengeschwindigkeiten hat der Frequenzkamm einen Offset. Dieser wird als Offsetfrequenz f_0 bezeichnet. f_0 kann mit Hilfe eines f-zu-2f-Interferometers bestimmt werden.

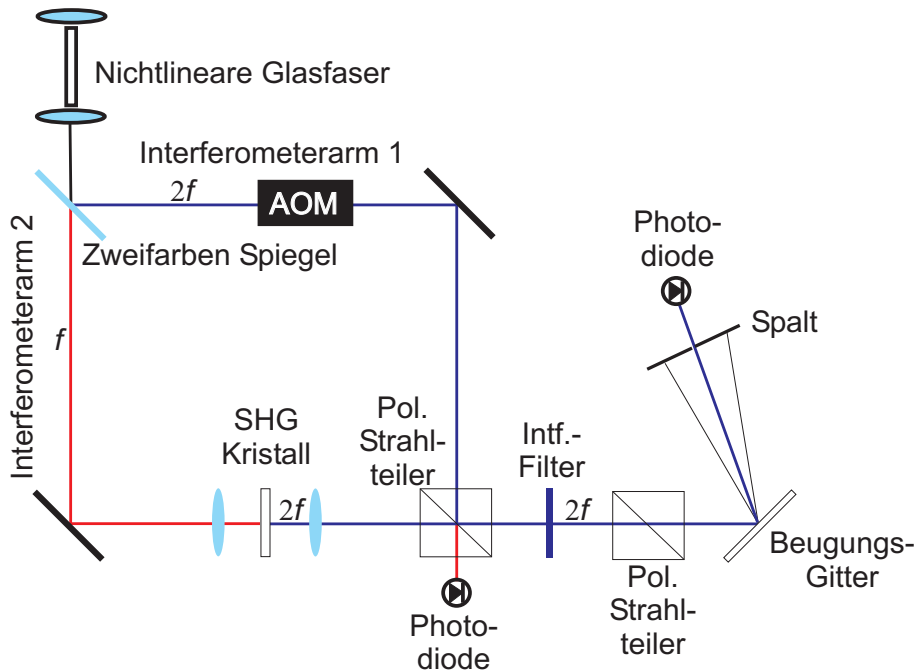


Abbildung 2.1.: Schematische Darstellung eines f-zu-2f-Interferometers

In Abbildung 2.1 ist das Schema eines f-zu-2f-Interferometers dargestellt. Abhängig von der spektralen Bandbreite der Laserpulse ist es eventuell zunächst notwendig, dass das Spektrum der Laserpulse verbreitert wird, so dass es eine Oktave im Frequenzraum überspannt. Dies kann über Weisslichterzeugung (WLG, engl. White Light Generation) in einer nichtlinearen Glasfaser geschehen. Durch die Weisslichterzeugung erhält der Puls

einen zusätzlichen, aber konstanten Phasenterm ϕ_{WLG} . Die Frequenzanteile f und $2f$ des spektral verbreiterten Pulses werden dann durch einen Zweifarbenspiegel, in zwei Interferometerarme, in einer Mach-Zehnder-Anordnung voneinander getrennt. Die Fundamentalfrequenz f aus dem roten Ende des verbreiterten Spektrums wird in einem nichtlinearen Kristall frequenzverdoppelt (SHG, Second Harmonic Generation). Durch die Frequenzverdopplung erhält dieser Puls auch einen zusätzlichen, aber konstanten Phasenterm ϕ_{SHG} . Durch einen polarisierenden Strahlteiler werden beide Pulse wieder überlagert. Eine Anordnung bestehend aus einem Interferenzfilter, einem Polarisator, einem Beugungsgitter, einer Spaltblende und einer Photodiode filtert eine schmalbandige Frequenz um $2f$ heraus. Durch die Frequenzverdopplung besitzt der Puls aus dem zweiten Interferometerarm auch den doppelten Offset, also $2f_0$, wobei der aus dem ersten Interferometerarm stammende Puls immer noch die ursprüngliche Offsetfrequenz f_0 beinhaltet. Die Differenzfrequenz der beiden Pulse entspricht damit der gesuchten Offsetfrequenz f_0 .

$$f_0 = 2(nf_{rep} + f_0) - (2nf_{rep} + f_0) \quad (2.10)$$

Dabei steht n für die n 'te Mode des Spektrums. An einer zweiten Photodiode wird die Wiederholrate f_{rep} des Lasers gemessen und über die Beziehung 2.11 die Puls-zu-Pulsänderung der CE-Phase $\Delta\varphi_{CE}$

$$\Delta\varphi_{CE} = 2\pi \frac{f_0}{f_{rep}} \quad (2.11)$$

bestimmt [24]. Durch elektronische Methoden, wie beispielsweise durch eine schnelle Regelung der Pumplaserleistung des Oszillators [35] oder durch Variation der Resonatorlänge durch einen Spiegel im Resonator [36], der auf einem piezoelektrischen Halter montiert ist, kann die Differenzfrequenz und damit die Offsetfrequenz f_0 stabilisiert werden. Durch die Beziehung 2.11 ist damit auch der CE-Phasenunterschied von Puls zu Puls konstant. Für die CE-Phasenstabilisierung muss f_0 auf 0 oder f_{rep} geregelt werden. Dies ist nach Gleichung 2.11 gleichbedeutend mit einem CE-Phasenunterschied von Puls zu Puls $\Delta\varphi_{CE} = 0$ und damit einer konstanten CE-Phase. Die Stabilisierung des heterodyn-detektierten Signals auf 0 oder f_{rep} ist allerdings problematisch [24]. Mit einem zusätzlichen akusto-optischen Modulator (AOM, engl. Acousto-Optical-Modulator) im Interferometerarm 1, kann dieses Problem umgangen werden. Durch Mischen des Photodiodensignals mit der Modulationsfrequenz des AOM kann die Stabilisierung der CE-Phase erreicht werden.

Zur Bestimmung von CE-Phasendrifts von verstärkten Laserpulsen wird die Methode erweitert. Das Hauptproblem bei der Bestimmung von $\Delta\varphi_{CE}$ für verstärkte Laserpulse liegt in der reduzierten Wiederholrate des Verstärkers im Vergleich zum Oszillator (100 MHz \rightarrow 1 kHz) und der damit verbundenen Reduzierung der Genauigkeit in der Bestimmung der Wiederholrate f_{rep} . Zudem besitzen Verstärkerlaser konzeptionell eine größere

Schwankung der Intensität von Laserpuls zu Laserpuls, so dass sich diese auch in einer Reduzierung der Genauigkeit von $\Delta\varphi_{CE}$ niederschlägt. Die Präzision der Methode kann aber durch Messung der Differenzfrequenz $f_0(\omega)$ über eine größere Bandbreite verbessert werden.⁴ Dazu werden der Interferenzfilter, die Spaltblende, die Photodiode und das Gitter in Abbildung 2.1 durch ein Spektrometer ersetzt, welches über eine schnelle Kamera die Interferenz des gesamten überlappenden Spektrums des Ausgangspulses mit dem frequenzverdoppelten Puls gleichzeitig aufnimmt. Die größere Intensität der verstärkten Laserpulse vereinfacht dabei die spektrale Verbreiterung und ermöglicht eine gute spektrale Überlappung des Ausgangs- und des Frequenzverdoppelten-Spektrums.

Sowohl für die hochrepetierlichen Laser, als auch für die verstärkten Laser, kann über einen Standard Fourier-Algorithmus [32] auf die CE-Phase zurückgeschlossen werden. Dieser Algorithmus beinhaltet allerdings die zusätzlichen Phasenterme ϕ_{SHG} und ϕ_{WLG} , die in der Erzeugung der zweiten harmonischen Frequenz und der Verbreiterung des Spektrums ihren Ursprung haben. Diese können in den Messungen zwar als konstant angenommen werden und ermöglichen damit eine Stabilisierung der Änderung der CE-Phase, der Absolutwert der CE-Phase ist aber bis auf einen konstanten Term unbestimmt [37]. Zudem kann einem bestimmten CE-Phasenwert kein definierter Messort in dem f-zu-2f-Interferometer zugeordnet werden, da eine unbekannte Differenz der optischen Weglänge in beiden Interferometerarmen immer vorhanden ist. Damit ist auch die CE-Phase, gemessen durch diese Methode, nur bis auf mehrere konstante Terme bestimmt. Diese Methode kann also in der Praxis keinen Absolutwert der CE-Phase liefern bzw. nur nach Kalibration mit einer anderen „absoluten“ Methode.

⁴Bei hochrepetierlichen Lasersystemen wird diese Methode aus technischen Gründen nicht angewendet, da die Kamera des Spektrometers so schnell sein muss wie die Wiederholrate des Lasersystems.

2.4. CE-Phasenmessung mit Stereo-ATI

In diesem Abschnitt wird kurz auf die Funktionsweise der sogenannten Stereo-ATI-Methode (ATI, engl. Above Threshold Ionisation) [19] zur CE-Phasenbestimmung von Few-Cycle-Pulsen eingegangen, um darauf basierend die Absolutwertbestimmung der CE-Phase für diese Methode zu diskutieren und mit der THz-Methode zu vergleichen.

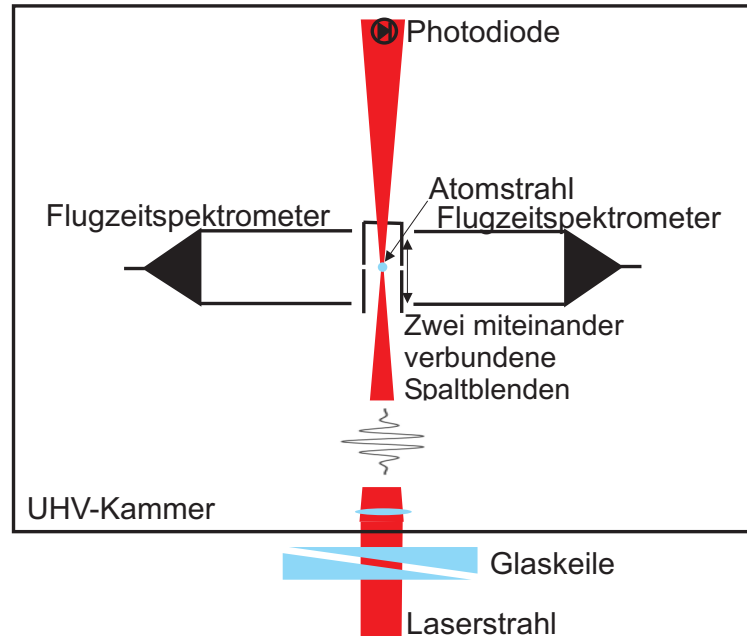


Abbildung 2.2.: Schematische Darstellung eines Stereo-ATI-Spektrometers. Der Stereo-ATI-Aufbau erfordert eine Ultrahochvakuum-Kammer (UHV).

In Abbildung 2.2 ist das Schema eines Stereo-ATI-Spektrometers dargestellt. Die in der Abbildung dargestellten Komponenten befinden sich im Ultrahochvakuum. Das Kernstück der Apparatur besteht aus zwei sich gegenüber befindlichen Flugzeitspektrometern, mit zwei verbundenen beweglichen Spaltblenden. Über die beweglichen Spaltblenden kann die Fokusregion lokal aufgelöst untersucht werden und Effekte, die durch die Gouy-Phase [22] entstehen, untersucht werden. Im Fokus der optischen Strahlung wird mit Hilfe einer Düse ein feiner Atomstrahl senkrecht zur Laserausbreitungsrichtung und der Achse der Flugzeitspektrometer ins Vakuum eingebracht. Mit Hilfe der Flugzeitspektrometer kann die kinetische Energie der durch den Laserpuls in der Nähe des Fokus erzeugten Elektronen, die die Spaltblenden passieren, bestimmt werden. Es gibt nun verschiedene Möglichkeiten, aus den Stereo-ATI-Messungen Rückschlüsse auf die CE-Phase zu ziehen. Eine kurze Zusammenfassung der Interpretationsmöglichkeiten der Stereo-ATI Messungen aus Ref. [31] soll im folgenden wiedergegeben werden.

2.4.1. Betrachtung des Links-Rechts-Verhältnisses aller Elektronen

Eine Möglichkeit, einen CE-phasenabhängigen Effekt zu beobachten, besteht darin, unter Verwendung eines CE-phasenstablierten Lasersystems nur die Anzahl der Elektronen zu betrachten, die den linken und den rechten Detektor erreichen. Variiert man die CE-Phase mit Hilfe eines Glaskeilepaars, so ist im Verhältnis der Anzahl der Elektronen, die den linken Detektor erreichen (n_l), zu der Anzahl der Elektronen, die den rechten Detektor erreichen (n_r), also im Verhältnis n_l/n_r , eine deutliche Modulation⁵ mit der CE-Phase zu erkennen [20]. Betrachtet man das Links-Rechts-Verhältnis n_l/n_r für Elektronen mit einer bestimmten kinetischen Energie, so nimmt der Kontrast bei der Betrachtung von hochenergetischen Elektronen deutlich zu, wobei allerdings die Emissionsrate der Elektronen mit zunehmender Energie abnimmt. Um aus dem Links-Rechts-Verhältnis n_l/n_r auf den Absolutwert der CE-Phase zurückzuschließen, müssen auch hier theoretische Annahmen zugrunde gelegt werden. Die einfachste Modellvorstellung ist die sogenannte Starkfeldnäherung (SFA, engl. Strong-Field-Approximation). Bei dieser Näherung wird in äquivalenter Weise wie bei der Betrachtung in Abschnitt 5.4 davon ausgegangen, dass ein Elektron mit der Anfangsbedingung $v(t_0) = 0$ ionisiert wird und darauf folgend durch den Laserpuls beschleunigt wird. Der Impuls \vec{p}_e , den ein Elektron, welches zur Zeit t_0 ionisiert wurde, für $t \rightarrow \infty$ hat, kann durch das elektrische Vektorpotential $\vec{A}(t_0)$

$$\vec{p}_e(t_0) = -e\vec{A}(t_0) \quad (2.12)$$

bestimmt werden, wobei das Vektorpotential über

$$\vec{A}(t_0) = \int_{t_0}^{\infty} \vec{E}(t) dt \quad (2.13)$$

definiert ist. Der so berechnete Impuls des Elektrons ist proportional zu der in Gleichung 5.14 berechneten Verschiebung $x(t_0, t_s)$ für den Fall, dass die Streuzeit t_s des Elektrons $t_s \gg \tau$ groß gegen die Pulsdauer τ ist, da nach Durchlaufen des Laserpulses durch den Fokus das Elektron als kräftefrei behandelt wird und damit einen konstanten Impuls p_e besitzt: Der genaue Zusammenhang zwischen der Verschiebung und dem Impuls des Elektrons ist über

$$p_e(t_0) = \frac{m_e x(t_0, t_s)}{t_s} \quad \text{für } t_s \gg \tau \quad (2.14)$$

gegeben. Wenn man also die Proportionalität der Verschiebung $x(t_0, t_s)$ zum Impuls $p_e(t_0)$ berücksichtigt, kann die blau gestrichelte Kurve in Abbildung 5.11 auch als Impuls der Elektronen interpretiert werden. Damit ist sofort einsichtig, dass die Starkfeldnäherung, verwendet für die Interpretation der Stereo-ATI-Daten, auch für die CE-Phase

⁵Die Modulationstiefe nimmt für kürzere Laserpulse zu!

$\varphi_{CE} = 0$, die ja die maximale asymmetrische Feldverteilung darstellt, ein Links-Rechts-Verhältnis $n_l/n_r = 1$ und damit eine symmetrische Verteilung der Elektronen vorher-sagt⁶.

In Ref. [38] wird das Stereo-ATI-Experiment anhand von numerischen Lösungen der zeit-abhängigen Schrödingergleichung (TDSE, engl. Time-Dependent-Schrödinger-Equation) für Wasserstoff diskutiert und dabei festgestellt, dass es, abweichend von der Starkfeld-näherung, eine Intensitätsabhängigkeit der CE-Phase, für die eine Gleichverteilung der Elektronen $n_l/n_r = 1$ berechnet wird, gibt. Die in dieser Referenz gemachten Berech-nungen ergeben im Intensitätsbereich $3 \cdot 10^{13} < I_{opt} < 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ eine Gleichvertei-lung für einen nur gering variierenden CE-Phasenwert von $\varphi_{CE} = -\pi/3 \pm \sim \pi/10$. Dieser Wert bezieht sich auf die Definition der CE-Phase nach Gleichung 2.1. Die Ver-wendung dieses Intensitätsbereichs wird also für Stereo-ATI-Messungen vorgeschlagen. In den beiden Referenzen [19, 38] wird der Unterschied in der Interpretation der ATI-Spektren in der einfachen Starkfeldnäherung im Vergleich zu der quantenmechanischen TDSE-Beschreibung im wesentlichen auf die Vernachlässigung des Ionenpotentials in der Starkfeldnäherung zurückgeführt. Da allerdings auch die numerischen Lösungen der zeit-abhängigen Schrödingergleichung nur für Wasserstoff gefunden werden konnten⁷, besteht auch für die komplexeren quantenmechanischen Berechnungen eine Unsicherheit in der Absolutbestimmung der CE-Phase, da sich die Frage stellt, ob der für Wasserstoff be-rechnete Intensitätsbereich für die schweren Edelgase wie bspw. Xenon, das in der Regel für Stereo-ATI Experimente verwendet wird, genauso stabil ist. D.h. die absolute CE-Phasenbestimmung anhand der Interpretation des Links-Rechts-Verhältnisses n_l/n_r ist also mit einer großen Unsicherheit behaftet, da die Diskrepanz der bestehenden Theorien noch nicht zufriedenstellend geklärt ist.

2.4.2. Alleinige Betrachtung der hochenergetischer Elektronen

Eine bessere Möglichkeit der Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase scheint die alleinige Betrachtung der höherenergetischen Elektronen zu bieten. Aufgrund ihrer ho-hen kinetischen Energie sind für diese die Ionenpotentiale eher vernachlässigbar als für die Mehrheit der niederenergetischen Elektronen, so dass für diese die Starkfeldnäherung besser geeignet erscheint. Dabei wird die Untersuchung der Elektronen unterschieden in eine Analyse der Elektronen, die eine elastische Streuung erfahren, (Plateauelektronen), und in eine Analyse der hochenergetischsten Elektronen, die keine elastische Streuung erfahren. Diese beiden Bereiche können im ATI-Spektrum leicht unterschieden werden, da es eine maximale Energie gibt ($2U_p$),⁸ die die nicht gestreuten Elektronen erreichen können. Die elastisch gestreuten Elektronen sind im wesentlichen oberhalb von $2U_p$ zu finden. Dies liegt daran, dass diese nach der elastischen Streuung einen zusätzlichen Impuls

⁶Dieses steht im Kontrast zu der noch einfacheren Betrachtungsweise der Ionisationsraten bzw. der Plasmadichten ρ^+ und ρ^- , wie sie beispielsweise in Abschnitt 5.1 gemacht wird, welche asymmetrisch ist für $\varphi_{CE} = 0$!

⁷Die TDSE für schwerere Atome bzw. Moleküle als Wasserstoff und Helium kann bislang noch nicht gelöst werden!

⁸ U_p ist hier das ponderomotive Potential eines Elektrons im Laserpuls (Vergleiche Abschnitt 3.3.1 mit $\vec{F}_{pon} = -e\vec{\nabla}U_{pon}$).

durch das Laserfeld „auf sammeln“. Für die Plateau-Elektronen muss die Starkfeldnäherung durch den Streuprozess ergänzt werden, was zur Folge hat, dass sich hier wieder ein Extremum des Links-Rechts-Verhältnisses n_l/n_r bei $\varphi_{CE} = 0$ ergibt. Für die nicht gestreuten Elektronen kann weiterhin die einfache Starkfeldnäherung verwendet werden. D.h. ein symmetrisches Links-Rechts-Verhältnis der Elektronen knapp unterhalb von $2U_p$ wird als $\varphi_{CE} = 0$ interpretiert und ein symmetrisches Links-Rechts-Verhältnis der Plateau-Elektronen oberhalb von $2U_p$ wird als $\varphi_{CE} = \pi/2$ interpretiert, so dass die Messung der Links-Rechts-Verteilung der nicht gestreuten Elektronen bei $\varphi_{CE} = \pi/2$ die größtmögliche Präzision bietet und bei $\varphi_{CE} = 0$ entsprechend die Betrachtung der Plateau-Elektronen.

3. THz-Erzeugung in laserinduzierten Plasmen mit Multi-Cycle-Laserpulsen

Im Rahmen dieser Arbeit wird die THz-Emission aus laserpulserzeugten Plasmen untersucht. Dabei wird eine neue THz-Erzeugungsmethode vorgestellt, welche nur unter Verwendung von Few-Cycle-Laserpulsen (Laserpulsdauer $\tau < 10$ fs) eine signifikante THz-Emission zur Folge hat. Zunächst sollen jedoch in diesem Kapitel die bereits bekannten Methoden zur THz-Erzeugung in lasergenerierten Plasmen vorgestellt werden. Bei diesen Methoden werden Laserpulse, mit Pulsdauern im Bereich zwischen etwa 25 - 500 fs, verwendet. Diese Laserpulse sollen im folgenden als Multi-Cycle-Pulse bezeichnet werden, da sich der Begriff Few-Cycle-Pulse für sub-10 fs-Pulse in der Literatur bereits etabliert hat und es nahe liegt, Laserpulse im darüberliegenden Pulsdauerbereich der Einfachheit halber als Multi-Cycle-Pulse zu bezeichnen. Im folgenden Kapitel soll eine kurze Einleitung zur THz-Erzeugung in isotropen Medien (Medien mit Inversionssymmetrie) diskutiert werden. Die Inversionssymmetrie, die alle isotropen Medien besitzen, hat zur Folge, dass in diesen Medien Emission von THz-Strahlung in Vorwärtsrichtung nur möglich ist, wenn die Inversionssymmetrie des isotropen Mediums durch zusätzliche Einflüsse gebrochen wird. Diese Symmetriebrechung kann auf verschiedene Weise hervorgerufen werden. Zwei Beispiele hierfür werden in den Abschnitten 3.3.2 und 3.3.3 vorgestellt. In Abschnitt 3.3.1 wird zunächst ein THz-Erzeugungsmechanismus vorgestellt, bei dem keine Brechung der Symmetrie des isotropen Mediums verwendet wird. Diese Methode soll hier nur der Vollständigkeit halber erwähnt werden, da die ersten Arbeiten zu diesem Thema von Hamster et. al. [39, 40] wohl als Pionierarbeiten auf dem Gebiet der THz-Erzeugung in lasergenerierten Plasmen angesehen werden können.

Das in dieser Arbeit untersuchte isotrope Ausgangsmedium ist Laborluft bei Umgebungsdruck. Fokussiert man einen Laserstrahl in Luft, so kann dieser bei Erreichen einer bestimmten Spitzenintensität ($I_{opt} \approx 10^{14} \text{Wcm}^{-2}$) die Laborluft signifikant ionisieren. Heute kommerziell komplett erhältliche Lasersysteme, die solche intensiven Laserpulse erzeugen können, sind Verstärkerlasersysteme, die auf dem technischen Prinzip der „Chirped-Pulse Amplification“ (CPA) basieren. Unter Verwendung dieses Prinzips werden zunächst kurze Pulse mit relativ niedrigen Pulsenergien (einige nJ und Pulsdauern von 5 bis zu einigen 100 fs) in einem Oszillatorlaser erzeugt. Bevor diese kurzen Pulse in einem optischen Verstärkermedium weiter verstärkt werden, werden die einzelnen spektralen Anteile der Pulse entweder durch eine Prismenanordnung oder eine Gitteranordnung, also durch Dispersion oder Beugung, zeitlich auseinander gezogen (engl. „chirp“). Die Pulsdauer wird dadurch bis auf einige ns verlängert, um die Spitzenintensitäten der Laserpulse während des Verstärkungsprozesses und die Belastung der optischen Komponenten dadurch zu verringern. Nach mehrmaligen Durchlaufen des Verstärkermediums, wenn eine Sättigung der optischen Verstärkung erreicht wird, werden die zeitlich auseinander gezogenen spek-

tralen Komponenten wieder durch eine identische Prismen- bzw. Gitteranordnung, die aber diesmal einen „chirp“ mit entgegengesetztem Vorzeichen erzeugt, zeitlich zusammengeführt. Diese kommerziell erhältlichen CPA-Systeme können Pulse mit Pulsdauern ab einigen 10 fs erzeugen. Wird ein solcher Laserpuls zur Plasmaerzeugung in Luft fokussiert, so wird das im Fokus erzeugte Plasma, bzw. die Verteilung der im Plasma erzeugten und sich bewegenden Elektronen, zylindersymmetrisch zur optischen Achse sein. Aufgrund der Beschleunigung der Elektronen durch ponderomotive Kräfte, die vereinfacht ausgedrückt die Elektronen aus Bereichen hoher optischer Feldstärke in Bereiche mit geringerer Feldstärke verschieben, kommt es zu einer Emission von THz-Strahlung in einem radialsymmetrischen Kegel in Bezug auf die Ausbreitungsrichtung des optischen Pulses. Wie bereits erwähnt, ist in diesem Fall eine THz-Emission in Propagationsrichtung des optischen Pulses verboten. Weitere Details zu dieser THz-Erzeugungsmethode sind in Abschnitt 3.3.1 zu finden. Legt man vor der Ionisation an der Luft ein konstantes elektrisches Feld in dem Bereich, in dem der Laserpuls das Plasma erzeugt, an, werden die generierten Elektronen eine kollektive Schwerpunktsbewegung in Richtung des statischen Feldes vollziehen. Diese Kollektivbewegung erzeugt ein Dipolmoment senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des ausgehenden optischen Pulses, was zu einer THz-Dipolabstrahlung in und entgegengesetzt der Propagationsrichtung des optischen Pulses führt¹. Die Funktionsweise dieser THz-Erzeugungsmethode wird in Abschnitt 3.3.2 diskutiert. Die zur Zeit wohl effektivste Methode zur Erzeugung von THz-Strahlung in von Laserpulsen ionisierter Luft wird im Abschnitt 3.3.3 kurz vorgestellt und ausführlich in Kapitel 5 diskutiert. Bei dieser Methode wird die elektrische Feldstärke des plasmaerzeugenden Laserpulses manipuliert, in dem eine Frequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω überlagert wird. So wird eine Asymmetrie in der elektrischen Feldverteilung erzeugt, die bei der Ionisation ein Dipolmoment erzeugt. Basierend auf einer vereinfachenden Betrachtung kann man sagen, dass bei dieser Methode die Elektronen direkt nach der Ionisation durch das asymmetrische Laserfeld in positive bzw. negative Feldrichtung unterschiedlich stark beschleunigt werden.² Durch die hohen optischen Feldstärken sind die so erzeugten Dipolmomente deutlich größer, was diese Methode deutlich effektiver im Vergleich zur Methode mit einem statischen elektrischen Feld macht. In Abschnitt 3.1 wird zunächst die THz-Detektionsmethode, die in dieser Arbeit ausschließlich verwendet wurde, vorgestellt. Bevor dann etwas detaillierter auf die genannten THz-Erzeugungsmethoden in den Abschnitten 3.3.1 bis 3.3.3 eingegangen wird, soll eine Beschreibung der Ionisation der Luft, die allen Methoden gemeinsam zugrunde liegt, in Abschnitt 3.2 erfolgen.

¹Es überlagert sich allerdings nur die emittierte Strahlung in Ausbreitungsrichtung konstruktiv.

²Dies gilt prinzipiell auch für die in Abschnitt 5.2 erweiterte Betrachtung unter Berücksichtigung des Ionisationszeitpunktes, bei der allerdings die maximale Polarisation bei symmetrischer Feldverteilung auftritt.

3.1. Elektro-optische THz-Detektion

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten THz-Messungen wurden ausschließlich mittels elektro-optischer THz-Detektion [41] durchgeführt. Dabei wird die THz-Anrege- und Abfrage-Methode (engl. pump-probe) verwendet. Bei dieser Methode wird der Laserpuls mit Hilfe eines Strahlteilers in einen intensiven Anregepuls (pump), der die THz-Strahlung erzeugt, und in einen schwachen Abfragepuls (probe), der die zeitliche Wellenform des THz-Pulses abtastet, aufgeteilt. Ein typischer Anrege und Abfrage Aufbau mit elektro-optischer THz-Detektion ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Der intensive Anregepuls wird dabei in der Regel mit einem mechanischen Lichtzerhacker (engl. chopper) auf die Hälfte der Wiederholrate des Lasersystems moduliert, um die rauschunterdrückenden Vorteile eines Lock-In Verstärkers bei der Detektion verwenden zu können. Die THz-Strahlung wird dann mit Hilfe eines Parabolspiegels kollimiert und mit Hilfe einer THz-transparenten Polyethylenfolie, die für die optische Strahlung undurchlässig ist, von der Laserstrahlung gefiltert. Über einen ebenfalls THz-transparenten Pellicle-Strahlteiler, der aus einer nur wenige μm dicken Membran besteht, werden der schwache Abfragepuls und der THz-Puls räumlich überlagert. Ein weiterer Parabolspiegel fokussiert den schwachen optischen und den THz-Puls gemeinsam in den zur elektro-optischen THz-Detektion verwendeten $\langle 110 \rangle$ orientierten ZnTe Kristall. Durch eine mechanische Verzögerungseinheit kann der schwache Abfragepuls zeitlich relativ zum THz-Puls verschoben werden, so dass die zeitliche THz-Wellenform abgetastet werden kann.

Die elektrische Feldstärke der THz-Strahlung induziert dabei über den sogenannten Pockels-Effekt eine Doppelbrechung im elektro-optischen Kristall, die zu einer Polarisationsänderung des schwachen optischen Abfragepulses führt. Diese wird über eine Anordnung einer lambda-viertel Verzögerungsplatte und einem polarisierenden Strahlteilerwürfel in eine Intensitätsänderung konvertiert, welche dann über zwei Photodioden und einen Zweikanal-Lock-In Verstärker gemessen wird. Über diese Intensitätsänderung kann mit Hilfe des elektro-optischen Koeffizienten auf die THz-Amplitude zurückgeschlossen werden [2].

3.2. Plasmaerzeugung durch Tunnel-Ionisation

Für die Ionisation eines Atoms oder Moleküls durch die elektrische Feldstärke eines Laserpulses gibt es im wesentlichen drei Modellansätze. Die Bindungsenergie des am schwächsten gebundenen Elektrons beträgt bei Stickstoff (N_2) 15,6 eV. Die Photonenergie bei der typischen Ti:Sa Wellenlänge $\lambda = 800$ nm beträgt etwa 1,5 eV. Dieser Vergleich verdeutlicht, dass der Ionisationsprozess nur über einen nicht-linearen Vorgang beschrieben werden kann. Im Intensitätsbereich der Laserstrahlung unterhalb von 10^{13} Wcm^{-2} kann die Ionisation gut durch, auf einfacher Störungstheorie basierender, Mehr-Photonen-Ionisation [42] beschrieben werden. In dieser Beschreibung werden mehrere Photonen gleichzeitig absorbiert, um die Potentialbarriere des Ionenrumpfes zu überwinden. Oberhalb von 10^{13} Wcm^{-2} erreicht das elektrische Feld des Laserpulses eine Stärke, die in der Größenordnung der intermolekularen Bindungsfeldstärke des am schwächsten gebundenen Elektrons liegt, so dass das Laserfeld nicht mehr als kleine Störung des Bindungspotentials aufgefasst werden kann und diese Theorie in dem in dieser Arbeit relevanten Intensitätsbereich von etwa 10^{14} Wcm^{-2} nicht mehr anwendbar ist. In diesem hier relevanten Intensitätsbereich kann die Ionisation sehr gut auf Basis von statischer Tunneltheorie [43] beschrieben werden. Im Bereich der Tunnel-Ionisation wird die Potentialbarriere des Ionenrumpfes zuerst durch das elektrische Feld des Laserpulses verbogen und anschließend durch Tunneln durch die reduzierte Potentialbarriere ins Kontinuum freigesetzt. Bei noch höheren Intensitäten wird das Bindungspotential so stark verbogen, dass das am schwächsten gebundene Elektron direkt durch die Feldstärke des Laserpulses befreit wird. Dieses Verhalten wird als Über-Barrieren-Ionisation [44] bezeichnet. Die Intensität im Brennpunkt ist jedoch durch Plasmadefokussierung [2] auf Werte unterhalb der Intensität für Über-Barrieren-Ionisation beschränkt, so dass eine Beschränkung der Beschreibung der Ionisation auf Basis von statischer Tunneltheorie hier sinnvoll ist. Die Ionisationsrate [45] für einfache Ionisation von Stickstoffmolekülen kann demnach über Gleichung 3.1 beschrieben werden

$$w_{tun} = 4\omega_a \left(\frac{U_{ion}^{N_2}}{U_{ion}^H} \right)^{\frac{5}{2}} \left| \frac{E_a}{E_{opt}} \right| \exp \left(-\frac{2}{3} \left(\frac{U_{ion}^{N_2}}{U_{ion}^H} \right)^{\frac{3}{2}} \left| \frac{E_a}{E_{opt}} \right| \right), \quad (3.1)$$

wobei $\omega_a = me^4/\hbar^3 = 4,13 \cdot 10^{16}$ 1/s die atomare Frequenzeinheit, $E_a = m^2e^5/\hbar^4 = 5,145 \cdot 10^{11}$ V/m die atomare Einheit des elektrischen Feldes und E_{opt} die optische Feldstärke bezeichnen³. $U_{ion}^H = 13,6$ eV und $U_{ion}^{N_2} = 15,6$ eV stehen für die ersten Ionisationspotentiale für Wasserstoff und molekularen Stickstoff⁴.

In Abbildung 3.1 ist die Ionisationsrate im Bereich der Ionisationsschwelle graphisch dargestellt. Der Wert für die Ionisationsschwelle wurde dabei willkürlich auf einen Wert von

³ m ist die Ruhemasse des Elektrons.

⁴Hier wird zur Vereinfachung nur das erste Ionisationspotential von Stickstoff (N_2) verwendet, da Stickstoff die Hauptkomponente ($\approx 79\%$) in Luft ist. Der geringere Anteil an Sauerstoff, welcher ein nur leicht geringeres erstes Ionisationspotential hat ($U_{ion}^{O_2} = 12,1$ eV), soll vernachlässigt werden.

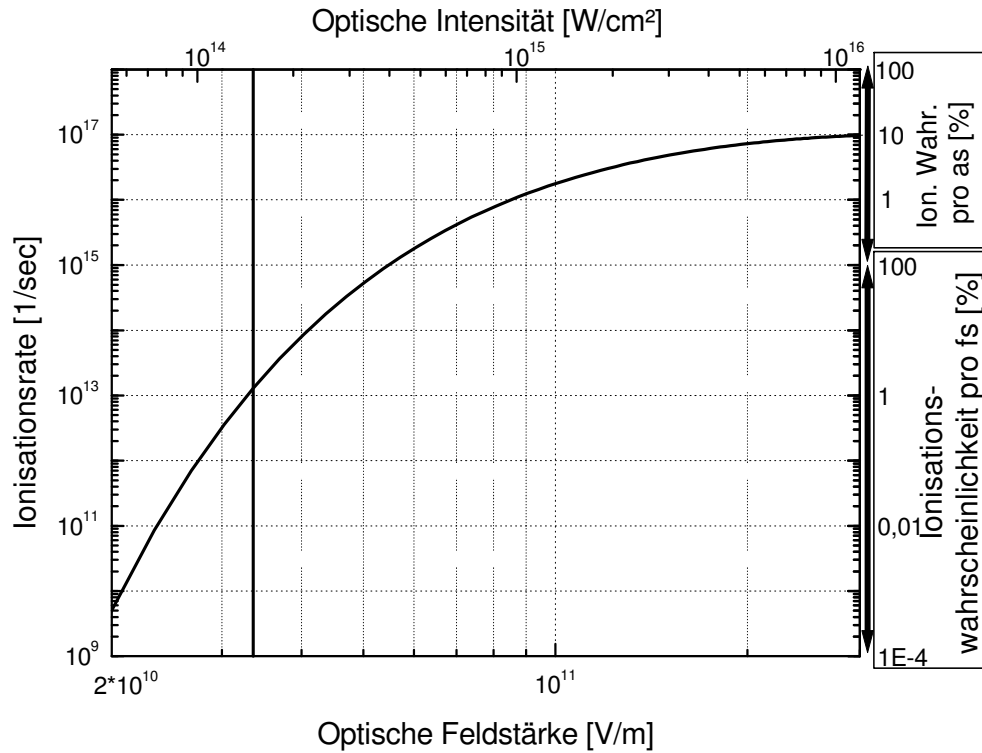


Abbildung 3.1.: Ionisationsrate basierend auf statischer Tunneltheorie.

$1,5 \cdot 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ festgelegt, bei dem ein signifikanter Ionisationsgrad (ca. 1% der Gesamtmoleküldichte) innerhalb einer fs erreicht wird. Die Ionisationsrate kann auch als eine Ionisationswahrscheinlichkeit für ein Molekül in einem bestimmten Zeitintervall interpretiert werden. Nimmt man als Zeitintervall beispielsweise eine fs an, so ergibt sich die Ionisationswahrscheinlichkeit für ein Molekül in diesem Zeitintervall aus der Ionisationsrate mal 1 fs. Das bedeutet, dass ein Molekül bei Feldstärken oberhalb von $5,5 \cdot 10^{10} \text{ V/m}$ innerhalb einer fs sicher ionisiert wird. Bei dieser Betrachtungsweise könnten allerdings Ionisationswahrscheinlichkeiten größer als 100% auftreten, wenn das Zeitintervall zu groß gewählt wird, was physikalisch nicht sinnvoll ist. Deshalb muss beim Erreichen der Ionisationswahrscheinlichkeit von 100% das Zeitintervall verkleinert werden. Die Ionisationswahrscheinlichkeit ist in Abbildung 3.1 auf der rechten Achse dargestellt. Dabei bezieht sich das untere Zeitintervall auf eine femto-Sekunde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) und das obere Zeitintervall auf eine atto-Sekunde ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). Aus Abbildung 3.1 wird deutlich, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit innerhalb einer geringen Feldstärkenspanne ($3,3 - 5,5 \cdot 10^{10} \text{ V/m}$) über zwei Größenordnungen zunimmt. Dies verdeutlicht die extreme Nichtlinearität der Ionisationsrate als Funktion der elektrischen Feldstärke, welche für die Erzeugung der für die THz-Emission notwendigen Asymmetrie von entscheidender Bedeutung ist.

3.3. THz-Abstrahlung durch Polarisierung des Plasmas

Das Fernfeld $E_i(z, t)$ eines einzelnen mikroskopischen Dipols p_i im Plasma, das durch die räumliche Trennung des Elektrons von seinem Ionenrumpf zustande kommt, kann in großer Entfernung ($z \gg$ Elektron-Ion-Abstand) vereinfachend als die klassische Lösung der Maxwellgleichungen in Dipolnäherung [46]

$$\vec{E}_i(z, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2 z} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{p}_i(t) \quad (3.2)$$

betrachtet werden. Die abgestrahlte elektrische Feldstärke weist dabei die gleiche Polarisationsrichtung wie das mikroskopische Dipolmoment ihres Ursprungs auf. Die Gesamtfeldstärke des Fernfeldes ergibt sich formal aus der Summe über alle einzelnen Dipolmomente i , unter Betrachtung kleiner Dipolvolumen⁵

$$\sum_i \vec{E}_i(z_i, t) \propto \frac{\partial^2}{\partial t^2} \sum_i \vec{p}_i(t). \quad (3.3)$$

Aufgrund der großen Teilchenzahldichte $\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ist es allerdings nicht praktikabel alle einzelnen Dipole aufzusummieren. Benutzt man genügend kleine Plasmavolumina dV und betrachtet nur gleiche Polarisationsrichtungen, kann die Summe der Dipolmomente durch ein Integral über das Plasmavolumen und der darin herrschenden Polarisation P ersetzt werden

$$E(z, t) \propto \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int P dV. \quad (3.4)$$

Ein vom Plasma erzeugtes elektrisches Feld in einer konstanten Entfernung z ist damit proportional zur zweiten Ableitung der Polarisation nach der Zeit.

⁵In Gleichung 3.3 wird durch die Annahme der kleinen Ausdehnung im Vergleich zum Betrachtungsort eine Phasenfehlanspassung der einzelnen emittierenden Dipole vernachlässigt.

3.3.1. THz-Polarisation aufgrund von ponderomotiven Kräften

Über diese Methode zur Erzeugung von THz-Strahlung in laserinduzierten Plasmen wurde erstmals 1993 von Hamster et al. [39, 40] berichtet. Die Polarisation im Plasma wird dabei durch die Beschleunigung der Elektronen aufgrund der ponderomotiven Kraft F_{pon} , die in Richtung des Gradienten der Laserpulsintensität I_{opt} wirkt, erzeugt. Die ponderomotive Kraft, die ein Laserfeld auf ein im Plasma frei bewegliches Elektron ausübt wird dabei durch Gleichung 3.5 quantifiziert.

$$\vec{F}_{pon} = -\vec{\nabla} \frac{e^2}{2\epsilon_0 c m \omega^2} I_{opt} \quad (3.5)$$

Da die Intensitätsverteilung in einem fokussierten Laserstrahl radialsymmetrisch zur Ausbreitungsrichtung ist und die Elektronen sich in Richtung des Gradienten der Intensität bewegen werden, hat dies radialsymmetrische Trajektorien der Elektronen zur Folge [47]. D.h. die Isotropie der Luft wird durch die Ionisation und anschließende Beschleunigung der Elektronen im Plasma in zylindersymmetrische Verteilung der Elektronen um die optische Achse gebrochen. Diese Symmetrie verbietet jedoch eine Emission von THz-Strahlung in Ausbreitungsrichtung der optischen Strahlung. Eine THz-Abstrahlung in einem trichterförmigen Kegel in Bezug auf die optische Achse [2] kann jedoch beobachtet werden.

3.3.2. THz-Polarisation mit einer DC-Vorspannung

Über diese Methode zur THz-Erzeugung mit einem zusätzlich am Plasma angelegten statischen elektrischen Feld wurde erstmals 2000 von Löffler et al. [48, 49] berichtet. Der Erzeugungsmechanismus lässt sich wie folgt beschreiben. Wird ein statisches elektrisches Feld in der Brennpunktregion, in der der Laserpuls das Plasma erzeugt, senkrecht zur Ausbreitung des Pulses angelegt, werden die erzeugten Elektronen zum Zeitpunkt der Ionisation im Kollektiv aufgrund der Coulombkraft in Richtung des statischen Feldes verschoben. Gleichung 3.6 ist die Bewegungsgleichung eines einzelnen Elektrons, welches identisch mit der Bewegung des Elektronenschwerpunktes ist, im statischen Feld E_{st} unter der Berücksichtigung der rückstellenden Kraft der Ionenrümpfe.

$$m\ddot{x}(t) = eE_{st} - \frac{\rho e^2}{\epsilon_0} x(t) \quad (3.6)$$

ρ ist hierbei die Plasmadichte. Löst man die Bewegungsgleichung für die Schwerpunktsbewegung der Elektronen mit den Anfangsbedingungen $x(0) = 0$ und $\dot{x}(0) = 0$ ergibt sich die Lösung 3.7

$$x(t) = \frac{E_{st}\epsilon_0}{\rho e} (\cos(\omega_{pl}t) + 1). \quad (3.7)$$

ω_{pl} bezeichnet die Plasmafrequenz. Das bedeutet der Schwerpunkt der Elektronen ist in Feldrichtung des statischen Feldes E_{st} um den Betrag

$$\Delta x = \frac{E_{st}\epsilon_0}{\rho e} \quad (3.8)$$

verschoben. Zusätzlich vollzieht das Elektronenensemble eine oszillatorische Bewegung um diesen Verschiebungspunkt mit der Plasmafrequenz ω_{pl} . Die Plasmafrequenz der Elektronen ist von der Plamadichte abhängig.

$$\omega_{pl} = \sqrt{\frac{\rho e^2}{\epsilon_0 m}} \quad (3.9)$$

Die Verschiebungsstrecke Δx entspricht dabei genau der Strecke, um die das Elektronenensemble verschoben werden muss, damit die entstehende Polarisation des Plasmas das angelegte statische Feld abschirmt. Geht man von einer Plamadichte von etwa 10 % der Moleküldichte bei Umgebungsdruck ($\rho = 2,7 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$) und von angelegten statischen Feldern in der Größenordnung von $E_{st} = 10 \text{ kV/cm}$ aus, so ergibt sich daraus eine Plasmafrequenz $\nu_{pl} = \omega_{pl}/(2\pi) = 15 \text{ THz}$ und eine Verschiebungsstrecke $\Delta x = 2 \cdot 10^{-11} \text{ m}$. Daraus folgt eine Polarisation P senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des optischen Pulses

$$P = \Delta x \rho e = E_{st}\epsilon_0, \quad (3.10)$$

unabhängig von der Plamadichte. Da die erzeugte THz-Strahlung proportional zu dem im Plasma erzeugten Dipolmoment p ist, welches sich aus der Integration

$$E_{THz} \propto p = \int P dV \quad (3.11)$$

$$E_{THz} \propto E_{st}\epsilon_0 V \quad (3.12)$$

über das Plasmavolumen V ergibt, ist also auch die THz-Amplitude unabhängig von der Plasmadichte. Damit kann, unter Vernachlässigung von Phasenfehlpassungseffekten, die von an verschiedenen Stellen im Plasma emittierte Dipolstrahlung als proportional zum Plasmavolumen V angenommen werden. Damit kann also diese THz-Erzeugungsmethode dazu herangezogen werden, eine Aussage, bei einer experimentellen Variation der Laserpulsenergie bei konstantem statischen Feld E_{st} , über die erzeugte THz-Amplitude E_{THz} im Vergleich zur relativen Veränderung des Plasmavolumens zu machen. Dieses setzt allerdings voraus, dass sich idealerweise alle THz-Anteile, die an verschiedenen Stellen im Plasma erzeugt werden, ohne jegliche Phasenverschiebung durch die Propagation vollständig konstruktiv überlagern.

3.3.3. THz-Polarisation durch optische AC-Vorspannung

Über diese Methode, welche zur Zeit die stärkste THz-Emission aus lasererzeugten Plasmen hervorruft, wurde zuerst 2000 von Cook et.al. [50, 51] berichtet und darauffolgend von Löffler et.al. und anderen Gruppen [52, 53, 54, 55, 56] weiterführenden Untersuchungen unterzogen.

Bei dieser Methode wird eine Asymmetrie in der elektrischen Feldverteilung der optischen Strahlung durch Überlagerung einer Fundamentalfrequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω erzeugt, wie sie in Abbildung 3.2 dargestellt ist. Mit Asymmetrie ist hier gemeint, dass die Spitzenfeldstärke in positive Feldrichtung im Vergleich zur negativen Feldrichtung deutlich erhöht ist.

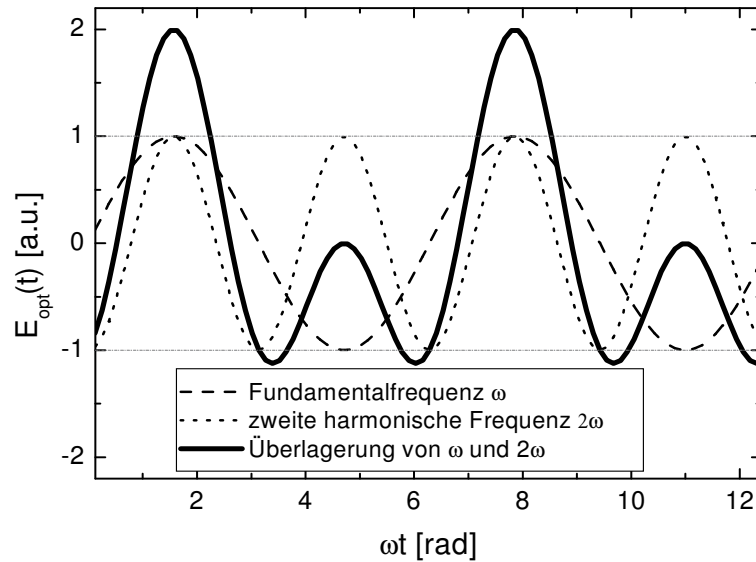


Abbildung 3.2.: Asymmetrische Feldverteilung in der Überlagerung einer Fundamentalfrequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω , für die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$.

Diese Asymmetrie in der Feldverteilung überträgt sich durch die starke nichtlineare Ab-

hängigkeit des Ionisationsprozesses von der optischen Feldstärke auf eine unterschiedliche Anzahl der Elektronen, die während positiver bzw. negativer Feldstärke erzeugt werden. Dies führt zu einer Brechung der Inversionssymmetrie des Luft-Plasmagemisches, wodurch eine THz-Emission in Vorwärtsrichtung ermöglicht wird. Eine detaillierte Beschreibung der Entstehung der Polarisierung im Plasma wird in Kapitel 5 vorgestellt.

3.4. Modellierung der Plasmadichte und des Plasmavolumens

Von zentraler Bedeutung für das Verständnis der THz-Emission aus lasererzeugten Plasmen ist die Entwicklung des Plasmavolumens als Funktion der Laserpulsenergie. Anders als bei der Beschreibung der THz-Erzeugung durch optische Gleichrichtung in einem nichtlinearen Kristall, bei der meist das Wechselwirkungsvolumen unabhängig von der Laserpulsenergie angenommen wird, muss für das Plasma, zusätzlich zu der von der optischen Intensität abhängigen Polarisierung, auch noch die veränderliche Größe des Plasmavolumens als Funktion der Intensität bzw. der Laserpulsenergie berücksichtigt werden. Da bei der in Abschnitt 3.3.2 vorgestellten THz-Erzeugungsmethode mit äußerem elektrischen Feld die Stärke der Polarisierung im Plasma direkt durch das statische Feld bestimmt ist, kann bei dieser Methode eine Proportionalität zwischen THz-Amplitude und Plasmavolumen angenommen werden. Diese Annahme erzeugt eine Möglichkeit, den Zusammenhang zwischen Laserpulsenergie und Plasmavolumen zu untersuchen, wie es in Abschnitt 3.6 getan wird.

In diesem Abschnitt soll jedoch zunächst das Plasmavolumen als Funktion der Laserpulsenergie modelliert werden, um dieses theoretisch bestimmte Plasmavolumen mit dem experimentell abgeschätzten Volumen aus Abschnitt 3.5.2 zu vergleichen.

Die Modellentwicklung setzt bei der Fokussierung des Laserpulses auf Basis einer gaußschen Strahlausbreitung an. Die Strahlausbreitung in z -Richtung ist dabei über die beiden Größen Strahlradius⁶ $r^*(z)$ und den Krümmungsradius der Wellenfronten $\Gamma(z)$ eindeutig bestimmt.

$$r^*(z + \Delta z) = r^*(z) \sqrt{(1 + \Delta z \Gamma(z))^2 + \frac{\lambda^2 (\Delta z)^2}{\pi^2 r^*(z)^4}} \quad (3.13)$$

$$\Gamma(z + \Delta z) = \frac{\Gamma(z) + \Delta z \Gamma(z)^2 + \frac{\lambda^2}{\pi^2 r^*(z)^4}}{(1 + \Delta z \Gamma(z))^2 + \frac{\lambda^2}{\pi^2 r^*(z)^4}} \quad (3.14)$$

λ ist die Wellenlänge der optischen Strahlung und Δz die räumliche Schrittweite der iterativen Beschreibung. Mit Hilfe dieser beiden Gleichungen kann die Strahlausbreitung ohne nichtlineare Propagationseffekte bestimmt werden. Die Intensität des Laserpulses wird dabei über eine sowohl zeitliche als auch räumliche Gaußverteilung

$$I_{opt}(r, z, t) = \frac{I_0}{\pi r^{*2}} \sin(\omega t)^2 \exp\left(-\frac{4 \ln 2 r^2}{r^{*2}}\right) \exp\left(-\frac{4 \ln 2 t^2}{\tau^2}\right) \quad (3.15)$$

⁶Der Strahlradius r^* ist hier als der Radius definiert, bei dem die Intensität $I(r, z, t)$ auf die Hälfte des Maximalwertes abgefallen ist.

modelliert, wobei I_0 die maximale optische Intensität auf der Strahlachse ist. Die Plasmadichte $\rho(r, z)$ kann dann numerisch über die Differentialgleichung

$$\dot{\rho}(r, z, t) = w_{tun}(\rho_{gas}^0 - \rho(r, z, t)), \quad (3.16)$$

unter Verwendung von Gleichung 3.1 in der Intensitätsform 3.17,

$$w_{tun} = 4\omega_a \left(\frac{U_{ion}^{N_2}}{U_{ion}^H} \right)^{\frac{5}{2}} \left(\frac{I_a}{I_{opt}} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{2}{3} \left(\frac{U_{ion}^{N_2}}{U_{ion}^H} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{I_a}{I_{opt}} \right)^{\frac{1}{2}} \right) \quad (3.17)$$

berechnet werden⁷. Unter Berücksichtigung der nichtlinearen Brechungsindexeffekte (Kerr-Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung) ändert sich der Brechungsindex auf der Strahlachse $n(0, z, t)$ um

$$\Delta n(0, z, t) = n_2 \cdot I_{opt}(0, z, t) - \frac{\rho(0, z, t)e^2}{2\omega^2\epsilon_0 m}, \quad (3.18)$$

wobei $n_2 = 5 \cdot 10^{-19} \text{cm}^2 \text{W}^{-1}$ als Literaturwert [58] für die Kerr-Selbstfokussierung verwendet wird. Die Änderung des Krümmungsradius der Wellenfronten nach Gleichung 3.14 wird damit, unter Berücksichtigung der nichtlinearen Propagationseffekte durch

$$\Gamma(z + \Delta z, t) = \Gamma(z, t) + 2 \frac{\Delta n(0, z, t) \Delta z}{r^{*2}}, \quad (3.19)$$

iterativ in die Bestimmung von $\rho(r, z)$ einbezogen. In Abbildung 3.3 ist die Plasmadichte $\rho(r, z)$ für die Brennweiten $f = 40, 80, 120$ und 160 mm und Laserpulse mit den Parametern Pulsenergie $J_{opt} = 500 \mu\text{J}$, Pulsdauer $\tau = 150$ fs und einer Wellenlänge von 800 nm dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, wie die maximale Plasmadichte mit schwächerer Fokussierung abnimmt. Die Plasmadichte ist farbig dargestellt, wobei das obere Ende der Farbskala durch die Moleküldichte $\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{-25} \text{m}^{-3}$ begrenzt ist. Auch die Form des Plasmas ist von der Brennweite abhängig. Mit zunehmender Brennweite schrumpft das Plasma in seiner radialen Ausdehnung r^* . Gleichzeitig nimmt die Ausdehnung in Ausbreitungsrichtung z des Laserpulses zu.

In Abbildung 3.4 ist das Plasmavolumen für die vier genannten Brennweiten dargestellt. Für die Bestimmung der Plasmavolumina wurde die Plasmagrenze auf eine Plasmadichte festgelegt, die 1 % der Moleküldichte ρ_{gas}^0 entspricht.

⁷ $I_a = 1/2\epsilon_0 c E_a^2$

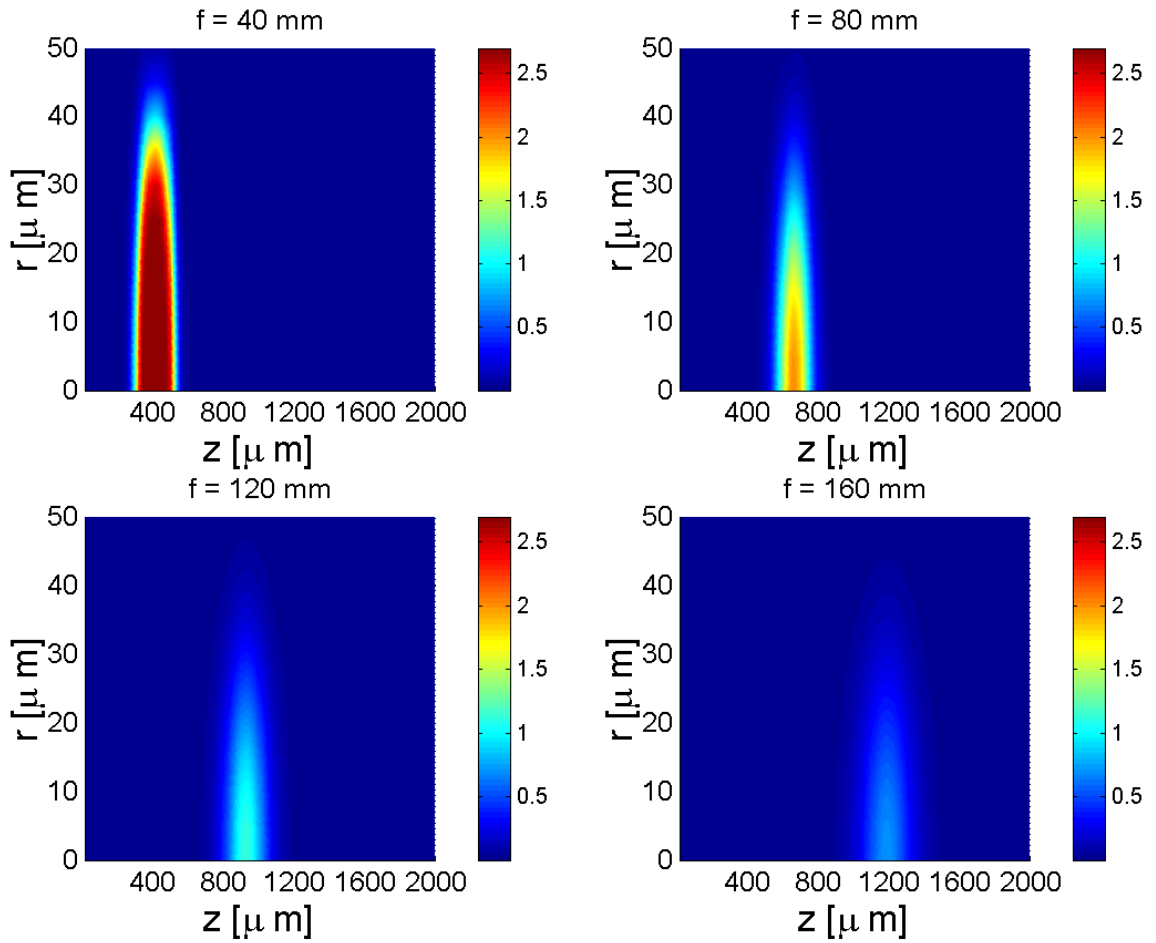


Abbildung 3.3.: Modellierte Plasmadichten (Größenordnung 10^{-25} m^{-3}) für fokussierte Laserpulse (mit einer Pulsenergie $J_{opt} = 500\mu\text{J}$, Pulsdauer $\tau = 150\text{ fs}$, Wellenlänge $\lambda = 800\text{ nm}$) für 4 verschiedene Brennweiten ($f = 40, 80, 120, 160\text{ mm}$).

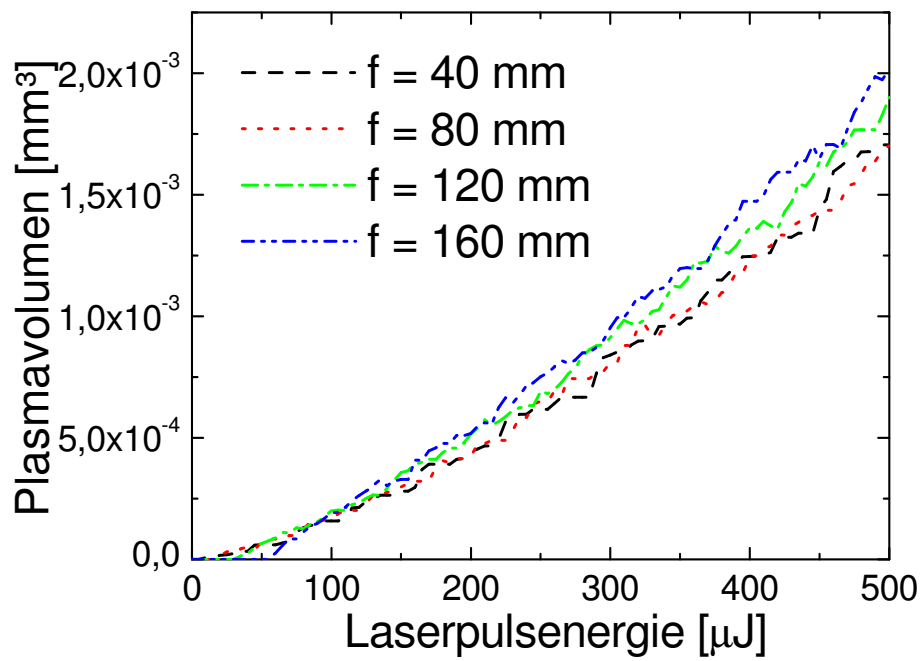


Abbildung 3.4.: Modelliertes Plasmavolumen in Abhängigkeit von der Laserpulseenergie für die Brennweiten $f = 40, 80, 120, 160$ mm.

3.5. Experimentelle Abschätzung des Plasmavolumens mit einer CCD-Kamera

3.5.1. Das verwendete Multi-Cycle-Laserpulssystem

Das für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente verwendete Multi-Cycle-Laserpulssystem ist ein kommerziell erhältliches CPA-Lasersystem von der Firma Clark [59]. Als Oszillator wird ein moden-gekoppelter Glasfaserdiodenlaser verwendet. Das Verstärkermedium ist ein Ti:Sa Kristall, der über einen frequenzverdoppelten Neodym:YAG Laser optisch gepumpt wird. Der Neodym:YAG Kristall wird seinerseits durch eine Gasentladungsblitzlampe gepumpt. Das Lasersystem liefert Pulse mit einer Pulsenergie von bis zu $800 \mu\text{J}$, bei einer Zentralwellenlänge von 775 nm (spektrale Bandbreite $\sim 7 \text{ nm}$). Das Lasersystem arbeitet mit einer Wiederholrate von 1 kHz . Der Strahldurchmesser des kollimierten Ausgangsstrahls beträgt 8 mm .

3.5.2. Visuelle Abschätzung des Plasmavolumens

Eine experimentelle Abschätzung des Plasmavolumens wird im folgenden über eine visuelle Betrachtung der fluoreszierenden Plasmaregion mit Hilfe einer CCD-Kamera mit Mikroskopobjektiv durchgeführt. Die verwendete CCD-Kamera hat eine Auflösung von 740×580 Pixel. Dies entspricht einer realen Bildgröße für das verwendete Objektiv von $408 \times 317 \mu\text{m}$.

Zwei Bilderserien, bei denen sukzessive die Pulsenergie für die Brennweiten $f = 40 \text{ mm}$ und $f = 80 \text{ mm}$ gesteigert wurde, sind in den Abbildungen 3.5 und 3.6 dargestellt. Die dargestellten Einzelbilder in Abbildung 3.5 setzen sich jeweils aus zwei und in Abbildung 3.6 aus jeweils drei separat aufgenommenen Bildern zusammen. Die Ausbreitungsrichtung der Laserpulse geht in den Bildern von links nach rechts.

Für die kürzere Brennweite ist ab etwa $30 \mu\text{J}$ eine signifikante Fluoreszenz zu erkennen. Für $f = 80 \text{ mm}$ setzt die Fluoreszenz erst bei einer Pulsenergie von etwa $125 \mu\text{J}$ ein. Dies entspricht erwartungsgemäß dem früheren Erreichen der Ionisationsschwelle für die kürzere Brennweite, da hier schon, aufgrund des kleineren Fokusradius, die Intensitätsschwelle für die Ionisation bei einer niedrigeren Pulsenergie erreicht wird. Aus Abbildung 3.10 kann aber über das Einsetzen der THz-Emission abgeschätzt werden, dass eine signifikante Ionisation für $f = 100 \text{ mm}$ bereits bei $40 \mu\text{J}$ vorhanden sein muss. Bei $f = 80 \text{ mm}$ sollte also eine Plasmabildung bereits unterhalb von $40 \mu\text{J}$ einsetzen. Dies bedeutet, dass der fluoreszierende Querschnitt der Fokusregion nicht exakt mit dem Querschnitt des zur THz-Emission beitragenden Plasmavolumens übereinstimmt. Durch die visuelle Betrachtung kann also nur eine Abschätzung der Mindestgröße des Plasmavolumens erfolgen. Zudem können qualitative Vergleiche der verschiedenen Plasmaformen, über Länge und Durchmesser der fluoreszierenden Bereiche für die verschiedenen Brennweiten durchgeführt werden.

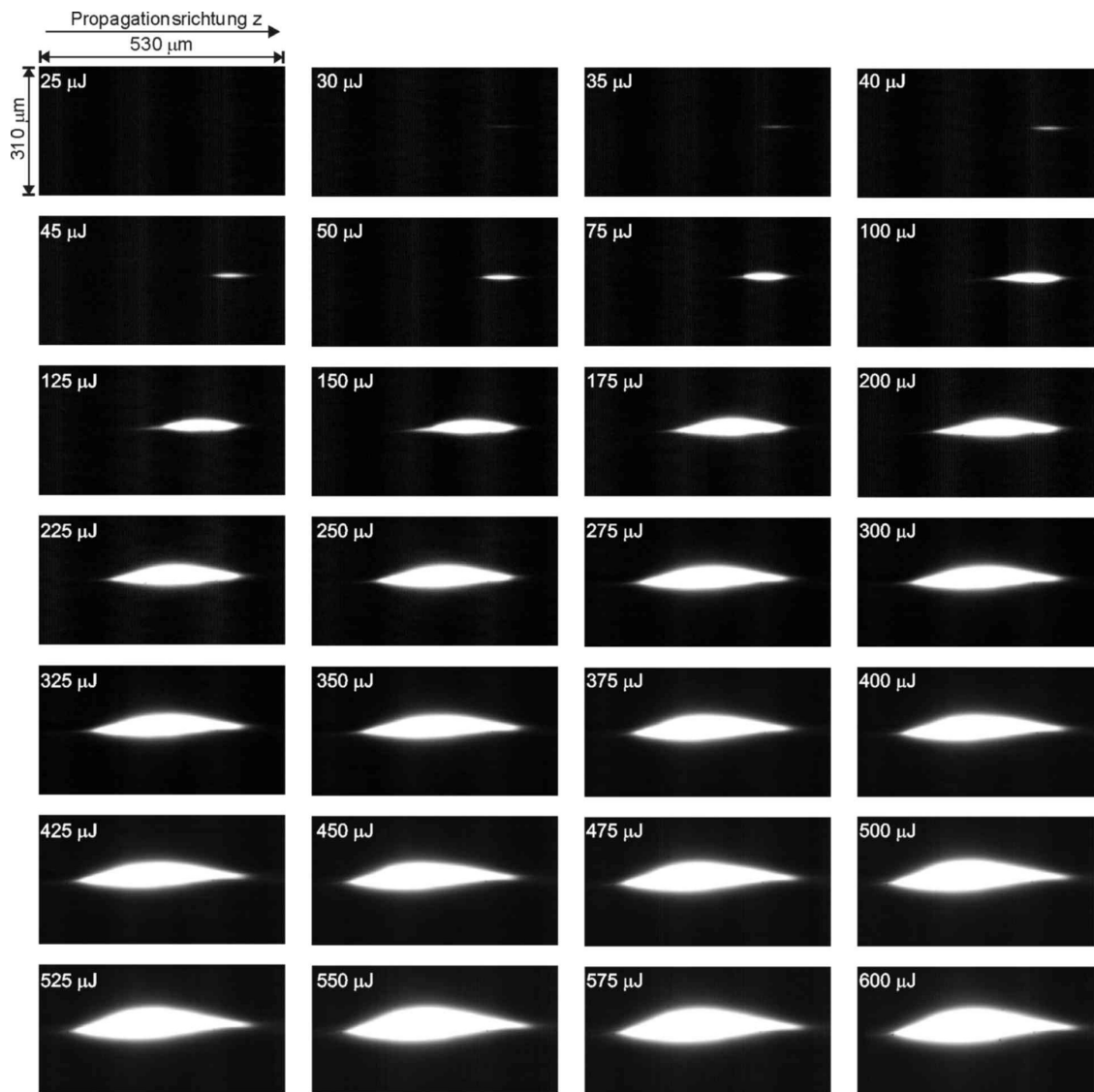


Abbildung 3.5.: Mikroskopaufnahmen der Plasmaregion in Abhängigkeit von der Laserpulsenergie für eine Brennweite von $f = 40$ mm.

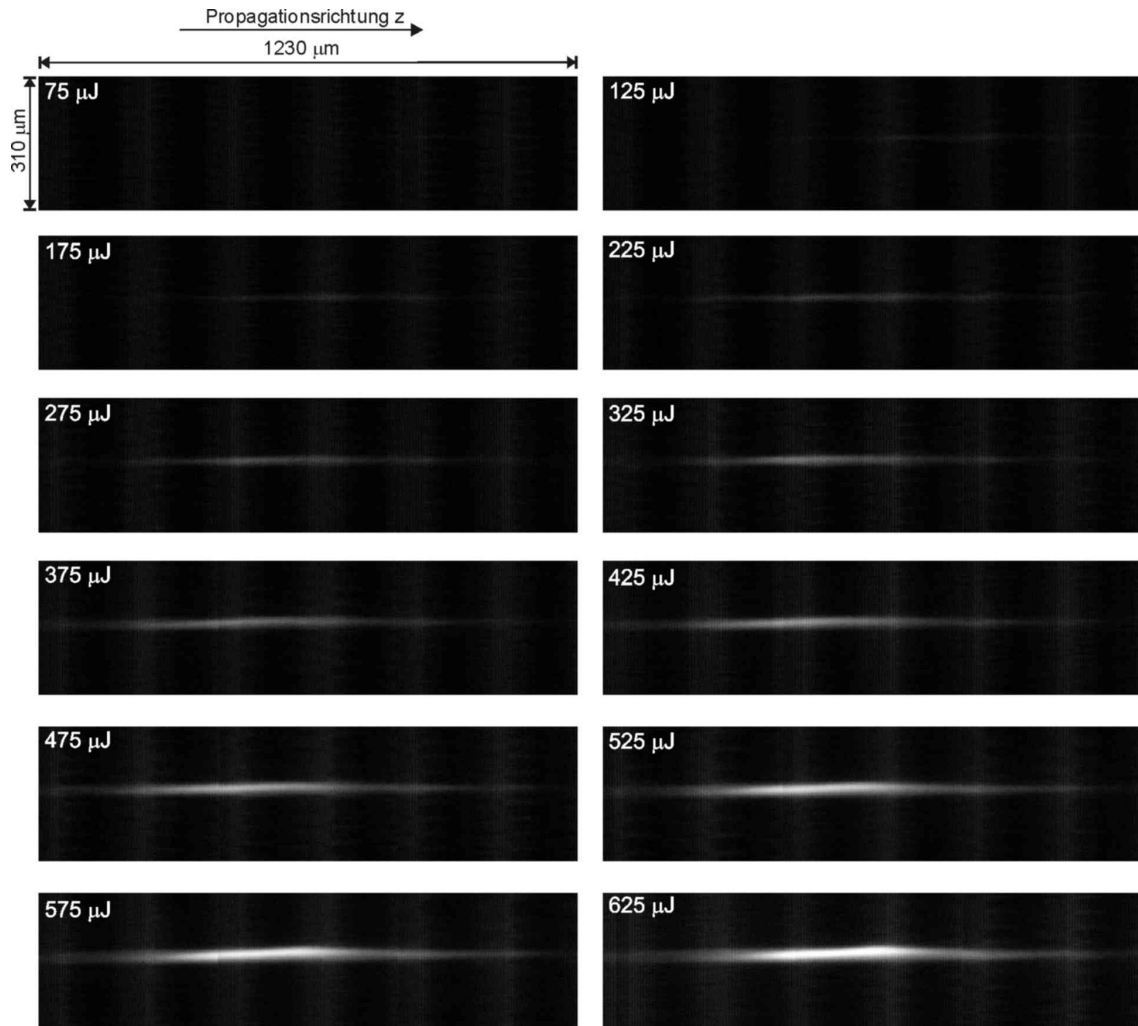


Abbildung 3.6.: Mikroskopaufnahmen der Plasmaregion in Abhängigkeit von der Laserpulsenergie für eine Brennweite von $f = 80$ mm.

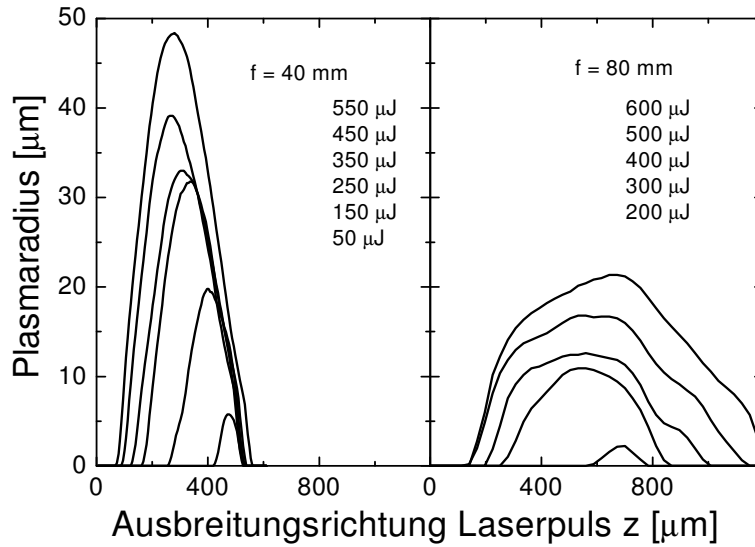


Abbildung 3.7.: Abschätzung der Plasmaradien aus den Mikroskopaufnahmen.

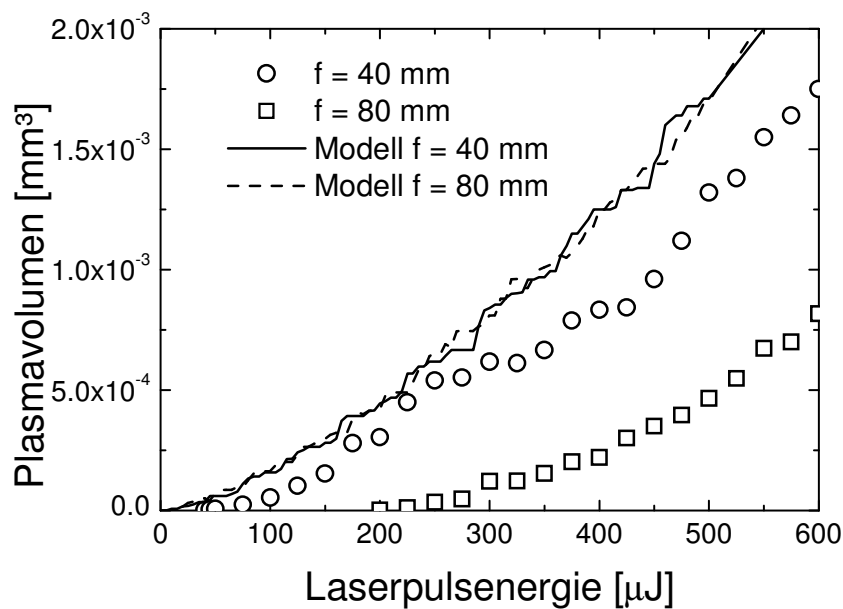


Abbildung 3.8.: Experimentell abgeschätzte Untergrenze für das Plasmavolumen in Abhängigkeit von der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 40$ mm und $f = 80$ mm. Als durchgezogene und gestrichelte Linien sind die Modellrechnungen für die Plasmavolumina aus Abschnitt 3.4 dargestellt.

Um eine Abschätzung der Mindestgröße des Plasmavolumens durchzuführen, wurde in den einzelnen Aufnahmen eine Intensitätsschwelle festgelegt, oberhalb welcher die betrachtete Region als ionisiert identifiziert wird. Danach wurden die Bilder in vertikale Querschnitte zerlegt, aus denen die Plasmadurchmesser bzw. Plasmaradien bestimmt wurden. Die so erhaltenen Werte, in Abhängigkeit von der Position auf der Strahlachse, sind in Abbildung 3.7 für beide Brennweiten dargestellt. Unter der Annahme, dass das Plasma rotationssymmetrisch zur optischen Achse ist, kann aus den Plasmaradien das Plasmavolumen durch numerische Integration bestimmt werden. Abbildung 3.8 zeigt die so abgeschätzten Werte für die Untergrenze der Plasmavolumina in Abhängigkeit der Brennweite und der Laserpulsenergie. Zusätzlich zu den experimentellen Werten sind die Berechnungen der Plasmavolumina aus Abschnitt 3.4 für die entsprechenden Brennweiten dargestellt. Der nicht glatte Verlauf der theoretisch berechneten Plasmavolumina scheint kein Artefakt der numerischen Berechnung zu sein, da eine Verfeinerung der numerischen Schrittweite den selben Verlauf ergibt. Zudem ist auch in dem experimentellen Verlauf eine Struktur zu erkennen, die teilweise auch in den theoretischen Werten vorhanden ist. Ein solcher nicht streng monotoner Verlauf ist sicher auf die stark von der Intensität abhängigen Effekte wie Plasmadefokussierung und Kerr-Selbstfokussierung zurückzuführen.

Zudem ist zu erkennen, dass die experimentell erhaltenen Plasmavolumina erwartungsgemäß kleiner sind als die theoretisch berechneten Plasmavolumina. Besonders deutlich wird dies für die Brennweite $f = 80$ mm, bei der die experimentellen Werte deutlich hinter den modellierten Werten zurück bleiben. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Lichtempfindlichkeit der CCD-Kamera nicht gut genug war, die Regionen darzustellen, in denen eine sehr geringe Plasmadichte von nur 1%⁸ vorhanden ist. Zusammenfassend kann man jedoch sagen, dass die Größenordnung der modellierten und der experimentell über die Betrachtung der fluoreszierenden Fokusregion bestimmten Plasmagrößen gut übereinstimmt.

⁸bezogen auf die Gesamtmoleküldichte ρ_{gas}^0 .

3.6. Variation der Pulsenergie und Einfluss der Brennweite auf die THz-Erzeugung

Eine Untersuchung der THz-Emissionsstärke in Abhängigkeit der Brennweite soll im folgenden Abschnitt diskutiert werden. Darauf basierend soll, anhand der THz-Emissionsmethode mit statischem Feld, dessen Signalamplitude nach Abschnitt 3.3.2 als Proportional zum Plasmavolumen angenommen wird, ein Vergleich zum Verlauf der Abhängigkeit der Plasmavolumendaten aus Abschnitt 3.4 und 3.5.2 durchgeführt werden. Zudem ist die Frage interessant, ob die THz-Emissionsstärke für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung, durch Optimierung der Brennweite, beispielsweise durch Vergrößerung des Plasmavolumens oder der Plasmadichte, gesteigert werden kann.

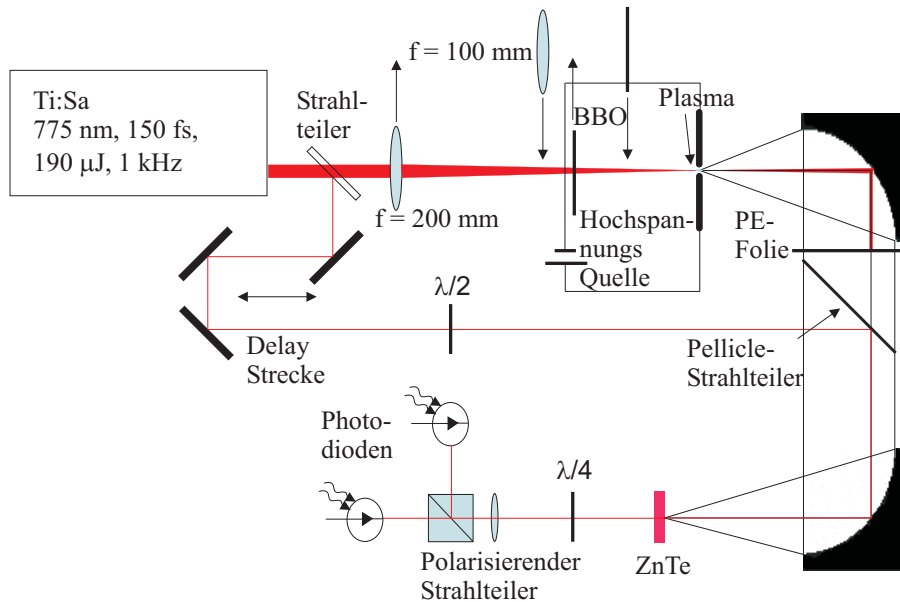


Abbildung 3.9.: Schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus zur Variation der Brennweite.

Hierzu wurde ein experimenteller Aufbau gewählt, wie er in Abbildung 3.9 dargestellt ist. Als fokussierende Linsen vor dem Plasma wurde einmal eine Linse mit $f = 100$ mm Brennweite und für die zweite Messreihe eine Linse mit $f = 200$ mm Brennweite verwendet. Die Entfernung d des BBO-Kristalls zum Plasma wurde für beide Messreihen jeweils so gewählt, dass zum einen die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ zwischen ω und 2ω optimal für die THz-Erzeugung ist (vergleiche Abschnitt 6.1) und zum anderen eine vergleichbare Flächenintensität auf dem BBO-Kristall und damit vergleichbares Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega}$ erhalten wird, welches die Stärke der Polarisation im Plasma beeinflusst (vergleiche Abbildung 5.5). Auch hier wurde wieder zusätzlich am Fokus ein statisches elektrisches Feld (± 30 kV/cm) angelegt, um die Größe der Plasmavolumina für beide Brennweiten in Abhängigkeit der Laserpulsenergie anhand der relativen THz-Emissionsstärke für diese Methode miteinander vergleichen zu können. Dazu wurde für jede Laserpulsenergie, die

THz-Amplitude einmal mit positiver (E_{THz}^+) und einmal mit negativer Polarität (E_{THz}^-) des statischen Feldes bestimmt. Damit können die THz-Signalkomponente durch die THz-Methode mit optischer AC-Vorspannung (E_{THz}^{AC}) und die THz-Signalkomponente, die durch das statische Feld erzeugt wird (E_{THz}^{DC}), wieder durch einfache Addition bzw. Subtraktion nach 3.20 und 3.21 separiert werden.

$$E_{THz}^{AC} = \frac{E_{THz}^+ + E_{THz}^-}{2} \quad (3.20)$$

$$E_{THz}^{DC} = \frac{E_{THz}^+ - E_{THz}^-}{2} \quad (3.21)$$

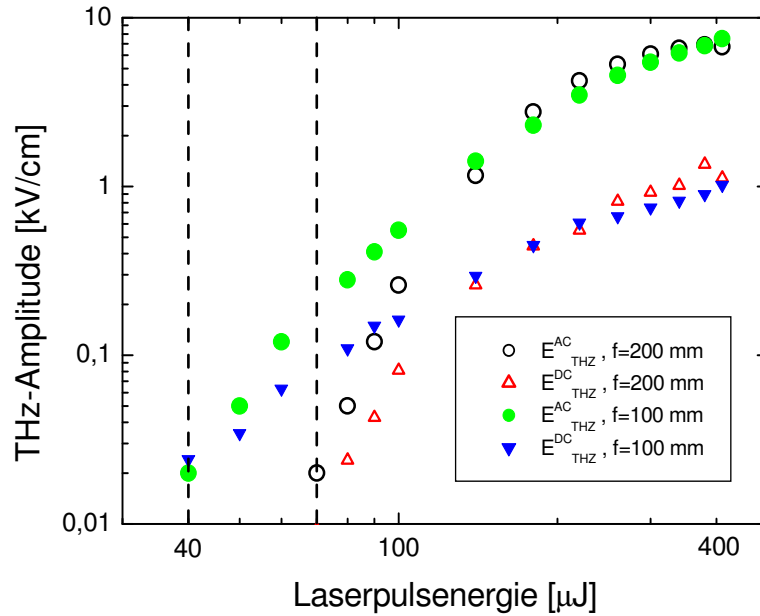


Abbildung 3.10.: Variation der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 100$ und $f = 200$ mm (Doppel-logarithmische Darstellung).

Die Ergebnisse der beiden Messreihen sind in Abbildung 3.10 dargestellt. Der Abstand des BBO-Kristalls zum Fokus betrug bei der Brennweite $f = 100$ mm $d = 6,4$ cm und bei $f = 200$ mm $d = 8,2$ cm. In Abbildung 3.10 ist deutlich ein Schwellwertverhalten für beide Brennweiten zu erkennen. Die THz-Amplitude erreicht für $f = 100$ mm erst bei einer Pulsenergie von $J_{opt} \simeq 40 \mu\text{J}$, sowohl für die statische Vorspannungsmethode als auch für die optische Vorspannungsmethode, eine messbare Signalstärke. Dieses Schwellwertverhalten kann darauf zurückgeführt werden, dass erst ab einer bestimmten Pulsenergie die Intensität im Brennpunkt ausreicht, um einen signifikanten Ionisationsgrad zu erreichen. Es soll im folgenden abgeschätzt werden, bei welcher Energie eine signifikante Ionisation im Brennpunkt zu erwarten ist. Der Zusammenhang zwischen Laserpulsenergie J_{opt} , Intensität I_{opt} der Strahlung im Brennpunkt, dem geometrischen Fokusradius r_0 und der

Laserpulsdauer τ kann näherungsweise durch

$$J_{opt} \simeq I_{opt} \pi r_0^2 \tau \quad (3.22)$$

beschrieben werden. Der geometrische Fokusradius kann über den Formalismus der gaußschen Strahlausbreitung durch die Brennweite f und den Ausgangsstrahlradius a berechnet werden, so dass sich ein direkter Zusammenhang zwischen der Intensität im Brennpunkt, der Pulsenergie und der fokussierenden Brennweite in der Form

$$J_{opt} \simeq I_{opt} \frac{f^2 \lambda}{a^2 \pi} \tau \quad (3.23)$$

herstellen lässt. Unter Berücksichtigung der bereits in Kapitel 3.2 abgeschätzten Intensität, bei der eine signifikante Ionisation zu erwarten ist von $I_{ion} = 1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, lässt sich die Pulsenergie für die eine signifikante Ionisation zu erwarten ist, in Abhängigkeit von der Brennweite, berechnen. Für die Brennweite $f = 100 \text{ mm}$ und $a = 0,004$ ergibt sich daraus ein Wert von $J_{opt} \simeq 30 \mu\text{J}$. Diese Abschätzung gibt damit also den beobachteten Wert recht gut wieder. Für $f = 200 \text{ mm}$ liegt die experimentell beobachtete Schwelle bei einer Pulsenergie von $J_{opt} \simeq 70 \mu\text{J}$. Damit bestätigt sich zumindest tendenziell die nach Gleichung 3.23 erwartete Verschiebung der Ionisationsschwelle mit zunehmender Brennweite. Dies ist auch intuitiv leicht einsichtig, da durch die Verwendung einer größeren Brennweite, durch einen größeren minimalen Strahlradius, die Intensität für signifikante Ionisation erst bei einer höheren Pulsenergie erreicht wird. Nach Gleichung 3.23 besteht allerdings eine quadratische Abhängigkeit der Pulsenergie von der Brennweite, so dass sich für die Brennweite $f = 200 \text{ mm}$ ein Schwellwert für die Pulsenergie $J_{opt} = 120 \mu\text{J}$ ergeben müsste. Gleiches ergibt sich, wenn man die nach Abschnitt 3.4 berechneten laserpulsenergieabhängigen Plasmavolumina mit der THz-Signalstärke der statischen Vorspannungsmethode vergleicht. Dies ist in Abbildung 3.11 dargestellt. Die experimentellen THz-Daten für die Brennweite $f = 100 \text{ mm}$ können durch die berechnete Entwicklung des Plasmavolumens mit der Laserpulsenergie, vor allem in Bereichen hoher Laserpulsenergie, gut wiedergegeben werden. In Bereichen niedriger Laserpulsenergie nimmt die Abweichung zwischen dem experimentell bestimmten Verlauf der THz-Amplitude mit der statischen Feldmethode und dem modellierten Verlauf des Plasmavolumens zu.

Eine mögliche Erklärung für diese Abweichung könnte eventuell darauf zurückzuführen sein, dass gerade im Bereich niedriger Intensitäten die Beschreibung der Ionisation durch die statische Tunnel-Theorie zunehmend unpräziser wird und eigentlich durch eine Beschreibung im Multiphotonen-Formalismus ersetzt werden muss.

Bei Pulsenergien oberhalb der Ionisationsschwelle steigen die THz-Amplituden bei $f = 200 \text{ mm}$ schneller an als bei $f = 100 \text{ mm}$. Da für beide Brennweiten die gleiche statische Feldstärke angelegt wurde, kann in erster Näherung davon ausgegangen werden, dass bei gleicher THz-Amplitude für die statische Feld-Methode, die Plasmavolumina gleich groß

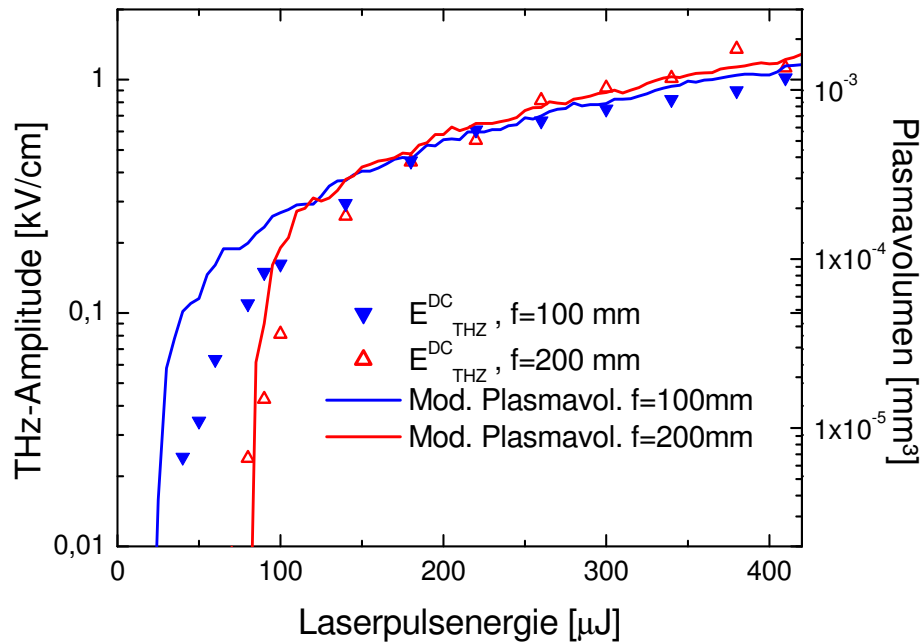


Abbildung 3.11.: Vergleich der THz-Signale der statischen Vorspannungsmethode mit den nach Abschnitt 3.4 berechneten Plasmavolumen.

sind. Damit lässt sich also abschätzen, dass unterhalb von etwa $140 \mu\text{J}$ das Plasmavolumen für die größere Brennweite kleiner ist und ab einer Pulsenergie von etwa $140 \mu\text{J}$ die Größe beider Plasmavolumina in etwa gleich sind, bzw. das Plasmavolumen für die größere Brennweite leicht größer wird. Dieses Verhalten wird auch durch die theoretische Beschreibung des Plasmavolumens wiedergegeben. Betrachtet man in Abbildung 3.12 die THz-Amplituden für die optische Vorspannungsmethode, so wird die THz-Amplitude für $f = 200 \text{ mm}$ bei einer Pulsenergie von $180 \mu\text{J}$ größer als die THz-Amplitude für $f = 100 \text{ mm}$. Da die Plasmagrößen für beide Brennweiten in etwa gleich groß sind, kann das leicht größere Signal für die größere Brennweite in der optischen Vorspannungsmethode auf eine stärkere Polarisation im Plasma zurückgeführt werden. Die Flächenintensität auf dem BBO-Kristall war für die große Brennweite leicht größer, da der BBO-Kristall in Relation zur Brennweite geringfügig näher am Plasma platziert war, so dass in dieser Messreihe die Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega}$ leicht höher waren. Wie in Abschnitt 5 diskutiert wird, führt ein höheres Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega}$ zu einer stärkeren Polarisation im Plasma (vergl. Abbildung 5.5). Im Pulsenergiebereich oberhalb von $200 \mu\text{J}$ nimmt dann die Krümmung der Steigung plötzlich für beide Brennweiten ab, wobei dieses für die größere Brennweite sogar stärker geschieht und als ein Sättigungsverhalten für die THz-Amplitude angesehen werden kann. Dieses Sättigungsverhalten kann auf mehrere Ursachen zurückgeführt werden. Wie in Abbildung 5.5 zu sehen ist, kann über eine Steigerung des Blau-Rot-Verhältnisses $R_{\omega 2\omega}$ die Stärke der Polarisation im Plasma nicht beliebig erhöht werden. Auch dabei ist ein Sättigungsverhalten zu beobachten, welches seinen Ursprung darin hat, dass nur endlich viele zu ionisierende Moleküle zur Verfügung stehen. Da aber das Plasmavolumen weiterhin mit der Pulsenergie ansteigt, wie sich aus den Messungen mit

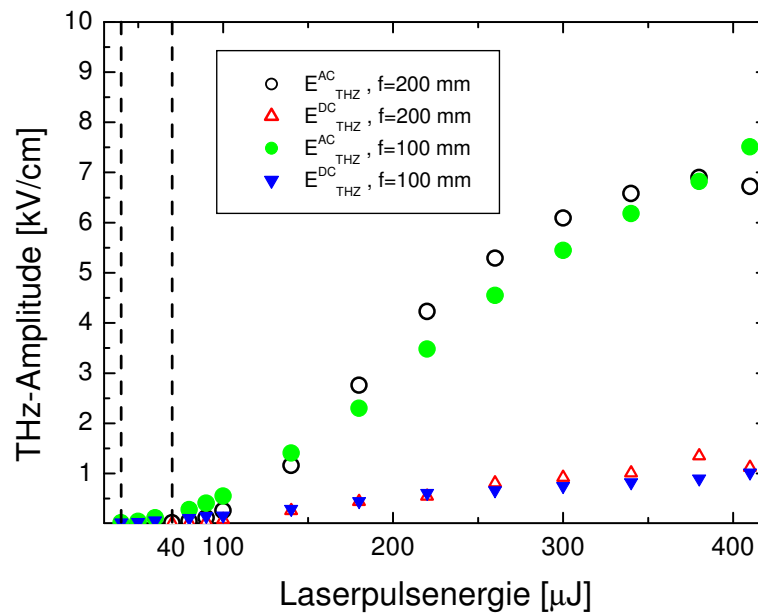


Abbildung 3.12.: Variation der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 100$ und $f = 200$ mm (lineare Darstellung).

statischem Feld schließen lässt, kann dies nicht der einzige Grund für das Sättigungsverhalten sein, dass für die große Brennweite beobachtet wird.

Denkbar ist auch das die longitudinale Ausbreitung des Plasmas, welche für die große Brennweite deutlich größer ist, eine Größe erreicht, bei der zum einen die THz-Anteile, die an verschiedenen z Positionen im Plasma erzeugt werden, aufgrund von Dispersion miteinander interferieren und zum anderen auch die relative Phase zwischen ω und 2ω aufgrund von Dispersion im Plasma eine Phasenverschiebung erfährt, was auch zu einer Verringerung der THz-Amplitude führt.

Eine genaue quantitative Berücksichtigung dieser Effekte und deren Auswirkung auf die Stärke der THz-Emission ist allerdings sehr komplex.

4. Phänomenologischer Ansatz zur Beschreibung der THz-Erzeugung: Vier-Wellen-Gleichrichtung (FWR)

Eine recht kompakte, allerdings auch recht unvollständige und wenig anschauliche Beschreibung der THz-Emission aus lasererzeugten Plasmen lässt sich mit Hilfe des Formalismus des Vier Wellen Mischens (FWM, engl. Four Wave Mixing) erhalten. Im folgenden soll kurz auf das Grundprinzip des Vier Wellen Mischens eingegangen werden, um die Gültigkeit dieses phänomenologischen Ansatzes, für die Beschreibung der in dieser Arbeit erhaltenen experimentellen Ergebnisse, zu untersuchen.

Allgemein lässt sich die Polarisation eines homogenen Mediums als Potenzreihenentwicklung eines elektrischen Feldes in der Form

$$P = \chi^{(1)} E_1 + \chi^{(2)} E_1 E_2 + \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 + \dots \quad (4.1)$$

darstellen. In isotropen Medien (Medien mit Inversionssymmetrie, wie das hier in Luft erzeugte Plasma), verschwinden alle geradzahigen Terme ($\chi^{(2n)} = 0$) dieser Reihenentwicklung. $\chi^{(1)}$ ist dabei die bekannte lineare elektrische Suszeptibilität des Mediums, die für geringe elektrische Feldstärken dominiert. $\chi^{(3)}$ ist damit der kleinste nicht-lineare Term in dieser Reihenentwicklung für isotrope Medien. Dieser Term ist für das sogenannte Vier Wellen Mischen verantwortlich. Dabei ist die Grundvorstellung die, dass drei elektrische Wechselfelder E_1 , E_2 , E_3 mit den Frequenzen ω_1 , ω_2 , ω_3 eine nicht-lineare Polarisation mit der Frequenz $\Omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ erzeugen, welches eine Abstrahlung eines Photons mit der Frequenz Ω zur Folge hat. In dem hier interessierenden Fall ist das abgestrahlte Photon ein THz-Photon (die THz-Frequenz ist klein gegenüber den optischen Frequenzen, d.h. $\Omega_{THz} \rightarrow 0$). Aus diesem Grund wird das Vier Wellen Mischen (FWM) auch als Vier Wellen Gleichrichtung (FWR, engl. Four Wave Rectification) bezeichnet und in der Form

$$P_{nl}(\Omega_{THz} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) = \chi^{(3)} E(\omega_1) E(\omega_2) E^*(\omega_3). \quad (4.2)$$

geschrieben.

4.1. THz-Erzeugung mit optischer AC-Vorspannung im FWR Bild

Für den im Kapitel 3.3.3 beschriebenen Fall, dass im Plasma eine Fundamentalfrequenz mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz überlagert wird, ergibt sich aus Gleichung 4.2

$$P_{nl}(\Omega_{THz} = \omega + \omega - 2\omega) = \chi^{(3)} E(\omega) E(\omega) E^*(2\omega). \quad (4.3)$$

Damit besteht im Rahmen dieses phänomenologischen Ansatzes der Vier Wellen Gleichrichtung eine Proportionalität der emittierten THz-Amplitude zu den Erregerfrequenzamplituden, unter Berücksichtigung von Gleichung 3.4.

$$E_{THz}(\Omega_{THz}) \propto \chi^{(3)} E(\omega) E(\omega) E^*(2\omega). \quad (4.4)$$

Diese Proportionalität gilt allerdings nur für ein nichtlineares Medium konstanter Interaktionsgröße, wie es in der Regel bei der Verwendung von nichtlinearen Kristallen der Fall ist. Wie sich in Abschnitt 3.5.2 gezeigt hat, ist in dem in dieser Arbeit beschriebenen Fall das Plasmavolumen abhängig von der Intensität bzw. der Laserpulsenergie der erzeugenden Laserstrahlung. Damit besteht also nicht nur eine Intensitätsabhängigkeit der nichtlinearen Polarisation, wie sie durch Gleichung 4.3 gegeben ist, sondern eine Intensitätsabhängigkeit des Plasmavolumens muss in jedem Fall mit berücksichtigt werden, so wie es in Gleichung 4.5 angedeutet ist.

$$E_{THz}(\Omega_{THz}) \propto \int P_{nl} dV(I_{opt}) \quad (4.5)$$

Diese Intensitätsabhängigkeit des Plasmavolumens muss bei einer Untersuchung der THz-Emission, in Abhängigkeit der Laserpulsenergie des plasmaerzeugenden Laserpulses, mit berücksichtigt werden. Gleichzeitig ist zu erwarten, dass Phasenfehlانpassungseffekte, von an verschiedenen Stellen im Plasma emittierten THz-Anteilen, mit zunehmendem Plasmavolumen stärker ins Gewicht fallen. Zudem werden auch Dispersionseffekte, hervorgerufen durch eine verlängerte Propagation der Laserpulse in einem vergrößerten Plasma, zu einer Phasenverschiebung der relativen Phase zwischen ω und 2ω ($\varphi_{\omega 2\omega}$ vergleiche Abschnitt 6.1) auftreten, welche die THz-Amplitude verringern werden (siehe dazu auch die in Kapitel 8.3 diskutierten Propagationseffekte). So ist es durchaus möglich, dass es Parameterbereiche gibt¹, in denen ein scheinbar einfacher Zusammenhang zwischen der THz-Feldstärke und den optischen Intensitäten der Form $E_{THz} \propto \sqrt{I_{2\omega}} I_{\omega}$ zu beobachten ist, so wie er nach Gleichung 4.3 gegeben ist. Dieser proportionale Zusammenhang wurde beispielsweise in Referenz [56] als Indiz dafür verwendet, dass die

¹Der entscheidende Parameter wird hier die Brennweite der fokussierenden Linse sein, da diese die maximal erreichbare Plasmadichte und damit die Kohärenzlänge der zwei unterschiedlichen im Plasma propagierenden Frequenzen und die Plasmaform in Abhängigkeit der Laserpulsenergie bestimmt.

THz-Erzeugung mit der optischen AC-Vorspannungsmethode durch den Prozess dritter Ordnung (FWR) dominiert wird. Da hier die veränderliche Größe des Plasmavolumens mit den Erregerfrequenzamplituden vernachlässigt wurde, kann diese scheinbar vorhandene Proportionalität $E_{THz} \propto \sqrt{I_{2\omega}} I_{\omega}$ keineswegs dazu verwendet werden Rückschlüsse auf die Ordnung der Nichtlinearität dieses Effektes zu schließen. Zudem wurden in den in der hier vorliegenden Arbeit durchgeführten Laserpulsenergievariationen (Abschnitt 3.6) unterschiedliche Abhängigkeiten der emittierten THz-Strahlung von den Erregerfrequenzamplituden für verschiedene Brennweiten gefunden, welches ein weiteres Indiz für den Einfluss von Nichtlinearitäten höherer Ordnung ist.

Zusammenfassend kann man sagen, dass es, aus Gründen der beschriebenen Phasenfehlanpassungs- und Dispersionseffekte und der laserpulsenergieabhängigen Plasmagröße, im Einzelnen sehr schwierig sein wird eine genaue Abhängigkeit der THz-Amplitude von der Intensität der optischen Strahlung für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung vorauszusagen, da eine genaue Quantifizierung der erwähnten Effekte im Detail sehr kompliziert ist. Der Beweis, dass es sich also bei der Erzeugung der THz-Strahlung im Plasma um FWR handelt, so wie es beispielsweise in Referenz [57] als selbstverständlich angenommen wird, ist keineswegs erbracht!

4.2. THz-Erzeugung mit Few-Cycle-Pulsen betrachtet im FWR Bild

In analoger Weise wie in Abschnitt 4.1 kann zunächst die THz-Erzeugung in mit Few-Cycle-Pulsen generierten Plasmen als Vier-Wellen Mischprozess bzw. Vier-Wellen Gleichrichtung betrachtet werden. Dabei haben Few-Cycle-Laserpulse, aufgrund ihrer extrem kurzen Pulsdauer, eine große spektrale Bandbreite. Damit können bereits ohne zusätzliche Frequenzverdopplung Fundamentalfrequenzen und dazugehörige zweite harmonische Frequenzen in Few-Cycle-Laserpulsen enthalten. D.h. die spektrale Bandbreite überspannt mehr als eine Oktave². Betrachtet man nochmals die Beziehung 4.2 können, im Falle von Few-Cycle-Pulsen, nicht nur diese die Bedingung der Gleichrichtung ($\Omega_{THz} \approx 0 \approx \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$) erfüllen, sondern prinzipiell eine Vielzahl beliebiger Kombinationen dreier Frequenzen, die im Spektrum des Few-Cycle-Pulses beinhaltet sind und in der Summe eine THz-Frequenz ergeben. Dies ist in Abbildung 4.1 veranschaulicht.

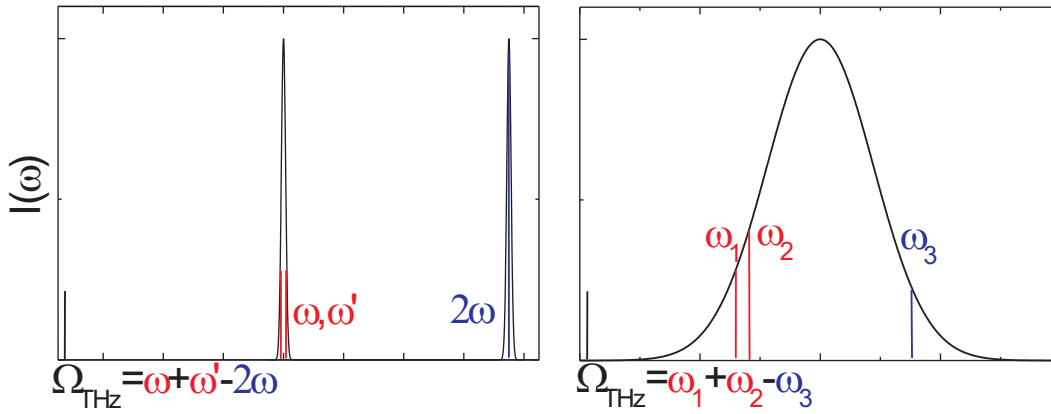


Abbildung 4.1.: Veranschaulichender Vergleich der Vier-Wellen-Mischbeschreibung, links für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung und rechts für die Verwendung eines Few-Cycle-Laserpulses zur Plasmaerzeugung.

Ein weiterer wichtiger Unterschied zu Abschnitt 4.1 ist, dass die einzelnen Frequenzen hier nicht teilweise unterschiedliche Phasenterme, die aufgrund des Erzeugungsprozesses der zweiten harmonischen in einem nichtlinearen Kristall auftreten, beinhalten, sondern dass alle Frequenzen, im Falle der Few-Cycle-Pulse, die gleiche CE-Phase besitzen, da sie dem selben Laserpuls entstammen. Damit überträgt sich die CE-Phaseninformation direkt auf die erzeugte THz-Amplitude in der Form

$$P_{nl}(\Omega_{THz} = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3) \propto E(\omega_1)E(\omega_2)E^*(\omega_3) \cos(\varphi_{CE}). \quad (4.6)$$

²Für Laserpulse mit einer Pulsdauer von 10 fs befinden sich die fundamentalen und zweiten harmonischen Frequenzen in den äußersten Ausläufern des Spektrums des Pulses, was bedeutet, dass diese nur eine sehr geringe Intensität haben.

Nach der phänomenologischen Beschreibung ist also zu erwarten, dass die THz-Feldstärke von der CE-Phase entsprechend der Gleichung 4.6 abhängig ist.

Diese Gleichung suggeriert, dass der Absolutwert der CE-Phase in sehr direkter Weise aus der Messung der THz-Amplitude bestimmt werden kann. Wie in Abschnitt 4.1 bereits für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung erwähnt wurde, ist es durchaus möglich, dass auch bei der THz-Erzeugung mit Few-Cycle-Laserpulsen nichtlineare Prozesse, höherer als dritter Ordnung, von Bedeutung sind. Die direkte Übertragung der CE-Phaseninformation von den Erregerfrequenzen auf die THz-Frequenz ist aber auch für nichtlineare Prozesse höherer Ordnung gültig.

Wie sich aus den mikroskopischen Betrachtungen in Kapitel 5 ergeben wird, bestätigt sich die cosinus-artige Abhängigkeit, allerdings mit einer zusätzlichen konstanten Phasenverschiebung, die aus der phänomenologischen Beschreibung nicht ohne weiteres hervorgeht. Diese Phasenverschiebung stellt eine weitere Rechtfertigung der Notwendigkeit einer mikroskopischen Betrachtung dar, da gerade in Hinsicht auf eine Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase (siehe Kapitel 8) dies von besonderer Bedeutung ist.

4.3. Diskussion der Gültigkeit der FWR Beschreibung für die THz-Erzeugung in Laserplasmen

Vier Wellen Mischen bzw. die Vier Wellen Gleichrichtung ist zunächst einmal nur ein formaler Ansatz eine signifikante, nichtlineare Respons dritter Ordnung eines Mediums, erzeugt durch von außen auf das Medium einwirkende elektrische Felder, zu quantifizieren. Dabei kann der Ursprung der Nichtlinearität in einer Polarisierung der Atome, Moleküle oder auch Ionen liegen. Auch eine Polarisierung des Plasmas, unter Berücksichtigung der relativen Lage der Elektronen zu den Ionenrümpfen, wie sie im Rahmen dieser Arbeit als dominanter Ursprung der Polarisierung und damit der THz-Emission behandelt wird, steht zunächst nicht grundsätzlich im Widerspruch mit einer Reihenentwicklung der nichtlinearen Respons eines Mediums. Der Prozess des Vier Wellen Mischens ist aber dabei einzig und allein auf den Beitrag dritter Ordnung dieser Reihenentwicklung beschränkt und kann damit nur die Wechselwirkung von vier Photonen mit der Materie erklären. Da dieser Term dritter Ordnung der erste erlaubte nichtlineare Term in der Reihenentwicklung für isotrope Medien ist, ist es auch zunächst naheliegend anzunehmen, dass dieser Term gegenüber Termen höherer Ordnung dominant sein wird, da in der Regel diese mit steigender Ordnung unwahrscheinlicher werden. Dieses wiederum beruht auf der Tatsache, dass bei der Modellierung von Nichtlinearitäten in kristallinen Festkörpern eine Veränderung des Gitterpotentials aufgrund der Strahlung auf Basis von Störungstheorie, d.h. kleiner Störungen des Gitterpotentials, behandelt werden kann. Die Ionisation von Atomen- und Molekülen in dem hier verwendeten Intensitätsbereich hingegen kann nicht mehr als kleine Störung eines Bindungspotentials betrachtet werden, was sich auch schon in der Tatsache verdeutlicht, dass die Beschreibung der Ionisation im Multi-Photonen-Bild, welches auch auf Störungstheorie beruht, die beobachteten Ionisationsraten nicht mehr erklären kann. Bereits dies deutet daraufhin, dass Prozesse höherer Ordnung auch für die THz-Erzeugung in lasererzeugten Plasmen signifikant, wenn nicht sogar dominant sein werden.

Grundsätzlich ist für die Verwendung des FWR Formalismus keine Beschreibung der Ionisation notwendig. In dieser Darstellung kann beispielsweise die nichtlineare elektrische Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ eine Eigenschaft eines bereits vorhandenen Plasmas sein, in welches dann ein Laserpuls eintritt. Dieses stellt einen fundamentalen Unterschied zu der im Rahmen dieser Arbeit gemachten Modellierung dar, bei der die Polarisierung entscheidend von den Zeitpunkten der Ionisation und der anschließenden Bewegung der Elektronen im Laserfeld abhängt.

Dies ist die Motivation für das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte mikroskopische Modell, welches in den folgenden Kapitel vorgestellt wird.

5. Mikroskopisches Modell zur THz-Erzeugung in Laserplasmen

5.1. Asymmetrische Ionisation der Luft

Wie bereits erwähnt ist für die THz-Erzeugung in Vorwärtsrichtung eine Brechung der Inversionssymmetrie des isotropen emittierenden Mediums notwendig. Diese Brechung der Symmetrie wird bei den THz-Erzeugungsmethoden mit optischer AC-Vorspannung und bei der im Rahmen dieser Arbeit neu vorgestellten Methode, unter Verwendung von Few-Cycle-Laserpulsen, durch die Laserstrahlung selbst verursacht. Dies lässt sich zunächst in einer vereinfachten Betrachtungsweise anschaulich dadurch verstehen, wenn man die Plasmadichten, die während positiver und negativer elektrischer Feldstärke des ionisierenden Pulses entstehen, betrachtet, da diese unterschiedliche Beiträge zur Polarisation im Plasma liefern. Hierzu können die Plasmadichte ρ^+ , die während positiver Feldstärken erzeugt wird, und die Plasmadichte ρ^- , die während negativer Feldstärken erzeugt wird, über die folgenden gekoppelten Differentialgleichungen

$$\frac{d}{dt}\rho^+(t) = \begin{cases} w_{tun}(E_{opt}(t)) \cdot (\rho_{gas}^0 - \rho^+(t) - \rho^-(t)), & \text{für } E_{opt}(t) \geq 0 \\ 0, & \text{für } E_{opt}(t) < 0, \end{cases} \quad (5.1)$$

$$\frac{d}{dt}\rho^-(t) = \begin{cases} w_{tun}(E_{opt}(t)) \cdot (\rho_{gas}^0 - \rho^+(t) - \rho^-(t)), & \text{für } E_{opt}(t) < 0 \\ 0, & \text{für } E_{opt}(t) \geq 0. \end{cases} \quad (5.2)$$

berechnet werden. Eine Asymmetrie, im Verhältnis der Plasmadichten ρ^+ zu ρ^- , resultiert in einem makroskopischen Dipolmoment senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des optischen Pulses, unter der Annahme, dass alle Elektronen im Mittel eine Verschiebung in Feldrichtung, aufgrund der Beschleunigung im Laserfeld, erfahren. Unter diesen Voraussetzungen ist eine direkte Proportionalität nach

$$E_{THz} \propto R_\rho \quad (5.3)$$

der THz-Amplitude zur Asymmetrie in der Plasmadichte zu erwarten, wobei R_ρ über

$$R_\rho = \frac{\rho^+ - \rho^-}{\rho^+ + \rho^-} \quad (5.4)$$

definiert ist.

5.1.1. Asymmetrische Ionisation mit der AC-Vorspannungsmethode

Der Ursprung der nichtlinearen Polarisation im Plasma, welches mit einem Laserpuls erzeugt wird, der aus einer Überlagerung einer Fundamentalfrequenz mit seiner zweiten harmonischen Frequenz besteht, soll im folgenden auf mikroskopischer Ebene beschrieben werden. Für die Überlagerung eines Laserpulses einer Fundamentalfrequenz ω mit seiner zweiten harmonischen Frequenz 2ω kann ein Ansatz nach Gleichung 5.5 gemacht werden

$$E_{opt}(t) = (E_{\omega}^0 \sin(\omega t) + E_{2\omega}^0 \sin(2\omega t - \varphi_{\omega 2\omega})) \exp\left(-2 \ln 2 \frac{t^2}{\tau^2}\right). \quad (5.5)$$

Da die Überlagerung von ω und 2ω meist direkt hinter einem Kristall zur Frequenzverdopplung experimentell [50, 51, 52, 53, 54, 55] verwirklicht wird, ist es sinnvoll, unter Berücksichtigung der Konversionseffizienz für die Frequenzverdopplung, nur Werte für das Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega} = E_{2\omega}^0/E_{\omega}^0$ deutlich kleiner als 1 zu verwenden. Im oberen Abschnitt von Abbildung 5.1 ist Gleichung 5.5 für ein realistisches Blau-Rot-Verhältnis $R = 0,15$ und eine Pulsdauer $\tau = 150$ fs für die beiden Phasen $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$ und $\varphi_{\omega 2\omega} = 0$ dargestellt. In Abbildung 5.1 ist deutlich zu erkennen, dass die Spitzenfeldstärke für $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$ in positive Feldrichtung, im Vergleich zur Spitzenfeldstärke in negative Feldrichtung, deutlich erhöht ist. Die symmetrische Einhüllendenfunktion ist jeweils als gestrichelte Linie angedeutet. Setzt man diese Laserpulse in Gleichung 3.1 ein, so erhält man den im mittleren Abschnitt von Abbildung 5.1 dargestellten zeitlichen Verlauf der Ionisationsrate. Mit den gekoppelten Differentialgleichungen für die Ionisation können damit die Plasmadichten ρ^+ und ρ^- berechnet werden. Die Lösung der gekoppelten Differentialgleichungen 5.1 und 5.2, für die beiden Laserpulse, ist im unteren Abschnitt von Abbildung 5.1 dargestellt.

Deutlich zu sehen ist wie sich die Verformung der elektrischen Feldstärke des Laserpulses für $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$ in eine höhere Plasmadichte ρ^+ überträgt. Für $\varphi_{\omega 2\omega} = 0$ hingegen sind die beiden Plasmadichten ρ^+ und ρ^- gleich groß. Vereinfachend soll nun zunächst angenommen werden, dass im Mittel alle Elektronen, die während positiver Feldstärke ionisiert werden, eine Verschiebung in Feldrichtung des Laserpulses erfahren¹. Damit hat die Asymmetrie in den Plasmadichten ρ^+ und ρ^- für $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$ eine Polarisation im Plasma zur Folge, die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Laserpulses orientiert ist. Nach Gleichung 3.11 führt diese Polarisation zu einem makroskopischen Dipolmoment und einer THz-Emission, die in ihrer Intensität von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ zwischen

¹Eine genauere Analyse, die die Bewegung der Elektronen im Laserfeld und eine Streuung der Elektronen an Molekülen berücksichtigt, wird in Abschnitt 5.4 eingeführt.

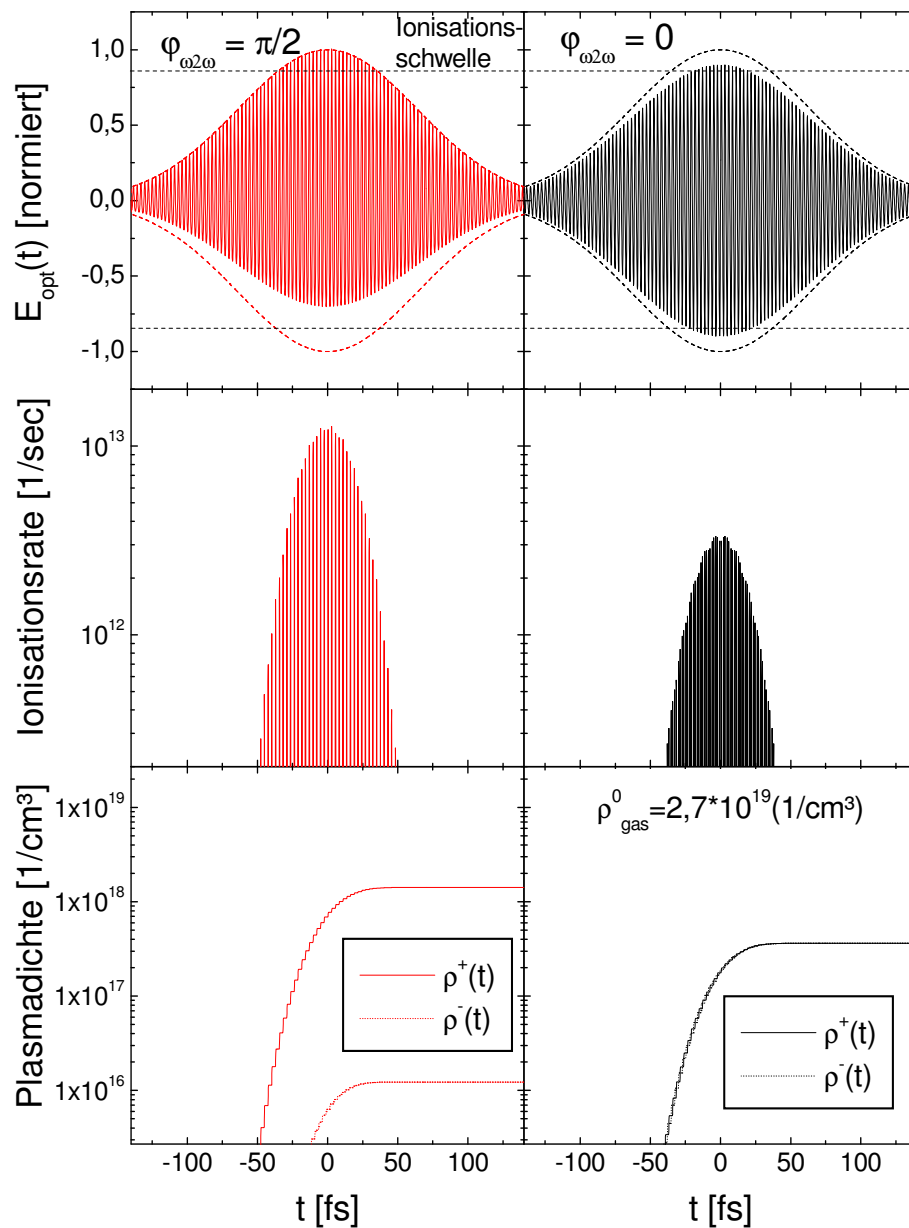


Abbildung 5.1.: Überlagerung eines Pulses einer Fundamentalfrequenz ω mit seiner zweiten harmonischen Frequenz 2ω für das Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega} = E_{2\omega}^0/E_{\omega}^0 = 0,15$ und die beiden Phasen $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$ und $\varphi_{\omega 2\omega} = 0$ (obere beiden Graphen). Zeitlicher Verlauf der Ionisationsrate für die beiden Pulse (mittlere Graphen) und darausfolgende Plasmadichten ρ^+ und ρ^- (untere Graphen).

der fundamentalen und der zweiten harmonischen Frequenz, dem Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega} = E_{2\omega}/E_{\omega}$ und dem Plasmavolumen abhängt. Das Plasmavolumen selbst ist wiederum hauptsächlich von den fokussierenden Parametern und der Laserpulsenergie abhängig. Die Stärke der Polarisation im Plasma ist nach Definition 5.4 proportional zur Asymmetrie R_{ρ} und damit, unter Berücksichtigung der vereinfachenden Annahmen aus Abschnitt 5.1, proportional zur emittierten THz-Amplitude. In Abbildung 5.2 ist R_{ρ} als Funktion der Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ für verschiedene Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega}$ dargestellt. Für niedrige Anteile an zweiter Harmonischer ($R_{\omega 2\omega} < 0,05$) gilt für die Phasenabhängigkeit in sehr guter Näherung $R_{\rho} \propto \sin(\varphi_{\omega 2\omega})$. Für größere Anteile an zweiter harmonischer verformt sich die scheinbare sinus-Abhängigkeit. Diese Verformung ist eine Folge der extrem nichtlinearen Ionisationsgleichung 3.1. Bei kleinen Blau-Rot-Verhältnissen $R_{\omega 2\omega}$ ist der Unterschied zwischen positiven Spitzenfeldstärken und negativen Spitzenfeldstärken kleiner als bei großen $R_{\omega 2\omega}$. Variiert man die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ bei kleinen $R_{\omega 2\omega}$, bleibt die Gesamtplasmadichte $\rho_{total} = \rho^+ + \rho^-$ nahezu konstant. Die sinus-Abhängigkeit von R_{ρ} von der relativen Phase stammt bei kleinen $R_{\omega 2\omega}$ hauptsächlich von der Differenz der Plasmadichten ($\rho^+ - \rho^-$). Für große Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega}$ variiert zusätzlich die Gesamtplasmadichte ρ_{total} . Dies ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Dass die Gesamtplasmadichte so stark von der relativen Phase bei großen Blau-Rot-Verhältnissen $R_{\omega 2\omega}$ abhängt, ist begründet in der vereinfachten eindimensionalen Modellierung. In der an dieser Stelle vorgestellten Modellierung sind keine Propagationseffekte des Laserpulses berücksichtigt. Ein Effekt, welcher sich nur unter Berücksichtigung der Laserpulspropagation bemerkbar macht ist der Effekt der Plasmadefokussierung. Als Folge der Ionisation durch den fokussierten Laserpuls, wirken die im Plasma erzeugten freien Ladungsträger defokussierend auf die Strahlausbreitung, so dass sowohl die maximale optische Feldstärke E_{opt}^{max} , als auch die maximale Plasmadichte ρ_{total}^{max} auf der Strahlachse oberhalb einer bestimmten Laserpulsenergie J_{opt} unabhängig von J_{opt} sind [2, 60].

Eine vermeintliche Verringerung der Spitzenfeldstärke durch eine Änderung der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ wird also die Gesamtplasmadichte ρ_{total} nur in einem sehr kleinen Bereich des Plasmas ändern, da aufgrund der Fokussierung des Laserpulses die Feldstärke weiter zunimmt, bis E_{opt}^{max} und die maximal Plasmadichte ρ_{total}^{max} , die zur Defokussierung führt, wieder erreicht wird. Das bedeutet, dass eine realistischere Abhängigkeit der Polarisation im Plasma von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ durch die Beziehung $R_{\rho}^* = (\rho^+ - \rho^-)/\rho_{gas}^0$ wiedergegeben wird. Diese ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Die Abhängigkeit der THz-Polarisation von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ ist also im wesentlichen eine Konsequenz aus der asymmetrischen Ionisation, die durch die Differenz $\rho^+ - \rho^-$ ausgedrückt werden kann.

In Abbildung 5.5 ist R_{ρ} als Funktion des Blau-Rot-Verhältnisses $R_{\omega 2\omega}$ für die optimale Phase zur THz-Erzeugung ($\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$) dargestellt. Hier ist ein Sättigungsverhalten zu erkennen. Mit zunehmendem $R_{\omega 2\omega}$ (bei optimaler relativer Phase) steigt die Asymmetrie in der Laserpulsfeldstärke

$$R_E = \frac{|\text{MAX}(E_{opt}(t))| - |\text{MIN}(E_{opt}(t))|}{|\text{MAX}(E_{opt}(t))| + |\text{MIN}(E_{opt}(t))|} \quad (5.6)$$

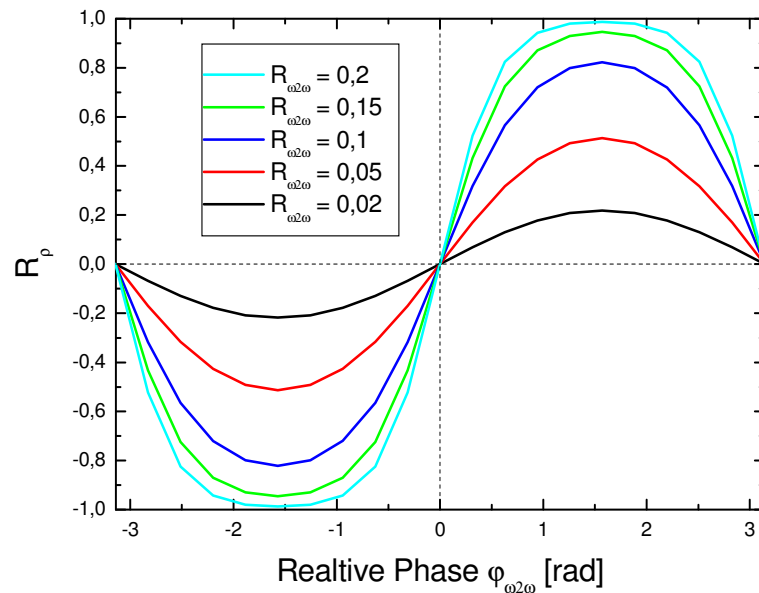


Abbildung 5.2.: Abhängigkeit der Asymmetrie in der Plasmadichte R_ρ als Funktion der relativen Phase zwischen fundamentaler und zweiter harmonischer Frequenz für verschiedene Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega}$.

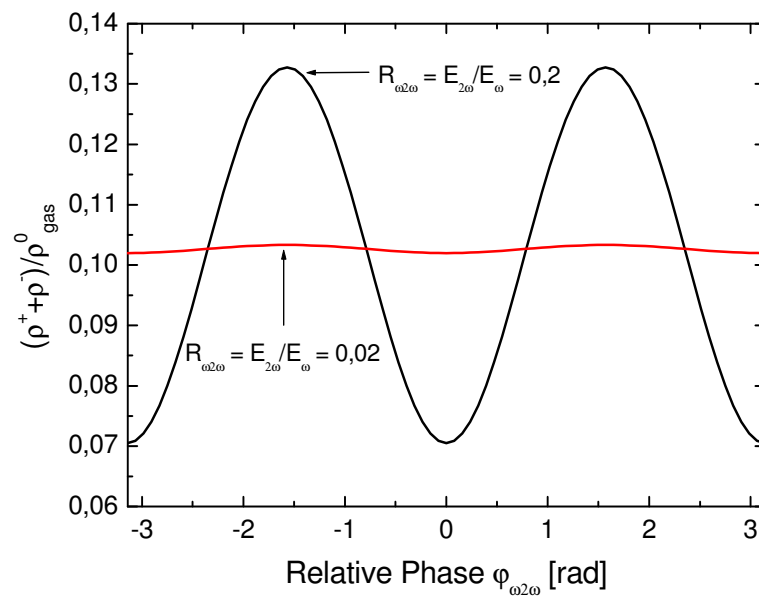


Abbildung 5.3.: Modellrechnungen für die Abhängigkeit der Gesamtplasmadichte ρ_{total} von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ für die Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega} = 0,2$ und $R_{\omega 2\omega} = 0,02$.

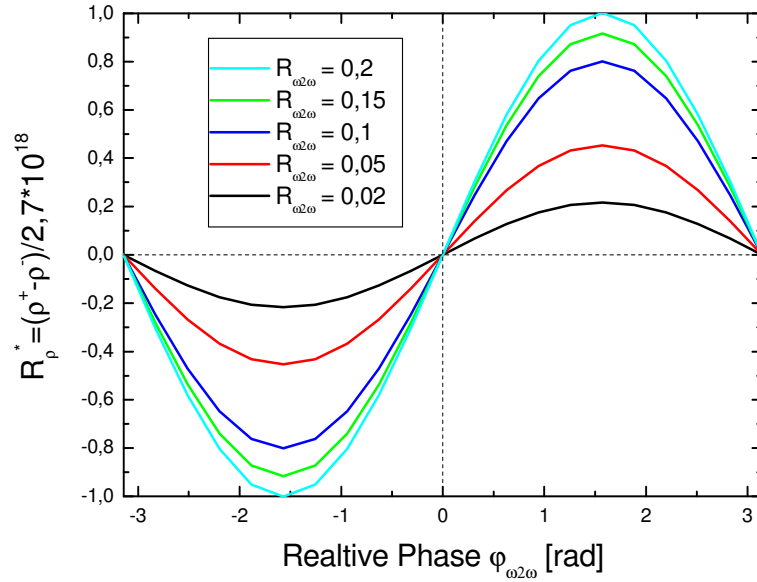


Abbildung 5.4.: Asymmetrie in der Plasmadichte R_p^* normiert auf 10 % der Moleküldichte, im Gegensatz zur Asymmetrie in der Plasmadichte R_p , welche auf die Gesamtplasmadichte normiert ist.

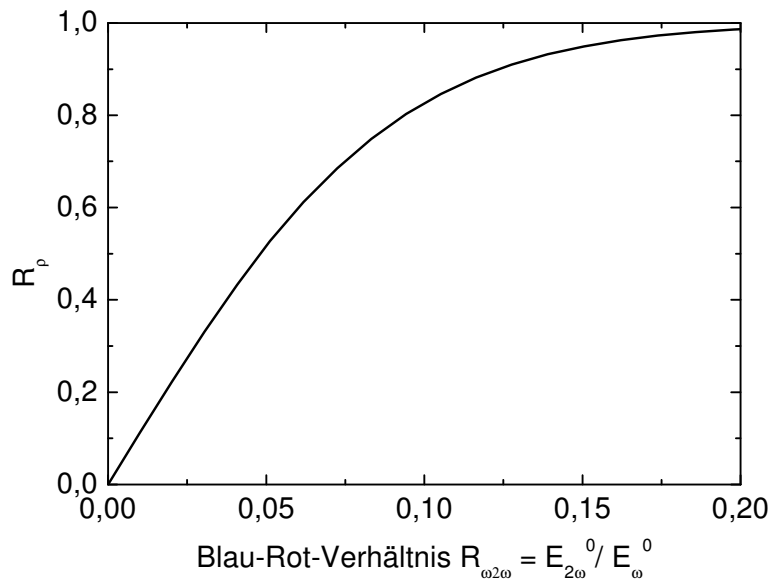


Abbildung 5.5.: Variation des Blau-Rot-Verhältnisses $R_{\omega 2\omega}$ bei $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$.

Dies führt auch zu einer Zunahme von R_ρ bis nahezu alle Elektronen während der gleichen Feldrichtung erzeugt werden. Dies entspricht einer maximalen Polarisierung des Plasmas, die durch weitere Zunahme von R_E nicht weiter gesteigert werden kann.

5.1.2. Asymmetrische Ionisation mit Few-Cycle-Laserpulsen

Im folgenden Abschnitt soll der Ursprung der für die THz-Emission notwendigen Symmetriebrechung im Plasma für den Fall, dass das Plasma mit Few-Cycle-Laserpulsen erzeugt wird, untersucht werden. Fokussiert man einen intensiven Few-Cycle-Laserpuls in Laborluft, so wird dieser genauso die Luft bei Erreichen einer bestimmten optischen Intensität ionisieren, wie es bereits für die Multi-Cycle-Pulse der Fall war. Zur theoretischen Beschreibung des Ionisationsprozesses kann wieder die aus Gleichung 3.1 bekannte Ionisationsrate der statischen Tunneltheorie herangezogen werden. Zur Vereinfachung soll der Brennpunkt hier zunächst als punktförmig ohne Ausdehnung betrachtet werden. Damit werden Propagationseffekte wie Kerr-Selbstfokussierung, Plasmadefokussierung und Veränderung der Dispersion durch die Plasmaerzeugung vernachlässigt. Eine Behandlung dieser Effekte wird in Abschnitt 8.3 für die Few-Cycle-Laserpulsmethode zur THz-Erzeugung diskutiert. An dieser Stelle ist es auch wieder sinnvoll, gemäß den Überlegungen aus Abschnitt 5.1, die Plasmadichten, die während positiver (ρ^+) und negativer Feldstärke (ρ^-) erzeugt werden, zu unterscheiden. Geht man wieder von einer Moleküldichte bei Atmosphärendruck von $\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ aus, so lässt sich der zeitliche Verlauf der beiden Plasmadichten $\rho^+(t)$ und $\rho^-(t)$ durch Lösen der gekoppelten Differentialgleichungen 5.1 und 5.2 bestimmen. Im oberen Teil von Abbildung 5.6 ist der zeitliche elektrische Feldverlauf eines 6 fs Pulses nach Gleichung 2.1 für die CE-Phasen 0 und $\pi/2$ dargestellt. Im mittleren Teil der Abbildung ist der entsprechende zeitliche Verlauf der Ionisationsrate für die beiden Laserpulse dargestellt und der untere Teil von Abbildung 5.6 zeigt schließlich den zeitlichen Verlauf der Plasmadichte $\rho^+(t)$ und $\rho^-(t)$, welcher sich als Lösung der Differentialgleichungen 5.1 und 5.2 ergibt.

Die maximale elektrische Feldstärke für beide Phasen wurde dabei auf einen Wert begrenzt, der knapp oberhalb des Schwellwertes für signifikante Ionisation liegt. Da es auch hier eigentlich keinen scharfen Grenzwert für eine signifikante Ionisation gibt, wurde die Schwelle (dargestellt als horizontale Linie in den beiden oberen Graphen von Abbildung 5.6) willkürlich als die Feldstärke definiert, bei der die Ionisationswahrscheinlichkeit pro fs genau 1% beträgt. Es ist sinnvoll die maximale Feldstärke zu begrenzen, da der Effekt der Plasmadefokussierung, wie bereits in Abschnitt 3.4 beschrieben, auch hier wieder im Falle der Few-Cycle-Pulse zu einem selbst regulierenden Mechanismus führt, der zum einen die maximale Plasmadichte und zum anderen die maximal erreichte optische Feldstärke limitiert.

Hierbei ist die maximale Plasmadichte in erster Linie von den fokussierenden Parametern, der Brennweite f und dem Eingangsstrahlradius a , abhängig. Damit kann davon ausgegangen werden, dass Few-Cycle-Pulse bei gleichen fokussierenden Parametern ähnliche maximale Plasmadichten erzeugen, wie Multi-Cycle-Pulse, wenn man zunächst vereinfachend annimmt, dass die Energie, die dem Laserpuls durch die Ionisation entzogen wird, klein gegenüber der Laserpulsenergie ist. Wie sich in Abschnitt 6.2 herausstellen wird, kann für Multi-Cycle-Pulse die maximal erreichte Plasmadichte experimentell auf etwa 10 % bis 20 % der Ausgangsmoleküldichte ($\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) abgeschätzt werden. Unter vergleichbaren fokussierenden Parametern ($f \simeq 0,076 \text{ m}$ und $a \simeq 0,004 \text{ m}$) ist auch bei der Verwendung von Few-Cycle-Laserpulsen zur Plasmaerzeugung von Plasma-

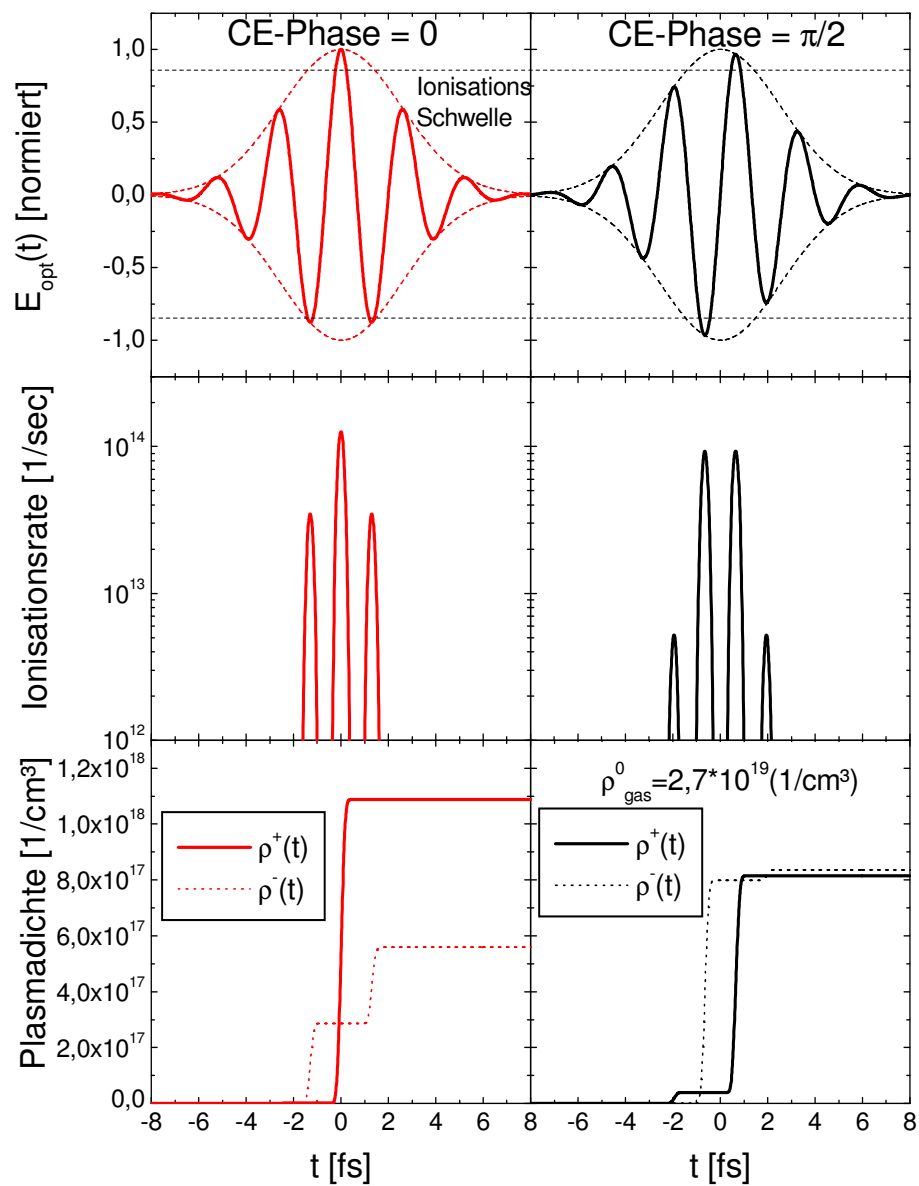


Abbildung 5.6.: Zeitlicher Verlauf der Laserfeldstärke und die daraus resultierenden zeitlichen Verläufe der Ionisationsraten und Plasmadichten.

dichten in dieser Größenordnung auszugehen. Deshalb wurde auch hier wieder für die in Abbildung 5.6 dargestellten Berechnungen die maximale Feldstärke E_{opt}^0 auf einen Wert begrenzt, bei dem die Gesamtplasmadichte ($\rho_{total} = \rho^+(t) + \rho^-(t)$) nach Durchlaufen des Laserpulses durch den Fokus etwa 10 % der Ausgangsmoleküldichte beträgt. Durch die Limitierung der Spitzenfeldstärke führen nur die drei bzw. vier intensivsten optischen Halbzyklen der Few-Cycle-Pulse zu einer signifikanten Ionisation (siehe Mittelteil Abbildung 5.6). Wie im unteren Teil von Abbildung 5.6 zu erkennen ist, ist für $\varphi_{CE} = 0$ nach durchlaufen des Pulses ρ^+ deutlich größer als ρ^- . Hingegen gilt für $\varphi_{CE} = \pi/2$, dass ρ^+ ungefähr gleich ρ^- ist. Der kleine Unterschied zwischen ρ^+ und ρ^- ist darauf zurückzuführen, dass trotz symmetrischer Feldverteilung für den gleichgroßen positiven Halbzyklus weniger nicht-ionisierte Moleküle zur Verfügung stehen als für den vorangegangenen negativen Halbzyklus der gleichen Spitzenfeldstärke. Wieder unter der vereinfachenden Annahme das alle Elektronen im Mittel eine Verschiebung in Feldrichtung zum Ionisationszeitpunkt erfahren, Analog zu Abschnitt 5.1.1, resultiert die in Abbildung 5.6 dargestellte Asymmetrie in einem makroskopischen Dipolmoment senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des optischen Pulses, welche als proportional zur erzeugten THz-Amplitude angenommen werden kann. Die nach Gleichung 5.4 definierte Asymmetrie in der Plasmadichte kann damit als Funktion der CE-Phasen für verschiedene Laserpulsdauern berechnet werden. Dies ist in Abbildung 5.7 dargestellt.

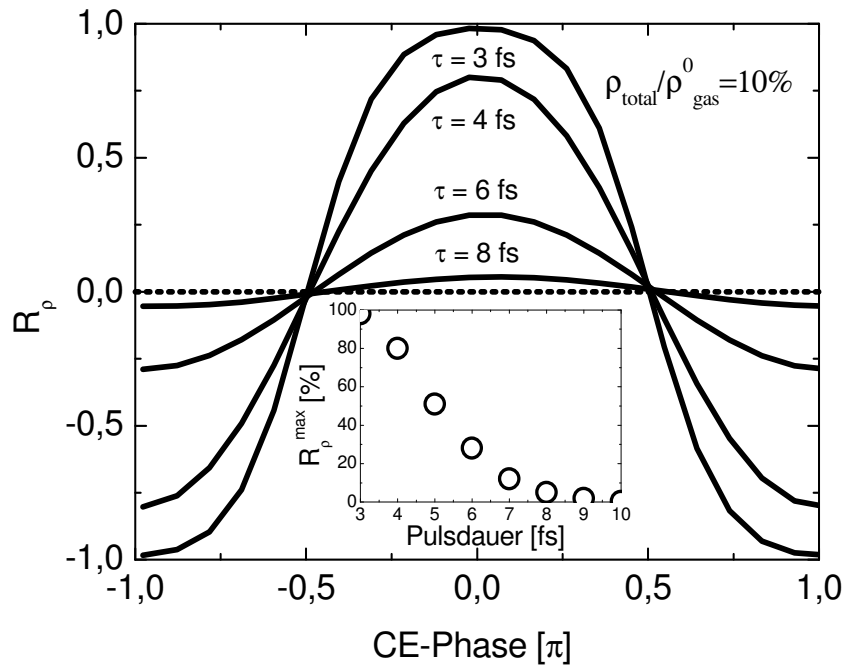


Abbildung 5.7.: Asymmetrie in der Plasmadichte R_ρ als Funktion der CE-Phase für verschiedene Laserpulsdauern. Kleine Darstellung: Abnahme des Kontrastes in R_ρ mit zunehmender Laserpulsdauer.

Hier spiegelt sich der bereits durch die phänomenologische FWR Beschreibung in Abschnitt 4.2 vorhergesagte funktionelle cosinus-artige Zusammenhang, zwischen der THz-

Amplitude und der CE-Phase, wieder. Auch die in diesem Abschnitt stark vereinfachte mikroskopische Beschreibung sagt damit die maximale THz-Amplitude für die CE-Phase $\varphi_{CE} = 0$ voraus.

5.2. Bewegung der Elektronen im Plasma in Abhängigkeit ihres Ionisationszeitpunktes

In den folgenden Abschnitten soll nun die im vorangegangenen Abschnitt gemachte vereinfachende Annahme, dass alle Elektronen nach ihrer Ionisation im Mittel eine Verschiebung in Feldrichtung aufgrund der Beschleunigung der Elektronen im Laserfeld erfahren etwas genauer untersucht werden. Dabei werden in diesem Abschnitt zunächst einmal die Trajektorien einzelner Elektronen in Abhängigkeit ihres Ionisationszeitpunktes für Few-Cycle-Laserpulse untersucht, da im Falle der Few-Cycle-Laserpulse die Elektronenbewegung in anschaulicher Weise in Bezug zur elektrischen Feldstärke des Laserpulses dargestellt werden kann. Analog gilt diese Betrachtungsweise auch für Multi-Cycle-Laserpulse. Auf dieser Betrachtung aufbauend wird dann, der kollektive Effekt aller Elektronenbewegungen auf die makroskopische Polarisation, unter Berücksichtigung der Streuung der Elektronen an Ionen und Molekülen, betrachtet.

Aufgrund der starken Nichtlinearität der Ionisationsrate und des selbstregulierenden Mechanismus der Plasmadefokussierung, werden Elektronen überwiegend in Bereichen maximaler Feldstärke erzeugt. Je kürzer der Puls ist, desto weniger seiner Zyklen liegen oberhalb der Schwelle, bei der eine signifikante Ionisation auftritt. Um die Entstehung eines Dipolmoments auf mikroskopischer Ebene zu verstehen, betrachten wir nun im folgenden den Bewegungsverlauf eines Elektrons im optischen Feld eines Few-Cycle-Laserpulses, in Abhängigkeit des genauen Ionisationszeitpunktes des Elektrons. Zur Vereinfachung sei zuerst eine Streuung der Elektronen an Molekülen oder Ionen vernachlässigt.

Die Bewegung des Elektrons im Laserfeld für den vorliegenden Fall kann klassisch behandelt werden, da die Anzahl der Photonen groß ist, die zur Beschleunigung des Elektrons beitragen, gleichbedeutend mit der Tatsache, dass der Photonenimpuls klein gegenüber dem Impuls des Elektrons ist. Die Bewegung des Elektrons kann damit vereinfacht über folgende Differentialgleichung bestimmt werden:

$$\ddot{x} = \frac{e}{m} E_{opt}(t). \quad (5.7)$$

In Abbildung 5.8 ist der elektrische Feldverlauf eines 8 fs Pulses dargestellt. Wir betrachten nun exemplarisch drei verschiedene Ionisationszeitpunkte. Auch hier soll der Fokus vereinfacht als punktförmig ohne Ausdehnung angenommen und die Elektronenbewegung soll nur in Polarisationsrichtung des optischen Pulses betrachtet werden.

Zuerst untersuchen wir den Fall, dass das Elektron genau im Maximum des elektrischen Feldes bei $t = 0$ mit den Anfangsbedingungen $x_0 = 0$ und $v_0 = 0$ erzeugt wird. In diesem Fall vollzieht das Elektron eine oszillatorische Bewegung (blaue Trajektorie in Abbildung 5.8) um einen Punkt, der in Erzeugungsfeldrichtung vom Entstehungsort verschoben ist. Für $t \rightarrow \infty$ nimmt die Verschiebung einen konstanten Wert $x_\infty = \text{const}$ an, da $v_\infty = 0$ ist, und damit wird ein Dipolmoment p_∞ in positive Feldrichtung erzeugt, dass sich aus dem Produkt der räumlichen Verschiebung mit der Elementarladung e ergibt.

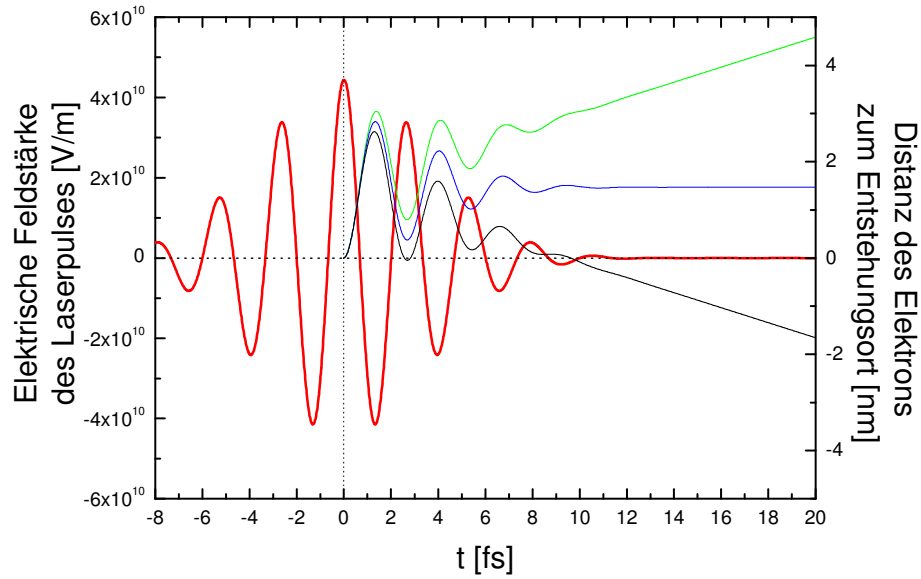


Abbildung 5.8.: Bewegung des Elektrons im Laserfeld eines Few-Cycle-Pulses in Abhängigkeit des Ionisationszeitpunktes.

$$p_{\infty} = x_{\infty}^0 \cdot e \quad (5.8)$$

Wird das Elektron nur 10 as vor Erreichen der maximalen Feldstärke des Laserpulses mit den gleichen Anfangsbedingungen erzeugt, also bei $t_0 = -10$ as, vollzieht das Elektron auch wieder eine oszillatorische Bewegung (grüne Trajektorie in Abbildung 5.8), diesmal allerdings nicht um einen festen Punkt. Zur oszillatorischen Bewegung bekommt das Elektron noch eine zusätzliche Geschwindigkeitskomponente, die es aufgrund der Beschleunigung zwischen $t = -10$ as und 0 erfährt. Hier wird auch wieder ein positives Dipolmoment erzeugt, welches aber, aufgrund dieser zusätzlichen Geschwindigkeitskomponente nach Durchlaufen des Laserpulses durch den Brennpunkt, linear mit der Zeit ansteigt. Für den Fall, dass das Elektron erst 10 as nach dem Erreichen der maximalen Feldstärke des Laserpulses erzeugt wird ($t = +10$ as), driftet das Elektron in negative Feldrichtung davon (grüne Trajektorie in Abbildung 5.8). In diesem Fall wird im Vergleich zu den beiden vorangegangenen Fällen ein zeitabhängiges Dipolmoment mit entgegengesetztem Vorzeichen erzeugt. Damit erzeugen zwar nicht alle Elektronen, die während der gleichen Polarität der Feldstärke erzeugt werden, ein Dipolmoment mit gleichem Vorzeichen. Es geht jedoch aus der Betrachtung der drei exemplarischen Ionisationszeitpunkte deutlich hervor, dass der Elektronenschwerpunkt der Elektronen die während gleicher Polarität erzeugt werden, eine Verschiebung in Feldrichtung erfährt und damit eine Polarisation in diese Richtung erzeugt. Die exakte Größe der Polarisation wird allerdings davon abhängen, wie weit sich die Elektronen in ihrer kohärenten Bewegung mit dem Laserfeld im Luft-Plasmagemisch von den angestammten Ionen entfernen können, bis ihre kohärente Bewegung durch Streuung an Molekülen und Ionen beendet wird. Deshalb soll im folgenden die mittlere freie Weglänge und damit die Streuzzeit der Elektronen

abgeschätzt werden.

5.3. Abschätzung der mittleren freien Weglänge und der Streuzeit der Elektronen

5.3.1. Elektron-Molekül-Streuung

Betrachten wir die Elektron-Molekül-Streuung, so kann die mittlere freie Weglänge l_{Mol} des Elektrons im Laserfeld bei Atmosphärendruck über

$$l_{Mol} = (\sigma_{Mol}\rho_{gas})^{-1} \quad (5.9)$$

berechnet werden, wobei σ_{Mol} der Wirkungsquerschnitt für die Elektron-Molekül-Streuung ist und ρ_{gas} die Moleküldichte. Die Moleküldichte bei Atmosphärendruck beträgt $\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$. Der Wirkungsquerschnitts für die Elektron-Molekül-Streuung ist abhängig von der Elektronentemperatur T_e im Plasma und somit von der mittleren kinetischen Energie² W_{kin} der Elektronen [61]. Da das Elektron im wesentlichen seine Energie aus der Beschleunigung im optischen Feld bezieht, kann die mittlere kinetische Energie des Elektrons über dessen ponderomotives Potential U_p abgeschätzt werden.

$$W_{kin} \simeq U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad (5.10)$$

Geht man von einer Feldstärke in der Größenordnung der Ionisationsschwelle von $E_0 = 3,36 \cdot 10^{10} \text{ Vm}^{-1}$ und optischen Frequenzen für ω aus, so besitzt das Elektron eine mittlere kinetische Energie von etwa $W_{kin} = 9 \text{ eV}$. In Referenz [61] sind experimentelle Wirkungsquerschnitte für die Elektron-Atom-Streuung für verschiedene Edelgase angegeben. Mit steigender Atommasse nimmt erwartungsgemäß der Wirkungsquerschnitt für die Elektron-Atom-Streuung zu. Die angegebenen Werte für die Wirkungsquerschnitte variieren dabei von $\sigma_{Ne} = 10^{-20} \text{ m}^2$ für Neon bis $\sigma_{Xe} = 4 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ für Xenon (alle Werte sind bei einer kinetischen Energie der Elektronen von $W_{kin} = 9 \text{ eV}$ genommen). Alle hier angegebenen Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit der mittleren kinetischen Energie bzw. der Elektronentemperatur haben ihr Maximum bei etwa 9-13 eV. Der Wirkungsquerschnitt von Argon wird dabei dem Wirkungsquerschnitt des Stickstoffmoleküls N_2 am ähnlichsten sein, da die Atom bzw. Molekülmassen von Argon und N_2 ähnlich groß sind. Für Argon ist ein Wert für den Wirkungsquerschnitt von $\sigma_{Ar} = 2 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ angegeben. Damit kann die mittlere freie Weglänge eines Elektrons im optischen Feld bei Atmosphärendruck nach Gleichung 5.9 auf $l_{Mol} \approx 200 \text{ nm}$ abgeschätzt werden. Unter Berücksichtigung der mittleren Elektronengeschwindigkeit im Laserfeld, die sich über $\bar{v}_e = \sqrt{2U_p/m} = 1,7 \cdot 10^6 \text{ m sec}^{-1}$ aus der mittleren kinetischen Energie ergibt, lässt sich eine mittlere Streuzeit in der Größenordnung von

²Im Rahmen dieser Abschätzung wird die Näherung $W_{kin} \simeq T_e$ verwendet. Genau genommen müssten noch die translatorischen Freiheitsgrade der Elektronen berücksichtigt werden (Faktor 3/2).

$$t_s^{Mol}(1 \text{ bar}) = l_{Mol} \cdot \bar{v}_e \approx 100 \text{ fs} \quad (5.11)$$

zwischen zwei Elektron-Molekülstößen abschätzen. Diese Zeit kann als charakteristische Zeit angesehen werden, in der die Elektronen nach ihrer Ionisation im Laserfeld kohärent beschleunigt werden können. Diese kohärente Bewegung wird dann im Mittel nach t_s^{Mol} durch eine inkohärente Streuung an Molekülen beendet.

5.3.2. Elektron-Ionen-Streuung

Betrachten wir nun die Elektron-Ionen-Streuung, so kann die mittlere freie Weglänge l_{Ion} des Elektrons für diesen Streuprozess auch wieder über

$$l_{Ion} = (\sigma_{Ion}\rho)^{-1} \quad (5.12)$$

bestimmt werden, wobei hier σ_{Ion} den Wirkungsquerschnitt für die Elektron-Ionen-Streuung und ρ die Plasmadichte bezeichnen. Der Wirkungsquerschnitt für die Elektron-Ionen-Streuung σ_{Ion} ist auch wieder von der mittleren kinetischen Energie der Elektronen abhängig. Im Gegensatz zur Elektron-Molekülstreuung, deren Wirkungsquerschnitt gerade ein Maximum bei einer Elektronentemperatur im Bereich von $T_e \approx 9 \text{ eV}$ hat, besteht für die Elektron-Ionen-Streuung eine $\sigma_{Ion} \propto T_e^{-2}$ Abhängigkeit [62].

$$\sigma_{Ion} \approx 10^{-16} \cdot T_e^{-2} \text{ m}^2 \quad (5.13)$$

Aufgrund der hohen Elektronentemperatur ergibt sich somit ein Wirkungsquerschnitt von etwa $\sigma_{Ion} \approx 2 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2$ [62], der nur um etwa eine Größenordnung größer ist, als der Wirkungsquerschnitt für die Elektron-Molekül-Streuung. Verwenden wir nun die Abschätzung der Plasmadichte aus Abschnitt 6.2.2, von etwa 10 bis 20 % der Moleküldichte bei Atmosphärendruck, so erhalten wir bei Atmosphärendruck in etwa die gleiche mittlere freie Weglänge für den Streuprozess Elektron-Ionen-Streuung, wie für den Streuprozess Elektron-Molekül-Streuung, von etwa $l_{Mol} \approx l_{Ion} \approx 200 \text{ nm}$ und die entsprechende Streuzeit $t_s^{Ion} \approx 100 \text{ fs}$.

5.4. THz-Polarisation im Plasma unter Berücksichtigung des Ionisationszeitpunktes

Im folgenden soll nun untersucht werden, wie die einzelnen mikroskopischen Dipolmomente sich zu einer makroskopischen Polarisation des Plasmas durch eine kollektive Betrachtung aller Elektronen und ihrer Trajektorien zusammensetzen. Von besonderem Interesse ist hierbei die Abhängigkeit des makroskopischen Dipolmoments von der CE-Phase. Im Abschnitt 5.2 wurde die Bewegung einzelner Elektronen ohne Wechselwirkung mit den Ionen und Molekülen betrachtet. In Abschnitt 5.3 wurde die mittlere Streuzzeit der Elektronen im Plasma bei Atmosphärendruck auf etwa $t_s \sim 100$ fs abgeschätzt. Die Streuung der Elektronen soll nun in vereinfachter Form durch die Einführung einer deterministischen Streuzzeit in den Bewegungsgleichungen berücksichtigt werden. Deterministisch bedeutet hierbei, dass für alle Elektronen die exakt gleiche Streuzzeit t_s angenommen wird. Damit kann der zurückgelegte Weg jedes Elektrons über die folgenden Integrationen,

$$x(t_0, t_s) = \int_{t_0}^{t_0+t_s} v(t) dt \quad (5.14)$$

mit

$$v(t) = \frac{e}{m} \int_{t_0}^t E_{opt}(t') dt' \quad (5.15)$$

und den Anfangsbedingungen $x(0) = 0$ und $v(0) = 0$ bestimmt werden. $x(t_0, t_s)$ kann als Entfernung des Elektrons zu dem zugehörigen Ion zur Zeit $t = t_0 + t_s$ angesehen werden. Dementsprechend kann das Dipolmoment dieses Elektron-Ionenpaars, welches zur Zeit t_0 erzeugt wurde, wieder einfach durch $p(t_0, t_s) = e \cdot x(t_0, t_s)$ abgeschätzt werden. Um die Dipolmomente aller Elektronen zu berücksichtigen muss die Änderung der Plasmadichte als Funktion des Ionisationszeitpunktes t_0 über folgende Gleichung

$$\frac{d\rho(t_0)}{dt_0} = w_{ion}(\rho_{gas}^0 - \rho(t_0)) \quad (5.16)$$

berechnet werden. Die nach Durchlaufen des optischen Pulses durch den Brennpunkt verbleibende Gesamtpolarisation kann damit über die Integration

$$P(t_s) = e \int_{-\infty}^{+\infty} x(t_0, t_s) \frac{d\rho(t_0)}{dt_0} dt_0 \quad (5.17)$$

bestimmt werden.

5.4.1. THz-Polarisation mit Multi-Cycle-Laserpulsen

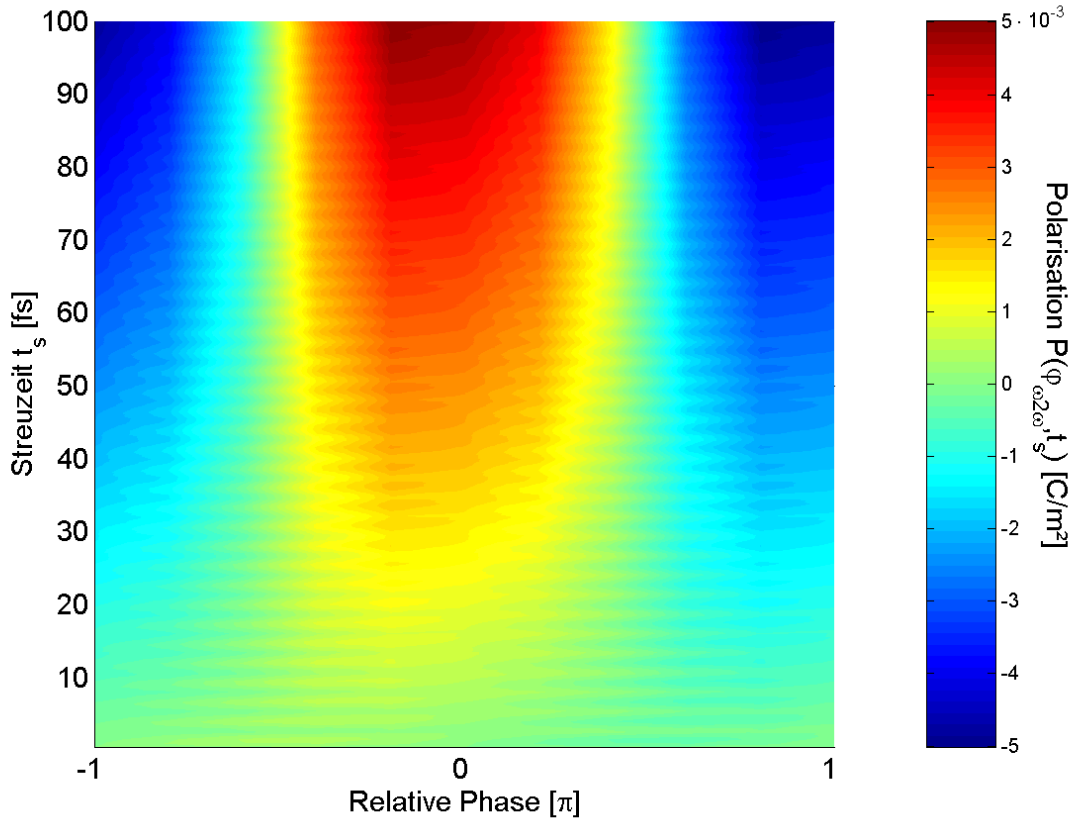


Abbildung 5.9.: Modellierung der THz-Polarisation in Abhängigkeit der Streuzeit und der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ zwischen fundamentaler und zweiter harmonischer Frequenz.

Der Einfluss der Streuzeit auf die kohärente Polarisation im Plasma, erzeugt mit Multi-Cycle-Laserpulsen, zusammengesetzt aus einer Fundamentalfrequenz und ihrer zweiten harmonischen Frequenz, soll im folgenden theoretisch untersucht werden. In Abbildung 5.9 ist die nach Gleichung 5.17 modellierte THz-Polarisation $P(\varphi_{\omega 2\omega}, t_s)$ für einen Laserpuls nach Gleichung 5.5 als Funktion der Streuzeit t_s und der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ dargestellt. Rot entspricht dabei einer hohen Polarisation in positive x -Richtung und blau einer hohen Polarisation in negative x -Richtung. In den grünen Bereichen verschwindet die Polarisation. Betrachtet man Polarisationen bei konstanten $\varphi_{\omega 2\omega}$ ist zu erkennen, wie mit abnehmender Streuzeit auch die Stärke der Polarisation im Plasma abnimmt. In Abbildung 5.10 ist die THz-Polarisation für die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega} = -\pi/5$, bei der die maximale THz-Polarisation bei großen Streuzeiten erreicht wird, in Abhängigkeit der Streuzeit dargestellt. Nach der einfachen Beschreibung aus Abschnitt 5.1.1, in welcher die Propagation der Elektronen im Laserfeld stark vereinfacht angenommen wird, wird das Maximum für die THz-Emission bei einer relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega} = \pm\pi/2$ vorhergesagt.

Diese Phase entspricht auch genau der maximalen Asymmetrie in der optischen Feld-

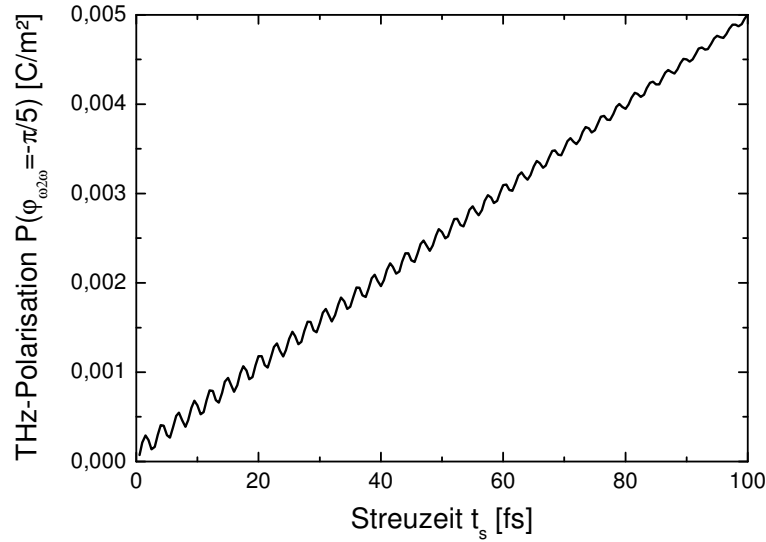


Abbildung 5.10.: THz-Polarisation P in Abhängigkeit der Streuzzeit t_s für die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega} = -\pi/5$.

stärke (also dem Maximum in $R_E(\varphi_{\omega 2\omega})$). Unter Berücksichtigung der Propagation der Elektronen, in Abhängigkeit des genauen Ionisationszeitpunktes, verschiebt sich das Maximum für die THz-Emission von $\varphi_{\omega 2\omega} = \pm\pi/2$ auf den nahezu streuzzeitunabhängigen Wert von $\varphi_{\omega 2\omega} = -\pi/5$ im Bereich der hier abgeschätzten Streuzzeiten in der Größenordnung von $t_s \approx 100$ fs. Experimentell lässt sich diese Verschiebung der relativen Phase, bei der die maximale THz-Emission erzielt wird, nicht so einfach nachweisen, da der Absolutwert der relativen Phase, wie bereits in Abschnitt 6.1 diskutiert, experimentell schwer zugänglich ist. Diese Verschiebung ist an dieser Stelle für diese THz-Erzeugungsmethode allerdings auch nicht von besonderer Bedeutung, da eine Bestimmung des Absolutwerts, der relativen Phase zwischen der Fundamentalfrequenz ω und seiner künstlich erzeugten zweiten Harmonischen 2ω , nicht von weiterer physikalischer Bedeutung ist. Bei der THz-Erzeugungsmethode unter Verwendung von Few-Cycle-Pulsen, wie sie in Abschnitt 5.4.2 in analoger Weise betrachtet wird, tritt eine ähnliche Phasenverschiebung der maximalen THz-Emission auf. Im Falle der Few-Cycle-Pulse ist die THz-Emission von der CE-Phase abhängig, deren Absolutwert für zahlreiche Experimente [63, 64, 65, 66, 67, 68, 69] im Bereich der Attosekunden-Physik von besonderem Interesse ist. Es sei deshalb an dieser Stelle nur darauf hingewiesen, dass dieser Effekt der Phasenverschiebung durch die Berücksichtigung der Propagation der Elektronen im Plasma auch bei der THz-Erzeugungsmethode mit optischer Vorspannung auftritt.

Zusätzlich zu einem linearen Verhalten zwischen der Streuzzeit und der THz-Polarisation ist eine kleine periodische Modulation in Abbildung 5.10 zu erkennen. Diese periodische Modulation kann auf die in der Modellierung angenommene abrupte Beendigung der kohärenten Bewegung der Elektronen durch die Streuung zurückgeführt werden. Die Periode dieser Modulation entspricht dabei genau der Periodendauer der optischen Strahlung ($\sim 2,5$ fs), da die Elektronen je nach Streuzzeit ihre kohärente oszillatorische Bewegung

in einem Maximum, einem Minimum oder in einem Bereich dazwischen beenden. Durch Ersetzen der hier verwendeten deterministischen Streuzeit, durch eine statistische Verteilung der Streuzeiten, verschwindet diese kleine Modulation. Da dieser Effekt jedoch klein gegenüber der linearen Abhängigkeit ist, die ihren Ursprung in der vom Ionisationszeitpunkt abhängigen asymmetrischen Beschleunigung der Elektronen hat, soll dieser Effekt hier vernachlässigt und auf eine aufwendigere Modellierung verzichtet werden. Damit kann die Abhängigkeit der maximalen THz-Polarisation in guter Näherung als proportional zur Streuzeit angenommen werden.

$$P(\varphi_{\omega 2\omega} = -\pi/5, t_s) \propto t_s \tag{5.18}$$

5.4.2. THz-Polarisation mit Few-Cycle-Laserpulsen

In Abbildung 5.11 ist der Feldverlauf eines 6 fs Laserpulses dargestellt. Entsprechend zu diesem Feldverlauf ist der Weg $x(t_0, t_s = 100\text{fs})$ der Elektronen, den sie aufgrund der Beschleunigung dieses Feldes nach 100 fs zurückgelegt haben, in Abhängigkeit ihres Ionisationszeitpunktes t_0 , berechnet nach Gleichung 5.14, dargestellt. t_0 ist hier also als Variable zu verstehen und der Index 0 soll die Bedeutung des Ionisationszeitpunktes hervorheben. Dargestellt in Abbildung 5.11 ist nur die Streuposition der Elektronen nach 100 fs als Funktion des Ionisationszeitpunktes t_0 .

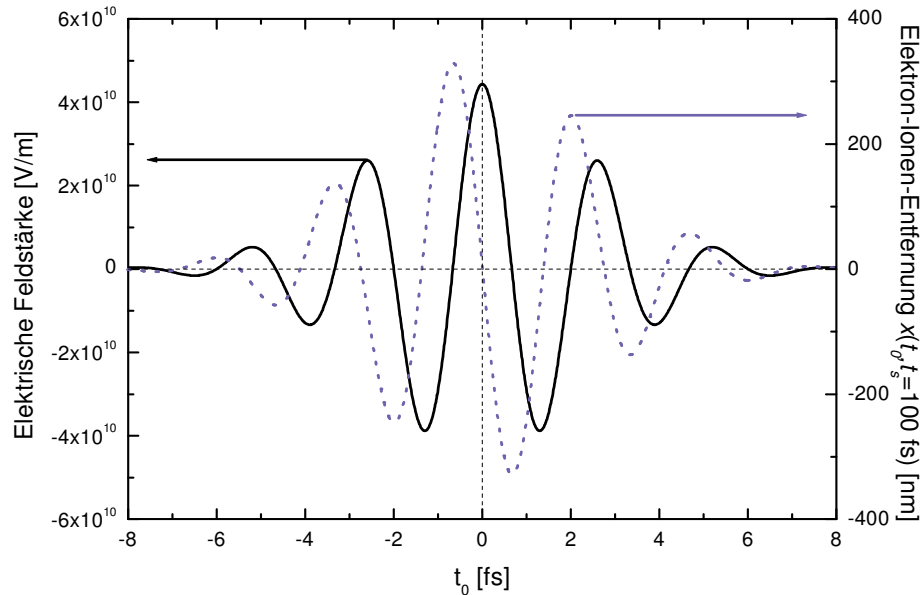


Abbildung 5.11.: Elektron-Ionen-Entfernung nach 100 fs dargestellt als Funktion des Ionisationszeitpunktes.

Die in Abbildung 5.11 blau dargestellte Kurve für $x(t_0, t_s)$ ist also nicht als Trajektorie des Elektrons zu verstehen, sondern stellt nur eine Momentaufnahme der Elektron-Ionen-Entfernung zum Zeitpunkt $t = t_0 + t_s$, zugeordnet zu dem Ionisationszeitpunkt t_0 , dar. Die Streuung der Elektronen kann als Beendigung der kohärenten kollektiven Bewegung aller Elektronen angesehen werden, welches die Vernachlässigung der Bewegung der Elektronen nach der Streuung rechtfertigt. Die in Abbildung 5.11 gewählte Darstellung hat den Vorteil, dass sich direkt erkennen lässt, welche Feldstärke zum Ionisationszeitpunkt t_0 für ein Elektron geherrscht hat, welches dann nach der Zeitspanne t_s am Ort $x(t_0, t_s)$ gestreut wird. Ein weiterer Vorteil dieser Darstellung ist, dass sofort ersichtlich ist, dass für einen in der Feldstärke maximal asymmetrischen Puls, wie er in Abbildung 5.11 dargestellt ist, entsprechend der CE-Phase $\varphi_{CE} = 0$, eine symmetrische Verteilung der Elektronen in Bezug auf die Ionen zu erwarten ist. Damit wird an dieser Stelle schon deutlich, dass sich für die Entwicklung der Polarisation in Abhängigkeit von der CE-Phase, unter Berücksichtigung der expliziten Bewegung der Elektronen im Laserfeld, ein anderes Verhalten, als das zunächst vereinfachend angenommene aus Abschnitt 5.1.2, er-

geben wird. Die Elektron-Ionen Entfernung $x(t_0, t_s)$ allein ist allerdings noch kein Maß für die Polarisation im Plasma, für dessen Bestimmung die Elektron-Ionen-Entfernung noch mit der Plasmadichte $\rho(t_0)$ nach Gleichung 5.17 gefaltet werden muss. Die so berechnete Polarisation ist in Abbildung 5.12 als Funktion der Streuzzeit und der CE-Phase dargestellt.

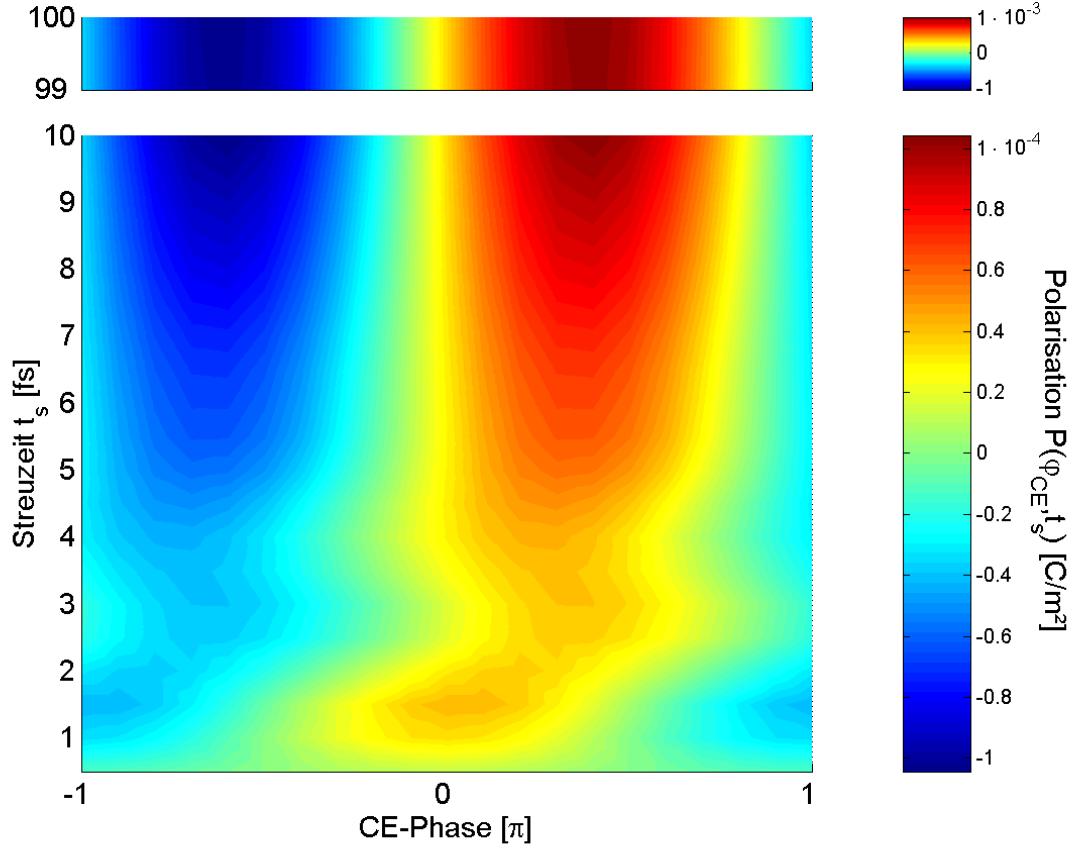


Abbildung 5.12.: Darstellung der Polarisation $P(\varphi_{CE}, t_s)$ als Funktion der CE-Phase der Few-Cycle-Pulse und der Streuzzeit der Elektronen.

Wie bereits aus den vorangegangenen Betrachtungen zu erwarten war, wird die maximale Polarisation, unter der Annahme einer deterministischen Streuung der Elektronen nach 100 fs, nicht für einen Laserpuls mit maximaler Feldasymmetrie erreicht ($\varphi_{CE} = 0$), sondern für einen Laserpuls der eine nahezu symmetrische Feldverteilung hat ($\varphi_{CE} = \pi/2$). Für sehr kleine Streuzzeiten $t_s < 1$ fs hingegen ergibt sich das Maximum der Polarisation bei einer CE-Phase $\varphi_{CE} \approx 0$. Der unter den in Abschnitt 5.1.2 gemachten vereinfachenden Annahmen entstandene Zusammenhang der THz-Amplitude $E_{THz} \propto R_\rho$ zu der Asymmetrie in der Plasmadichte kann damit als Grenzwert der Polarisation für sehr kleine Streuzzeiten ($t_s < 1$ fs) angesehen werden. Die Abschätzungen aus Abschnitt 5.3 legen allerdings nahe, dass die tatsächlichen Streuzzeiten deutlich größer sind. Die kleine Modulation der maximalen Polarisation in der CE-Phase, im Streuzzeitenbereich zwischen 1 und 5 fs, ist wieder eine Konsequenz der Annahme einer deterministischen Streuzzeit

analog zur Betrachtung der Multi-Cycle-Pulsen in Abschnitt 5.4.1. Dieser Effekt hat auch hier keinen signifikanten Einfluss auf die Ergebnisse im hier relevanten Streuzeitenbereich von etwa 100 fs und kann vernachlässigt werden.

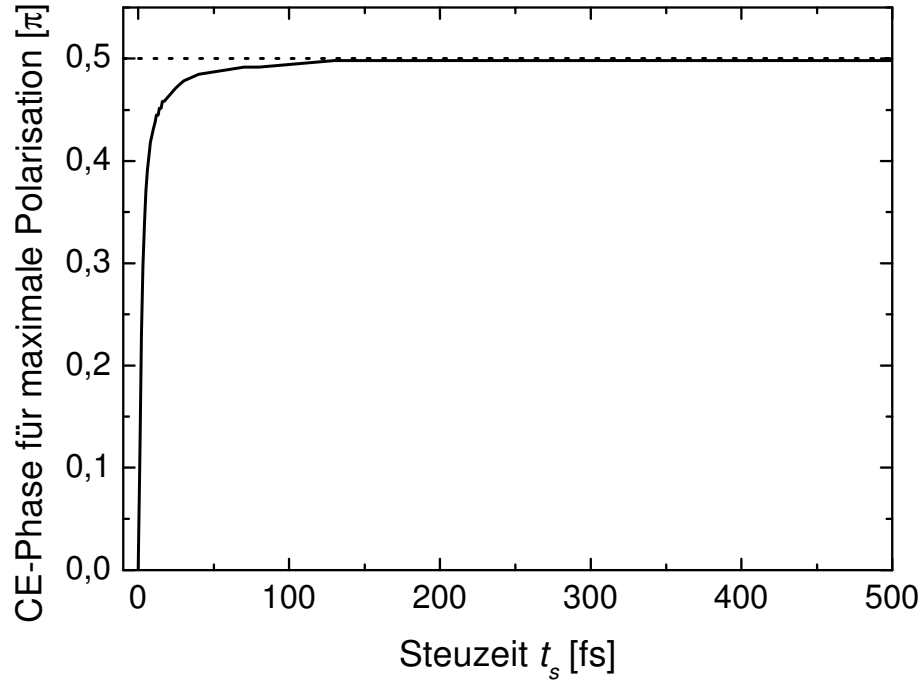


Abbildung 5.13.: CE-Phase, bei der die maximale Polarisation im Plasma erreicht wird, als Funktion der Streuzeit, berechnet für einen Few-Cycle-Laserpuls mit einer Pulsdauer von 6 fs.

Da die Abschätzung der Streuzeit aus Abschnitt 6.2.3 doch mit einer recht großen Ungenauigkeit verbunden ist, ist in Hinsicht auf eine Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase mit der THz-Methode, der Einfluss der Streuzeit auf die CE-Phase, für welche die maximale Polarisation im Plasma erreicht wird, in Abbildung 5.13 dargestellt³. Aus Abbildung 5.13 wird deutlich, dass die CE-Phase, für die eine maximale THz-Amplitude erwartet wird, über einen weiten Bereich (10-500 fs), nach der hier entwickelten Theorie, relativ unabhängig von der exakten Streuzeit der Elektronen im Plasma ist. In diesem Bereich kann die maximale Unbestimmtheit in der CE-Phase, die durch eine Unsicherheit in der Genauigkeit der Elektronenstreuzeit hervorgerufen wird, auf etwa $\Delta\varphi_{CE} \sim \pi/20$ abgeschätzt werden. Im Streuzeitenbereich $t_s < 10$ fs ist die Unbestimmtheit am größten, da hier im wesentlichen die durch die Propagation der Elektronen bedingte Phasenverschiebung von $\varphi_{CE}^{max} = 0$ auf $\varphi_{CE}^{max} \simeq \pi/2$ auftritt. In diesem Bereich ist die Unbestimmtheit in der CE-Phase nahezu $\Delta\varphi_{CE} \sim \pi/2$. Dies bedeutet, dass in Hinsicht auf die Absolutwertbestimmung der CE-Phase mit der Methode der THz-Erzeugung mit Few-Cycle-Laserpulsen, basierend auf der hier entwickelten Theorie, der möglichst exakten

³Anmerkung: Die in Abbildung 5.13 dargestellten Werte wurden unter Verwendung einer nicht deterministischen Streuzeit berechnet. Deshalb zeigen diese im Streuzeitenbereich zwischen 0 und 5 fs keine periodische Modulation der CE-Phase für welche die maximale Polarisation im Plasma erreicht wird.

Bestimmung, der Streuzzeit der Elektronen in der partiell ionisierten Luft bei Umgebungsdruck, eine große Bedeutung zukommt.

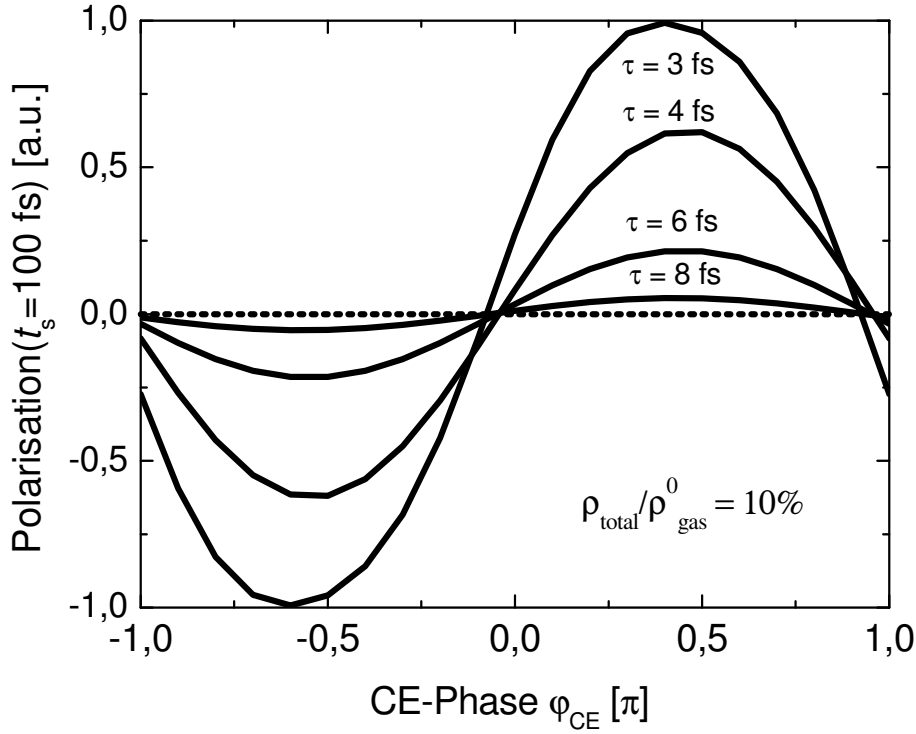


Abbildung 5.14.: Polarisation im Plasma als Funktion der CE-Phase für verschiedene Laserpulsdauern.

Im folgenden wird der Einfluss der Laserpulsdauer auf die Stärke der Polarisation im Plasma, die mit Hilfe der hier entwickelten Modellierung bestimmt wird, untersucht und mit der in Abschnitt 5.1.2 berechneten Asymmetrie in der Plasmadichte R_ρ verglichen. Die Berechnungen wurden mit einer Streuzzeit $t_s = 100$ fs durchgeführt. Auch hier wurde wieder die Spitzenfeldstärke so gewählt, dass der maximale Ionisationsgrad des Plasmas $\rho_{total} / \rho_{gas}^0 = 10\%$ ist.

In Abbildung 5.14 ist die Polarisation als Funktion der CE-Phase der erzeugenden Laserpulse für verschiedene Pulsdauern dargestellt. Der cosinus-artige funktionelle Zusammenhang zwischen φ_{CE} und der Polarisation im Plasma, wie er bereits aus der Berechnung der Asymmetrie in der Plasmadichte R_ρ (vergleiche mit Abbildung 5.7) bekannt ist, findet sich hier wieder. Der wesentliche Unterschied besteht hauptsächlich in der bereits diskutierten Phasenverschiebung des Maximums um $\sim \pi/2$. Die Zunahme des Kontrastes in der Polarisation mit abnehmender Pulsdauer ist auch hier ähnlich wie in der Asymmetrie in der Plasmadichte aus Abbildung 5.7. Für die drei größten Laserpulsdauern ($\tau > 4$ fs) liegt das Maximum der THz-Polarisation erwartungsgemäß knapp unterhalb von $\varphi_{CE} = \pi/2$. Bei $\tau = 3$ fs tritt eine zusätzliche kleine Phasenverschiebung des Maximums, zusammen mit einer Verformung des cosinus-artigen Zusammenhangs, auf.

Als Zusammenfassung der theoretischen Betrachtungen dieses Kapitels kann gesagt wer-

den, dass eine cosinus-artige Modulation der THz-Amplitude in der THz-Emission von Few-Cycle laserpulserzeugten Plasmen mit der CE-Phase zu erwarten ist. In Hinsicht auf eine Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase sagt die hier entwickelte Theorie eine maximale THz-Emission bei einer CE-Phase von etwa $\varphi_{CE} = \pi/2$, mit einer konzeptionellen Unbestimmtheit von etwa $\Delta\varphi_{CE} \sim \pi/20$, voraus.

6. Experimentelle Untersuchung des Plasma-THz-Emitters mit Multi-Cycle-Laserpulsen

6.1. Einfluss der relativen Phase zwischen ω und 2ω auf die THz-Erzeugung

Wie bereits mehrfach erwähnt, ist es essentiell für die THz-Erzeugung in lasergenerierten Plasmen, dass eine Asymmetrie im Plasma senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des optischen Pulses erzeugt wird, wenn das Maximum der THz-Strahlung in Ausbreitungsrichtung des optischen Pulses gerichtet sein soll. Bei der THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung, bei der eine Frequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω überlagert wird, wird diese Asymmetrie durch den asymmetrischen Feldstärkenverlauf im plasmaerzeugenden Laserpuls induziert. Die Stärke der Asymmetrie im Feldstärkenverlauf des Laserpulses ist abhängig von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ zwischen ω und 2ω , wie in den beiden oberen Graphen in Abbildung 5.1 zu erkennen ist. Für $\varphi_{\omega 2\omega} = \pm\pi/2$ ist die Asymmetrie im Feldstärkenverlauf maximal und erzeugt damit eine maximale Asymmetrie in der Plasmadichte R_p (siehe untere beiden Graphen Abb. 5.1). Zur experimentellen Überprüfung der Abhängigkeit des THz-Signals von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$, wurde der in Abbildung 6.1 dargestellte experimentelle Aufbau gewählt. Zur Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG, engl. second harmonic generation) wird ein 100 μm dicker BBO(β -Barium-Borat)-Kristall (Typ I Phasenanpassung) zwischen fokussierender Linse ($f = 200 \text{ mm}$) und Fokus verwendet¹. Der Kristall kann in einem variablen Abstand zum Fokus, indem das Plasma erzeugt wird, platziert werden. Aufgrund der verschiedenen Ausbreitungsgeschwindigkeiten für ω und 2ω in Luft kommt es nach der Frequenzverdopplung im BBO-Kristall zu einer Phasenverschiebung $\varphi_{\omega 2\omega}$ zwischen der fundamentalen und der zweiten harmonischen Frequenz. Diese Phasenverschiebung ist abhängig von der Länge des in Luft durchlaufenen Weges d . Hierfür lässt sich der Zusammenhang 6.1 finden.

$$\varphi_{\omega 2\omega} = \frac{\omega}{(n_{2\omega} - n_{\omega})d} \quad (6.1)$$

n_{ω} und $n_{2\omega}$ sind die Brechungsindizes beider Frequenzen in Luft. Damit kann über den Abstand d des BBO-Kristalls zum Fokus die Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ im Fokus variiert werden. Für

¹Aufgrund der Typ I Phasenanpassung sind bei optimalem Winkel für die Erzeugung der zweiten harmonischen Frequenz ω und 2ω senkrecht zueinander polarisiert. Durch Drehen des BBO-Kristalls um die optische Achse wird eine Feldkomponente von 2ω in Richtung von ω erzeugt. Die Konversionseffizienz für SHG nimmt dabei allerdings ab. Es gibt einen optimalen Winkel, der verschieden vom Winkel für optimale SHG ist, bei der $R_{\omega 2\omega} = E_{2\omega}^0/E_{\omega}^0$ in gleiche Polarisationsrichtung maximal wird.

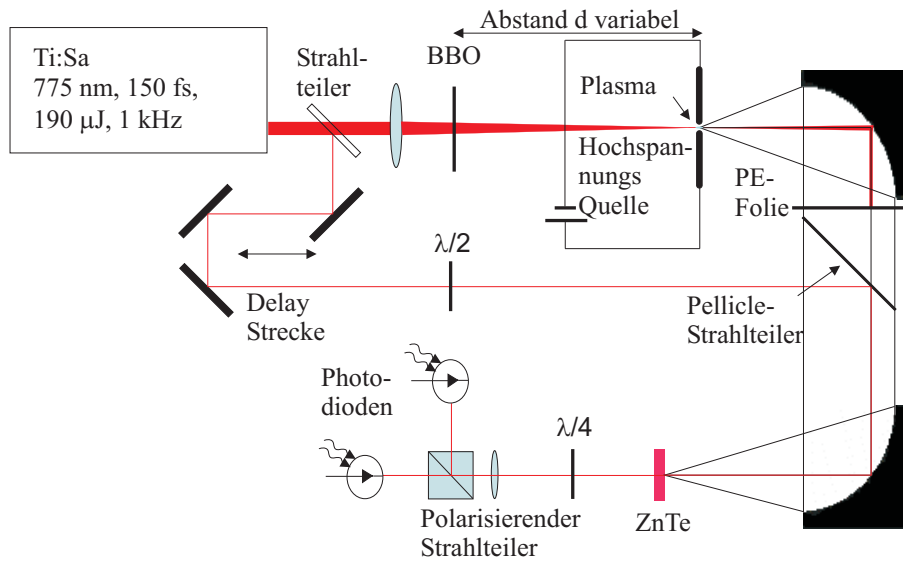


Abbildung 6.1.: Experimenteller Aufbau zur Untersuchung der Phasenabhängigkeit bei der Erzeugung von THz-Strahlung in einem lasergenerierten Plasma mit Überlagerung einer Frequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω .

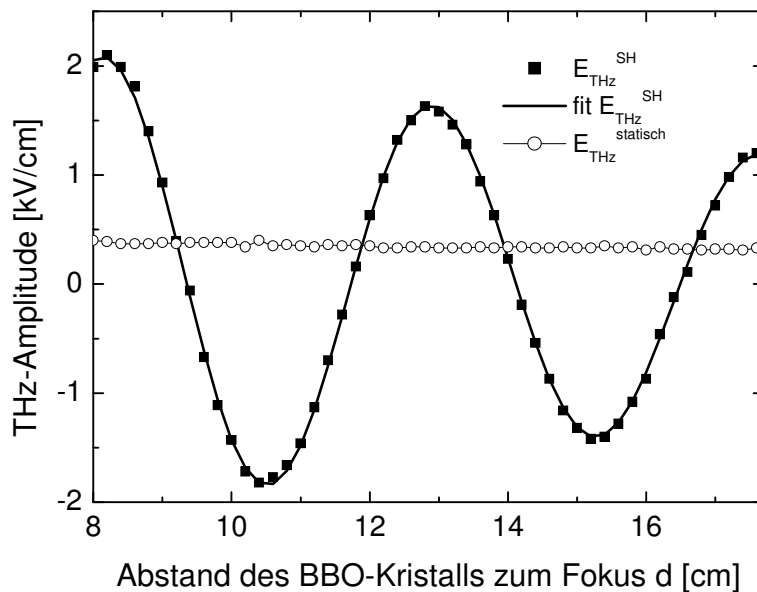


Abbildung 6.2.: THz-Amplitude in Abhängigkeit des Abstandes von BBO-Kristall zum Fokus. Dargestellt sind die gleichzeitig gemessenen Signalkomponenten E_{THz}^{AC} und E_{THz}^{DC} , die in der optisch erzeugten Asymmetrie und der durch das statische Feld erzeugten Asymmetrie in der Plasmaerzeugung ihren Ursprung haben.

die Separation der Signalkomponenten wurde die in Abschnitt 3.6 beschriebene Methode nach Gleichung 3.20 und 3.21 verwendet. In Abbildung 6.2 ist zu erkennen, dass, zusätzlich zu der erwarteten periodischen Variation von E_{THz}^{AC} , die Extremwerte für größere Abstände zwischen BBO-Kristall und Fokus kleiner werden. Da sich der BBO-Kristall in einem konvergenten Strahl befindet nimmt mit zunehmendem d auch die Ausleuchtungsfläche auf dem BBO-Kristall zu. Damit nimmt der Anteil der frequenzverdoppelten Strahlung $E_{2\omega}$ mit steigendem d ab, da die Konversionseffizienz proportional zur Flächenintensität der Strahlung im Kristall ist. Eine Abnahme von $E_{2\omega}$ im Plasma verringert die Polarisation im Plasma (siehe Abbildung 5.5), was bei konstantem Plasmavolumen ein kleineres Dipolmoment und damit eine niedrigere emittierte THz-Amplitude zur Folge hat. Aus den leicht abnehmenden Werten von E_{THz}^{DC} kann allerdings auch geschlossen werden, dass das Plasmavolumen mit steigendem d auch leicht abnimmt, da nach Abschnitt 3.3.2 bei konstantem statischen Feld eine Änderung in der vom Plasma emittierten THz-Amplitude bei konstantem statischen Feld alleine auf eine Änderung des Plasmavolumens zurückgeführt werden kann. Diese Plasmavolumenänderung kann jedoch auch wieder auf die fallenden Intensität $I_{2\omega}$ zurückgeführt werden. Obwohl natürlich für die Erzeugung der zweiten harmonischen Frequenz die Energieerhaltung gelten muss, nimmt die Spitzenfeldstärke in der einen Feldrichtung bei der Überlagerung von E_{ω} und $E_{2\omega}$ mit zunehmendem $E_{2\omega}$ Anteil bei konstanter Laserpulsenergie zu. Dies bedeutet, dass bei konvergierendem Strahl im Vergleich zu einer geringeren Intensität $I_{2\omega}$ die Ionisationsschwelle früher erreicht wird, was gleichbedeutend mit einem größeren Plasmavolumen ist. Die Polarisation im Plasma ist allerdings deutlich stärker von $E_{2\omega}$ abhängig als das Plasmavolumen, was aus dem steileren Abfall der Extrema von E_{THz}^{AC} geschlossen werden kann. Eine formale Beschreibung des funktionellen Zusammenhangs zwischen E_{THz}^{AC} und $\varphi_{\omega 2\omega}$ kann durch Vier-Wellen-Gleichrichtung nach Abschnitt 4 mit Hilfe von Gleichung 6.2 beschrieben werden.

$$E_{THz}^{AC} \propto P_{nl} = \chi^{(3)} E_{\omega}^2 E_{2\omega} \sin(\varphi_{\omega 2\omega}) \quad (6.2)$$

Die sinus-förmige Anpassung, unter Berücksichtigung des als Anpassungsparameter verwendeten Abfalls, in Abbildung 6.2 gibt die experimentellen Werte gut wieder. Damit bestätigt sich die erwartete Abhängigkeit der THz-Amplitude von $\varphi_{\omega 2\omega}$. Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass die durch Gleichung 6.2 angedeutete Proportionalität der THz-Amplitude, wie bereits in Abschnitt 4 diskutiert, keine Veränderung der Größe des nichtlinearen Mediums berücksichtigt. D.h. eine quantitative Überprüfung des THz-Signalabfalls mit abnehmendem Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega}$ ist mit derart großen Unsicherheiten verbunden, dass an dieser Stelle darauf verzichtet werden soll.

Vergleich der Absolutgröße der modellierten Polarisation mit dem Experiment

Bei der im Abschnitt 5.4.1 modellierten Polarisation des Plasmas für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung wurde die Ausdehnung des Plasmas und damit das Plasmavolumen vernachlässigt. Die Modellierung liefert jedoch einen Absolutwert,

der die Dimension einer Polarisation hat. Ein Vergleich dieses Absolutwerts zu einer experimentell bestimmten Polarisation kann anhand der THz-Erzeugungsmethode mit statischer Vorspannung erfolgen. Bei dieser Methode wird das statische elektrische Feld, in den durch den Laserpuls ionisierten Bereichen, vollständig abgeschirmt. Damit kann die Polarisation einfach über die Stärke des angelegten elektrischen Feldes

$$P_{nl}^{DC} = \epsilon_0 E_{st} \tag{6.3}$$

abgeschätzt werden. Die in dieser Arbeit verwendeten statischen Vorspannungen waren in der Größenordnung von $E_{st} = 30 \text{ kV/cm}$. Daraus ergibt sich eine mittlere Polarisation des Plasmas zu $P_{nl}^{DC} = 2,7 \cdot 10^{-5} \text{ C/m}^2$. Dieser Wert kann dazu verwendet werden die mittlere Polarisation des Plasmas für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung abzuschätzen. Dazu betrachten wir die in Abbildung 6.2 dargestellten simultan aufgenommenen Werte für beide THz-Erzeugungsmethoden. Aus dem Vergleich der maximalen THz-Amplituden für beide Methoden kann eine mittlere Polarisation für die Methode mit optischer AC-Vorspannung, die in etwa eine 4 mal so große THz-Amplitude im Vergleich zur statischen Vorspannungsmethode zeigt, auf etwa $P_{nl}^{AC} = 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ C/m}^2$ abgeschätzt werden. Dieser Wert ist in etwa eineinhalb Größenordnungen kleiner als der in Abschnitt 5.4.1 modellierte Wert von $P(\varphi_{\omega 2\omega} = -\pi/5, t_s = 100 \text{ fs}) = 5 \cdot 10^{-3} \text{ C/m}^2$. Dieser Abschätzung liegt zugrunde, dass den simultan aufgenommenen THz-Amplituden für beide Methoden das gleiche Plasmavolumen zugrunde liegt. Diese Annahme scheint zunächst durch die gleichzeitige Aufnahme gerechtfertigt. Die statische Vorspannungsmethode ist allerdings nach Gleichung 3.10 unabhängig von der Plasmadichte. Eine geringere Plasmadichte hat für diese Methode lediglich eine größere Verschiebung der Elektronen im Plasma zur Folge, und zwar exakt soweit, bis das äußere Feld vollständig abgeschirmt ist. Damit erzeugt das statische Feld auch noch genauso starke Polarisationen in Plasmaregionen mit sehr niedrigen Plasmadichten. Diese Plasmaregionen mit sehr niedrigen Plasmadichten tragen allerdings nur sehr gering zum THz-Signal, erzeugt mit der optischen AC-Vorspannungsmethode, bei, da hier das Signal von der Plasmadichte abhängt. Damit trägt für die statische Vorspannungsmethode ein wohl effektiv sehr viel größeres Plasmavolumen zum Signal bei. Dies hat für die hier gemachte Abschätzung der Polarisation für die optische Vorspannungsmethode zur Folge, dass durch das zu große Plasmavolumen die mittlere Polarisation des Plasmas für diese Methode zu klein abgeschätzt wird.

Allerdings könnte die Diskrepanz in der Größenordnung der modellierten und der experimentell abgeschätzten Polarisation auch ein Indiz dafür sein, dass die Streuzeiten der Elektronen im Plasma eventuell doch deutlich kürzer sind als die hier abgeschätzten 100 fs.

6.2. Variation des Luftdrucks

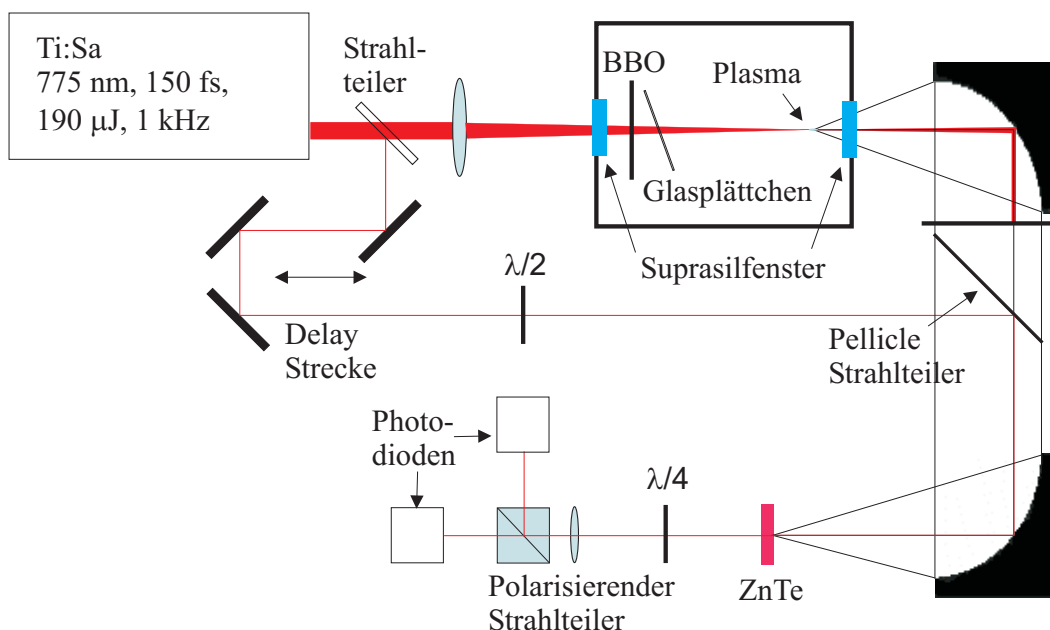


Abbildung 6.3.: Versuchsanordnung zur Druckvariation des Ausgangsmediums.

In diesem Experiment wird der Einfluss der Dichte des nichtionisierten Ausgangsmediums Luft, durch eine Variation des Luftdrucks auf die emittierte THz-Amplitude für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung, untersucht. Hierbei wurde zunächst davon ausgegangen, dass eine Steigerung der Moleküldichte auch zu einer Zunahme der Plasmadichte führen sollte. Bei der THz-Erzeugungsmethode mit angelegtem statischem Feld ist die THz-Amplitude nicht abhängig von der Plasmadichte, da die erzeugten Elektronen soweit im Plasma verschoben werden, bis das äußere statische Feld komplett abgeschirmt ist und sich das im Plasma erzeugte Dipolmoment als Produkt aus Verschiebungsstrecke mal Ladungsträgerdichte ergibt (siehe auch Abschnitt 3.3.2). Experimente von Löffler et.al. [49], in denen der Einfluss des Gasdrucks für die THz-Erzeugungsmethode mit angelegtem statischem Feld auf die THz-Amplitude untersucht wurde, haben ergeben, dass oberhalb von 1 bar die THz-Amplitude unabhängig vom Gasdruck ist und damit die vorangegangene Annahme bestätigt. Bei der THz-Erzeugungsmethode mit Überlagerung der zweiten harmonischen Frequenz war zunächst zu erwarten, dass eine Steigerung der Plasmadichte zu einer Steigerung der THz-Amplitude führt, da eine Zunahme der freien Ladungsträger ein stärkeres Dipolmoment erzeugen sollte. Deshalb wurde der Gasdruckbereich oberhalb von 1 bar untersucht. Experimente mit der THz-Erzeugungsmethode basierend auf ponderomotiven Kräften von Hamster et.al. [39] haben eine Resonanzhöhung ergeben, wenn die plasmadichteabhängige Plasmafrequenz in der Größenordnung der inversen Laserpulsdauer kommt. Eine solche Resonanzüberhöhung ist auch für die THz-Erzeugungsmethode mit Überlagerung der zweiten harmonischen Frequenz zu erwarten. Aus diesem Grund wurde auch der Gasdruckbereich unterhalb von 1 bar untersucht. Abbildung 6.3 zeigt die verwendete Versuchsanordnung. In dieser

Versuchsreihe wurde der Brennpunkt mit einer Kammer umgeben, in der der Gasdruck mit Hilfe einer Vakuumpumpe und einer Hochdruck-Gasflasche variiert werden konnte. Als Eintritts- und Austrittsfenster der Druckkammer wurden 10 mm dicke Suprasil 100 Fenster benutzt, da dieses Material eine möglichst geringe THz-Absorption hat, aber auch den enormen Kräften der Druckunterschiede standhält. Der BBO-Kristall wurde innerhalb der Druckkammer platziert, da durch die verschiedenen Gruppengeschwindigkeiten der ω und 2ω Laserpulse im Suprasilfenster nach Durchlaufen eines Fensters beide Pulse zeitlich nicht mehr übereinander liegen würden, welches zum Verschwinden der THz-Emission führen würden.

In Abbildung 6.4 sind zwei Druckvariationsmessreihen zwischen 3 mbar und 1 bar dargestellt. Die Parameter der plasmaerzeugenden Pulse waren für alle in diesem Kapitel gemachten Versuche gleich ($J_{opt} = 180 \mu\text{J}$, $\tau = 150 \text{ fs}$, $\lambda = 775$ respektive $387,5 \text{ nm}$). Bei der zweiten Messreihe wurde die Phase zwischen ω und 2ω durch ein dünnes Glasplättchen um einen willkürlichen Betrag verschoben, um die sinus-förmige Abhängigkeit in der THz-Amplitude vom Gasdruck in beiden Messreihen zu eliminieren.

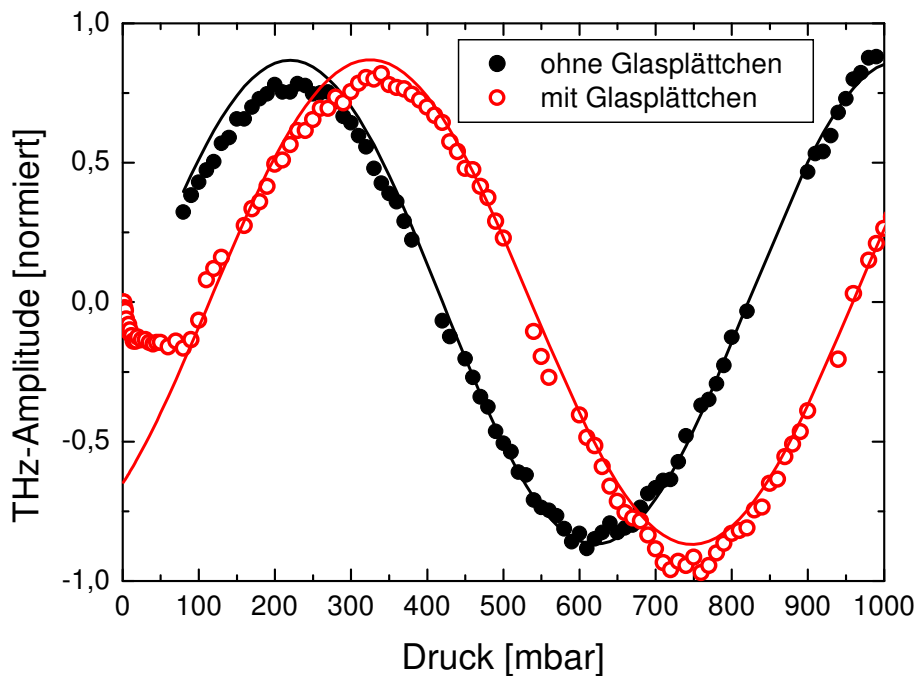


Abbildung 6.4.: THz-Amplitude als Funktion des Gasdrucks.

Um diese Phasenabhängigkeit herauszurechnen wurden beide Messreihen mit einer sinus-Funktion gefittet und darauf normiert. Die normierten Werte sind in Abbildung 6.5, zusammen mit den Messwerten im Druckbereich von 1 bar bis 20 bar, in einem doppellogarithmischen Graphen, dargestellt. Bei der Messreihe im Druckbereich zwischen 1 bar und 20 bar, bei der die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ auch etwa um $2\pi/\text{bar}$ variiert, wurden jeweils nur die maximalen THz-Amplituden bei optimaler Phase aufgenommen. Die optimale Phase wurde hierbei über Feinregelung des Druckes auf maximale THz-Amplitude eingestellt. Die Abhängigkeit der THz-Amplitude vom Druck kann im wesentlichen in drei Druck-

bereiche eingeteilt werden, welche durch die zwei vertikalen Linien bei 100 mbar und 2 bar angedeutet abgegrenzt sind.

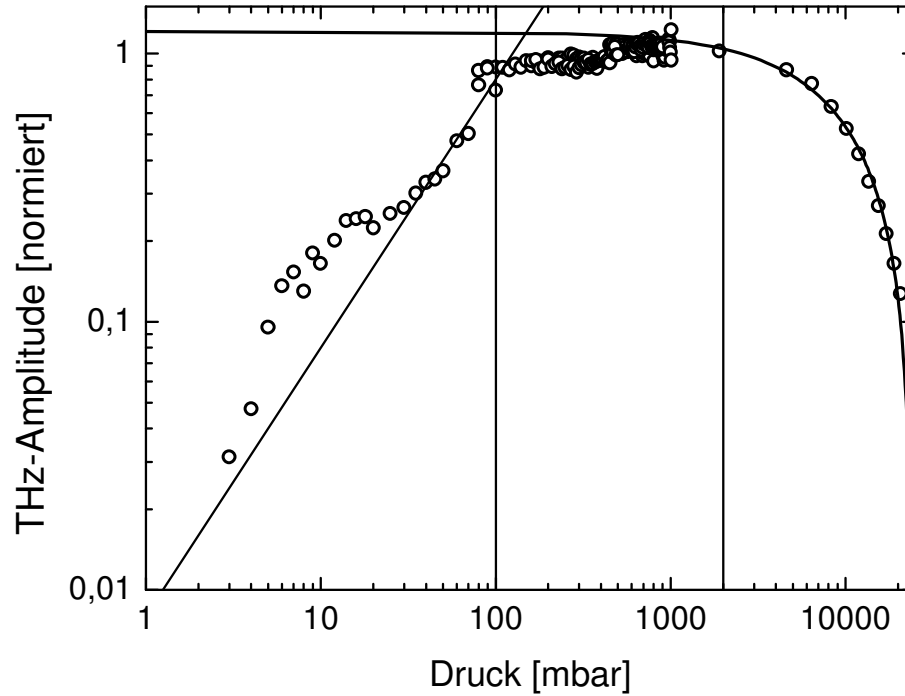


Abbildung 6.5.: Doppellogarithmische Darstellung der THz-Amplitude als Funktion des Druckes.

6.2.1. Druckbereich < 100 mbar: Vollständige Ionisation aller Moleküle

Im ersten Druckbereich unterhalb von 100 mbar ist im wesentlichen eine lineare Zunahme der THz-Amplitude mit dem Druck zu erkennen. Dies deutet daraufhin, dass die im Brennpunkt erreichte Plasmadichte nahezu gleich der Moleküldichte ist, da es zu einer vollständigen Ionisation im Brennpunkt kommt. Zusätzlich zu diesem linearen Verhalten ist die nach Referenz [39] erwartete Resonanz, für die Bedingung $\omega_{pl}\tau = 2$, zu erkennen. Aus Gleichung 3.9 und der Bedingung $\omega_{pl}\tau = 2$ lässt sich die Plasmadichte bei der die Resonanz auftreten sollte, nach Gleichung 6.4 zu $\rho_{res} = 5,6 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ mit $\tau = 150 \text{ fs}$, bestimmen.

$$\rho_{res} = \frac{4\epsilon_0 m}{\tau^2 e^2} \quad (6.4)$$

Unter der im vorangegangenen gemachten Annahme einer vollständigen Ionisation ($\rho = \rho_{gas}$) ist damit nach Gleichung 6.4 die Resonanz bei einem Druck von etwa 2 mbar zu erwarten. Das Resonanzmaximum in Abbildung 6.5 liegt bei etwa 6 mbar. Die geringe

Abweichung vom theoretisch erwarteten Wert kann eventuell über eine mangelnde Messgenauigkeit des Manometers erklärt werden. Die Erwartung, dass das resonante Verhalten zu einer Resonanzüberhöhung der THz-Amplitude in diesem Druckbereich führt, konnte damit durch die Überdeckung des linearen Abfalls, verursacht durch die Abnahme der Plasmadichte, nicht erfüllt werden.

6.2.2. Druckbereich 100 mbar bis 2 bar: Limitierung der Plasmadichte durch Plasmadefokussierung

Im angrenzenden Druckbereich zwischen 100 mbar und 2 bar ändert sich die beobachtete Abhängigkeit signifikant. Die THz-Amplitude nimmt in diesem Bereich nur sehr geringfügig zu. Dies ist auf das Einsetzen von Plasmadefokussierung zurückzuführen. Nach dem Modell von Drude verringert sich durch die Erzeugung freier Ladungsträger der Brechungsindex eines teilweise ionisierten Mediums in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte gemäß

$$\Delta n = -\frac{1}{2} \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2}, \quad (6.5)$$

wobei ω_{pl} die aus Gleichung 3.9 bekannte plasmadichteabhängige Plasmafrequenz ist. Überträgt man diese Modellvorstellung auf die laserinduzierte Plasmaerzeugung in Luft, so ist leicht einsichtig, dass in Bereichen hoher Intensität, in denen die Plasmadichte stärker ansteigen wird als in Bereichen niedriger Intensität, der Brechungsindex am stärksten reduziert wird. Da die Intensität genau auf der Strahlachse am höchsten ist, wird also genau dort der Brechungsindex der partiell ionisierten Luft den niedrigsten Wert annehmen, mit einem abfallenden positiven Brechungsindexgradienten in Radialrichtung. Dieser Brechungsindexgradient wirkt wie eine Linse mit negativer Brennweite auf die Strahlausbreitung. Das konvergente Strahlenbündel erfährt also noch vor Erreichen der eigentlichen Strahltaile eine divergente Brechung. Nach Referenz [70, 71] ergibt sich als kritische Plasmadichte, bei der eine signifikante Abweichung von der gaußschen Strahlausbreitung durch Plasmadefokussierung zu beobachten sein sollte, nach Gleichung 6.6.

$$\rho^{PDF} = \frac{\omega^2 \pi a^2 \epsilon_0 m}{2 f^2 e^2} \quad (6.6)$$

a ist dabei der Strahlradius vor der Fokussierung und f die Brennweite der verwendeten Fokussieroptik. Für die in diesem Experiment verwendeten Parameter $a = 0,004$ m und $f = 0,1$ m ergibt sich daraus ein Wert für die Plasmadichte, bei der der defokussierende Effekt signifikant werden sollte, zu $\rho^{PDF} = 4,7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Unter Berücksichtigung der im vorangegangenen Abschnitt 6.2.1 gemachten Annahme, einer vollständigen Ionisation aller Moleküle unterhalb des Wertes für einsetzende Plasmadefokussierung, entspricht diese Plasmadichte einem Druck von etwa 170 mbar. Dieser theoretische Wert liegt leicht

höher als der experimentell beobachtete Wert, der in Abbildung 6.5 auf etwa 100 mbar abgeschätzt werden kann. Sobald der kritische Wert für signifikante Plasmadefokussierung erreicht ist, erhöht sich mit zunehmendem Druck im wesentlichen nur noch die Dichte der nichtionisierten Moleküle und die Plasmadichte steigt nur noch geringfügig an. Damit kann die Plasmadichte bei Atmosphärendruck auf etwa 10 bis 20 % der Moleküldichte abgeschätzt werden.

6.2.3. Druckbereich > 2 bar: Verringerung der freien Weglänge der Elektronen durch Elektron-Molekülstreuung

Im dritten Teilbereich, des Druckverlaufs oberhalb von 2 bar, nimmt die THz-Amplitude sehr schnell mit steigendem Druck ab. Die erhoffte Steigerung über Zunahme der Plasmadichte bleibt aus, da die Plasmadefokussierung die Plasmadichte nahezu konstant auf einem Ionisationsgrad von etwa 10 bis 20 % der Moleküldichte bei Atmosphärendruck hält. Die Zunahme der Dichte der neutralen Moleküle hat jedoch zur Folge, dass die freie Weglänge der im Laserfeld beschleunigten Elektronen abnimmt. Die freie Weglänge der Elektronen und die daraus resultierende Streuzeit der Elektronen kann als Funktion des Druckes bzw. der Moleküldichte unter Verwendung von Gleichung 5.9 aus Abschnitt 5.3 abgeschätzt werden. Nach Gleichung 5.9 und 5.11 besteht folgender antiproportionaler Zusammenhang zwischen der Streuzeit für die Elektron-Molekül-Streuung und der Gasdichte

$$t_s^{Mol} \propto \rho_{gas}^{-1}. \quad (6.7)$$

Im Druckbereich oberhalb von 2 bar ist die Streuzeit im wesentlichen durch Elektron-Molekül-Streuung bestimmt, da die Elektron-Ionen-Streuung unabhängig von der Moleküldichte ist und die Plasmadichte hier nahezu konstant ist. Unter der Annahme, dass Luft sich in diesem Druckbereich noch annähernd wie ein ideales Gas verhält und den Gleichungen 5.18 und 6.7, kann für Drücke $P_{gas} > 2$ bar näherungsweise ein Verhalten gemäß

$$P_{THz} \propto P_{gas}^{-1} \quad (6.8)$$

angenommen werden. Diese Beziehung kann das experimentell beobachtete Verhalten aus Abbildung 6.5 tendenziell erklären. Im Druckbereich unterhalb von 1 Bar ist die Streuzeit im wesentlichen durch Elektron-Ionen-Stöße bestimmt. Dadurch ist, wie im vorangegangenen diskutiert, aufgrund von Plasmadefokussierung, die THz-Amplitude nahezu Druckunabhängig. Dies erklärt die experimentelle beobachtete nahezu konstante THz-Amplitude im Druckbereich zwischen 100 mbar und 2 bar. Im Übergangsbereich zwischen den beiden Streuprozessen, bei etwa 1 bis 3 bar, muss der Einfluss beider Streuprozesse gemeinsam betrachtet werden. Dazu wurde die THz-Amplitude als Funktion des Gasdrucks mit der folgenden Funktion angepasst

$$E_{THz} = c_1 + \frac{c_2}{P_{gas} + c_3}. \quad (6.9)$$

Die Konstanten c_i werden dabei als Fitparameter verwendet, wobei der Parameter c_1 die Dominanz der Elektron-Ionen-Streuung unterhalb von 1 bar widerspiegelt und die Parameter c_2 und c_3 die Druckabhängigkeit der Streuzeit oberhalb von 2 bar berücksichtigen. Die nach Gleichung 6.9 gemachte Anpassung ist in Abbildung 6.5 als durchgezogene Kurve dargestellt.

Die Modellierung des Streuverhaltens der Elektronen an Molekülen und Ionen gibt den experimentell beobachteten Abfall der THz-Amplitude mit steigendem Druck im Bereich zwischen 2 bar und 20 bar recht gut wieder. Auch das Plateau zwischen 100 mbar und 2 bar kann damit gut beschrieben werden. Zusammenfassend lässt sich aus den Experimenten und den Modellierungen die Schlussfolgerung ziehen, dass die Verwendung des zu ionisierenden Mediums Luft bei Atmosphärendruck, die optimale Konfiguration für maximale THz-Erzeugung im Plasma darstellt. Überlegungen, die auf eine Steigerung der THz-Amplitude durch noch dichtere Plasmen, wie sie beispielsweise durch Fokussieren im Vakuum auf Festkörperoberflächen erzielt werden können, abzielen, erscheinen damit als wenig erfolgsversprechend. Auch die Verwendung einer Gassorte mit einem geringeren Wirkungsquerschnitt für die Elektron-Molekülstreuung, wie beispielsweise Wasserstoff, wird keine Steigerung der THz-Amplitude ermöglichen, da im wesentlichen der Wirkungsquerschnitt der Coulomb-Streuung der Elektronen an den Ionenrümpfen die maximale freie Weglänge begrenzt. σ_{Ion} ist aber im wesentlichen von dem Ionisationsgrad des Ions abhängig. Damit ist zu erwarten, dass bei der Verwendung eines Gases, das im Vergleich zu N_2 , ein geringeres 1. und 2. Ionisationspotential besitzt, welches zu einer eventuellen Steigerung der Plasmadichte führen könnte, die Reduzierung der freien Weglänge durch die größere Plasmadichte, eine Steigerung der THz-Amplitude durch die erhöhte Plasmadichte kompensieren wird.

7. Anwendung der THz-Emissionsspektroskopie zur Bestimmung der CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen

In diesem Kapitel soll nun die im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelte Methode zur THz-Erzeugung in lasergenerierten Plasmen, welche auf der Verwendung von Few-Cycle-Laserpulsen zur Plasma und THz-Erzeugung basiert, anhand von experimentellen Ergebnissen diskutiert werden. Die Diskussion wird im engen Zusammenhang mit der Anwendung dieser neuen Methode zur Bestimmung der CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen geschehen.

7.1. Das verwendete Few-Cycle-Laserpulssystem

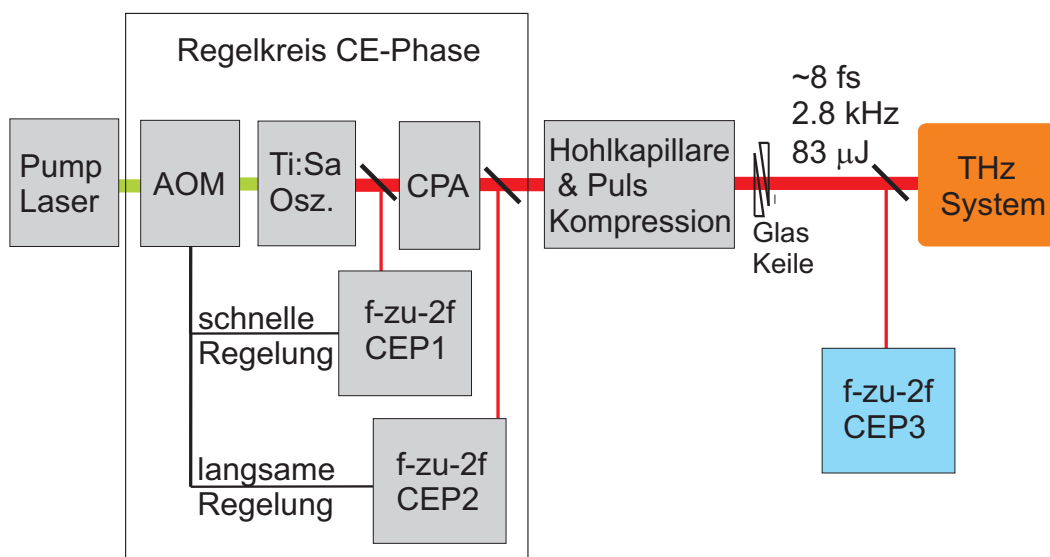


Abbildung 7.1.: Schematische Darstellung des Ultrakurzpulslasersystems mit integrierter Regelung zur Stabilisierung der CE-Phase.

Das für die Experimente verwendete Few-Cycle-Laserpulssystem befindet sich am Max Planck Institut für Kernphysik (MPK) in Heidelberg [72] und wurde auch dort von Mitarbeitern des MPK entwickelt und aufgebaut. Es handelt sich hierbei um ein Ti:Sa-basiertes Lasersystem, welches als Schema in Abbildung 7.1 dargestellt ist. Das System basiert auf einem kommerziell erhältlichen Verstärkerlaser (CPA) [73], der durch einen selbstgebauten Ti:Sa Oszillator stimuliert wird. Der sogenannte „seed“-Laser (Ti:Sa Oszillator) liefert dabei Laserpulse mit einer Pulsenergie von 4 nJ und einer Pulsdauer von

20 fs bei einer Zentralwellenlänge von 810 nm. Die Laserpulse des Oszillators sind CE-Phasenstabilisiert mit der Methode der f-zu-2f-Selbstreferenzierung [26] (engl. f-to-2f-self referencing). Bei dieser Methode wird ein kleiner Teil der vom Oszillator emittierten Strahlung in ein f-zu-2f-Interferometer (CEP1) geleitet. In diesem Interferometer (zur Funktionsweise siehe auch Abschnitt 2.3) wird dann das Spektrum des Pulses durch Selbst-Phasenmodulation (SPM, engl. self-phase modulation) in einem kurzen Lichtwellenleiter verbreitert. Ein kleiner Teil des Pulses wird mit Hilfe eines nicht-linearen Kristalls frequenzverdoppelt (SHG, engl. second harmonic generation) und anschließend zur Interferenz mit dem spektralverbreiterten Puls gebracht. Aus der Interferenz gleicher Frequenzen des spektral verbreiterten Pulses und des frequenzverdoppelten Pulses kann dann eine Veränderung der CE-Phase bestimmt werden. Diese Messung liefert die Regelgröße für die CE-Phasenstabilisierung. Als Stellgröße im Regelkreis werden kleine Änderungen der Pumplaserleistung über einen akusto-optischen Modulator (AOM) verwendet, welche die Ausgangsleistung des Ti:Sa Oszillators nicht signifikant beeinflussen, da dieser in Sättigung betrieben wird. In dieser ersten Regelschleife muss eine schnelle Rückkopplung verwendet werden, da hier die CE-Phase im Oszillator ohne Regelung noch von Puls zu Puls variiert.

Der mit diesen Pulsen stimulierte CPA-Laser liefert so ausgangsseitig Pulse mit $500 \mu\text{J}$, 30 fs bei 805 nm und einer Wiederholrate von 2,8 kHz. Ein kleiner Teil des CPA-Laser-Ausgangs wird dann wiederum einem zweiten f-zu-2f-Interferometer (CEP2) zugeführt, um langsame CE-Phasendrifts, die durch die Nachverstärkung hervorgerufen werden, durch Integration dieser Regelgröße in einer langsamen Rückkopplung zu kompensieren. Der Großteil des CPA-Laser Ausgangs wird in eine mit $\sim 4,5$ bar Neon-Gas gefüllte Hohlkapillare, zur Verbreiterung des Spektrums durch SPM fokussiert. Die Hohlkapillare hat einen Innendurchmesser von $200 \mu\text{m}$ und eine Länge von 82 cm. Anschließend werden die so spektral verbreiterten Pulse mit Hilfe einer Anordnung von dispersiven Spiegeln und Prismen bis an ihre Bandbreitenbegrenzung von 8 fs komprimiert.

Damit standen für die Experimente Laserpulse mit einer Pulsenergie von $\sim 83 \mu\text{J}$ bei einer Zentralwellenlänge von etwa 750 nm und einer Wiederholrate von 2,8 kHz zur Verfügung. Ein drittes f-zu-2f-Interferometer (CEP3) wurde hinter der Hohlkapillare und der Kompression als reine CE-Phasenmessung zum direkten Vergleich mit den Daten des THz-Systems verwendet. Damit kann der Einfluss von eventuell auftretenden CE-Phasenänderungen, die durch die Hohlkapillare erzeugt werden, in einer direkten Korrelation zwischen der f-zu-2f-Messung von CEP3 und den THz-Daten ausgeschlossen werden.

7.2. Der verwendete THz-Aufbau

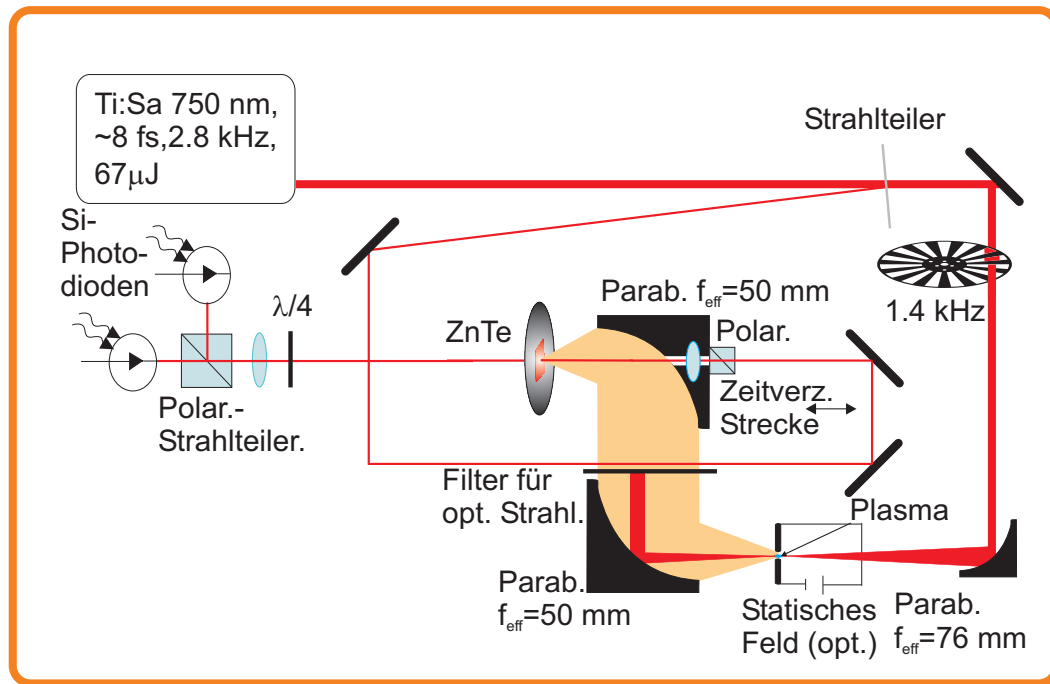


Abbildung 7.2.: Schematische Darstellung des verwendeten THz-Aufbaus zur CE-Phasenbestimmung.

Bei dem für die Messungen der CE-Phase verwendeten THz-Aufbau handelt es sich um eine typische THz-Anrege- und Abfrage-Anordnung (engl. pump-probe) unter Verwendung von elektro-optischer Detektion der THz-Strahlung in ZnTe (siehe auch Abschnitt 3.1 oder [48, 53, 74]). Bei dieser Standardmethode zur Bestimmung der zeitlichen Wellenform des elektrischen Feldes der THz-Pulse wird der eingehende Laserstrahl sowohl zur Erzeugung, als auch zur Detektion verwendet. Dazu wird der Laserstrahl zunächst in einen intensiven Anregepuls und in einen schwachen Abfragepuls durch einen dünnen Strahlteiler aufgeteilt. Das Teilungsverhältnis hat hierbei etwa 20:1 betragen. Der Anregepuls wird mit Hilfe eines Strahlzerhackers (engl. chopper) auf mechanischem Wege mit einer Frequenz, die der halben Wiederholrate des Lasers (1,4 kHz) entspricht, moduliert. Dies ermöglicht die Verwendung eines Lock-In Verstärkers zur rauschunterdrückenden Detektion des THz-Signals. Mit Hilfe eines Parabolspiegels (1 Zoll Durchmesser, Silberbeschichtung), der eine effektive Brennweite von 76 mm hat, wird der Anregepuls in die Laborluft bei Umgebungsdruck fokussiert, um im Brennpunkt ein Plasma zu erzeugen. Durch das Anlegen eines statischen elektrischen Feldes senkrecht zur Ausbreitungsrichtung in der Brennpunktregion kann zuerst die in Abschnitt 3.3.2 beschriebene Methode zur THz-Erzeugung und damit zur Optimierung der Justage des THz-Aufbaus verwendet werden. Das statische elektrische Feld wird dabei in Polarisationsrichtung der optischen Strahlung angelegt, da in diesem Fall die THz-Strahlung in dieser Richtung für die statische Feldmethode polarisiert ist. Für die anschließend durchgeführte CE-phasensensitive

THz-Messung ohne statisches Feld wird die Polarisation der THz-Strahlung auch in dieser Richtung anhand der mikroskopischen Modellvorstellung erwartet. Die im Plasma erzeugte THz-Strahlung wird dann mit Hilfe eines zweiten kurzbrennweitigen Parabolspiegels (2 Zoll Durchmesser, Goldbeschichtung, Brennweite 50 mm) kollimiert, um dann mit Hilfe eines identischen dritten Parabolspiegels die THz-Strahlung in den elektro-optischen Kristall (1 mm dicker $\langle 110 \rangle$ orientierter ZnTe) zu fokussieren. Die optische Strahlung wird durch eine für optische Strahlung undurchlässige und im THz-Frequenzbereich gut transparente Polyethylenfolie zwischen dem zweiten und dritten Parabolspiegel herausgefiltert. Der schwache Abfragepuls wird über zwei Spiegel, die sich auf einer mechanischen Verschiebestrecke befinden und über welche eine zeitliche Verschiebung zwischen Anrege- und Abfragepuls erzeugt werden kann, geleitet und anschließend noch einmal durch einen Polarisator in seiner linearen Polarisation gereinigt. Der Abfragepuls wird dann mit einer dünnen Linse durch ein sich auf der Strahlachse befindliches kleines Loch im dritten Parabolspiegel in den sich im Brennpunkt der THz-Strahlung befindlichen elektro-optischen Kristall fokussiert. Dabei wird in Kauf genommen, dass durch das Loch im Parabolspiegel ein geringer Teil der THz-Strahlung verloren geht. Im ZnTe-Kristall führt die THz-Strahlung zu einer durch den Pockels-Effekt induzierten Doppelbrechung, die zu einer Polarisationsänderung im Abfragepuls führt, welche mit Hilfe einer Anordnung, bestehend aus einer $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte und einem polarisierenden Strahlteilerwürfel, in eine Intensitätsänderung konvertiert wird. Mit Hilfe zweier Photodioden und einem Zweikanal-Lock-In Verstärker wird diese Polarisationsänderung detektiert. Damit kann durch die mechanische Verzögerungseinheit die zeitliche Wellenform des THz-Pulses abgetastet werden. Eine exemplarische zeitliche THz-Wellenform für ein mit der angelegten statischen Feld Methode erhaltenes THz-Signal ist in Abbildung 7.3 dargestellt.

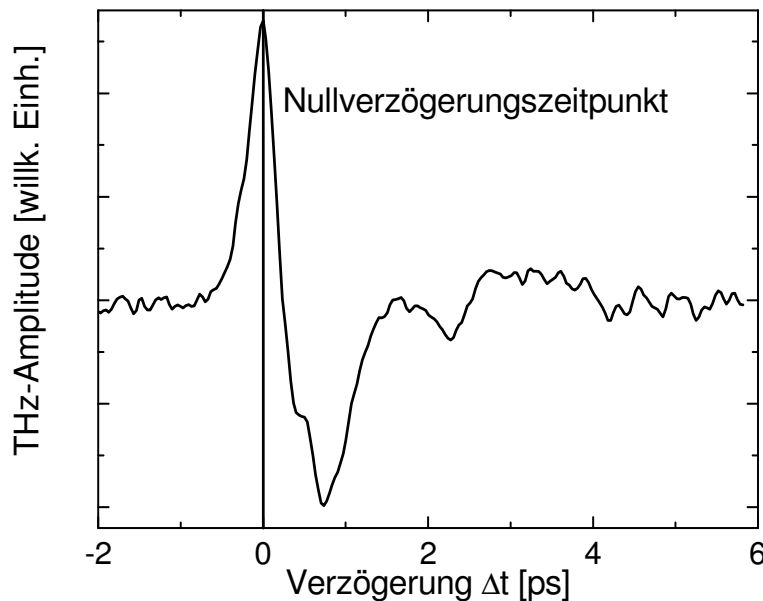


Abbildung 7.3.: Zeitliche Wellenform eines THz-Pulses erhalten mit der statischen Feld Methode (einzelner Scan). Das statische Feld betrug $E_{st} = 30 \text{ kV/cm}$.

7.3. Durchführung und Auswertung

Der im vorangegangenen Abschnitt beschriebene THz-Aufbau wurde zuerst in unserem Laserlabor in Frankfurt mit Hilfe des in Abschnitt 3.5.1 beschriebenen Multi-Cycle-Laserpulssystems (Pulsenergie $\sim 800 \mu\text{J}$, Pulsdauer 150 fs, Wellenlänge 775 nm) auf einer transportablen Metallplatte vorjustiert. Da in diesem Pulsdauerregime keine THz-Emission in Propagationsrichtung der optischen Strahlung im Plasma stattfindet, wurde hier in der Brennpunktregion noch ein zusätzliches statisches elektrisches Feld mit Hilfe von zwei Elektroden angelegt, um ein THz-Signal in Propagationsrichtung zu erhalten. Dies ermöglichte die Optimierung der optischen Justage, wie z.B. die Anpassung der Strahlpfadlängen des Anrege- und des Abfrage-Strahlenganges und die räumliche Überlagerung des THz-Pulses mit dem Abfragepuls im ZnTe-Kristall, der sich im Fokus beider Strahlpfade befinden soll. Das CE-phasenabhängige Experiment wurde dann an dem im Abschnitt 7.1 beschriebenen Few-Cycle-Laserpulssystem am Max Planck Institut für Kernphysik in Heidelberg durchgeführt. Zur Überprüfung und Optimierung der Justage des THz-Aufbaus unter Verwendung des Few-Cycle-Laserpulssystems wurde auch wieder zuerst ein statisches elektrisches Feld am Brennpunkt angelegt. Die mit dieser Methode erhaltene THz-Signalförmung im Zeitbereich ist in Abbildung 7.3 dargestellt. Bei dieser Messung war die Phasenstabilisierung des Lasersystems zunächst nicht aktiviert. Eine Mittelung über 50 Scans der zeitlichen Wellenform ohne zusätzliches elektrisches Feld mit aktivierter CE-Phasenstabilisierung ist in Abbildung 7.4 dargestellt.

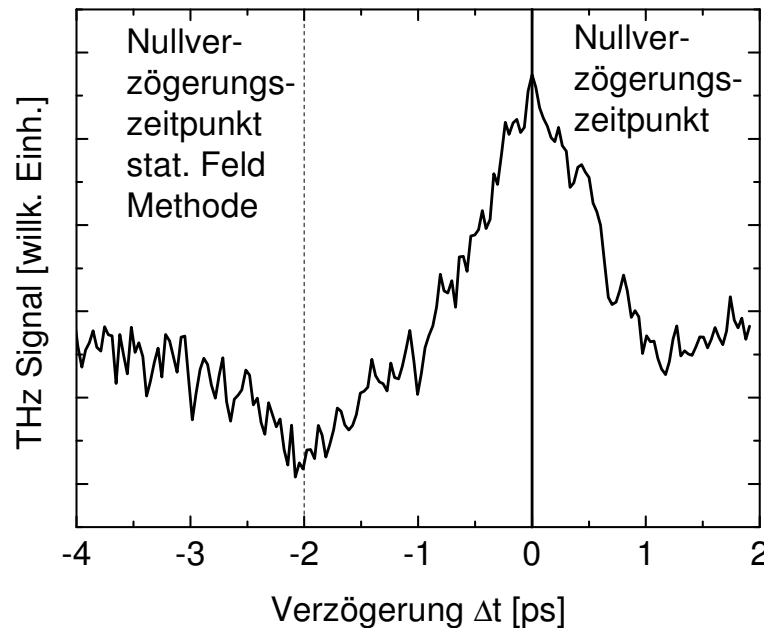


Abbildung 7.4.: Zeitbereich THz-Signal mit aktivierter CE-Phasenstabilisierung, stabilisiert auf eine CE-Phase, für welche die THz-Amplitude maximal ist. Der dargestellte Verlauf ist eine Mittelung über 50 Scans ohne ein zusätzlich am Plasma angelegtes statisches Feld.

Die in Abbildung 7.4 dargestellte THz-Amplitude ohne statisches Feld war etwa um einen Faktor 20 kleiner als die THz-Amplitude mit äußerem elektrischen Feld (Abbildung 7.3). Für einen einzelnen Scan lag die Signalstärke damit in der Größenordnung des Rauschens. Damit kann die THz-Amplitude auf die Größenordnung von etwa $E_{THz} = 10 \text{ V/cm}$ für die THz-Erzeugungsmethode mit der neuen THz-Erzeugungsmethode mit 8 fs und $67 \mu\text{J}$ Pulsen abgeschätzt werden (siehe auch Abschnitt 10.2). Die Korrelationsmessungen der THz-Amplitude und den f-zu-2f-Daten wurden aufgrund des schwachen Signals deshalb nur an der Stelle der maximal erwarteten THz-Amplitude durchgeführt (Nullverzögerungspunkt in Abbildung 7.4). Es sei an dieser Stelle daraufhingewiesen, dass die Nullverzögerungszeitpunkte für die THz-Erzeugungsmethode mit statischem Feld und für die Methode ohne statisches Feld mit konstanter CE-Phase um etwa 2 ps zueinander verschoben sind. Der Nullverzögerungszeitpunkt ist definiert als der Verzögerungszeitpunkt zwischen Anrege- und Abfrage Puls, bei dem das maximale THz-Signal gemessen wird. Das bedeutet das Maximum des THz-Signals, erzeugt mit der statischen Feldmethode, fällt zeitlich nicht exakt mit dem Maximum des THz-Signals, erzeugt mit den phasenstabilen Few-Cycle-Laserpulsen, zusammen. Vergleicht man die Abbildungen 7.3 und 7.4, so liegt, unter Berücksichtigung der 2 ps Zeitverschiebung, das Maximum der statischen Feldmethode zeitlich etwa in dem ersten Extremum des THz-Signals erzeugt mit konstanter CE-Phase.

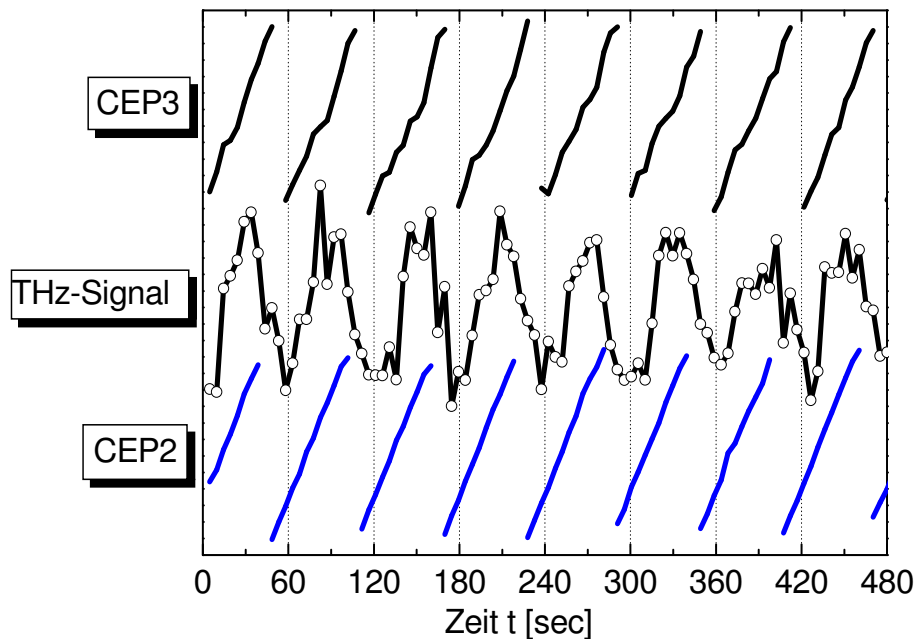


Abbildung 7.5.: Variation der CE-Phase über Sollwertänderung des CE-Phasenregelkreises. Dargestellt sind die gemessenen THz-Amplituden, sowie die simultan gemessenen Werte von CEP2 und CEP3.

Um die Korrelation zwischen der THz-Amplitude und der gemessenen CE-Phase von CEP3 zu überprüfen, wurde in einer ersten Messreihe eine langsame kontinuierliche Variation der CE-Phase über den Sollwert des CE-Phasen-Regelkreises mit einer Rate

von 2π pro Minute durchgeführt. Die dadurch erzeugten minimalen Änderungen in der Pumplaserleistung haben dabei keinen signifikanten Einfluss auf die Ausgangsleistung des Oszillators bzw. Verstärkers. Bei dem durchgeführten Experiment wurde die motorisierte Verzögerungseinheit des THz-Aufbaus im Maximum des THz-Signals aus Abbildung 7.4 angehalten und damit die maximale Amplitude des THz-Signals zusammen mit den Daten der beiden f-zu-2f-Interferometer CEP2 und CEP3 simultan aufgenommen. Die Ergebnisse dieser CE-Phasenvariation sind in Abbildung 7.5 dargestellt. Die Zeitkonstante für die Lock-In Integration betrug bei den Messungen 100 ms. Für die in Abbildung 7.5 dargestellten Werte wurde nachträglich die Zeitkonstante bei der Auswertung der Daten numerisch auf 5 sec erhöht, um eine bessere Rauschunterdrückung für die THz-Daten zu erhalten. Eine Überprüfung der Korrelation der f-zu-2f- und der THz-Daten auf der Zeitskala der Lock-In Integration von 100 ms (nicht dargestellt) ergab keinen Zusammenhang der Kurzzeitfluktuationen der gemessenen Signale, so dass diese Kurzzeitfluktuationen als tatsächliches Rauschen interpretiert werden können, welches die numerische Erhöhung der Zeitkonstanten auf 5 fs rechtfertigt. Die dargestellten Messungen sind ein Auszug von 8 Minuten aus einer insgesamt 74 Minuten dauernden Messung. Die Messungen wurden nach 74 Minuten abgebrochen, da gegen Ende der Messzeit eine Zunahme des Rauschens auf allen Messungen zu beobachten war, was eventuell auf die nicht für die kontinuierliche Variation optimierte CE-Phasenregelung zurückzuführen ist. Bereits hier in dem 8 Minuten Auszug in Abbildung 7.5 lässt sich deutlich erkennen, dass der nach den im Kapitel 5 gemachten theoretischen Betrachtung erwartete cosinus-artige Zusammenhang zwischen der THz-Amplitude und den CEP3 Daten vorhanden ist.

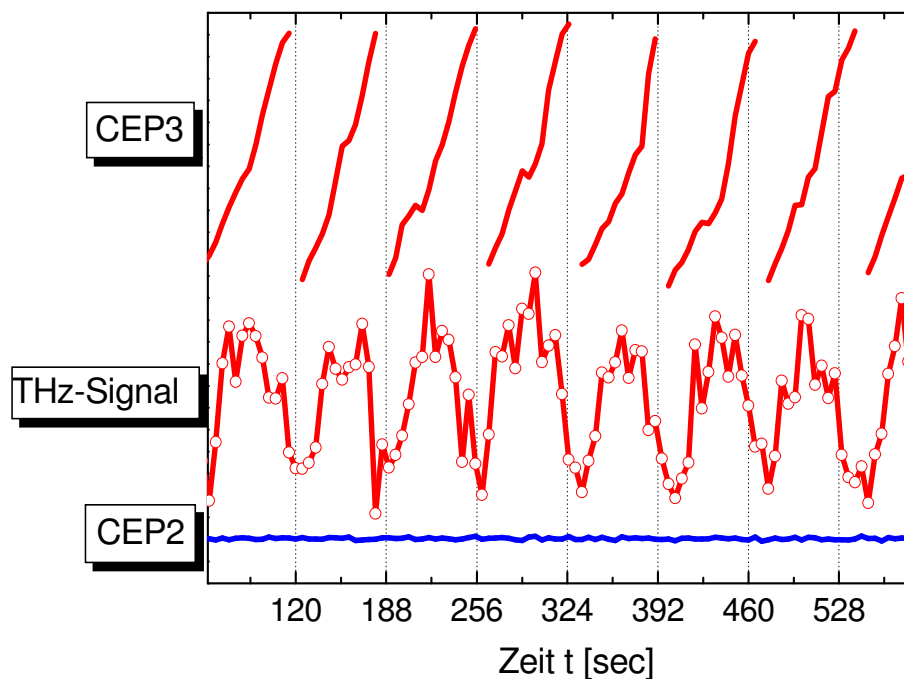


Abbildung 7.6.: Variation der CE-Phase über Verschiebung eines Glaskeilepaars im Strahlpfad.

Um eine zweite davon unabhängige CE-Phasenvariation zu erhalten, wurde in einer zweiten Messreihe die CE-Phase des Regelkreises konstant gehalten und erst direkt vor dem THz-Aufbau und dem dritten f-zu-2f-Interferometer CEP3 über Verschiebung eines Glaskeilepaars (siehe Abbildung 7.1), und damit über zusätzliche Dispersion im Strahlpfad, variiert. Das Glaskeilepaar wurde dabei mit Hilfe einer piezoelektrischen Verschiebeeinheit linear zwischen zwei Punkten verschoben, die einer Variation der CE-Phase um 2π entspricht. Dieser Vorgang wurde periodisch auch wieder mit einer Rate von etwa 2π pro Minute wiederholt. Die wieder simultan gemessenen THz und f-zu-2f-Daten sind in Abbildung 7.6 dargestellt. Die Zeitkonstante wurde auch wieder bei der Auswertung numerisch auf 5 Sekunden erhöht. Der flache Verlauf der CEP2 Daten zeigt die in dieser Messreihe konstant gehaltene CE-Phase des CE-Phasenregelkreises. Auch hier ist der erwartete cosinus-artige Zusammenhang zwischen der THz-Amplitude und den Daten des dritten f-zu-2f-Interferometers CEP3 deutlich zu erkennen.

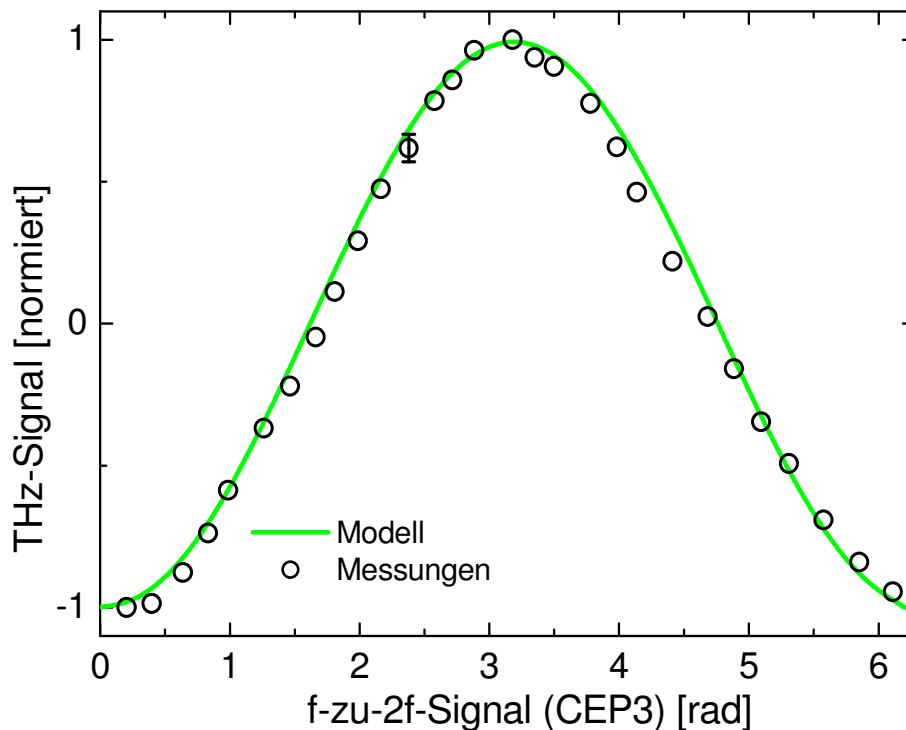


Abbildung 7.7.: Korrelationsdarstellung der THz-Amplitude gegen die CE-Phase bestimmt durch CEP3.

Um eine quantitative Analyse des funktionellen Zusammenhangs der Messwerte zu ermöglichen ist in Abbildung 7.7 eine Korrelationsdarstellung der THz-Amplitude gegen die Messwerte des dritten f-zu-2f-Interferometers CEP3 für die ersten CE-Phasenvariation anhand der Sollwertveränderungen des CE-Phasenregelkreises dargestellt. Für diese Korrelationsdarstellung wurde der komplette Datensatz, der innerhalb der Messzeit von 74 Minuten aufgezeichnet wurde, berücksichtigt. Die als offene Kreise dargestellten Einzelwerte ergeben sich aus der Bildung eines gleitenden Mittelwerts aller THz-Messwerte, die innerhalb eines Bereichs von $\pm 0,5$ rad von CEP3 liegen. Durch diese Mittelwertbil-

ung werden die CEP3 Messwerte implizit als ideal angenommen, d.h. jede Variation auf diesem Signal, auch eventuelles Rauschen, wird so als reale CE-Phasen Variation interpretiert. Damit schlägt sich ein eventuelles Rauschen auf den CEP3 Daten in einer Vergrößerung der Standardabweichung für die THz-Daten nieder. Der exemplarisch angegebene Fehlerbalken zeigt dabei die Standardabweichung des Mittelwerts, der sich aus der Berechnung des gleitenden Mittelwerts ergibt. Die durchgezogene Kurve in Abbildung 7.7 stellt den theoretischen Verlauf dar, der sich aufgrund der Betrachtungen aus Abschnitt 5.4.2 für einen entsprechenden Laserpuls mit der Laserpulsdauer von 8 fs ergibt. Diese theoretische Darstellung enthält dabei einen frei gewählten Anpassungsterm, der eine Verschiebung des theoretischen Verlaufs um einen konstanten Wert ermöglicht. Dieses Vorgehen ist aufgrund von zweierlei Argumenten gerechtfertigt. Zum einen befinden sich die THz-Apparatur und das dritte f-zu-2f-Interferometer CEP3 an unterschiedlichen Positionen im Strahlpfad. Da die CE-Phase eines propagierenden Laserpulses in Luft nicht konstant ist (siehe Abschnitt 2.2), ergibt sich schon aufgrund der verschiedenen Strahlpfadlängen eine unbestimmte aber konstante Phasenverschiebung der Messwerte. Zudem wirken sich unterschiedliche optische Komponenten noch viel stärker in einer CE-Phaseveränderung aus, weshalb die f-zu-2f-Methode auch als nicht „absolute“ Methode zur CE-Phasenbestimmung angesehen wird (vergleiche Abschnitt 2.3). Die Skalierung der Magnitude der theoretischen Werte zu den experimentellen Daten konnte auch frei gewählt werden, da die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Theorie keine vollständig quantitative Berechnung der THz-Amplitude ermöglicht.

Damit lässt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Werten und dem theoretisch berechneten Zusammenhang zwischen der THz-Amplitude und der CE-Phase erhalten.

8. Die „absolute“ Phase

In diesem Kapitel soll diskutiert werden, in wie weit die im Rahmen dieser Arbeit neu vorgestellte Methode zur CE-Phasenmessung einen Absolutwert der CE-Phase liefern kann. Dies soll anhand eines Vergleichs zu der etabliertesten Methode zur CE-Phasenmessung, der Stereo-ATI-Spektroskopie, geschehen. Im Zusammenhang mit der Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase wird in der Literatur oft der Begriff „absolute“ Phase für die CE-Phase verwendet. Diese Bezeichnung ist vielleicht etwas provokativ, da eigentlich alle physikalischen Größen, zumindest in ihrer theoretischen Definition per se, eine absolute Größe besitzen und somit als absolut bezeichnet werden könnten. Deshalb soll zunächst eine Definition des Begriffs unter dem Aspekt der Bedeutung dieser Phase für Anwendungen diskutiert werden.

8.1. Diskussion zur Definition der „absoluten“ Phase

Wie in Abschnitt 2.2 gezeigt wurde, ist die CE-Phase eines Laserpulses in einem dispersiven Medium keineswegs eine räumlich konstante Größe. Die CE-Phasenstabilisierung eines Lasersystems sorgt aber zumindest dafür, dass die CE-Phase von aufeinanderfolgenden Laserpulsen an einem festen Ort eine konstante Größe ist. Dies verdeutlicht, dass somit eine Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase nur in Zusammenhang mit einer Zuordnung eines klar definierten Ortes erfolgen kann. Damit geht in die Genauigkeit der Bestimmung des Absolutwerts der CE-Phase also nicht nur die statistische Genauigkeit des Messwertes einer Methode ein, sondern zusätzlich auch die Genauigkeit der Zuordnung dieses Wertes an einen definierten Ort. Für die praktische Anwendung einer CE-Phasenmessung ist es auch wichtig, ob der gemessene Absolutwert an dem definierten Messort dazu verwendet werden kann, den Absolutwert der CE-Phase an einem anderen Ort, an dem beispielsweise ein anderes CE-Phasen sensitives Experiment durchgeführt wird, zu bestimmen. Die Genauigkeit dieser Rückverfolgbarkeit der CE-Phase hängt dabei entscheidend davon ab, wie nahe das parallel durchgeführte Experiment an den Messort der CE-Phase herangeführt werden kann. Dabei wird die Rückverfolgung der CE-Phase schwieriger und damit ungenauer je größer die optische Weglänge zwischen CE-Phasenmessung und dem Experiment ist, dessen CE-Phasenabhängigkeit untersucht werden soll. Eine CE-Phasenmessmethode, bei der nach der Bestimmung der CE-Phase ein Experiment exakt am Ort der vorherigen Phasenbestimmung durchgeführt werden kann, bietet somit die Aussicht, natürlich unter Berücksichtigung der statistischen Messgenauigkeit, die bestmögliche Präzision in der CE-Phase für das eigentliche Experiment zu liefern.

8.2. Vergleich Stereo-ATI und THz-Emissionsspektroskopie

Sowohl die Stereo-ATI-Energiespektren, die durch einen Few-Cycle laserpuls erzeugten Elektronen, als auch die Emission elektromagnetischer Strahlung im THz-Frequenzbereich, die durch diese Elektronen hervorgerufen wird, können qualitativ sehr gut über die gleiche einfache aber sehr anschauliche Theorie der Starkfeldnäherung (SFA) beschrieben werden. Ein wesentlicher Unterschied in der Anwendung beider Methoden liegt in der Dichte des Mediums, welches zur Ionisation verwendet wird. Während Stereo-ATI im Vakuum betrieben werden muss und nur ein feiner atomarer oder molekularer Strahl im Brennpunkt verwendet wird, erhält man die stärkste THz-Emission aus einem Plasma bei Umgebungsdruck. Die Verwendung von Luft bei Umgebungsdruck hat zwar bei der Anwendung praktische Vorteile, die theoretische Betrachtung wird jedoch durch die höhere Dichte der Moleküle und Elektronen und der damit verbundenen zusätzlichen Wechselwirkungen erschwert und macht zusätzliche Annahmen notwendig. Die wesentliche Erweiterung in der Beschreibung der Elektronentrajektorien wird im Rahmen dieser Arbeit über die Einführung der inkohärenten Streuung der Elektronen an Molekülen und Ionen beschrieben. Die elastische Streuung der Elektronen, bei der Elektronen mit einer höheren kinetischen Energie erzeugt werden, wird dabei bislang vernachlässigt. Aus Stereo-ATI Spektren [31] lässt sich abschätzen, dass die Anzahl der elastisch gestreuten Elektronen in etwa um zwei Größenordnungen kleiner ist, als die Anzahl der nicht gestreuten Elektronen. Damit ist in erster Näherung die Vernachlässigung der elastischen Streuung zunächst gerechtfertigt. Eine genauere theoretische Untersuchung des Einflusses der elastischen Streuung auf die Absolutbestimmung der CE-Phase mit der THz-Methode wäre in Zukunft aber sicher wünschenswert. Die Anzahl der inelastisch gestreuten Elektronen ist noch einmal um etwa zwei Größenordnungen geringer als die Anzahl der elastisch gestreuten Elektronen, so dass der Einfluss der inelastisch gestreuten Elektronen sicherlich auch für die THz-Erzeugung zukünftig vernachlässigt werden kann.

Ein wohl essenziellerer Vorteil der Stereo-ATI Methode im Vergleich zur THz-Methode liegt in der Betrachtung der Elektronen eines stark eingeschränkten Bereichs der Brennpunktregion, welcher durch die Spaltblenden bedingt ist. Dies rechtfertigt die Vernachlässigung der räumlichen Dimension, die der Laserpulsausbreitungsrichtung entspricht, für die Stereo-ATI Methode. Die THz-Emission in Ausbreitungsrichtung ist hingegen eine Konsequenz der Elektronenbewegung in einer ausgedehnten Plasmaregion¹. Im folgenden Abschnitt soll abgeschätzt werden, wie sich eine Berücksichtigung dieser räumlichen Dimension auf die THz-Emission und auf die Absolutwertbestimmung der CE-Phase auswirkt.

Ein nicht unwesentlicher Vorteil der THz-Methode ist der relativ einfache experimentelle Aufbau, der beispielsweise kein Vakuum benötigt und damit dem Anwender einen erheblichen zeitlichen und finanziellen Aufwand erspart.

¹Eine Abschätzung der Plasmadimensionen in Abhängigkeit der Laserpulsenergie und der Brennweite ist in Abschnitt 3.5.2 zu finden

8.3. Einfluss von Propagationseffekten auf die Absolutwertbestimmung der CE-Phase mit THz-Emissionsspektroskopie

Durch die vereinfachende Annahme eines punktförmigen Plasmas, in der in Kapitel 5 gemachten Modellierung der THz-Emission aus mit Few-Cycle-Laserpuls erzeugten Plasmen, wurden bislang alle möglichen Propagationseffekte wie z.B. die Absorption der optischen Strahlung mit voranschreitender Propagation des Laserpulses im Plasma, Absorption der THz-Strahlung im Plasma, Beeinflussung der CE-Phase durch Dispersion im Plasma oder auch eine mögliche Interferenz der an verschiedenen Stellen im Plasma erzeugten THz-Strahlung vernachlässigt. Für eine qualitative Untersuchung der CE-Phasenabhängigkeit der THz-Amplitude, wie sie in Abschnitt 5.4.2 gemacht wurde, ist dies hinreichend. Für eine exakte quantitative Untersuchung, die eine Voraussage der Absolutgröße der THz-Amplitude beinhaltet bzw. auch die Absolutbestimmung der CE-Phase basierend auf der Messung der THz-Amplitude ermöglicht, müssen diese Effekte berücksichtigt werden. Aufgrund der hohen Teilchenzahldichte ist eine Berücksichtigung aller genannter Effekte in einer Modellierung sehr aufwendig und geht über den Rahmen dieser Arbeit hinaus. In den folgenden Abschnitten soll jedoch der Einfluss der einzelnen Propagationseffekte zumindest getrennt voneinander untersucht werden.

8.3.1. Dispersion der CE-Phase im Plasma

In diesem Abschnitt soll abgeschätzt werden, ob während der Propagation des Laserpulses durch das durch den Laserpuls selbst erzeugte Plasma eine signifikante Änderung der CE-Phase zu erwarten ist. Eine einfache Abschätzung kann hierfür anhand des Drude Modells für ein freies Elektronengas durchgeführt werden. Demnach ist der Brechungsindex eines freien Elektronengases durch

$$\begin{aligned} n_{pl} &= \sqrt{1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2}} \\ &= \sqrt{1 - k\lambda^2} \\ \text{mit } k &= \frac{\rho e^2}{4\pi^2 \epsilon_0 m_e c^2} \end{aligned} \quad (8.1)$$

gegeben. ω_{pl} ist hierbei die Plasmafrequenz, ω die optische Kreisfrequenz und ρ die Plasmadichte. Mit Hilfe der einfachen Ableitung

$$\frac{dn_{pl}}{d\lambda} \simeq -k\lambda. \quad (8.2)$$

und der aus dem im Abschnitt 2.2 hergeleiteten Gleichung 2.8 kann die Weglänge d_π ,

die ein Laserpuls in einem Elektronengas zurücklegen muss, um eine Änderung in der CE-Phase von π zu erfahren, durch

$$d_{\pi} \simeq \frac{1}{2} \left| \frac{1}{k\lambda} \right| \quad (8.3)$$

bestimmt werden. Gehen wir nun wieder von einer Plasmadichte in der Größenordnung von etwa 10 % der Gesamtteilchendichte (d.h. $\rho = 2,7 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$) aus, so ergibt sich daraus für $k = 1,21 \cdot 10^9 \text{ m}^{-2}$ ein $d_{\pi} \simeq 276 \mu\text{m}$ (bei $\lambda = 800 \text{ nm}$). Aus den theoretischen Betrachtung der Plasmadimensionen aus Abschnitt 3.4 und den in Abschnitt 3.5.2 gezeigten Mikroskopaufnahmen kann die typische Länge eines mit 150 fs langen Pulsen erzeugten Plasmas auf einige hundert μm abgeschätzt werden. In erster Näherung ist davon auszugehen, dass unter Verwendung von Few-Cycle-Pulsen zur Plasmaerzeugung Plasmalängen in der gleichen Größenordnung erzeugt werden. Damit ist durchaus eine signifikante Beeinflussung der CE-Phase durch die Plasmaerzeugung zu erwarten. Da der Laserpuls selbst erst das Plasma erzeugt, erfährt allerdings nicht der ganze Laserpuls die gleiche Dispersion. Der führende Teil des Laserpulses wechselwirkt mit einer geringeren Plasmadichte als der darauffolgende Teil des Laserpulses. Damit wird es also genau genommen während der Propagation und gleichzeitigen Plasmaerzeugung nicht nur zu einer CE-Phasenverschiebung durch das Plasma, sondern auch zu einer zeitlichen Pulsverbreiterung und auch einer zeitlichen Verschiebung der einzelnen spektralen Komponenten des Pulses relativ zueinander kommen („chirp“). Ohne eine weitere genauere quantitative Untersuchung ist nach den in diesem Abschnitt gemachten Abschätzungen zu erwarten, dass es durch die zusätzliche Dispersion, welche durch das Plasma erzeugt wird, zu einer signifikanten Beeinflussung der CE-Phase des Few-Cycle-Pulses kommen kann.

8.3.2. Einfluss der Gouy-Phase auf die THz-Erzeugung mit Few-Cycle-Pulsen

Bei der Fokussierung gaußscher Strahlen tritt beim Durchlaufen durch den Brennpunkt eine Phasenänderung um $\varphi_G = \pi$ auf. Dieser von den geometrischen Fokussierungsparametern abhängige Term wird als Gouy-Phase [22] bezeichnet. Legt man den Ort des Brennpunkts in Bezug auf die Ausbreitungsrichtung des Strahls auf $z = 0$, so lässt sich die Gouy-Phase als Funktion von z und den Fokussierungsparametern beschreiben durch

$$\varphi_G = -\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right). \quad (8.4)$$

z_R ist dabei die Rayleigh-Länge und kann über

$$z_R = \frac{\pi r_{min}^2}{\lambda} \quad (8.5)$$

berechnet werden. Unter Berücksichtigung von Kerr-Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung kann der minimale Strahlradius r_{min} in Abhängigkeit der fokussierenden Parameter bestimmt werden. Dieser ist aufgrund der dominierenden Plasma-Defokussierung deutlich größer als der nach der gaußschen Strahlausbreitung zu erwartende minimale Strahlradius r_0 . Für eine Brennweite von 80 mm und eine Laserpulsenergie von $66 \mu\text{J}$ ergibt sich ein minimaler Strahlradius von etwa $40 \mu\text{m}$. Daraus folgt eine Rayleigh-Länge von $z_R = 6,7 \text{ mm}$. Geht man nun von einer Plasmalänge von 1 mm aus, so kann der Einfluss der Gouy Phase auf die CE-Phase über

$$\Delta\varphi_{CE} = -2 \cdot \arctan\left(\frac{0,5}{6,7}\right) \simeq \frac{\pi}{20} \quad (8.6)$$

berechnet werden. Damit ist die CE-Phasenänderung, die allein aufgrund der Fokussierung entsteht, im Vergleich zu dem dispersiven Effekt aus Abschnitt 8.3.1 für die THz-Erzeugung eher vernachlässigbar.

8.3.3. Abschätzung der optischen Absorption durch die Plasmaerzeugung

In diesem Abschnitt soll abgeschätzt werden, wieviel Energie dem Laserpuls aufgrund der Plasmaerzeugung und der Beschleunigung der Elektronen im Laserfeld entzogen wird. Eine Verringerung der Laserpulsenergie durch die Plasmaerzeugung wirkt sich dabei hauptsächlich auf die Größe des durch den Laserpuls erzeugten Plasmas aus, da durch den selbst-regulierenden Mechanismus der Plasmadefokussierung (vergleiche Abschnitt 6.2.2) die Feldstärke über den Strahlradius in der Fokusregion solange auf einen bestimmten Wert limitiert ist, wie die Intensität der Laserstrahlung ausreicht, um die für die Plasmadefokussierung notwendige Plasmadichte zu erzeugen. D.h. dadurch, dass durch die Plasmadefokussierung der minimale Strahlradius vergrößert ist, wirkt sich eine Reduzierung der Laserpulsenergie durch die Plasmaerzeugung nur in einer Abnahme des minimalen Strahlradiuses aus, welches effektiv das Plasma verkleinert.

Um den Energieverlust des Laserpulses durch die Ionisation zu quantifizieren, betrachten wir zunächst die Energie, die für die Ionisation eines einzelnen Elektrons aufgebracht werden muss. Diese lässt sich einfach aus dem ersten Ionisationspotential von Stickstoff mit $U_{N_2} = 15,6 \text{ eV} = 2,5 \cdot 10^{-18} \mu\text{J}$ abschätzen. Aus Kapitel 3.5.2 kann die Untergrenze für das Plasmavolumen $V_{pl} \approx 10^{-12} \text{ m}^3$ abgeschätzt werden und aus Abschnitt 6.2 schätzen wir die mittlere Plasmadichte auf etwa 10 % bis 20 % der Moleküldichte und damit auf etwa $\rho = 2,7 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ab. Damit werden also insgesamt ca. $2,7 \cdot 10^{12}$ freie Elektronen erzeugt, was einem Energieaufwand zur Plasmaerzeugung von etwa $7 \mu\text{J}$ entspricht. Betrachten wir nun die Energie, die dem Puls aufgrund der Beschleunigung der Elektronen entzogen wird, so kann diese über die ponderomotive Energie eines Elektrons im Laserfeld wie in Abschnitt 5.3 abgeschätzt werden. Danach beträgt die mittlere kinetische Energie eines Elektrons im Laserfeld in der Stärke der Ionisationsschwelle ca. 9 eV. Dies entspricht einem Energieaufwand für die Beschleunigung aller Elektronen im Plasma von weiteren $\sim 4 \mu\text{J}$, die dem Laserpuls entzogen werden. Die Untergrenze für den Gesamtenergieverlust des Laserpulses durch die Ionisation beträgt damit ca. $11 \mu\text{J}$, welches bereits 16 % der in Kapitel 7 experimentell zur Verfügung stehenden Laserpulsenergie entspricht. Da es sich bei der Abschätzung des Plasmavolumens in Abschnitt 3.5.2 nur um eine Untergrenze des Plasmavolumens handelt und die Abschätzung der Plasmadichte auf 10 % auch nur als eine untere Grenze angesehen werden kann, ist also damit zu rechnen, dass dem Laserpuls sogar noch deutlich mehr Energie entzogen wird. Diese Abschätzung soll verdeutlichen, dass trotz der prinzipiell möglichen hohen Spitzenintensitäten in einem Few-Cycle-Laserpuls, die Pulsenergie gerade im Bereich $J_{opt} < 100 \mu\text{J}$ entscheidenden Einfluss auf die Größe des Plasmavolumens haben wird, da dem Laserpuls ein signifikanter Anteil der Pulsenergie entzogen wird. Das verringerte Plasmavolumen in diesem niedrigen Energiebereich wirkt sich damit direkt auf die THz-Emission aus, welches wohl ein weiterer Grund für die geringe experimentell beobachtete THz-Signalstärke in Kapitel 7 ist. Eine zusätzliche Berücksichtigung der Absorption im Plasma in der Modellierung könnte sich zudem auf den Absolutwert der bestimmten CE-Phase auswirken, da die Elektronen dann im Einzelnen durch einen Laserpuls mit verringerter Energie und somit reduzierter Feldstärke beschleunigt werden. Dieses jedoch in die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten klassischen Modellierung zu implementieren ist problematisch, da eine genaue zeitlich Zuordnung der absorbierten Photonen und deren Auswirkung auf die

Feldstärke des Laserpulses mit einer gewissen Unbestimmtheit belegt sind. Eine Berücksichtigung der Absorption im Plasma muss also eher anhand einer quantenmechanischen Modellierung geschehen.

9. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die THz-Erzeugung in laserinduzierten Plasmen, sowohl experimentell als auch theoretisch, untersucht. Dabei wurde der Schwerpunkt der Untersuchungen auf die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung und auf die im Rahmen dieser Arbeit neu vorgestellte THz-Erzeugungsmethode unter Verwendung von Few-Cycle-Laserpulsen gelegt. Die beiden genannten THz-Erzeugungsmethoden können dabei durch die gleiche theoretische Betrachtungsweise erklärt werden, wobei sich die Beschreibung nur in der zeitlichen Form der verwendeten Laserpulse unterscheidet. Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Modellvorstellung liefert auf mikroskopischer Ebene einen anschaulichen Ansatz für den Ursprung der im Plasma erzeugten nichtlinearen Polarisation, die zur Emission von Strahlung im THz-Frequenzbereich führt. Diese Betrachtungsweise steht dabei nicht grundsätzlich im Widerspruch mit dem phänomenologischen Erklärungsansatz des Vier Wellen Mischens aus Kapitel 4, welche die THz-Erzeugung auf Basis einer formellen Behandlung mit Hilfe der Werkzeuge der nichtlinearen Optik beschreibt. Ein wesentlicher Kritikpunkt an der formellen Beschreibung ist jedoch, dass diese Betrachtungsweise auf eine Nichtlinearität des Plasmas dritter Ordnung beschränkt ist. Dies ist bei der hier entwickelten mikroskopischen Betrachtungsweise nicht der Fall. Zudem setzt die hier entwickelte Modellierung den Ursprung der nichtlinearen Polarisation in einen sehr engen Zusammenhang mit dem Ionisationsprozess. In der phänomenologischen Betrachtungsweise könnte die nichtlineare Suszeptibilität auch eine Eigenschaft eines bei Eintreffen des Laserpulses bereits vorhanden Plasmas sein und würde dabei unter diesen experimentellen Gegebenheiten zu einer THz-Emission führen. In der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten mikroskopischen Modellierung hätte dieser Fall jedoch keine THz-Emission zur Folge. Dies stellt eine Diskrepanz der beiden Modellvorstellungen, zumindest unter der Annahme, dass die nichtlineare Suszeptibilität eine Eigenschaft eines jeden Plasmas und der dominante Ursprung für die THz-Emission ist, dar.

Im Zusammenhang mit der THz-Erzeugungsmethode unter Verwendung von Few-Cycle-Laserpulsen, sowohl zur Plasma-, als auch zur THz-Erzeugung, wurde eine Anwendung dieser THz-Erzeugungsmethode zur Bestimmung der Trägereinhüllenden (CE)-Phase von den plasmaerzeugenden Few-Cycle-Laserpulsen vorgestellt. Über die Messung der THz-Amplitude kann dabei sehr einfach auf die CE-Phase zurückgeschlossen werden. Die in diesem Zusammenhang aufkommende Frage, ob die neue CE-Phasenmessmethode einen Absolutwert der CE-Phase liefern kann, wurde diskutiert, jedoch mit dem Fazit, dass eine Aussicht auf eine eindeutige Klärung dieser Frage wohl nur durch weitere, sehr aufwendige Modellierungen besteht.

10. Ausblick

Im Zusammenhang mit der Anwendung der im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten neuen THz-Erzeugungsmethode zur Bestimmung der CE-Phase von Few-Cycle-Laserpulsen, ist natürlich die Frage, wie die Genauigkeit der Messmethode gesteigert werden kann, von besonderem Interesse¹. Verbesserungsvorschläge hierzu werden in Abschnitt 10.1 diskutiert.

Ein weiterer wichtiger Punkt betrifft die zu erwartende maximale THz-Feldstärke. Die Frage, ob nach weiterer Optimierung im Vergleich zu den bereits bekannten THz-Emitttern diese neue Methode eventuell in neue THz-Feldstärkenbereiche vordringen kann, welches neue Anwendungen und fundamental physikalische Untersuchungen ermöglichen würde, soll diskutiert werden.

Eine Abschätzung der zu erwartenden maximalen THz-Feldstärke und der notwendigen Maßnahmen zur Optimierung wird in Abschnitt 10.2 diskutiert.

10.1. Verbesserung der CE-Phasenmessgenauigkeit

Allgemein gilt, dass die Genauigkeit einer Messmethode mit dem Signal-zu-Rausch Verhältnis (SNR, engl. Signal-to-Noise-Ratio), welches den jeweiligen Messung zugrunde liegt, skaliert. Damit kommt der Optimierung des SNR eine besondere Bedeutung zu. Das SNR kann trivialer Weise durch Erhöhung der Signalstärke oder durch Verringerung des Rauschniveaus verbessert werden.

Vorschläge zur Steigerung der Signalstärke

Basierend auf der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Theorie gibt es zwei verschiedene Ansätze die vom Plasma emittierte THz-Signalstärke zu steigern. Zum einen kann versucht werden die Stärke der Polarisation im Plasma zu vergrößern und zum anderen kann über Vergrößerung des Plasmavolumens bis zu einem gewissen Grade ebenfalls die THz-Emission gesteigert werden.

Der einfachste Ansatz die Polarisation im Plasma zu steigern ergibt sich über die Verwendung kürzerer Laserpulse zur Plasmaerzeugung. Nach Abbildung 5.14 erhöht sich die Polarisation im Plasma etwa um einen Faktor 20 bei der Verwendung von Laserpulsen mit Pulsdauern von 3 fs im Vergleich zu 8 fs. Dieser Faktor sollte sich direkt auf das SNR auswirken.

¹Auch im Falle einer nicht absoluten CE-Phasenbestimmung ist die Steigerung der Messgenauigkeit relevant.

Der Ansatz die Polarisation über eine Steigerung der freien Ladungsträgerdichte im Plasma zu erhöhen, bspw. durch Fokussierung im Vakuum auf einen Festkörper, erscheint nach den Betrachtungen aus Abschnitt 5.3 als eher wenig erfolgsversprechend. Es ist davon auszugehen, dass die Abschätzung der Streuzeiten übertragbar auf den Fall der Few-Cycle-Laserpulse ist und eine Steigerung der Plasmadichte nur die Streuzeit für die Elektron-Ionen-Streuung verringern würde. Dieses würde dann zumindest zum Teil die gewünschte Steigerung der Polarisation durch die Erhöhung der freien Ladungsträger kompensieren.

Eine Vergrößerung des Plasmavolumens ist durch eine Erhöhung der Laserpulsenergie zu erwarten (vergleiche Abschnitt 3.6). Eine genauere Abschätzung des Verbesserungsfaktors im SNR ist allerdings schwierig, da das Plasmavolumen nicht nur eine Funktion der Pulsenergie sondern auch der Pulsdauer ist.

Eine Möglichkeit das Plasmavolumen bei konstanter Laserpulsenergie zu steigern könnte die Verwendung eines Gases mit einem niedrigeren Ionisationspotential als Stickstoff ($U_{ion}^{N_2} = 15,6$ eV) sein. Die Verwendung eines solchen Gases wäre besonders sinnvoll für den Fall nur geringer zur Verfügung stehender Laserpulsenergie, da die Energie, die zur Ionisation aufgebracht werden muss, dem Laserpuls entnommen wird und eine Verkleinerung des Plasmavolumens zur Folge hat.

Die Verwendung eines anderen Gases ist allerdings wieder mit Einbußen in der einfachen Anwendbarkeit und zusätzlich mit eventuellen Signalverlusten durch Kammerfenster verbunden. Sinnvoll könnte hierbei eventuell die Verwendung eines Gasstrahls im Brennpunkt bei Umgebungsdruck sein.

Vorschläge zur Steigerung der THz-Detektionsempfindlichkeit

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurden mit Hilfe eines mit der Hälfte der Laserwiederholrate modulierten THz-Signals unter Verwendung von Lock-In Integration durchgeführt. Ein Lock-In Verstärker ist dabei ein wirkungsvolles Instrument für die Unterdrückung von Rauschkomponenten, die nicht der Modulationsfrequenz des Signals entsprechen. Besonders effektiv ist die Lock-In Methode je höher die Modulationsfrequenz ist, da Laser oft ein Rauschverhalten $\propto f_{rep}^{-1}$ zeigen. Die relativ geringen Modulationsfrequenzen, die durch die Verwendung von Verstärkerlasern mit einer Wiederholrate im kHz Bereich begrenzt sind, schränken dabei die Effektivität der Lock-In Methode zur Rauschunterdrückung ein.

Die Verwendung eines Boxcar-Integrators zur Auswertung der Photodiodensignale ist eine viel versprechende Alternative in der elektrischen Signalverarbeitung für Lasersysteme mit einer niedrigen Wiederholrate. Unter Verwendung von Boxcar-Integration kann auf eine Modulation des THz-Signals ganz verzichtet werden, was zudem den Vorteil hat, dass dadurch prinzipiell die Einzelschussdetektion ermöglicht wird. Der Hauptvorteil der Boxcar-Integration liegt aber in der Möglichkeit zeitlich sehr kurze elektrische Signale (\sim ns) zu detektieren, ohne das elektrische Rauschen an den Photodioden in den langen Zeitabständen zwischen zwei Laserpulsen (\sim ms) aufzuintegrieren.

Eine etwas aufwendigere Möglichkeit die Empfindlichkeit der THz-Detektion zu verbessern könnte die Verwendung eines Bolometers bieten. Dabei geht allerdings ohne zusätzliche Maßnahmen die Phaseninformation des THz-Signals verloren. Dieses Problem kann durch Heterodyn-Detektion unter Verwendung eines lokalen THz-Oszillators beseitigt werden. Dies ist eine sehr sensitive Methode der THz-Detektion, bei der die Sensitivität direkt mit der Intensität des lokalen THz-Oszillators skaliert.

10.2. Abschätzung der maximal möglichen THz-Feldstärke

Wie bereits am Anfang dieses Kapitels erwähnt, soll in diesem Abschnitt die zu erwartende THz-Emissionsstärke des neuen THz-Emitters basierend auf Few-Cycle-Laserpulsen nach Optimierung auf maximale THz-Emission abgeschätzt werden. Dazu soll zunächst die THz-Feldstärke, die das Plasma erzeugt, mit 8 fs, 67 μJ Pulsen emittiert abgeschätzt werden. Dies kann anhand eines Vergleichs der THz-Signalstärke der statischen Feldmethode an beiden Lasersystemen erfolgen. Das THz-Signal mit der statischen Feldmethode unter Verwendung des 150 fs Lasersystems war etwa doppelt so groß wie das entsprechende Signal mit dem Few-Cycle-Laserpulssystem. Mit diesem Verhältnis kann unter Berücksichtigung der experimentellen Daten aus Abbildung 3.10 das THz-Signal mit der statischen Feldmethode unter Verwendung der Few-Cycle-Pulse auf etwa $E_{THz}^{DC} = 250 \text{ Vcm}^{-1}$ abgeschätzt werden. Das THz-Signal mit statischem Feld wiederum war an diesem Lasersystem um einen Faktor 20 stärker als das gesuchte THz-Signal mit stabilisierter CE-Phase ohne statisches Feld. Damit kann die THz-Amplitude erzeugt mit CE-phasenstabilisierten 8 fs, 67 μJ Laserpulsen auf etwa $E_{THz}^{CE} \sim 10 \text{ Vcm}^{-1}$ abgeschätzt werden. Diese Abschätzung ist auch in guter Übereinstimmung mit dem beobachteten Signal-zu-Rausch Verhältnis, bzw. der Tatsache, dass das Signal in der Größenordnung des Rauschniveaus liegt. Nach den in Abbildung 5.14 dargestellten Berechnungen ist bei der Verwendung von Laserpulsen mit einer Pulsdauer von 3 fs, anstatt der 8 fs Pulse, eine Steigerung der Polarisation um gut eine Größenordnung zu erwarten. Dieser Faktor sollte sich direkt auf die THz-Amplitude auswirken. Gleichzeitig sollte das Plasmavolumen bei konstanter Laserpulsenergie leicht zunehmen, da durch Verwendung der kürzeren 3 fs Pulse die Ionisationsschwelle früher erreicht wird. Eine genauere Quantifizierung der Plasmavergrößerung durch die kürzeren Pulse ist allerdings schwierig. Eine weitere Steigerung der THz-Signalstärke kann durch Erhöhen der Pulsenergie und der damit verbundenen weiteren Vergrößerung des Plasmavolumens geschehen. Dabei wird es von der verwendeten Brennweite zur Fokussierung abhängen, ab welcher Energie eine Plasmagröße erreicht wird, bei der die THz-Amplitude aufgrund von Phasenfehl Anpassungseffekten nicht weiter gesteigert werden kann. Auch hier ist eine exakte Abschätzung der durch die Steigerung der Pulsenergie erzeugten Steigerung in der THz-Amplitude sehr schwierig. Betrachtet man jedoch den großen Unterschied in der als Untergrenze abgeschätzten THz-Feldstärke für 3 fs Pulse von etwa $E_{THz}^{CE} \sim 100 \text{ Vcm}^{-1}$ zu den maximalen Feldstärken erreicht mit Überlagerung der zweiten Harmonischen von etwa $E_{THz}^{AC} \sim 7,5 \text{ kVcm}^{-1}$ (vergleiche Abbildung 3.12), so klafft dort schon eine deutliche Lücke von fast 2 Größenordnungen. Ob diese Lücke durch Steigerung des Plasmavolumens durch die Erhöhung der Pulsenergie geschlossen werden kann, muss Gegenstand weiterer experimenteller Untersuchungen sein.

A. Anhang

A.1. Verzeichnis der Natur- und Materialkonstanten

c	$= 2,99792 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
ϵ_0	$= 8,8541 \cdot 10^{-12} \frac{As}{Vm}$	Elektrische Feldkonstante
e	$= 1,60219 \cdot 10^{-19} C$	Elementarladung des Elektrons
m	$= 9,1 \cdot 10^{-31} kg$	Masse des Elektrons
\hbar	$= 1,06 \cdot 10^{-34} Js$	Planksches Wirkungsquantum $\cdot 2\pi$
ω_a	$= 4,13 \cdot 10^{16} 1/s$	Atomare Einheit der Frequenz
E_a	$= 5,145 \cdot 10^{11} V/m$	Atomare Einheit des elektrischen Feldes
U_{ion}^H	$= 13,6 eV$	Erstes Ionisationspotential für Wasserstoff
$U_{ion}^{N_2}$	$= 15,6 eV$	Erstes Ionisationspotential für molekularen Stickstoff
$U_{ion}^{O_2}$	$= 12,1 eV$	Erstes Ionisationspotential für molekularen Sauerstoff
n_2	$= 5 \cdot 10^{-19} cm^2 W^{-1}$	Nicht-linearer Brechungsindex der Luft
ρ_{gas}^0	$= 2,7 \cdot 10^{25} m^{-3}$	Moleküldichte bei Umgebungsdruck

A.2. Verzeichnis der verwendeten Variablen

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
a	Strahlradius vor der Fokussierung	m
d	BBO zu Fokusabstand	cm
d_π	Charakteristische Weglänge bei der eine CE-Phasenänderung von π auftritt	cm
\vec{E}_i	Fernfeld eines mikroskopischen Dipols	V/m
E_{st}	Statisches elektrisches Feld	kV/m
E_{opt}	Amplitude der elektrischen Feldstärke der optischen Strahlung	V/m
E_ω^0	Amplitude der elektrischen Feldstärke der optischen Strahlung mit der Fundamentalfrequenz ω	V/m
$E_{2\omega}^0$	Amplitude der elektrischen Feldstärke der optischen Strahlung mit der zweiten harmonischen Frequenz 2ω	V/m
E_{THz}	Amplitude der elektrischen Feldstärke der THz-Strahlung	V/m
E_{THz}^{AC}	THz-Amplitude mit der Methode der Überlagerung der zweiten harmonischen Frequenz	V/m
E_{THz}^{DC}	THz-Amplitude mit der Methode mit angelegtem statischen Feld	V/m
E_{THz}^{CE}	THz-Amplitude mit der Methode der konstanten CE-Phase	V/m
f	Brennweite der Fokussieroptik	mm
f_{rep}	Wiederholrate des Lasers	Hz
$\varphi_{\omega 2\omega}$	Relative Phase zwischen ω und 2ω	-
φ_{CE}	Trägereinhüllenden Phase (CE-Phase)	-
φ_{CE}^{max}	Trägereinhüllenden Phase (CE-Phase) für die ein maximales THz-Signal erzielt wird.	-
\vec{F}_{pon}	ponderomotive Kraft, die ein Laserpuls auf ein Elektron ausübt	N
Γ	Krümmungsradius der Wellenfronten	m^{-1}
I_{opt}	Flächenintensität der optischen Strahlung	Wcm^{-2}
I_ω	Spektrale Intensität mit der Frequenz Omega	-
J_{opt}	Laserpulsenergie der optischen Strahlung	μJ
l_{Mol}	Mittlere freie Weglänge der Elektronen für Elektron-Molekülstreuung	nm
l_{Mol}	Mittlere freie Weglänge der Elektronen für Elektron-Ionenstreuung	nm
λ	optische Wellenlänge	nm
n	Brechungsindex der Luft	-
n_g	Gruppenbrechungsindex	-
n_{ph}	Phasenbrechungsindex	-
n_{pl}	Brechungsindex eines Plasmas nach Drude	-

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
ω	Kreisfrequenz der optischen Strahlung	rad/sec
ω_{pl}	Kreisfrequenz der Plasmaschwingung der Elektronen	rad/sec
Ω_{THz}	Kreisfrequenz der THz-Strahlung	rad/sec
\vec{p}_i	mikroskopisches Dipolmoment	Cm
$P(t_0, t_s)$	Polarisation	Cm ⁻²
P_{nl}	nicht-lineare Polarisation	Cm ⁻²
P_{gas}	Gas bzw. Luftdruck	bar
$R_{\omega 2\omega}$	Blau-Rot Verhältnis	-
R_E	Asymmetrie in der elektrischen Feldverteilung	-
R_ρ	Asymmetrie in der Plasmadichte	-
ρ	Plasmadichte	m ⁻³
ρ_{gas}	Gasdichte	m ⁻³
ρ^+	Plasmadichte erzeugt während positiver Feldstärke	m ⁻³
ρ^-	Plasmadichte erzeugt während negativer Feldstärke	m ⁻³
ρ_{total}	Gesamtplasmadichte	m ⁻³
ρ_{res}	Plasmadichte für die ein resonantes Verhalten mit der Pulseinhüllenden erwartet wird	m ⁻³
ρ^{PDF}	Plasmadichte für die ein Einsetzen signifikanter Plasmadefokussierung zu erwarten ist	m ⁻³
r^*	Volle Halbwertsbreite des Strahlradius	μm
r_0	Geometrischer Fokusradius nach gaußscher Strahlausbreitung	μm
r_{min}	Minimaler Strahlradius unter Berücksichtigung von Plasmadefokussierung	μm
$\chi^{(i)}$	elektrische Suszeptibilität i-ter Ordnung	(m V ⁻¹) ⁽ⁱ⁻¹⁾
σ_{Mol}	Wirkungsquerschnitt für Elektron-Molekülstreuung	m ²
σ_{Ion}	Wirkungsquerschnitt für Elektron-Ionenstreuung	m ²
τ	Volle Halbwertsbreite der Laserpulsdauer	fs
T_e	mittlere Temperatur der Elektronen im Plasma	eV
t_0	Ionisationszeitpunkt	fs
t_s	Streuzeit der Elektronen	fs
t_s^{Mol}	Streuzeit der Elektronen für Elektron-Molekülstreuung	sec
t_s^{Ion}	Streuzeit der Elektronen für Elektron-Ionenstreuung	sec
U_p	Ponderomotives Potential eines Elektrons in einem Laserpuls	J
V	Plasmavolumen	m ³
\bar{v}_e	Mittlere Geschwindigkeit der Elektronen im Laserpuls	m sec ⁻²
v_g	Gruppengeschwindigkeit der Laserpulsausbreitung	m/sec
v_{ph}	Phasengeschwindigkeit des Lichts	m/sec
w_{tun}	Ionisationsrate basierend auf statischer Tunneltheorie	1/sec

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
$x(t_0, t_s)$	Entfernung eines Elektrons zu seinem zugehörigen Ion zum Zeitpunkt $t_0 + t_s$. Das Elektron wurde zum Zeitpunkt t_0 ionisiert und für die Zeitspanne t_s im Laserfeld beschleunigt	nm
z_R	Rayleigh-Länge der Gaußschen Strahlausbreitung	μm

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Schematische Darstellung eines f-zu-2f-Interferometers	14
2.2.	Schematische Darstellung eines Stereo-ATI-Spektrometers. Der Stereo-ATI-Aufbau erfordert eine Ultrahochvakuum-Kammer (UHV).	17
3.1.	Ionisationsrate basierend auf statischer Tunneltheorie.	25
3.2.	Asymmetrische Feldverteilung in der Überlagerung einer Fundamental- frequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω , für die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$	29
3.3.	Modellierte Plasmadichten (Größenordnung 10^{-25} m^{-3}) für fokussierte Laser- pulse (mit einer Pulsenergie $J_{opt} = 500 \mu\text{J}$, Pulsdauer $\tau = 150 \text{ fs}$, Wellen- länge $\lambda = 800 \text{ nm}$) für 4 verschiedene Brennweiten ($f = 40, 80, 120, 160 \text{ mm}$). 33	
3.4.	Modelliertes Plasmavolumen in Abhängigkeit von der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 40, 80, 120, 160 \text{ mm}$	34
3.5.	Mikroskopaufnahmen der Plasmaregion in Abhängigkeit von der Laserpul- senergie für eine Brennweite von $f = 40 \text{ mm}$	36
3.6.	Mikroskopaufnahmen der Plasmaregion in Abhängigkeit von der Laserpul- senergie für eine Brennweite von $f = 80 \text{ mm}$	37
3.7.	Abschätzung der Plasmaradien aus den Mikroskopaufnahmen.	38
3.8.	Experimentell abgeschätzte Untergrenze für das Plasmavolumen in Ab- hängigkeit von der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 40 \text{ mm}$ und f $= 80 \text{ mm}$. Als durchgezogene und gestrichelte Linien sind die Modellrech- nungen für die Plasmavolumina aus Abschnitt 3.4 dargestellt.	38
3.9.	Schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus zur Variation der Brenn- weite.	40
3.10.	Variation der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 100$ und $f = 200$ mm (Doppel-logarithmische Darstellung).	41
3.11.	Vergleich der THz-Signale der statischen Vorspannungsmethode mit den nach Abschnitt 3.4 berechneten Plasmavolumen.	43
3.12.	Variation der Laserpulsenergie für die Brennweiten $f = 100$ und $f = 200$ mm (lineare Darstellung).	44
4.1.	Veranschaulichender Vergleich der Vier-Wellen-Mischbeschreibung, links für die THz-Erzeugungsmethode mit optischer AC-Vorspannung und rechts für die Verwendung eines Few-Cycle-Laserpulses zur Plasmaerzeugung. . .	48

5.1. Überlagerung eines Pulses einer Fundamentalfrequenz ω mit seiner zweiten harmonischen Frequenz 2ω für das Blau-Rot-Verhältnis $R_{\omega 2\omega} = E_{2\omega}^0/E_{\omega}^0 = 0,15$ und die beiden Phasen $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$ und $\varphi_{\omega 2\omega} = 0$ (obere beiden Graphen). Zeitlicher Verlauf der Ionisationsrate für die beiden Pulse (mittlere Graphen) und darauffolgende Plasmadichten ρ^+ und ρ^- (untere Graphen).	53
5.2. Abhängigkeit der Asymmetrie in der Plasmadichte R_{ρ} als Funktion der relativen Phase zwischen fundamentaler und zweiter harmonischer Frequenz für verschiedene Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega}$	55
5.3. Modellrechnungen für die Abhängigkeit der Gesamtplasmadichte ρ_{total} von der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ für die Blau-Rot-Verhältnisse $R_{\omega 2\omega} = 0,2$ und $R_{\omega 2\omega} = 0,02$	55
5.4. Asymmetrie in der Plasmadichte R_{ρ}^* normiert auf 10 % der Moleküldichte, im Gegensatz zur Asymmetrie in der Plasmadichte R_{ρ} , welche auf die Gesamtplasmadichte normiert ist.	56
5.5. Variation des Blau-Rot-Verhältnisses $R_{\omega 2\omega}$ bei $\varphi_{\omega 2\omega} = \pi/2$	56
5.6. Zeitlicher Verlauf der Laserfeldstärke und die daraus resultierenden zeitlichen Verläufe der Ionisationsraten und Plasmadichten.	59
5.7. Asymmetrie in der Plasmadichte R_{ρ} als Funktion der CE-Phase für verschiedene Laserpulsdauern. Kleine Darstellung: Abnahme des Kontrastes in R_{ρ} mit zunehmender Laserpulsdauer.	60
5.8. Bewegung des Elektrons im Laserfeld eines Few-Cycle-Pulses in Abhängigkeit des Ionisationszeitpunktes.	63
5.9. Modellierung der THz-Polarisation in Abhängigkeit der Streuzeit und der relativen Phase $\varphi_{\omega 2\omega}$ zwischen fundamentaler und zweiter harmonischer Frequenz.	68
5.10. THz-Polarisation P in Abhängigkeit der Streuzeit t_s für die relative Phase $\varphi_{\omega 2\omega} = -\pi/5$	69
5.11. Elektron-Ionen-Entfernung nach 100 fs dargestellt als Funktion des Ionisationszeitpunktes.	71
5.12. Darstellung der Polarisation $P(\varphi_{CE}, t_s)$ als Funktion der CE-Phase der Few-Cycle-Pulse und der Streuzeit der Elektronen.	72
5.13. CE-Phase, bei der die maximale Polarisation im Plasma erreicht wird, als Funktion der Streuzeit, berechnet für einen Few-Cycle-Laserpuls mit einer Pulsdauer von 6 fs.	73
5.14. Polarisation im Plasma als Funktion der CE-Phase für verschiedene Laserpulsdauern.	74
6.1. Experimenteller Aufbau zur Untersuchung der Phasenabhängigkeit bei der Erzeugung von THz-Strahlung in einem lasergenerierten Plasma mit Überlagerung einer Frequenz ω mit ihrer zweiten harmonischen Frequenz 2ω	78
6.2. THz-Amplitude in Abhängigkeit des Abstandes von BBO-Kristall zum Fokus. Dargestellt sind die gleichzeitig gemessenen Signalkomponenten E_{THz}^{AC} und E_{THz}^{DC} , die in der optisch erzeugten Asymmetrie und der durch das statische Feld erzeugten Asymmetrie in der Plasmaerzeugung ihren Ursprung haben.	78
6.3. Versuchsanordnung zur Druckvariation des Ausgangsmediums.	81

6.4.	THz-Amplitude als Funktion des Gasdrucks.	82
6.5.	Doppellogarithmische Darstellung der THz-Amplitude als Funktion des Druckes.	83
7.1.	Schematische Darstellung des Ultrakurzpulslasersystems mit integrierter Regelung zur Stabilisierung der CE-Phase.	87
7.2.	Schematische Darstellung des verwendeten THz-Aufbaus zur CE-Phasenbestimmung.	89
7.3.	Zeitliche Wellenform eines THz-Pulses erhalten mit der statischen Feld Methode (einzelner Scan). Das statische Feld betrug $E_{st} = 30 \text{ kV/cm}$	90
7.4.	Zeitbereich THz-Signal mit aktivierter CE-Phasenstabilisierung, stabilisiert auf eine CE-Phase, für welche die THz-Amplitude maximal ist. Der dargestellte Verlauf ist eine Mittelung über 50 Scans ohne ein zusätzlich am Plasma angelegtes statisches Feld.	91
7.5.	Variation der CE-Phase über Sollwertänderung des CE-Phasenregelkreises. Dargestellt sind die gemessenen THz-Amplituden, sowie die simultan gemessenen Werte von CEP2 und CEP3.	92
7.6.	Variation der CE-Phase über Verschiebung eines Glaskeilepaars im Strahlpfad.	93
7.7.	Korrelationsdarstellung der THz-Amplitude gegen die CE-Phase bestimmt durch CEP3.	94

Literaturverzeichnis

- [1] Goulielmakis, E., Uiberacker, M., Kienberger, R., Baltuška, A., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, Th., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Drescher, M., Krausz, F. Direct measurement of light waves, *Science* **305**, 1267-1269 (2004).
- [2] Löffler, T. *Dissertation*, Universität Frankfurt, 2003, <http://deposit.ddb.de/cgi-bin/dokserv?idn=96998541x>.
- [3] Moulton, P. Ti-doped sapphire: tunable solid-state laser, *Opt. News* **8**, 6-9 (1982).
- [4] Spence, E., Kean, P. N., Sibbett, W. 60-fs pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.* **16**, 42-44 (1991).
- [5] Brabec, T., Spielmann, Ch., Curley, P. F., und Krausz, F. Kerr lens mode locking, *Opt. Lett.* **17**, 1292-1294 (1992).
- [6] Ell, R., Morgner, U., Kärtner, F. X., Fujimoto, J. G., Ippen, E. P., Scheuer, V., Angelow, G., Tschudi, T., Lederer, M. J., Boiko, A., Luther-Davies, B. Generation of 5-fs pulses and octave spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.* **26**, 373-375 (2001).
- [7] Strickland, D., und Mourou, G. Compression of amplified chirped optical pulses, *Opt. Commun.* **56**, 219-221 (1985).
- [8] Nisoli, M., Silvestri, S. De, und Svelto, O. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793-2795 (1996).
- [9] Taft, G., Rundquist, A., Murnane, M.M., Kapteyn, K.W. Ultrashort optical waveform measurement using frequency-resolved optical gating, *Opt. Lett.*, **20**, 743-746 (1995).
- [10] Dorrer, C. Implementation of spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction using a simultaneously recorded reference interferogram, *Opt. Lett.*, **24**, 153-156 (1999).
- [11] Jones, D., Diddams, S., Ranka, J., Stentz, A., Windeler, R., Hall, J., Cundiff, S. Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis, *Science* **288**, 635-639 (2000).

-
- [12] Poppe, A., Holzwarth, R., Apolonski, A., Tampea, G., Spielmann, Ch., Hänsch, T.W., Krausz, F. Few-cycle optical waveform synthesis, *Appl. Phys. B* **72**, 373-376 (2001).
- [13] Reichert, J., Niering, M., Holzwarth, R., Weitz, M., Udem, T., Hänsch, T. Phase Coherent Vacuum-Ultraviolet to Radio Frequency Comparison with a Mode-Locked Laser, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3232-3235 (2000).
- [14] Itatani, J., Levesque, J., Zeidler, D., Niikura, H., Pepin, H., Kieffer, J. C., Corkum, P. B. and Villeneuve, D. M. Tomographic imaging of molecular orbitals, *Nature* **432**, 867-871 (2004).
- [15] Pukhov, A., and Meyer-ter-Vehn, J. Laser Wake Field Acceleration: The High Non-Linear Broken-Wave Regime, *Appl. Phys. B* **74**, 355-361 (2002).
- [16] Mangles, S. P. D., *et al.* Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions, *Nature* **431**, 535-538 (2004).
- [17] Geddes, C. G. R., *et al.* High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding, *Nature* **431**, 538-541 (2004).
- [18] Faure, J., *et al.* A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams, *Nature* **431**, 541 (2004).
- [19] Paulus, G. G. *et al.* Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. *Nature* **414**, 182-184 (2001).
- [20] Paulus, G. G. A Meter of the "Absolute" Phase of Few-Cycle Pulses, *Laser Physics* **15**, 843-854 (2005).
- [21] Liu, X. *et al.* Nonsequential double ionization at the single-optical-cycle limit, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 263001 (2004).
- [22] Lindner, F., Paulus, G. G., Walther, H., Baltuška, A., Goulielmakes, E., Lezius, M., and Krausz, F. Gouy-Phase Shift for Few-Cycle Laser Pulses, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 113001 (2004).
- [23] Roos, P.A., Li, X., Smith, R. P., Pipis, J. A., Fortier, T. M., and Cundiff, S. T. Solid-state carrier-envelope phase stabilization via quantum interference control of injected photocurrents. *Optics Letters* **30**, 735-737, (2005).
- [24] Cundiff, S.T. *J. Phys. D.*, **35**, R43-R59, (2002).
- [25] Shvartsburg, A. B. *textitTime-domain Optics of Ultrashort Waveforms*, (Oxford Series in Optical Sciences No.10),(Oxford Univ. Press, Oxford, 1996).

- [26] Baltuška, A. *et al.* Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature* **421**, 611-615 (2003).
- [27] de Bohan, A., Antoine, P., Milosšević, D. und Piraux, B. Phase-Dependent Harmonic Emission with Ultrashort Laser Pulses, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 1837-1840 (1998).
- [28] Drescher, M., Hentschel, M., Kienberger, R., Tempea, G., Spielmann, C., Reider, G., Corkum, C., Krausz, F. X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier, *Science*, **291**, 1923-1927 (2001).
- [29] Hentschel, M., Kienberger, R., Spielmann, C., Reider, G. A., Milosevic, N., Brabec, T., Corkum, P., Heinzmann, U., Drescher, M., und Krausz, F. Attosecond metrology, *Nature*, **414**, 509-513 (2001).
- [30] National Institute for Standards and Technology Weblink: <http://emtoolbox.nist.gov/Wavelength/Ciddor.asp>.
- [31] Paulus, G. G., Lindner, F., Walther, H. Baltuška, und Krausz, F. Measurement of the phase of few-cycle laser pulses, *J. of mod. Optics*, **52**, 221-232 (2005).
- [32] Takeda, M., Ina, A., und Kobayashi, S. Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based tomography and interferometry, *JOSA*, **72**, 156 (1982).
- [33] Baltuška, A. *et al.* Phase-Controlled Amplification of Few-Cycle Laser Pulses, *IEEE J. of selected Topics in Quant. Elec.* **9**, 972-989 (2003).
- [34] Xu, L., Spielmann, C., Poppe, A., Brabec, T., Krausz, F., Hänsch, T.W. Route to phase control of ultrashort light pulses, *Opt. Lett.*, **21**, 2008-2010 (1996).
- [35] Apolonski, A., Poppe, A., Tempea, G., Spielmann, C., Udem, T., Hänsch, T.W., Krausz, F. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 740-743 (2000).
- [36] Reichert, J., Holzwarth, R., Udem, T., Hänsch, T.W. *Opt. Commun.*, **172**, 59-68 (1999).
- [37] Trebino, R., DeLong, K., Fittinghoff, D., Sweetser, J., Krumbugel, M., Richman, B., und Kane, D. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating, *Rev. Sci. Instrum.*, **68**, 3277-3295 (1997).
- [38] Chelkowski, S., Bandrauk, A., Apolonski, A. Phase-dependent asymmetries in strong-field photoionization by few-cycle laser pulses, *Phys. Rev. A*, **A**, 013815 (2004).
- [39] Hamster, H., Sullivan, A., Gordon, S., White, W., and Falcone, R. W. Subpicosecond electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2725-2728 (1993).

- [40] Hamster, H., Sullivan, A., Gordon, S., Falcone, R. W. Short-pulse terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas. *Phys. Rev. E* **49**, 671-677 (1994).
- [41] Wu, Q., und Zhang, X.-C. Ultrafast electro-optic field sensors, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 1604-1606 (1996).
- [42] Perry, M.D., Landen, O.L., Szöke, A., and Campbell, E.M. Multiphoton Ionization of Noble Gases by an intense 10^{14} Wcm $^{-2}$ dye laser. *Phys.Rev.E*, **37**, 747-760 (1988).
- [43] Corkum, P. B., Burnett, N. H. and Brunel, F. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1259-1262 (1989).
- [44] Augst, S., Strickland, D., Meyerhofer, D.D., Chin, S.L., and Eberly, J.H. Tunneling Ionization of Noble Gases in a High-Intensity Laser Field. *Phys.Rev.Lett*, **63**, 2212-2215 (1989).
- [45] Guo, C., Li, M., Nibarger, J. P. and Gibson, G. N. Single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields, *Phys. Rev. A* **58**, 4271-4274 (1998).
- [46] Jackson, J.D. Classical Electrodynamics, John Wiley Verlag 3rd Ed. (1999).
- [47] Geissler, M. and Brabec, T. Half-Cycle Relativistic THz Source, EPS Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics, (2001).
- [48] Löffler, T., Jacob, F., and Roskos, H. G. Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air. *Appl. Phys. Lett.* **77**, 453-455 (2000).
- [49] Löffler, T. and Roskos, H. G. Gas-pressure dependence of terahertz-pulse generation in a laser-generated nitrogen plasma. *J. Appl. Phys.* **91**, 2611-2614 (2002).
- [50] Cook, D. J., Chen, J.-X., and Hochstrasser, R. M. An intense broadband terahertz source based an a novel four wave rectification process. *Ultrafast Phenomena XII*, Springer Series,197-199 (2000).
- [51] Cook, D. J., and Hochstrasser, R. M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air. *Opt. Lett.* **25**, 1210-1212 (2000).
- [52] Löffler, T., Eden , S., Thomson , M., and H. G. Roskos THz generation by third-order non-linearities in air and air plasmas, *Ultrafast Phenomena XIII*, 274 (Springer-Verlag, Berlin (2002)).
- [53] Kreß, M., Löffler, T., Eden, S., Thomson, M. and Roskos, H. G. Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic wave. *Opt. Lett.* **29**, 1120-1122 (2004).

- [54] Löffler, T., Kreß, M., Thomson, M., and Roskos H. G. Efficient Terahertz Pulse Generation in Laser-Induced Gas Plasmas, *Act. Phys. Pol. A*, **107**, 99-108 (2005).
- [55] Bartel, T., Gaal, P., Reimann, K., Woerner, M., and Elsaesser, T. Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes, *Opt. Lett.* **30**, 2805-2807 (2005).
- [56] Xie, X., Dai, J., and Zhang, X.-C. Coherent Control of THz Wave Generation in Ambient Air, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 075005 (2006).
- [57] Steinmeyer, G. Terahertz meets attoscience, *Nature Physics*, **2**, 305-306 (2006).
- [58] Nibbering, E. T. J., Grillon, G., Franco, M. A., Prade, B. S., and Mysyrowicz, A. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N₂ and O₂ by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses, *JOSA B* **14**, 650-660 (1997).
- [59] CPA Lasersystem von Clark Mxr, Modell: CPA 2001.
- [60] Mlejnek, M., Wright, E. M., and Moloney, J. V. Femtosecond pulse propagation in argon: A pressure dependence study, *Phys. Rev. E* **58**, 4903-4910 (1999).
- [61] Raizer, Yu. P. Gas Discharge Physics, Springer Verlag 2nd Edition, S.10ff (1991).
- [62] Goldston, R. J., Rutherford, P. H. Introduction to Plasma Physics, Institute of Physics Publishing Ltd., S.163ff. (1995).
- [63] Yakovlev, V. S. *et al.* Phase-stabilized 4-fs pulses at the full oscillator repetition rate for a photoemission experiment. *Appl. Phys. B* **76**, 329-332 (2003).
- [64] Apolonski, A. *et al.* Observation of light-phase-sensitive photoemission from a metal. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 073902 (2004).
- [65] Itatani, J., Zeidler, D. , Levesque, J., Spanner, M., Villeneuve, D. M., and Corkum, P. B. Controlling High Harmonic Generation with Molecular Wave Packets, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 123902 (2005).
- [66] Macklin, J. J., Kmetec, J. D., and Gordon III, C. L. High-Order Harmonic Generation Using Intense Femtosecond Pulses. *Phys, Rev. Lett.* **70**, 766-769 (1993).
- [67] Gordienko, S., Pukhov, A. , Shorokhov, O., and Beava, T. Relativistic Doppler Effect: Universal Spectra and Zeptosecond Pulses, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 115002 (2004).
- [68] Bandrauk, A. D., Chelkowski, S., Nguyen, H. S. Attosecond localization in molecules, *Int. J. of Quant. Chem.* **100**, 834-844 (2004).

-
- [69] Paulus, G. G., Lindner, F., Walther, H., Baltuška A., Goulielmakis, E., Lezius, M., and Krausz, F. Measurement of the Phase of Few-Cycle Laser Pulses, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 253004 (2003).
- [70] Leemans, W.P., Clayton, C.E., Mori, W.B., Marsh, K.A., Kaw, P.K., Dyson, A., Wallace, J.M., and Joshi, C. Experiments and Simulations of Tunnel-Ionized Plasmas, *Phys. Rev A*, **46**, 1091-1105 (1992).
- [71] Rankin, R., Capjack, C.E., Burnett, N.H., and Corkum, P.B. Refraction Effects associated with Multiphoton Ionization and Ultrashort-Pulse Propagation in Plasma Waveguides, *Opt. Lett.*, **16**, 835-837 (1991).
- [72] Max Planck Institut für Kernphysik, Saupfercheckweg 1, D-69117 Heidelberg.
- [73] CPA Lasersystem von Femtolasers, Model: Femtopower Compact Pro.
- [74] Kreß, M., Löffler, T., Thomson, M. D., Dörner, R., Gimpel, H., Zrost, K., Ergler, T., Moshhammer, R., Morgner, U., Ullrich, J., und Roskos, H. G. Determination of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses with terahertz-emission spectroscopy *Nature Physics*, **2**, 327-331 (2006).

Danksagung

Bedanken möchte ich mich bei ...

... Professor Hartmut G. Roskos für die Betreuung und die Begutachtung dieser Arbeit.

... Professor Reinhard Dörner für die Übernahme des Zweitgutachtens.

... Dr. Torsten Löffler für seine Vorarbeiten und die unzähligen Diskussionen, die wir zu diesem Thema geführt haben.

... Gabriel Loata, der es über vier Jahre hinweg mit mir in einem Büro ausgehalten hat und dabei noch keine sichtbaren Schäden davongetragen hat.

... Dr. Mark Thomson, der eine unermüdliche Bereitschaft zur Diskussion über alle möglichen Gebiete der Physik zeigte und dabei nicht immer auf mein Verständnis traf.

... den restlichen derzeitigen und ehemaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Roskos für die gute und kollegiale Zusammenarbeit.

... Hartmut Gimpel, Karl Zrost und Torsten Ergler ohne deren Zusammenarbeit das THz-Experiment mit Few-Cycle-Laserpulsen nicht möglich gewesen wäre.

... den verantwortlichen Mitgliedern des Max Planck Instituts für Kernphysik in Heidelberg, die an dieses Experiment geglaubt haben und es dadurch ermöglichten.

... den Mitgliedern des PHELIX-Laser-Teams der GSI, auch wenn leider bei den Experimenten dort nichts verwertbares für diese Arbeit heraussprang. Die Komplexität der Aufgabe allein war schuld daran!

... der Mechanik- und der Elektronikwerkstatt, die so einiges Unmögliche möglich gemacht haben.

... meiner Familie und meinen Freunden für das Verständnis während des Zusammenschreibens dieser Arbeit. Sie mussten unter meiner geistigen Abwesenheit in den letzten Monaten wohl am meisten leiden. Sorry, kommt bestimmt nicht wieder vor! :)

Curriculum vitae

Name: Markus Kreß

Geboren: 24.06.1974

Staatsangehörigkeit: deutsch

Familienstand: ledig

Anschrift: Schöfflestr. 5
60386 Frankfurt am Main
Tel.: 069/42602998
markus.kress@gmx.net

Schulbildung: 1980 – 1984 Grundschule in Frankfurt
1984 – 1993 gymnasialer Zweig der Gesamtschule am Ried
in Frankfurt

Schulabschluß: 1993 Abitur (Notendurchschnitt: 1,7)

Zivildienst: 1993 – 1994 Essen auf Rädern

Studium: 1994 – 1999 Johann Wolfgang Goethe Universität
Studiengang: Diplom Physik
Spezialgebiet: Festkörperphysik
Nebenfach: Geophysik
Vordiplom: 1996 (Note: 1)
Diplom: 1999 (Note: 1)

Berufserfahrung: 2000 – 2002 Prozeßbetriebnahme-Ingenieur bei Applied Films
Entwicklung und Inbetriebnahme neuer Prozesse
für Glasgroßflächenbeschichtungsanlagen,
Schulung von Kundenpersonal
2006 – heute R&D bei Applied Materials
Entwicklung von Dünnschichtsolarzellen

Promotion: 2002 – 2006 Terahertz Erzeugung aus laserinduzierten Plasmen

Tätigkeiten neben dem Studium: 1998 – 1999 Tutor im physikalischen Anfängerpraktikum
an der Universität
1999 – 2000 Aushilfstätigkeit bei der Deutschen Bahn
Immobilien-gesellschaft GmbH im Personalbereich
2002 – 2006 Vorlesungsbegleitende Betreuung von Tutorien

Thema der Diplomarbeit: „Analyse und Einstellung des Sauerstoffgehalts an dem
Hochtemperatursupraleiter $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ “

Thema der Dissertation: „THz-Erzeugung in laserinduzierten Plasmen mit
Few-Cycle-Laserpulsen“

Besondere Kenntnisse: Laserspektroskopie, sputtern, optische Spektrometrie, Ellipsometrie
Dünnschichtanalyse, gute Englischkenntnisse in Wort und Schrift,
Kenntnisse in Matlab und Labview, Grundkenntnisse in den
Programmiersprachen C/C++, Turbo Pascal, Basic, sehr gute EDV
Kenntnisse

Frankfurt, den 4. Oktober 2006
Dipl. Phys. Markus Kreß