

Erzeugung intensiver Pulse im Terahertzfrequenzbereich mittels laser-generierter Plasmen

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften

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

von: Torsten Löffler
aus: Winterberg

FRANKFURT AM MAIN 2003
(D F 1)

vom Fachbereich der

Johann Wolfgang Goethe – Universität als Dissertation angenommen.

Dekan:

Gutachter:

Datum der Disputation

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1. Einführung in das Thema	1
1.2. Formales	3
1.3. Publikationen	4
2. Elektro-optische Detektion von THz-Strahlung	7
2.1. Einführung: Kohärente Erzeugung und Detektion von THz-Pulsen	7
2.2. Grundlagen: Phasenfehlانpassung und Absorption in ZnTe	7
2.3. Grundlagen: Der lineare Pockels-Effekt in ZnTe	12
2.4. Elektro-optische Detektion in <110>-ZnTe	13
2.4.1. Detektion in ZnTe mit 45° Polarisationsdifferenz	13
2.4.2. Detektion in ZnTe mit 0° Polarisationsdifferenz	14
2.5. Absolute Detektorempfindlichkeit unter Berücksichtigung von Absorption und Phasenfehlانpassung	16
2.6. Antwortfunktion des Detektors im Zeitbereich	22
2.7. Messung der Phasendifferenz durch Ellipsometrie	23
2.7.1. Ellipsometrie für die 45°-Geometrie	23
2.7.2. Durchführung kalibrierter Messungen in der 45°-Geometrie	25
2.7.3. Ellipsometrie in der 0°-Geometrie	27
3. THz-Erzeugung in großflächigen Emittern	29
3.1. Erzeugung von THz-Strahlung aus großflächigen Emittern	29
3.2. Ausbreitung von THz-Strahlung aus großflächigen Emittern	31
3.3. THz-Erzeugung mittels optischer Gleichrichtung in ZnTe	35
3.4. THz-Erzeugung in elektrisch vorgespanntem GaAs	48
4. Einführung in die THz-Erzeugung mittels lasergenerierter Plasmen	65
4.1. Lokale Erzeugung eines Gas-Plasmas mittels Photoionisierung	65
4.1.1. Vorbemerkungen zur Photoionisierung von Gasmolekülen	66
4.1.2. Mechanismen der Photoionisierung von Gasmolekülen	68
4.1.3. Plasma-Rekombination	75
4.1.4. Ionisierungsschwellen und der zeitliche Verlauf des Ionisierungsgrades	77
4.1.5. Experimentell bestimmte Intensitätsschwellen für die Ionisierung von Gasen	78
4.2. Plasmavolumen ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten	82
4.3. Plasmavolumen in Anwesenheit von nichtlinearen Brechungsindexeffekten	86
4.3.1. Nichtlineare Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung	86
4.3.2. Strahlausbreitung in nichtlinearen Medien	88
4.4. THz-Strahlausbreitung und Fokussierung beim Plasmaemitter	93
4.5. Stand der Technik: THz-Erzeugung in laser-generierten Plasmen mittels ponderomotoriver Kräfte	96

5. Plasmaemitter mit externem E-Feld	99
5.1. Beschreibung des Experiments	99
5.2. Elektrische Feldabschirmung im Plasma	99
5.3. Modellierung des zeitlichen THz-Signals	101
5.4. Variation der Laserpulsenergie	107
5.5. Variation der Vorspannung	108
5.6. Variation des Gasdruckes	108
5.6.1. Variation des Gasdruckes bei konstanter Vorspannung	108
5.6.2. Druckabhängigkeit von Durchbruchfeldstärke und maximalem THz-Signal	112
6. THz-Erzeugung in Plasmen auf Basis von $\chi^{(3)}$-Effekten	115
6.1. Beschreibung des Experiments	115
6.2. Einführung in die THz-Erzeugung auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten	116
6.3. Variation der optischen Phasendifferenz	117
6.4. Variation des BBO-Drehwinkels	122
6.5. Konversionseffizienz des BBO-Kristalls	124
6.6. Modellierung der THz-Emission auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten im Plasmavolumen .	125
6.6.1. Vorbemerkungen zur Modellierung	126
6.6.2. Quantitative Beschreibung der THz-Emission	127
6.7. Variation der Laserpulsenergie	133
6.8. Variation des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses	134
7. Mikroskopische Erklärung der Plasma-Nichtlinearität	137
7.1. Grundlagen: Erzeugung höherer Harmonischer in fokussierten Laserstrahlen	137
7.2. Anwendbarkeit der üblichen Konzepte für Plasma-Nichtlinearitäten auf die THz- Erzeugung	140
7.3. Mikroskopisches Generationsprinzip	140
7.4. Die effektive Laserpulsenergie J_{eff}	144
7.5. Modellierung des zeitlichen THz-Signals	146
7.6. Variation der Laserpulsenergie	149
7.7. Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses	149
7.8. Variation der optischen Phase	151
7.9. Diskussion des mikroskopischen Modells	154
8. Vergleich der Terahertzemitter	157
8.1. Spektrale Eigenschaften	157
8.2. Effizienz der untersuchten THz-Emitter	159
8.3. Sättigungsverhalten	161
9. Empfehlungen und Ausblick	167
9.1. Optimierung des großflächigen GaAs-Emitters	167
9.2. Standardemitter im Laserpulsenergiebereich von ca. 500 μ J	167
9.3. Standardemitter im Laserpulsenergiebereich von ca. 10 mJ	168
9.4. Erweiterung der theoretischen Beschreibung des Plasmaemitters	168
9.4.1. Verbesserte Beschreibung des Plasmavolumens sowie Berücksichtigung von Phasenfehlpassung und Absorption im Plasma	168
9.4.2. Beschreibung der Polarisierung als Funktion der optischen Feldasymmetrie	169

9.5. THz-Emission von Plasmen nach Doppel-Puls-Anregung	169
9.6. Nichtlineare Polarisierung als Funktion des Drucks	170
10. Zusammenfassung	171
A. Anhang	173
A.1. Verzeichnis der verwendeten Natur- und Materialkonstanten	173
A.2. Verzeichnis der verwendeten Formelzeichen	174
A.3. Das verwendete Verstärker - Pulslasersystem	179
A.4. Absolute Kalibrierung der gemessenen THz-Feldstärke	179
A.5. Wellengleichung mit nichtlinearer Polarisierung	180
A.6. Polarisierung der THz-Strahlung beim nichtlinearen Plasmaemitter im $\chi^{(3)}$ -Bild . .	180
Literaturverzeichnis	183
Lebenslauf	193
Danksagung	195

1. Einleitung

1.1. Einführung in das Thema

Das elektromagnetische Spektrum unterteilt sich grob gesagt in den Bereich der Radiowellen sowie den Bereich der sichtbaren und unsichtbaren optischen Strahlung. Daran schließt sich noch der Bereich der Röntgen- bzw. Gamma-Strahlen an. Der Übergangsbereich zwischen Radiowellen und optischer Strahlung, welcher etwa im Frequenzbereich von 100 GHz bis 30 THz¹ liegt, wird mit dem Synonym Ferninfrarot- bzw. Terahertzfrequenzbereich bezeichnet. Dieser Bereich ist für technische Anwendungen weitgehend ungenutzt. Diese Tatsache liegt vor allem darin begründet, dass die technische Erzeugung von THz-Strahlung für praktische Anwendungen verhältnismäßig schwierig ist.

Die elektronische bzw. mikroelektronische Erzeugung mittels Oszillatoren, Vervielfachern und Antennen ist auf Frequenzen von einigen hundert GHz begrenzt, und auch diese sind nur mit hohem technischen Aufwand zu erreichen [1]. Im Bereich der optischen Methoden sind zunächst einfache thermische Quellen zu nennen. Diese sind jedoch wenig effizient, da nach dem Plank'schen Strahlungsgesetz die im Terahertz-Frequenzbereich abgestrahlte Leistung bei einer Erhöhung der Temperatur nur wenig steigt, da sich das Maximum der Emission hin zu kürzeren Wellenlängen verschiebt. Vielversprechend sind eher Laser, welche im THz-Bereich arbeiten. Hier ist zunächst der Freie-Elektronen-Laser bzw. der Molekül-Laser zu nennen. Beides sind allerdings komplexe Großgeräte, welche für praktische Anwendungen wenig geeignet sind. Die zur Zeit vielversprechendste Quelle ist der Quanten-Kaskaden-Laser [2]. Hier wird in einer Halbleiter-Heterostruktur eine induzierte Emission beim Übergang zwischen quantenmechanischen Minibändern realisiert. Dieser Typ von THz-Laser hat den Vorteil seiner geringen Größe: er nimmt nicht mehr Platz als ein üblicher Halbleiterlaser ein. Einziger Nachteil ist die Tatsache, dass zum Betrieb niedrige Temperaturen nötig sind. Exotische Quellen, die der Vollständigkeit halber erwähnt werden sollen, sind Synchrotronstrahlung von Ring-Teilchenbeschleunigern, Rückwärtswellen-Oszillatoren, p-Germanium-Laser und Laser auf Silizium-Basis, welche Übergänge zu Defektzuständen ausnutzen.

Neben der Erzeugung der THz-Strahlung ist auch deren Detektion problembehaftet. Typischerweise werden zur Detektion Halbleiter-Bolometer verwendet. Diese weisen zwar eine hohe Empfindlichkeit auf, sind allerdings wenig anwenderfreundlich, was im wesentlichen an der Notwendigkeit liegt, diese Geräte bei einer Temperatur von 4 K zu betreiben, was nur durch Kühlung mit flüssigem Helium erreicht werden kann. Golay-Zellen stellen eine naturgemäß stärker rauschbehaftete Raumtemperatur-Alternative dar. Höchste Empfindlichkeit kann dagegen mittels heterodyner Detektion erreicht werden. Bei dieser insbesondere in der Radioastronomie verwendeten Methode wird das zu detektierende THz-Signal mit dem THz-Signal von einem Lokal-Oszillator in einem Hot-Electron-Bolometer oder in einem supraleitendem Kontakt (Josephson-Kontakt) gemischt und bei einer elektronisch verarbeitbaren Zwischenfrequenz detektiert.

Alternativ zur separaten Erzeugung und Detektion von THz-Strahlung ermöglichen opto-elektronische Methoden eine Erzeugung und gleichzeitige phasensensitive Detektion der elektrischen Felder der THz-Strahlung. Diese Methode der kohärenten Detektion zeichnet sich dadurch aus, dass

¹THz = Terahertz = 10^{12} Hz

nur phasenrichtige Felder der zugehörigen opto-elektronischen Quelle detektierbar sind, wogegen sich die Feldkomponenten der immer vorhandenen nichtkohärenten Hintergrundstrahlung zu Null ausmitteln. Die opto-elektronische Erzeugung und Detektion wurde 1975 erstmals von Auston et. al. demonstriert [3]. Eine guten Überblick über den Stand der Technik findet man in [4].

Die opto-elektronische Technik ist stroboskopischer Natur. Mittels eines kurzen Anrege-Laserpulses (engl. „Pump pulse“) wird in einem geeigneten Emitter ein THz-Puls erzeugt. Mit einem opto-elektronischen Detektor wird dann nur zum Zeitpunkt der Beleuchtung mit einem Abfrage-Laserpuls (engl. „Probe pulse“), welcher von der gleichen Laserquelle stammt, das empfangene elektrische Feldstärkensignal detektiert. Mittels einer Variation der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfrage-Laserpuls kann dann die elektrische Feldstärke des THz-Pulses im zeitlichen Verlauf bestimmt werden.

Als Quellen für die opto-elektronische Erzeugung von THz-Pulsen werden heutzutage meist die Lichtpulse von hochrepetierlichen² Kurzpuls-Ti:Saphir-Lasern verwendet. Zur Erzeugung besonders hoher THz-Pulsenergien sind sogenannte CPA-Verstärker-Lasersysteme (CPA engl. „Chirped Pulse Amplifier“) gut geeignet. Bei diesen werden einzelne Laserpulse eines hochrepetierlichen Kurzpuls-Lasers um viele Größenordnungen in der Energie verstärkt. In Großanlagen, welche nach dem gleichen Prinzip arbeiten, sind im Einzelpulsbetrieb maximale Spitzenleistungen im erzeugten Laserpuls von bis zu einigen Petawatt ($= 10^{15}$ Watt) möglich. In kommerziell erhältlichen Laborsystemen (wie z.B. dem in dieser Arbeit verwendeten CLARK CPA 2001 System³) werden bei einer Laserpuls-Wiederholrate von 1 kHz immerhin noch Spitzenleistungen von einigen Gigawatt bzw. Pulsenergien von annähernd einem mJ erreicht. Andere Laborsysteme wie das bei der GSI installierte COHERENT-System erreichen bei reduzierter Wiederholrate von 10 Hz Pulsenergien von bis zu 50 mJ.

Neuerdings ist alternativ zur Verwendung von Laserpulsen auch die Verwendung einer Zweifarben-Dauerstrich-Laserquelle möglich, welche eine optische Schwebung im THz-Frequenzbereich erzeugt. Entsprechend wird mono-frequente THz-Strahlung mit der Frequenz des Schwebungssignals erzeugt. Die Möglichkeit zum Einsatz solcher THz-Quellen als Lokal-Oszillatoren wird zur Zeit in der Radioastronomie intensiv untersucht. Die erzeugte mono-frequente, kontinuierliche THz-Strahlung kann dann ebenfalls opto-elektronisch und damit phasensensitiv detektiert werden, wenn ein geeigneter opto-elektronischer Detektor mit dem optischen Schwebungssignal aktiviert wird [5, 6, 7, 8].

Die Möglichkeit der verhältnismäßig einfachen technischen Erzeugung und der sensitiven Detektion von THz-Strahlung ohne Kryotechnik mittels der opto-elektronischen Methoden hat zu einer intensiven Explorierung möglicher Anwendungsgebiete geführt. Neben dem Einsatz der Methoden im wissenschaftlichen Bereich (Radioastronomie, Halbleiterphysik etc.) stehen dabei insbesondere Anwendungen in der Sicherheitstechnik und Verpackungskontrolle [9, 10] (Durchleuchtung von Gegenständen) sowie der Medizin (Tumor-, Kariesdetektion) [11, 12, 13] im Vordergrund. Motiviert werden diese praktischen Anwendungen durch die Tatsache, dass man mittels einer Abrasterung des Objekts mit einem THz-Strahl [8, 9, 10, 14] oder mittels eines Detektorarrays [7, 15] die Möglichkeit hat, das Transmissions- oder Reflexionsvermögens des untersuchten Objekts im THz-Frequenzbereich als Bild darzustellen. Sogar drei-dimensionale Techniken wie Tomographie sind mit THz-Strahlung möglich [16]. Ein weiteres Anwendungsgebiet von gepulster THz-Strahlung ist der Einsatz als atomare Streak-Kamera [17]. Hierfür und für den Einsatz von Detektorarrays bzw.

²Die Repetitions- bzw. Pulswiederholrate dieser Laser liegt bei ca. 100 MHz

³Eine detaillierte Beschreibung befindet sich in Anhang A.3

von großflächigen Detektoren sind allerdings besonders leistungsstarke THz-Quellen und entsprechend starke Laser (wie die o.g. genannten Verstärkerlaser) erforderlich.

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der vergleichenden Untersuchung von opto-elektronischen THz-Quellen für solche Verstärker-Lasersysteme. Damit wird insbesondere die Grundlage für die Verwendung von solchen Systemen in der THz-Bildgebung in Verbindung mit großflächigen Detektoren geschaffen.

Bisher wurden als THz-Emitter für Verstärker-Lasersysteme fast ausschließlich großflächige, elektrisch vorgespannte GaAs-Emitter eingesetzt. Nach einer Vorstellung der verwendeten elektrooptischen Detektionsmethode in Kap. 2 wird in Kap. 3 die Funktionsweise solcher großflächiger Emitter erarbeitet. Dabei wird neben den aus der Literatur bekannten großflächigen GaAs-Antennen auch ein neuartiger großflächiger ZnTe-Emitter vorgestellt.

Im Hauptteil der Arbeit (Kap. 4 bis 7) werden dann THz-Emissionen aus laser-generierten Plasmen untersucht. Solche Plasmen entstehen, wenn Laserpulse aus Verstärkerlasern in gasförmigen Medien oder einfach in Luft fokussiert werden, da die optische Feldstärke dann zur Ionisierung der Moleküle ausreicht. Nach Einführung in das Thema und der Erarbeitung der Grundlagen solcher laser-erzeugten Plasmen in Kap. 4 werden in Kap. 5 und 6 zwei verschiedenartige Methoden vorgestellt, um solche Plasmen zur THz-Erzeugung anzuwenden. Die erste Methode, die im Rahmen dieser Arbeit erstmals realisiert wurde, beruht auf einer Vorspannung des Plasmas mit einem externen elektrischen Feld. Dieser Emitter ist insbesondere deshalb von großer Bedeutung, da er eine relativ gute Überprüfung der entwickelten Modelle und Vorstellungen für den Emissionsprozess im Plasma erlaubt. Die zweite, in Kap. 6 vorgestellte, Methode zur Erzeugung von THz-Emissionen aus laser-generierten Plasmen basiert auf einem Experiment von Cook et al., bei dem der Laserpuls mit einem zweiten, frequenzverdoppelten Laserpuls überlagert wird. Die Beschreibung dieses Emitters in Kap. 6 erfolgt zunächst anhand des von Cook et al. vorgeschlagenen phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modells [18]. In Kap. 7 wird dann ein selbst entwickeltes mikroskopisches Modell auf Basis von Nichtlinearitäten bei der Erzeugung des Plasmas vorgestellt und mit den experimentellen Daten und den Vorhersagen des $\chi^{(3)}$ -Modells verglichen.

Die Arbeit schließt mit einem Vergleich der vorgestellten Emitter in Kap. 8, bei dem insbesondere auf Basis des Sättigungsverhaltens der verschiedenen Emitter Vorhersagen über die Leistungsfähigkeit der Emitter bei höheren Laserpulsenergien im Bereich von bis zu etwa 50 mJ gemacht werden. Solche Laserpulsenergien stehen am Front-End des PHELIX-Lasers bei der GSI in Darmstadt zu Verfügung. Im Rahmen der Fortführung dieser Arbeit sollen die hier gemachten Vorhersagen in Zukunft in Zusammenarbeit mit der GSI experimentell überprüft werden.

In Kap. 9 werden dann noch Empfehlungen für eine Umsetzung der Ergebnisse dieser Arbeit im Laborbetrieb und für weiterführende Experimente zum Verständnis der Plasmaemitter gegeben.

1.2. Formales

Die vorliegende Arbeit verwendet durchgängig SI-Einheiten. Formelzeichen für Winkel in Gleichungen sind in Einheiten von Radiant zu verstehen. Nur bei der Angabe von Winkeln im Text werden Grad verwendet. Der Begriff THz-Signalamplitude wird zur Beschreibung des maximal erreichten Werts des zeitlichen Signalverlaufes verwendet. Für den Fall das ein solches maximales Signal bei negativen Spannungs- bzw. Feldstärkewerten erreicht wird, soll auch die Signalamplitude negativ sein. Mit Signalamplituden sind ausdrücklich nicht von Spitze zu Spitze gemessene Amplituden gemeint.

1.3. Publikationen

Im Zusammenhang mit der Anfertigung dieser Arbeit sind folgende Veröffentlichungen entstanden:

1. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, „*THz generation by photo-ionization of electrical-ly biased air*“ OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS), CLEO 2000, Postconference Edition, CWN6 p. 356 (2000).
2. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, „*THz generation by photo-ionization of electrically biased air*“ Ultrafast Phenomena XII, Springer Series in Chemical Physics, Vol. 66, pp. 200, Springer Verlag, Berlin (2000).
3. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, „*Generation of terahertz pulses by photo-ionization of air*“ Appl. Phys. Lett. **77**, 453 (2000).
4. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, „*THz Generation by Photo-ionization of Electrically Biased Air*“ Proceedings of THz 2000 by N. Hecker, U.P. Jepsen, and S. Keiding (publishers) (2000).
5. T. Löffler and H. G. Roskos, „*Terahertz-pulse generation by photo-ionization of gases under high pressure*“ OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS), CLEO 2001, Postconference Edition, CThL5 pp. 438 (2001).
6. R. Leonhardt, K. J. Siebert, H. Quast, T. Löffler, M. Thomson, and H. G. Roskos, „*Continuous-Wave THz Imaging with Photoconductive LT-GaAs Antennae*“ Proceedings of the 3rd Symposium On Non-Stoichiometric III-V Compounds pp. 25-30, (2001).
7. M. Weckenbrock, M. Hattass, A. Czasch, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Weber, H. Roskos, T. Löffler, M. Thomson, and R. Dörner „*Experimental evidence for electron repulsion in multiphoton double ionization*“ Journal of Physics B **34**, L449-55 (2001).
8. J. Handley, A. Fitzgerald, T. Löffler, K. J. Siebert, E. Berry and R. Boyle, „*Potential medical applications of THz imaging*“ Proceedings of Medical Imaging Understanding and Analysis, Birmingham (2001).
9. T. Löffler, T. Bauer, K. Siebert, H. Roskos, A. Fitzgerald and S. Czasch, „*Terahertz dark-field imaging of biomedical tissue*“ Optics Express, **9**(12), 616 (2001).
10. T. Löffler, S. Eden, M. Thomson, and H. G. Roskos, „*Thz generation by third-order non-linearities in air and air-plasmas*“ Ultrafast Phenomena XIII, Springer Series in Chemical Physics, Vol. 71, pp. 274, Springer Verlag, Berlin (2002).
11. T. Bauer, J.S. Kolb, T. Löffler, E. Mohler, and H. G. Roskos, „*Indium-Tin-Oxide-Coated Glass as Dichroic Mirror for Far-Infrared Electromagnetic Radiation*“ J. of Appl. Phys. **92**, 2210 (2002).
12. T. Löffler, T. Bauer, K. J. Siebert, H. G. Roskos, A. Fitzgerald, and S. Czasch, „*Investigation of tumor recognition by terahertz dark-field imaging*“ OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS), CLEO 2002, Postconference Edition, CWJ1 p. 405 (2002).

13. K. J. Siebert, H. Quast, R. Leonhardt, T. Löffler, M. Thomson, T. Bauer, H. G. Roskos, and S. Czasch, „*All-optoelectronic CW THz-imaging*“ OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS), CLEO 2002, Postconference Edition, CFD1 p. 633 (2002).
14. S. Eden, T. Löffler, M. Thomson, and H. G. Roskos, „*Optoelectronic THz Generation by Third-order Non-linearities in Air and Air Plasmas*“ OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS), QELS 2002, Postconference Edition, QWA23 p. 144 (2002).
15. K. J. Siebert, H. Quast, R. Leonhardt, T. Löffler, M. Thomson, T. Bauer, H. G. Roskos, and S. Czasch, „*Continuous-wave all-optoelectronic terahertz imaging*“ Appl. Phys. Lett. **80**, 3003 (2002).
16. Torsten Löffler, Karsten Siebert, Stephanie Czasch, Tobias Bauer, and Hartmut G. Roskos, „*Visualization and classification in biomedical terahertz pulsed imaging*“ Phys. Med. Bio. **47**(21), 3847 (2002).
17. K. Siebert, T. Löffler, H. Quast, M. Thomson, T. Bauer, R. Leonhardt, S. Czasch, and H. G. Roskos, „*All-optoelectronic CW THz imaging for biomedical applications*“ Phys. Med. Bio. **47**(21), 3743 (2002).
18. G. Segschneider, F. Jacob, T. Löffler, H. G. Roskos, S. Tautz, P. Kiesel, and G. Döhler, „*Free-carrier dynamics in low-temperature-grown GaAs at high excitation densities investigated by time-domain THz spectroscopy*“ Physical Review B **65**, 125205 (2002).
19. T. Löffler and H. Roskos, „*Gas-pressure dependence of terahertz-pulse generation in a laser-generated nitrogen plasma*“ Journal of Applied Physics **91**, 2611 (2002).
20. A. J. Fitzgerald, E. Dzontoh, T. Löffler, K. J. Siebert, E. Berry, N. N. Zinovev, R. E. Miles, M. A. Smith and M. Chamberlain, „*Effects of frequency on image quality in terahertz pulsed images*“ Proceedings of SPIE Medical Imaging, San Diego (2002).
21. K. J. Siebert, T. Löffler, H. Quast, R. Leonhardt, M. Thomson, T. Bauer, H. G. Roskos, and S. Czasch, „*All-optoelectronic CW THz imaging for tumor recognition*“ Ultrafast Phenomena XIII, Springer Series in Chemical Physics, Vol. 71, pp. 280, Springer Verlag, Berlin (2002).
22. N. Hasegawa, T. Löffler, M. Thomson, and H. G. Roskos, „*Remote Identification of Protrusions and Dents on Surfaces by Terahertz Reflectometry with Spatial Beam Filtering and Out-of-Focus Detection*“ Appl. Phys. Lett., zur Veröffentlichung akzeptiert (2003).
23. M. Kreß, S. Eden, T. Löffler, and H. G. Roskos, „*Generation of THz pulses by mixing of a fundamental and a second-harmonic wave in laser generated plasma - a microscopic description*“ CLEO Europe Technical Digest, EB2T (2003).
24. K. J. Siebert, A. Lisauskas, T. Löffler, and H.G. Roskos, „*Field Screening in low-temperature-grown GaAs Photoconductive Antennas*“ Jap. J. Appl. Phys. zur Veröffentlichung akzeptiert (2003).

2. Elektro-optische Detektion von THz-Strahlung

In diesem Kapitel wird die elektro-optische Detektion der THz-Strahlung in nicht-linearen optischen ZnTe-Kristallen behandelt. Diese Methode zur Detektion von THz-Signalen ist ausführlich untersucht worden [19, 20, 21, 22, 23]. In dem folgenden Kapitel der vorliegenden Arbeit wird nach einer kurzen Einführung in die kohärente Detektion und der Erarbeitung der relevanten Grundlagen für zwei unterschiedliche Detektionsgeometrien zunächst die Brechungsindexänderung und dann die absolute Phasenverschiebung als Funktion der angelegten elektrischen Feldstärke hergeleitet. Dabei wird insbesondere der Einfluss der Abfrage-Laserpulslänge, der Kohärenzlänge, der Eindringtiefe und der Kristalldicke auf die frequenzabhängige Empfindlichkeit diskutiert. Dieses ermöglicht auch die Bestimmung der Antwortfunktion des Detektors im Zeitbereich.

2.1. Einführung: Kohärente Erzeugung und Detektion von THz-Pulsen

Die Erzeugung der intensiven THz-Pulse erfolgt im Rahmen dieser Arbeit grundsätzlich optoelektronisch. Damit ist gemeint, dass die verwendeten THz-Quellen auf Grund der Beleuchtung mit einem ultrakurzen Laserpuls einen zeitlich korrelierten, elektro-magnetischen THz-Puls emittieren. Dieser kohärente Charakter der verwendeten THz Quellen wird bei der Detektion im Rahmen der Anrege-Abfrage-Technik (engl. „Pump-Probe“) ausgenutzt. Dazu wird ein opto-elektronischer Detektor, genauer ein elektro-optischer Kristall verwendet, der das elektrische Feld des THz-Pulses nur in einem im wesentlichen durch den Laserpuls vorgegebenen Zeitfenster abfragt. Dazu wird der Laserstrahl wie in Abb. 2.1 dargestellt in einen Anregestrahl für den Emitter und einen Abfragestrahl für den Detektor aufgeteilt. Für eine feste Zeitverzögerung zwischen den Anrege- und Abfragepulsen wird dann das elektrische Feld des THz-Pulses am Ort des Detektors nur zu einem bestimmten festen Zeitpunkt detektiert. Die Zeitverzögerung wird dann mittels einer mechanischen Verzögerungsstrecke variiert, so dass das THz-Signal im zeitlichen Verlauf bestimmt werden kann. Dabei wird dann eine Faltung der THz-Pulsform am Ort des Detektors mit der Zeitbereichs-Antwortfunktion (siehe auch Kap. 2.6) des Detektors gemessen.

2.2. Grundlagen: Phasenfehlانpassung und Absorption in ZnTe

In diesem Unterkapitel soll der Effekt der Phasenfehlانpassung (d.h. der unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeit von THz-Puls und optischem Puls) zunächst allgemein und dann am speziellen Beispiel von ZnTe diskutiert werden. Weiter wird auch die frequenzabhängige Absorption der THz-Strahlung in ZnTe diskutiert und die Eindringtiefe formal eingeführt. Damit werden insbesondere die Voraussetzungen zur Berücksichtigung der Phasenfehlانpassung und der THz-Absorption bei der elektro-optischen Detektion in diesem Kapitel bei der elektro-optischen Generation in Kap. 3.3 und geschaffen.

Im Rahmen dieser Arbeit ist die Ausbreitung von zwei Arten von elektromagnetischen Pulsen interessant. Dieses sind zum einen die optischen Laserpulse, für welche folgende Beschreibung

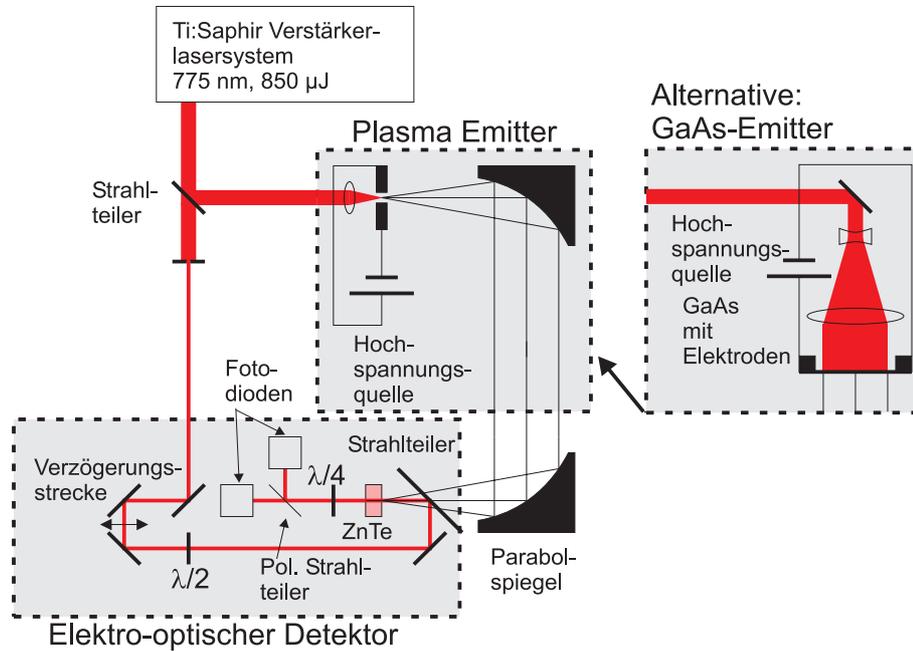


Abbildung 2.1.: Schematische Darstellung des Messaufbaus zur opto-elektronischen Erzeugung und Detektion von THz-Pulsen. Als Emitter ist der Plasmaemitter mit Vorspannung (siehe Kap. 5) und alternativ der großflächige GaAs-Emitter mit externer Vorspannung (siehe Kap. 3.4) dargestellt. Zusätzlich dargestellt ist der verwendete elektro-optische Detektor, welcher im wesentlichen aus dem ZnTe-Detektorkristall, der Polarisationsoptik und der Verzögerungsstrecke besteht.

verwendet wird:

$$E_{opt}(z, t) = E_{opt}^0(z, t) \cdot \sin \left(\omega_{opt} \left(t - \frac{zn(\omega_{opt})}{c_0} \right) \right). \quad (2.1)$$

Dabei ist $n(\omega_{opt})$ der frequenzabhängige Brechungsindex des Mediums für die Frequenz ω_{opt} . $E_{opt}^0(z, t)$ beschreibt die Einhüllende der optischen Strahlung. Der optische Puls besteht also aus einer Trägerwelle der Frequenz ω_{opt} , welcher mittels einer Amplitudenfunktion $E_{opt}^0(z, t)$ eine Pulsform aufgeprägt wird. Wie man allgemein zeigen kann [24, 25], muss in diesem Fall für die sogenannte Gruppengeschwindigkeit v_{gr} , welche die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Einhüllenden darstellt,

$$v_{gr} = \frac{c_0}{n_{gr}},$$

$$\text{mit } n_{gr} = n(\omega_{opt}) + \omega_{opt} \frac{d}{d\omega_{opt}} n(\omega_{opt}) \quad (2.2)$$

gelten. c_0 ist die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Das heißt $E_{opt}^0(z, t)$ muss die Form

$$E_{opt}^0(z, t) = E_{opt}^0(t^* = t - \frac{z}{v_{gr}}) \quad (2.3)$$

annehmen. Dabei beschreibt $E_{opt}^0(t^*)$ die genaue Form des Laserpulses in einem Koordinatensystem, welches sich mit dem Laserpuls (also mit v_{gr}) mitbewegt. Für die Ausbreitung von optischen Laserpulsen ist also nur diese Gruppengeschwindigkeit v_{gr} und der zugehörige Gruppengeschwindigkeitsbrechungsindex n_{gr} maßgeblich.

Der zweite Typ von elektromagnetischen Pulsen ist der erzeugte THz-Puls. Dieser besteht nur aus einer wenige Halbwellen umfassenden Signalform. Dieses bedeutet, dass der THz-Puls eine extrem hohe Bandbreite im Frequenzraum besitzt. Innerhalb eines dispersiven Mediums kann man damit nicht mehr von einem konstanten Brechungsindex bzw. einer konstanten Ausbreitungsgeschwindigkeit für den THz-Puls ausgehen. Im Folgenden soll daher der THz-Puls nach der Fourier-Theorie als Superposition von monochromatischen Wellen betrachtet werden. Damit ist es ausreichend die Detektion von solchen monochromatischen THz-Wellen zu betrachten.

Für die im Rahmen dieser Arbeit verwendete elektro-optische Detektion und die elektro-optische Generation ist man besonders an einer Anpassung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des optischen Pulses und der THz-Welle interessiert. Natürlich kann dieses auf Grund der Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex im Terahertzbereich nur für einzelne Frequenzen genau bzw. für THz-Pulse nur zu einem gewissen Grad gelingen. Im Weiteren ist es daher sinnvoll, die Kohärenzlänge $l_c(\omega_{THz})$ als Maß für die Anpassung der Ausbreitungsgeschwindigkeiten bei der jeweiligen Terahertzfrequenz ω_{THz} zu definieren. Dabei entspricht die Kohärenzlänge $l_c(\omega_{THz})$ der Propagationslänge, nach welcher sich die Phase der Terahertzwelle relativ zu der Einhüllenden des optischen Puls auf Grund der unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten um 180° verschoben hat. Die Kohärenzlänge kann damit formal ausgedrückt werden als

$$l_c = \pi \frac{\omega_{THz}}{c_0} (n_{gr} - n_{THz}). \quad (2.4)$$

Dabei wurde n_{THz} als Abkürzung für $n(\omega_{THz})$ (also für den Brechungsindex für die Phasengeschwindigkeit der THz-Welle) eingeführt.

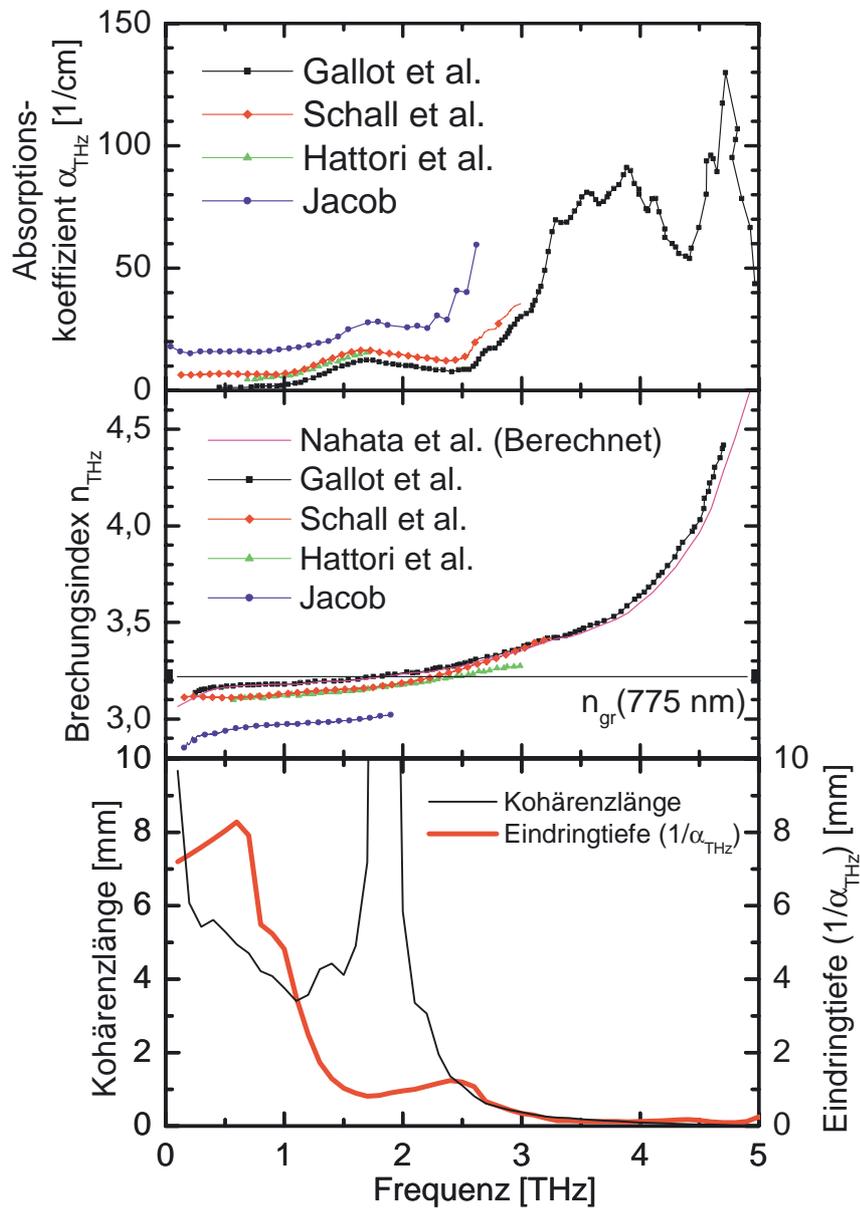


Abbildung 2.2.: Frequenzabhängige Kohärenzlänge und Eindringtiefe von ZnTe. Die Daten wurden dabei entnommen aus: Nahata et al. [26], Gallot et al. [27], Schall et al. [28], Jacob [29], Hattori et al. [30].

Die Bestimmung der Kohärenzlänge auf Basis des frequenzabhängigen Brechungsindex ist in Abb. 2.2 am Beispiel von ZnTe dargestellt. Dazu wurde zunächst der auf verschiedenen Quellen [26, 27, 28, 29, 30] beruhende Brechungsindex im Terahertzbereich dargestellt (Abb. 2.2 (Mitte)). Die Abweichungen der Daten voneinander erklären sich vermutlich durch systematische Messfehler (z.B. eine ungenaue Bestimmung der Probendicke) einerseits und durch Schwankungen in der Materialqualität andererseits. Für die weiteren Rechnungen und Diskussionen sollen die Daten von Gallot et al. verwendet werden. Hierfür spricht, dass diese Brechungsindexdaten recht gut mit den experimentellen Befunden von Hattori et al. und mit den Rechnungen von Nahata et al. übereinstimmen.

Zusätzlich wurde noch der optische Gruppengeschwindigkeitsbrechungsindex für 775 nm dargestellt. Optimale Phasen Anpassung und damit eine unendliche Kohärenzlänge erhält man, wenn beide Brechungsindizes übereinstimmen, was etwa bei 2 THz der Fall ist. In Abb. 2.2 (Unten) ist dann die nach Gleichung 2.4 berechnete Kohärenzlänge dargestellt. Dabei fällt auf, dass bis zu einer Frequenz von 2,5 THz Kohärenzlängen von mehr als 1 mm vorliegen. Damit erscheint (wie in Kap. 2.5 und Kap. 3.3 ausführlich diskutiert wird) die Verwendung dünnerer (als 1 mm) Kristalle für Anwendungen wie die elektro-optische Generation oder Detektion von THz-Strahlung im Frequenzbereich unterhalb von 2,5 THz nicht sinnvoll.

Neben der Kohärenzlänge ist bei der Wahl der nichtlinearen Kristalle bzw. deren Dicke natürlich auch die frequenzabhängige Absorption bzw. die Eindringtiefe der Terahertzstrahlung von großer Bedeutung¹. Die THz-Absorption wird dabei formal mittels des frequenzabhängigen Leistungsabsorptionskoeffizienten α_{THz} beschrieben:

$$\begin{aligned} I_{THz}(z) &= I_{THz}^0 \cdot \exp(-\alpha_{THz} z), \\ \text{bzw. } E_{THz}(z) &= E_{THz}^0 \cdot \exp\left(-\frac{\alpha_{THz}}{2} z\right). \end{aligned} \tag{2.5}$$

Die für ZnTe ermittelten Leistungsabsorptionskoeffizienten $\alpha_{THz}(\omega_{THz})$ [27, 28, 29, 30] sind in Abb. 2.2 (Oben) dargestellt. Auch hier sind die starken Abweichungen der Daten untereinander vermutlich auf systematische Fehler (wie z.B. die mangelhafte Behandlung von Vielfachreflexionen) oder Variationen in der Materialqualität zurückzuführen. Da ZnTe stark hygroskopisch ist und THz-Strahlung von Wasser sehr stark absorbiert wird, kann auch ein unterschiedlicher Wassergehalt in den Kristallen die teilweise drastischen Abweichungen erklären.

Die Eindringtiefe der Strahlung ist einfach über den Abfall der Intensität auf den Wert $1/e$ definiert und ist gegeben durch den Kehrwert von $\alpha_{THz}(\omega_{THz})$. Die so bestimmte Eindringtiefe ist ebenfalls in 2.2 (Unten) dargestellt. Es fällt auf, dass auch die Eindringtiefe im Frequenzbereich bis 2,5 THz oberhalb von 1 mm liegt, so dass sich auch auf Grund der Absorption keine Notwendigkeit zur Verwendung von dünneren Kristallen ergibt.

Auffällig ist, dass die Absorption und der Brechungsindex oberhalb von 3 THz deutlich ansteigen. Dieses erklärt sich dadurch, dass bei diesen Frequenzen im ZnTe LO-Phonon Resonanzen angeregt werden.

¹Die Absorption der optischen Strahlung ist sehr viel geringer und spielt prinzipbedingt nur bei der elektro-optischen Generation nicht aber bei der elektro-optischen Detektion eine Rolle.

2.3. Grundlagen: Der lineare Pockels-Effekt in ZnTe

Die elektro-optische Detektion basiert auf der Änderung des Brechungsindex (also der Ausbreitungsgeschwindigkeit für eine optische Welle) in nicht-linearen optischen Kristallen unter dem Einfluss eines äußeren quasistatischen² elektrischen Feldes, wie z.B. das des zu detektierenden THz-Pulses. Ist der Zusammenhang zwischen der Änderung des Brechungsindex und dem anliegenden elektrischen Feld linear, spricht man vom Pockels-Effekt. Terme höherer Ordnung, die zu einer quadratischen Abhängigkeit führen (Kerr-Effekt), können für die bei der Detektion von THz-Pulsen auftretenden elektrischen Feldstärken vernachlässigt werden. Allgemein wird der Brechungsindex³ n eines elektro-optischen Kristalls mit angelegtem elektrischen Feld durch den sogenannten Brechungsindextensor beschrieben. Das Brechungsindexellipsoid, welches die Bestimmung des Brechungsindex n für beliebige Feldrichtungen der optischen Welle erlaubt, ist dann gegeben durch [31]:

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_2 y^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_3 z^2 + 2\left(\frac{1}{n^2}\right)_4 yz + 2\left(\frac{1}{n^2}\right)_5 xz + 2\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 xy = 1. \quad (2.6)$$

Dabei ist die lineare Änderung der Koeffizienten $\left(\frac{1}{n^2}\right)_i$ durch ein willkürliches elektrisches Feld $\vec{E} = (E_x, E_y, E_z)$ gegeben durch:

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_i = \sum_{j=1}^3 r_{ij} E_j, \quad (2.7)$$

wobei $r_{i,j}$ den elektro-optischen Tensor darstellt.

In der vorliegenden Arbeit wurde ausschließlich in $\langle 110 \rangle$ -Richtung geschnittenes ZnTe zur elektro-optischen Detektion verwendet. ZnTe zählt zum kubischen Kristallsystem mit Zinkblende-Struktur (43m) und ist damit isotrop, d.h. der Brechungsindex ohne angelegtes Feld ist richtungsunabhängig. Der elektro-optische Tensor von ZnTe ist gegeben durch [20]

$$r_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ r_{41} & 0 & 0 \\ 0 & r_{41} & 0 \\ 0 & 0 & r_{41} \end{pmatrix}. \quad (2.8)$$

Damit gilt für das Brechungsindexellipsoid in ZnTe mit angelegtem elektrischem Feld

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_2 y^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_3 z^2 + 2r_{41} E_x yz + 2r_{41} E_y xz + 2r_{41} E_z xy = 1. \quad (2.9)$$

Dabei ist zu beachten, dass die x-Achse der [100]-Achse, die y-Achse der [010]-Achse und die z-Achse der [001]-Achse des Kristalls entspricht. Für die elektro-optische Detektion mit $\langle 110 \rangle$ -ZnTe

²also eines Feldes welches sich zeitlich deutlich langsam als das Feld der optischen Welle verändert.

³Der Brechungsindex n für die Phasengeschwindigkeit ist natürlich eine Funktion von ω_{opt} . (Dieses führt zu einem unterschiedlichen Brechungsindex für die Gruppengeschwindigkeit n_{gr} .) Die Abhängigkeit von ω_{opt} soll aber im weiteren weggelassen werden, so dass die Abkürzung $n = n(\omega_{opt})$ gilt.

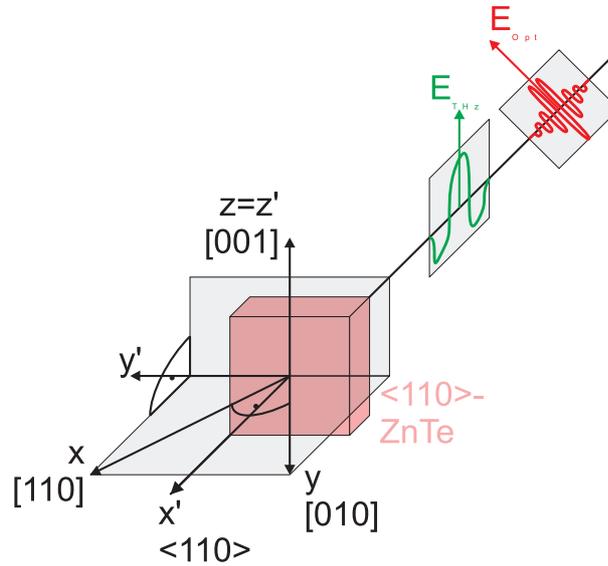


Abbildung 2.3.: Darstellung der Geometrie für elektro-optische Detektion in-<110> ZnTe mit 45° Unterschied zwischen der Polarisierung der optischen Strahlung und der Polarisierung des THz-Pulses.

wurden in der Literatur zwei Geometrien vorgeschlagen, welche den senkrechten Einfall der THz-Welle und der optischen Strahlung auf die <110>-Oberfläche gemeinsam haben. Die Geometrien unterscheiden sich jedoch in der Orientierung der Polarisierung der THz-Strahlung relativ zum Kristall und in der Orientierung der Polarisierung der optischen Strahlung relativ zu der der THz-Welle. In den folgenden zwei Unterkapiteln werden die zwei Geometrien detailliert vorgestellt.

Eine Formel zur allgemeingültigen Beschreibung der elektro-optischen Detektion mit ZnTe für beliebige Geometrien wurde kürzlich von Planken et. al entwickelt [32].

2.4. Elektro-optische Detektion in <110>-ZnTe

2.4.1. Detektion in ZnTe mit 45° Polarisationsdifferenz

Die in diesem Abschnitt vorgestellte Geometrie mit 45° Differenz zwischen der Polarisierung der einfallenden optischen Strahlung und der Polarisierung der THz-Welle liefert nicht die maximal mögliche Brechungsindexänderung pro angelegtem elektrischen Feld, erlaubt aber eine einfache Kalibrierung der Detektionsanordnung. Dieses ist detailliert in Kap. 2.7 dargestellt.

Diese Geometrie ist in Abb. 2.3 dargestellt. Im Koordinatensystem des Kristalls (x,y,z) liegt das elektrische Feld des THz-Pulses in z-Richtung ($\vec{E}_{det} = e_z E_{det}$). Damit ergibt sich für das Brechungsindexellipsoid:

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_2 y^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_3 z^2 + 2r_{41} E_{det} xy = 1. \quad (2.10)$$

Im weiteren bietet es sich an, ein Labor-Koordinatensystem (x',y',z') zu wählen, in dem das Brechungsindexellipsoid Hauptachsengestalt annimmt. Damit verschwindet der Mischterm xy. Dieses

Koordinatensystem wird durch die folgende Transformation definiert

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{\sqrt{2}} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}. \quad (2.11)$$

Die y' -Achse dieses Labor-Koordinatensystems liegt dabei in der Kristalloberfläche, während die x' -Achse parallel zur $\langle 110 \rangle$ -Richtung bzw. zur Ausbreitungsrichtung gewählt wurde. Damit ergibt sich für das Brechungsindexellipsoid im Laborsystem

$$x'^2 \left(\frac{1}{n^2} + r_{41} E_{det} \right) + y'^2 \left(\frac{1}{n^2} - r_{41} E_{det} \right) + \left(\frac{z'^2}{n^2} \right) = 1. \quad (2.12)$$

Hieraus ergibt sich für den Brechungsindex in y' -Richtung

$$\frac{1}{n_{y'}^2} = \frac{1}{n^2} - r_{41} E_{det}. \quad (2.13)$$

Durch Umformung und Taylor-Entwicklung bis zur ersten Ordnung erhält man

$$n_{y'} = n + \frac{n^3}{2} r_{41} E_{det}. \quad (2.14)$$

In z' -Richtung bleibt der Brechungsindex unverändert:

$$n_{z'} = n. \quad (2.15)$$

Da der optische Abfragestrahl unter 45° zur y' und zur z' -Achse polarisiert ist, ergibt sich für den durch den THz-Puls hervorgerufenen Brechungsindexunterschied zwischen der y' - und der z' -Komponente des optischen Abfragestrahls einfach

$$\Delta n = n_{y'} - n_{z'} = \frac{n^3}{2} r_{41} E_{det}. \quad (2.16)$$

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die vorgestellte Geometrie zwar verhältnismäßig anschaulich und einfach zu berechnen ist, was vermutlich erklärt, warum sie gelegentlich in der Literatur vorgeschlagen wurde [19]⁴. Allerdings wird, wie im nächsten Unterkapitel gezeigt wird, in dieser Geometrie nicht der maximal mögliche Brechungsindexunterschied erzielt.

2.4.2. Detektion in ZnTe mit 0° Polarisationsdifferenz

In der in Abb. 2.4 dargestellten Geometrie ist die Polarisation der optischen Welle und der THz-Strahlung gleich. Außerdem sind beide Polarisationen senkrecht zur z -Achse ($[001]$ -Achse) des Kristalls, also in $[110]$ -Richtung orientiert. Wie sich allgemein gültig zeigen lässt [20], wird in dieser Geometrie der größte mögliche Brechungsindexunterschied pro angelegtem elektrischem Feld

⁴In Ref. [19] wurde allerdings der Brechungsindexunterschied fälschlicherweise zu $\Delta n = n_{y'} - n_{z'} = n^3 r_{41} E_{det}$, also um den Faktor 2 zu groß berechnet.

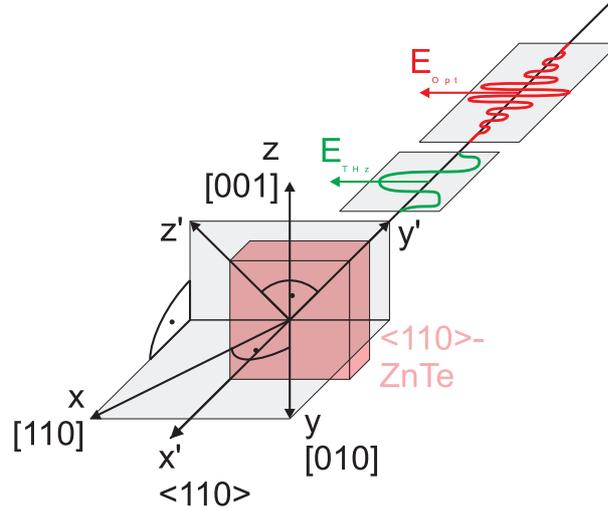


Abbildung 2.4.: Darstellung der Geometrie für elektro-optische Detektion in <110>-ZnTe mit θ Unterschied zwischen der Polarisation der optischen Strahlung und der Polarisation des THz-Pulses.

induziert. Im Koordinatensystem des Kristalls (x,y,z) ist das elektrische Feld des zu detektierenden THz-Pulses \vec{E}_{det} gegeben durch

$$\vec{E}_{det} = E_{det} \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (2.17)$$

Damit ergibt sich für das Brechungsindexellipsoid

$$\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 x^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_1 y^2 + \left(\frac{1}{n^2}\right)_3 z^2 + \sqrt{2}r_{41}E_{det}yz - \sqrt{2}r_{41}E_{det}xz = 1. \quad (2.18)$$

Auch hier wird wieder ein Labor-Koordinatensystem gewählt, in dem das Brechungsindexellipsoid Hauptachsengestalt annimmt. Dieses ist definiert durch die Transformation

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} & 0 \\ -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} & \frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} & \frac{1}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}. \quad (2.19)$$

Damit ergibt sich für das Brechungsindexellipsoid im Laborsystem

$$\left(\frac{x'^2}{n^2}\right) + y'^2 \left(\frac{1}{n^2} + r_{41}E_{det}\right) + z'^2 \left(\frac{1}{n^2} - r_{41}E_{det}\right) = 1 \quad (2.20)$$

und damit für den Brechungsindex in y' - und in z' -Richtung

$$\frac{1}{n_{y'}^2} = \frac{1}{n^2} + r_{41}E_{det}, \quad (2.21)$$

bzw.

$$\frac{1}{n_{z'}^2} = \frac{1}{n^2} - r_{41} E_{det}. \quad (2.22)$$

Durch Umformung und Taylor-Entwicklung bis zur ersten Ordnung erhält man

$$n_{y'} = n - \frac{n^3}{2} r_{41} E_{det}, \quad (2.23)$$

bzw.

$$n_{z'} = n + \frac{n^3}{2} r_{41} E_{det}. \quad (2.24)$$

Da der optische Abfragestrahl unter 45° zur y' und zur z' -Achse polarisiert ist, ergibt sich für den durch den THz-Puls hervorgerufenen Brechungsindexunterschied zwischen der y' und der z' -Komponente des optischen Abfragestrahls einfach

$$\Delta n = n_{z'} - n_{y'} = n^3 r_{41} E_{det}. \quad (2.25)$$

Dieses ist im Vergleich zur Geometrie mit 45° Differenz zwischen der Polarisation von THz-Puls und optischer Welle ein um den Faktor 2 vergrößerter Brechungsindexunterschied. Gleichzeitig ist dieses, wie in Ref. [20] allgemein gültig gezeigt wird, auch der für $\langle 110 \rangle$ -ZnTe maximal erreichbare Brechungsindexunterschied.

2.5. Absolute Detektorempfindlichkeit unter Berücksichtigung von Absorption und Phasenfehlanspassung

In Kap. 2.4.1 und 2.4.2 wurde die Brechungsindexdifferenz Δn im ZnTe-Detektorkristall als Folge des elektrischen Feldes der THz-Welle hergeleitet. Im Folgenden soll für die Geometrie, in welcher die erzeugte Brechungsindexdifferenz pro angelegtem Feld maximal wird (parallele Polarisation von THz-Signal und Abfragepuls; vgl. Kap. 2.4.2), die im Detektorkristall erzeugte absolute Phasendifferenz pro THz-Feldamplitude als Funktion der THz-Frequenz berechnet werden.

Bei der kohärenten Detektion von zeitabhängigen THz-Signalen mittels kurzer Laserpulse durch die Anrege-Abfrage-Technik (vergl. Kap. 2.1) kann die totale Phasendifferenz, welche der Abfragepuls erfährt, durch Integration der Brechungsindexdifferenz $\Delta n(E_{det})$ über die Detektor-kristalllänge l_{det} bestimmt werden [33, 34]:

$$\Delta\varphi(\tau) = \frac{2\pi}{\lambda_{opt}} \int_0^{l_{det}} dz \int_{-\infty}^{\infty} dt \Delta n(E_{det}(t + \tau, z)) \frac{I_{opt}(z, t)}{W_{opt}}. \quad (2.26)$$

Dabei ist τ die Zeitverzögerung zwischen dem THz-Signal und dem Abfragepuls und λ_{opt} die Vakuum-Wellenlänge des Abfragepulses. Weiter wurde durch den Term für die raum-zeitliche Intensitätsverteilung des Abfragepulses

$$\frac{I_{opt}(z, t)}{W_{opt}} = \frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\sqrt{\pi}\tau_p} \exp\left(\frac{-4\ln(2)\left(t - \frac{z}{v_{gr}}\right)^2}{\tau_p^2}\right),$$

mit $\int_{-\infty}^{\infty} \frac{I_{opt}(z, t)}{W_{opt}} dt = 1$

(2.27)

berücksichtigt, dass der Abfragepuls nur durch den Teil des elektrischen THz-Signals moduliert wird, welcher innerhalb des Kristalls raum-zeitlich mit dem Abfragepuls überlappt. Dabei ist \bar{p} die Halbwertspulsdauer des Abfragepulses, W_{opt} die Flächenenergiedichte der Abfragepulses und v_{gr} die optischen Gruppengeschwindigkeit. Eine Berücksichtigung von Verlusten der optischen Strahlung durch Reflexion oder Absorption ist nicht notwendig, da ja der Phasenunterschied letztendlich nur für den Teil des Abfragepulses, welcher auch die Photodioden erreicht, bestimmt wird.

Da sich nach der Fourier-Theorie auch beliebige THz-Signalformen als Summe von einzelnen Sinus-Wellen darstellen lassen, und insbesondere die Empfindlichkeit des Detektors als Funktion der Frequenz des THz-Signals interessant ist, bietet es sich an, das THz-Signal als Sinuswelle anzunehmen. Berücksichtigt man zusätzlich die Reflexionsverluste beim Eintritt der THz-Strahlung in den Kristall durch die Einführung eines Amplitudentransmissionskoeffizienten $\frac{2}{1+n_{THz}}$ und die Absorption innerhalb des Kristalls durch Einführung des frequenzabhängigen Leistungsabsorptionskoeffizienten α_{THz} , ergibt sich für das elektrische Feld innerhalb des Detektorkristalls

$$E_{det}(z, t) = E_{det}^0 \frac{2}{1 + n_{THz}} \sin\left(\omega_{THz} t + \frac{n_{THz} z}{c_0}\right) \exp\left(\frac{-\alpha_{THz}(\omega_{THz}) z}{2}\right). \quad (2.28)$$

Dabei ist E_{det}^0 die elektrische Feldamplitude der Frequenzkomponente des THz-Signals mit der Winkelfrequenz ω_{THz} im Brennpunkt, d.h. am Ort des Detektorkristalls. Durch Einsetzen von 2.28 in 2.25 und dann in 2.26, sowie von 2.27 in 2.26 und durch Substituieren von $t = t - z/v_{gr}$ ergibt sich unter Benutzung von 2.4

$$\begin{aligned}
\Delta\varphi(\tau, \omega_{THz}) &= E_{det}^0 s_{ZnTe} \frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\sqrt{\pi}\tau_p} \int_0^{l_{det}} dz \cdot \exp\left(\frac{-\alpha_{THz}z}{2}\right) \times \\
&\int_{-\infty}^{\infty} dt' \sin\left(\omega_{THz}t' + \omega_{THz}\tau + \frac{\pi z}{l_c}\right) \exp\left(\frac{-4\ln(2)t'^2}{\tau_p^2}\right) \\
&= E_{det}^0 s_{ZnTe} \int_0^{l_{det}} dz \exp\left(\frac{-\alpha_{THz}z}{2}\right) \exp\left(\frac{-\tau_p^2\omega_{THz}^2}{16\ln(2)}\right) \times \\
&\sin\left(\omega_{THz}\tau + \frac{\pi z}{l_c}\right) \\
&= E_{det}^0 s_{ZnTe} \frac{\sqrt{1 - 2\exp\left(\frac{-\alpha_{THz}l_{det}}{2}\right) \cdot \cos\frac{\pi l_{det}}{l_c} + e^{-\alpha_{THz}l_{det}}}}{\sqrt{\frac{\alpha_{THz}^2}{4} + \frac{\pi^2}{l_c^2}}} \times \\
&\exp\left(\frac{-\tau_p^2\omega_{THz}^2}{16\ln(2)}\right) \sin(\omega_{THz}\tau + \phi), \\
\text{mit } \phi &= \arctan\left(\frac{l_c\alpha_{THz}\sin\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) + 2\pi\left(\cos\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) - \exp\left(\frac{l_{det}\alpha_{THz}}{2}\right)\right)}{l_c\alpha_{THz}\left(\cos\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) - \exp\left(\frac{l_{det}\alpha_{THz}}{2}\right)\right) - 2\pi\sin\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right)}\right) \\
\text{und } s_{ZnTe} &= \frac{2}{1 + n_{THz}} \frac{2\pi n^3 r_{41}}{\lambda_{opt}} \\
&= 3,62 \cdot 10^{-2} \frac{rad}{(kV/cm)mm} \\
&= \frac{2,07^\circ}{(kV/cm)mm}.
\end{aligned} \tag{2.29}$$

Gleichung 2.29 beschreibt den absoluten Phasenunterschied, der in einer elektro-optischen Detektionsanordnung mit einem ZnTe-Kristall der Länge l_{det} in optimaler Geometrie unter Berücksichtigung von THz-Absorption, Phasenfehlانpassung und endlicher Abfragepulslänge erzeugt wird. Der Ausdruck s_{ZnTe} gibt die erzeugte Phasendifferenz pro THz-Feldstärke und pro Kristalllänge an, wenn man den Einfluss von Phasenfehlانpassung, THz-Absorption⁵ und der endlichen Abfrage-Laserpulslänge vernachlässigt⁶, und entspricht damit der Gleichspannungsempfindlichkeit der Detektionsanordnung.

Im Folgenden sollen die einzelnen Einflüsse zunächst einzeln und dann im Zusammenwirken näher betrachtet werden. Dazu bietet es sich an, die folgenden Näherungen durchzuführen. Vernachlässigt man zunächst die THz-Absorption und die Phasenfehlانpassung, ergibt sich

$$\Delta\varphi(\tau, \alpha_{THz} \rightarrow 0, l_c \rightarrow \infty) = E_{det}^0 s_{ZnTe} e^{\frac{-\tau_p^2\omega_{THz}^2}{16\ln(2)}} \cdot l_{det} \cdot \sin(\omega_{THz}\tau). \tag{2.30}$$

Dieser Ausdruck erlaubt es, die absolute Empfindlichkeit pro Kristalllänge als Funktion der Fre-

⁵Die Absorption des optischen Abfrage-Laserpulses spielt dagegen keine Rolle, da bei der Detektion mittels Ellipso-metrie nur Phasendifferenzen aber keine absoluten Intensitäten gemessen werden (vergl. Kap. 2.7).

⁶In der Geometrie mit 45° Polarisationsdifferenz reduziert sich der Wert von s_{ZnTe} um den Faktor 2 (vergl. Kap. 2.4.2).

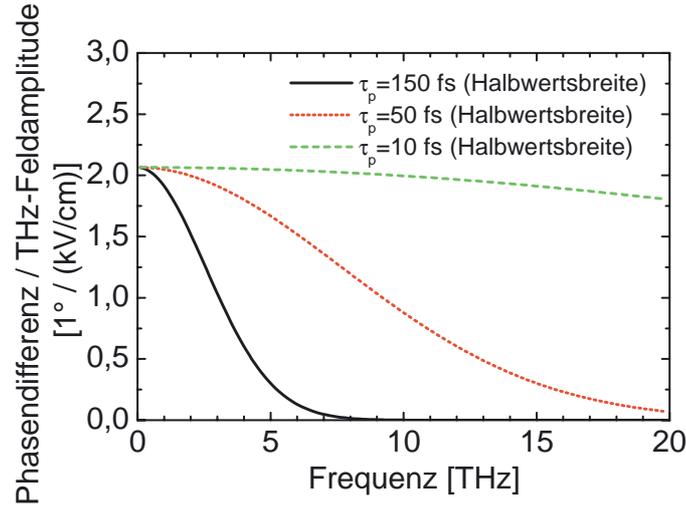


Abbildung 2.5.: Detektionsempfindlichkeit eines 1 mm dicken ZnTe-Kristalls für verschiedene Abfragepulslängen unter Vernachlässigung von Absorption und Phasenfehlانpassung.

quenz der THz-Signalkomponente für verschiedene Abfragepulslängen zu berechnen. Das Ergebnis ist in Abb. 2.5 dargestellt. Man erkennt deutlich, dass die Empfindlichkeit für die verwendete Abfragepulslänge von 150 fs bei etwa 3 THz auf die Hälfte abgefallen ist und oberhalb von 5 THz praktisch verschwindet. Kürzere Abfragepulslängen von z.B. 50 fs bzw. 10 fs machen den Frequenzbereich bis etwa 20 THz bzw. 50 THz zugänglich. Diese Reduzierung der Empfindlichkeit ist so zu verstehen, dass Abfrage-Laserpulse welche länger sind als die halbe Periodendauer der THz-Welle eine Auslöschung des Signals auftritt, da positive und negative Halbwellen des THz-Signals gleichzeitig abgefragt werden.

Um den Einfluss der Phasenfehlانpassung und der THz-Absorption zu veranschaulichen, ist es zunächst sinnvoll, den Einfluss der endlichen Abfragepulslänge zu vernachlässigen, also von einem unendlich kurzen Abfragepuls auszugehen. Damit ergibt sich

$$\Delta\varphi(\tau, \tau_p \rightarrow 0) = E_{det}^0 s_{ZnTe} \frac{\sqrt{1 - 2\exp\left(\frac{-\alpha_{THz} l_{det}}{2}\right) \cdot \cos\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) + \exp(-\alpha_{THz} l_{det})}}{\sqrt{\frac{\alpha_{THz}^2}{4} + \frac{\pi^2}{l_c^2}}} \times \sin(\omega_{THz} \tau + \phi),$$

$$\text{mit } \phi = \arctan\left(\frac{l_c \alpha_{THz} \sin\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) + 2\pi \left(\cos\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) - \exp\left(\frac{l_{det} \alpha_{THz}}{2}\right)\right)}{l_c \alpha_{THz} \left(\cos\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right) - \exp\left(\frac{l_{det} \alpha_{THz}}{2}\right)\right) - 2\pi \sin\left(\frac{\pi l_{det}}{l_c}\right)}\right). \quad (2.31)$$

Vernachlässigt man weiter den Einfluss der Phasenfehlانpassung, ergibt sich

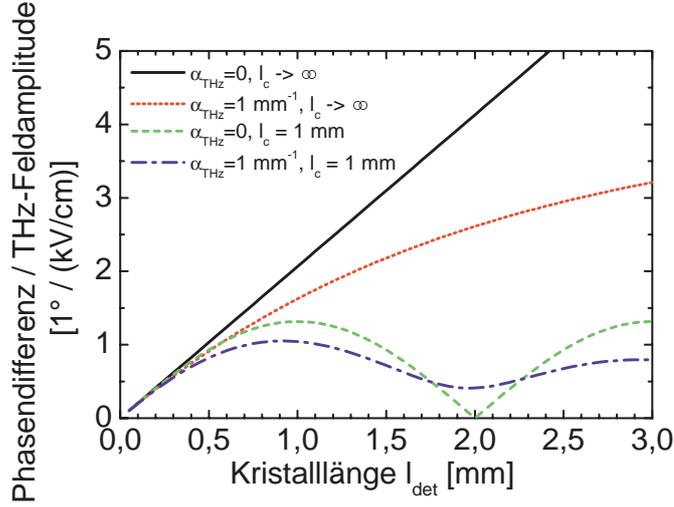


Abbildung 2.6.: Detektionsempfindlichkeit von ZnTe als Funktion der Kristalllänge

$$\Delta\varphi(\tau, \tau_p = 0, l_c \rightarrow \infty) = E_{det}^0 s_{ZnTe} \frac{2}{\alpha_{THz}} \left(1 - \exp\left(\frac{-\alpha_{THz} l_{det}}{2}\right) \right) \sin(\omega_{THz} \tau). \quad (2.32)$$

Geht man dagegen von einer vernachlässigbaren Absorption aus, ergibt sich:

$$\Delta\varphi(\tau, \omega_{THz}, \tau_p = 0, \alpha_{THz} = 0) = E_{det}^0 s_{ZnTe} \frac{l_c}{\pi} \sqrt{2 - 2 \cos \frac{\pi l_{det}}{l_c}} \sin(\omega_{THz} \tau + \phi),$$

$$\text{mit } \phi = \arctan \frac{1 - \cos \frac{\pi l_{det}}{l_c}}{\sin \frac{\pi l_{det}}{l_c}}. \quad (2.33)$$

Zur besseren Veranschaulichung ist in Abb. 2.6 die Detektionsempfindlichkeit als Funktion der Kristalllänge für unendlich kurze Abfragepulse dargestellt. Man erkennt, dass die Empfindlichkeit ohne Phasenfehlanpassung und ohne Absorption erwartungsgemäß linear mit der Kristalllänge anwächst. Ist nur Absorption vorhanden nähert sich die Empfindlichkeit für große Kristalllängen einem Maximalwert an und verändert sich dann nicht mehr. Liegt dagegen nur eine Phasenfehlanpassung und keine Absorption vor, steigt die Empfindlichkeit bis zu einer Kristalllänge gleich der Kohärenzlänge an, um danach wieder auf Null abzufallen. Dieser Vorgang wiederholt sich periodisch. Dieses erklärt sich dadurch, dass das THz-Signal und der Abfragepuls nach dem Durchlaufen der Kohärenzlänge genau eine Phasenverschiebung um $\lambda_{THz}/2$ erfahren haben, und sich der aufgebaute Phasenunterschied auf Grund der Vorzeichenumkehr des elektro-optische Effekts wieder abbaut. Liegen beide Effekte in etwa der gleichen Größenordnung vor ($l_c = 1/\alpha_{THz}$), erreicht die Empfindlichkeit schon bei einer Kristalllänge, welche leicht unterhalb der Kohärenzlänge liegt, ihren Maximalwert. Für größere Kristalllängen sinkt die Empfindlichkeit dann wieder bis zu einer Kristalllänge von etwa $2 \cdot l_c$, jedoch ohne dort ganz auf Null zurückzugehen.

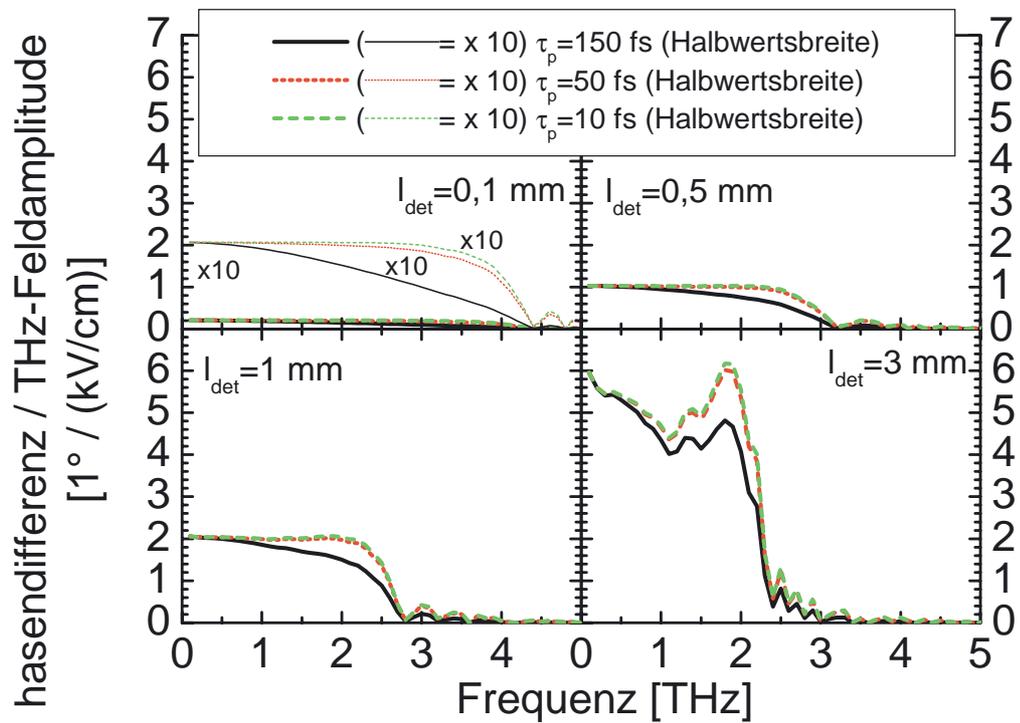


Abbildung 2.7.: Detektionsempfindlichkeit von ZnTe als Funktion der Frequenz für verschiedene Kristalllängen, unter Berücksichtigung von Absorption und Phasenfehlانpassung

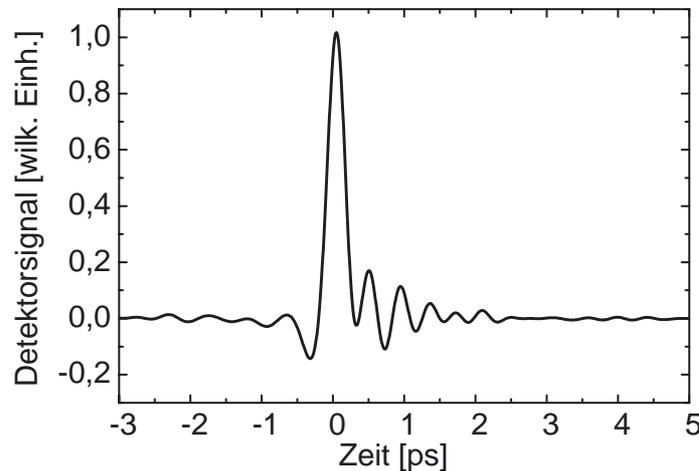


Abbildung 2.8.: Antwortfunktion des realen Detektors mit 1 mm Kristalllänge auf eine delta-förmige Anregung zum Zeitpunkt $t=0$ ps.

Berücksichtigt man alle Einflüsse auf die Empfindlichkeit und benutzt die bekannten frequenzabhängigen Werte für die Absorption und die Kohärenzlänge in ZnTe (vgl. Kap. 2.2), erlaubt Gleichung 2.29, die Empfindlichkeit für verschiedene Kristalllängen und Abfragepulslängen als Funktion der Frequenz der zu detektierenden THz-Signalkomponente zu berechnen. Das Ergebnis ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Man erkennt, dass für das hier verwendete System mit 150 fs Halbwertsbreite der Abfragepulse eine Verringerung der Kristalllänge unterhalb von 1 mm nicht mehr sinnvoll ist, da man nur sehr unwesentlich an Bandbreite gewinnt, jedoch deutlich an Empfindlichkeit verliert. Für Systeme mit 50 fs Abfragepulslänge ist es jedoch möglich, mit 100 μm dicken Kristallen eine Bandbreite von über 4 THz zu erzielen. Ist man nur an dem Bereich unterhalb von 2,5 THz interessiert, ergibt sich dagegen die Möglichkeit, mit dickeren Kristallen die Empfindlichkeit deutlich zu steigern. Dabei muss jedoch beachtet werden, dass der THz-Strahl in den Außenbereichen des Kristalls nicht mehr optimal fokussiert ist. Damit ist die Annahme ebener THz Wellen, welche in der Herleitung benutzt wurde, nur noch eingeschränkt gültig, so dass man eine Reduzierung der Empfindlichkeit relativ zu den zuvor berechneten Werten erwartet.

2.6. Antwortfunktion des Detektors im Zeitbereich

Auf Basis der im vorhergehenden Kapitel berechneten spektralen Empfindlichkeit in Verbindung mit der zugehörigen Phasenverschiebung kann auch die Antwortfunktion des Detektors auf eine delta-förmige Anregung im Zeitbereich bestimmt werden. Da ein Delta-puls spektral aus einer Überlagerung aller Frequenzen mit gleicher Amplitude besteht, erhält man die Antwortfunktion einfach durch Rücktransformation der durch Gleichung 2.29 gegebenen spektralen Empfindlichkeit. Dabei muss allerdings der Phasenterm im Frequenzraum berücksichtigt werden. Das Ergebnis einer solchen Berechnung ist in Abb. 2.8 für eine Kristalllänge von 1 mm und eine Abfragepulslänge von 150 fs (Halbwertsbreite) dargestellt. Man erkennt deutlich einen negativen Vorimpuls und ein deutliches Nachschwingen bis etwa 2 ps nach der Anregung. Damit entspricht die Auswirkung der

spektralen Empfindlichkeit des Detektors auf die detektierten Signale im Zeitbereich einer mathematischen Faltung der auf den Detektor fallenden THz-Signalfunktion mit der in Abb. 2.8 dargestellten Antwortfunktion.

2.7. Messung der Phasendifferenz durch Ellipsometrie

Beide in den Kapiteln 2.4.1 und 2.4.2 vorgestellten Detektionsgeometrien haben gemeinsam, dass die zwei jeweils unter 45° zur Polarisierung der einfallenden Welle liegenden Komponenten einer linear polarisierten optischen Welle einen relativen Phasenunterschied zueinander erfahren. Um diesen zu detektieren, reicht es nicht aus, direkt die zwei Komponenten zu erfassen, da ja gewöhnliche optische Detektoren wie z.B. Photodioden nur die Intensität und nicht die Phase einer optischen Welle detektieren. Wie im Weiteren gezeigt wird, ist es jedoch möglich, mittels einer $\lambda/4$ Verzögerungsplatte den Phasenunterschied in Form einer Intensitätsdifferenz detektierbar zu machen. Da diese Methode auf der Erzeugung von elliptisch polarisiertem Licht basiert, spricht man auch von Ellipsometrie [35]. Dabei bieten sich zwei mögliche Geometrien an, die sich im Wesentlichen durch die Ausrichtung der Eingangspolarisation relativ zu der Anordnung des polarisierenden Strahlteilers unterscheiden [19, 34]. Aus praktischen Gesichtspunkten möchte man den polarisierenden Strahlteiler möglichst so orientieren, dass er im Laborsystem senkrecht steht, d.h. dass man die im Laborsystem senkrecht bzw. waagrecht polarisierten Komponenten separat detektieren kann. Aus diesem Grunde wird hier für die zwei in Kap. 2.4.1 und in Kap. 2.4.2 vorgestellten Polarisationsgeometrien jeweils eine geeignete Geometrie zur Ellipsometrie vorgestellt. Zusätzlich wird in Kap. 2.7.2 und Anhang A.4 die Vorgehensweise bei der Durchführung von absolut kalibrierten Messungen in der 45° -Geometrie dargestellt.

2.7.1. Ellipsometrie für die 45° -Geometrie

Im Falle der ersten in Kap. 2.4.1 vorgestellten Geometrie mit 45° Differenz zwischen der THz-Welle und der optischen Welle liegt eine in 45° -Richtung polarisierte Eingangswelle vor. Damit bietet sich die in Abb.2.9 vorgestellte Anordnung zur Ellipsometrie an. In dieser Geometrie sind die ordentliche bzw. die außerordentliche Achse des $\lambda/4$ -Plättchens um 45° relativ zu den Achsen des Laborsystems gedreht.

Zur Berechnung der detektierbaren Intensitätsdifferenz verwendet man am besten die sogenannte Jones-Methode (engl. „Jones-Calculus“) [31]. Wie man in Abb. 2.9 erkennen kann, kann man die komplexe Feldamplitude der Eingangswelle mit einer angenommenen Phasendifferenz $\Delta\varphi$ im xy-Koordinatensystem ausdrücken als:

$$\vec{E}_{in}^0 = \begin{pmatrix} E_{in,x}^0 \\ E_{in,y}^0 \end{pmatrix} = \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} e^{\frac{i\Delta\varphi}{2}} \\ e^{-\frac{i\Delta\varphi}{2}} \end{pmatrix}. \quad (2.34)$$

Dabei ist E_{abs}^0 die komplexe Feldamplitude in Polarisationsrichtung der entsprechenden linear polarisierten Welle ohne Phasendifferenz. Für die Transfermatrix M_{45} einer um 45° relativ zur x-Achse gedrehten $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte ergibt sich (vgl. Gl. 2.38):

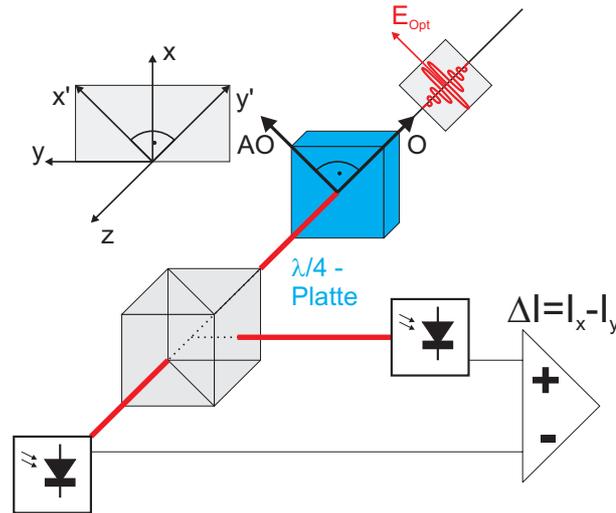


Abbildung 2.9.: Anordnung der Komponenten für Ellipsometrie bei 45° Eingangspolarisation

$$\begin{aligned}
 \mathbf{M}_{45} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} e^{-i\pi/4} & 0 \\ 0 & e^{i\pi/4} \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & -i \\ -i & 1 \end{pmatrix}.
 \end{aligned} \tag{2.35}$$

Damit erhält man für die komplexe Feldamplitude hinter der $\lambda/4$ Verzögerungsplatte:

$$\begin{aligned}
 \vec{E}_{out}^0 &= \begin{pmatrix} E_{out,x}^0 \\ E_{out,y}^0 \end{pmatrix} = \mathbf{M}_{45} \cdot \vec{E}_{in}^0 \\
 &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & -i \\ -i & 1 \end{pmatrix} \cdot \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} e^{i\Delta\varphi/2} \\ e^{-i\Delta\varphi/2} \end{pmatrix} \\
 &= \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \frac{1-i}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \cos\frac{\Delta\varphi}{2} + \sin\frac{\Delta\varphi}{2} \\ \cos\frac{\Delta\varphi}{2} - \sin\frac{\Delta\varphi}{2} \end{pmatrix}.
 \end{aligned} \tag{2.36}$$

Mittels eines Polarisators wird der Strahl dann in die in x bzw. in y-Richtung polarisierten Komponenten aufgeteilt. Die jeweiligen Intensitäten ($I_x = \frac{1}{2}\epsilon_0 c_0 |E_{out,x}^0|^2$ und $I_y = \frac{1}{2}\epsilon_0 c_0 |E_{out,y}^0|^2$) werden dann mit zwei Photodioden gemessen und mittels eines Differenzverstärkers voneinander subtrahiert.

Dabei muss beachtet werden, dass (im Gegensatz zur Verwendung von Lasersystemen mit Puls-wiederholfräquenzen im 100-MHz-Bereich) bei dem verwendeten Verstärkerlasersystem das mit dem Lock-In-Verstärker gemessene Signal einer einzelnen Photodiode nicht linear zur Laserpuls-energie ist. Dieses liegt zum einen an Sättigungseffekten in den Photodioden und daran, dass sich

die elektrische Signalform am hochohmigen⁷ Lock-In-Eingang mit der Laserpulsenergie ändert. Letzterer Effekt ist so zu verstehen, dass die durch den Laserpuls in der Photodiode erzeugte Ladung über den hochohmigen Eingang des Lock-In Verstärkers abfließt. Da die Zeitkonstanten für die Ladungserzeugung und den Ladungsabfluss beide intensitätsabhängig sind, ändert sich auch der resultierende vom Lock-In gemessene Spannungsverlauf. Eine experimentelle Bestimmung der Sättigungskurve und die Überprüfung der Linearität (vergl. Kap. 2.7.2) der Detektionsanordnung haben jedoch gezeigt, dass die Sättigungskurve im verwendeten kleinen Bereich rund um den Arbeitspunkt ausreichend linear ist, um im Weiteren bei der Verwendung des Differenzverstärkers von einem linearen Zusammenhang zwischen dem Lock-In-Signal und der Intensitätsdifferenz ausgehen zu können.

Das Lock-In-Signal U_{det} , welches letztendlich detektiert wird, ist also proportional zur Differenz der beiden Intensitäten. Damit ergibt sich dann:

$$\begin{aligned}
 U_{det} \propto \Delta I &= I_x - I_y \\
 &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 (|E_{out,x}^0|^2 - |E_{out,y}^0|^2) \\
 &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 |E_{abs}^0|^2 \sin \Delta \varphi \\
 &= (I_x + I_y) \sin \Delta \varphi \\
 U_{det} &= K_{det} \sin \Delta \varphi \\
 &\approx K_{det} \Delta \varphi.
 \end{aligned}
 \tag{2.37}$$

Im Rahmen dieser Arbeit sind maximale Phasendifferenzen von $< \mathcal{G}$ gemessen worden. Daher ist es gerechtfertigt in Gleichung 2.37 den Sinus mit dem Argument anzunähern.

2.7.2. Durchführung kalibrierter Messungen in der 45°-Geometrie

Zur Durchführung kalibrierter Messungen ist es also nötig, die Konstante K_{det} zu bestimmen. Da, wie zuvor dargestellt, bei dem verwendeten Lasersystem auf Grund von Sättigungseffekten für das Signal einer einzelnen Photodiode kein linearer Zusammenhang zwischen dem Lock-In-Signal und der absoluten Laserpulsenergie besteht, ist hier (in Gegensatz zur Verwendung von Lasersystemen mit 100-MHz-Pulswiederholfrequenz) keine Kalibrierung durch eine direkt Bestimmung der zu den einzelnen Photodioden gehörenden absoluten Lock-In-Signale möglich. Eine Kalibrierung auf Basis einer absoluten Messung der beiden Signalkomponenten ist vielmehr nur möglich, wenn zunächst eine Kalibrierkurve für das Lock-In-Signal als Funktion der optischen Intensität bestimmt wird. Diese Methode ist aber mühsam und fehlerbehaftet. Aus diesem Grunde wurde in dieser Arbeit ein alternativer Ansatz gewählt, bei dem in der Geometrie mit 45° Polarisationsdifferenz und ohne ein zu detektierendes THz-Signal der Kalibrierfaktor K_{det} durch eine definierte Drehung des $\lambda/4$ -Plättchens um die Strahlachse gewonnen wird. Im weiteren sei $\theta_{\lambda/4}$ der Winkel welcher zwischen der ordentlichen Achse des $\lambda/4$ -Plättchens und der x-Achse liegt. Für die Transfermatrix eines $\lambda/4$ -Plättchens, welches unter dem Winkel $\theta_{\lambda/4}$ steht, ergibt sich:

⁷Die Verwendung eines hochohmigen Spannungseingangs zur Messung von Signalen von Photodioden ist ungewöhnlich. Allerdings hat sich gezeigt, dass andere Konfigurationen wie die Verwendung eines 50-Ohm-Eingangs oder einer Vorspannung der Photodioden zu deutlich schlechtere Signal-zu-Rausch-Eigenschaften des Gesamtsystems führen.

$$\begin{aligned}
\mathbf{M}(\theta_{\lambda/4}) &= \mathbf{Q}(-\theta_{\lambda/4}) \mathbf{M}_0 \mathbf{Q}(\theta_{\lambda/4}) \\
&= \begin{pmatrix} \cos -\theta_{\lambda/4} & \sin -\theta_{\lambda/4} \\ -\sin -\theta_{\lambda/4} & \cos -\theta_{\lambda/4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{i\frac{\pi}{4}} & 0 \\ 0 & e^{-i\frac{\pi}{4}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta_{\lambda/4} & \sin \theta_{\lambda/4} \\ -\sin \theta_{\lambda/4} & \cos \theta_{\lambda/4} \end{pmatrix} \\
&= \begin{pmatrix} (2i \cos^2(\theta_{\lambda/4}) + 1 - i)/\sqrt{2} & i\sqrt{2} \cos(\theta_{\lambda/4}) \sin(\theta_{\lambda/4}) \\ i\sqrt{2} \cos(\theta_{\lambda/4}) \sin(\theta_{\lambda/4}) & -(2i \cos^2(\theta_{\lambda/4}) - 1 - i)/\sqrt{2} \end{pmatrix}.
\end{aligned} \tag{2.38}$$

In der Geometrie mit 45° Eingangspolarisation gilt für die komplexe elektrische Feldamplitude des Abfragepulses ohne THz-Signal im xy-Koordinatensystem:

$$\vec{E}_{in}^0 = \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}. \tag{2.39}$$

Damit ergibt sich für das Signal nach dem $\lambda/4$ -Plättchen:

$$\begin{aligned}
\vec{E}_{out}^0(\theta_{\lambda/4}) &= \begin{pmatrix} E_{out,x}^0 \\ E_{out,y}^0 \end{pmatrix} = \mathbf{M}(\theta_{\lambda/4}) \cdot \vec{E}_{in}^0 \\
&= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} i(\sin(2\theta_{\lambda/4}) + \cos(2\theta_{\lambda/4})) + 1 \\ i(\sin(2\theta_{\lambda/4}) - \cos(2\theta_{\lambda/4})) + 1 \end{pmatrix} \cdot E_{abs}^0.
\end{aligned} \tag{2.40}$$

Analog zu 2.37 ergibt sich dann für die gemessene Differenz der Intensitäten:

$$\begin{aligned}
U_{det} \propto \Delta I &= I_x - I_y \\
&= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 (|E_{out,x}^0|^2 - |E_{out,y}^0|^2) \\
&= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 |E_{abs}^0|^2 \frac{1}{2} \cos(4\theta_{\lambda/4}) \\
&= (I_x + I_y) \frac{1}{2} \cos(4\theta_{\lambda/4}) \\
U_{det} &= K_{det} \frac{1}{2} \cos(4\theta_{\lambda/4}).
\end{aligned} \tag{2.41}$$

Zur Bestimmung des Kalibrierfaktors wird nun der Drehwinkel $\theta_{\lambda/4}$ in einem kleinen Bereich ($\Delta\theta_{\lambda/4}$) um $\theta_{\lambda/4} = 45^\circ$ variiert. Damit ergibt sich für das gemessene Lock-In-Signal als Funktion der Verdrehung $\Delta\theta_{\lambda/4}$:

$$\begin{aligned}
U_{det} &= K_{det} \frac{1}{2} \cos\left(\frac{\pi}{2} + 4\Delta\theta_{\lambda/4}\right) \\
&= K_{det} \frac{1}{2} \sin(4\Delta\theta_{\lambda/4}) \\
&\approx K_{det} 2\Delta\theta_{\lambda/4}.
\end{aligned} \tag{2.42}$$

Dabei wurde im letzten Schritt der Sinus für kleine Winkel mit dem Argument genähert, da die

Kalibrierung nur für kleine Variationen $4\Delta\theta_{\lambda/4}$ des Drehwinkels durchgeführt wurde. Der lineare Zusammenhang zwischen der Verdrehung des $\lambda/4$ -Plättchens (um kleine Winkel) und des detektierten Lock-In-Signals erlaubt nun eine Bestimmung des Kalibrierfaktors K_{det} indem für verschiedene kleine positive und negative Werte von $\Delta\theta_{\lambda/4}$ das Lock-In-Signal bestimmt wird. Mittels linearer Regression kann dann einerseits der Kalibrierfaktor K_{det} ausreichend genau bestimmt werden und die Linearität der verwendeten Detektionsanordnung überprüft werden. Dabei konnte im Bereich der verwendeten Verdrehung von $|\Delta\theta_{\lambda/4}| < 5^\circ$ ⁸ im Rahmen der Messgenauigkeit⁹ keine Abweichung vom linearen Verhalten festgestellt werden. Auch bei einer Variation des THz-Signals (z.B durch eine Änderung der Vorspannung des GaAs-Emitters¹⁰, siehe Kap. 3.4) über den vollen in der vorliegenden Arbeit verwendeten Intensitätsbereich konnten keine Abweichungen vom linearen Verhalten des Detektors festgestellt werden.

Zusammenfassend ermöglicht also ein definiertes Verdrehen des $\lambda/4$ -Plättchens eine Bestimmung des Kalibrierfaktor K_{det} , auf Basis von Gleichung 2.41. Damit sind im weiteren absolute Messungen der THz-Feldstärke möglich. Ein Beispiel für die Kalibrierprozedur ist mit absoluten Zahlenwerten in Anhang A.4 dargestellt.

2.7.3. Ellipsometrie in der 0° -Geometrie

Sollte der optische Abfragestrahl, wie bei der in Kap. 2.4.2 vorgestellten Geometrie, im Laborsystem waagrecht, bzw. in y-Richtung polarisiert sein, ist die in Abb.2.10 vorgestellte Anordnung sinnvoll. Auch in dieser Geometrie sind die ordentliche bzw. die außerordentliche Achse des $\lambda/4$ -Plättchens um 45° relativ zu den Achsen des Laborsystems gedreht. Hier lässt sich die komplexe Feldamplitude der Eingangswelle mit einer angenommenen Phasendifferenz $\Delta\varphi$ in dem um 45° gedrehten $x'y'$ -Koordinatensystem ausdrücken als:

$$\vec{E}'_{in,0} = \begin{pmatrix} E_{in,x'}^0 \\ E_{in,y'}^0 \end{pmatrix} = \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} e^{\frac{i\Delta\varphi}{2}} \\ e^{-\frac{i\Delta\varphi}{2}} \end{pmatrix}. \quad (2.43)$$

Für die Transfermatrix M_0 einer nicht gedrehten $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte gilt:

$$M_0 = \begin{pmatrix} e^{-\frac{i\pi}{4}} & 0 \\ 0 & e^{\frac{i\pi}{4}} \end{pmatrix}. \quad (2.44)$$

Damit ergibt sich die für die komplexe Feldamplitude hinter der $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte im gedrehten Koordinatensystem:

$$\vec{E}'_{out,0} = M_0 \cdot \vec{E}'_{in,0} = \begin{pmatrix} e^{-\frac{i\pi}{4}} & 0 \\ 0 & e^{\frac{i\pi}{4}} \end{pmatrix} \cdot \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} e^{\frac{i\Delta\varphi}{2}} \\ e^{-\frac{i\Delta\varphi}{2}} \end{pmatrix} = \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} e^{-i(\frac{\pi}{4} - \frac{\Delta\varphi}{2})} \\ e^{i(\frac{\pi}{4} - \frac{\Delta\varphi}{2})} \end{pmatrix}. \quad (2.45)$$

⁸Dieses entspricht dem Bereich der in der vorliegenden Arbeit auf Grund eines THz-Signals erzeugten Phasendifferenzen $\Delta\varphi$ von maximal $\pm 6^\circ$.

⁹Die Messgenauigkeit bei der Durchführung der Kalibrierung beträgt etwa $\pm 5\%$, da eine Einstellung des absoluten Drehwinkels des $\lambda/4$ -Plättchens nicht genauer möglich ist.

¹⁰Bei diesem Emitter ist aus der Literatur bekannt, dass die emittierte THz-Feldamplitude völlig linear mit der angelegten Vorspannung skaliert. Damit kann die Überprüfung der Linearität des Detektors auf eine Überprüfung des linearen Zusammenhangs zwischen angelegter Vorspannung und detektierter THz-Feldamplitude zurückgeführt werden. Dieser lineare Zusammenhang ist in Abb. 3.12 dargestellt.

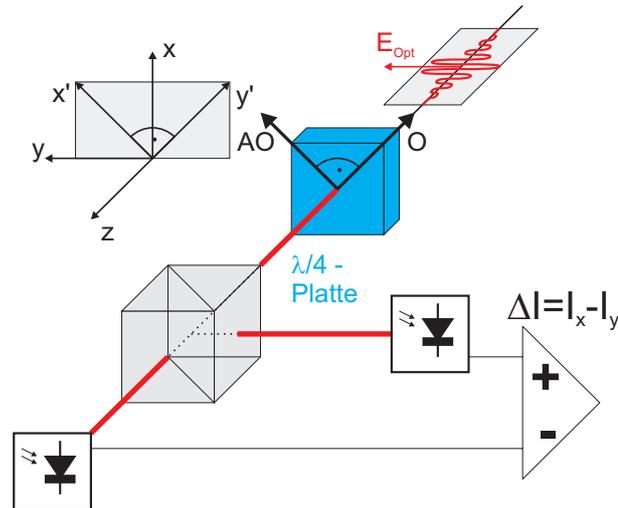


Abbildung 2.10.: Anordnung der Komponenten für Ellipsometrie bei \emptyset -Eingangspolarisation

Durch Rücktransformation ins xy -Laborsystem erhält man:

$$\vec{E}_{out}^0 = \begin{pmatrix} E_{out,x}^0 \\ E_{out,y}^0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \cdot \vec{E}'_{out}^0 = \frac{E_{abs}^0}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} i(\cos\frac{\Delta\varphi}{2} - \sin\frac{\Delta\varphi}{2}) \\ \cos\frac{\Delta\varphi}{2} + \sin\frac{\Delta\varphi}{2} \end{pmatrix}. \quad (2.46)$$

Auch hier ergibt sich für die Differenz der beiden Intensitäten, welche detektiert wird:

$$\begin{aligned} U_{det} \propto \Delta I &= I_x - I_y \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 (|E_{out,x}^0|^2 - |E_{out,y}^0|^2) \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 |E_{abs}^0|^2 \sin\Delta\varphi \\ &= (I_x + I_y) \sin\Delta\varphi \\ U_{det} &= K_{det} \sin\Delta\varphi \\ &\approx K_{det} \Delta\varphi. \end{aligned} \quad (2.47)$$

Dabei wurde wie bei der zuvor vorgestellten Geometrie der Sinus mit dem Argument angenähert. Die in diesem Unterkapitel beschriebene Anordnung liefert wegen der größeren Brechungsindexänderung pro THz-Feldstärke (vgl. Kap. 2.4.2 und Kap. 2.4.1) ein besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis. In dieser Geometrie ist eine Kalibrierung durch Drehen des $\lambda/4$ -Plättchens allerdings nur schwer möglich, da die Intensitätsdifferenz als Funktion der Verdrehung des $\lambda/4$ -Plättchens mit dem Quadrat des Sinus variiert. Damit kann keine Näherung für kleine Winkel und lineare Regression erfolgen. Vielmehr müssten die gemessenen Werte für die Intensitätsdifferenz an den Sinus-zum-Quadrat-förmigen Verlauf angepasst werden. Diese Methode ist sehr fehlerbehaftet und ermöglicht keine Überprüfung der Linearität der Detektionsanordnung. Für kalibrierte Messung bzw. zur Bestimmung des Kalibrierfaktors wurde daher die zuvor in Kap. 2.7.1 vorgestellte Anordnung verwendet.

3. THz-Erzeugung in großflächigen Emittern

Bei der opto-elektronische Erzeugung von THz-Strahlung ausgehend von Laserpulsen von Verstärkerlasersystemen ist die Verwendung von mehr oder weniger großflächigen¹ Emittern notwendig, um die Flächenbelastung des Emitters einerseits unterhalb der Zerstörschwelle zu belassen und um andererseits Sättigungseffekte zu reduzieren. Die Erzeugung von THz-Strahlung in großflächigen Emittern ist mit intrinsischen [36, 37] und mit elektrisch vorgespannten [37, 38, 39, 40, 41, 42, 43, 44, 45] Halbleiteroberflächen sowie mit nichtlinearen Kristallen [46, 47] gezeigt worden.

In Rahmen dieser Arbeit wurden zwei großflächige Standardemitter untersucht. Dabei handelt es sich zum einen um großflächige elektrisch vorgespannte GaAs-Emitter und zum anderen um großflächige nichtlineare ZnTe-Kristalle. Diese beiden Emitter werden in den Unterkapiteln 3.3 und 3.4 näher vorgestellt. Zuvor sollen jedoch zunächst allgemein die Grundlagen der Erzeugung und Ausbreitung der THz-Strahlung erarbeitet werden. Dazu wird in Kap. 3.1 formal die Konversionseffizienz eines Flächenelements und eine Funktion zur Beschreibung der zeitliche Signalform der erzeugten THz-Strahlung eingeführt. Weiter wird in Unterkapitel 3.2 die Ausbreitung und Fokussierung der THz-Strahlung von großflächigen Emittern diskutiert.

3.1. Erzeugung von THz-Strahlung aus großflächigen Emittern

Die Beschreibung des THz-Generationsprozesses erfolgt ausgehend von einem Laserstrahl der Leistung L_{opt} , welcher aus einzelnen gaußförmigen Laserpulsen mit der Pulslänge τ_p und der Energie J_{opt} besteht. Die Wiederholrate (Repetitionsrate) der Pulse ist ν_{rep} . Dabei gilt:

$$L_{opt} = \nu_{rep} \cdot J_{opt}. \quad (3.1)$$

Wird nun ein Teilstück der Fläche ΔA eines flächigen Emitters mit der Teilenergie ΔJ_{opt} eines solchen Laserstrahls beleuchtet, wird von dem jeweiligen Teilstück ein elektromagnetischer THz-Puls mit der elektrischen Feldamplitude $E_{THz}(t)$ abgestrahlt². Dabei soll das Teilstück ΔA so groß sein, so dass die einfallende optische Strahlung und die erzeugte THz-Welle in guter Näherung als ebene Wellen angesehen werden können. Wie in den folgenden Unterkapiteln gezeigt wird, lässt sich die erzeugte THz-Strahlung dann wie folgt beschreiben:

$$\begin{aligned} E_{THz}(t) &= K_{GE}^{eff} \cdot \frac{\Delta J_{opt}}{\Delta A} \cdot T_{GE}^{norm}(t), \quad \text{mit} \quad \int_{-\infty}^{\infty} T_{GE}^{norm}(t)^2 dt = 1 \\ &= K_{GE}^{eff} \cdot W_{opt} \cdot T_{GE}^{norm}(t), \quad \text{mit} \quad W_{opt} = \frac{\Delta J_{opt}}{\Delta A}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

¹Mit „großflächig“ ist dabei gemeint, dass die Seitenlängen der Emitterfläche sehr viel größer als die Wellenlänge der THz-Strahlung und auch sehr viel größer als die Dicke des Emitters sind.

²Der Index „THz“ wird für die Bezeichnung von Signalkomponenten am Ort des Emitters ($z = 0$) verwendet. THz-Signale am Ort des Detektor werden dagegen mit E_{det} bezeichnet.

Dabei ist K_{GE}^{eff} ein Faktor, welcher die Effizienz des THz-Emitters beschreibt und $T_{GE}^{norm}(t)$ eine normierte Funktion, welche die zeitliche Form des erzeugten THz-Pulses wiedergibt. Die Normierung von T_{GE}^{norm} durch Zeitintegration wurde dabei so gewählt, dass die energetische Konversionseffizienz nur noch von K_{GE}^{eff} und nicht mehr von T_{GE}^{norm} abhängt. Weiter wurde W_{opt} als optische Flächenenergiedichte eines einzelnen optischen Pulses eingeführt. Die gewählte Form von Gl. 3.2 und insbesondere die Proportionalität der erzeugten THz-Feldstärke zur optischen Intensität berücksichtigt formal, dass es sich bei den im weiteren beschriebenen Flächenemittern grundsätzlich um nichtlineare Emitter zweiter Ordnung handelt. D.h. die erzeugte THz-Feldstärke ist proportional zum Quadrat der optischen Feldstärke. Wie in den nachfolgenden Kapiteln detailliert gezeigt wird, liegt dieses daran, dass die Quelle der THz-Feldstärke immer die Änderung der Polarisierung, also der Verschiebestrom ist. Dieser ist aber bei allen hier diskutierten Emittlern proportional zur optischen Intensität. Superradianz-Effekte, wie in Ref. [48] spielen hier dagegen keine Rolle, da die erzeugten Dipolmomente senkrecht zur Ausbreitungsrichtung stehen. Konzept zur Nutzung des Superradianz-Effekts werden im Ausblick dieser Arbeit in Kap. 9.1 dargestellt.

Mit Gl. 3.2 ergibt sich dann für die erzeugte Flächenenergiedichte des THz-Pulses

$$\begin{aligned}
W_{THz} &= \frac{\Delta J_{THz}}{\Delta A} \\
&= c_0 \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} |E_{THz}(t)|^2 dt \\
&= c_0 \epsilon_0 (K_{GE}^{eff})^2 \left(\frac{\Delta J_{opt}}{\Delta A} \right)^2 \\
&= c_0 \epsilon_0 (K_{GE}^{eff})^2 W_{opt}^2.
\end{aligned} \tag{3.3}$$

Dabei wurde das Poynting-Theorem³ benutzt und analog zur optischen Flächenenergiedichte W_{opt} eine Flächenenergiedichte W_{THz} des erzeugten einzelnen THz-Pulses eingeführt.

Die Definition von K_{GE}^{eff} und $T_{GE}^{norm}(t)$ erlaubt damit eine allgemeine Beschreibung der energetischen Konversionseffizienz η eines Flächenelements des Emitters. Diese ist gegeben durch:

$$\eta = \frac{W_{THz}}{W_{opt}} = c_0 \epsilon_0 (K_{GE}^{eff})^2 W_{opt}. \tag{3.4}$$

Dabei ist zu beachten, dass für genügend niedrige Werte von W_{opt} sind K_{GE}^{eff} und T_{GE}^{norm} unabhängig von der optischen Flächenenergiedichte sind, wogegen für höhere Werte Sättigungseffekte auftreten, die in der Regel zu einer Reduzierung von K_{GE}^{eff} mit steigender optischer Flächenenergiedichte und einer Veränderung des zeitlichen Verlaufs von T_{GE}^{norm} führen werden. Damit kann Gl. 3.4 so verstanden werden, dass für niedrige Werte von W_{opt} der Faktor K_{GE}^{eff} konstant und damit die energetische Konversionseffizienz η proportional zur Flächenenergiedichte W_{opt} ist. Weiter erlaubt die Definition bzw. die Normierungsbedingung von $T_{GE}^{norm}(t)$ die Sättigung (also eine Reduzierung in der energetischen Konversionseffizienz relativ zum erwarteten linearen Anstieg mit W_{opt}) nur durch eine Reduzierung von K_{GE}^{eff} zu beschreiben. Im Fall von vorliegendem Sättigungsverhalten ist K_{GE}^{eff} also als Funktion von W_{opt} zu verstehen, wobei der Verlauf von $K_{GE}^{eff}(W_{opt})$ die Sättigung quantitativ beschreibt.

³benannt nach dem engl. Physiker Poynting

Gleichung 3.3 kann daher auch zur Bestimmung von K_{GE}^{eff} benutzt werden, wenn die erzeugte THz-Signalform $E_{THz}(t)$ bekannt ist. In diesem Fall gilt

$$K_{GE}^{eff} = \frac{\sqrt{\int_{-\infty}^{\infty} |E_{THz}(t)|^2 dt}}{W_{opt}}. \quad (3.5)$$

Im weiteren wollen wir uns zunächst auf den Fall vernachlässigbarer Sättigung beschränken und nehmen an, dass K_{GE}^{eff} und T_{GE}^{norm} nur von τ_p und den verschiedenen Emitterparametern, abhängen.

3.2. Ausbreitung von THz-Strahlung aus großflächigen Emittern

Bei der Anwendung der großflächigen Emitter werden diese mit einem aufgeweiteten möglichst nicht divergenten Laserstrahl beleuchtet. Damit ist die Annahme gerechtfertigt, dass das zeitliche Intensitätsprofil überall auf dem Emitter gleich ist, und die Energie des Pulses räumlich gaußförmig verteilt ist. Damit gilt für die auf den Emitter auftreffende optische Flächenenergiedichte

$$W_{opt}(r) = \frac{2J_{opt}}{A_{opt}} \exp\left(-\frac{2r^2}{r_{opt}^2}\right). \quad (3.6)$$

Dabei ist r_{opt} der $1/e^2$ -Radius⁴ und $A_{opt} = \pi r_{opt}^2$ die effektive Fläche des auftreffenden optischen Laserstrahls. Der Ursprung des Koordinatensystems befindet sich im Zentrum des Pulses. Der Vorfaktor wurde so gewählt, dass J_{opt} der Gesamtenergie eines optischen Pulses entspricht. Mit Gleichung 3.3 lässt sich dann auch die Flächenenergiedichte des erzeugten THz-Pulses bestimmen:

$$\begin{aligned} W_{THz}(r) &= c_0 \epsilon_0 (K_{GE}^{eff})^2 (W_{opt}(r))^2 \\ &= c_0 \epsilon_0 (K_{GE}^{eff})^2 \frac{4J_{opt}^2}{A_{opt}^2} \exp\left(-\frac{4r^2}{r_{opt}^2}\right) \\ &= \frac{2J_{THz}}{A_{THz}} \exp\left(-\frac{2r^2}{r_{THz}^2}\right), \end{aligned}$$

mit $J_{THz} = c_0 \epsilon_0 (K_{GE}^{eff})^2 \cdot \frac{J_{opt}^2}{A_{opt}}$ (3.7)

$$\begin{aligned} &= \frac{1}{2} W_{THz}(r=0) A_{opt} \\ &= W_{THz}(r=0) A_{THz} \end{aligned} \quad (3.8)$$

$$\text{und } r_{THz} = \frac{1}{\sqrt{2}} r_{opt}$$

$$\text{sowie } A_{THz} = \pi r_{THz}^2 = \frac{1}{2} A_{opt}. \quad (3.9)$$

Dabei wurde J_{THz} als Gesamtenergie des THz-Pulses und r_{THz} als $1/e^2$ -Strahlradius bzw. A_{THz} als Fläche der erzeugten THz-Strahlung eingeführt. Auffallend ist, dass die erzeugte THz-Strahlung einen um den Faktor $\sqrt{2}$ reduzierten Strahlradius aufweist. Ebenso fällt auf, dass die erzeugte

⁴Der $1/e^2$ -Radius ist definiert über einen Abfall der Intensität auf $1/e^2$.

Gesamtenergie des THz-Pulses auch bei konstanter optischer Pulsenergie entgegengesetzt proportional zur beleuchteten Fläche des Emitters ist. Bei konstanter Emitterfläche ist die THz-Pulsenergie proportional zum Quadrat der optischen Pulsenergie. Diese beiden Eigenschaften resultieren direkt aus der nichtlinearen Natur der opto-elektronischen THz-Emitter, welche bereits in Gl. 3.2 angenommen wurde.

Im angenommenen Fall vernachlässigbarer Sättigung kann man weiter davon ausgehen, dass die zeitliche Signalform und die relative Phasenlage der erzeugten THz-Strahlung an allen Teilstellen des Emitters gleich ist. Geht man von einer Beleuchtung mit einem räumlich perfekten gaußförmigen Strahl mit ebenen Wellenfronten (wie z.B. in einer Strahltaile) aus, werden sich die einzelnen erzeugten THz-Elementarwellen gemäß dem Huygen'schen Prinzip zu einer THz-Wellenfront überlagern, die ebenfalls exakt den Verhältnissen in einer Strahltaile eines gaußförmigen Strahls entspricht. (vgl. Abb. 3.1 (a) und (b)).

Im Intensitätsbereich, in welchem Sättigungseffekte nicht mehr vernachlässigt werden können, werden allerdings Abweichungen vom gaußschen Strahlprofil auftreten, da die Sättigungseffekte im Zentrum des Strahls stärker sein werden als in den Randbereichen. Zusätzlich wird durch die Sättigungseffekte auch die Signalform der erzeugten THz-Strahlung nicht mehr an allen Stellen des Emitters gleich sein, wodurch die phasengleiche Überlagerung beeinträchtigt wird. Im folgenden soll daher weiterhin nur der Fall mit vernachlässigbarer Sättigung betrachtet werden, da nur er allgemeingültig behandelt werden kann.

Für die weitere Beschreibung der Ausbreitung der elektromagnetischen Strahlung muss zunächst angemerkt werden, dass die z.B. bei Dipolantennen übliche Unterscheidung zwischen Nah- und Fernfeld bei den großflächigen Emittlern problematisch ist. Das Problem besteht darin, dass die Dimensionen des großflächigen Emitters (im Gegensatz zum einfachen Dipol) sehr viel größer als die Wellenlänge sind. Andererseits emittiert bereits ein kleines Teilstück des Emitters eine nahezu perfekte ebene Welle. Diese Eigenschaften des großflächigen Emitters führen dazu, dass man übliche Näherungen für das Fernfeld nur für Abstände vom Emitter machen kann, welche deutlich größer sind als die Emitterabmessungen. Solche Abstände werden in der Regel nicht experimentell realisiert. Man kann jedoch zeigen, dass man im Brennpunkt eines fokussierenden Elements die gleiche zeitliche Signalform wie im Fernfeld erhält. Diese Signalform entspricht jeweils der ersten Zeitableitung der an der Emitteroberfläche vorliegenden Signalform. Diese Tatsache beruht anschaulich auf der unterschiedlich starken Divergenz für die einzelnen Frequenzkomponenten. D.h. die niederfrequenten Signalanteile sind deutlich divergenter und verlieren mit zunehmender Ausbreitung mehr und mehr an Bedeutung beziehungsweise können schlechter fokussiert werden. Ein Nahfeld mit einer quasistatischen Feldverteilung (wie z.B. bei der Dipolantenne) gibt es in diesem Sinne bei den großflächigen Emittlern nicht, da man schon in sehr kleinen Abständen vom Emitter nahezu perfekte ebene Wellen vorfindet (und damit im Prinzip schon von einer Strahlungszone sprechen kann). Andererseits wird sich die zeitliche Signalform mit der weiteren räumlichen Ausbreitung erst sehr viel später der für das Fernfeld erwarteten zeitlichen Ableitung annähern.

Die weitere Beschreibung der Ausbreitung und der Fokussierung der THz-Strahlung soll zunächst im Frequenzraum erfolgen. Basierend darauf wird dann auch eine Aussage über die THz-Signalform im Zentrum des Brennpunktes getroffen. Mathematisch ist dieses bis auf die absolute Signalgröße vergleichbar mit der Bestimmung der Signalform im Fernfeld, also für $z \rightarrow \infty$. In Abhängigkeit der Frequenz ω_{THz} der jeweiligen Frequenzkomponente wird sich der Strahlradius $r_{THz}(z)$ auf Grund der Divergenz mit zunehmendem Abstand z von der Strahltaile bzw. vom

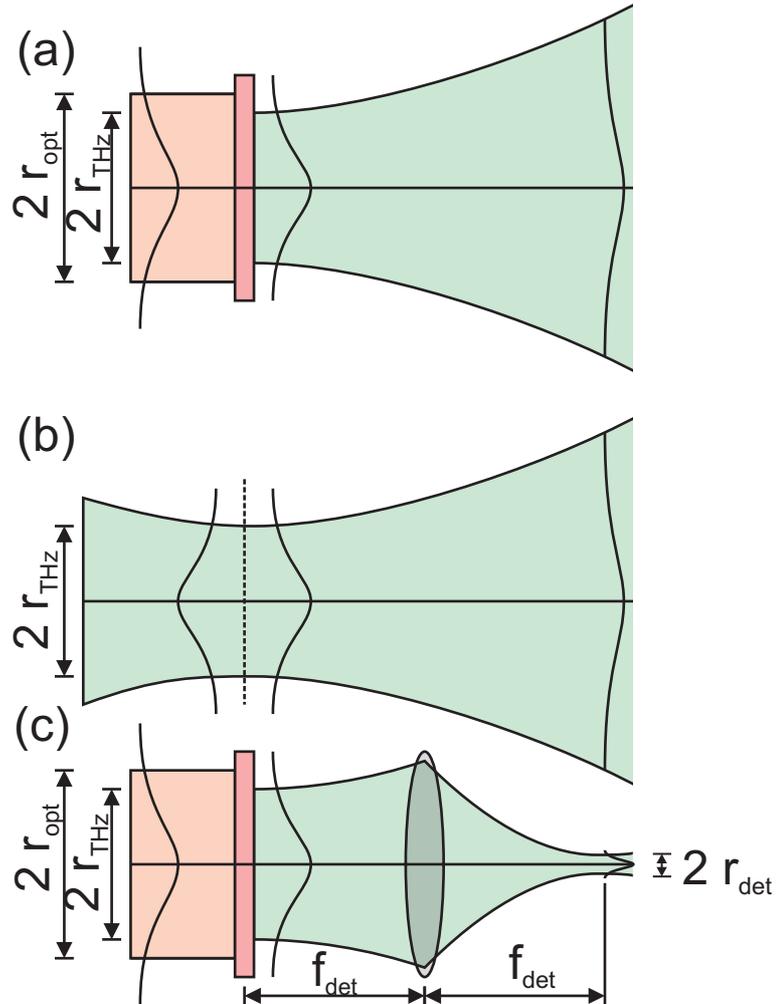


Abbildung 3.1.: (a) Darstellung des optischen Strahls mit Strahldurchmesser $2 \cdot r_{opt}$, der von links auf den Emitter fällt und dort einen divergenten THz-Strahl mit kleinerem Strahldurchmesser $2 \cdot r_{THz}$ erzeugt. (b) Ein vergleichbarer divergenter THz-Strahl mit einer Strahlweite des Durchmessers $2 \cdot r_{THz}$ (c) Erzeugung eines Brennpunkts im Abstand $2 \cdot f_{det}$ vom Emitter durch Platzierung eines fokussierenden Elements der Brennweite f_{det} im Abstand f_{det} vom Emitter.

Emitter vergrößern. Dabei gilt [43]:

$$r_{THz}(z) = r_{THz}^0 \frac{2\pi c_0 z}{\omega_{THz} A_{THz}} \sqrt{1 + \left(\frac{\omega_{THz} A_{THz}}{2\pi c_0 z} \right)^2} \quad (3.10)$$

mit r_{THz}^0 dem $1/e^2$ -Strahlradius in der Strahltaile bzw. am Ort des Emitters. Wird nun ein solcher gaußscher Strahl mit einem fokussierendem Element der Brennweite f_{det} im Abstand f_{det} hinter der Strahltaile bzw. hinter dem Emittter abgebildet, entsteht, wie in Abb. 3.1 (c) dargestellt, im Abstand $2f_{det}$ hinter der Strahltaile bzw. hinter dem Emittter ein Brennpunkt mit dem Strahlradius⁵ r_{det} . Dabei gilt [43]:

$$r_{det} = r_{THz}^0 \frac{2\pi c_0 f_{det}}{\omega_{THz} A_{THz}}. \quad (3.11)$$

Auf Grund der Energieerhaltung und dem Poynting-Theorem muss sich die elektrische Feldamplitude im Zentrum des gaußschen Strahls umgekehrt proportional zum Strahlradius verhalten. Es gilt also:

$$E_{det}^0(\omega_{THz}, r = 0) = E_{THz}^0(\omega_{THz}, r = 0) i \frac{\omega_{THz} A_{THz}}{2\pi c_0 f_{det}}. \quad (3.12)$$

Das i beschreibt dabei einen Phasensprung um $\pi/2$. Damit erlaubt Gl. 3.12 die Bestimmung der elektrischen Feldstärke im Brennpunkt eines fokussierenden Elements, ausgehend von der bekannten Feldstärke am Ort des Emitters. Um eine Beschreibung im Zeitbereich zu erreichen, ist also Fourier-Transformation nötig. Es sei $E_{det}(t)$, bzw. $E_{THz}(t)$ die zeitabhängige elektrische Feldstärke im Brennpunkt bzw. am Ort des Emitters. Dann gilt:

$$\begin{aligned} E_{det}(t, r = 0) &= \mathcal{F}^{-1}(E_{det}^0(\omega_{THz}, r = 0)) \\ &= \mathcal{F}^{-1}\left(i \frac{\omega_{THz} A_{THz}}{2\pi c_0 f_{det}} E_{THz}^0(\omega_{THz}, r = 0)\right) \\ &= \mathcal{F}^{-1}\left(i \frac{\omega_{THz} A_{THz}}{2\pi c_0 f_{det}} \mathcal{F}(E_{THz}(t, r = 0))\right) \\ &= \frac{A_{THz}}{2\pi c_0 f_{det}} \mathcal{F}^{-1}(i\omega_{THz} \mathcal{F}(E_{THz}(t, r = 0))) \\ &= \frac{A_{THz}}{2\pi c_0 f_{det}} \frac{d}{dt} E_{THz}(t, r = 0). \end{aligned} \quad (3.13)$$

Dabei wurde Gl. 3.12 und die Tatsache, dass eine Multiplikation mit $i\omega_{THz}$ im Frequenzraum einer Ableitung im Zeitbereich entspricht, benutzt. Gleichung 3.13 zeigt, dass sich das elektrische Feld im Zentrum des Brennpunkts durch Ableitung des Signalverlaufs am Ort des Emitters ergibt. Diese Tatsache resultiert daraus, dass am Ort des Emitters alle spektralen Feldkomponenten räumlich gleich verteilt sind. Im Brennpunkt dagegen sind die hohen Frequenzkomponenten deutlich stärker fokussiert.

Für das THz-Signal im Zentrum des Emitters gilt nach Gleichung 3.2

$$E_{THz}(t, r = 0) = K_{eff} \cdot W_{opt}(r = 0) \cdot T_{norm}(t), \quad (3.14)$$

⁵Der Index „det“ wird zur Bezeichnung von Signalkomponenten im Brennpunkt verwendet

bzw. mit Gleichung 3.6

$$E_{THz}(t, r = 0) = K_{eff} \frac{2J_{opt}}{A_{opt}} \cdot T_{norm}(t). \quad (3.15)$$

Damit lässt sich mit Gleichung 3.13 das Signal im Brennpunkt bestimmen zu:

$$E_{det}(t) = K_{eff} \cdot \frac{J_{opt}}{2\pi c_0 f_{det}} \frac{d}{dt} T_{norm}(t). \quad (3.16)$$

Mit der Herleitung von Gleichung 3.16 wurde in diesem Kapitel die Voraussetzung geschaffen, um aus bekanntem K_{eff} und $T_{norm}(t)$ die THz-Signalforn im Brennpunkt zu bestimmen.

3.3. THz-Erzeugung mittels optischer Gleichrichtung in ZnTe

Nach der Erarbeitung der Grundlagen soll in diesem Unterkapitel der Effizienzfaktor K_{ZnTe}^{eff} und die Funktion $T_{ZnTe}^{ideal}(t)$ zur Beschreibung der zeitlichen Signalforn für die Erzeugung von THz-Strahlung in großflächigen ZnTe-Kristallen hergeleitet werden. Dabei wird zunächst der Einfluss von Phasenfehl Anpassung und Absorption vernachlässigt. Diese Effekte werden dann nachträglich durch die Einführung eines empirischen Filters berücksichtigt. Im Anschluss sollen die berechneten Signalfornen und -amplituden im Zeit- und Frequenzbereich mit experimentellen Daten verglichen werden.

Die opto-elektronische THz-Erzeugung in elektro-optischen und insbesondere in ZnTe-Kristallen ausgehend von Laserpulsen mit niedrigen und mittleren Energien ist ein umfangreich untersuchtes Gebiet [10, 49, 50, 51, 52, 53]. Allerdings beinhaltet keine dieser Arbeit eine Beschreibung der absoluten Konversionseffizienz. Die opto-elektronische THz-Erzeugung in elektro-optischen Kristallen ausgehend von mit Verstärkerlasern erzeugten Pulsen mit Energien im mJ-Bereich wurde bisher erst verhältnismäßig selten berichtet [46, 47]. Dabei vermisst man insbesondere eine Untersuchung und Beschreibung der Effizienz des Emitters in Abhängigkeit von der Größe der beleuchteten Fläche des Emitterfläche. Dieses soll in diesem Unterkapitel nachgeholt werden.

ZnTe ist ein kubischer Kristall mit Zink-Blende-Kristallstruktur. Da der Kristall elektro-optisch aktiv ist, wird durch das elektrische Feld des Anrege-Laserpulses, welches durch die Feldamplitude $\vec{E}_{opt}^0 = (E_{x'}^0, E_{y'}^0, E_{z'}^0)$ im Koordinatensystem des Kristalls (x', y', z') beschrieben wird, im Kristall eine nichtlineare Polarisation \vec{P}_{NL} hervorrufen. In ZnTe kann diese Polarisation wie folgt beschrieben werden:

$$\vec{P}_{NL} = \begin{pmatrix} P_{x'} \\ P_{y'} \\ P_{z'} \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} (E_{x'}^0)^2 \\ (E_{y'}^0)^2 \\ (E_{z'}^0)^2 \\ 2E_{y'}^0 E_{z'}^0 \\ 2E_{x'}^0 E_{z'}^0 \\ 2E_{x'}^0 E_{y'}^0 \end{pmatrix}. \quad (3.17)$$

Dabei sind x', y', z' die Kristallachsen gemäß der Zuordnung $[1, 0, 0] \rightarrow x'$, $[0, 1, 0] \rightarrow y'$, und $[0, 0, 1] \rightarrow z'$. Weiter ist $d_{14} = \frac{1}{2}\chi_{14}^{(2)}$ der Frequenzverdopplungs-Koeffizient bzw. das entsprechende Frequenzverdopplungs-Tensorelement⁶ für ZnTe. Für $\langle 110 \rangle$ -geschnittenes ZnTe erhält man

⁶Die Bezeichnung Frequenzverdopplungs-Koeffizient ist im Zusammenhang mit der Anwendung der THz-Erzeugung zunächst irreführend. Die Bezeichnung wird jedoch verständlich, wenn man berücksichtigt, dass die Terminologie des Frequenzverdopplungs-Tensors für die Hauptanwendung der optischen Frequenzverdopplung entwickelt wurde.

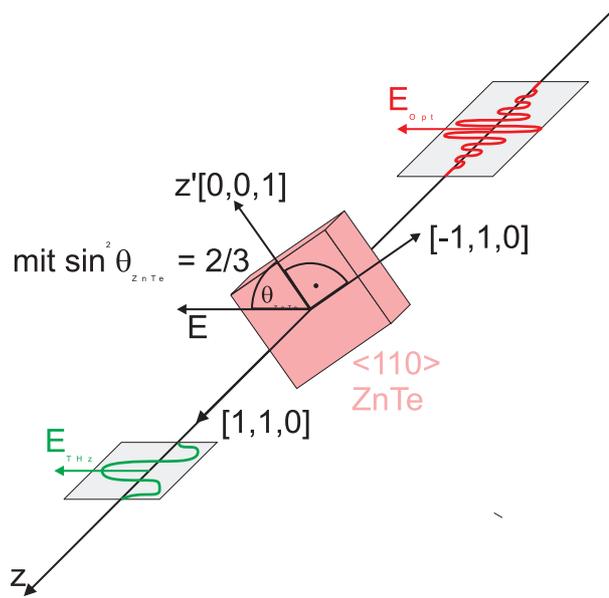


Abbildung 3.2.: Optimale Geometrie für die elektro-optische Erzeugung von THz-Strahlung in $\langle 110 \rangle$ -ZnTe.

die maximale Polarisation, und damit die maximale THz-Feldstärke, wenn der Winkel θ_{ZnTe} zwischen der z-Achse des Kristalls und der Polarisationsrichtung der optischen Strahlung den Wert $\theta_{ZnTe} = \arcsin(\sqrt{\frac{2}{3}}) \approx 55,2^\circ$ annimmt. Dieses wird in Ref. [20] allgemeingültig gezeigt. Die entsprechende Geometrie ist in Abb. 3.2 dargestellt. Das elektrische Feld der optischen Welle kann man dann im Koordinatensystem des Kristalls für die gewählte Geometrie wie folgt ausdrücken:

$$\vec{E}_{opt}^0 = E_{opt}^0 \left(\frac{1}{\sqrt{3}}, -\frac{1}{\sqrt{3}}, \frac{1}{\sqrt{3}} \right). \quad (3.18)$$

Mit Gl. 3.17 ergibt sich damit für die Polarisation

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} &= \epsilon_0 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{pmatrix} \cdot |E_{opt}^0|^2 \begin{pmatrix} \frac{1}{3} \\ \frac{1}{3} \\ \frac{1}{3} \\ -\frac{2}{3} \\ \frac{2}{3} \\ -\frac{2}{3} \end{pmatrix} \\ &= -\frac{2\epsilon_0}{\sqrt{3}} d_{14} |E_{opt}^0|^2 \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{3}} \\ -\frac{1}{\sqrt{3}} \\ \frac{1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3.19)$$

Damit sind die erzeugte nichtlineare Polarisation und die erzeugende optische Strahlung gleich

polarisiert. In Richtung dieser Polarisation gilt also einfach

$$P_{NL}(z, t) = -\frac{2\epsilon_0}{\sqrt{3}}d_{14}|E_{opt}^0(z, t)|^2 = \frac{4d_{14}}{\sqrt{3}c_0n}I_{opt}(z, t). \quad (3.20)$$

Dabei wurde das Poynting-Theorem $I_{opt} = \frac{c_0\epsilon_0n}{2}|E_{opt}^0|^2$ benutzt. Die Zeitabhängigkeit in Gleichung 3.20 bezieht sich nur auf die Zeitabhängigkeit der Amplitude der optischen Schwingung. Es wurde also angenommen, dass sich die optische Intensität nur langsam im Vergleich mit der optischen Schwingung ändert.

Allgemein gilt für die dielektrische Verschiebung \vec{D}

$$\begin{aligned} \vec{D} &= \epsilon_0\vec{E} + \epsilon_0\chi_{lin}\vec{E} + \vec{P}_{NL} \\ &= \epsilon_0\epsilon_r\vec{E} + \vec{P}_{NL}, \end{aligned} \quad (3.21)$$

wobei $\epsilon_r = (1 + \chi_{lin})$ ist. Wie im Anhang gezeigt ist, lautet die allgemeine Form der Wellengleichung in einem nichtleitenden ($\sigma = 0$) und nicht-magnetisierbarem ($\mu_r = 1$) Medium

$$\nabla^2\vec{E} = \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{D}, \quad (3.22)$$

bzw. mit Gleichung 3.21

$$\nabla^2\vec{E} = \mu_0\epsilon_0\epsilon_r\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}(z, t) + \frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{P}_{NL}. \quad (3.23)$$

Beschränkt man sich im weiteren auf Felder in Richtung der nichtlinearen Polarisation (welche durch die Orientierung der Polarisation der einfallenden optischen Strahlung gegeben ist), ergibt sich

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial z^2}E_{THz}(z, t) &= \mu_0\epsilon_0\epsilon_r\frac{\partial^2}{\partial t^2}E_{THz}(z, t) + \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}P_{NL}(z, t) \\ &= \frac{n_{THz}^2}{c_0^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}E_{THz}(z, t) + \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}P_{NL}(z, t). \end{aligned} \quad (3.24)$$

Im weiteren soll angenommen werden, dass die elektrischen Felder der erzeugten THz-Strahlung sehr viel kleiner als die der erzeugenden optischen Strahlung sind. In diesem Fall wird die nichtlineare Polarisation nur von den optischen Feldern, nicht aber vom erzeugten THz-Feld abhängen. Genau genommen wird aber auch die erzeugte THz-Welle eine nichtlineare Polarisation erzeugen. Eine solche von der THz-Welle erzeugte nichtlineare Polarisation müsste dann in der Wellengleichung der optischen Strahlung berücksichtigt werden. Damit könnte dann auch die Abnahme der Energie der optischen Welle durch den Energieübertrag auf die THz-Welle beschrieben werden. Das Vernachlässigen der von der THz-Welle erzeugten Polarisation verletzt also streng genommen die Energieerhaltung. Für höhere Intensitäten werden also Sättigungseffekte durch das Abnehmen der optischen Intensität auftreten, die im Rahmen der hier gemachten Annahmen nicht vorhergesagt werden können. Außerdem sollen im weiteren auch die Absorption der optischen und der THz-Strahlung vernachlässigt werden. Eine Berücksichtigung der Absorption erfolgt am Ende des Kapitels im Rahmen der Einführung eines empirischen Filters.

Wird der Emitter-Kristall also mit einem gaußförmigem Laserpuls der Pulslänge τ_p und der Flächenenergiedichte W_{opt} beleuchtet, ist die Intensität $I(z, t)$ innerhalb des Emitters im Rahmen der zuvor gemachten Annahmen gegeben durch

$$I_{opt}(t, z) = \frac{2\sqrt{\ln(2)}W_{opt}}{\sqrt{\pi}\tau_p} \frac{4n}{(1+n)^2} \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t - \frac{n_{gr}z}{c_0})^2}{\tau_p^2}\right). \quad (3.25)$$

Dabei ist $(4n)/(1+n)^2$ der Transmissionskoeffizient beim Eintritt in den Kristall, n der optische Brechungsindex des Kristalls und n_{gr} der optische Brechungsindex für die Gruppengeschwindigkeit. Damit ergibt sich dann nach Gl. 3.20 für die nichtlineare Polarisation in Richtung der Polarisation der einfallenden optischen Strahlung

$$P_{NL}(z, t) = \frac{32\sqrt{\ln(2)}d_{14}W_{opt}}{\sqrt{3\pi}c_0\tau_p(1+n)^2} \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t - \frac{n_{gr}z}{c_0})^2}{\tau_p^2}\right). \quad (3.26)$$

Die erste partielle Ableitung lautet entsprechend

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} P_{NL}(z, t) &= -\frac{256(\ln(2))^{\frac{3}{2}}d_{14}W_{opt}}{\sqrt{3\pi}c_0\tau_p^3(1+n)^2} \left(t - \frac{n_{gr}z}{c_0}\right) \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t - \frac{n_{gr}z}{c_0})^2}{\tau_p^2}\right) \\ &= -\frac{256(\ln(2))^{\frac{3}{2}}d_{14}W_{opt}}{\sqrt{3\pi}c_0(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}}{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}\tau_p^3}} T_{PNL}\left(t - \frac{n_{gr}z}{c_0}\right) \\ &= -\frac{64d_{14}W_{opt}}{c_0(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}} T_{PNL}\left(t - \frac{n_{gr}z}{c_0}\right), \\ \text{mit: } T_{PNL}(t^* = t - \frac{n_{gr}z}{c_0}) &= \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} t^* \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t^*)^2}{\tau_p^2}\right). \end{aligned} \quad (3.27)$$

Dabei wurde rein formal die dimensionslose Funktion $T_{PNL}(t^*)$ eingeführt, die so normiert ist, dass $\int_{-\infty}^{\infty} |T_{PNL}(t^*)|^2 dt^* = 1$ gilt. Die zweite partielle Ableitung lautet dann

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} P_{NL}(z, t) = -\frac{64d_{14}W_{opt}}{c_0(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}} T'_{PNL}\left(t - \frac{n_{gr}z}{c_0}\right), \quad (3.28)$$

wobei $T'_{PNL}(t^*)$ die Ableitung von $T_{PNL}(t^*)$ ist. Es bietet sich an, für die erzeugte THz-Feldstärke in Richtung der Polarisation der einfallenden Strahlung folgenden Ansatz zu machen:

$$E_{THz}(z, t) = G(z) \cdot T_{ZnTe}^{ideal}\left(t - \frac{n_{THz}z}{c_0}\right). \quad (3.29)$$

Dabei ist $G(z)$ eine Funktion, die das Anwachsen der erzeugten THz-Feldstärke mit zunehmendem Kristalldurchlauf beschreibt. Die Funktion $T_{ZnTe}^{ideal}\left(t - \frac{n_{THz}z}{c_0}\right)$ beschreibt die raum-zeitliche Form

der erzeugten THz-Strahlung⁷. Das Argument $(t - \frac{n_{THz}z}{c_0})$ ist so gewählt, dass T_{ZnTe}^{ideal} die homogene Wellengleichung erfüllt. Die entsprechenden partiellen Ableitungen lauten

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E_{THz}(z, t) &= G(z) \cdot T_{ZnTe}^{ideal''} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}) \\ \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_{THz}(z, t) &= \left(\frac{d^2}{dz^2} G(z) \right) \cdot T_{ZnTe}^{ideal} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}) \\ &\quad - 2 \frac{n_{THz}}{c_0} \left(\frac{d}{dz} G(z) \right) \cdot T_{ZnTe}^{ideal'} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}) \\ &\quad + \frac{n_{THz}^2}{c_0^2} G(z) \cdot T_{ZnTe}^{ideal''} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}). \end{aligned} \quad (3.30)$$

Dabei ist $T_{ZnTe}^{ideal'}(t^*)$ bzw. $T_{ZnTe}^{ideal''}(t^*)$ die erste bzw. die zweite zeitliche Ableitung von $T_{ZnTe}^{ideal}(t^*)$. Setzt man nun die Gleichungen 3.30 und 3.28 in die Wellengleichung 3.24 ein, ergibt sich

$$\begin{aligned} &\frac{d^2}{dz^2} G(z) \cdot T_{ZnTe}^{ideal} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}) - 2 \frac{n_{THz}}{c_0} \frac{d}{dz} G(z) \cdot T_{ZnTe}^{ideal'} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}) \\ &= -\mu_0 \frac{64d_{14}W_{opt}}{c_0(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}} T'_{PNL} (t - \frac{n_{gr}z}{c_0}). \end{aligned} \quad (3.31)$$

Die gesuchten Lösungen für $G(z)$ und $T_{ZnTe}^{ideal}(t^*)$ müssen Gleichung 3.31 für alle t und z erfüllen. Eine allgemeingültige Lösung von 3.31 zu finden ist mathematisch aufwendig. Man erkennt jedoch einfach, dass sich eine physikalisch sinnvolle spezielle Lösung der Differentialgleichung ergibt, wenn man annimmt, dass $\frac{d^2}{dz^2} G(z) = 0$ ist. Diese Annahme ist physikalisch sinnvoll, da im Rahmen der Herleitung bereits eine Absorption in der optischen Strahlung und der THz-Strahlung vernachlässigt wurden. Unter diesen Umständen ist ein lineares Anwachsen der THz-Feldstärke zu erwarten. Dementsprechend ist es sinnvoll, $\frac{d^2}{dz^2} G(z) = 0$ anzunehmen. Da der Einfluss der Phasenfehl Anpassung zunächst vernachlässigt werden sollte, kann man außerdem $n_{gr} = n_{THz}$ annehmen. Damit ergibt sich:

$$2 \frac{n_{THz}}{c_0} \frac{d}{dz} G(z) \cdot T_{ZnTe}^{ideal'} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}) = \mu_0 \frac{64d_{14}W_{opt}}{c_0(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}} T'_{PNL} (t - \frac{n_{THz}z}{c_0}). \quad (3.32)$$

Damit muss $T_{ZnTe}^{ideal'} \propto T'_{PNL}$ gelten, da die Gleichung für alle t gelten muss. Auf Grund der Normierungsbedingung folgt dann auch $T_{ZnTe}^{ideal'} = T'_{PNL}$ woraus sich nach Gl. 3.27 für $T_{ZnTe}^{ideal}(t^*)$ direkt ergibt:

⁷Der Index „ideal“ bezeichnet Signalformen welche von einem idealen Kristall, d.h. ohne Phasenfehl Anpassung und ohne Absorption erzeugt würden.

$$\begin{aligned}
T_{ZnTe}^{ideal}(t^*) &= T_{PNL}(t^*) \\
&= \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} t^* \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t^*)^2}{\tau_p^2}\right).
\end{aligned} \tag{3.33}$$

Auf die Einführung einer Integrationskonstanten wurde dabei bewusst verzichtet, da zum einen die Erzeugen eines statischen Feldes physikalisch nicht sinnvoll wäre und zum anderen die Normierungsbedingung für T_{ZnTe}^{ideal} nicht mehr erfüllt wäre. Für $G(z)$ ergibt sich dann die folgende Differentialgleichung:

$$\frac{d}{dz}G(z) = \frac{32\mu_0 d_{14} W_{opt}}{n_{THz}(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}}. \tag{3.34}$$

Nimmt man an, der Kristall der Dicke l_{ZnTe} sei von $z = -l_{ZnTe}$ bis $z = 0$ ausgehdehnt, benutzt die Randbedingung $G(z = -l_{ZnTe}) = 0$ (kein THz-Signal beim Eintritt in den Kristall) und berücksichtigt den Amplitudentransmissionskoeffizienten $2n_{THz}/(1+n_{THz})$ beim Austritt der THz-Welle aus dem Kristall, ergibt sich für $G_0 = G(z = 0)$, also an der Stelle direkt nach dem Austritt aus dem Emitter:

$$\begin{aligned}
G_0 &= \frac{32\mu_0 d_{14} l_{ZnTe} W_{opt}}{n_{THz}(1+n)^2} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}} \frac{2n_{THz}}{1+n_{THz}} \\
&= \frac{64\mu_0 d_{14} l_{ZnTe} W_{opt}}{(1+n)^2(1+n_{THz})} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}}.
\end{aligned} \tag{3.35}$$

Damit ergibt sich nach Gleichung 3.29 für die erzeugte THz-Strahlung $E_{THz}(t) = E_{THz}(t, z = 0)$ am Ort des Austrittes aus dem Kristall ($z=0$)

$$\begin{aligned}
E_{THz}(t) &= G_0 \cdot T_{ZnTe}^{ideal}(t) \\
&= K_{ZnTe}^{eff} W_{opt} \cdot T_{ZnTe}^{ideal}(t), \\
\text{mit } K_{ZnTe}^{eff} &= \frac{64\mu_0 d_{14} l_{ZnTe}}{(1+n)^2(1+n_{THz})} \sqrt{\frac{\sqrt{\pi}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{6\pi\sqrt{2}\tau_p^3}}.
\end{aligned} \tag{3.36}$$

Dabei wurde gemäß dem in Kap. 3.1 entwickelten Formalismus die Konversionseffizienz K_{ZnTe}^{eff} eingeführt. Mit Gleichung 3.36 und 3.33 steht damit ein Ausdruck zur Beschreibung der Konversionseffizienz und der zeitlichen Signalform für das THz-Signal am Ort des Austrittes aus dem Emitter zu Verfügung. Für den in dieser Arbeit verwendeten ZnTe-Emitterkristall mit einer Dicke von $l_{ZnTe} = 500 \mu\text{m}$ ergibt sich bei der Annahme einer Anrege-Laserpulslänge von $\tau_p = 150 \text{ fs}$ (Halbwertsbreite) ein Wert von $K_{ZnTe}^{eff} = 0,131 \frac{\text{m}}{\text{A}\sqrt{\text{s}}}$ für die Konversionseffizienz.

Für das THz-Signal, welches von einem flächigen ZnTe-Emitter im Brennpunkt eines (im

Abstand f_{det} hinter dem Emitter aufgestellten) fokussierenden Elements mit Brennweite f_{det} erzeugt wird, ergibt sich mit Gleichung 3.16 am Ort des Brennpunkts (also $2 \cdot f_{det}$ hinter dem Emitter):

$$\begin{aligned}
E_{det}(t) &= K_{ZnTe}^{eff} \cdot \frac{J_{opt}}{2\pi c_0 f_{det}} \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} \frac{d}{dt} t \cdot \exp\left(\frac{-4\ln(2)t^2}{\tau_p^2}\right) \\
&= K_{ZnTe}^{eff} \cdot \frac{J_{opt}}{2\pi c_0 f_{det}} \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} \left(1 - \frac{8\ln(2)t^2}{\tau_p^2}\right) \exp\left(\frac{-4\ln(2)t^2}{\tau_p^2}\right) \\
&= E_{det,ZnTe}^0 \left(1 - \frac{8\ln(2)t^2}{\tau_p^2}\right) \exp\left(\frac{-4\ln(2)t^2}{\tau_p^2}\right) \\
\text{mit } E_{det,ZnTe}^0 &= K_{ZnTe}^{eff} \cdot \frac{J_{opt}}{2\pi c_0 f_{det}} \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} \\
&= \frac{128(\ln(2))^{\frac{3}{2}} \mu_0 d_{14} l_{ZnTe} J_{opt}}{\pi \sqrt{3} \pi c_0 f_{det} \tau_p^3 (1+n)^2 (1+n_{THz})}.
\end{aligned} \tag{3.37}$$

Mit Gl. 3.37 steht nun ein Ausdruck zur Berechnung der erzeugten absoluten elektrischen Feldstärke des THz-Pulses im Zentrum des Brennpunkt als Funktion der Zeit zu Verfügung. Für typische experimentelle Parameter ($l_{ZnTe} = 500 \mu\text{m}$, $J_{opt} = 500 \mu\text{J}$, $f_{det} = 5 \text{ cm}$, $\tau_p = 150 \text{ fs}$ (Halbwertsbreite)) ergibt sich zum Beispiel ein Wert von $E_{det,ZnTe}^0 = 457,3 \text{ kV/cm}$ für die maximale erzeugte Feldstärke.

Die THz-Signalformen nach dem Austritt aus dem Emitterkristall und an der Detektorposition sind auf Basis der berechneten Werte für K_{ZnTe}^{eff} bzw. $E_{ZnTe,det}^0$ in Abb. 3.3 dargestellt. Zusätzlich ist die abgestrahlte spektrale THz-Energiedichte gezeichnet. Dabei fällt auf, dass ein großer Teil der abgestrahlten Energie im Frequenzbereich oberhalb von 2,5 THz liegt. Da in diesem Bereich die Eindringtiefe und die Kohärenzlänge kleiner als die Kristalldicke von $500 \mu\text{m}$ sind, gilt die in der Herleitung gemachte Annahme, dass Phasenfehlanspassung und THz-Absorption vernachlässigt werden können, nicht mehr.

Allerdings ist eine analytische Beschreibung von Phasenfehlanspassung und Absorption im Rahmen der zuvor dargestellten Beschreibung im Zeitbereich nicht möglich. Denkbar wäre dagegen eine numerische Beschreibung. Dazu müsste der Emitterkristall in eine große Anzahl von genügend dünnen Kristallen zerlegt werden, so dass in diesen Teilkristallen Phasenfehlanspassung und Absorption vernachlässigt werden können. Die von diesen Teilkristallen jeweils erzeugten elektrischen THz-Felder müssen dann nach dem Durchgang durch den verbleibenden Teilkristall am Ausgang des Kristalls im Zeitbereich aufsummiert werden. Dabei muss dann jeweils beim Durchgang durch den verbleibenden Teilkristall der Einfluss von Absorption und Dispersion auf die Signale berücksichtigt werden. Auf die Durchführung solcher numerischer Rechnungen wurde hier verzichtet, da der im folgenden dargestellte empirische Filter schon recht gute Ergebnisse liefert, und da ein exakter Vergleich der modellierten und der gemessenen Signalformen auch auf Grund von anderen Effekten (wie dem Einfluss der spektralen Empfindlichkeit des Detektors Abfragestrahlgeometrie) nicht möglich ist.

Empirisch kann man die Phasenfehlanspassung und die Absorption im Emitterkristall einfach durch die Einführung eines Tiefpassfilters berücksichtigen, welcher nur Signalkomponenten zulässt, welche in einem Frequenzbereich liegen in welchem die Annahme von vernachlässigbarer

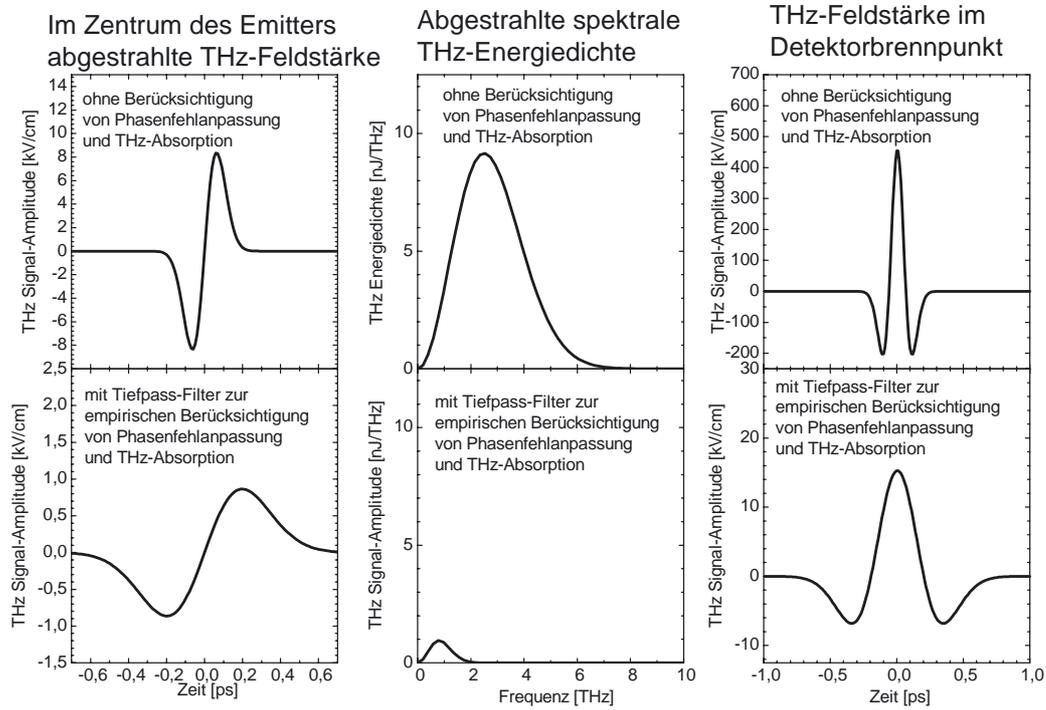


Abbildung 3.3.: Erzeugtes THz-Signal am Ort des Emitters (links) und im Detektorbrennpunkt (rechts) ohne (oben) und mit (unten) Berücksichtigung von Phasenfehlانpassung und THz-Absorption durch einen empirisch gewählten Filter mit $\omega_{filter} = 2\pi \cdot 1,2$ THz. In der Mitte ist die spektrale Verteilung der erzeugten THz-Energie dargestellt.

Phasenfehlانpassung und THz-Absorption gerechtfertigt ist. Ein solcher Filter kann mathematisch durch eine Gauß-funktion im Frequenzraum realisiert werden:

$$\begin{aligned}
T_{ZnTe}^{real}(t) &= K_{ZnTe}^{red} \mathcal{F}^{-1} \left(\mathcal{F}(T_{ZnTe}^{ideal}(t)) \cdot \exp \left(\frac{-\omega^2}{\omega_{filter}^2} \right) \right) \\
&= K_{ZnTe}^{red} \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} \cdot \left(1 + \frac{16\ln(2)}{\tau_p^2\omega_{filter}^2} \right)^{-\frac{3}{2}} t \cdot \exp \left(\frac{-4\ln(2)t^2}{\tau_p^2 \left(1 + \frac{16\ln(2)}{\tau_p^2\omega_{filter}^2} \right)} \right) \\
&= \sqrt{\frac{32\sqrt{2}(\ln(2))^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{\pi}\tau_p^3}} \cdot \left(1 + \frac{16\ln(2)}{\tau_p^2\omega_{filter}^2} \right)^{-\frac{3}{4}} t \cdot \exp \left(\frac{-4\ln(2)t^2}{\tau_p^2 \left(1 + \frac{16\ln(2)}{\tau_p^2\omega_{filter}^2} \right)} \right), \\
\text{mit } K_{ZnTe}^{red} &= \left(1 + \frac{16\ln(2)}{\tau_p^2\omega_{filter}^2} \right)^{\frac{3}{4}}.
\end{aligned} \tag{3.38}$$

Dabei wurde der Wert für K_{ZnTe}^{red} aus der geforderten Normierungsbedingung ($\int_{-\infty}^{\infty} |T_{ZnTe}^{real}(t)|^2 dt = 1$) gewonnen. Der Faktor K_{ZnTe}^{red} gibt damit an, um welchen Wert sich die nach Gleichung 3.3 definierte Effizienz des flächigen ZnTe-Emitters auf Grund von Phasenfehlانpassung und Absorption im Emitter reduziert. In Abb. 3.3 ist dargestellt wie sich der zuvor beschriebene Filter auf die erzeugten THz-Signale auswirkt. Dabei wurde für ω_{filter} ein Wert von $2\pi \cdot 1,2$ THz gewählt, was dazu führt, dass THz-Signale mit Frequenzkomponenten von bis zu etwa 2 THz (vergl. Abb. 3.7) erzeugt werden. Dieses entspricht der Frequenz ab der Phasenfehlانpassung und THz-Absorption im ZnTe-Kristall eine signifikante THz-Erzeugung verhindern sollten. (vergl. Abb. 2.2) Für diesen Wert der Filterfrequenz ω_{filter} ergibt sich ein Faktor $K_{ZnTe}^{red} = 5,48$. Damit reduziert sich die erzeugte THz-Pulsenergie um $(K_{ZnTe}^{red})^2$, also für die o.g. typischen experimentellen Parameter von 28 nJ auf 0,95 nJ.

In Abb. 3.4 ist für diese experimentellen Parameter die berechnete und die gemessene Feldstärke im Brennpunkt dargestellt. Dabei fällt zunächst auf, dass die im Experiment detektierte Feldstärke nur etwa ein Drittel der erwarteten Amplitude beträgt. Dieses erklärt sich einerseits dadurch, dass in der Modellierung Verluste insbesondere durch Wasserdampf-Absorption in der Laborluft nicht berücksichtigt wurden. Weiter muss hier berücksichtigt werden, dass sich die modellierten Daten nur die im Mittelpunkt des Brennpunkts berechnete Feldstärke wiedergeben. Im Experiment wurde die Feldstärke dagegen mit einem Abfragelaserstrahl mit endlichem Durchmesser gemessen. D.h. es wurde eine mittlere Feldstärke in diesem Bereich gemessen. Der Durchmesser des Abfragelaserstrahls war zwar mit ca. 100-200 μm klein gegenüber dem Durchmesser der THz-Strahlung (ca. 300 μm bei 1 THz), aber ein merklicher Einfluss dieses Effekts kann nicht völlig ausgeschlossen werden. Im Rahmen der zusätzlichen Unsicherheiten bei der Kalibrierung ist die Übereinstimmung daher als zufriedenstellend anzusehen. Die Übereinstimmung des zeitlichen Verlaufs ist überraschend gut.

In Abb. 3.5 ist der im Brennpunkt gemessene THz-Signalverlauf für verschiedene Energiedichten des Anrege-Laserpulses und gleicher beleuchteter Fläche des großflächigen ZnTe-Emitters dargestellt. Für den dargestellten Energiedichtenbereich von 0,5 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ bis 125 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ ist keine

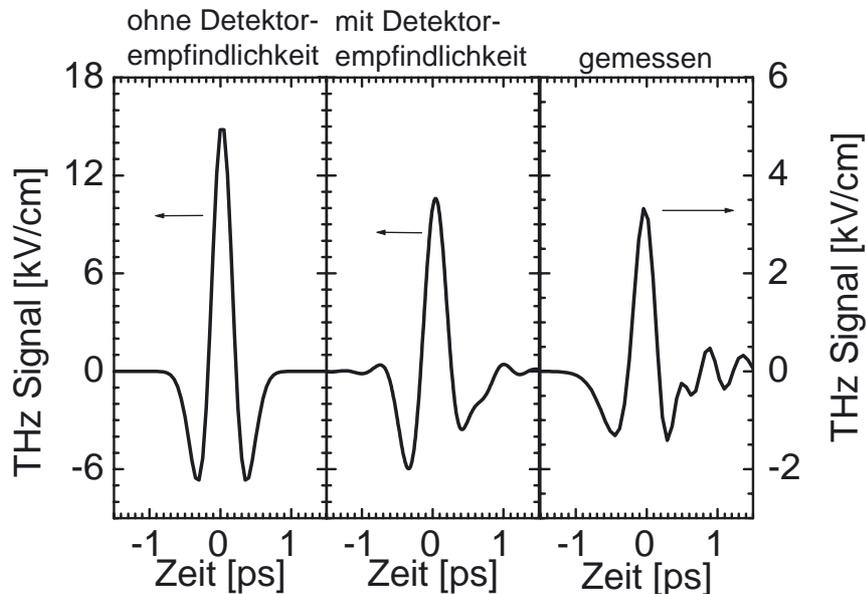


Abbildung 3.4.: Vergleich der gemessenen und der berechneten THz-Signalförm im Brennpunkt für die Parameter $l_{ZnTe} = 500 \mu m$, $J_{opt} = 500 \mu J$, $f_{det} = 5 cm$, $\tau_p = 150 fs$ (Halbwertsbreite) und $\omega_{filter} = 2\pi \cdot 1,2 THz$. Die berechnete THz-Signalförm ist jeweils unter Berücksichtigung des empirischen Filters für die Phasenfehlanpassung und die THz-Absorption im Emitter dargestellt. Die Darstellung links zeigt die modellierte erwartete Signalförm am Ort des Detektors. Bei der Darstellung in der Mitte wurde zusätzlich die spektrale Detektorempfindlichkeit berücksichtigt, so dass diese Darstellung das modellierte erwartete Messsignal wiedergibt.

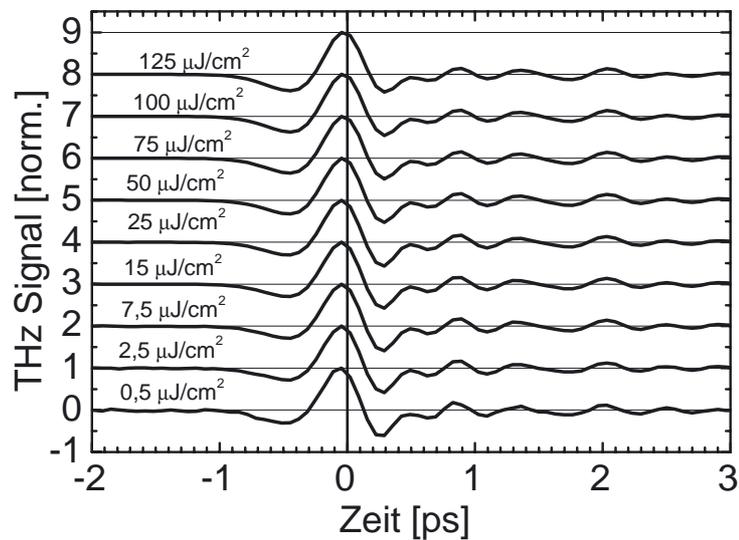


Abbildung 3.5.: Gemessene normierte THz-Signalverläufe des großflächigen ZnTe-Emitters für verschiedene Laserpulsenergiedichten

Veränderung der THz-Signalfestzustellen. In Abb. 3.6 ist die detektierte THz-Signalamplitude als Funktion der Anregungsenergiedichte des ZnTe-Emitters dargestellt. Man erkennt, dass im Bereich bis zu etwa $100 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ keinerlei Sättigungseffekte auftreten. Da der großflächige ZnTe-Emitter nur mit maximal $125 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ beleuchtet wurde, sind also die zuvor bzgl. vernachlässigbarer Sättigung gemachten Annahmen gerechtfertigt. Anhand der ebenfalls dargestellten Daten eines kleineren Emitters zeigt sich jedoch auch, dass für höhere Anregungsenergiedichten Sättigungseffekte einen deutlichen Einfluss haben.

Durch Fouriertransformation der modellierten THz-Signalfestzustellen am Ort des Emitters bzw. im Detektor-Brennpunkt kann sowohl die gesamte am Ort des Emitters erzeugte THz-Energie bzw. die im Zentrum des Brennpunkt erzeugte Flächenenergiedichte spektral dargestellt werden. Dieses ist in Abb. 3.7 unter Berücksichtigung des empirischen Filters für die Berücksichtigung von Phasenfehlpassung und Absorption dargestellt. Man erkennt deutlich, dass der Emitter im wesentlichen im Frequenzbereich von etwa 0,5 THz bis 1,5 THz emittiert. Da die höheren Frequenzen im Brennpunkt stärker fokussiert werden, liegen hier die Frequenzkomponenten höher, im wesentlichen zwischen 0,8 THz und 2,0 THz. (siehe logarithmische Darstellung) Der Vergleich mit dem Frequenzgang des experimentell ermittelten Spektrums ist sehr gut. Der Unterschied in der Signalgröße liegt, wie schon zuvor diskutiert, vermutlich an den nicht berücksichtigten Verlusten im THz-Stahlpfad, der nicht berücksichtigten endlichen Größe des Abfragelaserstrahls, und an der unzureichenden Beschreibung von Absorption und Phasenfehlpassung im Emitter durch den empirischen Filter. Die logarithmische Darstellung zeigt, dass auch über mehrere Größenordnungen eine gute Übereinstimmung des experimentellen mit dem modellierten Spektrum besteht.

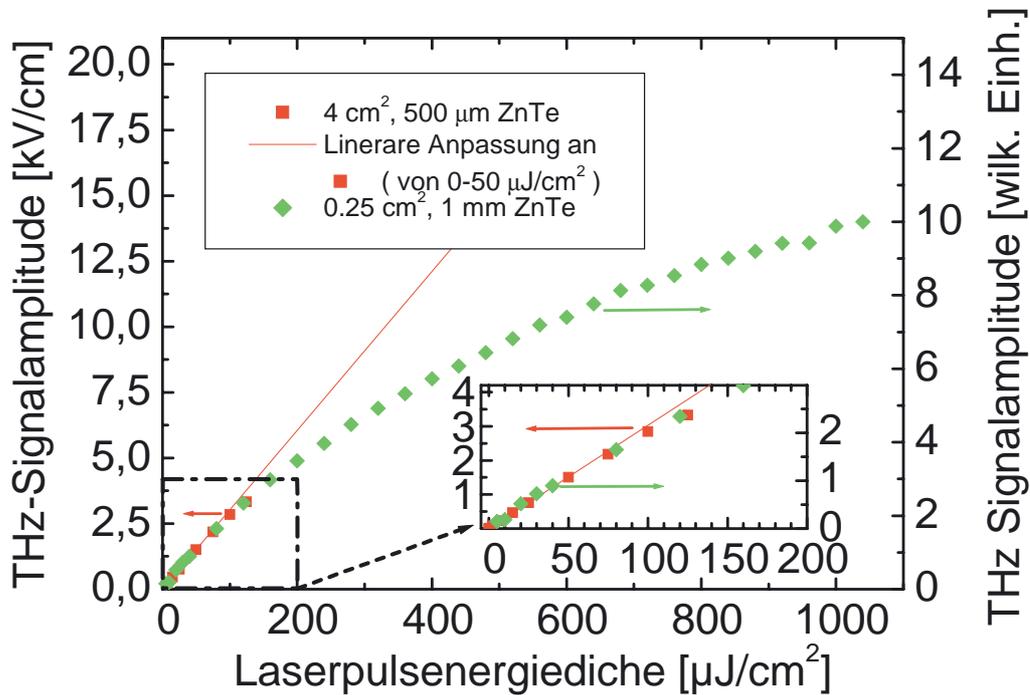


Abbildung 3.6.: Darstellung der maximalen detektierten THz-Signalamplitude als Funktion der optischen Anregungsenergie-dichte des großflächigen ZnTe-Emitters. Zusätzlich ist die detektierte THz-Signalamplitude, welche mit einem $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ großen, 1 mm dicken ZnTe-Kristall erzeugt wurde, über einen erweiterten Bereich von Anregungsenergie-dichten dargestellt.

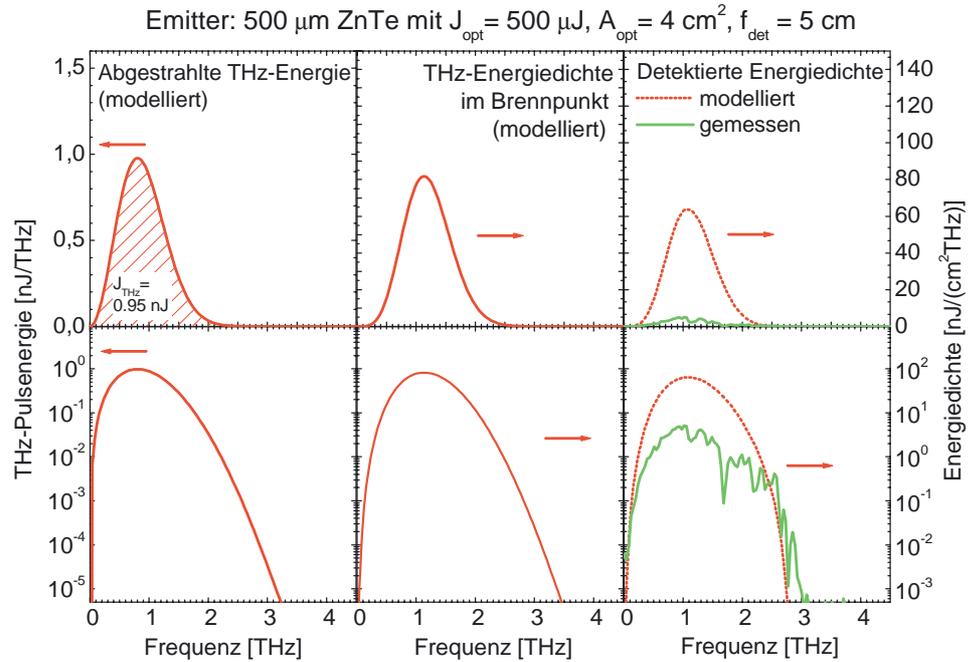


Abbildung 3.7.: Darstellung der spektralen Dichte der am Ort des Emitters erzeugten THz-Gesamtenenergie (links) sowie der im Brennpunkt erzeugten (Mitte) und der detektierten (rechts) spektralen THz-Flächenenergiedichte. Die Skalierung erfolgte in linearer (oben) und logarithmischer (unten) Darstellung. In der Modellierung der detektierten Energiedichte (rechts) ist im Vergleich zur Modellierung der erzeugten Energiedichte (Mitte) die spektrale Empfindlichkeit des Detektors berücksichtigt. Zum Vergleich ist rechts auch das Spektrum des gemessenen Pulses dargestellt. Bei alle modellierten Daten wurde der empirische Filter zur Berücksichtigung der Phasenfehlanpassung und der Absorption in Emitterkristall berücksichtigt.

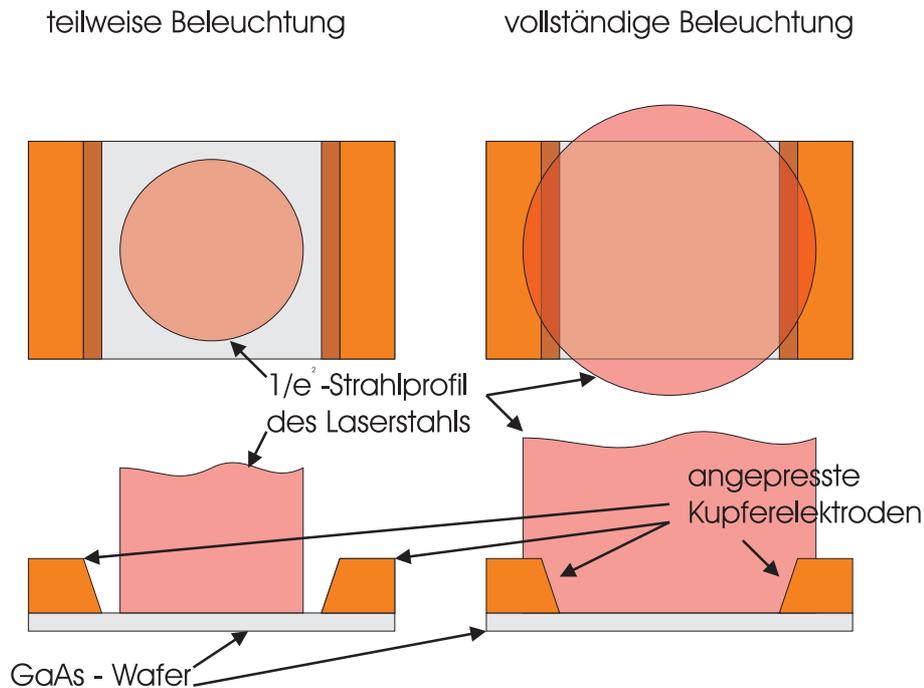


Abbildung 3.8.: Darstellung der zwei verschiedenen verwendeten Beleuchtungsgeometrien des großflächigen GaAs-Emitters. Links: teilweise Beleuchtung mit $A_{opt} = 4 \text{ cm}^2$. Rechts: vollständige Beleuchtung mit $A_{opt} = 9 \text{ cm}^2$.

3.4. THz-Erzeugung in elektrisch vorgespanntem GaAs

In diesem Abschnitt werden die wesentlichen Aspekte der Erzeugung von THz-Pulsen durch großflächige THz-Antennen aus GaAs untersucht. Für das Verständnis der zeitlichen Form und des Sättigungsverhaltens sind die Ladungsträgergeneration im Halbleitermaterial und die Dynamik der Ladungsträger von entscheidender Bedeutung. Im folgenden soll daher näher auf diese Faktoren eingegangen werden. In der Literatur gibt es eine große Zahl von Arbeiten zur THz-Erzeugung mit großflächigen THz Antennen [38, 39, 40, 41, 42]. Dabei fällt auf, dass einige entscheidende experimentelle Befunde bis heute noch nicht ausreichend erklärt und verstanden sind. Dazu zählt insbesondere das Sättigungsverhalten bei Laserpulsenergie-dichten von mehr als $50 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. In der hier dargestellten Beschreibung des Emissionsprozesses ist, in Erweiterung zu der gängigen Darstellung in der Literatur, welche in der Regel nur eine Feldabschirmung durch die erzeugte THz-Strahlung beinhaltet, auch die Feldabschirmung durch den Transport von Ladungsträgern enthalten. Damit kann auch die zeitliche Form der erzeugten THz-Pulse ausreichend gut beschrieben werden.

Der verwendete THz-Emitter besteht aus einem $3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$ großen GaAs-Wafer, der mit 3 cm langen Kupferelektroden in einem Abstand von 3 cm kontaktiert ist, um eine externe Vorspannung anlegen zu können. Die Anordnung ist in Abb. 3.8 skizziert. Die Elektroden sind dabei nur angepresst, so dass vermutlich keine guten Ohmsche Kontakte vorliegen. Dieses ist aber nicht weiter von Bedeutung, da die Elektroden nur zur Erzeugung eines externen Feldes benötigt werden, ein Ladungsträgertransport bis in die Elektroden spielt für den Emissionsvorgang dagegen keine Rolle. Im Rahmen dieser Arbeit wurden maximale Hochspannungen von bis zu 3 kV bzw. maximale

Feldstärken von 1 kV/cm verwendet. Bei höheren Werten besteht die Gefahr von Überschlagen. Grundsätzlich sind höhere Vorspannungen bei Verwendung von gepulster Hochspannungsquellen möglich. Diese Erhöhen aber das Rauschniveau im Gesamtsystem deutlich, so dass diese Technik aus experimenteller Sicht sehr problembehaftet ist und keine Verbesserung der Signal-zu-Rausch-Verhältnisses des Systems ermöglicht.

Wie in Abb. 3.8 dargestellt ist wird die Fläche zwischen den Elektroden entweder teilweise oder vollständig von dem durch ein Teleskop aufgeweiteten optischen Strahl ausgeleuchtet, wobei im Fall der vollständig Ausleuchtung ein Teil der optischen Leistung - bedingt durch das runde Strahlprofil und den quadratischen Emitter - ungenutzt verloren geht. Wie sich später zeigen wird, unterscheiden sich diese beiden Konfigurationen durch einen unterschiedlichen Wert für den Parameter K_{sc} , welcher die Feldabschirmung durch Ladungsträgerverschiebung beschreibt. Dieser Wert wurde für die zwei Beleuchtungsgeometrien separat angepasst, so dass sich eine bestmögliche Übereinstimmung mit den experimentellen Daten ergibt. Die experimentellen Bedingungen unterscheiden sich außerdem darin, dass für die zwei Anordnungen Parabolspiegel mit unterschiedlichen Brennweiten zur Detektion verwendet wurden.

Im folgenden soll zunächst die von einem Flächenelement des großflächigen GaAs-Emitters abgestrahlte THz-Signalform $E_{THz}(t)$ bestimmt werden, wenn dieses mit einer bestimmten Laserpulsenergie W_{opt} beleuchtet wird und wenn am Ort des Flächenelements ein effektives externes Feld E_{ext} vorliegt.

Bei einem Emissionsvorgang wird der Emitter bzw. das betrachtete Flächenelement senkrecht zur Oberfläche vom optischen Puls beleuchtet. Die dadurch erzeugten Ladungsträger werden in die Richtung des externen Feldes beschleunigt, so dass ein Oberflächenphotostrom $\mathcal{J}_s(t)$ in Richtung des externen Feldes fließt.

Als Grundlage für die Berechnung des Photostroms und der zeitabhängigen Felder ist es sinnvoll, zunächst die Oberflächenleitfähigkeit als Funktion der Zeit und der Anregungsenergie W_{opt} zu bestimmen. Dabei wird angenommen, dass die Zahl der Ladungsträger im Leitungsband pro Flächenelement, also die Oberflächenladungsträgerdichte (n_S) von der Gesamtzahl der absorbierten Photonen und damit vom Integral der Intensität des optisch Anregelaserpulses abhängt. Weiter soll der Beitrag der Löcher zur Leitfähigkeit vernachlässigt werden, da diese auf Grund der deutlich höheren Masse nur sehr gering zur Leitfähigkeit beitragen. Genau genommen gilt diese Argumentation allerdings nur für die schweren Löcher, welche aber die Mehrzahl der Löcher darstellen. Die leichten Löcher haben dagegen eine vergleichbare effektive Masse wie die Elektronen.

Als Folge des angelegten externen Feldes E_{ext} werden die Ladungsträger beschleunigt. Mit zunehmender Geschwindigkeit werden die Ladungsträger allerdings auch durch Streuprozesse an einer freien Beschleunigung gehindert, wodurch eine weitere Beschleunigung mehr und mehr unterdrückt wird. Schließlich erreichen die Ladungsträger die Sättigungsdriftgeschwindigkeit auf der durch die Impulsrelaxationszeit vorgegebenen Zeitskala.

In der Literatur findet man umfangreiche experimentelle und theoretische Arbeiten zum Thema der dynamischen Ladungsträgergeschwindigkeit direkt nach der optischen Anregung. Insbesondere die Tatsache, dass die Elektronen direkt nach ihrer Erzeugung auf Grund der Differenz der Photonenenergie relativ zur Bandlücke eine gewisse Überschussenergie besitzen, führt dazu, dass sich die Streuzeiten und die effektive Masse deutlich von den Gleichgewichtswerten unterscheiden können.

Zum Beispiel wurde auf Grund einer solchen Überschussenergie bei elektrischen Felder von $> 5 \text{ kV/cm}$ (also bei deutlich höheren Feldern, als im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurden) vor Erreichen der Sättigungsdriftgeschwindigkeit ein Überschwingen der Elektronengeschwindigkeit vorhergesagt und beobachtet [54, 55, 56]. Dieser Effekt kann also im Rahmen dieser Arbeit

vernachlässigt werden.

Die Streuzeit in GaAs bzw. genauer die Impulsrelaxationszeit unter Gleichgewichtsbedingungen (d.h. für ein kleines konstantes Feld) beträgt etwa 150 fs [57]. Für den Zeitraum direkt nach der Anregung wurde durch Messungen mit optischer Anregung und Abfrage der Leitfähigkeit mit einem THz-Puls ein Wert von 2 ps ermittelt [58, 59]. Andererseits lieferte eine Anpassung an gemessene THz-Signalförmigkeiten einen Wert von 30 fs [42]. In der gängigen Literatur zur THz-Emission aus großflächigen GaAs-Antennen wurden aus dem Sättigungsverhalten des Emitters Werte für die mittlere Beweglichkeit nach der optischen Anregung von einigen $100 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ermittelt [38, 40, 44]. Auf Basis des stationären Wertes für die effektive Elektronenmasse m^* nach der Thermalisierung von $m^* = 0.063 m_0$ würde diese Beweglichkeit Streuzeiten im 10 fs-Bereich entsprechen. Allerdings ist auch mit einer Änderung der effektiven Elektronenmasse auf Grund eines effektiven Felds zu rechnen.

Auf Grund dieser sehr uneinheitlichen Situation wurde hier eine Beschreibung im Drude-Modell auf Basis der Gleichgewichtswerte bei kleinem konstantem Feld für die Streuzeit ($\tau_s = 150 \text{ fs}$ [57]) und für die Mobilität ($\mu_{DC} = 8500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ [58]) gewählt. Wie sich später zeigen wird, können damit alle wesentlichen Aspekte des GaAs-Emitters ausreichend gut beschrieben werden.

Im Drude-Modell wird die mittlere Geschwindigkeit $v_e(t)$ der erzeugten Elektronen durch folgende Differentialgleichung beschrieben:

$$\frac{d}{dt}v_e(t) = -\frac{v_e(t)}{\tau_s} + \frac{eE}{m^*}. \quad (3.39)$$

Dabei ist e die Elementarladung, E das anliegende elektrische Feld und τ_s die Impulsrelaxationszeit. Da die Ladungsträger zum Zeitpunkt ihrer Erzeugung noch keine mittlere Geschwindigkeit haben, gilt die Randbedingung $v_e(t = 0) = 0$. Dann kann man die Lösung formal ausdrücken als:

$$\begin{aligned} v(t) &= \mu(t)E, \\ \text{mit } \mu(t) &= \mu_{dc} \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_s}\right) \right) \\ \text{und } \mu_{dc} &= \frac{\tau_s e}{m^*}. \end{aligned} \quad (3.40)$$

Dabei ist μ_{dc} die Gleichgewichtsbeweglichkeit für kleine Felder.

In Erweiterung zur gängigen Darstellung wurde hier analog zu [40] die zeitabhängige Beweglichkeit $\mu(t)$ eingeführt. Diese stellt anschaulich die auf das externe Feld normierte zeitliche Entwicklung der Geschwindigkeit eines zum Zeitpunkt $t = 0$ erzeugten Elektrons dar. Dieses Vorgehen hat den Vorteil, dass im Weiteren die zeitabhängige Oberflächenleitfähigkeit σ_s durch Faltung der zeitlichen Entwicklung der auf das Feld normierten Geschwindigkeit eines einzelnen Elektrons $\mu(t)$ mit der zeitlichen Entwicklung der Oberflächenladungsträgerdichte $n_s(t)$ beschrieben werden kann (vergl. Gl. 3.45).

Die in Gl. 3.40 angegebene Lösung für $\mu(t)$ gilt allerdings streng nur für zeitunabhängige elektrische Felder. Solange aber keine Änderung des elektrischen Felds auf einer Zeitskala von τ_s oder kürzer stattfindet, gilt näherungsweise auch

$$v(t) = \mu(t)E(t). \quad (3.41)$$

Dabei gilt natürlich weiterhin, dass das entsprechende Elektron zum Zeitpunkt $t = 0$ erzeugt wurde.

Ein optischer Laserpuls mit der zeitlichen gaußförmigen Intensitätsverteilung $I_{opt}(t)$ erzeugt an der Halbleiteroberfläche eine zeitliche Oberflächenladungsträgerdichte $n_s(t)$. Dabei gilt die inhomogene Differentialgleichung:

$$\frac{d}{dt}n_s(t) = \frac{4n}{(1+n)^2} \frac{I_{opt}(t)}{\hbar\omega_{opt}} - \frac{n_s(t)}{\tau_c}, \quad (3.42)$$

mit der Lösung:

$$n_s(t) = \frac{4n}{(1+n)^2} \frac{1}{\hbar\omega_{opt}} \int_{-\infty}^t I_{opt}(t') \exp\left(\frac{t'-t}{\tau_c}\right) dt'. \quad (3.43)$$

Dabei ist τ_c die Ladungsträgerlebensdauer und $(4n)/(1+n)^2$ der Transmissionskoeffizient (mit dem Brechungsindex n) für den Eintritt der optischen Strahlung in das GaAs-Material. Die Ladungsträgerlebensdauer ist bei den meisten Halbleitern sehr viel größer als die optische Pulslänge. Insbesondere für GaAs ist $\tau_c \simeq 500$ ps [58]. Damit lässt sich $n_s(t)$ für die relevanten Zeitskalen von einigen Pikosekunden nach der Anregung vereinfachen zu:

$$n_s(t) = \frac{4n}{(1+n)^2} \frac{1}{\hbar\omega_{opt}} \int_{-\infty}^t I_{opt}(t') dt'. \quad (3.44)$$

Damit lässt sich die Oberflächenleitfähigkeit $\sigma_s(t)$ angeben als Faltung aus der Oberflächenladungsträgerdichte $n_s(t)$ und der zeitlichen Entwicklung der auf das Feld normierten Geschwindigkeit $\mu(t)$. Es gilt:

$$\begin{aligned} \sigma_s(t) &= e \int_{-\infty}^t \mu(t-t') n_s(t') dt' \\ &= \frac{4n}{(1+n)^2} \frac{e}{\hbar\omega_{opt}} \int_{-\infty}^t \mu(t-t') I_{opt}(t') dt' \\ &= \frac{4n}{(1+n)^2} \frac{e\mu_{dc}}{\hbar\omega_{opt}} \int_{-\infty}^t \left(1 - \exp\left(\frac{-(t-t')}{\tau_s}\right)\right) I_{opt}(t') dt' \\ &= \frac{2\sqrt{\ln(2)}\sigma_s^0}{\sqrt{\pi}\tau_p} \int_{-\infty}^t \left(1 - \exp\left(\frac{-(t-t')}{\tau_s}\right)\right) \exp\left(\frac{-4\ln(2)t'^2}{\tau_p^2}\right) dt' \\ &= \frac{2\sqrt{\ln(2)}\sigma_s^0}{\sqrt{\pi}\tau_p} \left(\int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{-t'^2}{2\tau_p^2}\right) dt' - \exp\left(\frac{-t}{\tau_s}\right) \int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{t'}{\tau_s} - \frac{4\ln(2)t'^2}{\tau_p^2}\right) dt' \right) \\ &= \frac{\sigma_s^0}{\sqrt{\pi}\tau_p} \left(X(t) - \exp\left(\frac{-t}{\tau_s}\right) Y(t) \right), \\ &\text{mit } X(t) = \int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{-4\ln(2)t'^2}{\tau_p^2}\right) dt' \\ &\text{und } Y(t) = \int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{t'}{\tau_s} - \frac{4\ln(2)t'^2}{\tau_p^2}\right) dt' \\ &\text{sowie } \sigma_s^0 = \frac{4n}{(1+n)^2} \frac{W_{opt}e\mu_{dc}}{\hbar\omega_{opt}}. \end{aligned} \quad (3.45)$$

Dabei ist $I_{opt}(t) = \frac{W_{opt}}{\sqrt{\pi}\tau_p} \exp\left(\frac{-t^2}{2\tau_p^2}\right)$ die optische Pumpintensität mit der Pulslänge τ_p und der Flächenenergiedichte W_{opt} . Mit Gleichung 3.45 steht ein Ausdruck zur Beschreibung der zeitabhängigen Oberflächenleitfähigkeit des GaAs-Emitters während und nach der Beleuchtung mit einem

kurzen Laserpuls zu Verfügung. Allerdings sind die in $X(t)$ und $Y(t)$ enthaltenen bestimmten Integrale nur numerisch zu lösen. Es fällt auf, dass die zeitliche Form der Oberflächenleitfähigkeit unabhängig von der Anregungsdichte ist und dass die Oberflächenleitfähigkeit linear mit der Laserpulsennergiedichte skaliert. Die zeitabhängige Leitfähigkeit ist in Abb. 3.9(a) und (b) für verschiedene Anregungsenergiedichten dargestellt. Dabei wurden die Gleichgewichtswerte für die Beweglichkeit bei kleinen Feldern ($\mu_{DC} = 8500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) bzw. für die Impulsrelaxationszeit ($\tau_s = 150 \text{ fs}$) verwendet. Die verwendeten Laserpulsennergiedichten von $0,5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ bis $137,5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ entsprechen dabei erzeugten Ladungsträgerdichten von $9 \cdot 10^{18}$ bis etwa $3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Im weiteren soll zunächst der Zusammenhang zwischen der Oberflächenstromdichte und dem abgestrahlten THz-Feld hergeleitet werden. Die Argumentation basiert dabei auf der Voraussetzung, dass die gesuchten Lösungen die Wellengleichung mit einem Quellterm für den Oberflächenstrom erfüllen müssen. Diese Gleichung lautet für das elektrische Feld in einem nicht-magnetischem und ladungsfreiem Medium:

$$\nabla^2 \mathbf{E}(z, t) = -\mu_0 \epsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(z, t) + \frac{\partial}{\partial t} \vec{j}(z, t). \quad (3.46)$$

Abb. 3.10 zeigt eine optisch angeregte Antenne mit extern angelegter Spannung V_b und resultierendem elektrischem Feld \vec{E}_{ext} . Der Emitter wird senkrecht zur Oberfläche vom optischen Puls beleuchtet, die dadurch erzeugten Ladungsträger werden in die Richtung des externen Feldes beschleunigt, und der Photostrom J_s fließt in Richtung der externen Vorspannung. Im weiteren ist es sinnvoll, sich bei der Lösung von Gl. 3.46 nur auf ebene Wellen in z-Richtung zu beschränken, da die Dimensionen der großflächigen Antenne deutlich größer als die Wellenlänge der erzeugten THz-Strahlung sind. Weiter soll die Stromdichte nur auf eine infinitesimal dünne Schicht, an der Emitteroberfläche begrenzt sein. Berücksichtigt man außerdem den endlichen Brechungsindex des Emittermaterials durch Einführung der Dielektrizitätskonstante $\epsilon = n_{THz}^2$, gilt für die als Lösungen von Gl. 3.46 angenommenen ebenen Wellen innerhalb bzw. außerhalb des Emitters (also in Gebieten mit $j=0$) [40]:

$$\vec{H}(t)_{THz}^{in} \times \vec{n}_z = \frac{\sqrt{\epsilon}}{\eta_0} \vec{E}_{THz}^{in}(t), \quad (3.47)$$

$$\vec{H}(t)_{THz}^{out} \times \vec{n}_z = \frac{1}{\eta_0} \vec{E}_{THz}^{out}(t). \quad (3.48)$$

wobei $\eta_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \approx 120\pi \Omega$ [25] der sogenannte Freiraumwellenwiderstand ist (engl. free space impedance).

Betrachtet man nun die Grenzfläche mit der Oberflächenstromdichte \vec{j}_s so lässt sich mittels der sogenannten Gauß'schen Kästchen und des Stokes'schen Satzes das Feldverhalten an den Grenzflächen einfach finden [60, 25]:

$$\vec{n}_z \times (\vec{E}_{THz}^{out} - \vec{E}_{THz}^{in}) = 0, \quad (3.49)$$

$$\vec{n}_z \times (\vec{H}_{THz}^{out} - \vec{H}_{THz}^{in}) = \vec{j}_s. \quad (3.50)$$

Aus Gleichung (3.49) folgt unmittelbar

$$\vec{E}_{THz}^{out} = \vec{E}_{THz}^{in} \quad (3.51)$$

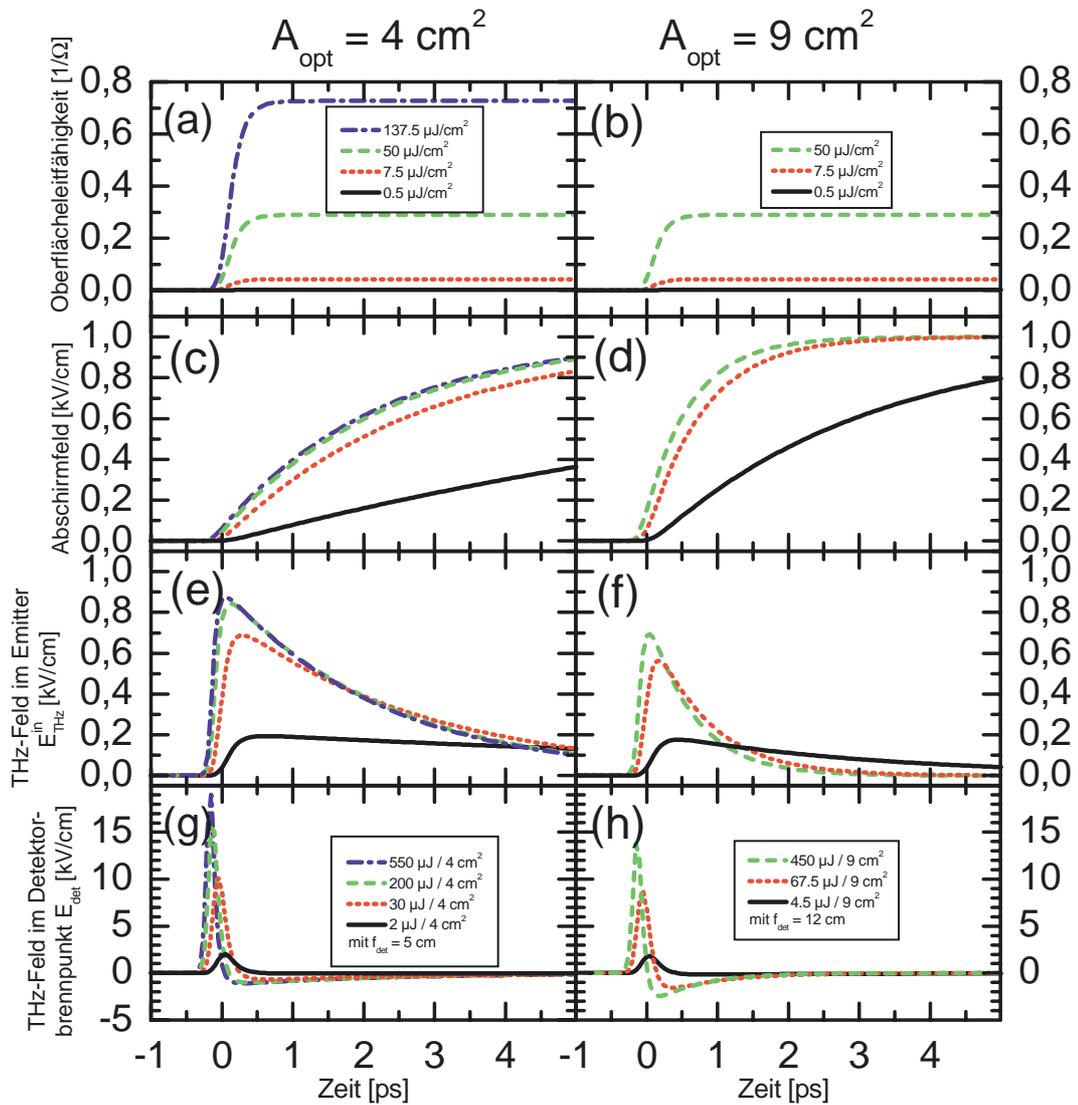


Abbildung 3.9.: Oberflächenleitfähigkeit, Abschirmfeld und THz-Signal am Emittor und im Brennpunkt als Funktion der Zeit für die zwei verwendeten Beleuchtungsgeometrien (links: teilweise Beleuchtung, $A_{opt} = 4 \text{ cm}^2$, $f_{det} = 5 \text{ cm}$, $K_{sc} = 4,0 \cdot 10^{13} \text{ V}/(\text{As})$; rechts: vollständige Beleuchtung, $A_{opt} = 9 \text{ cm}^2$, $f_{det} = 12 \text{ cm}$, $K_{sc} = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ V}/(\text{As})$). Die externe Feldstärke beträgt jeweils 1 kV/cm.

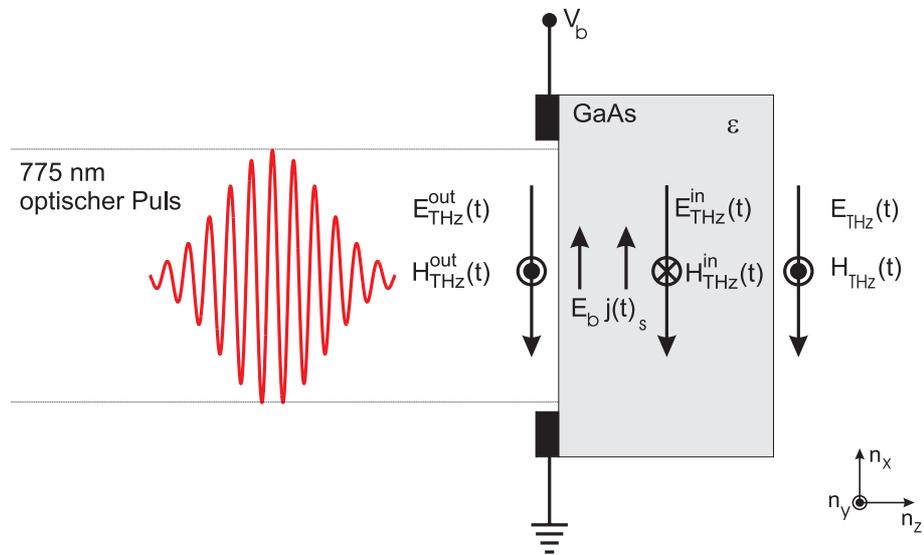


Abbildung 3.10.: Schematische Darstellung der durch einen optischen Puls großflächig angeregten und mit einer Spannung V_b vorgespannten Antenne. Das durch die Vorspannung hervorgerufene elektrische Feld ist als E_{ext} , die zeitabhängige Oberflächenstromdichte parallel dazu als $j_s(t)$ dargestellt. Gezeigt werden weiterhin die relevanten elektrischen und magnetischen Felder der erzeugten THz-Strahlung. Dabei ist E_{out} bzw. H_{out} das nach außen strahlende und E_{in} bzw. H_{in} das in die Antenne eindringende elektromagnetische Feld. E_{THz} bzw. H_{THz} ist das schließlich durch die Antenne transmittierte Feld.

d.h. das erzeugte und in Rückwärtsrichtung (rel. zum einfallenden optischen Puls) abgestrahlte E-Feld E_{THz}^{out} ist genauso groß wie das in den Emitter hinein abgestrahlte Feld E_{in} . Setzt man nun Gleichung (3.47) und (3.48) in Gleichung (3.50) ein und benutzt (3.51), so erhält man

$$\vec{j}_s(t) = -\frac{\sqrt{\epsilon} + 1}{\eta_0} \vec{E}_{THz}^{in}(t), \quad (3.52)$$

d.h. der Photostrom ist antiparallel und proportional zum emittierten E-Feld. Erwartungsgemäß erfüllt die so gewonnene Lösung Gl. 3.46.

Nach dem Ohmschen Gesetz [25] hängt die Oberflächenstromdichte $\vec{j}_s(t)$ von der Oberflächenleitfähigkeit $\sigma_s(t)$ und dem effektiven elektrischen Feld $E_{eff}(t)$ ab. Dabei ist zu berücksichtigen, dass das externe anliegende elektrische Feld E_{ext} vom erzeugten THz-Feld $E_{THz}^{in}(t)$ abgeschirmt wird. Weiter führt die entstehende Oberflächenstromdichte $j_s(t)$, zu einer Verschiebung von Ladungsträgern. Im Fall eines unendlich ausgedehnten Emitters mit räumlich homogener Beleuchtung würde eine solche Verschiebung der Ladungsträger nicht zu einer Feldabschirmung führen. Falls jedoch die Oberflächenleitfähigkeit, und damit die Oberflächenstromdichte ortsabhängig ist, führt die Verschiebung der Ladungsträger zu einer Akkumulation von Ladungsträgern in Bereichen, in den sich die Oberflächenleitfähigkeit in Richtung des anliegenden Felds ändert. Solche Bereiche liegen einerseits in den Flanken des gaußschen Strahlprofils vor, zum anderen treten an den Grenzen zu den Elektroden große Diskontinuitäten in der Leitfähigkeit auf, die ebenfalls zu einer Akkumulation von Ladungsträgern führen. Zwischen den akkumulierten positiven und negativen Ladungsträgern wird ein elektrisches Feld E_{sc} aufgebaut welches ebenfalls zur Abschirmung des anliegenden externen Felds E_{ext} beiträgt. Es gilt also

$$\begin{aligned} \vec{j}_s(t) &= \sigma_s(t) \vec{E}_{eff}(t) \\ &= \sigma_s(t) \left(\vec{E}_{ext} + \vec{E}_{THz}^{in}(t) + \vec{E}_{sc}(t) \right). \end{aligned} \quad (3.53)$$

Damit ergibt sich für das erzeugte THz-Feld $E_{THz}^{in}(t)$ zusammen mit (3.52):

$$\vec{E}_{THz}^{in} = -(\vec{E}_{ext} + \vec{E}_{sc}) \frac{\sigma_s(t) \eta_0}{\sigma_s(t) \eta_0 + 1 + \sqrt{\epsilon}} \quad (3.54)$$

Das durch den Emitter transmittierte Feld \vec{E}_{THz} erfährt an der zweiten Grenzfläche (also beim Verlassen) des Emitters noch eine Änderung der Amplitude gemäß dem Fresnel'schen Amplitudentransmissionskoeffizienten. Damit gilt:

$$\begin{aligned} \vec{E}_{THz} &= \vec{E}_{THz}^{in} \frac{2n_{THz}}{1 + n_{THz}} \\ &= -\frac{2n_{THz}}{1 + n_{THz}} (\vec{E}_{ext} + \vec{E}_{sc}) \frac{\sigma_s(t) \eta_0}{\sigma_s(t) \eta_0 + 1 + \sqrt{\epsilon}}. \end{aligned} \quad (3.55)$$

Das entsprechende Verhältnis (ca. 1,5) zwischen transmittierter und in Rückwärtsrichtung abgestrahlter Amplitude ist experimentell bestätigt worden [61]. Dieser geringe Unterschied zwischen der Amplitude des transmittierten und des in Rückwärtsrichtung abgestrahlten Signals steht in deutlichem Widerspruch zu den Beobachtungen an mikrostrukturierten Dipolantennen, bei welchen die Emission im wesentlichen nur durch das Substrat erfolgt [62].

Im Folgenden soll die zeitliche Entwicklung der Abschirmfelder, welche auf Grund von Ladungsträgerverschiebung entstehen, diskutiert werden. Eine experimentelle Bestimmung solcher Abschirmeffekte findet man in [63]. Ein Ansatz zur Bestimmung der Abschirmfelder E_{sc} auf Grund von Ladungsträgerbewegung wurde von Rodrigues et al. vorgeschlagen [64]. Diese haben das durch Ladungsträgerverschiebung verursachte Abschirmfeld in einer Dimension (entlang der Richtung des externen Feldes) durch Lösen der Kontinuitätsgleichung für die Ladungsträger und der Poisson-Gleichung für die Felder bestimmt. Die Bestimmung der Felder mittels einer eindimensionalen Poisson-Gleichung erscheint allerdings fragwürdig, da die realen Abschirmfelder im makroskopischen Emitter ja dreidimensional verteilt sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein einfacher phänomenologischer Ansatz ohne eine Ortsabhängigkeit der Abschirmfelder entwickelt. Dabei wird angenommen, dass die zeitliche Entwicklung von E_{sc} vereinfacht angegeben werden kann durch

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} E_{sc}(t) &= K_{sc} J_s(t) \\ &= K_{sc} \sigma_s(t) E_{eff}(t) \\ &= K_{sc} \sigma_s(t) (E_{ext} + E_{THz}(t) + E_{sc}(t)). \end{aligned} \quad (3.56)$$

da der Aufbau des Abschirmfeldes ja ursächlich vom real fließenden Oberflächenstrom abhängt. K_{sc} wurde dabei formal als phänomenologische Proportionalitätskonstante eingeführt. Der genaue Wert von K_{sc} hängt dabei im wesentlichen von der Beleuchtungsgeometrie des Emitters ab. Mit Gleichung 3.54 ergibt sich dann

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} E_{sc}(t) &= K_{sc} \sigma_s(t) (E_{ext} + E_{sc}(t)) \left(1 - \frac{\sigma_s(t) \eta_0}{\sigma_s(t) \eta_0 + 1 + \sqrt{\epsilon}} \right) \\ &= K_{sc} \frac{1}{\frac{\eta_0}{1+\sqrt{\epsilon}} + \frac{1}{\sigma_s(t)}} (E_{ext} + E_{sc}(t)). \end{aligned} \quad (3.57)$$

Da $\sigma_s(t)$ für $t \gg \tau_s, \tau_p$ und für $t < \tau_c$ den konstanten Wert σ_s^0 annimmt, und da sich die Abschirmung im wesentlichen erst auf einer deutlich längeren Zeitskala von wenigen ps aufbaut, ergibt sich für Gleichung 3.57 näherungsweise die Lösung:

$$\begin{aligned} E_{sc}(t) &= -E_{ext} \left(1 - \exp\left(\frac{-t}{\tau_{sc}}\right) \right), \quad \text{für } t > 0 \\ \text{mit } \tau_{sc} &= \frac{\frac{\eta_0}{1+\sqrt{\epsilon}} + \frac{1}{\sigma_s^0}}{K_{sc}}. \end{aligned} \quad (3.58)$$

Dabei fällt auf, dass τ_{sc} für kleine Werte von σ_s^0 , also für kleine Laserpulsenergiedichten, im wesentlichen von $1/(K_{sc} \sigma_s^0)$ abhängt. In diesem Bereich wird die Abschirmung durch Ladungsträgertransport also mit steigender Anregungsenergiedichte schneller. Für größere Werte von σ_s^0 , also hohe Anregungsenergiedichten, wird τ_{sc} zu $\eta_0/(K_{sc}(1 + \sqrt{\epsilon}))$ und ist damit konstant. In letztgenannten Fall ist der Strom und damit die Zeitskala zum Aufbau der Abschirmung im wesentlichen durch die abschirmende Wirkung des THz-Strahlungsfeldes begrenzt. Weiter fällt auf, dass erwar-

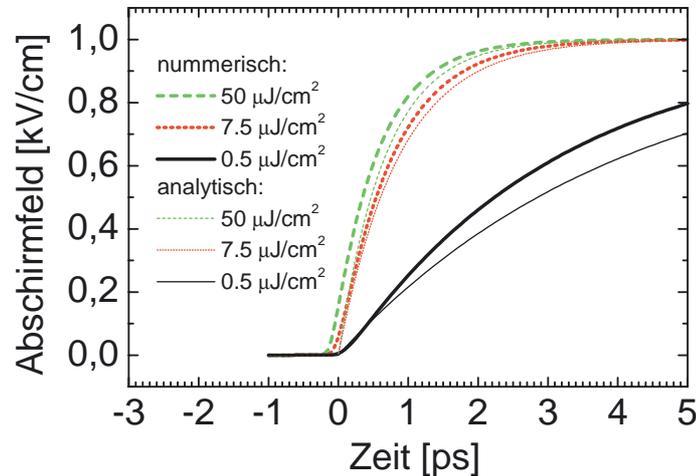


Abbildung 3.11.: Numerisch und analytisch berechneter zeitlicher Verlauf des durch Ladungsträgerverschiebung verursachten Abschirmfelds E_{sc} für volle Beleuchtung des Emitters ($A_{opt} = 9 \text{ cm}^2$).

tungsgemäß E_{sc} linear mit E_{ext} skaliert. Eine exaktere Lösung - insbesondere für den Zeitraum während, und direkt nach der Anregung - erhält man durch numerisches Lösen von 3.57. In Abb. 3.9(c) und (d) ist der zeitliche Verlauf der Abschirmung für verschiedene Laserpulsenergiedichten dargestellt, wie er sich numerisch ergibt. Zusätzlich ist in Abb. 3.11 der Vergleich zwischen der analytischen (Gl. 3.58) und der numerischen Lösung dargestellt, wie er sich bei der vollen Beleuchtung des Emitters ($A_{opt} = 9 \text{ cm}^2$) ergibt. Für alle weiteren Berechnungen wurde die numerisch gewonnene Lösung verwendet.

Ist nun der zeitliche Verlauf der Abschirmung $E_{sc}(t)$ bekannt, kann mit Gleichung 3.55 auch das zeitabhängige abgestrahlte THz-Feld E_{THz} ermittelt werden, da ja $\sigma_s(t)$ bekannt ist. Das abgestrahlte THz-Feld ist in Abb. 3.9 für verschiedene Anregungsenergiedichten dargestellt. Dabei wurde der Wert für den Faktor K_{sc} jeweils für die zwei unterschiedlichen Beleuchtungsgeometrien durch Anpassung der am Ort des Detektors modellierten THz-Signalförmigkeiten an die gemessenen Daten bestimmt. Dabei ergibt sich in der Geometrie mit teilweiser (vollständiger) Beleuchtung ein Wert von $K_{sc} = 4,0 \cdot 10^{13} \text{ V}/(\text{As})$ ($K_{sc} = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ V}/(\text{As})$).

Da $E_{sc}(t)$ linear mit E_{ext} skaliert, muss nach Gleichung 3.55 auch das abgestrahlte THz-Feld E_{THz} linear mit E_{ext} skalieren. Dieser Zusammenhang wurde auch experimentell bestätigt, wie in Abb. 3.12 dargestellt ist.

Auf Basis des nun bestimmten Verlaufs von $E_{THz}(t)$ kann nun im weiteren der Effizienzfaktor des Emitters mit Hilfe von Gleichung 3.5 bestimmt werden. In Abb. 3.13 ist der so ermittelte Wert für K_{eff} für die zwei untersuchten Beleuchtungsgeometrien dargestellt. Dabei fällt auf, dass die Effizienz des GaAs-Emitters, die ja für genügend kleine Laserpulsenergiedichten konstant sein sollte, im untersuchten Bereich deutlich mit steigender Laserpulsenergiedichte abfällt. Dieses erklärt sich

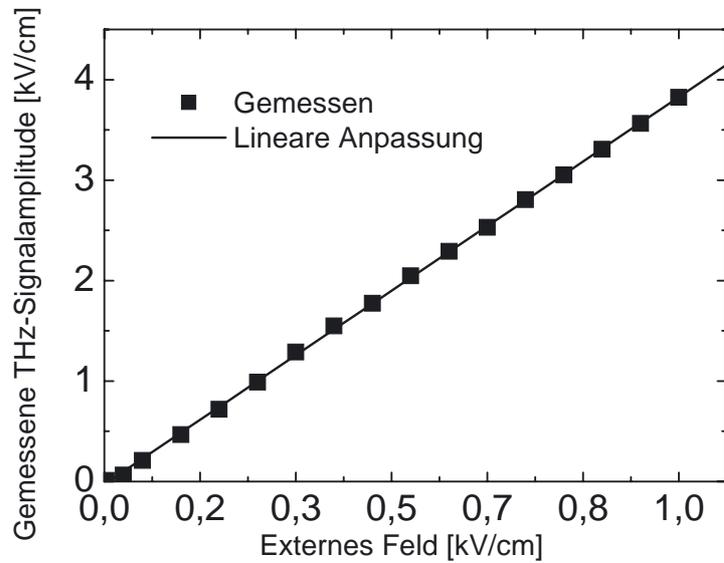


Abbildung 3.12.: Detektierte THz-Signalamplitude aufgetragen gegen die elektrische Vorspannung des Emitters bei konstanter optischer Pumpenergie von $500 \mu\text{J}$.

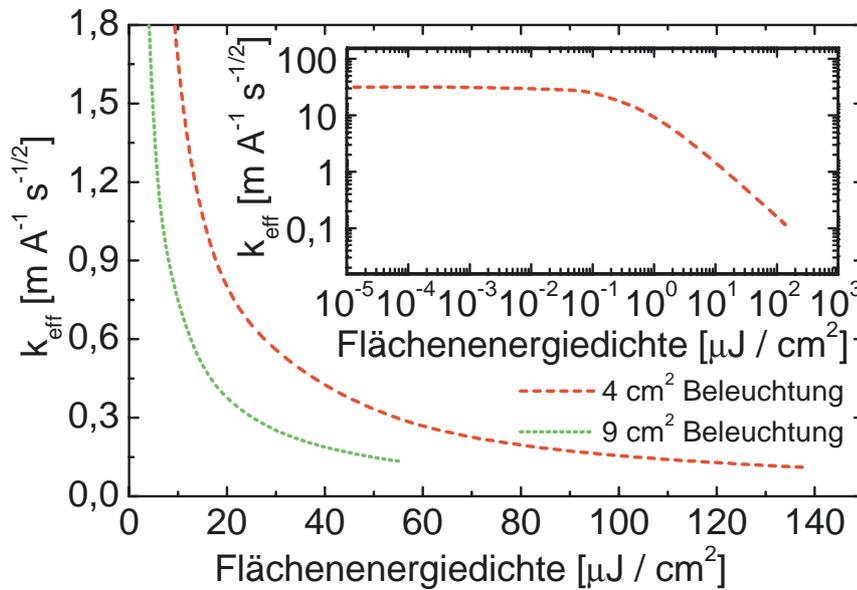


Abbildung 3.13.: Numerisch berechneter Effizienzfaktor des GaAs-Emitters für die zwei verwendeten Beleuchtungsgeometrien. Im Einschub sind die Daten für den 4 cm^2 Emitter zusätzlich in doppelt logarithmischer Skalierung dargestellt.

dadurch, dass ab einer gewissen Mindestenergiedichte genügend hohe Oberflächenleitfähigkeiten erzeugt werden, so dass die erzeugte THz-Feldamplitude bereits annähernd die Größenordnung des anliegenden Felds erreicht. Eine weitere Steigerung der Laserpulsenergiedichte führt dann nur noch zu einer Verschiebung der Emission hin zu früheren Zeiten, da bereits in der ansteigenden Flanke des zeitlichen Laserpulsprofils eine für die maximale Feldamplitude ausreichende Oberflächenleitfähigkeit erreicht wird. Dieses Verhalten erklärt die deutliche Abnahme von K_{eff} mit der Laserpulsenergiedichte und damit auch die starke Sättigung der experimentell beobachteten THz-Emissionen, auf die im folgenden näher eingegangen werden soll.

Wie in Kapitel 3.2 dargestellt wurde, kann mittels Gleichung 3.13 die im Brennpunkt detektierte THz-Signalform bestimmt werden, wenn die vom Emitter abgestrahlte THz-Signalform bekannt ist. Damit kann nun die THz-Signalform für die zwei verschiedenen Beleuchtungsgeometrien am Ort des Detektors berechnet und mit den experimentellen Befunden verglichen werden. Das Ergebnis ist in Abb. 3.14 und 3.15 dargestellt. Man findet im wesentlichen eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den berechneten Daten. Insbesondere das frühere Auftreten des Pulsmaximums bei höheren Laserpulsenergiedichten und das Überschwingen in den negativen Bereich nach dem Hauptpuls wird richtig wiedergegeben.

In Abb. 3.16 sind die gemessenen THz-Signalamplituden für die zwei Beleuchtungsgeometrien umgerechnet auf eine Brennweite des auf den Detektor fokussierenden Elements von $f_{det} = 5$ cm pro Emitterfläche dargestellt. Dieses ist sinnvoll, da nach Gl. 3.13 die am Ort des Detektor erzeugte THz-Feldamplitude bei gleicher vom Emitter abgestrahlter THz-Feldamplitude proportional zur Fläche des Emitters und entgegengesetzt proportional zu f_{det} ist. Da die abgestrahlte THz-Feldamplitude nur von der Flächenenergiedichte der Beleuchtung des Emitters abhängt, erlaubt Abb. 3.16 also einen Vergleich der zwei Beleuchtungsgeometrien.

In der Darstellung erkennt man, dass die Signalamplitude der detektierten THz-Pulse des 4 cm^2 -Emitters (des 9 cm^2 -Emitters) etwa nur ein Drittel (nur Halb) so groß sind, als auf Grund der Modellierung zu erwarten wäre. Die absoluten Abweichungen zwischen den gemessenen und den modellierten Daten, sind wie schon beim ZnTe-Emitter diskutiert vermutlich auf Verluste im THz-Strahlpfad, und auf die Geometrie des Abfrage-Laserstrahls zurückzuführen. Die Übereinstimmung ist auch hier als zufriedenstellend anzusehen. Die Abweichungen der in den zwei Beleuchtungsgeometrien gemessenen THz-Signalamplituden untereinander ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass das effektive Feld im Zentrum des Emitters, also dort wo der 4 cm^2 -Emitters im wesentlichen beleuchtet wird, vermutlich geringer ist, als sich auf Grund von angelegter Spannung und Elektrodenabstand rechnerisch ergibt. Dieses liegt an der Feldüberhöhung an den Elektroden, welche sich auf Grund der Tatsache ergibt, dass das Feld wegen des höheren Brechungsindex im GaAs konzentriert ist. Auf Grund der Randbedingungen an den Elektroden erfolgt dann eine Überhöhung an den Rändern, bzw. eine Reduzierung der Feldstärke im Zentrum des Emitters. Damit erklärt sich das höhere Signal des 9 cm^2 -Emitters so, dass bei dieser Geometrie auch die Randbereiche mit höherem Feld beleuchtet werden.

An dieser Stelle sollte angemerkt werden, dass die in Abb. 3.16 verglichenen THz-Signalamplituden zu einem gewissen Teil natürlich Änderungen in der zeitlich Form bzw. in der spektralen Zusammensetzung des THz-Signals wiedergeben. Dieses ist hier aber durchaus beabsichtigt, da man in der Praxis meistens an der Erzeugung möglichst hoher THz-Signalamplituden interessiert ist.

Trotz der guten Übereinstimmung können einige Details mit dem hier dargestellten Modell nicht zufriedenstellend wiedergegeben werden. Hierzu gehört das langsame Ansteigen des experimentell beobachteten THz-Signals zu Zeiten vom mehr als 1 ps vor dem Hauptpuls. Dieses kann

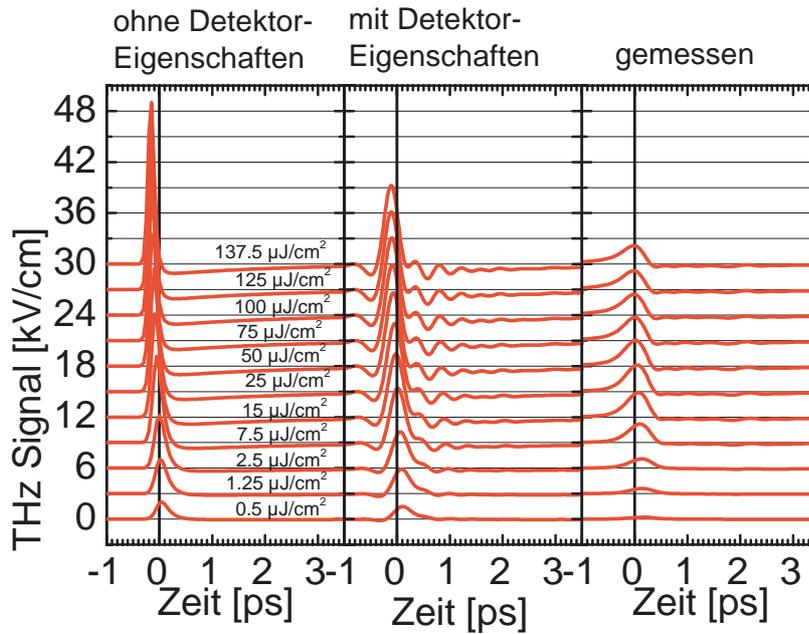


Abbildung 3.14.: Vergleich der modellierten und der gemessenen THz-Signalform im Zentrum des Brennpunkts für verschiedene Laserpulsenergiedichten bei Beleuchtung von 4 cm^2 des Emitters und Fokussierung auf den Detektor mit $f_{det} = 5 \text{ cm}$.

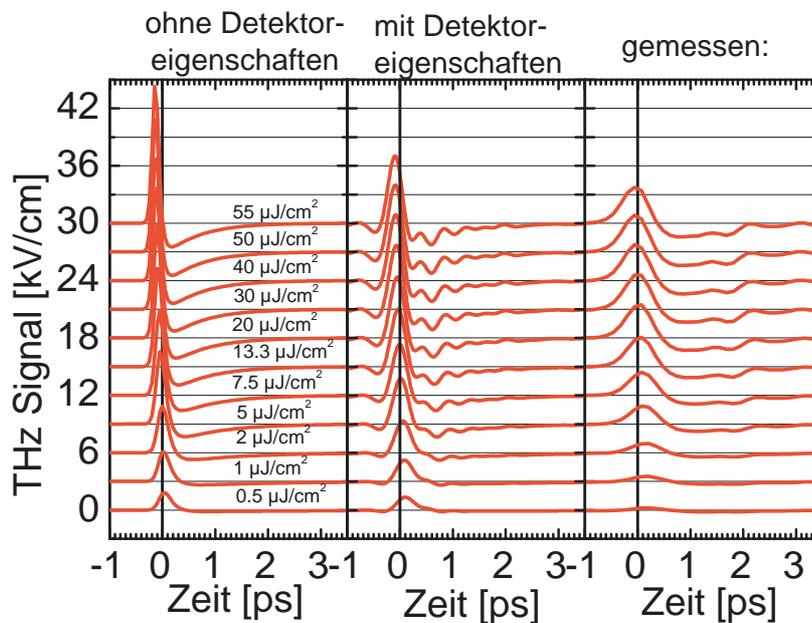


Abbildung 3.15.: Vergleich der modellierten und der gemessenen THz-Signalform im Zentrum des Brennpunkts für verschiedene Laserpulsenergiedichten bei Beleuchtung von 9 cm^2 des Emitters und Fokussierung auf den Detektor mit $f_{det} = 12 \text{ cm}$.

am ehesten durch Abweichungen der experimentell vorliegenden Laser-Pulsform von dem angenommenen gaußförmigen Verlauf erklärt werden.

Das zweite Detail, welches von dem in dieser Arbeit vorgestellten Modell nicht genau beschrieben wird, ist das Verhalten der Werte für das Signalmaximum bei extrem hohen Laserpulsenergiedichten. Ab Werten von mehr als $50 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ zeigen die experimentell beobachteten maximalen Feldstärken sogar einen leichten Abfall mit steigender Laserpulsenergiedichte. Dieses Verhalten ist auch in anderen Arbeiten beobachtet worden [65]. Allerdings konnten auch diese Arbeit das Verhalten nicht erklären. Eine mögliche Erklärung für das Versagen des hier dargestellten Modells in diesem Punkt ergibt sich auf Grund der Tatsache, dass in dem Modell eine phasengleiche Erzeugung des gleichen zeitlichen THz-Signals an allen Stellen des Emitters angenommen wurde. In der Realität ist dieses natürlich nicht der Fall, da der Emitter ja mit einer gaußförmigen Energiedichteverteilung beleuchtet wird, und da (wie in Abb. 3.9 (c) und(d) dargestellt) die erzeugte THz-Signalform deutlich von der Laserpulsenergiedichte abhängt. Dieses wird zu einer teilweisen Auslöschung der Signale am Ort des Detektors (also im Zentrum des erzeugten Brennpunktes) führen. Neuere Messungen von Hasegawa et al. [66] deuten allerdings darauf hin, dass das Absinken des Signals bei höherer Laserpulsenergien auf räumlich inhomogene Abschirmeffekte auf Grund von einer initialen Ladungsträgerverschiebung zurückzuführen sind. Die Messungen von Hasegawa et al. zeigen, dass die THz-Emission bei hohen Laserpulsenergien nur noch im Randbereich des beleuchteten Bereichs erfolgt, da das externe Feld im Zentrum des Emitters bereits zu Beginn der THz-Emission nahezu vollständig durch Ladungsträgerverschiebung abgeschirmt ist. Eine solche initiale Ladungsträgerverteilung kann entweder auf Grund eines vom Lasersystem erzeugten Vorpulses oder durch eingefangene Ladungsträger (die nach dem letzten THz-Emissionsvorgang keine Rekombinationspartner gefunden haben) verursacht werden. Die Summe der von den verschiedenen Bereichen des Emitters abgestrahlten THz-Signale, welche ja letztendlich detektiert wird, ist dann auf Grund der nahezu vollständig wegbleibenden Emission im Zentrum des Emitters reduziert. Das in dieser Arbeit vorgestellte Modell, welches keine Ortsabhängigkeit in der Abschirmung durch Ladungsträgerverschiebung beinhaltet, kann daher das beobachtete Absinken der THz-Amplitude bei hohen Laserpulsenergien nicht beschreiben.

In der spektralen Darstellung der erzeugten Gesamtenergie in Abb. 3.17 (links) erkennt man, dass von dem großflächigen GaAs-Emitter im wesentlichen nur Frequenzkomponenten im Bereich von unterhalb 250 GHz emittiert werden. Dieses liegt daran, dass die Dynamik der Ladungsträger, welche für die THz-Erzeugung verantwortlich ist, bei der verwendeten hohen Anregungsdichte durch Abschirmeffekte begrenzt ist. Auf Grund der besseren Fokussierbarkeit der hohen Frequenzkomponenten liegt die spektrale Flächenenergiedichte im Brennpunkt im Bereich von 100 GHz bis 1,5 THz. Dieses ist deutlich niederfrequenter als das vom ZnTe-Emitter erzeugte Spektrum. Die modellierte detektierbare spektrale Energiedichte (vgl. Abb. 3.17 (rechts)) stimmt qualitativ gut mit dem experimentell ermittelten Spektrum überein. Der Unterschied in der absoluten Größenordnung liegt, wie schon erwähnt, vermutlich im wesentlichen an nicht berücksichtigten Verlusten im THz-Strahlpfad. Beim Vergleich der Spektren für unterschiedliche Anrege-Laserpulsenergien fällt in den modellierten und den experimentell ermittelten Spektren auf, dass sich das Spektrum für höhere Laserpulsenergien leicht zu höheren Frequenzen hin verschiebt. Dieses ist dadurch zu erklären, dass für höhere Anregungsdichten die maximal mögliche THz-Feldstärke am Ort des Emitters auf immer kürzeren Zeitskalen erreicht wird. Damit nimmt der Anteil an höheren erzeugten Frequenzkomponenten zu.

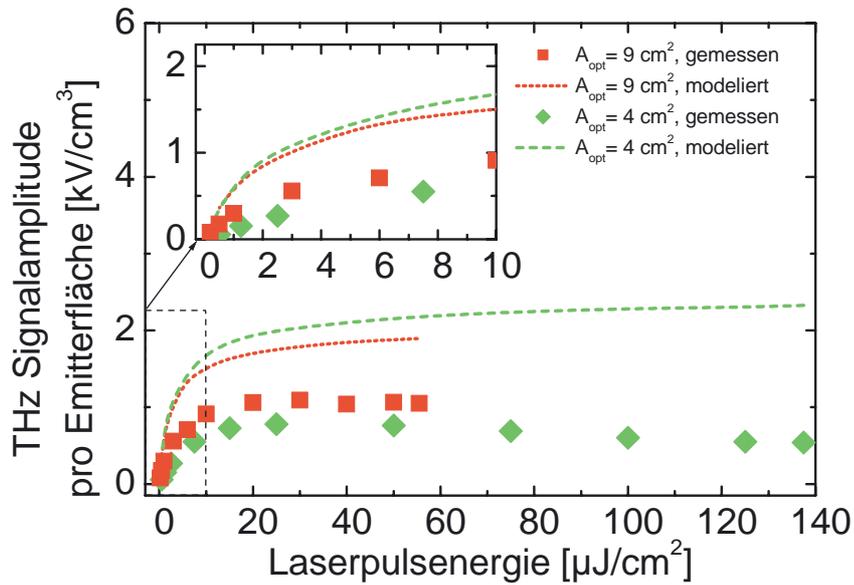


Abbildung 3.16.: Gemessene und numerisch berechnete maximale THz-Feldstärke im Zentrum des Brennpunktes bei einer angenommenen Brennweite des auf den Detektor fokussierenden Elements von $f_{\text{det}} = 5 \text{ cm}$. (Die Daten bei $A_{\text{opt}} = 4 \text{ cm}^2$ wurden mit $f_{\text{det}} = 5 \text{ cm}$ gemessen. Die Daten bei $A_{\text{opt}} = 9 \text{ cm}^2$ wurden mit dagegen mit $f_{\text{det}} = 12 \text{ cm}$ gemessen und auf $f_{\text{det}} = 5 \text{ cm}$ umgerechnet.)

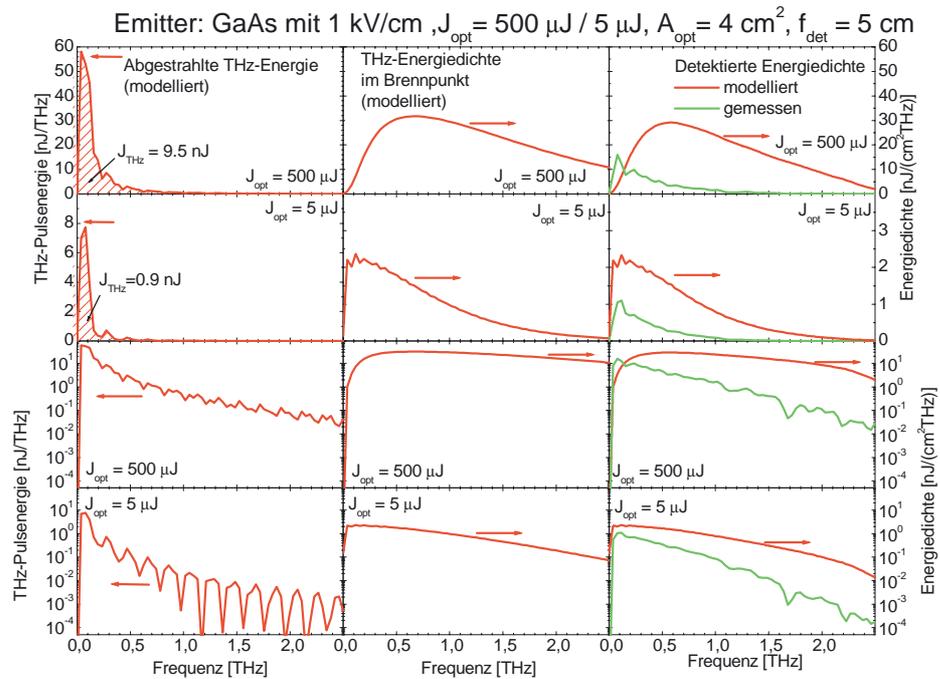


Abbildung 3.17.: Darstellung der spektralen Dichte der am Ort des GaAs-Emitters erzeugten THz-Gesamtenergie (links), sowie der im Brennpunkt erzeugten (Mitte) und der detektierten (rechts) spektralen Flächenenergiedichte der THz-Signale in linearer (obere zwei Zeilen) und logarithmischer (untere zwei Zeilen) Darstellung. In der Modellierung der detektierten Flächenenergiedichte (rechts) ist im Vergleich zur Modellierung der erzeugten Flächenenergiedichte (Mitte) die spektrale Empfindlichkeit des Detektors berücksichtigt. Zum Vergleich ist rechts auch die spektrale Flächenenergiedichte des gemessenen Pulses dargestellt. Die Spektren sind für den GaAs-Emitter mit $A_{opt} = 4 \text{ cm}^2$, $E_{ext} = 1 \text{ kV/cm}$ und $J_{opt} = 500 \mu\text{J}$ (1. und 3. Zeile) bzw. $J_{opt} = 5 \mu\text{J}$ (2. und 4. Zeile) dargestellt.

4. Einführung in die THz-Erzeugung mittels lasergenerierter Plasmen

Durch die Fokussierung von intensiven ultrakurzen Laserpulsen in einem Gas können leicht elektrische Feldstärken in einer Größenordnung erzeugt werden, die ausreichen, ein Medium zu ionisieren und so ein Plasma zu erzeugen. Dieser Vorgang ist gekennzeichnet durch ein Zusammenspiel von lokalen Effekten wie der Photoionisierung und der darauf folgenden Plasmarekombination einerseits und einer deutlichen Beeinflussung der räumlichen Strahlausbreitung durch die Anwesenheit des Plasmas andererseits. Es ist unerlässlich, diese beiden Effekte im Zusammenspiel zu betrachten. Die Diskussion des zeitlichen Verlaufs der lokalen Plasmadichte ausgehend von der zeitabhängigen Intensität stellt den Inhalt des Unterkapitels 4.1 dar. Danach werden die Strahlausbreitung im Vakuum (Kap. 4.2) bzw. in Anwesenheit des erzeugten Plasmas (Kap. 4.3) betrachtet und jeweils das Plasmavolumen, der relative Ionisierungsgrad und die maximal erreichte Intensität abgeschätzt.

In Kapitel 4.4 wird noch die Strahlausbreitung und die Fokussierung der THz-Strahlung ausgehend vom relativ zur THz-Wellenlänge nahezu punktförmigen Plasmaemitter diskutiert. Dieses ermöglicht die Bestimmung der THz-Signalform am Ort des Detektors, ausgehend von einer raumzeitlichen Polarisierung innerhalb des Plasmas. Damit werden in Kapitel 4 die wesentlichen Voraussetzungen zur Beschreibung der entsprechenden Experimente in den Kapiteln 5 und 6 geschaffen.

In Kapitel 4.5 wird dann noch der Stand der Technik im Bereich der Erzeugung von Terahertzstrahlung in lasererzeugten Plasmen dargestellt.

4.1. Lokale Erzeugung eines Gas-Plasmas mittels Photoionisierung

In diesem Kapitel sollen für einen räumlich eng begrenzten Volumenbereich die Photoionisierung als Funktion der optischen Intensität und die nachfolgende Plasmarekombination betrachtet werden. Ziel der Darstellung ist es, für eine gegebene Gassorte und einen angenommenen zeitlichen Verlauf der optischen Intensität den zeitlichen Verlauf des Ionisierungsgrades (d.h. der Plasmadichte relativ zur Teilchendichte) zu beschreiben. Damit werden die Voraussetzungen zur Beschreibung der raumzeitlichen Plasmaausbildung in Kapitel 4.3 geschaffen. Die Behandlung der Photoionisierung erfolgt im Weiteren in zwei Schritten. Zunächst werden in Kap. 4.1.2 für den quasistatischen Fall (also für eine zeitunabhängige optische Intensität) mögliche Modelle bzw. anschauliche Ionisierungsmechanismen und dazugehörige Ionisierungsraten diskutiert. Nach einer kurzen Betrachtung der Plasmarekombination in Kap. 4.1.3 wird dann in Kap. 4.1.4 für den dynamischen Fall (also eine zeitabhängige Intensität) die zeitliche Entwicklung des relativen Ionisierungsgrades, also der Plasmadichte relativ zur Moleküldichte, diskutiert. Dabei soll insbesondere für die entsprechenden Parameter die Intensitätsschwelle I_{ion} bestimmt werden, oberhalb der ein signifikanter Ionisierungsgrad (d.h. ca. 25 %) des Mediums erreicht wird. Zuletzt werden die theoretischen Daten dann noch mit experimentell gewonnenen Intensitätsschwellen verglichen.

4.1.1. Vorbemerkungen zur Photoionisierung von Gasmolekülen

a) Einfluss von Ionisierungsenergie und Gassorte

In der vorliegenden Arbeit wird im Rahmen der Photoionisierung nur die einfache Ionisierung von Atomen und Molekülen, also die Entfernung eines einzelnen Elektrons pro Teilchen, behandelt. Das Auftreten von Mehrfachionisierung kann für die hier durchgeführten Experimente insofern vernachlässigt werden, als einerseits die experimentell beobachteten Intensitätsschwellen für Doppelionisierung etwa 2-3 mal höher liegen [67, 68, 69, 70, 71, 72] als vergleichbare Werte für einfache Ionisierung und andererseits die maximal auftretenden Intensitäten auf Grund von Plasmadefokussierung (vergl. Kap. 4.3) auf Werte knapp oberhalb (ca. 30 %) der Intensitätsschwelle für einfache Ionisierung begrenzt sind.

Wie in Kapitel 4.1.5 noch genauer dargestellt wird, hängt die Ionisierungswahrscheinlichkeit und damit die Intensitätsschwelle für die nahezu vollständige einfache Ionisierung des Gasvolumens im wesentlichen nur von der Ionisierungsenergie der jeweiligen Atom- oder Molekülsorte ab. Darüber hinaus findet man in theoretischen Modellen teilweise Korrekturfaktoren für die genaue Form des atomaren Potentials [73, 67], die jedoch insbesondere auf die Intensitätsschwellen nur einen sehr geringen Einfluss haben. Wie in Ref. [74] dargestellt ist, gilt diese Aussage auch noch für einfache zweiatomige Moleküle wie z.B. Stickstoff, da dessen numerisch berechnetes elektrostatisches Potential z.B. vergleichbar mit dem von einatomigem Xenon ist. Erst für komplexere Moleküle wie z.B. Benzol (C_6H_6) treten auch bei vergleichbarer Ionisierungsenergie deutliche Abweichungen bei den zu erwartenden Ionisierungsraten und damit auch bei den Intensitätsschwellen für signifikante Ionisierung auf [74].

Im Zusammenhang mit den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde entweder Laborluft oder reines Stickstoff- bzw. Argongas mittels intensiver Laserpulse ionisiert. Dabei konnte keinerlei Einfluss der Gassorte auf die Ergebnisse festgestellt werden. Für die Hauptkomponenten von Luft (79 % Stickstoff, 20 % Sauerstoff) betragen die Ionisierungsenergien 15.6 eV für N_2 bzw. 12.1 eV für O_2 [75]. Der mittlere Wert der Ionisierungsenergie von Luft liegt also recht nahe an dem Wert für reinen Stickstoff. Der Wert für die Ionisierungsenergie von Argon ist mit 15.76 eV praktisch identisch mit dem von Stickstoff. Damit ist zu erwarten, dass sich die drei Gassorten bezüglich ihrer Ionisierbarkeit nicht wesentlich unterscheiden, da es sich jeweils um Atome bzw. zwei-atomige Moleküle ähnlicher Ordnungszahl und vor allem mit ähnlicher Ionisierungsenergie handelt. Die Abweichungen, welche sich in der Ionisierbarkeit von Luft relativ zu der von Stickstoff bzw. Argon auf Grund der leicht abweichenden Ionisierungsenergie des Sauerstoffs ergeben, sollten auf Grund des vergleichsweise niedrigen Sauerstoffgehalts von 20 % nicht wesentlich sein. Aus diesem Grund, wird für die theoretische Diskussion der Photoionisierung in diesem Kapitel eine Ionisierungsenergie von 15,6 eV angenommen, welche als repräsentativ für Argon, Stickstoff und Luft angesehen werden kann. Die auf dieser Grundlage ermittelte Intensitätsschwelle für signifikante Ionisierung wird dann in der vorliegenden Arbeit als repräsentative Basis für die Modellierung der Terahertz-Emission aus lasererzeugten Plasmen verwendet. Zusätzlich soll auch noch die Ionisierbarkeit von Wasserstoff mit einer Ionisierungsenergie von 13,6 eV diskutiert werden, da für das Wasserstoffatom exakte quantenmechanische Lösungen möglich sind und daher umfangreiche theoretische und experimentelle Arbeiten vorliegen.

b) Einfluss der ponderomotiven Energie auf die Ionisierbarkeit

Im Fall der Ionisierung mittels intensiver optischer Strahlung befindet sich das erzeugte freie Elektron nach dem Ionisierungsprozess nicht im feldfreien Raum, sondern ist dem optischen Strahlungsfeld ausgesetzt. Die oszillatorische Energie, die ein Elektron im elektromagnetischen Wechselfeld besitzt, wird als ponderomotive Energie bezeichnet und ist gegeben durch [67, 70, 76, 77]:

$$U_{pon} = \frac{e^2 (E_{opt}^0)^2}{4m_e \omega_{opt}^2}. \quad (4.1)$$

Für Intensitäten in der Größenordnung von 10^{14} W/cm² (also bei der Ionisierungsschwelle) liegt die ponderomotive Energie in der Größenordnung von einigen eV. Die Frage, ob die ponderomotive Energie bei der Photoionisierung eine zusätzlich Potentialbarriere darstellt und zu der Ionisierungsenergie hinzugerechnet werden muss, wird in der Literatur kontrovers diskutiert. Folgt man der Argumentation aus Ref. [67, 78], so kann das Elektron zunächst die durch das Ionisierungspotential gegebene Barriere überwinden und erreicht einen Zustand im Kontinuum. Das Elektron bleibt aber so lange an die Umgebung des Ions gebunden, bis es in einem zweiten Schritt die Energie zum Überwinden der Potentialbarriere des ponderomotiven Potentials gewinnt. Da hierfür aber deutlich weniger Energie als zur Ionisierung nötig ist, ist die Ionisierungswahrscheinlichkeit in diesem Bild nur von der Ionisierungsenergie, nicht aber vom ponderomotiven Potential abhängig. Diese Argumentation wird gestützt von den experimentellen Beobachtungen aus Ref. [79], nach denen nur für zirkular polarisiertes Licht, nicht aber für linear polarisiertes Licht ein deutlicher Einfluss des ponderomotiven Potentials beobachtet wurde.

Nach der Argumentation von Ref. [80] spielt das ponderomotive Potential im Grenzfall von kurzen Laserpulsen mit Pulslängen kleiner als 1 ps keine Rolle, da das Elektron in diesem Zeitraum das Interaktionsvolumen (mit dem Ion) nicht verlassen kann und so keine Zeit hat, vom optischen Feld beschleunigt zu werden.

Im Gegensatz dazu argumentieren S.L. Chin et al. [69] anhand von experimentellen Daten, dass auch im letzteren Fall eine deutliche Verschiebung des effektiven Potentials auf Grund des ponderomotiven Potentials auftritt, obwohl die experimentellen Daten mit Laserpulsen von weniger als 1 ps Länge gewonnen wurden. Auch in Ref. [71] wird das ponderomotive Potential berücksichtigt.

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente bzw. für die hier dargestellten Modelle ist die Frage, ob das ponderomotive Potential zu berücksichtigen ist, verhältnismäßig unbedeutend, da sich eine Berücksichtigung allenfalls in einer leichten Verschiebung der Intensitätsschwelle für einen signifikanten Ionisierungsgrad ausdrücken würde. Da bei der Bestimmung dieser Intensitätsschwelle sowohl auf Basis experimenteller als auch auf Basis theoretischer Arbeiten ohnehin eine große Unsicherheit besteht, ist auch die Frage nach einer Berücksichtigung des ponderomotiven Potentials hier nicht weiter von Belang.

Definition der Ionisierungswahrscheinlichkeit

Bevor im nächsten Unterkapitel die verschiedenen Mechanismen der Photoionisierung näher vorgestellt werden, ist es zunächst sinnvoll, die Ionisierungsrate¹ w_{ion} zu definieren:

¹Gelegentlich findet man auch den Ausdruck „Ionisierungswahrscheinlichkeit“.

Die Ionisierungsrate w_{ion} gibt an, wie oft pro neutralem Teilchen und pro Zeiteinheit ein Ionisierungsprozess stattfindet. Anders ausgedrückt ist damit $1/w_{ion}$ die charakteristische Zeit, nach der statistisch gesehen für ein neutrales Teilchen ein Ionisierungsprozess erfolgt.

Die Ionisierungsrate w_{ion} hängt im wesentlichen von der optischen Intensität I_{opt} , der optischen Wellenlänge λ_{opt} und von der Ionisierungsenergie U_{ion}^0 des Moleküls ab.

4.1.2. Mechanismen der Photoionisierung von Gasmolekülen

Die Ionisierung eines Atoms oder Moleküls durch optische Strahlung ist ein physikalischer Prozess, zu dessen Beschreibung letztendlich eine vollständig quantenmechanische Beschreibung des Atoms bzw. des Moleküls und der optischen Welle notwendig ist. Zur anschaulichen Beschreibung sind vereinfachend dazu im wesentlichen drei verschiedene physikalische Modelle vorgeschlagen worden:

- Mehrphotonenionisierung
- Tunnelionisierung
- „Über-Barrieren“-Ionisierung²

Bei der Mehrphotonenionisierung werden gleichzeitig mehrere Photonen absorbiert, deren Gesamtenergie ausreicht, um die Ionisierungsenergie des Atoms oder Moleküls zu überwinden. Bei der Tunnelionisierung kann ein Elektron die Potentialbarriere, welche sich auf Grund der Verbiegung des Bindungspotentials durch das äußere elektrische Feld der optischen Strahlung ergibt, durchtunneln. Von „Über-Barrieren“-Ionisierung spricht man dann, wenn das äußere Feld, und damit die Verbiegung so stark ist, dass das Elektron die Potentialbarriere einfach überwinden kann. Dieses ist gleichbedeutend mit der Bedingung, dass die durch das äußere Feld hervorgerufenen Kräfte stärker als die Bindungskräfte sind.

Welches der drei genannten Modelle am geeignetsten ist, die Ionisierung eines Gases mit optischer Strahlung zu beschreiben, hängt neben den Eigenschaften des Gases (hier geht im wesentlichen nur die Ionisierungsenergie ein) von der optischen Intensität und der Wellenlänge ab. Es sei allerdings an dieser Stelle ausdrücklich darauf hingewiesen, dass es auch „kritische“ Parameterbereiche gibt, in denen zwei oder auch alle drei Modelle gleichermaßen geeignet erscheinen, die Ionisierung zu beschreiben.

Im folgenden soll zunächst dargestellt werden, für welche Parameter welche Ionisierungsmechanismen vorliegen bzw. wo die entsprechenden Übergangsbereiche liegen.

Für Intensitäten, die oberhalb einer bestimmten Schwelle liegen, wird unabhängig von der optischen Wellenlänge „Über-Barrieren“-Ionisierung dominieren. Diese Intensitätsschwelle³ I_{ABI} , oberhalb der „Über-Barrieren“-Ionisierung vorliegt, kann man einfach klassisch berechnen [70, 81]. Dazu betrachtet man zunächst das Potential des Atoms $\Phi_{Atom}(x)$ mit angelegtem äußerem optischen Feld E_{opt} als Funktion des Abstandes x zwischen Atomkern und Elektron. Dieses ist gegeben durch

$$\Phi_{Atom}(x) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e}{x} - E_{opt} \cdot x. \quad (4.2)$$

²In der englischsprachigen Literatur findet man die Begriffe „above barrier ionisation“, „barrier suppression ionisation“ oder „above threshold ionisation“.

³ I_{ABI} von engl. „above barrier ionisation“

Die Position des Maximums x_{max} von $\Phi_{Atom}(x)$ findet man einfach durch Setzen von

$$\frac{\partial \Phi_{Atom}(x)}{\partial x} = 0. \quad (4.3)$$

Durch Gleichsetzen der Energie des Elektrons ($e \cdot \Phi_{Atom}(x_{max})$) an der Position x_{max} mit der ersten Ionisierungsenergie U_{ion}^0 erhält man die kritische Feldstärke

$$E_{ABI} = \frac{\pi \epsilon_0 (U_{ion}^0)^2}{e^3} \quad (4.4)$$

bzw. die Schwelle für die mittlere optische Intensität I_{ABI} oberhalb der „Über-Barrieren“-Ionisierung stattfindet:

$$\begin{aligned} I_{ABI} &= \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 E_{ABI}^2 \\ &= \frac{\pi^2 \epsilon_0^3 c_0 (U_{ion}^0)^4}{2e^6}. \end{aligned} \quad (4.5)$$

Ausgehend von einer Ionisierungsenergie von 15,6 eV ergibt sich damit eine wellenlängenunabhängige Intensitätsschwelle für „Über-Barrieren“-Ionisierung von $2,37 \cdot 10^4 \text{ W/cm}^2$.

Unterhalb dieser Intensitätsschwelle für „Über-Barrieren“-Ionisierung liegt je nach Wellenlänge entweder erst Tunnel- und dann für noch niedrigere Intensitäten Multiphotonenionisierung vor, oder der Übergang erfolgt für niedrige Wellenlängen (also hohe Photonenenergien) direkt in das Mehrphotonenregime.

Ein umfangreiches Modell zur Beschreibung von Mehrphotonen- und Tunnelionisierungsraten wurde 1965 von L.V. Keldysh entwickelt [73]. Dabei wird der Übergang vom Mehrphotonen- in das Tunnelregime durch den sogenannten „Keldysh“-Parameter [67, 73] beschrieben:

$$\gamma = \omega_{opt} \frac{\sqrt{2m_e U_{ion}^0}}{eE}. \quad (4.6)$$

Mehrphotonen-Ionisierung dominiert in Bereichen, in denen γ sehr viel größer als eins ist. Für $\gamma \ll 1$ dominiert dagegen Tunnelionisierung. Dieses ist so zu verstehen, dass ja Tunnel-Ionisierung ein feldgetriebener Prozess ist, und daher die Tunnelwahrscheinlichkeit wellenlängenunabhängig ist. Mehrphotonenionisierung ist dagegen ein energiegetriebener Prozess, so dass Abhängig von der Photonenenergie unterschiedlich viele Photonen zu Ionisierung benötigt werden. Da die Ionisierungswahrscheinlichkeit ja stark von der Anzahl der benötigten Photonen abhängt, wird je nach Wellenlänge entweder Tunnel- oder Mehrphotonenionisierung dominieren.

In Abb. 4.1 sind die jeweils in den entsprechenden Intensitäts- und Wellenlängenbereichen dominierenden Ionisierungsmechanismen ausgehend von einer Ionisierungsenergie von 15,6 eV (also z.B. für Argon- bzw. Stickstoffmoleküle) gekennzeichnet. Dabei ist allerdings zu beachten, dass die Übergangsbereiche nicht, wie in der Darstellung suggeriert, abrupt erfolgen. Genaugenommen stellen die Übergänge Bereiche dar, in denen eine physikalisch Interpretation in Form eines einzelnen anschaulichen physikalischen Modells für den Ionisierungsmechanismus nicht mehr möglich ist und eine vollständige (d.h. von Atom und optischer Strahlung) quantenmechanische Beschreibung des Problems nötig ist.

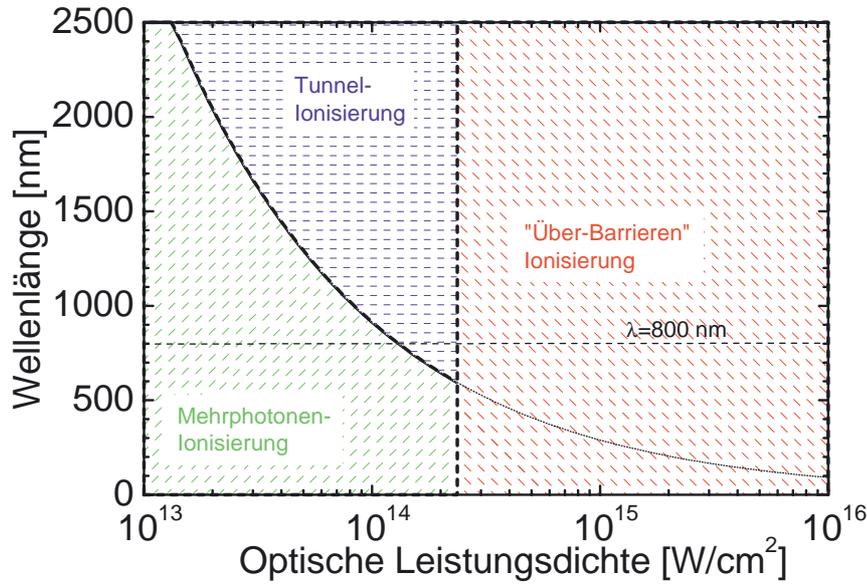


Abbildung 4.1.: Graphische Darstellung der Parameterbereiche, in welchen für unterschiedliche optischen Intensitäten bzw. Wellenlängen und für Moleküle bzw. Atome mit einer Ionisierungsenergie von etwa 15,6 eV (wie z.B. Stickstoff oder Argon) die verschiedenen Ionisierungsmechanismen vorliegen.

Nachdem nun für den quasistatischen Fall Kriterien aufgezeigt wurden, die geeignet erscheinen in Abhängigkeit von Intensität und Wellenlänge die Ionisierungsmechanismen zu identifizieren, soll nun für die einzelnen Bereiche die Ionisierungsrate $w_{ion}(I_{opt})$ näher diskutiert werden.

Eine exakte quantenmechanische Beschreibung der Ionisierungsraten im Intensitätsregime für „Über-Barrieren“-Ionisierung durch numerisches Lösen der zeitabhängigen Schrödinger-gleichung ist bisher erst für Wasserstoff und Helium gelungen [82, 83]. Quantenmechanische Näherungsrechnungen findet man für Wasserstoff in [84, 85] und für komplexere Atome in Ref. [86, 87]. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Ionisierungsraten im Intensitätsregime für „Über-Barrieren“-Ionisierung so hoch sind, dass eine quasi vollständige Ionisierung des Gases auf einer Zeitskala in der Größenordnung von gleich oder kleiner eines einzelnen optischen Zyklusses erreicht wird [83].

Im Bereich von Tunnelionisierung kann die Ionisierungsrate auf Basis statischer Tunneltheorie [79] ausgedrückt werden als

$$w_{tunnel} = 4\omega_a \left(\frac{U_{ion}^0}{U_{ion}^H} \right)^{\frac{5}{2}} \left(\frac{E_a}{E_{opt}} \right) \exp \left(-\frac{2}{3} \left(\frac{U_{ion}^0}{U_{ion}^H} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{E_a}{E_{opt}} \right) \right). \quad (4.7)$$

Dabei ist $\omega_a = 4,13 \cdot 10^{16}$ 1/s bzw. $E_a = 5,14 \cdot 10^{11}$ V/m die atomare Frequenz bzw. Feldstärke und $U_{ion}^H = 12,1$ eV ist die Ionisierungsenergie des Wasserstoffatoms.

Im Bereich von Mehrphotonen-Ionisierung kann die Ionisierungswahrscheinlichkeit auf Basis einfacher Störungsrechnung [67] ausgedrückt werden als

$$w_{MPI} = \sigma_{MPI}^{(N)} \cdot I_{opt}^N. \quad (4.8)$$

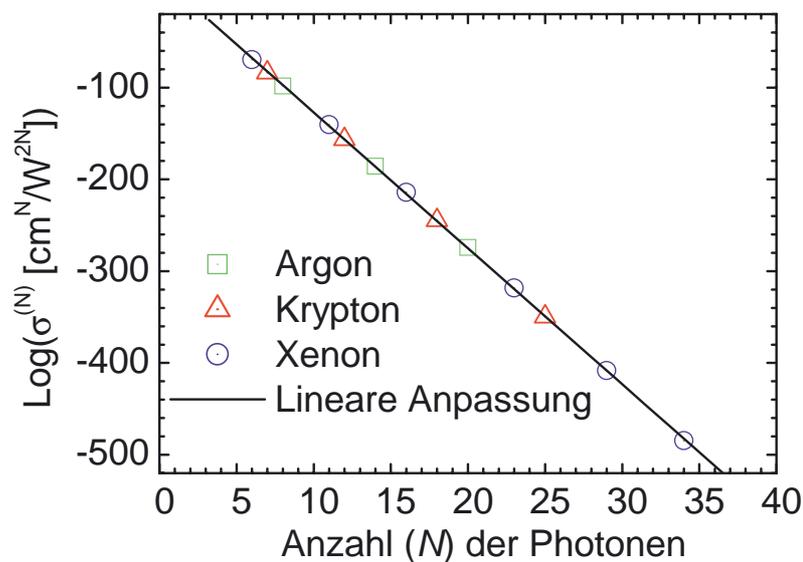


Abbildung 4.2.: Darstellung der für verschiedene Edelgase experimentell bei 586 nm ermittelten Wirkungsquerschnitte aus Ref. [67] als Funktion der Photonenzahl N , welche zum Erreichen der jeweiligen Ionisierungsenergie notwendig ist.

Dabei ist N die Anzahl der Photonen, die mindestens absorbiert werden müssen, um die Ionisierungsenergie zu erreichen, $\sigma^{(N)}$ ist der Wirkungsquerschnitt für die Absorption von N Photonen. Experimentell bei $\lambda_{opt} = 586$ nm bestimmte Wirkungsquerschnitte für Edelgase findet man in Ref. [67]. Die entsprechenden Werte sind in Abb. 4.2 dargestellt. Die lineare Anpassung an die logarithmierten Werte zeigt, dass der Wirkungsquerschnitt nicht von der Atomsorte sondern nur von der Anzahl N der Photonen, welche benötigt werden, um die Ionisierungsenergie zu erreichen, abhängt. Damit ist eine Verwendung der Daten aus Ref. [67] auch für andere Moleküle oder Atome gerechtfertigt. Weiter erlaubt die lineare Anpassung auch die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten für Werte von N , welche nicht direkt in Ref. [67] gegeben sind. Eine Verwendung der Daten für andere Wellenlängen ist jedoch problematisch, da die Wahrscheinlichkeit für die Absorption eines Photons nicht nur von der Intensität, sondern vermutlich auch von der Wellenlänge abhängen wird.

Eine vollständige geschlossene Beschreibung der Ionisierungswahrscheinlichkeiten für die Bereiche, in denen Mehrphotonen- bzw. Tunnelionisierung dominiert, sowie für den Übergangsbereich ermöglicht die von L.V. Keldysh entwickelte „Keldysh“-Theorie. Hier wird die Ionisierungswahrscheinlichkeit ausgedrückt als

$$\begin{aligned}
 w_{Keldysh} &= A\omega_{opt} \left(\frac{U_{ion}^0}{\hbar\omega_{opt}} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right)^{\frac{5}{2}} S \left(\gamma, \frac{U_{ion}(\omega_{opt})}{\hbar\omega_{opt}} \right) \\
 &\quad \times \exp \left(-\frac{2U_{ion}(\omega_{opt})}{\hbar\omega_{opt}} \left(\sinh^{-1}\gamma - \gamma \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{1+2\gamma^2} \right) \right), \\
 \text{mit } U_{ion}(\omega_{opt}) &= V_{ion}^0 + \frac{e^2 E_{opt}^2}{4m_e \omega_{opt}^2}, \\
 S \left(\gamma, \frac{U_{ion}(\omega_{opt})}{\hbar\omega_{opt}} \right) &= \sum_{m=0}^{\infty} \left(\exp \left(-\left(2N - \frac{U_{ion}^0}{\hbar\omega_{opt}} + m \right) \left(\sinh^{-1}\gamma - \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \right) \right) \\
 &\quad \times \Phi \left(\left(\frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \left(N - \frac{U_{ion}^0}{\hbar\omega_{opt}} + m \right) \right)^{1/2} \right), \\
 \text{und } \Phi(x) &= \int_0^x \exp(t^2 - x^2) dt.
 \end{aligned} \tag{4.9}$$

Dabei ist N die Anzahl an Photonen die minimal benötigt wird um ein Atom zu ionisieren und m die erreichte Ionisierungsstufe.

Ionisierungsraten als Funktion der optischen Intensität sind in Abb. 4.3 für Wasserstoff und in in 4.4 für Stickstoff gegeben. Das Beispiel Wasserstoff wurde deshalb gewählt, da hier exakte quantenmechanische Rechnungen vorliegen, bei denen die Ionisierungsraten exakt, durch numerische Lösen der zeitabhängigen Schrödinger-gleichung gewonnen wurden. Solche Rechnungen wurden von Cohen et al. [82] bei 1068 nm für rampenförmig eingeschaltete konstante optische Intensitäten im Bereich von bis zu $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ durchgeführt. Bauer et al. [83] haben auf Basis numerischer Lösungen der zeitabhängigen Schrödinger-gleichung für den Wellenlängenbereich von 35 nm bis hin zu statischen Feldern für verschiedene Pulsformen die Näherungsformel

$$w_{Bauer} = w_a \cdot 2,4 \left(\frac{E_{opt}}{E_a} \right)^2 \tag{4.10}$$

für den Intensitätsbereich von $8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ermittelt. Die Daten auf Basis des Mehrphotonenbildes beruhen auf einem N von 12, welches sich für Wasserstoff mit einer Ionisierungsenergie von 13.6 eV bei 1068 nm ergibt, wobei das ponderomotive Potential nicht berücksichtigt wurde. Als Wirkungsquerschnitt wurde (aus Ermangelung anderer Daten) der entsprechende Wert aus [67] verwendet, obwohl dieser bei 586 nm und nicht bei 1068 nm ermittelt wurde.

Im niedrigen Intensitätsbereich, in welchem man Mehrphotonenionisierung erwartet, zeigt sich, dass das Mehrphotonenmodell und die Keldysh-Theorie zwar gut übereinstimmen, aber die auf Basis exakter quantenmechanischer Rechnungen gewonnenen Daten nur sehr unbefriedigend wiedergeben.

Die Sprünge in der Ionisierungswahrscheinlichkeit im Bereich der Mehrphotonenionisierung treten in den exakten quantenmechanischen Rechnungen nach Cohen et. al auf, da auf Grund des zunehmenden Einflusses des ponderomotiven Potentials ein weiteres Photon zum Erreichen der Ionisierungsenergie nötig ist. Dieses Verhalten wird qualitativ gut durch die Keldysh-Theorie beschrieben. Allerdings sind die absoluten Zahlenwerte für die Ionisierungsraten um mehrere Grö-

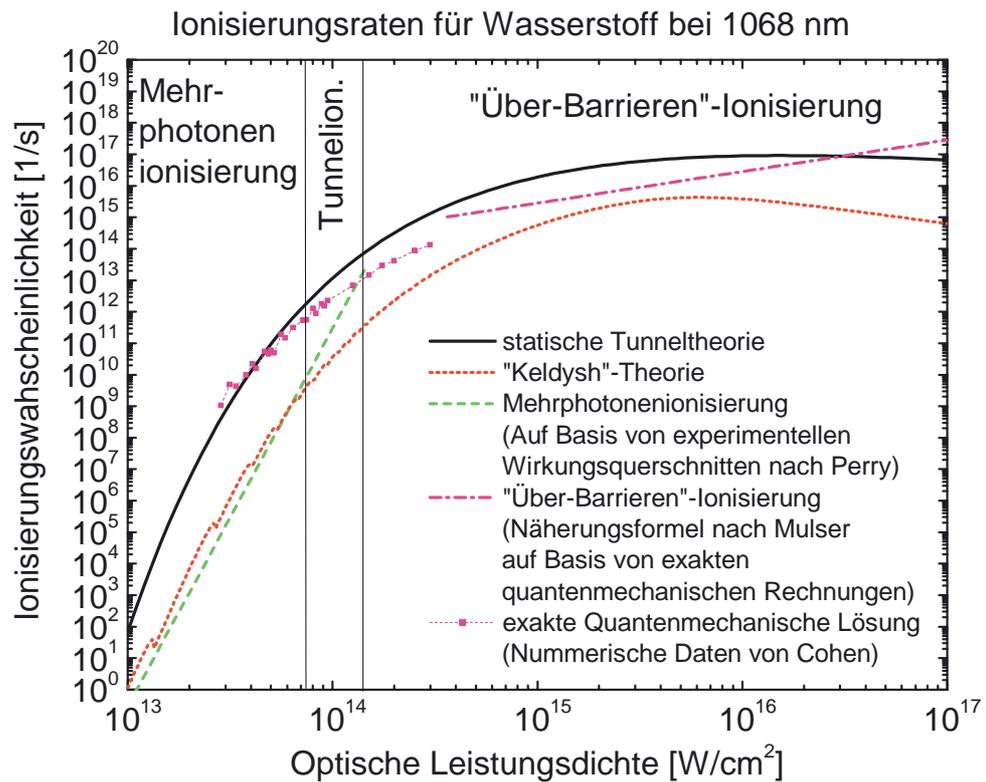


Abbildung 4.3.: Ionisierungsraten von Wasserstoff bei 1068 nm wie sie sich auf Grund exakter quantenmechanischer Rechnungen ergeben. Zum Vergleich sind auch Ionisierungsraten angegeben die sich auf Grund der Keldysh-theorie und nach klassischer statischer Tunnel Theorie ergeben. Ebenfalls dargestellt sind Ionisierungswahrscheinlichkeiten, die sich für den Bereich mit Mehrphotonenionisierung auf Basis von experimentell ermittelten Wirkungsquerschnitten ergeben. (In Ermangelung anderer Daten wurden hier Wirkungsquerschnitte aus Ref. [67] verwendet, die bei 586 nm gewonnen wurden.)

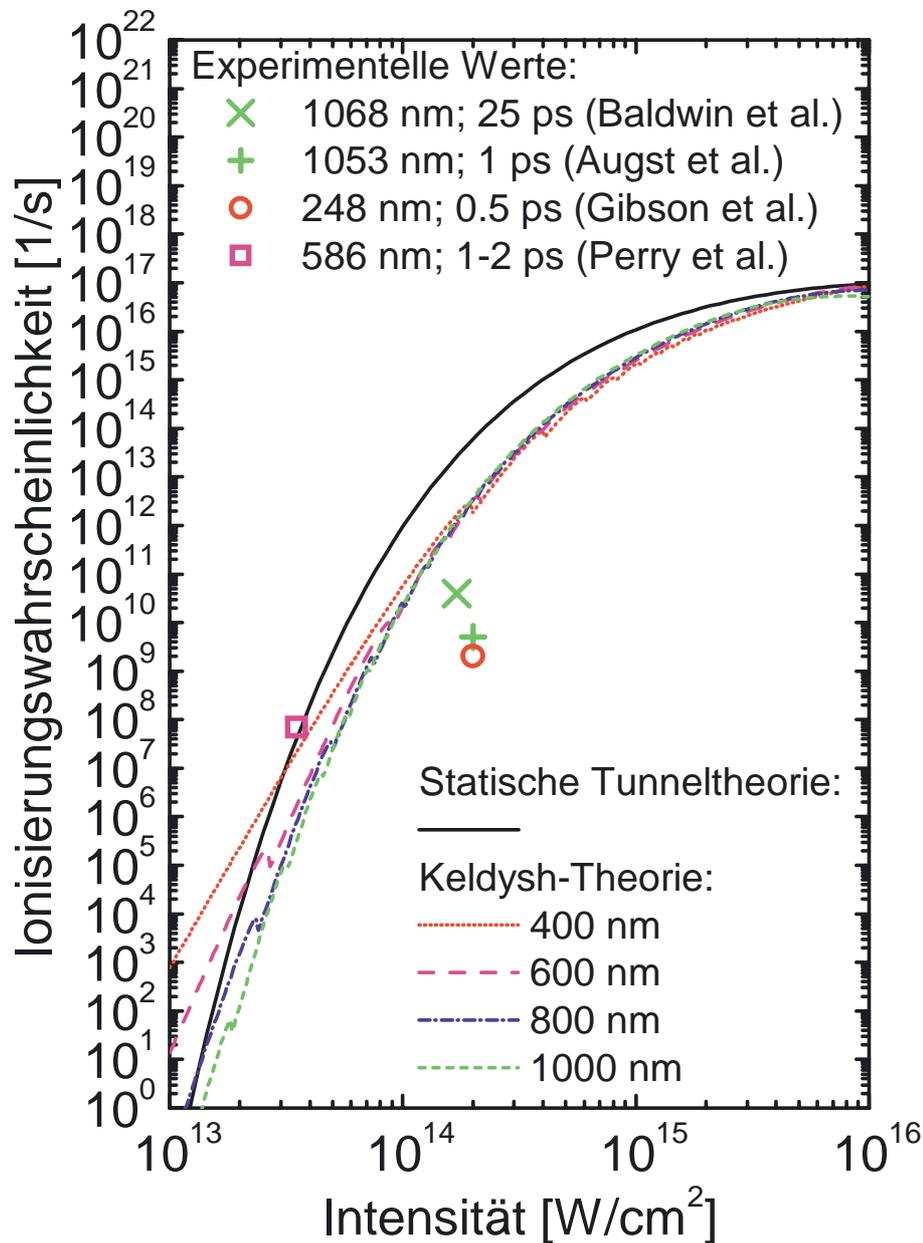


Abbildung 4.4.: Berechnete Ionisierungsraten für Stickstoff mit einer Ionisierungsenergie von 15.6 eV nach Keldysh. Zum Vergleich sind auch Ionisierungsraten angegeben die sich aus einer eindimensionalen statischen Tunneltheorie ergeben. Ebenso sind experimentell ermittelte Ionisierungsraten für Argon mit einer Ionisierungsenergie 15.76 eV angegeben (siehe hierzu Kap. 4.1.5).

Benordnungen, bzw. für die Intensität etwa um den Faktor 3 verschoben.

Ein Vergleich des Mehrphotonenmodells auf Basis von Wirkungsquerschnitten mit dem Keldysh-Modell sowie mit der statischen Tunneltheorie zeigt, dass die exakten quantenmechanischen Ergebnisse erstaunlicher Weise am besten mit der vergleichsweise einfachen klassischen statischen Tunnel Theorie angenähert werden können.

Ionisierungsraten für Gase mit einer Ionisierungsenergie von 15.6 eV (also z.B. Stickstoff oder Argon) sind in Abb. 4.4 für verschiedene Wellenlängen dargestellt. Man erkennt in den nach dem Keldysh-Modell berechneten Daten auch hier die für niedrige Intensitäten im Mehrphotonenregime erwartete I_{opt}^N -Abhängigkeit und die Sprünge in der Ionisierungswahrscheinlichkeit auf Grund des zunehmenden Einflusses des Ponderomotiven Potentials. Erwartungsgemäß sind die Ionisierungsraten im Bereich niedriger Intensitäten, in denen Mehrphotonenionisierung dominiert, stark wellenlängenabhängig, da ja die notwendige Ionisierungsenergie für kürzere Wellenlängen mit weniger Photonen aufgebracht werden kann und der Prozess damit wahrscheinlicher wird. Im Bereich höherer Intensitäten, in dem für alle Wellenlängen Tunnel- bzw. „Über-Barrieren“-Ionisierung dominiert ist keine Wellenlängenabhängigkeit mehr vorhanden. Da jedoch die Daten für Wasserstoff gezeigt haben, dass die statische Tunneltheorie die beste Übereinstimmung mit den exakten quantenmechanischen Rechnungen liefert, ist es zumindest wahrscheinlich, dass auch hier die Tunneltheorie die beste Beschreibung der Ionisierungswahrscheinlichkeit ermöglicht. Daher wurde zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs der Ionisierung in Kap. 4.1.4 und der Strahlausbreitung in Kap. 4.3 der Ausdruck für die Tunnelionisierung nach Gl. 4.7 verwendet.

Zum Vergleich sind in Abb. 4.4 auch experimentell ermittelte Ionisierungswahrscheinlichkeiten, welche in Kapitel 4.1.5 näher diskutiert werden, dargestellt. Zusammenfassend muss allerdings gesagt werden, dass auf Grund der eingeschränkten Gültigkeit der verschiedenen Modelle und der großen Variation in den experimentell ermittelten Ionisierungswahrscheinlichkeiten eine verhältnismäßig große Unsicherheit in der genauen Beschreibung der Ionisierungsraten für Stickstoff bleibt.

4.1.3. Plasma-Rekombination

Nach der Erzeugung des Plasmas wird die Plasmadichte auf Grund von Rekombinationsprozessen wieder abnehmen. Eine umfassende Beschreibung dieses Rekombinationsprozesses würde den Rahmen dieser Arbeit übersteigen, so dass hier nur eine Einführung in das Thema und eine Diskussion derjenigen Teilaspekte erfolgen soll, welche für die im Rahmen der Arbeit durchgeführten Experimente von Bedeutung sind. Eine gute Einführung in das Thema findet man auch in Ref. [88].

Die Plasmadichte kann bei der Rekombination mit folgender Differentialgleichung beschrieben werden:

$$\frac{d}{dt}\rho_{pl}(t) = \alpha_{rc} \cdot \rho_{pl}(t)^2. \quad (4.11)$$

Dabei ist α_{rc} der charakteristische Koeffizient, welcher die Rekombination beschreibt. Die Proportionalität der Rekombinationsrate zu ρ_{pl}^2 kommt daher, dass sowohl die Dichte der Ionen $\rho_{pl}^{(+)}$ als auch die Elektronendichte $\rho_{pl}^{(-)}$ in die Rekombinationsrate eingehen. Da die Diskussion im Rahmen dieser Arbeit auf Plasmen aus einfach ionisierten Teilchen beschränkt bleiben soll, kann man von $\rho_{pl}^{(+)} = \rho_{pl}^{(-)} = \rho_{pl}$ ausgehen.

Mit der Anfangsbedingung $\rho_{pl}(t = 0) = \rho_{pl}^0$ ergibt sich folgende Lösung für den Abfall der Plasmadichte:

$$\rho_{pl}(t) = \frac{1}{\alpha_{rc}t + \frac{1}{\rho_{pl}^0}}. \quad (4.12)$$

Damit ist der Verlauf in zwei Zeitbereiche zu unterteilen. Bis zu einer charakteristischen Zeit $\tau_{rc} = 1/(\rho_{pl}^0 \cdot \alpha_{rc})$ ändert sich die Plasmadichte kaum und bleibt in etwa in der Größenordnung von ρ_{pl}^0 . Für Zeiten, die größer als τ_{rc} sind, verläuft die Plasmadichte dagegen unabhängig von der Ausgangsdichte ρ_{pl}^0 reziprok mit der Zeit und ist gegeben durch:

$$\rho_{pl}(t) = \frac{1}{\alpha_{rc} \cdot t}. \quad (4.13)$$

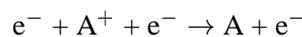
Die Größenordnung von α_{rc} hängt im wesentlichen vom Gasdruck und von der Gassorte ab. Abhängig von diesen Parametern sind für die Rekombination verschiedene Mechanismen verantwortlich.

Für einatomige Gase bei niedrigen Drücken kann die Rekombination nur durch „Strahlungs“-Rekombination erfolgen [88]. Das bedeutet, dass das Elektron vom Coulomb-Potential des Ions eingefangen wird und seine Energie durch strahlende Übergänge verliert. Typische Koeffizienten für „Strahlungs“-Rekombination liegen in der Größenordnung von $\alpha_{rc} = 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ bis $\alpha_{rc} = 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [88].

Für zwei- oder mehratomige Gase ist eine „dissoziative“ Rekombination deutlich wahrscheinlicher als die „Strahlungs“-Rekombination [88, 89, 90]. Dieses bedeutet, dass auf Grund des Energieübertrags vom Elektron auf das ionische Molekül dieses in ein neutrales und ein negativ geladenes Teilstück aufgebrochen wird. Das Elektron rekombiniert dann mit dem negativ geladenen Teilstück. Da bei diesem Prozess ein deutlich besser Impulsübertrag vom Elektron auf das Molekül möglich ist, ist diese Art der Rekombination deutlich wahrscheinlicher als eine „Strahlungs“-Rekombination. Aus diesem Grunde sind die Rekombinationskoeffizienten von zwei- und mehratomigen Gasen mit Werten von $\alpha_{rc} = 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ bis $\alpha_{rc} = 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [88] deutlich größer als die von den einatomigen Edelgasen.

Bei hohen Drücken und relativ zur Teilchendichte niedriger Elektronendichte wird die Rekombination zusätzlich noch durch Drei-Teilchen-Prozesse begünstigt [88, 90]. Dabei verliert das Elektron seine Energie, indem es Vibrationsmoden der neutralen oder ionischen Gasteilchen anregt. Nachdem es auf diese Art seine Energie verloren hat, kann mit sehr viel höherer Wahrscheinlichkeit ein Rekombinationsprozess stattfinden. Dieser Effekt erklärt, dass man bei einer Erhöhung des Drucks zunächst eine Erhöhung des Rekombinationskoeffizienten findet [90]. Erst für extrem hohe Drücke (etwa ab 10 - 100 bar) nimmt dann der Rekombinationskoeffizient auf Grund der reduzierten Elektronenmobilität wieder ab. Der Maximalwert kann dabei Werte von bis zu $\alpha_{rc} = 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ annehmen [90].

Im Rahmen dieser Arbeit ist zwar der Fall von hohen Drücken (≥ 1 bar), aber auch von hohen Elektronendichten (ca. 10^{19} 1/cm^3) relevant. In diesem Parameterbereich ist die Rekombination vollständig durch Elektronenstöße der Form



bestimmt[90]. Der Rekombinationskoeffizient ist dann gegeben durch[90, 91]

$$\alpha_{rc} = 3,8 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^6 \text{ s}^{-1} \text{ K}^{\frac{9}{2}} \cdot \rho_{pl} \cdot T_e^{-\frac{9}{2}}. \quad (4.14)$$

Dabei ist T_e die Elektronentemperatur. Da die Elektron-Elektron Stoßzeit bei der relevanten Plasmadichte etwa 1 - 5 ps beträgt [92], kann man allerdings in einem Zeitraum nach der Anregung, welcher in der gleichen Größenordnung liegt, noch nicht von einer Thermalisierung der Elektronen ausgehen. Die Elektronentemperatur kann aber dennoch formal aus einer experimentell bestimmten Rotverschiebung des Emissionsspektrums bestimmt werden und sollte nach Ref. [92] bei etwa 20 eV bzw. $2,33 \cdot 10^5$ K liegen. Damit würde man nach Gl. 4.14 einen Rekombinationskoeffizient von $\alpha_{rc} = 3,6 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ erwarten. Für die relevanten Plasmadichten von etwa 10^{19} 1/cm^3 würde dieses einer charakteristischen Zeit bis zum Einsetzen eine deutlichen Änderung der Plasmadichte durch Rekombination in der Größenordnung von $100 \mu\text{s}$ entsprechen. Diese Abschätzung würde aber voraussetzen, dass die Elektronentemperatur des Plasmas über diesen Zeitraum unverändert bliebe. Dieses ist sicher unwahrscheinlich, so dass realistisch ein deutlich früheres Einsetzen der Rekombination zu erwarten ist. Andererseits zeigt die Abschätzung aber, dass auf Grund der hohen Elektronentemperatur direkt nach der Anregung auf einer für die THz-Emission relevanten Zeitskala von einigen 10 ps keinerlei Rekombinationseffekte zu erwarten sind.

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass Rekombinationseffekte für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente zur THz-Erzeugung vernachlässigbar sind, da sich diese innerhalb einer Zeitskala von höchstens einer ps abspielen. Andererseits kann davon ausgegangen werden, dass das Plasma auf einer Zeitskala bis zum Eintreffen des nachfolgenden Laserpulses (1 ms) vollständig rekombiniert ist.

4.1.4. Ionisierungsschwellen und der zeitliche Verlauf des Ionisierungsgrades

In diesem Unterkapitel soll nun auf Basis der quasistatischen Ionisierungsraten für eine zeitlich veränderliche optische Intensität der zeitliche Verlauf des relativen Ionisierungsgrades (=Anzahl der ionisierten Moleküle relativ zur Molekülanzahl) ermittelt werden. Dabei soll insbesondere der Fall eines Laserpulses mit einem zeitlich gaußförmigen Intensitätsverlauf und einer gegebenen Pulslänge τ_p sowie einer Spitzenintensität I_{opt}^0 betrachtet werden.

Entsprechend der Definition der Ionisierungswahrscheinlichkeit w_{ion} in Kap. 4.1.1 gilt für die Änderung der Plasmadichte $\rho_{pl}(t)$, also der Anzahl der pro Volumenelement und pro Zeiteinheit erzeugten Elektronen bzw. der ionisierten Teilchen

$$\frac{d}{dt} \rho_{pl}(t) = w_{ion}(I_{opt}(t)) \cdot (\rho_{gas}^0 - \rho_{pl}(t)). \quad (4.15)$$

Dabei ist ρ_{gas}^0 die Teilchendichte im Gas und $\rho_{gas}^0 - \rho_{pl}(t)$ die Teilchendichte neutraler bzw. nichtionisierter Teilchen. Mit der Anfangsbedingung $\rho_{pl}(t \rightarrow -\infty) = 0$ und gegebenem $I_{opt}(t)$ lässt sich die Differentialgleichung numerisch lösen, wenn $w_{ion}(I_{opt})$ bekannt ist.

Im Rahmen dieser Arbeit ist von besonderem Interesse, wie abrupt und bei welcher momentanen Intensität der zeitliche Übergang vom quasi-nichtionisierten Zustand zu einem Zustand mit einem signifikanten Ionisierungsgrad erfolgt, wenn ein Gas einem intensiven optischem Laserpuls mit zeitlich gaußförmigem Verlauf ausgesetzt ist.

Dazu wurde Gleichung 4.15 für einen zeitlichen Verlauf der Intensität mit der Form

$$I_{opt}(t) = I_{opt}^0 \exp\left(-\frac{4 \ln(2) t^2}{\tau_p^2}\right) \quad (4.16)$$

mit einer Pulslänge $\tau_p = 150$ fs (Halbwertsbreite) für verschiedene maximale Intensitäten I_{opt}^0 numerisch gelöst. Für die Ionisierungswahrscheinlichkeit wurde dabei das Ergebnis der statischen Tunneltheorie (Gl. 4.7) verwendet. Das Ergebnis ist in Abb. 4.5 dargestellt. Man erkennt, dass der Übergang für höhere Spitzenintensitäten früher und abrupter erfolgt. Im Vergleich mit dem zeitlichen Intensitätsverlauf erkennt man, dass die nahezu vollständige Ionisierung immer bei etwa der gleichen Intensitätsschwelle erfolgt. Ein Übergang von 10 % auf 90 % Ionisierungsgrad erfolgt etwa in 20-30 fs. Nur wenn die maximale Intensität in der Größe der Intensitätsschwelle ist, erfolgt der Übergang deutlich langsamer. Für noch niedrigere Spitzenintensitäten wird dann nur noch eine teilweise Ionisierung erreicht. Berücksichtigt man weiter, dass die auf Basis der Tunnelionisierungswahrscheinlichkeiten gewonnene Schwellintensität in der gleichen Größenordnung liegt wie die Schwelle für „Über-Barrieren“-Ionisierung, bei der ja der Übergang zu vollständiger Ionisierung innerhalb eines optischen Zyklusses erfolgen sollte, kann man schlussfolgern, dass der Übergang in der Realität noch deutlich abrupter als in Abb. 4.5 dargestellt erfolgt. Im Rahmen dieser Arbeit ist es daher vertretbar, für die Berechnung der THz-Erzeugung in den Kapiteln 5 und 6 einen unendlich scharfen zeitlichen Übergang vom nichtionisierten Zustand zum Zustand mit signifikanter Ionisierung bei einer fixen Schwellintensität anzunehmen.

Zur Bestimmung der Intensitätsschwelle für signifikante Ionisierung wird daher das Erreichen eines signifikanten Ionisierungsgrades im Rahmen dieser Arbeit wie folgt definiert:

Das Erreichen eines signifikanten Ionisierungsgrades wird definiert als das Erreichen einer relativen Ionisierung von etwa 25 %, also der Ionisierung von 25 % aller Teilchen.

Die verhältnismäßig willkürliche Wahl des Wertes von 25 % erklärt sich zum einen dadurch, dass die Ionisierung bei steigender Intensität relativ plötzlich ansteigt, so dass die Wahl des genauen Wertes für den signifikanten Ionisierungsgrad auf den genauen Wert der Intensitätsschwelle nur einen sehr geringen Einfluss hat. Andererseits setzen bei höheren Ionisierungsgraden, wie in Kap. 4.3 dargestellt wird, starke Plasmadefokussierungseffekte ein welche höheren Intensitäten entgegenwirken und den relativen Ionisierungsgrad auf etwa 70 % begrenzen.

Auf Basis der Definition der signifikanten Ionisierung ermittelt man aus Abb. 4.5 unabhängig von der Spitzenintensität eine Intensitätsschwelle von etwa $I_{ion} = 1,5 \cdot 10^{14}$ W/cm². Dieser Wert wird in der vorliegenden Arbeit in den Modellrechnungen zur THz-Emission aus lasergenerierten Plasmen verwendet.

4.1.5. Experimentell bestimmte Intensitätsschwellen für die Ionisierung von Gasen

Ionisierungsraten insbesondere von Edelgasen sind experimentell umfangreich untersucht worden [67, 70, 69, 71, 81, 68, 72]. Dabei besteht die Schwierigkeit in der Auswertung dieser Experimente darin, dass die Ionisierungswahrscheinlichkeit für ein einzelnes Atom oder Molekül nicht direkt experimentell zugänglich ist. Typischerweise wird vielmehr die Anzahl an Ionen bestimmt, die mit einem Laserpuls mit fester Pulslänge für die jeweilige Spitzenintensität erzeugt wird. Um auf Basis dieser Daten eine Ionisierungsschwelle⁴ zu ermitteln, wird dann in den jeweiligen Arbeiten willkürlich eine bestimmte Mindestanzahl an zu erzeugenden Ionen pro Laserpuls definiert. Dieses

⁴In der Literatur wird teilweise statt Ionisierungsschwelle auch der Begriff Sättigungsintensität verwendet, da auf Grund der extrem nichtlinearen Änderung der Ionisierungswahrscheinlichkeit praktisch direkt beim Erreichen der Ionisierungsschwelle auch eine Sättigung in der Art auftritt, dass alle zur Verfügung stehenden Teilchen ionisiert werden,

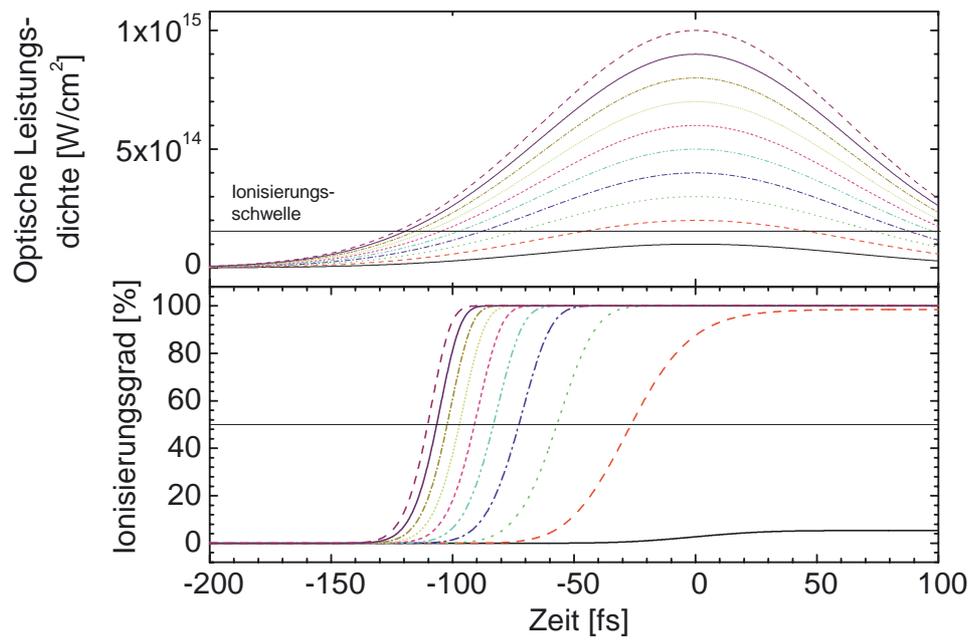


Abbildung 4.5.: Oben: Zeitlicher Verlauf der optischen Intensität. Unten: Auf Basis von eindimensionaler statischer Tunneltheorie berechneter relativer Ionisierungsgrad des Mediums als Funktion der Zeit, jeweils für verschiedene maximale optische Intensitäten.

und zusätzliche experimentelle Unsicherheiten (Kalibrierung des Ionendetektors, Bestimmung des Strahldurchmessers) führt dazu, dass die vorliegenden Daten verhältnismäßig schlecht vergleichbar sind.

In Abb. 4.6 sind experimentell bestimmte Ionisierungsschwellen für Edelgase aus verschiedenen Arbeiten dargestellt. Dabei wurde die Skalierung der Daten der jeweiligen Autoren so gewählt, dass die Ionisierungsschwellen für Ar^+ in der Darstellung überlappen. In der Darstellung erkennt man zunächst, dass die Ionisierungsschwellen erwartungsgemäß mit der Ionisierungsenergie ansteigen. In der Stärke dieses Anstiegs variieren die Daten für unterschiedliche Gassorten und Laserpulsparameter teilweise erheblich. Dieses erklärt sich im wesentlichen dadurch, dass je nach Wellenlänge und mittlerer Intensität (hier geht die Laserpulslänge ein) unterschiedliche Ionisierungsmechanismen dominieren (vergl. Kap. 4.1). Zum Beispiel arbeiten Perry et al. auf Grund der kürzeren Wellenlänge im Mehrphotonenregime. Baldwin et al. operieren dagegen auf Grund der niedrigeren mittleren Leistung eher im Tunnelregime, während Auguste et al. und Augst et al. bei höheren Intensitäten auch das „Über-Barrieren“-Regime erreichen.

Die Tatsache, dass in den einzelnen Arbeiten unterschiedliche Ionisierungsmechanismen dominieren, erklärt auch, dass Perry et al. im Mehrphotonenbereich keine unterschiedlichen Ionisierungsschwellen für verschiedene Gase bzw. Ionisierungsstufen beobachten, während im Tunnel- bzw. „Über-Barrieren“-Regime eine deutliche Variation mit der Gassorte bei höheren Ionisierungsstufen beobachtet wird. Augst et al. erklären dieses Verhalten qualitativ und quantitativ erstaunlich gut mit einer einfachen Berücksichtigung des bei höheren Ionisierungsstufen höheren Coulomb-Potentials in der in Kap. 4.1 dargestellten Herleitung der Ionisierungsschwelle im „Über-Barrieren“-Regime.

Im Rahmen dieser Arbeit stellt sich insbesondere die Frage, inwieweit die in der Literatur vorliegenden experimentellen Daten geeignet sind, die in Kap. 4.1.4 abgeschätzte Ionisierungsschwelle zu bestätigen. Ausgehend davon, dass die in der Literatur bestimmten Intensitätsschwellen gering genug sind, um eine Sättigung (also eine deutliche Reduzierung der nichtionisierten Moleküle bzw. Atome) zu vermeiden, ist eine Bestimmung der absoluten Ionisierungsrate bei der jeweils bestimmten Intensitätsschwelle möglich. Sind nämlich das Brennpunktvolumen und der Gasdruck (und damit die zur Verfügung stehende Zahl an neutralen Atomen bzw. Molekülen) bekannt, lässt sich auch die absolute Ionisierungswahrscheinlichkeit eines Teilchens pro Laserpuls bestimmen. Da man in erster Näherung davon ausgehen kann, dass diese Ionisierungswahrscheinlichkeit pro Laserpuls linear mit der Laserpulslänge skaliert, kann man die Ionisierungsrate w_{on} , also die Ionisierungswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit, einfach bestimmen.

Eine Übersicht über die zur Verfügung stehenden experimentellen Arbeiten und die bei der jeweils berichteten Intensitätsschwelle für einfach ionisiertes Argon ermittelten Ionisierungsraten sind in der in Abb. 4.1.5 dargestellten Tabelle angegeben. Die Daten sind zusätzlich in Abb. 4.4 eingetragen. Dabei fällt auf, dass die experimentellen Werte für die Ionisierungswahrscheinlichkeit noch deutlich stärker variieren, als die nach verschiedenen Modellen gewonnenen theoretischen Daten. Dieses ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass eine genaue Kalibrierung der experimentellen Daten äußerst schwierig ist, da zum einen das Brennpunktvolumen und zum anderen die absolute Sensitivität des Ionendetektors oft nur sehr ungenau bestimmt werden können. Weiter ist die Normierung auf unterschiedliche Laserpulslängen nur eine Näherung, da ja genau genommen eine Lösung der Differentialgleichung wie in Kap. 4.1.4 nötig wäre. Dieses würde aber im Hinblick auf die Auswertung experimenteller Daten voraussetzen, dass der qualitative Verlauf der Ionisierungs-

und so die Zahl der erzeugten Ionen pro Laserpuls nicht durch die Ionisierungswahrscheinlichkeit, sondern durch die Anzahl der zu Verfügung stehenden Teilchen begrenzt wird.

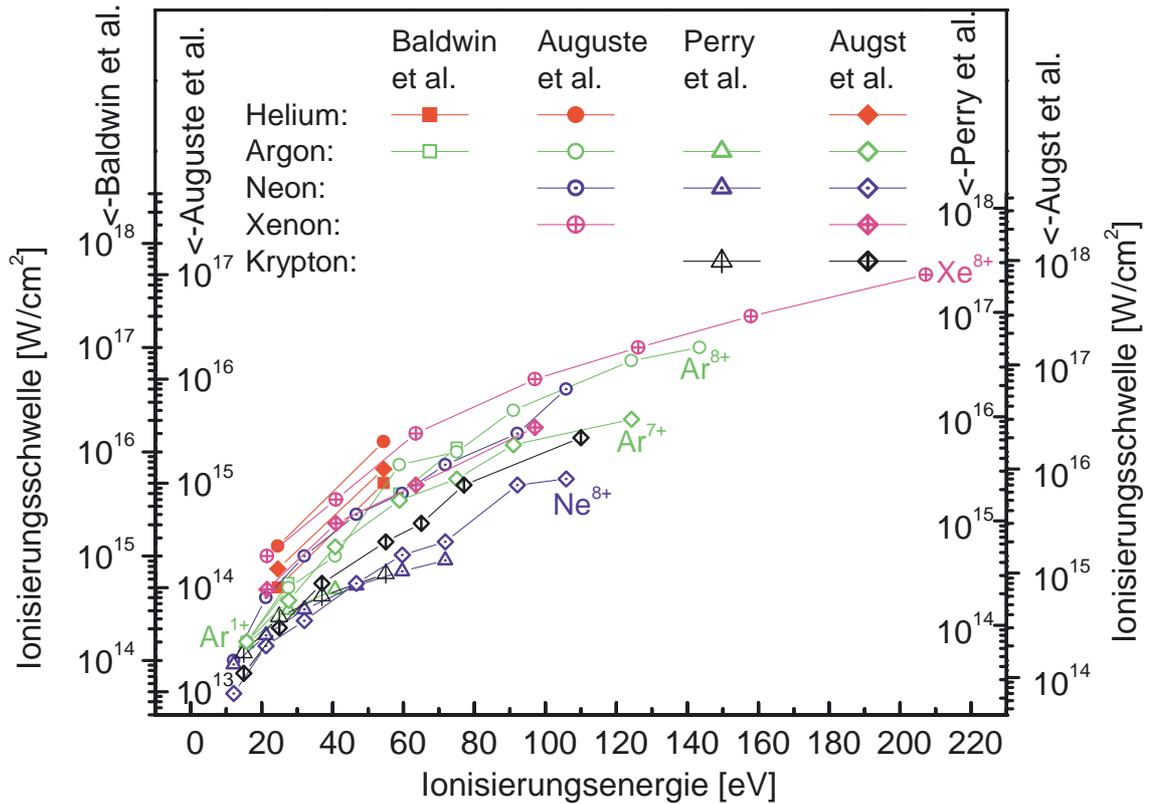


Abbildung 4.6.: In der Literatur berichtete experimentell gewonnene Ionisierungsschwellen von Edelgasen als Funktion der Ionisierungsenergie. Dargestellt ist jeweils die Ionisierungsenergie für verschiedene Ionisierungsgrade (= Anzahl der entfernten Elektronen). Die Skalierung für die Daten der einzelnen Autoren wurde willkürlich so gewählt, dass die Ionisierungsschwellen für Ar^{1+} in der Darstellung überlappen. Die Daten sind aus den folgenden Originalarbeiten entnommen worden, worin die ebenfalls im folgenden angegebenen Laserpulsparameter verwendet wurden: Baldwin et al. [71] $\tau_p = 25 \text{ ps}$, $\lambda_{opt} = 1053 \text{ nm}$; Auguste et al. [81] $\tau_p = 1 \text{ ps}$, $\lambda_{opt} = 1053 \text{ nm}$; Perry et al. [67], $\tau_p = 1\text{-}2 \text{ ps}$, $\lambda_{opt} = 586 \text{ nm}$; Augst et al. [70], $\tau_p = 1 \text{ ps}$, $\lambda_{opt} = 1053 \text{ nm}$.

Autoren	Laserpulsparameter	experimentell ermittelte Grenzzintensität	im der Originalarbeit definierte Bedingung für die Grenzzintensität	berechnete Ionisierungswahrscheinlichkeit bei der Grenzzintensität
Baldwin et al. [71]	1068 nm; 25 ps	$1,7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$	vollständige Ionisierung in 25 ps	$4 \cdot 10^{10} \text{ 1/s}$
Augst et al. [93]	1053 nm; 1 ps	$2,0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$	Ionisierungswahrscheinlichkeit = $5 \cdot 10^{-3}$ in 1 ps	$5 \cdot 10^9 \text{ 1/s}$
Perry et al. [67, 68]	586 nm; 1-2 ps	$3,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$	Ionisierungswahrscheinlichkeit = $1 \cdot 10^{-4}$ in 1-2 ps	$7 \cdot 10^7 \text{ 1/s}$
Gibson et al. [72]	248 nm; 0,5 ps	$2,0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$	Ionisierungswahrscheinlichkeit = $2 \cdot 10^9 \text{ 1/s}$	$2 \cdot 10^9 \text{ 1/s}$

Abbildung 4.7.: Übersicht über die experimentell für einfache Ionisierung von Argon ermittelte Intensitätsschwellen

wahrscheinlichkeit bekannt wäre. Leider ist dieses aber wie zuvor dargestellt nur eingeschränkt gegeben.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Ausbildung eines Plasmas mit einer signifikanten Dichte relativ plötzlich oberhalb einer gewissen Intensitätsschwelle einsetzt. Eine genaue Angabe dieser Intensitätsschwelle ist allerdings schwierig, da sowohl theoretische wie experimentelle Literaturdaten verhältnismäßig stark schwanken. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher im weiteren und insbesondere für die Modellierung der Strahlausbreitung die Ionisierungsrate in Abhängigkeit der optischen Intensität auf Basis statischer Tunneltheorie bestimmt. In Übereinstimmung damit wurde eine Intensitätsschwelle für signifikante Ionisierung (=25 %) auf $1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ festgelegt.

4.2. Plasmavolumen ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten

In diesem Kapitel soll das raum-zeitliche Plasmavolumen im Brennpunkt eines intensiven Laserpulses ausgehend von einer Intensitätsverteilung, wie man sie im Vakuum erwarten würde, bestimmt werden. Obwohl sich in Kap. 4.3 zeigen wird, dass die Intensitätsverteilung und damit auch das Plasmavolumen bei realen Gasdrücken im atmosphärischen Bereich auf Grund von nichtlinearen Brechungsindexeffekten signifikant von der Vakuumintensitätsverteilung abweicht, ist aus didaktischen Gründen zunächst eine Bestimmung des Plasmavolumens auf Basis einer angenommenen Vakuumintensitätsverteilung sinnvoll.

Im weiteren soll eine Reduzierung der optischen Intensität auf Grund von Absorption innerhalb des Plasmas vernachlässigt werden. Dieses ist dadurch gerechtfertigt, dass die zur Ionisierung des

maximal erreichten Plasmavolumens ($1 \cdot 10^{13} \text{ 1/m}^3$) nötige Gesamtenergie (bei 50 % Ionisierungsgrad und 15 eV Ionisierungsenergie) nur etwa $3 \mu\text{J}$ beträgt. Dieses ist nur etwa 1 % der eingesetzten Laserpulsenergie. Die experimentell bestimmten Verluste liegen bei max. 10 %. Allerdings sind diese Messungen mit einer großen Unsicherheit behaftet, da eine gute Abbildung der Laserstrahlung nach dem Plasma durch Streulicht und Defokussierungseffekte erschwert wird.

Wie im Kapitel 4.1 dargestellt wurde, setzt die Erzeugung eines Plasmas ab einer bestimmten vom Laserpuls erzeugten Mindestintensität I_{ion} relativ plötzlich ein. Oberhalb dieser Mindestintensität I_{ion} kann man davon ausgehen, dass das Gas signifikant ionisiert ist. Ist man also an einer Bestimmung des raum-zeitlichen Plasmavolumens (also des Volumens, welches signifikant ionisiert ist) interessiert, ist die Kenntnis der raum-zeitlichen optischen Intensität I_{opt} im Brennpunkt des Laserstrahls notwendig. Im Vakuum ist diese Verteilung einfach gegeben durch

$$\begin{aligned}
 I_{opt}(r, z, t) &= \frac{I_{opt}^0}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \exp\left(\frac{-2r^2}{(r_{opt}^0)^2} \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right)\right) \exp\left(\frac{-4\ln(2)\left(t - \frac{z}{c_0}\right)^2}{\tau_p^2}\right) \\
 &= I_{opt}^0 \cdot F(r, z) \cdot T\left(t - \frac{z}{c_0}\right), \\
 \text{mit: } I_{opt}^0 &= \frac{4\sqrt{\ln(2)}J_{opt}}{\sqrt{\pi}\tau_p\pi(r_{opt}^0)^2}, \\
 r_0 &= \frac{f_{opt}\lambda}{r_{opt}^0\pi}, \\
 z_0 &= \frac{\pi(r_{opt}^0)^2}{\lambda} = \frac{f_{opt}^2\lambda}{(r_{opt}^0)^2\pi}, \\
 F(r, z) &= \frac{1}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \exp\left(\frac{-2r^2}{(r_{opt}^0)^2} \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right)\right) \\
 \text{und } T(t^*) &= \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t^*)^2}{\tau_p^2}\right).
 \end{aligned} \tag{4.17}$$

Dabei ist f_{opt} die Brennweite der optischen Linse, r_{opt}^0 der $1/e^2$ -Strahlradius an der Linse, r_{opt}^0 der Brennpunktradius und z_0 die Rayleigh-Länge des Brennpunkts. $z = 0$ gibt die Position des Fokus in Propagationsrichtung z an.

Vernachlässigt man aus den zuvor genannten Gründen die Plasmarekombination, erhält man das Plasmavolumen $V_{pl}(t)$ formal durch die Integration

$$V_{pl}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d^3r' \begin{cases} 1, & \left\{ \begin{array}{l} \text{falls } I_{opt}(r', z', t^*) > I_{ion} \\ \text{für beliebiges } t^* \text{ mit } -\infty < t^* < t, \end{array} \right. \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases} \tag{4.18}$$

In Abb. 4.8 sind die raum-zeitliche Intensitätsverteilung (Farbverlauf) und das erzeugte Plasmavolumen (innerhalb der weißen Linie) für verschiedene Laserpulsenergien und Zeitpunkte dargestellt. Man erkennt, dass mit dem Verlauf der Zeit (also in der Darstellung von oben nach unten) der Laserpuls von links nach rechts wandert, und der Strahlradius dabei bis zum Brennpunkt in der Mitte ab- und danach wieder zunimmt. Das Plasma entsteht also in den Bereichen, welche bereits vom

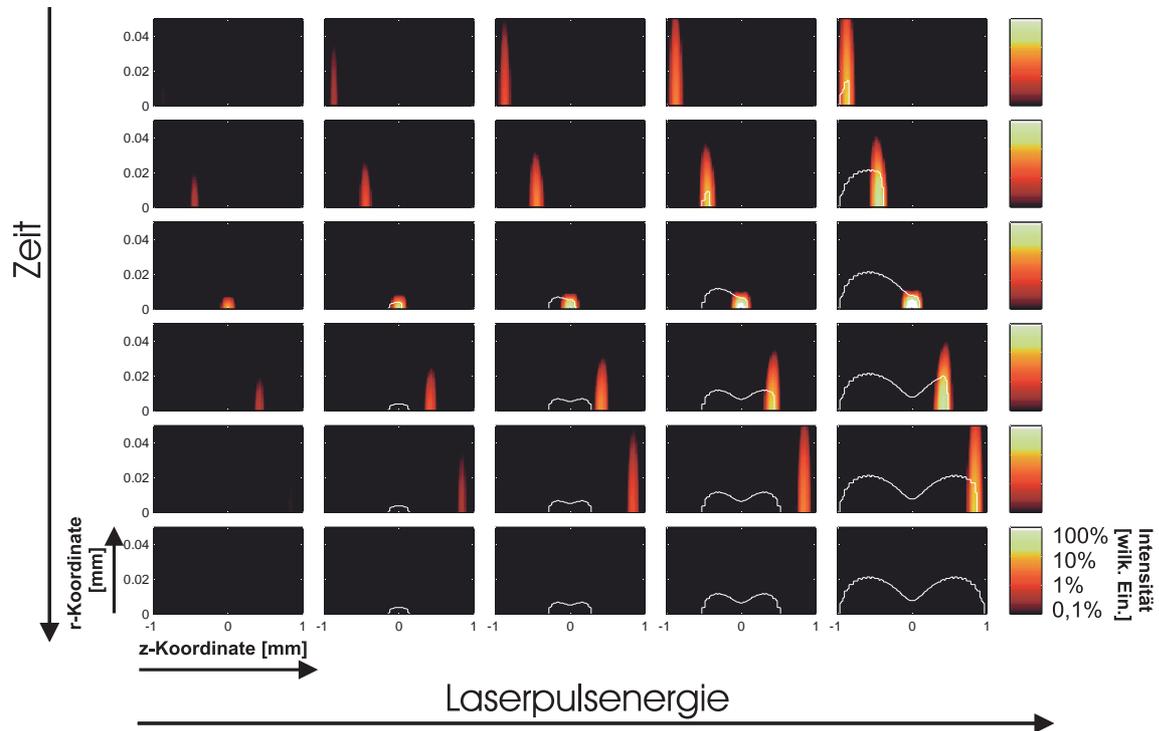


Abbildung 4.8.: Darstellung der raum-zeitlichen Intensitätsverteilung (Farbskala) und des erzeugten Plasmavolumens (innerhalb der weißen Linie) für verschiedene Spitzenintensitäten (von links nach rechts: 1-,3-,10-,30-,100-fache der Ionisierungsschwelle) und zu unterschiedlichen Zeitpunkten (von oben nach unten: -1,2; -0,6; 0; 0,6; 1,2; 1,8 ps). Als Parameter wurde ein Strahldurchmesser an der Linse von 8 mm und eine Brennweite von 80 mm angenommen.

Laserpuls durchlaufen wurden, und in denen die lokale Spitzenintensität größer als die Ionisierungsschwelle war. Nach dem vollständigen Durchlauf des Laserpulses durch das Brennpunktvolumen verbleibt für kleine Laserpulsenergien ein Plasmavolumen mit der Form eines Rotationsellipsoids. Für höhere Laserpulsenergien zeigt das Plasmavolumen in der Mitte (also im Bereich des Brennpunktes) eine deutliche Einschnürung.

Das für eine bestimmte Laserpulsenergie J_{opt} erzeugte maximale Plasmavolumen V_{pl} erhält man entsprechend formal durch die Integration.

$$V_{pl}^0(J_{opt}) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d^3 r' \begin{cases} 1, & \text{falls } I_{opt}^0 \cdot F(r', z') > I_{ion}, \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases} \quad (4.19)$$

Aus der Bedingung $I_{opt}^0 \cdot F(r_{pl}, z) = I_{ion}$ erhält man für die Grenze des Plasmavolumens $r_{pl}(z)$ die Funktion

$$\begin{aligned} r_{pl}(z, J_{opt}) &= r_0 \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right) \ln \left(\frac{I_{opt}^0(J_{opt})}{I_{ion} \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right)}\right)} \\ &= \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right) \ln \left(\frac{J_{opt}}{J_{ion}} \left(1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right)\right)}, \\ \text{mit } J_{ion} &= \frac{I_{ion} \sqrt{\pi} \tau_p \pi r_0^2}{4 \sqrt{\ln(2)}}. \end{aligned} \quad (4.20)$$

Dabei muss die Gültigkeit der Gleichung 4.20 für $J_{opt} > J_{ion}$ und auf den Bereich für z eingeschränkt werden, welcher innerhalb des Plasmas liegt, und der durch die folgende Gleichung definiert wird: $-z_{pl} \leq z \leq z_{pl}$. Die Grenzen $\pm z_{pl}(J_{opt})$ entlang der Strahlachse enthält man entsprechend aus der Bedingung $r_{pl}(z_{pl}, J_{opt}) = 0$. Dabei ergibt sich aus Gl. 4.20

$$z_{pl}(J_{opt}) = \frac{\pi r_0^2}{\lambda} \sqrt{\frac{J_{opt}}{J_{ion}} - 1}. \quad (4.21)$$

Damit lässt sich die Funktion $V_{pl}^0(J_{opt})$ berechnen durch die Integration

$$\begin{aligned} V_{pl}^0(J_{opt}) &= \begin{cases} \int_{-z_{pl}(J_{opt})}^{z_{pl}(J_{opt})} \pi r_{pl}(z, J_{opt})^2 dz, & \text{falls } J_{opt} > J_{ion}, \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (4.22) \\ &= \begin{cases} \begin{cases} \pi r_0^2 z_0 \left(\frac{2}{9} \left(\sqrt{\frac{J_{opt}}{J_{ion}} - 1}\right) \left(\frac{J_{opt}}{J_{ion}} + 5\right)\right. \\ \left. - \frac{4}{3} \arctan \left(\sqrt{\frac{J_{opt}}{J_{ion}} - 1}\right)\right), & \text{falls } J_{opt} > J_{ion}, \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases} \end{cases} \quad (4.23) \end{aligned}$$

In Abb. 4.10 ist die Funktion $V_{pl}^0(J_{opt})$ für typische experimentelle Parameter dargestellt.

4.3. Plasmavolumen in Anwesenheit von nichtlinearen Brechungsindexeffekten

In diesem Kapitel soll die Form und Größe des Plasmavolumens in Gasen bei atmosphärischen Drücken bestimmt werden. Dabei besteht die Schwierigkeit darin, dass die Intensitätsverteilung im Brennpunkt durch nichtlineare Brechungsindexeffekte wie Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung relativ zur Vakuumintensitätsverteilung deutlich geändert wird und sich so Plasmavolumen und Intensitätsverteilung gegenseitig beeinflussen. Daher kann das Plasmavolumen nur innerhalb eines Propagationsmodells, welches mit der räumlichen Plasmadichteverteilung gekoppelt ist, beschrieben werden. Ein solches Modell wird auf Basis einiger grundlegender Vereinfachungen in Kap. 4.3.2 vorgestellt. Zuvor werden in Kapitel 4.3.1 die nichtlinearen Brechungsindexeffekte näher vorgestellt.

4.3.1. Nichtlineare Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung

Bei der Erzeugung eines Plasmas durch Fokussierung eines Laserstrahls in einem Gas wird der Brechungsindex des gasförmigen Mediums einerseits auf Grund des Einflusses der hohen optischen Intensität und andererseits auf Grund der Anwesenheit des erzeugten Plasmas modifiziert. Dieses kann bedeutenden Einfluss auf die raum-zeitliche Ausbreitung des Laserpulses haben. Die wesentlichen Einflussfaktoren sind dabei:

- Nicht-lineare „Kerr“-Selbstfokussierung
- Plasma-Defokussierung
- Relativistische Selbstfokussierung

Diese Mechanismen werden im weiteren zunächst separat vorgestellt.

Nicht-lineare „Kerr“-Selbstfokussierung

Bei hohen Intensitäten tritt in isotropen Medien, bzw. hier speziell in Gasen, eine nichtlineare Erhöhung des Brechungsindex auf Grund des „Kerr“-Effekts auf. Der Brechungsindex eines Gases in Anwesenheit hoher optischer Intensitäten ist dabei gegeben durch [94, 95, 96, 97]:

$$\begin{aligned}
 n(I_{opt}) &= n + n_2 \cdot I_{opt} \\
 &= n + n^2 n_2 \cdot \frac{1}{2} \epsilon_0 c_0 (E_{opt}^0)^2 \\
 &= n + \chi^{(3)} \cdot (E_{opt}^0)^2, \\
 \text{mit } \chi^{(3)} &= \frac{1}{2} n^2 n_2 \epsilon_0 c_0.
 \end{aligned}
 \tag{4.24}$$

Die Literaturwerte für n_2 von Luft bzw. Stickstoff bei atmosphärischem Druck variieren im Bereich von etwa $5\text{-}10 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ [95, 98]. Dabei erklärt sich die große Unsicherheit dadurch, dass die nichtlineare Brechungsindexänderung nur näherungsweise zeitunabhängig ist und so die experimentell bestimmten Werte insbesondere mit der Laserpulslänge stark variieren. Für die in dieser

Arbeit relevanten Parameter $\lambda_{opt} = 775 \text{ nm}$ und $\tau_p = 150 \text{ fs}$ (Halbwertsbreite) wird in der Regel ein Wert von $n_2 = 5 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ [95] angenommen.

Wird nun ein gaußförmiger Laserstrahl mit der maximalen Leistung P_{opt} in einem gasförmigem Medium fokussiert, so wird auf Grund der hohen Intensität der Brechungsindex auf der Strahlachse zunehmen, was zu einer stärkeren Fokussierung der Strahlung im Vergleich zur Vakuumausbreitung führt. Falls dieser Effekt stark genug ist, um die Strahldivergenz auf Grund des Beugungslimits aufzuheben, spricht man von Selbstfokussierung. In diesem Fall wird der Strahl bis auf einen beliebig kleinen Punkt fokussiert, falls nicht andere Effekte, wie z.B. Plasmadefokussierung, einem solchen Kollaps entgegenwirken. Eine formale Bedingung für das Auftreten eines solchen Selbstfokussierungs-Kollapses ist, dass die Krümmung des gaußschen Laserstrahls auf Grund der selbstfokussierenden Wirkung stärker zunimmt, als diese auf Grund der Divergenz abnimmt. Dabei zeigt sich, dass das Auftreten eines Selbstfokussierungs-Kollapses nur von der mittleren Leistung und der Wellenlänge abhängt, aber unabhängig von der Laserpulslänge, der Brennweite und dem Strahldurchmesser ist. Die kritische Leistung, oberhalb der ein Selbstfokussierungs-Kollaps auftritt, ist [97, 99, 100, 101, 102, 103, 104, 105, 106, 107, 108]

$$L_{cr,SF} = K_{SF} \frac{(\lambda)^2}{n n_2}. \quad (4.25)$$

Der angegebene Wert für K_{SF} liegt bei allen aktuellen Quellen [101, 102, 103, 104, 105, 106, 107, 108] im Bereich 0,146 bis 0,159. Damit ergibt sich für eine Wellenlänge von 775 nm und $n_2 = 5 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ für Luft eine kritische mittlere Leistung von etwa 1,92 GW, oberhalb der in Luft ein Selbstfokussierungs-Kollaps auftreten sollte, falls nicht andere Mechanismen einer Selbstfokussierung entgegenwirken. Mögliche Mechanismen, die in der Realität einem Selbstfokussierungs-Kollaps entgegenwirken, sind zum einen Gruppengeschwindigkeitsdispersion, Pulssplitting [109], und vor allem Plasmadefokussierung, welche im nächsten Unterkapitel näher beschrieben werden soll. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten mittleren Leistungen lagen bei maximal 3,1 GW. Dieses bedeutet, dass nichtlineare Selbstfokussierungseffekte nicht grundlegend ausgeschlossen werden können. Allerdings wird sich im nächsten Unterkapitel zeigen, dass der Einfluss von Plasmadefokussierungseffekten deutlich stärker ist, und damit evtl. Selbstfokussierungseffekte überdeckt werden.

Plasmadefokussierung

Die Brechungsindexänderung durch die Anwesenheit eines Plasmas ist nach dem Drude-Modell [110] gegeben durch

$$\begin{aligned} \Delta n_{pl} &= n_{pl} - n_{Luft} \\ &= \sqrt{\epsilon_{pl}} - 1 \\ &= \sqrt{1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega_{opt}^2}} - 1 \\ &\approx -\frac{1}{2} \frac{\omega_{pl}^2}{\omega_{opt}^2}, \\ \text{mit } \omega_{pl} &= \sqrt{\frac{\rho_{pl} e^2}{\epsilon_0 m_e}}. \end{aligned} \quad (4.26)$$

Dabei wurde ω_{pl} als Plasmafrequenz eingeführt. Wird nun ein intensiver Laserstrahl so weit fokussiert, dass sich entlang der Strahlachse ein Plasma ausbildet, wird der Brechungsindex dort relativ zum Brechungsindex des äußeren Teils des Strahlbündels reduziert. Dieses hat auf das Strahlbündel eine defokussierende Wirkung. Ob dieses auf die Strahlausbreitung relativ zu einem vergleichbaren Strahl ohne nichtlineare Effekte, wie z.B. im Vakuum, eine signifikante Auswirkung hat (also ob z.B. die Rayleigh-Länge des Brennpunktes oder das Brennpunktvolumen deutlich verändert werden), hängt nach Ref. [111] und Ref. [112] davon ab, ob die charakteristische Länge, innerhalb der eine $\pi/2$ -Phasenänderung auftritt (z_{PDF}), kleiner oder gleich der Rayleigh-Länge z_0 des Strahls ist. Damit ergibt sich als Bedingung für das Auftreten von deutlichen Defokussierungseffekten

$$\begin{aligned} z_{PDF} &< z_0, \\ \text{mit } z_{PDF} &= \frac{1}{4} \frac{\lambda_{opt}}{\Delta n_{pl}}. \end{aligned} \tag{4.27}$$

Für typische experimentelle Parameter: Strahldurchmesser vor der Linse $r_{opt}^0 = 4$ mm, Brennweite der Linse $f_{opt} = 80$ mm, $\rho_{pl} = 1,35 \cdot 10^{19}$ $1/\text{cm}^3$ (50% relative Ionisierung bei 1 bar) und $\lambda_{opt} = 775$ nm ergibt sich $\Delta n_{pl} = 3,9 \cdot 10^{-3}$, $z_{PDF} = 50,4$ μm und $z_0 = 102$ μm . Damit können Plasma-defokussierungseffekte für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente nicht vernachlässigt werden.

Da allerdings im Intensitätsbereich, in welchem Plasmen erzeugt werden, auch immer Selbstfokussierungseffekte eine Rolle spielen, müsste Bedingung 4.27 genau genommen modifiziert werden, da die Selbstfokussierung ja in der entgegengesetzten Richtung wirkt. Da jedoch die Brechungsindexänderung auf Grund von Plasmaeffekten, um ca. eine Größenordnung stärker ist, wird der Defokussierungseffekt für Laserpulsenergien, welche groß genug sind um ein Plasma zu erzeugen, immer dominant gegenüber Selbstfokussierungseffekten sein.

Relativistische Selbstfokussierung

Neben der Kerr-Selbstfokussierung ergibt sich auch auf Grund relativistischer Effekte eine selbstfokussierende Wirkung [113]. Die kritische Leistung, oberhalb der relativistische Effekte zu einer Selbstfokussierung führen, liegt jedoch im Terawatt-Bereich, so dass relativistische Selbstfokussierungseffekte im Rahmen dieser Arbeit vernachlässigt werden können.

4.3.2. Strahlausbreitung in nichtlinearen Medien

Natürlich können die nichtlinearen Brechungsindexeffekte nicht isoliert betrachtet werden, sondern zur Beschreibung der raum-zeitlichen Strahlausbreitung ist vielmehr die Lösung der Wellengleichung in Verbindung mit der Differentialgleichung für die raum-zeitliche Plasmadichte notwendig [104, 105, 114, 115, 116]. Dabei müssen neben der intensitätsabhängigen Ionisierungsrate auch o.g. Selbst- und Defokussierungseffekte berücksichtigt werden. Verständlicherweise ist dieses nur numerisch und im Rahmen verschiedener Näherungen möglich [94, 105, 104, 116]. Diese Rechnungen zeigen, dass für bestimmte Parameterbereiche extreme Abweichungen von der im Vakuum erwarteten Strahlausbreitung auftreten. Hierzu gehören insbesondere Effekte wie Selbstführung der optischen Strahlung in Plasma-Filamenten. Diese entstehen in Parameterbereichen, die einen Regelmechanismus zwischen Selbst- und Defokussierung erlauben, was zur Ausbildung eines axialen

Plasmadichteprofil führt, welches auf Grund des zugehörigen Brechungsindexprofils die optische Strahlung ähnlich wie in einer Glasfaser führt und gleichzeitig durch Ionisierung das Plasma-Filament erzeugt [94, 117]. Solche Filamente sind experimentell [102, 103, 107, 113] bis zu Längen von mehreren Metern beobachtet worden. Grundsätzlich sollte auch für die in dieser Arbeit verwendeten Parameter die Erzeugung von Filamenten möglich sein. Hierzu muss der Laserstrahl allerdings mit einer sehr langbrennweitigen Linse fokussiert werden, so dass eine Strahltaile mit genau dem richtigen Durchmesser entsteht. Die Plasmadichte in einem solchen Filament wäre sehr gering (ca. 1 % relative Ionisierung) so dass ein solches Filament vermutlich nicht mit bloßem Auge sichtbar wäre. In einem anderen Parameterbereich tritt die Bildung von Doppelpulsen und zugehörigen Mehrfachbrennpunkten auf [94, 104].

Eine Modellierung der Strahlausbreitung in nichtlinearen Medien setzt grundsätzlich eine Lösung der Wellengleichung mit dem nichtlinearen Brechungsindex voraus. Im Fall von Laserpulsen muss dieses sogar zeitabhängig erfolgen. Wenn die nichtlineare Brechungsindexänderung wie hier vor allem von der Plasmadichte abhängt, muss die Wellengleichung mit der Differentialgleichung für die Plasmadichte gekoppelt werden. Natürlich ist eine solche Lösung nur numerisch möglich. Dieses ist in der Literatur für verschiedene Parameterbereiche und im Rahmen verschiedener Näherungen gezeigt worden [94, 104, 105, 116].

Im Rahmen dieser Arbeit ist vor allem die Berechnung des Plasmavolumens von Bedeutung. Dazu ist ein vergleichsweise einfaches Modell entwickelt worden, welches zunächst von der Ausbreitung eines räumlich gaußförmigen Laserpulses mit einer zeitunabhängigen konstanten mittleren optischen Leistung ausgeht. Nur die Änderung der Plasmadichte wird im Rahmen einer quasistatischen Näherung als zeitabhängiger Effekt berücksichtigt. Ein solcher Strahl ist an einer beliebigen Stelle z durch die Angabe des Strahlradius⁵ $r_{opt}(z)$ und der Krümmung der Wellenfront $R_{opt}(z)$ eindeutig definiert. Nach der Theorie für die Ausbreitung von gaußschen Strahlen [118] ist dann der Strahlradius und die Krümmung an der Stelle $z + \Delta z$ gegeben durch

$$r_{opt}(z + \Delta z) = r(z) \sqrt{\left(1 + \frac{\Delta z}{R_{opt}(z)}\right)^2 + \frac{\lambda_{opt}^2 (\Delta z)^2}{\pi^2 r_{opt}(z)^4}}$$

und

$$\frac{1}{R_{opt}(z + \Delta z)} = \frac{1}{\Delta z} - \frac{\frac{1}{\Delta z} + \frac{1}{R_{opt}(z)}}{\left(1 + \frac{\Delta z}{R_{opt}(z)}\right)^2 + \frac{\lambda_{opt}^2 (\Delta z)^2}{\pi^2 r_{opt}(z)^4}}.$$

(4.28)

Mit diesen Gleichungen kann die Ausbreitung des gaußschen Strahls ohne nichtlineare Effekte numerisch beschrieben werden. Die dabei gewonnen Ergebnisse stimmen erwartungsgemäß mit der analytischen Lösung für die gaußsche Strahlausbreitung überein.

Die nichtlinearen Brechungsindexänderungen auf Grund des Kerreffekts und durch die Erzeugung eines Plasmas haben, wie zuvor erläutert, eine fokussierende bzw. defokussierende Wirkung auf den Strahl. Die effektive Brennweite $f_{\Delta z}$ eines Teilstücks Δz eines Mediums, dessen Brechungsindex auf der Strahlachse um den Wert Δn relativ zum linearen Brechungsindex⁶ geändert ist, erhält man durch die Annahme, dass sich ein Randstrahl der Länge $f_{\Delta z}$ welcher von einem Punkt mit dem Abstand r_{opt} von der Strahlachse ausgeht, mit dem um $\Delta z \cdot \Delta n$ verkürzten Strahl

⁵Definiert über eine Abfall der Intensität auf den Wert $1/e^2$.

⁶Dabei sollen positive Werte von Δn einer Erhöhung des Brechungsindex entsprechen.

auf der Strahlachse im Brennpunkt treffen sollen. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned}
 (f_{\Delta z} - \Delta z \cdot \Delta n)^2 + r_{opt}^2 &= f_{\Delta z}^2 \\
 \Leftrightarrow f_{\Delta z} &= \frac{r_{opt}^2}{2\Delta z \cdot \Delta n} + \frac{\Delta z \cdot \Delta n}{2} \\
 &\approx \frac{r_{opt}^2}{2\Delta z \cdot \Delta n},
 \end{aligned} \tag{4.29}$$

wobei im letzten Schritt angenommen wurde, dass $\Delta z \cdot \Delta n \ll r_{opt}$ ist, was für genügend klein gewählte Schrittweiten Δz erfüllt ist. Für die Änderung des Krümmungsradius eines gaußschen Strahls beim Durchlaufen einer Linse mit der Brennweite $f_{\Delta z}$ ergibt sich nach Ref. [118]

$$\frac{1}{R'_{opt}(z)} = \frac{-1}{f_{\Delta z}} + \frac{1}{R_{opt}(z)}, \tag{4.30}$$

wohingegen der Strahlradius r_{opt} unverändert bleibt. Damit ergibt sich die Änderung der Krümmung des gaußschen Strahls innerhalb eines Teilstücks Δz mit nichtlinearer Brechungsindexänderung Δn auf der Strahlachse zu

$$\frac{1}{R'_{opt}(z)} = \frac{-2\Delta z \cdot \Delta n}{r_{opt}^2} + \frac{1}{R_{opt}(z)}. \tag{4.31}$$

Die mittlere Brechungsindexänderung $\Delta n(z)$ auf der Strahlachse an der Stelle z ergibt sich nach Gl. 4.24 und 4.26 zu

$$\Delta n = n_2 \cdot I_{opt}(z) - \frac{1}{2} \frac{\rho_{pl}(z)e^2}{\omega_{opt}^2 \epsilon_0 m_e}. \tag{4.32}$$

Dabei kann (analog zu Gl. 3.6) $I_{opt}(z) = 2 \cdot L_{opt} / (\pi r_{opt}(z)^2)$ durch die mittlere Leistung L_{opt} und den Strahlradius $r_{opt}(z)$ ausgedrückt werden. Die Plasmadichte $\rho_{pl}(z)$ kann im Rahmen der quasi-statischen Näherung auf Basis der Ionisierungsrate w_{ion} angegeben werden. Dabei wird einfach angenommen, die optische Intensität $I_{opt}(z)$ würde für die Dauer des Laserpulses τ_p (Halbwertsbreite) eingeschaltet. Damit ergibt sich durch Lösen der Differentialgleichung für die Plasmageneration (4.15)

$$\rho_{pl} = \rho_{gas}^0 (1 - \exp(-w_{ion}(I_{opt}) \cdot \tau_p)). \tag{4.33}$$

Dabei soll $w_{ion}(I_{opt})$, wie in Kap. 4.1 dargestellt, im Rahmen des Tunnelmodells beschrieben werden. Im Rahmen der zuvor dargestellten Annahmen kann nun die Strahlausbreitung in Anwesenheit von nichtlinearer Selbstfokussierung und von Plasmadefokussierung numerisch beschrieben werden. Trotz der erheblichen Vereinfachungen (keine Zeitbereichseffekte, keine Abweichungen von räumlichen Gauß-Profil) ist das Modell in der Lage, alle wesentlichen Effekte wie das Selbstfokussieren, bevor ein Plasma erzeugt wird, sowie die Defokussierung auf Grund des erzeugten Plasmas gut zu beschreiben. Auch andere Effekte wie die Ausbildung von stabilen Filamenten können simuliert werden (Ergebnisse der numerische Simulation nicht gezeigt).

In Abb. 4.9 sind die Intensität $I_{opt}(z, r = 0)$ und die Plasmadichte $\rho_{pl}(z, r = 0)$ auf der Strahlachse sowie der berechnete Strahlradius $r_{opt}(z)$ und die Grenze des Plasmavolumens $r_{pl}(z)$ dargestellt. Dabei fällt auf, dass im Vergleich mit den ebenfalls dargestellten Daten, welche sich ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten (also z.B. im Vakuum) ergeben, schon

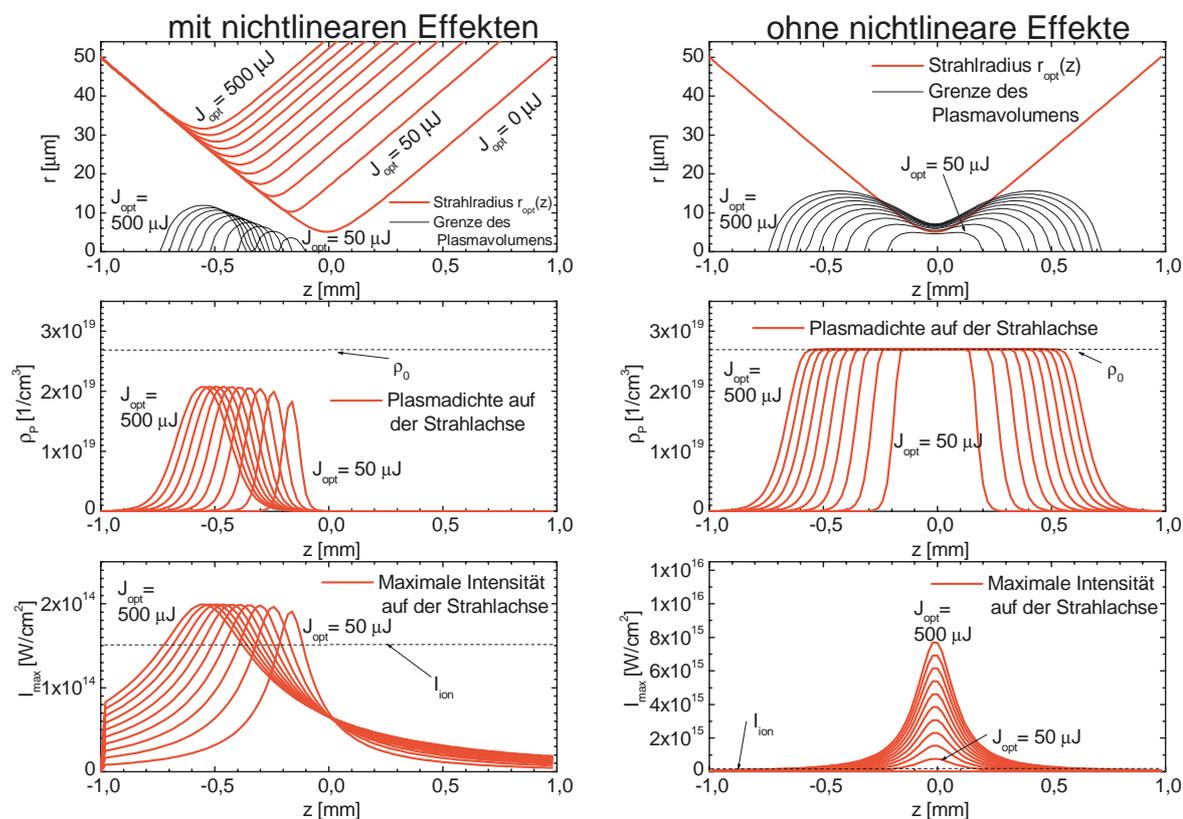


Abbildung 4.9.: Strahlradius, Plasmavolumen, sowie Plasmadichte und maximale Intensität auf der Strahlachse mit und ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten. Die Schrittweite bei der Steigerung der Laserpulsenergie beträgt $50 \mu\text{J}$.

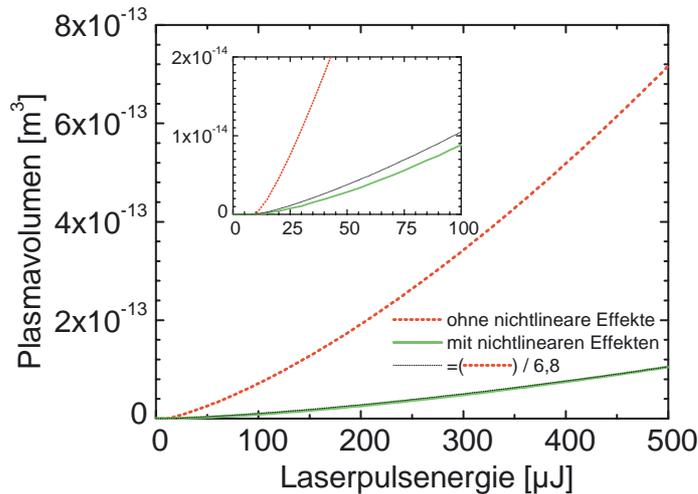


Abbildung 4.10.: Berechnetes Plasmavolumen mit und ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten

bei relativ geringen Laserpulsenergien deutlich vergrößerte minimale Strahlradien erreicht werden. Bei den höchsten verwendeten Laserpulsenergien von etwa $500 \mu\text{J}$ vergrößert sich der minimale Strahlradius sogar auf den 6-fachen Wert. Dieses führt zunächst zu einer deutlichen Änderung der Form des Plasmavolumens in der Art, dass die Ausdehnung entlang der Strahlachse deutlich kürzer ist, als man ohne nichtlineare Brechungsindexeffekte erwarten würde. Damit ergibt sich eine rotationsellipsoid-ähnliche Form ohne die typische Einschnürung, welche man ohne nichtlineare Brechungsindexeffekte bei $z = 0$ findet.

Am drastischsten wirken sich die nichtlinearen Brechungsindexeffekte auf die maximal auf der Strahlachse erreichte Intensität aus. Es zeigt sich, dass diese unabhängig von der Laserpulsenergie auf Werte von etwa 30 % über der Intensitätsschwelle für das Einsetzen der Ionisierung begrenzt ist. Dieser Wert der maximalen Intensität ist im Vergleich zur im Vakuum erreichten maximalen Intensität um den Faktor 40 reduziert.

Das modellierte Verhalten zeigt, dass die Strahlausbreitung im wesentlichen durch Plasmade-fokussierungseffekte gekennzeichnet ist. Selbstfokussierungseffekte treten nicht oder nur in vernachlässigbarer Größenordnung auf. Dieses erklärt sich dadurch, dass die Spitzenintensitäten durch die stark defokussierende Wirkung des Plasmas auf Werte begrenzt sind, bei denen Selbstfokussierungseffekte noch nicht bedeutend sind.

Der maximale auf der Strahlachse erreichte relative Ionisierungsgrad liegt verhältnismäßig unabhängig von der Laserpulsenergie bei etwa 70 %, was sich durch die Begrenzung der Spitzenintensität auf Grund der Defokussierung erklärt. Hier liegt hier ein Regelungsmechanismus vor. Da schon bei einer minimalen weiteren Erhöhung der Intensität die Plasmadichte deutlich ansteigen würde, hätte dies sofort eine deutlich stärker defokussierende Wirkung zur Folge, womit die Intensität und die Plasmadichte wieder abnehmen.

Da als Ergebnis der numerischen Berechnung die Intensität auf der Strahlachse $I_{opt}^{NL}(z, r = 0)$ und der Strahldurchmesser $r_{opt}^{NL}(z)$ bekannt sind und das Modell auf einem räumlich gaußförmigen Profil basiert, kann man die raum-zeitliche Intensitätsverteilung beschreiben als:

$$\begin{aligned}
I_{opt}(r, z, t) &= I_{opt}^0 \cdot F(r, z) \cdot T\left(t - \frac{z}{c_0}\right), \\
\text{mit: } I_{opt}^0 &= \frac{4\sqrt{\ln(2)}J_{opt}}{\sqrt{\pi}\tau_p\pi r_0^2} \\
\text{und } F &= \frac{I_{opt}^{NL}(z, r=0)}{I_{opt}^0} \exp\left(\frac{-2r^2}{r_{opt}^{NL}(z)^2}\right), \\
\text{sowie } T(t^*) &= \exp\left(-4\ln(2)\frac{t^{*2}}{\tau_p^2}\right).
\end{aligned} \tag{4.34}$$

Damit kann dann das Plasmavolumen einfach abgeschätzt werden, wenn man davon ausgeht, dass alle Volumenbereiche, in denen die Grenzintensität I_{ion} überschritten wird, ionisiert sind. Damit ergibt sich:

$$V_{pl}^{0,NL} = \int_{z_{pl,1}}^{z_{pl,2}} \frac{r_{opt}^{NL}(z)^2}{2} \ln\left(\frac{I_{opt}^{NL}(z, r=0)}{I_{ion}}\right) dz, \tag{4.35}$$

wobei sich die Grenzen $z_{pl,1}, z_{pl,2}$ aus der Bedingung $I_{opt}^{NL}(z, r=0) = I_{ion}$ ergeben. Die Form von Gl. 4.35 weicht von der Darstellung des analytisch berechneten Plasmavolumens (Gl. 4.22) ab, da hier die numerisch bestimmten Verläufe von der Intensität auf der Strahlachse ($I_{opt}^{NL}(z, r=0)$) und von dem Strahldurchmesser ($r_{opt}^{NL}(z)$) als Grundlage für die numerische Integration über z verwendet werden. Das numerisch berechnete Plasmavolumen ist in Abb. 4.10, für die typischen experimentellen Parameter (Strahldurchmesser vor der Linse $r_{opt}^0 = 4$ mm, Brennweite der Linse $f_{opt} = 80$ mm, $\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{19}$ 1/cm³ (1 bar), $I_{ion} = 1,5 \cdot 10^{14}$ W/cm² und $\lambda_{opt} = 775$ nm) dargestellt. Dabei fällt auf, dass der qualitative Verlauf des Plasmavolumens als Funktion der Laserpulsenergie, wie er sich mit bzw. ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten ergibt, praktisch identisch ist. Quantitativ bleibt festzustellen, dass sich das Plasmavolumen auf Grund des Einflusses der nichtlinearen Brechungsindexeffekte um den Faktor 6,8 relativ zur analytischen Lösung ohne die Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten (nach Gl. 4.22) verringert. Aus diesem Grunde wurde, zur Begrenzung der Rechenzeit, für die Modellierung der THz-Emission in den Kap. 5 und 6 die um den Faktor 6,8 reduzierte analytische Lösung für das Plasmavolumen verwendet.

4.4. THz-Strahlausbreitung und Fokussierung beim Plasmaemitter

In diesem Unterkapitel soll, ausgehend von der als bekannt angenommenen raum-zeitlichen Polarisierung innerhalb des Plasmas, die Größe und der zeitliche Verlauf der THz-Signalform am Ort des Detektors bestimmt werden. Dazu wird zunächst das THz-Signal auf der Strahlachse in großem Abstand vom Emitter bestimmt, um dann in einem zweiten Schritt die Kollimierung und Fokussierung der THz-Strahlung durch die Parabolspiegel zu berücksichtigen.

Der THz-Strahlpfad in einem typischen Experiment zur Messung der vom Plasma emittierten THz-Strahlung ist in Abb. 4.11 dargestellt. Das Plasma wird im Brennpunkt der optischen Linse erzeugt und auf Grund des angelegten externen Feldes bzw. auf Grund der Nichtlinearitäten dritter Ordnung polarisiert. Die so im Plasma erzeugte raum-zeitliche Polarisierung $P_{pl}(\vec{r}, t)$ bildet die Grundlage für die Beschreibung des erzeugten THz-Signals am Ort des Detektors. Für die in großer

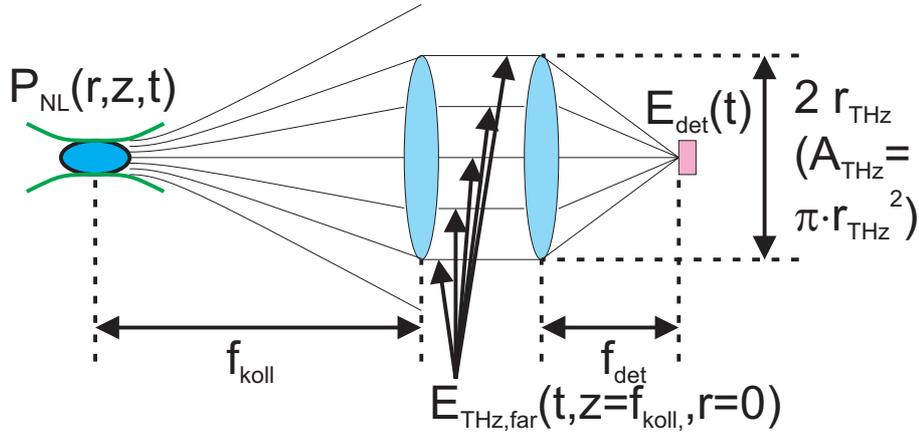


Abbildung 4.11.: Darstellung der THz-Strahlausbreitung vom Plasma bis zum Detektor.

Entfernung einer örtlich begrenzten Polarisation $P_{pl}(\vec{r}', t)$ erzeugte elektromagnetische Signalform E_{fern} gilt nach [60, 25]

$$\vec{E}_{fern}(\vec{r}, t_{fern}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \int_{V'} \frac{\vec{P}_{pl}(\vec{r}', t_{fern} - \frac{|\vec{r} - \vec{r}'|}{c_0})}{|\vec{r} - \vec{r}'|} dV'. \quad (4.36)$$

t_{fern} ist dabei die Zeit in einem Koordinatensystem am Ort des Betrachters. Betrachtet man nur Signalkomponenten auf der Strahlachse ($r=0$) in großen Abständen z_{fern} , welche sehr viel größer sind als die Dimensionen des Plasmas, kann man den Ausdruck $|\vec{r} - \vec{r}'|$ mit z_{fern} annähern. Führt man weiter eine neue Zeit $t^* = t_{fern} - \frac{z_{fern}}{c_0}$ ein, bei welcher der absolute Zeitnullpunkt mit dem Entstehen des Pulses im Ursprung des Koordinatensystems zusammenfällt (d.h der Zeitnullpunkt ist um die Laufzeit des Signals bis zum Betrachtungsort z_{fern} verschoben), ergibt sich

$$E_{fern}(z_{fern}, t^* = t_{fern} - \frac{z_{fern}}{c_0}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c_0^2 z} \frac{\partial^2}{\partial t^2} p_{pl}^{ret}(t^*),$$

$$\text{mit } p_{pl}^{ret}(t) = \int_{V'} P_{pl}(z', r', t + \frac{z'}{c_0}) dV'. \quad (4.37)$$

Dabei ist $p_{pl}^{ret}(t)$ das gesamte im Plasmabereich erzeugte retardierte Dipolmoment. Die Retardierung bedeutet dabei, dass so über die raum-zeitliche Dipolverteilung integriert wird, dass alle Laufzeitunterschiede bei der Betrachtung aus großer Entfernung von einem Betrachtungsort mit $z_{fern} \gg 0$ auf der Strahlachse ausgeglichen werden.

Nachdem hiermit das THz-Signal auf der Strahlachse im Fernfeld bestimmt ist, soll im weiteren untersucht werden, wie sich das THz-Signal für unterschiedliche Abstrahlwinkel bzw. Abstände von der Strahlachse verhält.

Da das Plasma senkrecht zur Strahlausbreitung nur eine räumliche Ausdehnung besitzt, welche deutlich kleiner ist als die Wellenlänge der erzeugten THz-Strahlung, kann man davon ausgehen, dass die THz-Strahlung in einen großen Raumwinkelbereich, ausgehend von dem als punktförmig anzunehmenden Plasma, abgestrahlt wird. Andererseits erfolgt für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Plasma-Emitter nur in Vorwärtsrichtung (in der das Plasma eine räumliche Ausdehnung

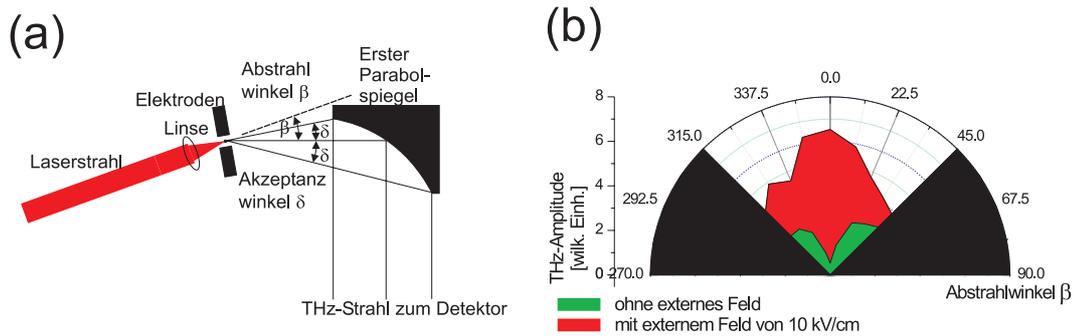


Abbildung 4.12.: (a) Geometrie zur Messung der Abstrahlcharakteristik, (b) Abstrahlcharakteristik des Plasma-Emitters mit und ohne angelegtes externes Feld.

in der Größenordnung der THz-Wellenlänge besitzt) eine kohärente Überlagerung der an verschiedenen Stellen im Plasma erzeugten THz-Strahlung. Diese Annahme basiert darauf, dass im Rahmen der in dieser Arbeit gemachten Annahmen die Ausbreitungsgeschwindigkeiten der THz-Welle und der optischen Pulse als gleich betrachtet werden. Damit wird keine signifikante Abstrahlung der THz-Strahlung seitwärts bzw. rückwärts erfolgen.

Diese Überlegung wird gestützt von der experimentell bestimmte Abstrahlcharakteristik des Plasma-Emitters. Die entsprechende Messanordnung mit der Definition des Akzeptanz- und des Abstrahlwinkels ist in Abb. 4.12(a) dargestellt. In Abb. 4.12(b) ist die experimentell bestimmte Abstrahlcharakteristik des Plasma-Emitters mit angelegtem externem Feld dargestellt. Diese wurde bestimmt, indem für verschiedene Abstrahlwinkel β relativ zur optischen Strahlachse das abgestrahlte THz-Signal mit einem Detektor bestimmt wurde, welcher einen Akzeptanzwinkel δ von 15° relativ zu einer Strahlachse zwischen Plasma und Detektormittelpunkt besitzt.

Die experimentellen Daten mit angelegtem externen Feld zeigen die erwartete Abstrahlcharakteristik, d.h. eine Abstrahlung in einem großen Raumwinkelbereich in Vorwärtsrichtung. Ohne angelegtes Feld erfolgt die Erzeugung der THz-Strahlung nur auf Grund von ponderomotiven Kräften (vgl. Kap. 4.5). Aus Symmetriegründen ist dabei eine Abstrahlung in Vorwärtsrichtung verboten, so dass nur eine Abstrahlung in Seitwärtsrichtung, also in einem kegelförmigen Bereich rund um die Symmetrieachse erfolgt.

In allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurde die vom Plasmaemitter erzeugte Strahlung mittels eines 90° -Parabolspiegels mit einer effektive Brennweite f_{koll} (= Abstand - Brennpunkt-Parallelstrahlmitte) kollimiert und mittels eines weiteren 90° -Parabolspiegels mit einer effektive Brennweite f_{det} auf den Detektorkristall fokussiert. Diese Anordnung ist in Abb. 4.11 dargestellt. Der Akzeptanzwinkel des ersten 90° -Parabolspiegels mit 12 cm effektiver Brennweite und einer Apertur mit 5 cm Durchmesser beträgt maximal nur etwa 15° . Da die erzeugte Strahlung auf Grund der hohen Divergenz (vgl. Abb. 4.12) über einen deutlich größeren Raumwinkelbereich verteilt ist, ist die Annahme gerechtfertigt, dass die Signalgröße und -form der THz-Strahlung, welche auf den ersten 90° -Parabolspiegel fällt, in guter Näherung überall durch das bekannte Signal genau auf der Ausbreitungsachse beschrieben werden kann. Damit sollte der hinter dem ersten 90° -Parabolspiegel erzeugte Parallelstrahl über den gesamten Strahldurchmesser (der ja durch die Apertur der Parabolspiegel gegeben ist) eine näherungsweise homogene Signalform und -größe aufweisen. Der quantitative Signalverlauf kann dabei mit dem bekannten Signalverlauf auf der Ausbreitungsachse hinter dem Plasma im Abstand f_{koll} (der Brennweite des ersten Parabol-

spiegels) angenommen werden. Wird nun ein solcher homogener Parallelstrahl mit einem zweiten Parabolspiegel fokussiert, entsteht nach den Gesetzen der Fourier-Optik im Brennpunkt eine Intensitätsverteilung mit der Form $\sin(r)/r$. Da im Rahmen dieser Arbeit jedoch im wesentlichen die Beschreibung der maximalen im Zentrum des Brennpunktes erzeugten Feldstärke interessant ist, ist es ausreichend die Feldstärke im Brennpunkt näherungsweise mit dem Formalismus für die Fokussierung eines gaußschen Parallelstrahl abzuschätzen (vgl. Kap. 3.2, Gl. 3.13). Damit ergibt sich für das im Brennpunkt des zweiten 90°-Parabolspiegels erzeugte THz-Signal

$$\begin{aligned} E_{det}(t) &= \frac{A_{THz}}{2\pi c_0 f_{det}} \frac{\partial}{\partial t} E_{fern}(t, z = f_{koll}) \\ &= \frac{A_{THz}}{8\pi^2 \epsilon_0 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^3}{\partial t^3} p_{pl}^{ret}(t). \end{aligned} \quad (4.38)$$

Damit wurde in diesem Unterkapitel die Voraussetzung geschaffen, in den folgenden Unterkapiteln ausgehend von der raum-zeitlichen lokalen Polarisierung im Plasma die THz-Signalform und -größe am Ort des Detektors zu bestimmen.

4.5. Stand der Technik: THz-Erzeugung in laser-generierten Plasmen mittels ponderomotiver Kräfte

Die Erzeugung von intensiven THz-Pulsen mittels laser-erzeugten Plasmen wurde erstmals von H. Hamster et al. in Jahr 1993 experimentell vorgenommen [119, 120]. Dabei beruhte die Emission der THz-Strahlung auf der Beschleunigung der Ladungsträger im Plasma durch ponderomotive⁷ Kräfte. Sie basieren auf räumlichen oder zeitlichen Änderungen der ponderomotiven Energie. Diese ist bestimmt durch die mittlere kinetische Energie, welche ein geladenes Teilchen wie z.B. ein Elektron mit der Masse m_e in einem elektromagnetischen Wechselfeld mit der Feldamplitude E_{opt}^0 und der Frequenz ω_{opt} auf Grund der aus dem Feld resultierenden oszillatorischen Bewegung besitzt:

$$U_{pon} = \frac{e^2 (E_{opt}^0)^2}{4m_e \omega_{opt}^2}. \quad (4.39)$$

Die ponderomotive Kraft kann entsprechend über den Gradient der ponderomotiven Energie bestimmt werden. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned} \vec{F}_{pon} &= -\nabla \frac{e^2 (E_{opt}^0)^2}{4m_e \omega_{opt}^2} \\ &= -\nabla \frac{e^2 I_{opt}}{2\epsilon_0 c_0 m_e \omega_{opt}^2}. \end{aligned} \quad (4.40)$$

Somit ist die ponderomotive Kräfte proportional zum Gradienten der optischen Intensität sind.

Da die Intensitätsverteilung im Brennpunkt, in welchem das Plasma erzeugt wird, als radial-symmetrisch angenommen werden kann, muss auch die Ladungsverteilung, bedingt durch die pon-

⁷aus dem lateinischen: "gewichtsbewegend,,

deromotiven Kräfte, radialsymmetrisch sein. Damit kann keine THz-Dipol-Emission in Vorwärtsrichtung erfolgen. Wie Hamster et al. jedoch durch numerische Rechnungen zeigen, wird auf Basis der erzeugten raum-zeitlichen Ladungsverteilung in bestimmten anderen Richtungen als in der Vorwärtsrichtung eine THz-Emission erfolgen. Diese Emissionsrichtungen liegen typischer Weise seitwärts zur Strahlachse. Die Emission erfolgt also in einem kegelförmigen Bereich rund um die Strahlachse. Hamster et al. verwenden für ihre Experimente Laserpulsenergien im Bereich von bis zu 50 mJ (was etwa um einen Faktor 100 über den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Laserpulsenergien liegt). Damit konnten THz-Pulsenergien von etwa 300 pJ erzeugt werden [121]. Nimmt man einen Brennpunktdurchmesser der THz-Strahlung am Ort des Detektors von etwa 300 μm an⁸ und berücksichtigt die von Hamster et al. gemessene THz-Pulslänge von 300 fs, entspricht diese Energie einer THz-Amplitude von etwa 20 kV/cm. Bei den im Rahmen der vorliegenden Arbeit verwendeten Laserpulsenergien von 500 μJ ergeben sich auf Basis des von Hamster et al. gefundenen quadratischen Zusammenhangs zwischen THz- und Laserpulsenergie [121] Werte für die zu erwartenden THz-Pulsenergien von etwa 30 nJ, was einer THz-Amplitude von etwa 200 V/cm entsprechen würde. Emissionen auf Basis ponderomotiver Kräfte sind auch im Rahmen der vorliegenden Arbeit beobachtet worden (vergl. Abb. 4.12 in Kap. 4.4). Dabei weicht der Wert der experimentell bestimmten THz-Amplitude mit ca. 15 V/cm von der Abschätzung auf Basis der Angaben von Hamster et al. ab. Diese Abweichung ist vermutlich auf Unterschiede in der Laserpulslänge und die von Hamster et al. verwendete bolometrische Detektionsmethode zurückzuführen. Diese erfasst den gesamten THz-Spektralbereich, während bei der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten elektro-optischen Methode nur Signalbeiträge mit Frequenzen von unterhalb von etwa 2,5 THz berücksichtigt werden.

Unabhängig von der genauen Größenordnung muss die THz-Erzeugung auf Basis ponderomotiver Kräfte im Vergleich zu den in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Methoden als deutlich weniger effizient eingeordnet werden. (siehe den in Kap. 8 dargestellten Vergleich der verschiedenen Emittoren).

Zusätzlich wurden von Hamster et al. auch Messungen der THz-Emission als Funktion des Gasdruckes vorgenommen. Diese Messungen zeigen, dass das THz-Signal eine resonante Überhöhung bei Plasmadichten zeigt, bei welchen die Plasmafrequenz in der Größenordnung der inversen Laserpulslänge und damit im THz-Bereich liegt. In diesem Fall werden effizient Plasmaschwingungen angeregt. Dieser Effekt ist im Zusammenhang mit der vorliegenden Arbeit insofern von Bedeutung, da eine solche Ausnutzung von Plasmaschwingungen auch bei dem in Kap. 6 vorgestellten nicht-linearen Plasmaemitter zu einer Verstärkung der THz-Emission führen könnte. Allerdings ist auch denkbar, dass die zur Anpassung der Plasmafrequenz notwendige Reduzierung der Teilchendichte mittels einer Reduzierung des Drucks zu einer so starken Reduzierung des Signals führt, dass trotz der Verstärkung durch die Plasmaschwingungen keine netto Signalsteigerung erfolgt. Diese Thema sollte im Rahmen weiterführender Experimente experimentell untersucht werden. (Siehe hierzu auch die Vorschläge für weiterführende Experimente in Kap. 9.)

⁸Dieser Wert ergibt sich auf Grund der Beugungsbegrenzung für die von Hamster et al. verwendeten Strahldurchmesser und Brennweiten.

5. Plasmaemitter mit externem E-Feld

In diesem Unterkapitel wird der Plasmaemitter, welcher auf einem angelegten externen elektrischen Feld beruht, diskutiert. Dabei wird zunächst die Entstehung der Polarisation innerhalb des Plasmavolumens auf Grund elektrischer Feldabschirmung diskutiert. Dann wird die zeitliche Form und Größe des erzeugten THz-Signals am Ort des Detektors modelliert und mit experimentellen Daten verglichen. Dieses ermöglicht dann auch den Vergleich der gemessenen mit der modellierten Signalamplitude bei einer Variation der externen Feldstärke sowie der Laserpulsenergie. Zuletzt wird noch der Einfluss des Gasdruckes anhand experimenteller Daten diskutiert.

5.1. Beschreibung des Experiments

Zur THz-Erzeugung mit dem Plasmaemitter mit angelegtem externen elektrischen Feld wird (wie in Abb. 5.1 dargestellt) der Anrege-Laserstrahl mittels einer Linse mit einer Brennweite von $f_{opt} = 80$ mm fokussiert um ein Plasma zu erzeugen. Mittels zweier Elektroden, welche im Abstand von 0,75 mm montiert sind, wird ein externes elektrisches Feld von bis zu 10 kV/cm angelegt. Die erzeugte THz-Strahlung wird dann mittels eines Parabolspiegels mit effektiver Brennweite¹ $f_{koll} = 12$ cm kollimiert und mittels eines zweiten Parabolspiegels mit effektiver Brennweite¹ $f_{det} = 5$ cm auf den 1 mm-dicken ZnTe-Detektorkristall fokussiert.

5.2. Elektrische Feldabschirmung im Plasma

In dem Bereich des Plasmavolumens wird nach den Ergebnissen des vorherigen Kapitels ein Plasma mit einer Dichte im Bereich von etwa 25 % (lt. Definition an der Plasmagrenze) bis hin zu etwa 70 % (auf der Strahlachse) der Teilchendichte im Gas bei atmosphärischem Druck ($\rho_{gas}^0 = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) erzeugt. Geht man von einer mittleren relativen Plasmadichte von 50 % aus, so beträgt die absolute Plasmadichte $\rho_{pl} = 1,35 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Damit ergibt sich eine Plasmafrequenz von $\omega_{pl} = 2,1 \cdot 10^{14} \text{ rad s}^{-1}$ ($\hat{=} 33 \text{ THz}$). Wird nun ein Teilchen zu einem Zeitpunkt $t = 0$, bei welchem die Mindestintensität für die Ionisierung überschritten wird, ionisiert, so ist dieses Elektron dem externen elektrischen Feld E_{ext} ausgesetzt. Die Bewegung des Elektrons ist dann gegeben durch die Differentialgleichung

$$m \frac{d^2}{dt^2} x(t) = e E_{ext} - m \omega_{pl}^2 x(t). \quad (5.1)$$

Mit den Anfangsbedingungen $x(t = 0) = 0$ und $\frac{d}{dt} x(t = 0) = 0$ ergibt sich die Lösung

$$x(t) = \frac{e E_{ext}}{m \omega_{pl}^2} (\cos(\omega_{pl} t) + 1). \quad (5.2)$$

¹Genau genommen handelt es sich um 90°-Parabolspiegel. Die effektive Brennweite (also die Brennweite einer vergleichbaren Linse) ist dabei gegeben durch den Abstand des erzeugten Brennpunkts von der Strahlachse des Ausgangsstrahls.

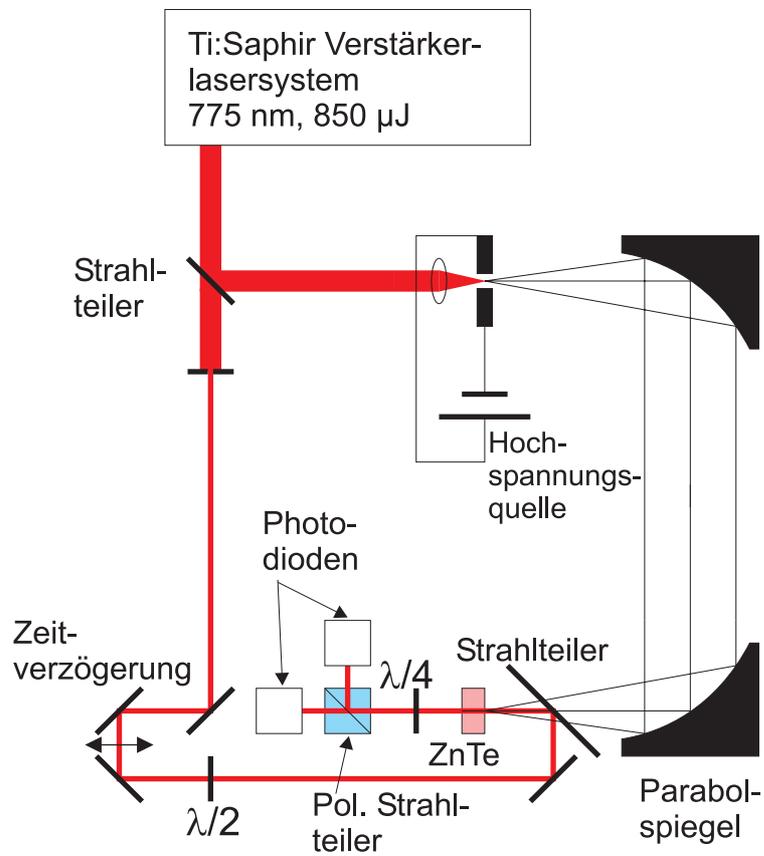


Abbildung 5.1.: Experimenteller Aufbau zur Messung von mit dem Plasmaemitter mit externem elektrischen Feld erzeugter THz-Strahlung.

Mit anderen Worten, das Elektron wird eine oszillatorische Bewegung mit der Plasmafrequenz um einen Schwerpunkt, welcher um die Wegstrecke

$$\Delta x = \frac{eE_{ext}}{m\omega_{pl}^2} \quad (5.3)$$

vom Entstehungsort entfernt ist, ausführen. Dieser Versatz des Schwerpunktes entspricht dabei genau der Wegstrecke, welche nötig ist, um das externe Feld komplett abzuschirmen. Für eine typische Feldstärke von z.B. 10 kV/cm beträgt diese Abschirmlänge nur $4 \cdot 10^{-12}$ m. Es sind also zur Abschirmung des externen Feldes nur minimale Bewegungen nötig. Andererseits erfolgt die Abschirmung auf einer Zeitskala von einer viertel Periode der Plasmaschwingung mit ω_{pl} , was einer Zeitskala von etwa 7,5 fs entspricht. Die Plasmaschwingung selbst ist für die THz-Erzeugung unerheblich, da einerseits keine kohärente Überlagerung der einzelnen an verschiedenen Orten im Plasma erzeugten Schwingungen zu erwarten ist. Andererseits liegt die Frequenz der Plasmaschwingungen im Bereich von etwa 30 THz, so dass evtl. Emissionen mit den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Methoden nicht detektierbar wären.

Im weiteren zeitlichen Verlauf wird das Plasma wie in Kap. 4.1.3 dargestellt auf einer Zeitskala rekombinieren, welche deutlich langsamer ist, als die für die THz-Emission relevanten Prozesse. Mit abnehmender Plasmadichte wird also die zur Abschirmung nötige räumliche Verschiebung von Elektronen und Ionen zunehmen. Die Abschirmung wird also bis zum quasi vollständigen Verschwinden des Plasmas aufrechterhalten.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das externe Feld von dem erzeugten Plasma praktisch instantan vollkommen abgeschirmt wird. Damit wird innerhalb des Plasmas eine Polarisation erzeugt, deren Größe exakt durch das externe Feld vorgegeben wird.

5.3. Modellierung des zeitlichen THz-Signals

Da, wie zuvor dargestellt, beim Plasma-Emitter mit externem Feld davon ausgegangen werden kann, dass das externe elektrische Feld in den Bereichen, in welchen ein Plasma erzeugt wird, praktisch instantan vollständig abgeschirmt wird, ergibt sich für die nichtlineare Polarisation innerhalb des Plasmas

$$P_{NL}(z, r, t) = \epsilon_0 E_{ext} \begin{cases} 1, & \text{falls } \begin{cases} I_{opt}(r', z', t^* + \frac{z'}{c_0}) > I_{ion} \\ \text{für beliebiges } t^* \\ \text{mit } -\infty < t^* < t, \end{cases} \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases} \quad (5.4)$$

Für das nach Gleichung 4.37 definierte retardierte Dipolmoment, also das Integral über die raumzeitliche Polarisierung, ergibt sich damit

$$\begin{aligned} p_{pl}^{ret}(t) &= \int_{V'} P_{pl}(z', r', t + \frac{z'}{c_0}) dV' \\ &= \epsilon_0 E_{ext} V_{pl}^{ret}(t), \\ \text{mit } V_{pl}^{ret}(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d^3 r' \begin{cases} 1, & \text{falls } \begin{cases} I_{opt}(r', z', t^* + \frac{z'}{c_0}) > I_{ion} \\ \text{für beliebiges } t^* \\ \text{mit } -\infty < t^* < t, \end{cases} \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases} \end{aligned} \quad (5.5)$$

Dabei wurde das Integral so definiert, dass ein Volumenelement immer dann zum Plasmavolumen beiträgt, wenn in diesem Volumenelement die Intensitätsschwelle zu einem beliebigen Zeitpunkt t^* vor der Zeit t überschritten wurde. Damit wurde mathematisch die angenommene unendlich lange Rekombinationszeit des Plasmas (vergl. Kap. 4.1.3) berücksichtigt. Drückt man im weiteren $I_{opt}(r, z, t)$ aus als

$$I_{opt}(r, z, t) = I_{opt}^0 \cdot F(r, z) \cdot T\left(t - \frac{z}{c_0}\right),$$

$$\text{mit } I_{opt}^0 = \frac{4\sqrt{\ln(2)}J_{opt}}{\sqrt{\pi}\tau_p\pi r_0^2}.$$
(5.6)

ergibt sich für $V_{pl}^{ret}(t, J_{opt})$ der Ausdruck

$$V_{pl}^{ret}(t, J_{opt}) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d^3r' \begin{cases} 1, & \text{falls } \begin{cases} I_{opt}^0 \cdot F(r', z') \cdot T(t^*) > I_{ion} \\ \text{für beliebiges } t^* \\ \text{mit } -\infty < t^* < t, \end{cases} \\ 0, & \text{sonst} \end{cases}$$

$$= \begin{cases} V_{pl}^0(J_{opt} \cdot T(t)), & t < 0, \\ V_{pl}^0(J_{opt}), & t \geq 0, \end{cases}$$

$$\text{mit } V_{pl}^0(J_{opt}^*) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} d^3r' \begin{cases} 1, & \text{falls } \frac{4\sqrt{\ln(2)}J_{opt}^*}{\sqrt{\pi}\tau_p\pi r_0^2} \cdot F(r', z') > I_{ion} \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases}$$
(5.7)

Dabei wurde berücksichtigt, dass $T(t)$ als Gauß-Puls für $t < 0$ ($t > 0$) streng monoton steigt (fällt). Anders ausgedrückt heißt das, dass das Maximum von $J_{opt} \cdot T(t^*)$ für beliebiges t^* mit $-\infty < t^* < t$ für $t < 0$ den Wert $J_{opt} \cdot T(t)$ annimmt und zum Zeitpunkt $t^* = t$ erreicht wird. Für $t > 0$ nimmt das Maximum von $J_{opt} \cdot T(t^*)$ für beliebiges t^* mit $-\infty < t^* < t$ jedoch den Wert J_{opt} an und wird zum Zeitpunkt $t^* = 0$ erreicht. $V_{pl}^0(J_{opt}^*)$ entspricht dabei der Definition des maximal erreichten Plasmavolumens aus Kap. 4.2 bzw. Kap. 4.3.

Basierend auf Gleichung 4.38 kann so mit Gleichung 5.5 und 5.7 das erzeugte THz-Signal im Brennpunkt des Detektors beschrieben werden. Es ergibt sich also:

$$E_{det}(t, J_{opt}) = \frac{A_{THz}}{8\pi^2\epsilon_0 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^3}{\partial t^3} P_{pl}^{ret}(t).$$

$$= \frac{A_{THz} E_{ext}}{8\pi^2 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^3}{\partial t^3} V_{pl}^{ret}(t, J_{opt})$$

$$= \frac{A_{THz} E_{ext}}{8\pi^2 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^3}{\partial t^3} \begin{cases} V_{pl}^0(J_{opt} \cdot T(t)), & t < 0, \\ V_{pl}^0(J_{opt}), & t \geq 0. \end{cases}$$
(5.8)

Da die Funktion $V_{pl}^0(J_{opt})$ einerseits analytisch nach Gl. 4.22 und andererseits aus den numerischen Berechnungen in Kap. 4.3 bekannt ist, kann mit Gleichung 5.8 im Prinzip die vom Plasmaemitter erzeugte THz-Signalfom am Ort des Detektors bestimmt werden. Allerdings treten bedingt durch

die abschnittsweise Definition von $V_{pl}^0(J_{opt}^*)$ in Gl. 5.7 und von $E_{det}(t)$ in Gl. 5.8 in Verbindung mit der dritten Zeitableitung in $E_{det}(t)$ Unstetigkeitsstellen auf, welche physikalisch nicht sinnvoll sind und die Erzeugung von Frequenzkomponenten mit beliebig hohen Frequenzen suggerieren. Da wir im Rahmen des hier vorgestellten Modells jedoch nur an der Beschreibung von Zeitbereichssignalformen mit detektierbaren Frequenzkomponenten interessiert sind, bietet es sich an die mittels Gleichung 4.38 gewonnenen Signalformen im Frequenzraum zu filtern. Dazu wurde bei der Berechnung der erzeugten Zeitbereichs-THz-Signale im Frequenzraum folgende Filterfunktion verwendet:

$$E_{det}^*(t) = \mathcal{F}^{-1} \left(\exp \frac{-\omega^2 \tau_{filter}^2}{4} \mathcal{F}(E_{det}(t)) \right) \quad (5.9)$$

Dabei wurde eine Filterzeitkonstante von $\tau_{filter} = 30$ fs angenommen. Dieses schränkt die Gültigkeit der modellierten Signalform auf eine spektrale Bandbreite von etwa 10 THz ein. Zur Beantwortung der Frage, inwieweit noch Signalkomponenten mit deutlich höheren Frequenzen erzeugt werden, wäre eine deutlich präzisere Modell nötig, in dem vor allem der Übergang vom nicht-ionisierten zum ionisierten Zustand nicht wie hier vereinfacht als stufenförmig sondern mit der konkreten zeitlichen Form (wie z.B. in Abb. 4.5 dargestellt), berücksichtigt wird.

Die in Rahmen des hier dargestellten Modells berechnete THz-Signalform ist in Abb.5.2 (c) zusammen mit der zeitlichen Entwicklung des absoluten (a) bzw. des normierten (b) Plasmavolumens jeweils für verschiedene Laserpulsenergien im Bereich von $50 \mu\text{J}$ bis $500 \mu\text{J}$ dargestellt. Die Modellierung ergibt eine Signalform, welche durch einen positiven Hauptpuls mit jeweils einem negativen Puls vor und nach dem Hauptpuls gekennzeichnet ist. Diese Signalform ergibt sich auf Grund der dritten Ableitung (vergl. Gl. 5.8) des im Plasma erzeugten retardierten Dipolmoments bzw. des retardierten Plasmavolumens mit stufenförmigem Verlauf.

Die spektrale Bandbreite des Signals ist allerdings ungewöhnlich hoch, was man bereits an der Halbwertsbreite des modellierten Hauptpulses von etwa 100 fs erkennt. Dies lässt vermuten, das der Plasmaemitter ein großes Potential zur Erzeugung von deutlich höheren Frequenzkomponenten (z.B. im Bereich von 3-30 THz) hat, als im Rahmen dieser Arbeit detektiert werden konnten. Dieses wird insbesondere deutlich, wenn man die modellierte Signalform mit der spektralen Empfindlichkeit des Detektors filtert (vergl. Kap. 2.5). Dieses ist in Abb. 5.2 (d) bzw. in Abb. 5.3 (links) dargestellt. Man erkennt das die maximale Amplitude des Signals deutlich (etwa um den Faktor 40) reduziert ist und die Halbwertsbreite mit ca. 300 fs deutlich länger ist. Die so gewonnenen Signalformen können jetzt sinnvoll mit den experimentellen Daten verglichen werden. Dieses ist in Abb. 5.3 dargestellt. Dabei fällt auf dass die experimentellen Signalamplituden überraschend gut wiedergegeben werden. Beim zeitlichen Verlauf fällt jedoch auf, dass trotz der Berücksichtigung der spektralen Empfindlichkeit des Detektors die Halbwertsbreite des Hauptpulses nur unzureichend (ca. 300 fs modelliert, ca. 1 ps gemessen) wiedergegeben wird. Mögliche Ursachen für diese Abweichungen sollen weiter unten im Zusammenhang mit der Darstellung der Spektralen Daten diskutiert werden.

Zum Vergleich sind in Abb. 5.3 zusätzlich Zeitbereichsdaten von einer Messung in einer Druckkammer (vergl. Kap. 5.6) bei atmosphärischem Druck dargestellt. Der Vergleich zeigt, dass die Druckkammer außer einer Reduktion der absoluten Feldamplitude um einen Faktor 4 (vergl. Kap. 5.6) keinerlei Einfluss auf die gemessene THz-Signalform hat.

In Abb. 5.4 (links) ist die modellierte spektrale Flächenenergiedichte am Ort des Emitters mit und ohne Berücksichtigung der spektralen Detektorempfindlichkeit dargestellt. Das Spektrum der erzeugten THz-Flächenenergiedichte zeigt, dass man auf Basis des vorgestellten Modells eine Er-

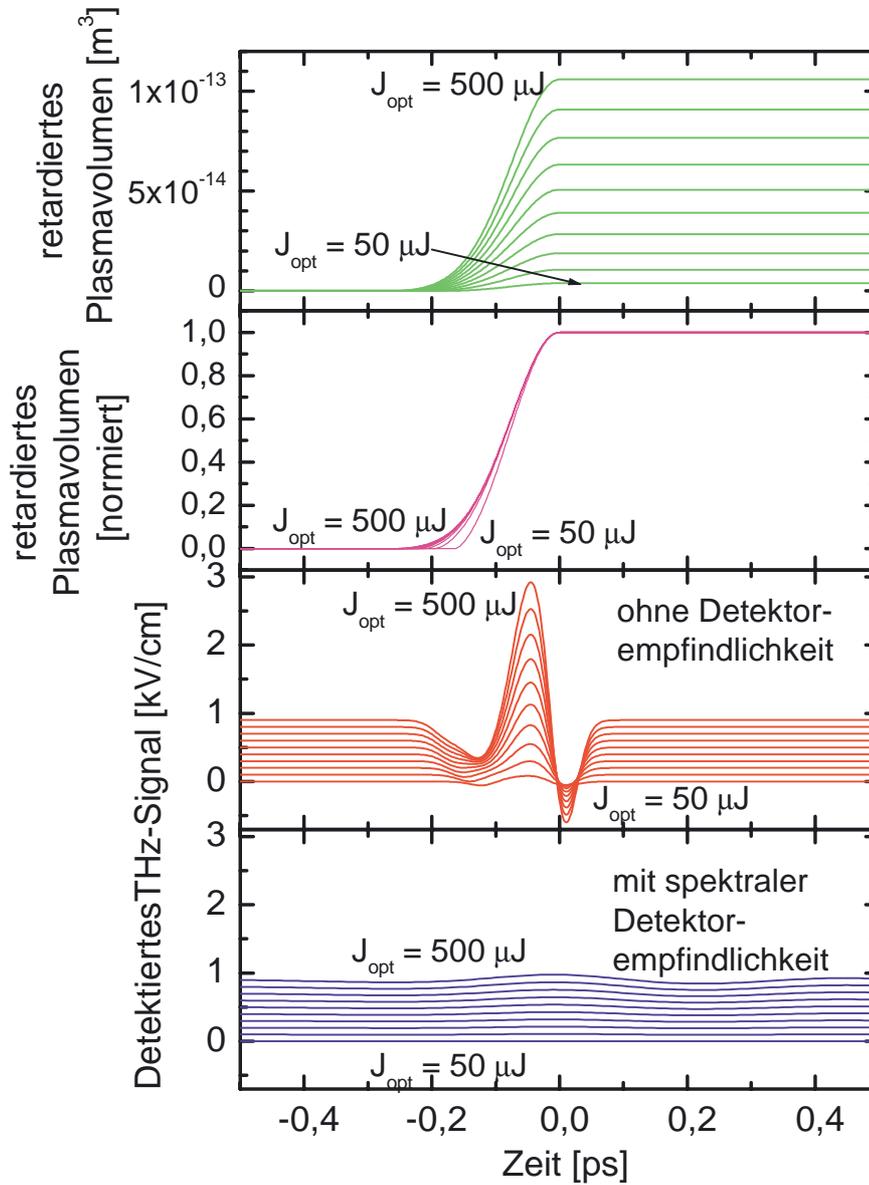


Abbildung 5.2.: Modellierter zeitlicher Verlauf des retardierten Plasmavolumens in absoluten Einheiten (a) und normiert (b) sowie der THz-Signalform ohne (c) und mit (d) Berücksichtigung der spektralen Detektoreigenschaften für ein konstantes externes Feld von 10 kV/cm und für Laserpulsenergien von 50 μJ bis 500 μJ. Die THz-Signalformen wurden dabei um jeweils 0,1 kV/cm versetzt dargestellt.

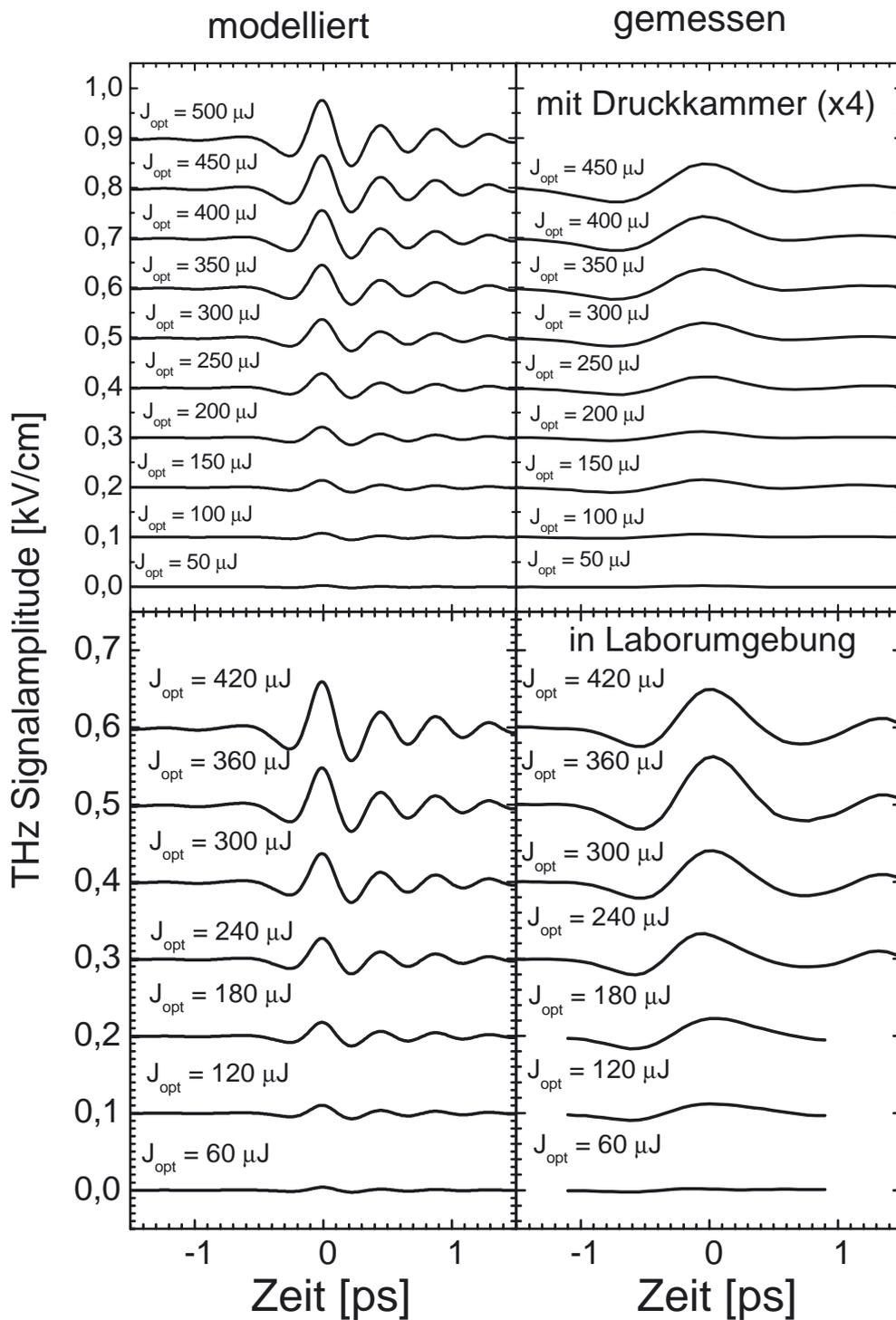


Abbildung 5.3.: Gemessene und modellierte THz-Signalförm für verschiedene Laserpulsenergien im Bereich von etwa $50 \mu\text{J}$ bis $500 \mu\text{J}$ für konstantes externes Feld.

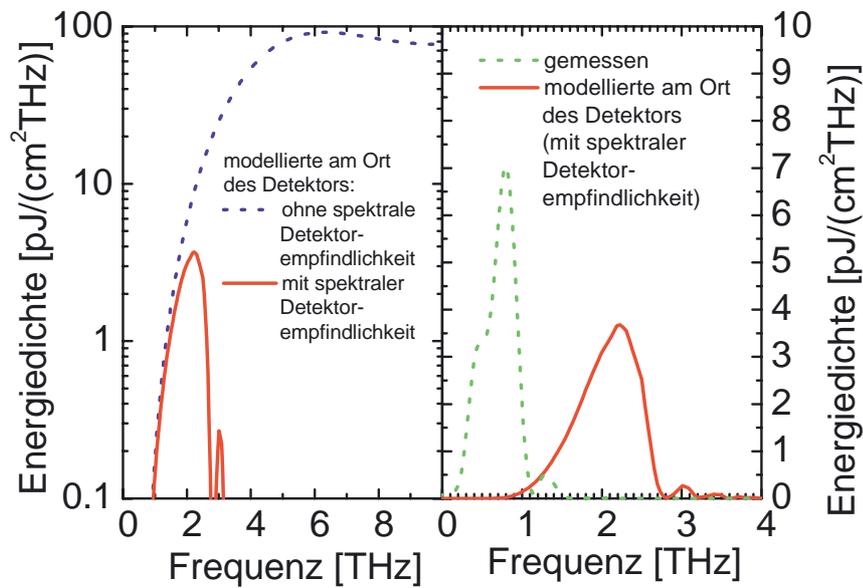


Abbildung 5.4.: Darstellung der modellierten und der gemessenen spektralen Flächenenergiedichte am Ort des Detektors für einen Laserpuls mit $420 \mu\text{J}$, und ein externes Feld von 10 kV/cm .

zeugung von deutlich höheren Frequenzkomponenten erwartet, als mit den hier verwendeten Methoden detektierbar sind. Allerdings zeigt der in Abb. 5.4 (rechts) dargestellte Vergleich der modellierten mit der experimentell gewonnenen detektierbaren Flächenenergiedichte, dass das Modell in Verbindung mit der berücksichtigten spektralen Empfindlichkeit des Detektors deutlich höhere Frequenzkomponenten (etwa um 2 THz) voraussagt, als experimentell gefunden werden (etwa um 1 THz).

Damit stellt sich die Frage, warum keine vom Modell vorhergesagten messbaren Frequenzkomponenten im Bereich von $1\text{-}2 \text{ THz}$ gefunden werden. Diese Abweichungen sind vermutlich darauf zurückzuführen, dass im Rahmen des hier dargestellten Modells für die THz-Erzeugung keine Brechungsindexeffekte berücksichtigt wurden, also jegliche Phasenfehlanpassung zwischen optischem und THz-Puls im Plasma vernachlässigt wurde. Diese Annahme ist in der Realität vermutlich nur eingeschränkt der Fall, da ja optischer Puls, THz-Puls und die Grenzfläche zwischen nichtionisiertem Gas und Plasma kopropagieren. Damit wird zumindest ein Teil des THz-Pulses von dem Plasma mit abweichendem Brechungsindex beeinflusst werden. Eine Verfeinerung des Modells in diesem Punkt wäre zukünftig sicher wünschenswert.

Eine zweite mögliche Ursache für die Abweichungen liegt in der Tatsache, dass bei der Beschreibung der Strahlausbreitung der THz-Strahlung ja in der Ebene des kollimierten THz-Strahls (also hinter dem ersten Parabolspiegel) ein konstantes gleichgroßes und zeitlich gleichförmiges THz-Signal angenommen wurde. Dieses gilt streng genommen nur für eine perfekt punktförmige Quelle. Auf Grund der endlichen Ausdehnung des Plasmas sind auch hier Abweichungen zu erwarten, die im Modell nicht berücksichtigt wurden.

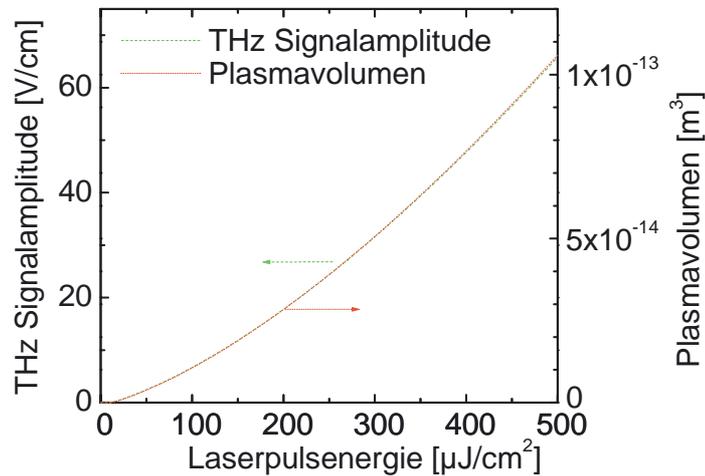


Abbildung 5.5.: Modellierter THz-Signalamplitude am Ort des Detektors unter Berücksichtigung der spektralen Detektorempfindlichkeit und berechnetes maximales Plasmavolumen als Funktion der Laserpulsenergie für konstantes externes Feld. Die Skalierung der Daten wurde künstlich so gewählt, dass ein möglichst gutes Überlappen der Kurven erreicht wird.

5.4. Variation der Laserpulsenergie

Mit dem im vorhergehenden Unterkapitel entwickelten Modell für den THz-Emissionsprozess kann die erwartete detektierte THz-Amplitude auf Basis des zeitabhängigen retardierten Plasmavolumens berechnet werden. Dieses zeigt im zeitlichen Verlauf ein stufenförmiges Verhalten (vergl. Abb. 5.2). Dabei ist die Stufenhöhe nur von dem bei der jeweiligen Laserpulsenergie erreichbaren maximalen Plasmavolumen abhängig, so dass man zunächst eine Proportionalität zwischen dem maximal erreichten Plasmavolumen und der THz-Signalamplitude erwarten würde. In der Steilheit des Anstiegs ergeben sich allerdings leichte Variationen mit der Laserpulsenergie, die sich dadurch erklären, dass mit steigender Laserpulsenergie schon zu immer früheren Zeitpunkten die zur Erzeugung eines Plasmas notwendige Mindestintensität erreicht wird. Dabei ist grundsätzlich zu erwarten, dass eine solche Änderung der Steilheit zu einer Änderung des am Ort des Detektors erzeugten THz-Signals führt, da dieses proportional zur dritten Zeitableitung des retardierten Plasmavolumens ist. Berücksichtigt man jedoch auch die spektrale Empfindlichkeit des Detektors und vergleicht die in Abb. 5.5 als Funktion der Laserpulsenergie dargestellte modellierte THz-Signalamplitude mit dem ebenfalls dargestellten maximal erreichbaren Plasmavolumen, so wird deutlich, dass der Verlauf der THz-Signalamplitude allein durch die Variation des maximal erreichbaren Plasmavolumens mit der Laserpulsenergie erklärt werden kann.

Vergleicht man, wie in Abb. 5.6 dargestellt, die modellierte mit der gemessenen THz-Amplitude, so zeigt sich, dass das vorgestellte Modell die Änderung der THz-Amplitude mit der Laserpulsenergie gut erklären kann. Allerdings treten bei Laserpulsenergien von mehr als $300 \mu\text{J}$ Abweichungen der gemessenen Signalamplitude nach unten relativ zum erwarteten Verlauf auf. Dieses ist vermutlich auf im Modell nicht berücksichtigte Absorptionsmechanismen (wie z.B. der optischen und der THz-Strahlung im Plasma) und ebenfalls nicht berücksichtigter Phasenfehlpassung zurück-

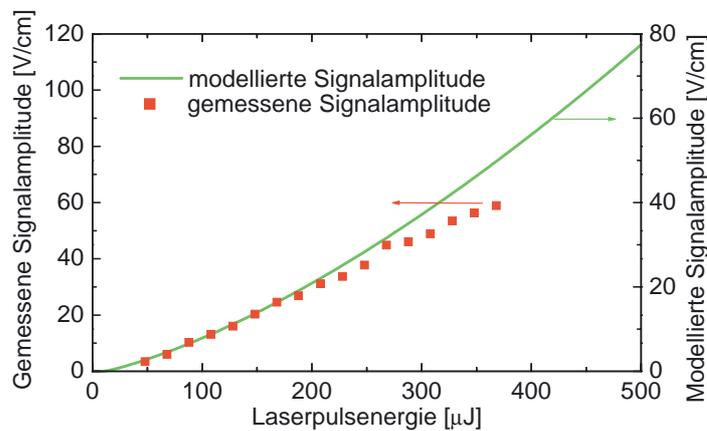


Abbildung 5.6.: Gemessene und modellierte THz-Signalamplitude als Funktion der Laserpulsenergie für konstantes externes Feld. Die Skalierung der Daten wurde künstlich so gewählt, dass ein möglichst gutes Überlappen der Kurven erreicht wird.

zuführen. Diese beiden Mechanismen werden natürlich bei einer Steigerung des Plasmavolumens bei höheren Laserpulsenergien von größerer Bedeutung sein.

5.5. Variation der Vorspannung

In Abb. 5.7 ist die experimentell bestimmte Abhängigkeit der THz-Amplitude von der Vorspannung dargestellt. Die nach dem dargestellten Modell erwartete lineare Abhängigkeit der THz-Signalamplitude von der Vorspannung und damit auch von der externen Feldstärke wird im wesentlichen experimentell bestätigt. Die Abweichungen im Bereich niedriger bzw. ganz abgeschalteter Vorspannungen ist auf die Erzeugung von THz-Signalen auf Grund ponderomotiver Kräfte zurückzuführen (vergl. Kap. 4.5). Obwohl diese Art der THz-Erzeugung ja in Vorwärtsrichtung keine Signalbeiträge liefern sollte, führen Asymmetrien im Detektionsraumwinkelbereich oder im Laserstrahlprofil zu einem messbaren THz-Signal, so dass auch ohne externes Feld eine schwache THz-Emission vorliegt.

5.6. Variation des Gasdruckes

In diesem Unterkapitel soll untersucht werden, wie sich der Plasmaemitter mit angelegtem externen Feld bei einer Variation des absoluten Gasdruckes verhält. Dabei steht insbesondere die Fragestellung im Vordergrund, ob eine Variation des Gasdruckes eine Steigerung der Effizienz des Plasmaemitters mit externem Feld ermöglicht.

5.6.1. Variation des Gasdruckes bei konstanter Vorspannung

Da die Funktionsweise des Plasmaemitter auf einer quasi instantanen Abschirmung des externen Felds beruht, hängt die Größenordnung der THz-Emission bei konstanter externer Feldstärke im

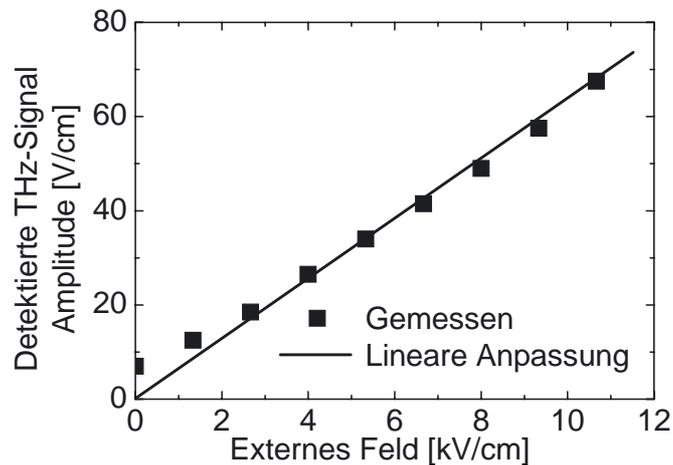


Abbildung 5.7.: Gemessene THz-Signal Amplitude als Funktion der Vorspannung.

wesentlichen nur vom maximal erreichten Plasmavolumen ab. Damit reduziert sich ein möglicher Einfluss des Gasdruckes auf die THz-Emission auf die Fragestellung, inwieweit das maximal erzeugte Plasmavolumen vom Druck abhängt. Diese Schlussfolgerung ist allerdings nur dann richtig, wenn die erreichbare Plasmadichte, die ja durch die zur Verfügung stehende Teilchendichte im Gas begrenzt ist, genügend hoch ist, so dass eine quasi instantane vollständige Abschirmung des externen Feldes möglich ist. Für Drücke oberhalb des atmosphärischen Drucks ist dieses jedoch immer der Fall.

Bezüglich der Fragestellung wie sich das maximal erreichbare Plasmavolumen bei einer Variation des Druckes verhält, muss zunächst festgestellt werden, dass die Intensitätsschwelle I_{on} für eine signifikante Ionisierung des Gases nicht druckabhängig ist, da ja die einzelnen Moleküle im Gas bezüglich ihrer Ionisierbarkeit unabhängig sind. Damit ist eine eventuelle Variation des Plasmavolumens nur indirekt über eine geänderte räumliche Intensitätsverteilung im Brennpunktbereich denkbar. Da, wie in Kap. 4.2 dargestellt, diese Intensitätsverteilung im Brennpunktbereich stark durch nichtlineare Brechungsindexeffekte wie Kerr-Selbstfokussierung und Plasma-Defokussierung beeinflusst wird, stellt sich die Frage, wie sich die Intensitätsverteilung und damit das maximal erreichbare Plasmavolumen als Funktion des Druckes verhalten. Dazu ist das in Kap. 4.2 dargestellte Modell insoweit zu modifizieren, dass der nichtlineare Brechungsindex des Gases n_2 linear mit dem absoluten Druck skaliert. Ebenso skaliert die Teilchendichte des Gases ρ_{gas} in der Differentialgleichung für die Plasmadichte linear mit dem absoluten Gasdruck.

Leider ist das in Kap. 4.2 dargestellte einfache Modell auf Grund von numerischen Instabilitäten schon für Drücke von oberhalb von 5 bar nicht mehr in der Lage die Intensitätsverteilung sinnvoll zu beschreiben. Dieses kann damit erklärt werden, dass die prinzipiell bei hohen Drücken möglichen Plasmadichten beim Erreichen der Intensitätsschwelle für die Ionisierung sofort zu einer extrem stark defokussierenden Wirkung führen. Damit hängt die Divergenz des Strahls nach dem Brennpunkt in diesem Extremfall willkürlich von den Parametern des numerischen Modells wie der Schrittweite und den Anfangsbedingungen ab und ist damit nicht mehr sinnvoll. Eine adäquate Beschreibung der Intensitätsverteilung im Brennpunkt und eine sinnvolle Bestimmung des Plasma-

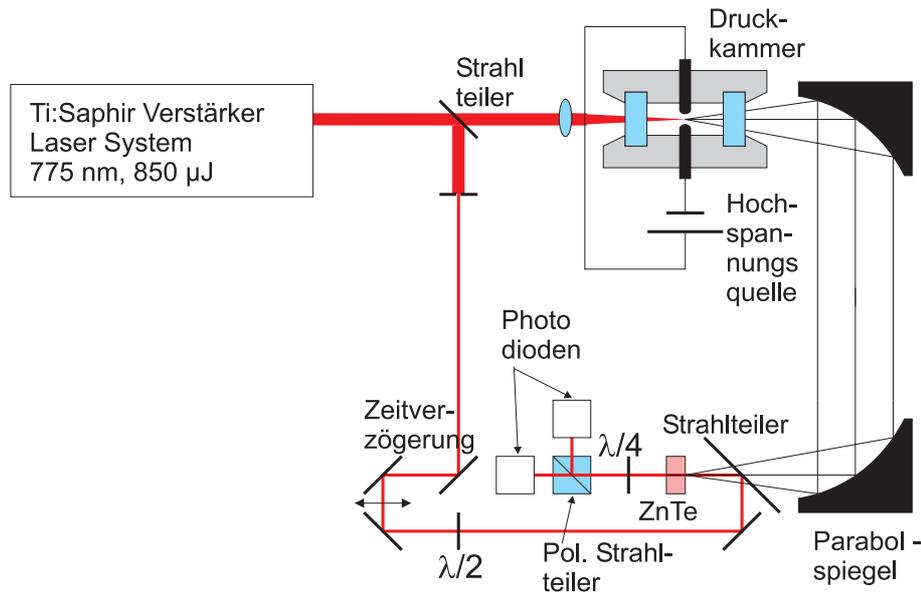


Abbildung 5.8.: Experimenteller Aufbau zur Durchführung der Messungen mit dem Plasma-Emitter mit externem Feld bei erhöhtem Gasdruck.

volumens ist daher nur mit deutlich aufwendigeren numerischen Modellen (wie z.B. in Ref. [105] dargestellt) möglich. Im Rahmen dieser Arbeit muss die Diskussion daher auf experimentelle Daten beschränkt bleiben.

Zur experimentellen Untersuchung der Druckabhängigkeit der THz-Emission, wurde daher der Messaufbau, wie in Abb. 5.8 dargestellt, insoweit modifiziert, als dass der Laserstrahl innerhalb einer Druckkammer fokussiert wurde. Diese Druckkammer erlaubt Experimente bei Gasdrücken von bis zu 46 bar, welche mittels einer Druckgasflasche realisiert wurden. Gleichzeitig ist das Anlegen eines externen elektrischen Feldes mittels zweier abgerundeter Edelmetallelektroden welche im Abstand von 0,75 mm angeordnet sind, möglich. Als Fenster wurden sowohl für die optische als auch für die erzeugte THz-Strahlung 1 cm dicke Platten aus wasserfreiem Quarzglas (Suprasil 300) verwendet. Die mit dem modifizierten Messaufbau detektierten THz-Signale sind relativ zum Aufbau ohne Druckkammer um den Faktor 4 in der elektrischen Feldamplitude reduziert. Diese Reduzierung wird etwa zu gleichen Teilen durch die eingeschränkte Transparenz des Fensters für die THz-Strahlung und durch eine Begrenzung des Raumwinkels, unter dem die THz-Strahlung aus der Kammer austreten kann, verursacht.

In der Darstellung in Abb. 5.9(a) erkennt man, dass nicht nur die Amplitude, sondern auch die THz-Signalförmigkeit unabhängig vom Druck ist. Eine solche Änderung der Signalförmigkeit würde auf eine evtl. Änderung des zeitlichen Verlaufs des retardierten Plasmavolumens (vgl. Kap. 5.3) hindeuten. Hier ist aber allenfalls ein minimal früheres Einsetzen der Ionisierung auf Grund von Selbstfokussierungseffekten zu erwarten. Solche kleine Änderungen des retardierten Plasmavolumens werden aber vermutlich durch die begrenzte spektrale Detektorempfindlichkeit überdeckt.

Die relative Verschiebung der zeitlichen THz-Signalförmigkeit hin zu späteren Zeiten bei einer Erhöhung des Druckes erklärt sich durch die Änderung des Brechungsindex des Gases innerhalb der Druckzelle.

In Abb. 5.9(b) sind die gemessenen THz-Signalamplituden als Funktion des Drucks für zwei

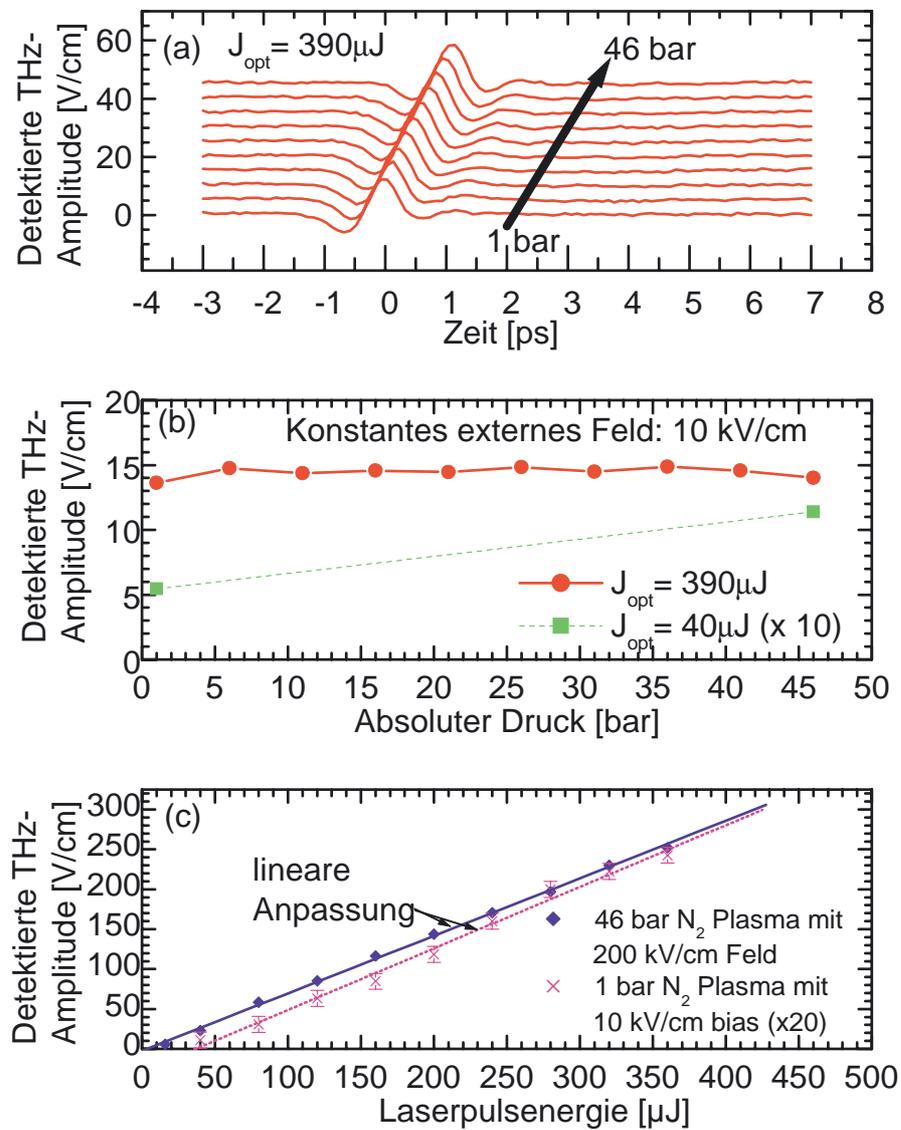


Abbildung 5.9.: Gemessene THz-Amplitude bei konstantem externen Feld als Funktion des absoluten Druckes (oben) und bei 1 bar bzw. 46 bar als Funktion der Laserpulsenergie (mitte). Zusätzlich ist die gemessene THz-Signalförmung im zeitlichen Verlauf für verschiedene Drücke dargestellt. (unten)

verschiedene Laserpulsenergien dargestellt. Die experimentellen Daten bei hoher Laserpulsenergie von $390 \mu\text{J}$ zeigen, dass das THz-Signal sowohl bzgl. der Größenordnung als auch bzgl. des zeitlichen Verlaufs im Bereich von 1 bar bis 46 bar (absolut) und bei konstantem externem Feld sowie konstanter Laserpulsenergie praktisch unabhängig vom Gasdruck ist. Damit kann man schlussfolgern, dass auch das erreichte maximale Plasmavolumen praktisch druckunabhängig ist. Auf Basis der Ergebnisse bzgl. der Strahlausbreitung in Anwesenheit nichtlinearer Brechungsindexeffekte aus Kap.4.2 kann dieses Verhalten damit erklärt werden, das ja die maximale Intensität bzw. die maximale Plasmadichte jeweils auf der Strahlachse durch die Plasmadefokussierung auf Werte begrenzt sind, welche verhältnismäßig unabhängig von der Laserpulsenergie sind. Lediglich der minimale Strahlradius, bei welchem die Defokussierung erfolgt, ändert sich mit der Laserpulsenergie. Bei höheren Drücken wird sich an diesem Verhalten qualitativ nichts ändern. Lediglich der Übergang vom konvergenten zum divergenten Strahl im Bereich der Strahltaile wird bei erhöhtem Druck abrupt erfolgen. Dieser Effekt wird aber den minimalen Strahlradius und die Ausdehnung des Plasmas entlang der Strahlachse kaum verändern. Da auch sonst keine Abweichungen in der Form des Plasmavolumens zu erwarten sind, kann so die Unabhängigkeit des maximal erreichbaren Plasmavolumens anschaulich gut erklärt werden.

Bei niedrigen Laserpulsenergien ändert sich die Signalamplitude bei einer Variation des Drucks dagegen signifikant. Die Ursache hierfür wird anhand der in Abb. 5.9(mitte) dargestellten Änderung der THz-Signalamplitude bei einer Variation der Laserpulsenergie deutlich. Hier erkennt man für niedrige Laserpulsenergien ein qualitativ anderes Verhalten. Die bei 1 bar beobachtete Mindestlaserpulsenergie von etwa $30\text{-}40 \mu\text{J}$, unterhalb derer keine THz-Emission beobachtet wird, ist bei 46 bar Druck auf etwa $5\text{-}10 \mu\text{J}$ reduziert. Dieses ist vermutlich auf die bei hohen Drücken deutlich stärkeren Selbstfokussierungseffekte zurückzuführen. Konkret heißt das, dass schon bei niedrigen Laserpulsenergien im Bereich von $10\text{-}30 \mu\text{J}$ eine deutliche Selbstfokussierung einsetzt, so dass Strahlradien erreicht werden, welche deutlich kleiner sind als der im Vakuum erreichbare Strahlradius. Dieses führt dann auch zu einer Überhöhung der maximal auf der Strahlachse erreichten Intensität, so dass die Intensitätsschwelle für die Ionisierung überschritten werden kann.

5.6.2. Druckabhängigkeit von Durchbruchfeldstärke und maximalem THz-Signal

In diesem Unterkapitel soll die Steigerung der THz-Signal Amplitude bei erhöhtem Druck untersucht werden, wenn jeweils das auf Grund von Feld-Durchbrüchen (elektrischen Überschlägen) begrenzte maximal mögliche externe Feld angelegt wird.

Die Durchbruchspannung U_{Br} ('Br' von engl. „Breakdown“) ist definiert als die an den Elektroden angelegte Spannung, bei der mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit Durchbrüche oder mit anderen Worten elektrische Überschläge stattfinden. Nach dem Paschen-Gesetz [122] ist bekannt, dass die Durchbruchspannung eine Funktion des Produkts von absolutem Druck P_{abs} mit dem Elektrodenabstand l_{gap} ('gap' von engl. „Gap“) ist. Für niedrige Drücke weist $U_{Br}(P_{abs} \cdot l_{gap})$ ein Minimum auf. Für Drücke oberhalb von atmosphärischem Druck und unter der Annahme homogener Felder kann die Durchbruchspannung ausgedrückt werden als [123]

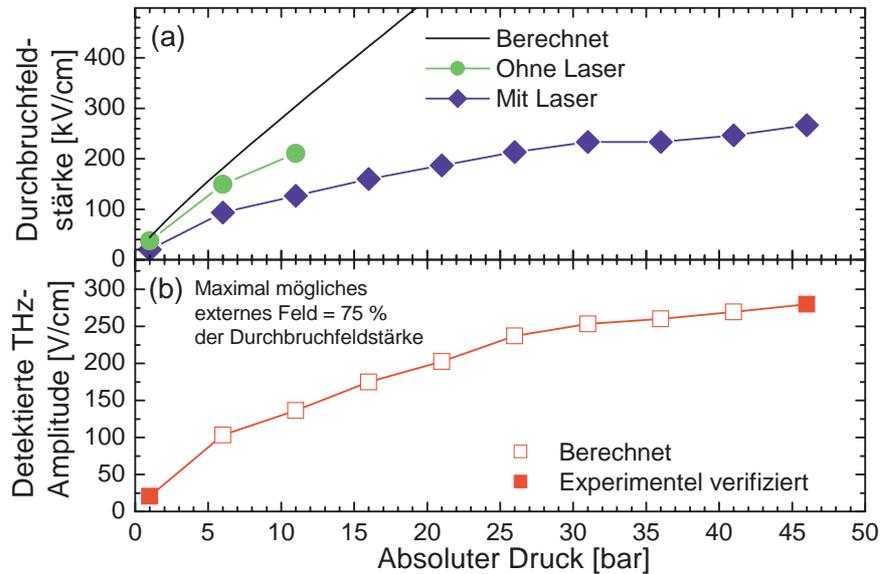


Abbildung 5.10.: Berechnete sowie mit bzw. ohne lasergeneriertem Plasma gemessene Durchbruchfeldstärke (oben) und THz-Amplitude bei maximal möglichem externen Feld (= 75% der Durchbruchfeldstärke) jeweils als Funktion des absoluten Gasdruckes.

$$\begin{aligned}
 U_{Br}(P_{abs} \cdot l_{gap}) &= C_1 \cdot (P_{abs} \cdot l_{gap}) + C_2 \cdot \sqrt{P_{abs} \cdot l_{gap}}, \\
 \text{mit } C_1 &= 20,5 \frac{\text{kV}}{\text{cm bar}} \\
 \text{sowie } C_2 &= 6,5 \frac{\text{kV}}{\sqrt{\text{cm bar}}}.
 \end{aligned}$$

(5.10)

Dabei wurden die Zahlenwerte für Stickstoff verwendet. Die so berechnete Durchbruchfeldstärke ist in Abb. 5.10(a) für den in der Druckkammer verwendeten Elektrodenabstand von 0,75 mm dargestellt. Im Vergleich mit den ebenfalls dargestellten experimentell ermittelten Durchbruchfeldstärken ohne lasererzeugtes Plasma fällt in den absoluten experimentellen Werten eine Abweichung nach unten um ca. 30 % relativ zu den theoretisch erwarteten Werten auf. Diese Abweichung ist vermutlich auf Feldinhomogenitäten durch die verwendeten abgerundeten Elektroden und eine nicht ausreichende Oberflächenqualität der Elektroden zurückzuführen. Der Einfluss der Oberflächenqualität auf die Durchbruchfeldstärke erklärt sich dabei dadurch, dass auf Grund der Oberflächenrauigkeit bzw. auf Grund von Verunreinigungen lokale Feldüberhöhungen auftreten, die dann als Ausgangspunkt für einen Überschlag wirken.

Mit lasererzeugtem Plasma zwischen den Elektroden ist die Durchbruchfeldstärke noch sehr viel stärker reduziert. Dieses erklärt sich dadurch, dass das Plasma als idealer Startpunkt für einen Überschlag dient, da ja hier schon ionisiertes Gas vorliegt, welches sonst erst im Rahmen des Überschlags erzeugt wird.

Die experimentellen Daten zeigen jedoch, dass trotz der deutlichen Reduzierung der Durchbruchfeldstärke relativ zum theoretisch erwarteten Verlauf eine Erhöhung der Durchbruchfeldstärke von etwa 15 kV/cm bei atmosphärischem Druck auf etwa 250 kV/cm bei 46 bar erfolgt.

Für die Experimente zur THz-Erzeugung ist es sinnvoll, externe Feldstärken von maximal 75 % der Durchbruchfeldstärke zu verwenden, um Überschläge sicher zu vermeiden. Da die THz-Amplitude linear mit dem angelegtem Druck skaliert, kann die maximal erreichbare THz-Amplitude als Funktion des Druckes einfach ermittelt werden, wenn die bei konstantem elektrischen Feld von 10 kV/cm gemessenen Daten aus Abb. 5.9 (a) auf ein maximal mögliches externes Feld von 75 % der Durchbruchfeldstärke umgerechnet werden. Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Abb. 5.10 (b) dargestellt. Dabei wurde die berechnete THz-Amplitude von 250 V/cm bei 46 bar und bei einem externen Feld von 200 kV/cm experimentell bestätigt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Druckerhöhung als Instrument zur Steigerung der THz-Emission des Plasmaemitters mit angelegtem externen Feld nur begrenzt sinnvoll ist. Grundsätzlich ist zwar auf Grund der höheren Durchbruchfeldstärke eine Steigerung der THz-Feldstärke um einen Faktor 20 erreichbar. Diese Verbesserung muss aber korrigiert werden um die Reduzierung des Signals auf Grund der notwendigen Druckzelle um einen Faktor 4. Damit bleibt nur noch eine Netto-Verbesserung des Signals um einen Faktor 5. Dem stehen allerdings erhebliche experimentelle Komplikationen entgegen. Dies sind zum einen die Verwendung der hohen Drücke von bis zu 46 bar und andererseits die Verwendung von Hochspannungen von bis zu 25 kV.

6. THz-Erzeugung in Plasmen auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten

In dem in diesem Kapitel beschriebenen Experiment zur THz-Erzeugung mittels lasergenerierten Plasmen wird ein Laserpuls mit der optischen Fundamentalfrequenz ($\omega_{\text{opt}} = 2,43 \cdot 10^{15} \text{ 1/s} \hat{=} \lambda_{\text{opt}} 775 \text{ nm}$) mit einem mittels eines BBO-Kristalls erzeugten frequenzverdoppelten Laserpuls mit der optischen Frequenz ($\omega_{\text{SHG}} = 2 \cdot \omega_{\text{opt}} = 4,86 \cdot 10^{15} \text{ 1/s} \hat{=} \lambda_{\text{SHG}} 387,5 \text{ nm}$)¹ überlagert. Die Idee dieses Experiments basiert auf den Arbeiten von Cook et al., welche ein vergleichbares Experiment durchgeführt haben [18, 124]. Von Cook et al. wurden zur Erklärung der THz-Emission zunächst $\chi^{(3)}$ -Effekte² in Luft [18] bzw. in einer späteren Arbeit [124] $\chi^{(3)}$ -Effekte im erzeugten Plasma vorgeschlagen. Der phänomenologische Erklärungsansatz von Cook et al. soll innerhalb dieses Kapitels zunächst als Arbeitshypothese gelten. Dabei werden im Rahmen der vorliegenden Arbeit und in Erweiterung zu den Arbeiten von Cook et al. der BBO-Brennpunkt-Abstand variiert und das BBO-Hintergrundsignal sowie der Einfluss des endlichen Plasmavolumens mit berücksichtigt. Darüber hinaus ermöglicht die hier vorgestellte quantitative Analyse die Bestimmung des absoluten $\chi^{(3)}$ -Werts des erzeugten Plasmas. Leider wurden von Cook et al. keine möglichen Mechanismen zur Erklärung des Zustandekommens der Nichtlinearität dritter Ordnung in laser-erzeugten Plasmen diskutiert. Eine solche Diskussion möglicher mikroskopischer Ursachen für die Nichtlinearitäten erfolgt daher in Kap. 7 dieser Arbeit. Dabei wird zunächst anhand von Literaturdaten die Erzeugung höherer Harmonischer der optischen Fundamentalfrequenz im Plasma diskutiert, da dieser Effekt ebenfalls auf Nichtlinearitäten höherer Ordnung im Plasma beruht. Darüber hinaus wird in Kap. 7 dieser Arbeit ein neuartiges mikroskopisches Modell zur Erklärung der THz-Emission auf Basis von Generationsnichtlinearitäten vorgestellt und anhand der experimentellen Befunde mit dem phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modell verglichen und bewertet.

6.1. Beschreibung des Experiments

Eine Überlagerung zwischen dem Laserpuls mit der Fundamentalfrequenz und dem frequenzverdoppelten Puls wird experimentell realisiert, indem zwischen der optischen Linse und dem Brennpunkt, in welchem das Plasma entsteht, ein $100 \mu\text{m}$ dünner BBO-Kristall eingebracht wird. Der modifizierte Aufbau ist in Abb. 6.1 dargestellt. Die Dicke des BBO-Kristalls wurde dabei so gewählt, dass die Zeitverschiebung zwischen dem Laserpuls mit der Fundamentalfrequenz und dem frequenzverdoppelten Laserpuls, welche auf Grund der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten entsteht, deutlich kleiner ist als die Laserpulslänge.

Zwischen BBO-Kristall und Brennpunkt wurde ferner ein drehbares Glasplättchen mit einer Dicke von ca. $150 \mu\text{m}$ montiert. Auf Grund der Dispersion des Glasplättchens und der (durch Drehung um eine Achse senkrecht zur Ausbreitungsrichtung) variierbaren effektiven Dicke kann damit die relative Phase zwischen der Welle mit der optischen Fundamentalfrequenz (ω) und der Welle mit zweiten Harmonischen (2ω) variiert werden. Dieses ist notwendig, da auf Grund der Dispersion der Luft zwischen BBO-Kristall und dem Brennpunkt ohne Kompensation zunächst eine willkürliche

¹SHG von engl. „Second Harmonic Generation“

²Mit $\chi^{(3)}$ -Effekten werden nichtlineare Effekte dritter Ordnung im jeweiligen Medium bezeichnet.

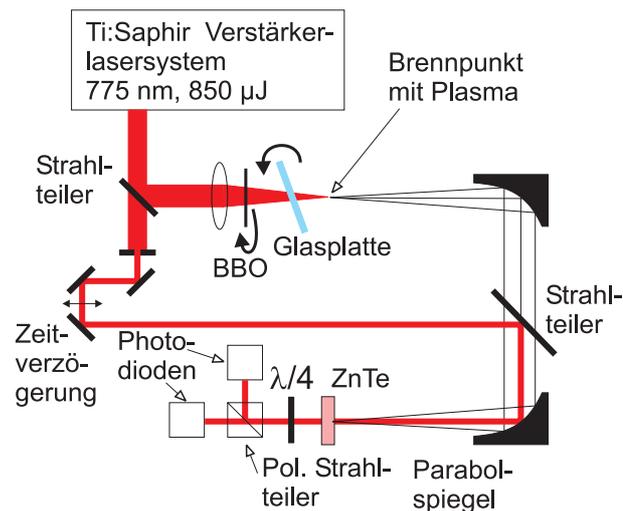


Abbildung 6.1.: Experimenteller Aufbau der Messanordnung zur Erzeugung und Detektion von THz-Strahlung mittels Nichtlinearitäten 3. Ordnung in lasergenerierten Plasmen

Phasenbeziehung zwischen den zwei Wellen im Plasma entsteht. Durch eine Drehung des Glasplättchens kann dann die Phasenlage zwischen den zwei optischen Wellen kontrolliert und damit das THz-Signal optimiert werden. Der Einfluss der relativen Phase zwischen den zwei Laserpulsen auf die THz-Emission ist ausführlich in Kap. 6.3 dargestellt.

Als zusätzliche experimentelle Schwierigkeit muss bei diesem Experiment berücksichtigt werden, dass nicht nur im Plasma sondern auch im nichtlinearen BBO-Kristall ein THz-Signal erzeugt wird. Zur Unterscheidung zwischen den Signalbeiträgen vom BBO-Kristall bzw. vom Plasma wurde ein THz-transparenter und optisch undurchsichtiger Filter³ entweder zwischen BBO-Kristall und Plasma oder alternativ hinter dem Plasma platziert. Dieses ermöglicht im ersten Fall eine Messung des reinen im BBO-Kristall erzeugten THz-Signals. Im zweiten Fall, in dem der Filter nur zur Beibehaltung des Zeitnullpunktes und zur Berücksichtigung evtl. THz-Absorptionen im Filter selbst nötig ist, wird eine Überlagerung der im BBO-Kristall und der im Plasma erzeugten Signalbeiträge gemessen. Da mit dem elektro-optischen Detektor jedoch kohärent die zeitaufgelöste elektrische Feldstärke des THz-Signals gemessen wird, kann das reine Plasma-Signal einfach durch Subtrahieren des reinen BBO-Signals vom Gesamtsignal im Zeitbereich bestimmt werden.

6.2. Einführung in die THz-Erzeugung auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten

Ein Modell zur Erklärung der THz-Emission auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten wurde von Cook et al. vorgeschlagen [18, 124]. Im Rahmen des $\chi^{(3)}$ -Formalismus ist die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung und damit auch die Amplitude des THz-Signals innerhalb des Plasmas gegeben durch:

³Gut geeignet ist schwarze Polyethylen-Folie.

$$\begin{aligned}
E_{det}^{\circ} \propto P_{pl} &= \chi_{pl}^{(3)} \cdot (E_{\omega}^{\circ})^2 E_{2\omega}^{\circ} \\
&\propto \chi_{pl}^{(3)} \cdot J_{\omega} \sqrt{J_{2\omega}} \\
&\propto \chi_{pl}^{(3)} \cdot J_{opt}^2.
\end{aligned}
\tag{6.1}$$

Dabei ist E_{det}° die Amplitude der detektierten THz-Signalfrequenz. P_{pl} ist die erzeugte Polarisation im Plasma. E_{ω}° ($E_{2\omega}^{\circ}$) ist die maximale optische Feldamplitude des Laserpulses mit der Fundamentalfrequenz (mit der zweiten Harmonischen) und mit der Laserpulsenergie J_{ω} ($J_{2\omega}$). J_{opt} ist die Gesamtlaserpulsenergie des Ausgangslaserpulses vor der Frequenzverdopplung im BBO-Kristall und $\chi_{pl}^{(3)}$ beschreibt die als konstant angenommene Nichtlinearität dritter Ordnung im Plasma. Weiter wurde im letzten Schritt angenommen, dass $J_{2\omega} \propto J_{opt}^2$ ist, und dass $J_{\omega} \approx J_{opt}$ ist. Diese Annahmen sind allerdings auf Grund von Sättigungseffekten im BBO-Kristall für höhere Laserpulsenergien nur noch bedingt richtig und werden daher in der späteren genauen Modellierung der THz-Emission fallen gelassen. Die in Gl. 6.1 vorgenommene Verknüpfung von lokalen mikroskopischen Größen wie P_{pl} , E_{ω}° , $E_{2\omega}^{\circ}$ mit makroskopischen Größen wie E_{det}° , J_{ω} , $J_{2\omega}$, J_{opt} ist allerdings nur dann sinnvoll, wenn man eine Änderung der Proportionalitätskonstante bei einer Änderung der äußeren Rahmenbedingungen zulässt. Solche Rahmenbedingungen sind z.B. die Größe des Plasmavolumens oder die Intensitätsverteilung im Plasma. Anders ausgedrückt gilt der Zusammenhang in Gl. 6.1 nur bei als konstant angenommenen äußeren Rahmenbedingungen. Weiter wurde bei der Darstellung in Gleichung 6.1 $\chi_{pl}^{(3)}$ zunächst als Skalar eingeführt. Dieses ist ausreichend, solange nur Proportionalitäten betrachtet werden sollen. Genau genommen ist $\chi_{pl}^{(3)}$ natürlich ein Tensor dritter Ordnung. Eine genauere Diskussion der Auswirkung der Tensoreigenschaften auf die THz-Emission erfolgt in Kap. 6.4.

In Abb. 6.2 ist die gemessene Amplitude des vom Plasma abgestrahlten THz-Signals für verschiedene Laserpulsenergien J_{opt} dargestellt. Man erkennt deutlich die nach Gleichung 6.1 erwartete quadratische Abhängigkeit. Die Abweichungen bei höheren Laserpulsenergien deuten auf Sättigungseffekte im BBO-Kristall oder aber auf andere Sättigungsmechanismen innerhalb des Plasmas hin. Die Abweichungen der gemessenen THz-Amplitude nach unten im Bereich niedriger Laserpulsenergien deuten auf das Verschwinden des Plasmas bei niedrigen Laserpulsenergien hin. Dieses ist ein deutliches Indiz dafür, dass der $\chi^{(3)}$ -Prozess im Plasma und nicht, wie von Cook et al. ursprünglich vermutet, in der Luft stattfindet. Aus diesem Grunde soll in der ausführlichen Modellierung der THz-Emission im Rahmen dieser Arbeit insbesondere der Einfluss des endlichen und von der Laserpulsenergie abhängigen Plasmavolumens mitberücksichtigt werden. Zusätzlich ist in Abb. 6.2 auch das vom BBO-Kristall erzeugte THz-Signal dargestellt. Hier findet man, wie für die optische Gleichrichtung und damit für einen $\chi^{(2)}$ -Prozess erwartet, eine lineare Abhängigkeit der Signalamplitude von der Laserpulsenergie (vergl. elektro-optisch Generation von THz-Strahlung in Kap. 3.3).

6.3. Variation der optischen Phasendifferenz

Nach der Erzeugung des Laserpulses mit der zweiten Harmonischen im BBO-Kristall durchläuft die Überlagerung der zwei Laserpulse mit der Fundamentalfrequenz bzw. mit der zweiten Harmonischen eine gewisse Wegstrecke in der Umgebungsluft und zusätzlich ein Wegstück im Glasplätt-

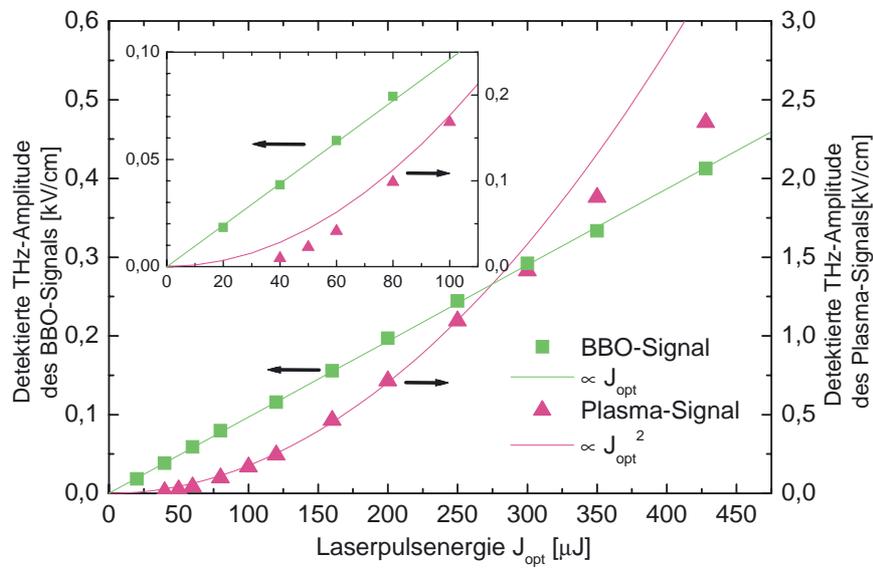


Abbildung 6.2.: Gemessene THz-Amplitude des BBO- und des Plasma-Signals als Funktion der Laserpulsenergie. Zum Vergleich ist eine lineare und eine quadratische Anpassung dargestellt.

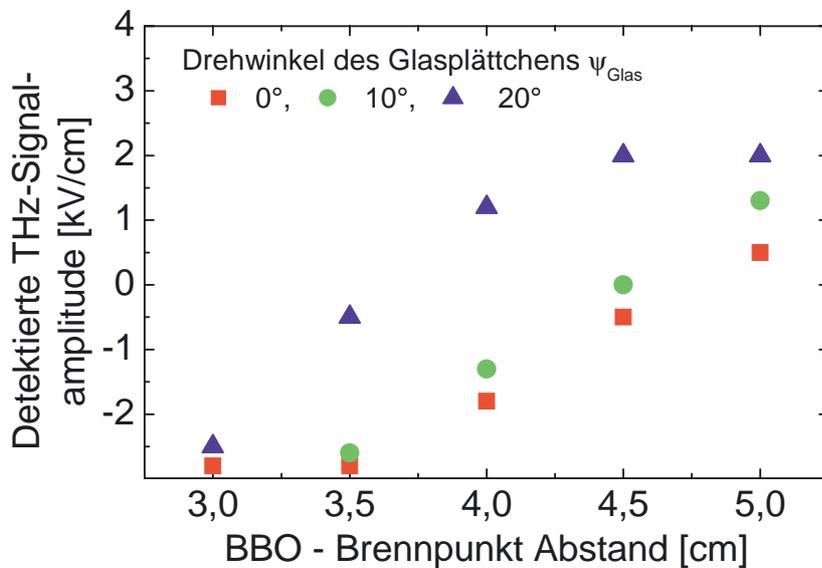


Abbildung 6.3.: Gemessene Feldstärke im Hauptpuls des THz-Signals für verschiedene Abstände zwischen Brennpunkt und BBO sowie unterschiedliche Stellungen des Glasplättchens.

chen, bevor dann im Brennpunkt des Plasma erzeugt wird. Auf Grund der Dispersion von Luft und Glas erfahren die zwei optischen Wellen jeweils eine relative Phasenänderung zueinander. In Abb. 6.3 ist die gemessene THz-Feldstärke im Hauptpuls für verschiedene Brennpunkt-BBO Abstände und unterschiedliche Drehwinkel des Glasplättchens dargestellt. Man erkennt deutlich, dass das Signal durch die Änderung der relativen Phase in der Größenordnung deutlich verändert wird und sich auch die Polarität des Signals ändert.

Bevor im weiteren die Phasenänderung als Funktion der Wegstrecke in Luft und des Drehwinkels des Glasplättchens genau quantifiziert wird, soll zunächst der Einfluss der relativen Phase auf dem THz-Generationsprozess im Plasma untersucht werden. Dazu ist es sinnvoll, die nichtlineare Polarisation im Plasma nach Gleichung 6.1 als zeitliche Mittelwertbildung zu interpretieren.

$$\begin{aligned}
 E_{det}^{\circ} \propto \overline{P_{pl}} &= \overline{\chi_{pl}^{(3)} \cdot (E_{\omega}^{\circ} \sin(\omega t))^2 E_{2\omega}^{\circ} \sin(2\omega t + \varphi_{\omega,2\omega})} \\
 &= \chi_{pl}^{(3)} \cdot (E_{\omega}^{\circ})^2 E_{2\omega}^{\circ} \cdot \frac{1}{4} \overline{\sin(-\varphi_{\omega,2\omega}) + 2\sin(2\omega t + \varphi_{\omega,2\omega}) - \sin(4\omega t + \varphi_{\omega,2\omega})} \\
 &= \chi_{pl}^{(3)} \cdot (E_{\omega}^{\circ})^2 E_{2\omega}^{\circ} \cdot \frac{1}{4} \sin(-\varphi_{\omega,2\omega}). \tag{6.2}
 \end{aligned}$$

Die zeitliche Mittelung über die nichtlineare Polarisation ist insofern sinnvoll, als wir im Rahmen dieser Arbeit nur an der Erzeugung von THz-Signalen interessiert sind. Diese Frequenzen werden aber durch die Einhüllende der optischen Intensität, also durch die langsame Änderung der optischen Feldamplituden, erzeugt. Eine Oszillation der Polarisation mit optischen Frequenzen ist für die THz-Erzeugung dagegen unerheblich, so dass die entsprechenden Terme unberücksichtigt bleiben können.

Gleichung 6.2 zeigt, dass das erzeugte THz-Signal proportional zum Sinus der relativen Phase zwischen den optischen Wellen sein sollte. Dieser Zusammenhang soll im folgenden anhand experimenteller Daten verifiziert werden.

Der Brechungsindex von Luft bei der Fundamentalfrequenz ($\lambda_{opt} = 775$ nm) beträgt 1,0002748 [125]. Bei der zweiten Harmonischen ($\lambda_{opt} = 387,5$ nm) ändert sich der Wert auf 1,0002829 [125]. Damit ergibt sich eine Differenz im Brechungsindex von $8,1 \cdot 10^{-6}$. Dieses entspricht einer Änderung der relativen Phase zwischen den zwei optischen Wellen ($\varphi_{\omega,2\omega}$) um $76,2^{\circ}$ pro cm Propagation durch Luft. Der Brechungsindexunterschied in Glas liegt für die relevanten Wellenlängen und für typische Glassorten typischerweise bei 0,02 bis 0,05[24]. Die Änderung der optischen Wellenlänge beim Durchlaufen einer Glasplatte der Dicke l_{Glas} , welche um den Winkel ψ_{Glas} relativ zur senkrecht zum Strahl stehenden Ebene verkippt ist, beträgt

$$\Delta l_{opt} = n_{Glas} \cdot l_{Glas} \left(\frac{1}{\cos(\arcsin(\frac{\sin(\psi_{Glas})}{n_{Glas}}))} - 1 \right). \tag{6.3}$$

Damit kann man den relativen Phasenunterschied $\varphi_{\omega,2\omega}$ als Funktion des Drehwinkels des Glasplättchens ψ_{Glas} ausdrücken als:

$$\varphi_{\omega,2\omega} = l_{Glas} \cdot \left(n_{\omega} \left(\frac{1}{\cos(\arcsin(\frac{\sin(\psi_{Glas})}{n_{\omega}}))} - 1 \right) n_{2\omega} \left(\frac{1}{\cos(\arcsin(\frac{\sin(\psi_{Glas})}{n_{2\omega}}))} - 1 \right) \right). \tag{6.4}$$

Mit den typischen⁴ Parametern für das Glasplättchen ($n_{\omega} = 1,55$, $n_{2\omega} = 1,57$, $l_{Glas} = 150$ μm)

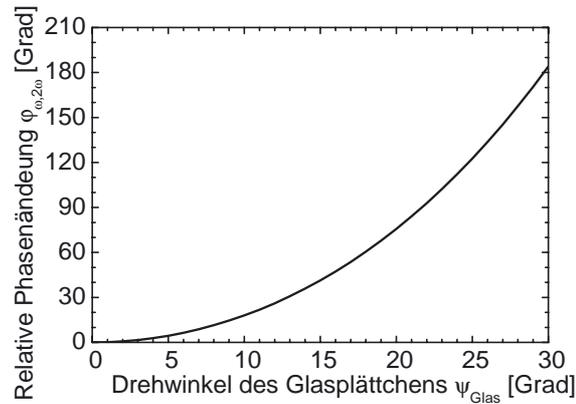


Abbildung 6.4.: Änderung der relativen optischen Phase $\varphi_{\omega,2\omega}$ als Funktion des Drehwinkels des Glasplättchens ψ_{Glas} .

ergibt sich damit die in Abb. 6.4 dargestellte Phasenverzögerung.

Bei der Bewertung der experimentellen Daten muss weiter berücksichtigt werden, dass durch eine Änderung des Brennpunkt-BBO-Abstands nicht nur die relative Phase zwischen den zwei Wellen variiert wird, sondern sich auf Grund der Strahlgeometrie auch die Flächenenergiedichte des auf den BBO eintreffenden Lichts, und damit die Konversionseffizienz und so der Anteil der zweiten Harmonischen am Gesamtpuls, verändert. Geht man davon aus, dass sich die Konversionseffizienz in der ersten Ordnung linear mit der Flächenenergiedichte der auftreffenden Strahlung ändert und benutzt man dann den Zusammenhang aus Gl. 6.1, kann man schlussfolgern, dass sich das erzeugte THz-Signal auf Grund dieses Effekts reziprok proportional zum BBO-Brennpunkt Abstand verhält.

In Abb. 6.5 sind die experimentellen Daten aus Abb. 6.3 dargestellt als Funktion der relativen Phasenänderung $\varphi_{\omega,2\omega}$, welche sich auf Grund des Durchlaufs der zwei Wellen durch die entsprechenden Wegstrecken in Luft bzw. im ggf. gedrehten Glasplättchen ergeben. Die Daten sind bzgl. des Einflusses der geänderten Konversionseffizienz zusätzlich auf eine feste Konversionseffizienz, welche sich bei einem BBO-Brennpunkt Abstand von 4 cm ergäbe, normiert. Die Darstellung mit der entsprechenden Anpassung zeigt, dass die Daten wie nach Gleichung 6.2 erwartet, einem sinusförmigen Verlauf folgen.

Bei allen weiteren dargestellten Messungen mit dem Plasmaemitter wurde mittels einer Änderung der relativen Phase $\varphi_{\omega,2\omega}$ durch eine Drehung des Glasplättchens jeweils das THz-Signal optimiert, so dass ein Maximum des Signals erreicht wurde. Da man im ungünstigen Fall maximal 90° von einem Maximum entfernt ist, ist nach Abb. 6.4 eine Drehung des Glasplättchens von maximal 20° nötig, um ein Maximum zu erreichen, wenn man eine Änderung der Polarität des Signals zulässt. Drehwinkel in dieser Größenordnung sind noch problemlos experimentell zu realisieren, so dass in allen Fällen eine Optimierung der relativen Phase $\varphi_{\omega,2\omega}$ möglich ist.

⁴Da die genauen Parameter des verwendeten Glasplättchens (Glassorte und -dicke) nicht bekannt sind, wurden als typische Parameter solche Werte gewählt, welche eine gute Anpassung der experimentellen Daten ermöglichen.

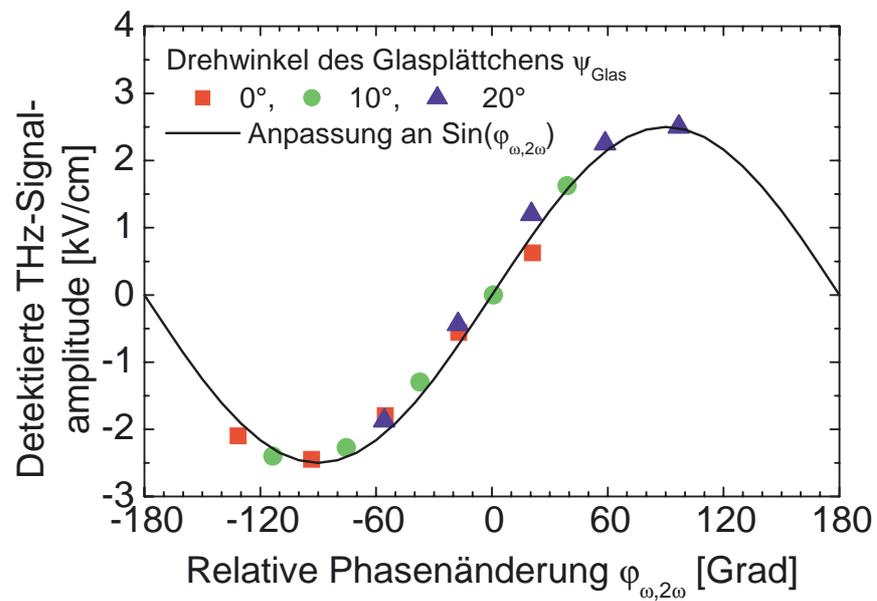


Abbildung 6.5.: Gemessene Feldamplitude des THz-Signals als Funktion der berechneten relativen Phase $\varphi_{\omega,2\omega}$ zwischen den zwei optischen Wellen mit der Fundamentalfrequenz bzw. mit der zweiten Harmonischen. Die Datenpunkte repräsentieren verschiedene Abstände zwischen Brennpunkt und BBO, sowie unterschiedliche Stellungen des Glasplättchens. Die Daten wurden zusätzlich um den Einfluss der unterschiedlichen BBO-Konversionseffizienz korrigiert.

6.4. Variation des BBO-Drehwinkels

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurde ein Typ I BBO-Kristall verwendet, welcher so geschnitten ist, dass sich für die Erzeugung der zweiten Harmonischen ausgehend von Licht der Wellenlänge $\lambda_{opt} = 775$ nm keine Phasenfehlانpassung ergibt. D.h. die Phasengeschwindigkeiten der zwei optischen Wellen sind gleich. Die Gruppengeschwindigkeiten werden dagegen unterschiedlich sein, so dass sich die Einhüllenden der Laserpulse der zwei Frequenzen mit zunehmendem Durchlauf durch den BBO-Kristall relativ zueinander zeitlich voneinander entfernen werden.

Für die Energie des erzeugten Laserpulses bei der zweiten Harmonischen der Fundamentalfrequenz ($J_{2\omega}$) als Funktion der Energie des Ausgangslaserpulses (J_{opt}) und dem Drehwinkel θ_{BBO} des BBO-Kristalls gilt, wenn man Sättigungseffekte im BBO-Kristall vernachlässigt [126]:

$$J_{2\omega}(\theta_{BBO}, J_{opt}) \propto \sin^4(\theta_{BBO}) \cdot (J_{opt})^2. \quad (6.5)$$

Dabei ist θ_{BBO} so definiert, dass $\theta_{BBO} = 90^\circ$ dem Drehwinkel entspricht, bei dem ein Laserpuls der zweiten Harmonischen mit maximaler Energie erzeugt wird.

Die gemessene BBO-Konversionseffizienz ist in Abb. 6.6 (oben) für verschiedene BBO-Drehwinkel θ_{BBO} zusammen mit der Anpassung an Gleichung 6.5 dargestellt. Dabei ist eine gute Übereinstimmung der experimentellen Daten mit der Anpassung zu erkennen.

Obwohl der BBO-Kristall nur für optische Frequenzverdoppelung optimiert ist, wird auch im BBO-Kristall THz-Strahlung durch optische Gleichrichtung erzeugt. Der Generationsprozess verläuft dabei im Prinzip völlig analog zur THz-Erzeugung in ZeTe, welche in Kap. 3.3 ausführlich behandelt ist. Für den in den Experimenten verwendeten BBO-Kristall erwartet man eine Winkelabhängigkeit der Form [126]

$$E_{BBO}^0(\theta_{BBO}, J_0) \propto J_0 \cos(\theta_{BBO}) [C_1 \cos^2(\theta_{BBO}) - C_2 \sin^2(\theta_{BBO})]. \quad (6.6)$$

In der Darstellung in Abb. 6.6 erkennt man, dass diese Abhängigkeit in etwa experimentell bestätigt wird. Allerdings fällt auf, dass in Bereichen, in welchen ein hoher Anteil an frequenzverdoppelter Strahlung vorliegt (z.B. etwa bei $\theta_{BBO} = 90^\circ$), Abweichungen von der erwarteten Form auftreten. Diese Abweichungen sind vermutlich darauf zurückzuführen, dass auch das frequenzverdoppelte Licht zur THz-Erzeugung im BBO-Kristall beiträgt. Solche Beiträge sind allerdings nicht in Gl. 6.6 berücksichtigt.

Bezüglich der Polarisation des erzeugten Lichts mit der zweiten Harmonischen ist bei einem Kristall mit Typ I Phasen Anpassung allerdings zu beachten, dass bei optimaler Konversionseffizienz (hier bei $\theta_{BBO} = 90$) die Polarisation des erzeugten Lichts der zweiten Harmonischen senkrecht zu der Polarisation der Ausgangsstrahlung steht. Bei einer Drehung des BBO-Kristalls dreht sich weiter die Polarisation der erzeugten Strahlung mit der zweiten Harmonischen um den gleichen Winkel θ_{BBO} , um den auch der Kristall gedreht wird. Damit würde bei $\theta_{BBO} = 0^\circ$ Licht der zweiten Harmonischen mit der gleichen Polarisation wie der der Ausgangswelle erzeugt. Allerdings erreicht bei $\theta_{BBO} = 0^\circ$ auch gerade die Energie des erzeugten Laserpulses mit der zweiten Harmonischen den Wert Null, so dass die Erzeugung von Licht der zweiten Harmonischen mit der gleichen Polarisation wie der Ausgangswelle nicht möglich ist.

Zur Diskussion der Abhängigkeit der im Plasma erzeugten THz-Strahlung vom Drehwinkel des BBO-Kristalls muss zunächst ausgeführt werden, dass bei der Darstellung in Gleichung 6.1 $\chi_{pl}^{(3)}$ als Skalar eingeführt wurde, obwohl $\chi_{pl}^{(3)}$ genau genommen ja ein Tensor dritter Ordnung ist. Eine

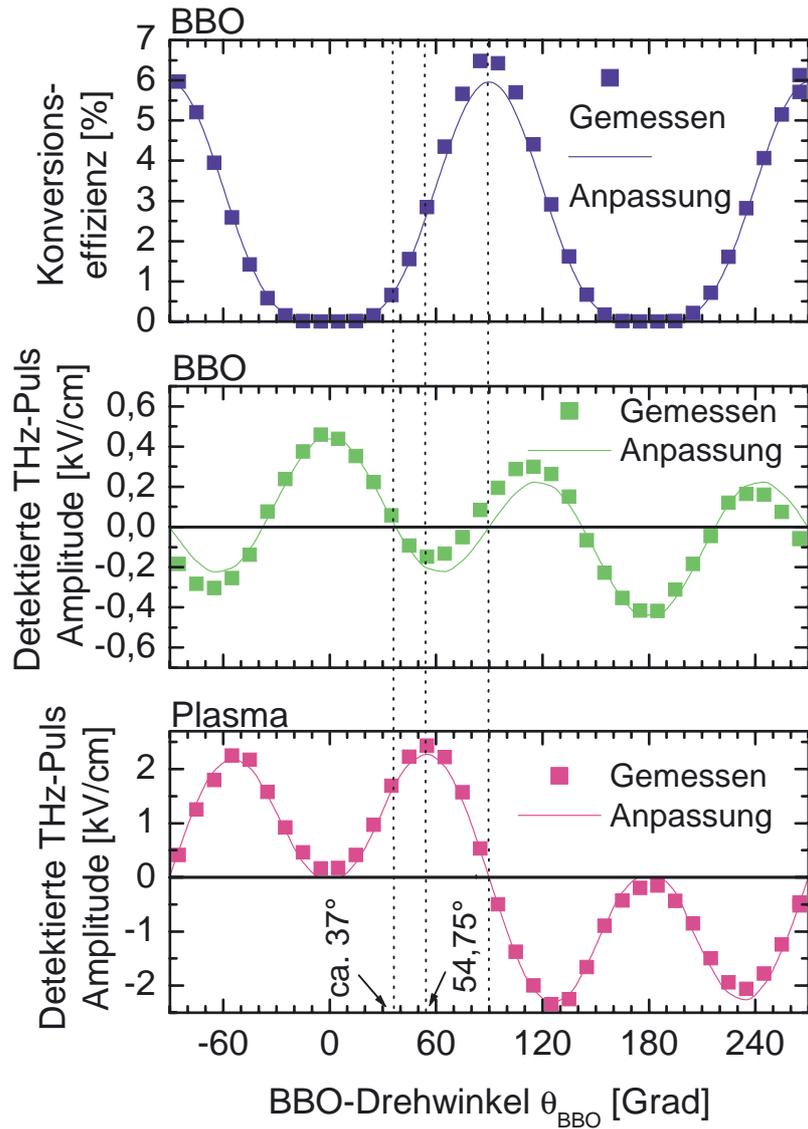


Abbildung 6.6.: Konversionseffizienz des $100 \mu\text{m}$ BBO-Kristalls (oben) und im BBO (mitte) bzw. im Plasma (unten) erzeugtes THz-Signal als Funktion des BBO-Drehwinkels θ_{BBO} .

in Anhang A.6 dargestellte Analyse der Eigenschaften von Tensoren von isotropen Medien ermöglicht die Beschreibung der Ausrichtung der erzeugten Polarisierung im Plasma, welche dann die Polarisierung der erzeugten THz-Strahlung bestimmt, ausgehend von den Polarisierungen der beiden optischen Wellen. In dem hier vorgestellten Experiment sind die Polarisierung der optischen Welle mit der Fundamentalfrequenz und die Ausrichtung des nur in einer Polarisationsrichtung empfindlichen Detektors gleich. Lediglich die Richtung der Polarisierung der optischen Welle mit der zweiten Harmonischen weicht auf Grund des Generationsmechanismus im BBO ab. Wie im Anhang A.6 dargestellt ist, kann dann die Komponente der erzeugten Polarisierung in Richtung der Polarisierung der Fundamentalfrequenz bzw. in Richtung der Detektorempfindlichkeit einfach bestimmt werden, indem der lineare $\chi^{(3)}$ -Wert des Plasmas (d.h. für den Fall, bei dem alle drei Wellen gleich polarisiert sind) und die Projektion des Amplitudenvektors der zweiten Harmonischen in die Richtung der Polarisierung von Fundamentalfrequenz bzw. in Richtung der Detektorempfindlichkeit verwendet wird.

Da wie zuvor dargestellt die Richtung der Polarisierung der zweiten Harmonischen durch den Drehwinkel des BBO-Kristalls θ_{BBO} gegeben ist, kann man den Anteil von der Amplitude $E_{2\omega}^0$ in Richtung der Polarisierung von Fundamentalfrequenz bzw. in Richtung der Detektorempfindlichkeit ($E_{2\omega}^{0,x}$) ausdrücken als:

$$\begin{aligned} E_{2\omega}^{0,x} &\propto \sqrt{J_{2\omega}} \cdot \cos(\theta_{BBO}) \\ &\propto J_{opt} \cdot \cos(\theta_{BBO}) \cdot \sin^2(\theta_{BBO}). \end{aligned} \quad (6.7)$$

Analog zu Gleichung 6.1 erhält man damit für die im Plasma erzeugte THz-Strahlung

$$\begin{aligned} E_{det}^0 \propto p_{pl} &\propto \chi_{pl}^{(3)} \cdot (E_{\omega}^0)^2 E_{2\omega}^{0,x} \\ &\propto \chi_{pl}^{(3)} \cdot J_{\omega} \sqrt{J_{2\omega}} \cdot \cos(\theta_{BBO}) \\ &\propto \chi_{pl}^{(3)} \cdot J_{opt}^2 \cdot \cos(\theta_{BBO}) \cdot \sin^2(\theta_{BBO}). \end{aligned} \quad (6.8)$$

Das bedeutet insbesondere, dass das Maximum der THz-Emission nicht bei $\theta_{BBO}=0$, also bei dem Drehwinkel für maximale Energie des frequenzverdoppelten Laserpulses, sondern bei $\theta_{BBO} = \pm 54,75^\circ$ erreicht wird.

Die im Plasma für verschiedene Drehwinkel des BBO-Kristalls erzeugte THz-Strahlung ist in Abb. 6.6 (unten) dargestellt. Dabei wird der erwartete Zusammenhang von den experimentellen Daten gut bestätigt. Insbesondere erkennt man deutlich, dass das Maximum der THz-Strahlung bei $\theta_{BBO} = \pm 54,75^\circ$ erreicht wird. Bei $\theta_{BBO} = \pm 37^\circ$ verschwindet das Hintergrundsignal des BBO-Kristalls. Damit ist bei diesem Drehwinkel eine Untersuchung der THz-Erzeugung im Plasma möglich, ohne dass zur Gewinnung des reinen Plasma-Signals erst das BBO-Hintergrundsignal in einer zusätzlichen Messung ermittelt und subtrahiert werden muss. Allerdings ist hier das im Plasma erzeugte THz-Signal um ca. 30 % relativ zum Maximalwert reduziert.

6.5. Konversionseffizienz des BBO-Kristalls

Die Erzeugung eines Laserpulses mit der zweiten Harmonischen $2\omega_{opt}$ und der Laserpulsenergie $J_{2\omega}$ ausgehend von dem ankommenden Laserpuls mit der Fundamentalfrequenz ω_{opt} und der La-

serpulsenergie J_w innerhalb des BBO-Kristalls ist ein nichtlinearer Prozess zweiter Ordnung. Damit erwartet man für die Konversionseffizienz der Laserpulsenergie den Zusammenhang

$$J_{2w}/J_{opt} \propto I_{opt}. \quad (6.9)$$

Für konstante Laserpulslängen gilt auch

$$J_{2w}/J_{opt} \propto W_{opt} = \frac{J_{opt}}{A_{opt}}. \quad (6.10)$$

Damit sollte die Konversionseffizienz insbesondere umgekehrt proportional zu der beleuchteten Fläche des Emitters sein. Die experimentell bestimmte Konversionseffizienz ist in Abb. 6.7 dargestellt. Dabei wurde die Konversionseffizienz unter den gleichen experimentellen Bedingungen bestimmt, unter welchen auch die THz-Experimente durchgeführt wurden. Dieses bedeutet insbesondere, dass der BBO-Drehwinkel mit $\theta_{BBO} = 54,75^\circ$ optimal für die THz-Erzeugung im Plasma, nicht aber optimal für die Frequenzverdoppelung gewählt wurde. Die experimentellen Daten zeigen, dass ein linearer Zusammenhang nur für maximale Intensitäten von bis zu $5000 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ gefunden wird. Für höhere Intensitäten setzt ein Sättigungsverhalten ein. Dieses erklärt sich im wesentlichen dadurch, dass bei höheren Intensitäten ein signifikanter Teil der Energie der Ausgangswelle in die erzeugte Welle der Frequenz 2ω transferiert wird. Damit wird die Intensität der Ausgangswelle mit zunehmender Propagationslänge im BBO-Kristall reduziert und der Generationsprozess der zweiten Harmonischen wird geschwächt. Der funktionale Zusammenhang für ein solches Sättigungsverhalten ist nach Ref. [31] gegeben durch:

$$J_w/J_{opt} = C_1 \cdot \tanh \left(\sqrt{\frac{I_{opt}}{C_2}} \right)^2. \quad (6.11)$$

Für den in den THz-Experimenten verwendeten BBO-Kristall mit $100 \mu\text{m}$ Dicke ergeben sich bei dem speziellen für die THz-Experimente verwendeten Drehwinkel $\theta_{BBO} = 54,75^\circ$ durch Anpassung an die experimentellen Daten die Parameter $C_1 = 51,864 \%$ und $C_2 = 39800 \mu\text{J}/\text{cm}^2$. Die entsprechende Anpassung ist ebenfalls in Abb. 6.7 dargestellt. Auf Basis dieser Daten und der Strahlparameter (Durchmesser vor der Linse, Brennweite der Linse) kann damit die jeweilige Konversionseffizienz bzw. die absolute Energie des Laserpulses mit der zweiten Harmonischen J_{2w} für die jeweilige Energie des Ausgangslaserpulses J_{opt} und den jeweiligen Abstand zwischen BBO-Kristall und Plasma-Brennpunkt bestimmt werden.

6.6. Modellierung der THz-Emission auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten im Plasmavolumen

Ein Modell zur Erklärung der THz-Emission auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten wurde von Cook et al. vorgeschlagen [18, 124]. Dabei wurde von Cook et al. zunächst die Ansicht vertreten, es handle sich dabei um $\chi^{(3)}$ -Effekte in Luft[18]. Später gingen Cook et al. dann von einem $\chi^{(3)}$ -Effekt im erzeugten Plasma aus [124]. Diese Frage ist insofern von besonderer Bedeutung, als für den Fall, dass die THz-Erzeugung im Plasma stattfindet, die Variationen im Plasmavolumen durch die Änderung der Laserpulsenergie in geeigneter Form berücksichtigt werden müssen. Dieses und eine quantitative Analyse, welche letztlich eine Abschätzung des $\chi^{(3)}$ -Werts des Plasmas ermöglicht, zeichnet das in diesem Unterkapitel vorgestellte quantitative Modell aus.

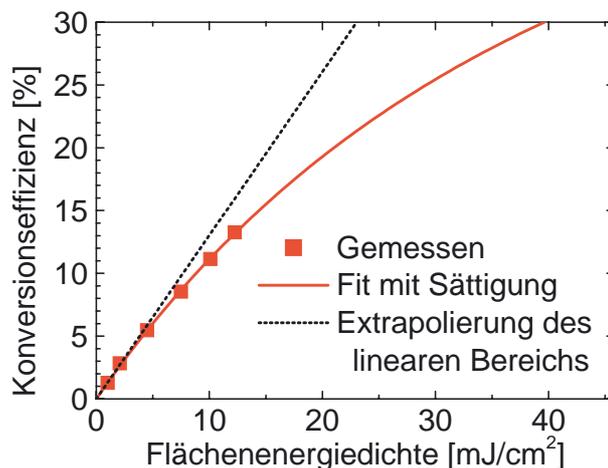


Abbildung 6.7.: Konversionseffizienz des $100 \mu\text{m}$ BBO-Kristalls

6.6.1. Vorbemerkungen zur Modellierung

Die Erzeugung des Laserpulses mit der zweiten Harmonischen im BBO-Kristall ist ein nichtlinearer Prozess zweiter Ordnung. Geht man von einem Laserpuls mit zeitlich und räumlich gaußförmiger Verteilung aus, bedeutet dieses, dass sich die Laserpulslänge und der Strahlradius des erzeugten frequenzverdoppelten Laserpulses im Vergleich zu dem Ausgangslaserpuls um den Faktor $\sqrt{2}$ reduzieren. Im weiteren soll aber dennoch vereinfachend angenommen werden, dass die Laserpulse mit der einfachen bzw. mit der doppelten Fundamentalfrequenz im Brennpunkt sowohl räumlich als auch zeitlich perfekt überlappen. Bzgl. der zeitlichen Überlappung kann diese Annahme damit gerechtfertigt werden, dass Unterschiede im zeitlichen Verlauf, welche durch den nichtlinearen Erzeugungsprozess im BBO, also auf Grund der zeitabhängigen Konversionseffizienz entstehen, vor allem in Bereichen niedriger Intensität (welche nur schwach zur nichtlinearen THz-Erzeugung beitragen), auftreten. Unterschiede in der räumlichen Überlappung treten zum einen auf Grund der nichtlinearen Erzeugung, also der räumlich unterschiedlichen Konversionseffizienz im BBO-Kristall, und zum anderen aber auch durch die bessere Fokussierbarkeit der frequenzverdoppelten Strahlung auf Grund der reduzierten Wellenlänge auf. Bzgl. des minimalen Brennpunktdurchmessers wirken die beiden Effekte in entgegengesetzter Richtung, so dass auch hier die Annahme einer perfekten räumlichen Überlappung näherungsweise gerechtfertigt ist. Mit den so gemachten Annahmen kann die raum-zeitliche Intensitätsverteilung für die fundamentale und die frequenzverdoppelte optische Strahlung ausgedrückt werden als

$$\begin{aligned}
 I_\omega(r, z, t) &= I_{0,\omega} \cdot F(r, z) \cdot T\left(t - \frac{z}{c_0}\right) \\
 I_{2\omega}(r, z, t) &= I_{0,2\omega} \cdot F(r, z) \cdot T\left(t - \frac{z}{c_0}\right), \\
 \text{mit } T(t^*) &= \exp\left(\frac{-4\ln(2)(t^*)^2}{\tau_p^2}\right), \\
 I_\omega^0 &= \frac{4\sqrt{\ln(2)}J_\omega}{\sqrt{\pi}\tau_p\pi r_0^2} \\
 \text{und } I_{2\omega}^0 &= \frac{4\sqrt{\ln(2)}J_{2\omega}}{\sqrt{\pi}\tau_p\pi r_0^2}.
 \end{aligned} \tag{6.12}$$

$F(r, z)$ ist dabei die auf die theoretisch erreichte maximale Intensität im Vakuum normierte räumliche Intensitätsverteilung. Diese ist ohne nichtlineare Brechungsindexeffekte gegeben durch (vergl. Kap. 4.2):

$$F(r, z) = \frac{1}{\left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)} \exp\left(\frac{-2r^2}{r_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)}\right). \tag{6.13}$$

Alternativ steht $F(r, z)$ als Ergebnis der numerischen Berechnungen aus Kap. 4.3, in denen nichtlineare Brechungsindexeffekte mit berücksichtigt wurden, zu Verfügung. Diese numerischen Daten werden im weiteren als Grundlage der Modellierung der THz-Emissionen aus den lasererzeugten Plasmen verwendet.

6.6.2. Quantitative Beschreibung der THz-Emission

Das hier dargestellte Modell geht in Übereinstimmung mit der späteren Ansicht von Cook et al. [124] von der Annahme aus, dass die $\chi^{(3)}$ -Effekte im Plasma und nicht in der Luft für die THz-Emission verantwortlich sind. Das Ausschließen von $\chi^{(3)}$ -Effekten in Luft ist nach den Erkenntnissen dieser Arbeit insofern gerechtfertigt, als dass einerseits eine Abschätzung der Größenordnung des $\chi^{(3)}$ -Werts für das Plasma am Ende dieses Abschnitts auf Basis des vorgestellten Modells zeigen wird, dass der $\chi^{(3)}$ -Wert von Luft um etwa zwei Größenordnungen zu klein ist, um die THz-Emission zu erklären. Darüberhinaus ist man nur durch die Berücksichtigung der Volumenabhängigkeit des Plasmas von der Laserpulsenergie (eine solche Abhängigkeit gibt es für die Luft ja nicht) in der Lage die Änderung der THz-Amplitude für unterschiedliche (und insbesondere für kleinere) Laserpulsenergien zufriedenstellend zu beschreiben.

In dem hier dargestellten Modell wird daher angenommen, dass das Plasma in den Volumenbereichen, welche einen deutlichen Ionisierungsgrad aufweisen, ein konstantes $\chi_{pl}^{(3)}$ besitzt. Außerhalb dieser Bereiche wird ein $\chi^{(3)}$ von Null angenommen.

Darüber hinaus werden in dem hier dargestellte Modell solche Effekte vernachlässigt, welche sich dadurch ergeben, dass der Zeitpunkt der Plasmaerzeugung vom Verhältnis der örtlichen maximalen Intensität zur Schwellintensität für die Ionisierung abhängt, und somit nicht für den vollständigen zeitlichen Verlauf des Laserpulses ein Plasma vorliegt. Dieses wird damit gerechtfertigt, dass dieser Effekt nur dann von Bedeutung ist, wenn die örtliche maximale Intensität nur leicht oberhalb

der Schwellintensität für die Ionisierung liegt. In diesen Bereichen sind aber auf Grund der relativ niedrigeren Intensität die nichtlinearen Effekte ohnehin nur schwach ausgeprägt.

Im Rahmen der gemachten Annahmen kann die raum-zeitliche Polarisation im Brennpunktbereich ausgedrückt werden als:

$$\begin{aligned}
 P_{pl}(r, z, t) &= \varepsilon_0 \cdot \chi^{(3)}(r, z) \cdot (E_\omega^0(r, z, t))^2 \cdot E_{2\omega}^0(r, z, t) \\
 &= \varepsilon_0 \cdot \chi^{(3)}(r, z) \cdot \frac{2 \cdot I_\omega(r, z, t)}{\varepsilon_0 c_0} \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot I_{2\omega}(r, z, t)}{\varepsilon_0 c_0}} \cos(\theta_{BBO}) \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{\varepsilon_0 c_0^{\frac{3}{2}}}} \cdot \chi^{(3)}(r, z) \cdot I_\omega^0 \cdot \sqrt{I_{2\omega}^0 \cos(\theta_{BBO})} \cdot (F(r, z))^{\frac{3}{2}} \cdot \left(T\left(t - \frac{z}{c_0}\right)\right)^{\frac{3}{2}}, \\
 \text{mit } \chi^{(3)}(r, z) &= \begin{cases} \chi_{pl}^{(3)}, & \text{falls } (r, z) \text{ in } V_{pl}, \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases}
 \end{aligned} \tag{6.14}$$

Dabei wurde das Poynting-Theorem $I_{opt} = 1/2\varepsilon_0 c_0 (E_{opt}^0)^2$ benutzt. Das retardierte Dipolmoment des Plasmas $p_{pl}^{ret}(t)$ kann dann ausgedrückt werden als

$$\begin{aligned}
 p_{pl}^{ret}(t) &= \int_{V'} P_{pl}(z', r', t + \frac{z'}{c_0}) dV' \\
 &= \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{\varepsilon_0 c_0^{\frac{3}{2}}}} \cdot I_{0,opt,\omega} \cdot \sqrt{I_{0,opt,2\omega}} \cdot (T(t))^{\frac{3}{2}} \cdot \chi_{pl}^{(3)} V_{eff} \cdot \cos(\theta_{BBO}), \\
 \text{mit } V_{eff} &= \int_{(V' \text{ in } V_{pl})} (F(r', z'))^{\frac{3}{2}} dV'.
 \end{aligned} \tag{6.15}$$

Damit ist zur Beschreibung des THz-Signals im wesentlichen die Bestimmung des in Gl. 6.15 eingeführten effektiven Volumens V_{eff} notwendig. Für eine Intensitätsverteilung ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten kann das effektive Volumen V_{eff} analytisch berechnet werden:

$$\begin{aligned}
 V_{eff}(J_{opt}) &= \int_{(V' \text{ in } V_{pl})} (F(r', z'))^{\frac{3}{2}} dV' \\
 &= -\frac{2}{9} \pi \omega_0^2 z_0 \left(\sqrt{1 - \frac{J_{ion}}{J_{opt}}} \left(1 + \frac{2J_{ion}}{J_{opt}}\right) + \ln \left(\sqrt{\frac{J_{opt}}{J_{ion}}} - \sqrt{1 - \frac{J_{opt}}{J_{ion}}} \right) \right) \\
 \text{mit } J_{ion} &= \frac{I_{ion} \sqrt{\pi} \tau_p \pi r_0^2}{4 \sqrt{\ln(2)}}.
 \end{aligned} \tag{6.16}$$

Analog lässt sich V_{eff} auch unter Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten nu-

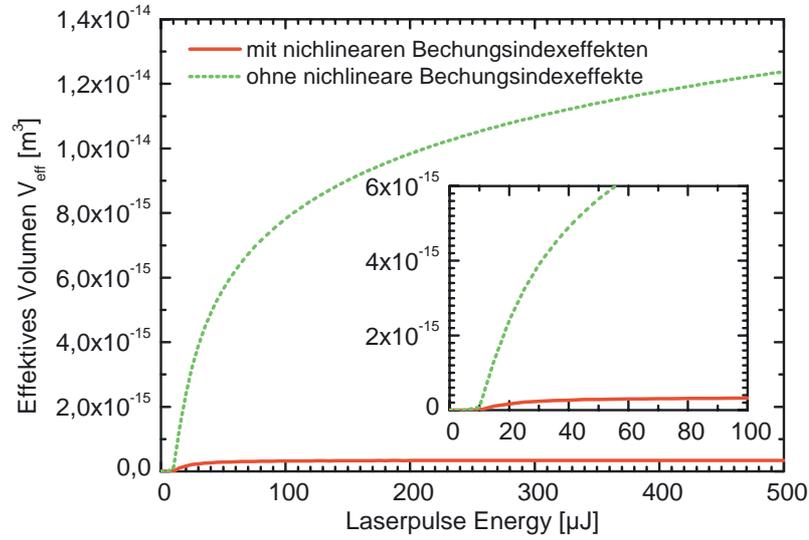


Abbildung 6.8.: Effektives Volumen V_{eff} mit und ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten als Funktion der Gesamtlaserpulsenergie J_{opt} .

merisch bestimmen, da $F(r, z)$ aus den numerischen Berechnungen in Kapitel 4.3 bekannt ist.

In Abb. 6.8 ist das effektive Volumen V_{eff} jeweils mit und ohne Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten als Funktion der Gesamtlaserpulsenergie J_{opt} dargestellt. Dabei fällt auf, dass die Abweichungen, welche sich für das effektive Volumen auf Grund der Berücksichtigung von nichtlinearen Brechungsindexeffekten ergeben, deutlich drastischer ausfallen, als dieses bei der Bestimmung des tatsächlichen Plasmavolumens der Fall war (vgl. Abb. 4.10). Dieses erklärt sich dadurch, dass durch die Plasmadefokussierung insbesondere das Auftreten hoher Spitzenintensitäten verhindert wird (vgl. Kap. 4.3). Diese hohen Spitzenintensitäten erklären aber gerade das deutliche Anwachsen des effektiven Volumens, wenn nichtlineare Brechungsindexeffekte nicht berücksichtigt werden.

Nachdem das retardierte Dipolmoment des Plasmas bekannt ist, kann nach Gl. 4.38 auch das THz-Signal am Detektor berechnet werden:

$$\begin{aligned}
 E_{det}(t) &= \frac{A_{THz}}{8\pi^2\epsilon_0 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^3}{\partial t^3} p_{ret}^{pl}(t) \\
 &= \frac{\chi_{Plasma}^{(3)} \cdot I_{0,\omega} \cdot \sqrt{I_{0,2\omega}} A_{THz}}{2\sqrt{2}\pi^2\epsilon_0^{\frac{3}{2}} c_0^{\frac{9}{2}} f_1 f_2} \cdot \frac{\partial^3}{\partial t^3} (T(t))^{\frac{3}{2}} \cdot V_{eff}(J_{opt}) \cdot \cos(\theta_{BBO}), \\
 \text{mit } \frac{\partial^3}{\partial t^3} (T(t))^{\frac{3}{2}} &= 432 \ln(2)^2 \frac{t}{\tau_p^4} \left(4 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_p^2} + 1 \right) \left(\exp\left(-4 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_p^2}\right) \right)^{\frac{3}{2}}. \quad (6.17)
 \end{aligned}$$

Bis auf den unbekanntenen Wert für $\chi_{Plasma}^{(3)}$ kann damit das THz-Signal am Ort des Detek-

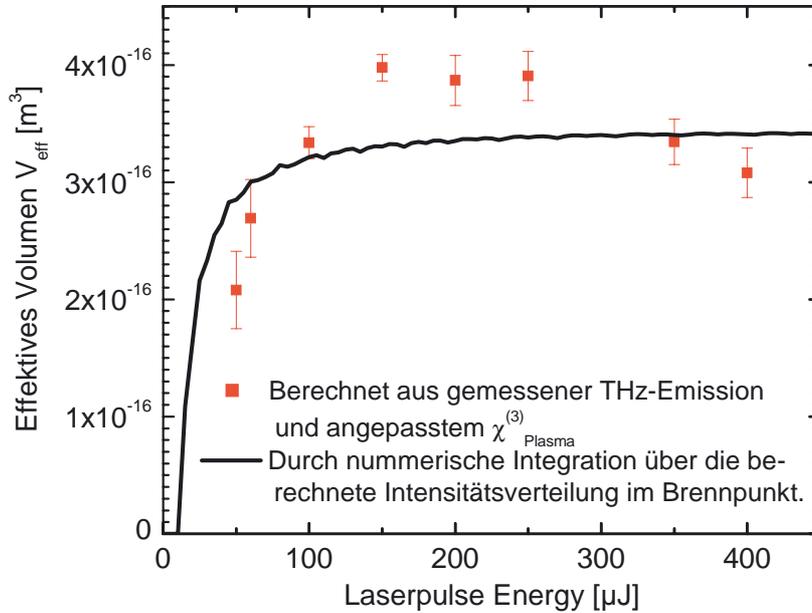


Abbildung 6.9.: Darstellung des effektiven Volumens V_{eff} als Funktion der Laserpulsenergie. Die Datenpunkte wurden aus der gemessenen THz-Amplitude berechnet. Die Linie repräsentiert das numerisch berechnete effektive Volumen auf Basis der Intensitätsverteilung im Brennpunkt unter Berücksichtigung nichtlinearer Brechungsindexeffekte.

tors beschrieben werden. Damit kann der Wert für $\chi_{Plasma}^{(3)}$ durch Anpassung der berechneten THz-Signalamplituden an die gemessenen Daten erfolgen. Berücksichtigt man dabei die spektrale Empfindlichkeit des Detektors und verwendet die für unterschiedliche Laserpulsenergien zu Verfügung stehenden Daten, ergibt sich der absolute Wert für den $\chi^{(3)}$ -Wert des Plasmas von $\chi_{pl}^{(3)} = 9,3 \pm 1,5 \cdot 10^{-24} \text{ V}^2/\text{m}^2$. Dabei wurde der Fehler nur auf Grund der Streuung der einzelnen Messwerte bestimmt, da der systematische Fehler auf Grund der Unsicherheiten in der Modellierung nicht bezifferbar ist. Der so bestimmte $\chi^{(3)}$ -Wert für das Plasma ist allerdings mehr als zwei Größenordnungen größer als der $\chi^{(3)}$ -Wert von Luft ($\chi_{Luft}^{(3)} = 4,5 \cdot 10^{-26} \text{ V}^2/\text{m}^2$ [98]). Damit erscheint der erste Erklärungsansatz von Cook et al. [18], welche zunächst von Nichtlinearitäten in der Luft als Ursache der THz-Emission ausgingen, als recht unwahrscheinlich. Ebenso rechtfertigt dieses Ergebnis im nachhinein die im Modell gemachte Annahme, dass eine THz-Erzeugung außerhalb des Plasmavolumens vernachlässigbar ist.

Auf Basis des angepassten konstanten Wertes für $\chi_{pl}^{(3)}$ kann aus den experimentell bestimmten THz-Amplituden auch der Verlauf des effektiven Volumens V_{eff} als Funktion der Laserpulsenergie bestimmt werden. Die so gewonnenen Werte sind in Abb. 6.9 zusammen mit dem numerisch bestimmten effektiven Volumen dargestellt.

Die Darstellung in Abb. 6.9 zeigt, dass die Variationen in dem auf Basis experimenteller Daten

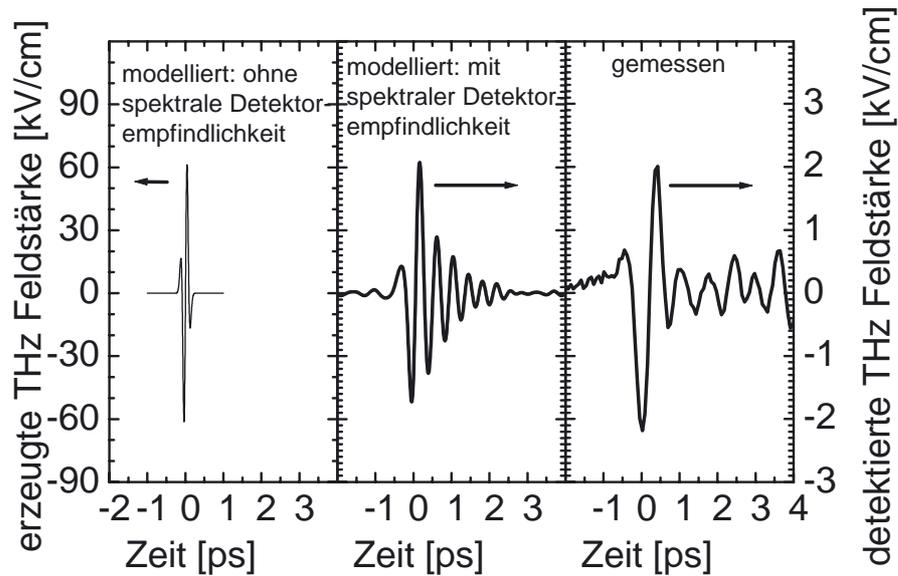


Abbildung 6.10.: Darstellung der modellierten THz-Signalform des $\chi^{(3)}$ -Plasma Emitters ohne (links) und mit (mitte) Berücksichtigung der spektralen Detektoreigenschaften. Zum Vergleich ist rechts die gemessene THz-Signalform dargestellt.

bestimmten effektiven Volumen V_{eff} mit der Laserpulsenergie recht gut durch die Modellierung beschrieben werden kann. Insbesondere das deutliche Ansteigen des effektiven Volumens beim Erreichen der Mindestenergie zur Erzeugung eines Plasmas wird recht gut wiedergegeben. Allerdings ist der genaue Wert dieser Mindestenergie im berechneten Verlauf der effektiven Volumens leicht niedriger als bei den experimentellen Daten. Das Absinken des experimentell bestimmten effektiven Volumens für Laserpulsenergien größer als $250 \mu\text{J}$ erklärt sich vermutlich durch im Modell nichtberücksichtigte Sättigungseffekte auf Grund von Phasenfehlانpassung oder Absorptionseffekten im Plasma. Die Übereinstimmung in der absoluten Größe ist natürlich nicht überraschend, da ja der $\chi^{(3)}$ -Wert des Plasmas durch Anpassung an die experimentellen Daten gewonnen wurde.

Das dargestellte Modell erlaubt nach Gleichung 6.17 auch eine Beschreibung des zeitlichen Verlaufs der erwarteten THz-Signalform am Ort des Detektors. Dieses ist in Abb. 6.10 (links) dargestellt. Dabei erkennt man im zeitlichen Verlauf der Signalform deutlich die dritte Zeitableitung der gaußförmigen Intensität des optischen Pulses. In Abb. 6.10 (mitte) ist die modellierte THz-Signalform unter Berücksichtigung der spektralen Detektoreigenschaften dargestellt. Erwartungsgemäß wird die maximale Amplitude deutlich reduziert, und das detektierbare Signal zeigt eine deutlich größere Halbwertsbreite. Zum Vergleich ist in Abb. 6.10 (rechts) auch die experimentell bestimmte Signalform dargestellt. Die experimentelle Signalform wurde allerdings ohne eine Spülung des Messaufbaus mit trockenem Stickstoffgas gewonnen, so dass hier nach dem Hauptpuls zusätzliche Oszillationen auf Grund der Wasserdampf-Absorptionslinien der Laborluft sichtbar sind. Grundsätzlich findet man jedoch für den ersten Teil der Signalform eine qualitativ recht gute Übereinstimmung der modellierten und der berechneten Signalform. Die Halbwertsbreite des experimentell bestimmten Hauptpulses ist allerdings deutlich größer als die des modellierten Signals. Diese

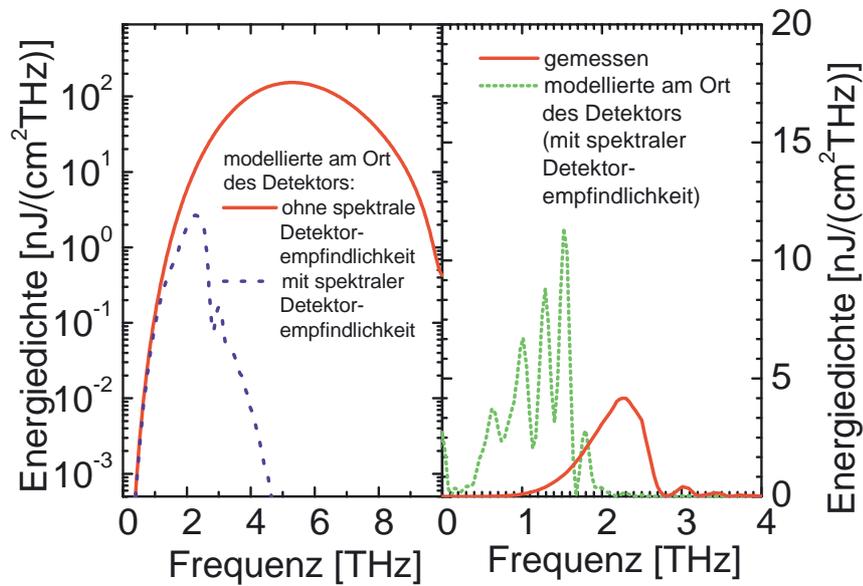


Abbildung 6.11.: Darstellung der modellierten und der gemessenen spektralen Flächenenergiedichte am Ort des Detektors für einen Laserpuls mit $420 \mu\text{J}$, und ein BBO-Brennpunktabstand von 4 cm .

Abweichungen sind wie schon im Fall des Emitters mit externem Feld (vergl. 5) vermutlich auf die nichtberücksichtigte Phasenfehlانpassung oder auf die bei der Beschreibung der Strahlausbreitung gemachten Vereinfachungen zurückzuführen.

In Abb. 6.11 (links) ist die modellierte spektrale Flächenenergiedichte am Ort des Detektors mit und ohne Berücksichtigung der spektralen Detektoreigenschaften dargestellt. Dabei fällt zunächst auf, dass das modellierte Spektrum der erzeugten Flächenenergiedichte ein Maximum bei etwa 5 THz aufweist und dann bis hin zu 10 THz wieder deutlich abfällt. Damit unterscheidet sich das Spektrum grundsätzlich vom Plasmaemitter mit externem Feld, bei dem ja bis hin zu 10 THz kein signifikanter Abfall im Spektrum zu beobachten ist. Dieses Verhalten erklärt sich dadurch, dass im $\chi^{(3)}$ -Bild ja am Detektor eine THz-Signalform erzeugt wird, welche durch die dritte Zeitableitung des zeitlichen Intensitätsverlaufs des Laserpulses gegeben ist. Damit ist die Bandbreite des $\chi^{(3)}$ -Emitters durch den Laserpuls begrenzt. Im Gegensatz dazu werden die extrem hohen Frequenzkomponenten beim Plasmaemitter mit externem Feld durch das abrupte Überschreiten der Ionisierungsschwelle erzeugt.

Der Vergleich der modellierten detektierbaren mit der gemessenen Flächenenergiedichte in Abb. 6.11 (rechts) zeigt allerdings auch hier, dass die experimentell gefundenen Frequenzkomponenten im Spektrum deutlich unterhalb des erwarteten Bereichs liegen. Dieses ist wie beim Plasmaemitter mit externem Feld vermutlich auf nicht berücksichtigte Phasenfehlانpassung im Plasma oder die gemachten Vereinfachungen bei der THz-Strahlausbreitung zurückzuführen.

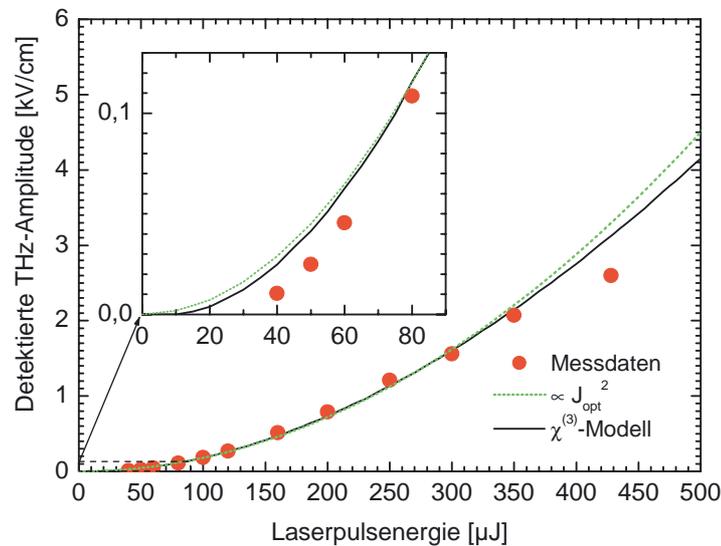


Abbildung 6.12.: Gemessene und modellierte THz-Amplitude des Plasma-Signals als Funktion der Laserpulsenergie. Zum Vergleich ist auch eine quadratische Anpassung dargestellt.

6.7. Variation der Laserpulsenergie

In Abb. 6.12 ist die modellierte THz-Signalamplitude, wie sie sich nach dem zuvor beschriebenen Modell und unter Berücksichtigung der Sättigungseffekte im BBO-Kristall ergibt, zusammen mit den experimentell gewonnenen Werten als Funktion der Laserpulsenergie dargestellt. Zum Vergleich ist noch zusätzlich eine einfache quadratische Anpassung dargestellt. Dabei fällt auf, dass das hier dargestellte Modell die bereits in Kap. 6.2 diskutierten Abweichungen der experimentellen Daten vom quadratischen Verlauf qualitativ richtig erklärt, da ja im Modell das endliche Plasmavolumen und Sättigungseffekte im BBO-Kristall berücksichtigt wurden. Allerdings fallen die absoluten vom Modell vorhergesagten Abweichungen vom quadratischen Verlauf sowohl im Bereich niedriger als auch im Bereich hoher Laserpulsenergien deutlich geringer aus, als die experimentell beobachteten Abweichungen. Die Abweichungen bei niedrigen Laserpulsenergien, die ja auch schon bei der Beschreibung des effektiven Volumens deutlich geworden sind, sind vermutlich auf eine nicht genügend genaue Bestimmung der Ionisierungsschwelle oder der Intensitätsverteilung zurückzuführen. Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Intensitätsverteilung erscheinen dabei wahrscheinlicher, da diese ja innerhalb eines recht einfachen numerischen Modells bestimmt wurden. Diese Abweichungen führen vermutlich zu einer leichten Verschiebung bei der Bestimmung des genauen Werts für die Mindestenergie, welche zur Erzeugung eines Plasmas nötig ist.

Die Abweichungen bei hohen Laserpulsenergien sind dagegen vermutlich auf die nicht berücksichtigte Phasenfehlanspassung oder auf Absorption der optischen oder der THz-Strahlung im Plasma zurückzuführen, da ja beide Effekte bei einer Zunahme der Plasmadimension an Bedeutung gewinnen.

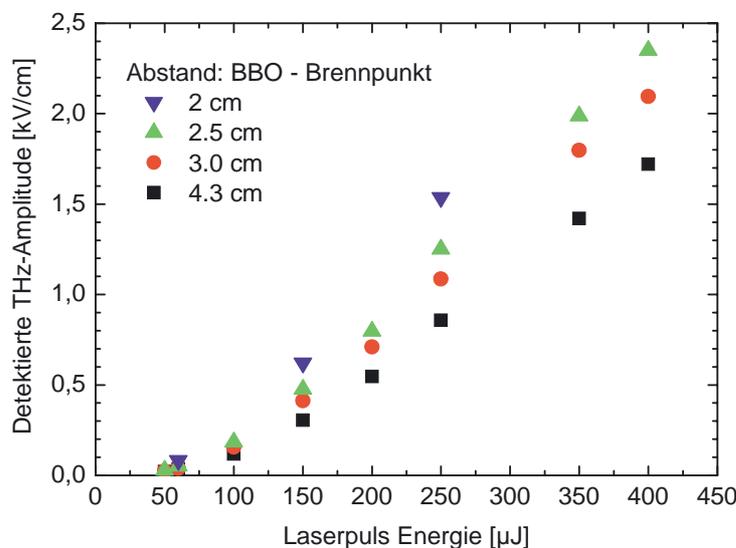


Abbildung 6.13.: Darstellung der kalibrierten am Ort des Detektors gemessenen THz-Signalamplitude (Spitze-Spitze) für verschiedene BBO-Brennpunkt-Abstände und unterschiedliche Gesamtlaserpulsenergien.

6.8. Variation des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses

Für eine weitere Überprüfung des vorgeschlagenen Modells für die THz-Erzeugung ist es wünschenswert, bei konstanter Gesamtpulsenergie das Verhältnis zwischen der Energie des Fundamentalpulses und der Energie des frequenzverdoppelten Laserpulses („Blau-Rot“-Verhältnis) zu variieren. Dieses Vorgehen hat den großen Vorteil, dass die Eigenschaften des Plasmas wie z.B. die Plasmadichte und die räumliche Ausdehnung nahezu unverändert bleiben, da diese Eigenschaften im wesentlichen durch die Gesamtlaserpulsenergie bestimmt werden. Somit kann der Einfluss des überlagerten frequenzverdoppelten Laserpulses auf die THz-Emission untersucht werden, ohne dass die Ergebnisse auf Grund von veränderten Plasmaeigenschaften beeinträchtigt werden.

Experimentell kann eine solche Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses erreicht werden, indem der Abstand zwischen BBO-Kristall und dem optischen Brennpunkt variiert wird. Dieses hat zur Folge, dass sich die Flächenenergiedichte an der BBO-Oberfläche und damit die energetische Konversionseffizienz des BBO-Kristalls ändert. Nach einer Veränderung des BBO-Brennpunkt-Abstands muss allerdings die Phase zwischen dem Fundamental- und frequenzverdoppelten Laserpuls mit Hilfe des Glasplättchens neu optimiert werden, da sich durch die Änderung der optischen Wegstrecke für die zwei überlagerten Pulse auf Grund der Dispersion der Luft die relative optische Phase ändert.

Das experimentelle Ergebnis einer solchen Variation des Abstands zwischen BBO-Kristall und dem optischen Brennpunkt und einer anschließenden Optimierung der optischen Phasendifferenz ist jeweils für unterschiedliche Gesamtlaserpulsenergien in Abb. 6.13 dargestellt. Man erkennt deutlich einen Anstieg der THz-Signalamplitude mit verringertem BBO-Brennpunkt-Abstand.

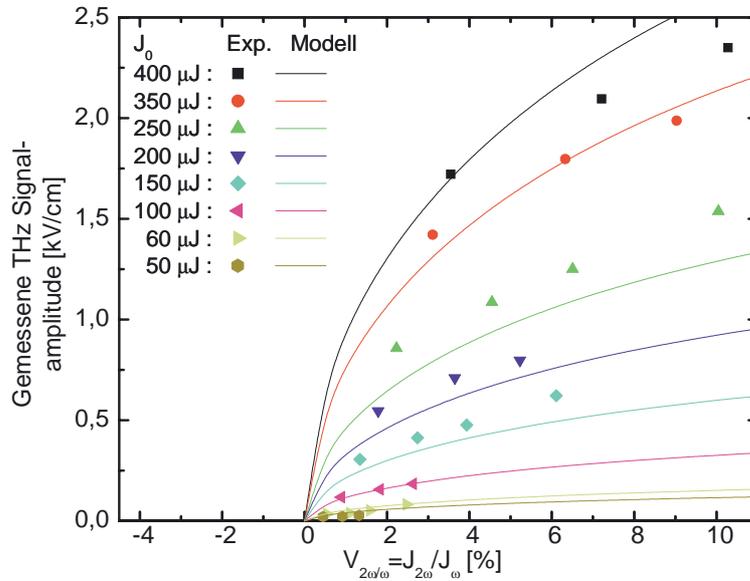


Abbildung 6.14.: Darstellung der kalibrierten am Ort des Detektors gemessenen THz-Signalamplitude (Spitze-Spitze) für verschiedene „Blau-Rot“-Verhältnisse $V_{2\omega,\omega} = J_{2\omega}/J_{\omega}$ und unterschiedliche Gesamtlaserpulsenergien. Die Linien repräsentieren die nach dem vorgestellten Modell erwarteten Signalamplituden.

Im weiteren ist es sinnvoll das energetische „Blau-Rot“-Verhältnis $V_{2\omega,\omega}$ zu definieren als

$$V_{2\omega,\omega} = J_{2\omega}/J_{\omega}, \quad (6.18)$$

wobei die optische Gesamtpulsenergie J_{opt} erhalten bleiben soll:

$$J_{opt} = J_{\omega} + J_{2\omega}. \quad (6.19)$$

Damit kann man dann J_{ω} und $J_{2\omega}$ ausdrücken als

$$J_{\omega} = \frac{J_{opt}}{1 + V_{2\omega,\omega}}, \quad (6.20)$$

und

$$J_{2\omega} = \frac{V_{2\omega,\omega} J_{opt}}{1 + V_{2\omega,\omega}}. \quad (6.21)$$

Auf Basis der bekannten BBO-Konversionseffizienz (vgl. Abb. 6.7) können die Daten aus Abb. 6.13 auch in Abhängigkeit des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses $V_{2\omega,\omega} = J_{2\omega}/J_{\omega}$ dargestellt werden. Das Ergebnis dieser Auswertung ist in Abb. 6.14 dargestellt.

Man erkennt deutlich einen Anstieg der THz-Signalamplitude mit wachsendem „Blau-Rot“-Verhältnis. Leider erlauben die experimentellen Rahmenbedingungen nur eine Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses in einem recht eingeschränkten Bereich, da einerseits für hohe Gesamtlaserpulsenergien auf Grund der endlichen Fläche des BBO-Kristalls keine kleineren „Blau-Rot“-Verhältnisse erreicht werden konnten und sich andererseits das Erreichen von noch höheren „Blau-Rot“-Verhältnissen verbietet, da die Zerstörschwelle des BBO-Kristalls erreicht wird. Da man jedoch

weiß, dass für Laserpulse mit nur einer optischen Frequenz keine THz-Strahlung in Vorwärtsrichtung erzeugt wird, kann man schlussfolgern, dass das THz-Signal jeweils für $V_{2\omega,\omega} = 0\%$ und für $V_{2\omega,\omega} \rightarrow \infty$ verschwinden muss. Folglich wird für ein „Blau-Rot“-Verhältnis von $V_{2\omega,\omega} = 100\%$ ein Signalmaximum erreichen, und das Signal wird bis zum Erreichen von $V_{2\omega,\omega} \rightarrow \infty$ wieder abnehmen.

Bei einer Variation der Gesamtpulsenergie und des „Blau-Rot“-Verhältnisses erwartet man im Rahmen des vorgestellten Modells die folgenden Abhängigkeiten für die Amplitude des detektierten THz-Signals:

$$\begin{aligned}
 E_0^{det} &\propto \chi_{Pl}^{(3)} V_{eff}(J_{opt}) \cdot J_{\omega} \sqrt{J_{2\omega}} \\
 &= \chi_{Pl}^{(3)} V_{eff}(J_{opt}) \cdot J_{\omega}^{\frac{3}{2}} \sqrt{V_{2\omega,\omega}}, \text{ mit } V_{2\omega,\omega} = \frac{J_{2\omega}}{J_{\omega}} \\
 &= \chi_{Pl}^{(3)} V_{eff}(J_{opt}) \cdot J_{opt}^{\frac{3}{2}} \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{1}{V_{2\omega,\omega}}}\right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{V_{2\omega,\omega}}. \\
 \text{mit } J_{opt} &= J_{\omega} + J_{2\omega}.
 \end{aligned} \tag{6.22}$$

Die Darstellung zeigt, dass das Modell die experimentellen Daten im wesentlichen gut beschreibt. Allerdings kann bei höheren Gesamtlaserpulsenergien der Verlauf des Signals bei einer Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses nicht richtig wiedergegeben werden. Für mittlere Gesamtlaserpulsenergien liegen die berechneten Werte grundsätzlich etwas zu niedrig. Dieses ist vermutlich eine Folge der nicht völlig exakten Beschreibung der Strahlausbreitung und des effektiven Volumens. Dieses erkennt man auch an den Abweichungen des Verlaufs vom berechnetem effektivem Volumen von den experimentellen Werten in Abb. 6.9.

7. Mikroskopische Erklärung der Plasma-Nichtlinearität

Nach der Vorstellung der experimentellen Daten auf Basis des phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modells im vorangegangenen Kapitel, sollen in diesem Kapitel mögliche mikroskopische Mechanismen zur Erklärung der physikalischen Ursachen für die Nichtlinearität im Plasma diskutiert werden. Dabei orientiert sich die Darstellung zunächst an der Diskussion der Erzeugung von optischen höheren Harmonischen im Plasma, da dieses Thema in der Literatur ausführlich behandelt wird und der Effekt ebenfalls auf Nichtlinearitäten im Plasma basiert. Von besonderer Bedeutung ist dabei die Frage inwieweit die Nichtlinearitäten grundsätzlich zeitunabhängig im Plasmamedium vorhanden sind, oder ob diese nur im Zusammenhang mit der Ionisierung also auch nur zum Zeitpunkt der lokalen Plasmaerzeugung auftreten. In Unterkapitel 7.3 wird dann ein selbst entwickeltes weiterführendes mikroskopisches Modell vorgestellt, welches die Nichtlinearitäten im Plasma durch Feldasymmetrien während der Ionisierung erklärt, und speziell auf die Besonderheiten der THz-Erzeugung eingeht. Dabei werden die Vorhersagen dieses Modells mit den Vorhersagen des phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modells und mit den experimentellen Daten verglichen.

7.1. Grundlagen: Erzeugung höherer Harmonischer in fokussierten Laserstrahlen

Nicht-lineare Effekte in fokussierter intensiver Strahlung von PulsLasern sind insbesondere im Zusammenhang mit der Erzeugung optischer höherer Harmonischer intensiv untersucht worden. Die folgende kurze Einführung in dieses Thema soll als Grundlage für die Diskussion des mikroskopischen nicht-linearen THz-Generationsmechanismus in Kap. 6 und 7 dienen. Leider muss die Diskussion der Erzeugung höherer Harmonischer wegen der Komplexität des Themas auf eine kurze Einführung in das Thema beschränkt bleiben, die allerdings ausreichen sollte, um die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modelle zu bewerten.

Die Erzeugung höherer Harmonischer der Fundamentalfrequenz in Brennpunkten von Dauerstrich- oder PulsLasersstrahlen ist ein intensiv untersuchtes Arbeitsfeld. Grundsätzlich kann die Erzeugung der höheren Harmonischen auf Grund der folgenden Prozesse erfolgen:

1. Nichtlineare Polarisation im Atom bzw. Molekül [95, 98, 127, 128]
2. Inverse Bremsstrahlung bei der Rekombination eines Elektron-Ion-Paares, nach einem vollen optischen Zyklus nach der Ionisierung [129, 130, 131, 132, 133, 134]
3. Nichtlineare Plasmaströme verursacht durch die zeitabhängige Ionisierungsrate [135, 136, 137]
4. Nichtlineare Polarisation des Plasmas auf Grund von Elektron-Ion-Stößen [138, 139, 140]
5. Nichtlinearitäten wegen relativistischer Effekte [141, 142]

Dabei unterscheiden sich die Effekte zunächst darin, ob für die Erzeugung der höheren Harmonischen ein Plasma notwendig ist (dieses gilt für die letzten vier Punkte), oder aber ob die Nichtlinearitäten von der Existenz des Plasmas unabhängig sind (dieses gilt nur für den ersten o.g. Effekt).

Weiter unterscheiden sich die Nichtlinearitäten in Verbindung mit der Existenz bzw. Ausbildung eines Plasmas darin, ob die Nichtlinearitäten in direkten Zusammenhang mit dem Ionisierungsprozess stehen (dieses gilt für die Punkte 2 und 3), oder ob nur das Vorhandensein des Plasmas als nichtlineares Medium nötig ist (dieses gilt für die Punkte 4 und 5). Im Weiteren sollen die o.g. Effekte im Einzelnen kurz vorgestellt werden.

Nichtlineare Polarisation im Atom bzw. Molekül

Das Auftreten von Nichtlinearitäten in Gasen auf Grund der nichtlinearen Polarisierbarkeit der Atome bzw. Moleküle ist wegen der Symmetrieeigenschaften des Suszeptibilitätstensors von isotropen Medien auf die Erzeugung von ungeraden Harmonischen begrenzt [128]. In der Literatur findet man praktisch nur Arbeiten zur Erzeugung der dritten Harmonischen [95, 98, 127, 128], da die Erzeugung noch höherer Harmonischer extrem ineffektiv ist.

Nichtlinearitäten in Atom- oder Molekülgasen treten zunächst auf Grund der Wechselwirkung der Elektronenhülle mit dem äußeren elektromagnetischen Feld auf [95]. Außerdem gibt es noch Beiträge des Kerns und bei Molekülgasen koppeln auch Rotations- und Vibrationsmoden mit den äußeren Feldern [95]. Eine genaue Herleitung der nichtlinearen Terme erfordert komplexe quantenmechanische Rechnungen, die den Umfang dieser Einführung deutlich überschreiten würden.

Neben diesen elektronischen Beiträgen treten für Moleküle zusätzlich noch Nichtlinearitäten wegen der Wechselwirkung der Elektronen mit Rotations- und Vibrationsmoden des Moleküls auf. Diese Effekte können zu einer deutlich höheren Nichtlinearität in Molekül- Gasen führen [95].

Da die nichtlinearen Effekte in atomaren oder molekularen Gasen direkt mit der Teilchendichte skalieren, besteht zwischen der effektiven Nichtlinearität des Gases und dem Druck ein linearer Zusammenhang.

Diese Art von nichtlinearer Polarisation in Atomen und Molekülen führt auch zu einer Änderung der intensitätsabhängigen Ausbreitungsgeschwindigkeit von elektromagnetischen Wellen. Dieses als Kerr-Effekt bezeichnete Phänomen wird in Kap. 4.3.1 näher vorgestellt.

Inverse Bremsstrahlung bei der Rekombination eines Elektron-Ion-Paares nach einem vollen optischen Zyklus nach der Ionisierung.

Ist die optische Intensität groß genug, um im Brennpunkt ein Plasma zu erzeugen, ermöglicht dieses die Erzeugung höherer Harmonischer durch zusätzliche Effekte. Dominierend ist dabei die Erzeugung von höheren Harmonischen mittels inverser Bremsstrahlung [129, 130, 131, 132, 133, 134]. Im Detail hat man sich diesen Prozess so vorzustellen, dass (wie in Kap. 4.1.4 bzw. 7 näher diskutiert wird) ein Ionisierungsprozess nur zu einem bestimmten Zeitpunkt während des optischen Zyklus stattfinden kann, nämlich wenn die optischen Feldstärke ein Maximum aufweist. Dieses liegt an der extrem nichtlinearen Abhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit von der Feldstärke (vergl. Kap. 4.1.2). Das Elektron wird nach der Ionisierung zunächst im optischen Feld vom Ion wegbeschleunigt und erreicht nach genau einem vollen optischen Zyklus wieder eine Position in der Nähe des Ions. In Abhängigkeit von den genauen Anfangsbedingungen (also vom exakten Ionisierungszeitpunkt) wird dann unter Umständen ein Stoßprozess mit dem Ion stattfinden, welcher eine Emission eines Photons im Rahmen eines inversen Bremsstrahlungsvorgangs zur Folge hat. Mittels genauer quantenmechanischer Rechnungen kann man zeigen, dass dabei nur ungradzahlige Harmonische der Fundamentalen mit einer maximalen Photonenergie von $U_{ion}^{\theta} + 3,2 U_{pon}$ erzeugt werden. Dabei stellt U_{pon} die ponderomotive Energie dar.

Nichtlineare Plasmaströme verursacht durch die zeitabhängige Ionisierungsrate

Neben der Erzeugung von höheren Harmonischen auf Grund inverser Bremsstrahlung ist noch ein zweiter Mechanismus möglich. Nach einer von F. Brunel entwickelten Theorie [135], entsteht die Strahlung bei der höheren Harmonischen wegen der Zeitabhängigkeit der Plasmadichte und damit der Plasmafrequenz. Eine solche Zeitabhängigkeit entsteht dadurch, dass die Ionisierungsprozesse praktisch nur zum Zeitpunkt maximaler optischer Feldstärke stattfinden. Damit wird die Plasmadichte an einem bestimmten Punkt im Raum zeitlich stufenförmig ansteigen, wobei der Abstand der Stufen genau einem halben optischen Zyklus entspricht. Da der Plasmastrom durch das Produkt aus der Plasmadichte und der Geschwindigkeit der Elektronen auf Grund der Oszillation im optischen Feld gegeben ist, entstehen nichtlineare Beiträge im transversalen Plasmastrom, welche zu einer Erzeugung höherer Harmonischer führen. Dieser Effekt ist im Parameterbereich hoher Ponderomotiver Energien relativ zur Ionisierungsenergie dominierend, da dieses einer großen Amplitude der Elektronenbewegung entspricht. Dieses bedeutet einerseits hohe transversale Plasmaströme und hat andererseits zur Folge, dass, durch die statistischen Variationen in den Anfangsbedingungen ein Auftreffen des Elektrons auf das Mutter-Ion und damit ein inverser Bremsstrahlungsprozess entsprechend unwahrscheinlich ist. Die Existenz solcher nichtlinearer Plasmaströme ist von Siders et al. in einem Zwei-Farben-Experiment bestätigt worden [137].

Nichtlineare Polarisation des Plasmas auf Grund von Elektron-Ion Stößen

Auffallend an den zuvor beschriebenen Effekten ist, dass diese in direktem Zusammenhang mit dem Ionisierungsprozess selbst stehen. Das heißt, dass man diese Effekte nicht in einem vorhandenen Plasma finden würde. Für eine Anwendbarkeit der Modelle für die nichtlineare Erzeugung von höheren optischen Harmonischen auf die Erzeugung von THz-Strahlung ist allerdings von besonderer Bedeutung, ob solche Nichtlinearitäten auch unabhängig von Ionisierungsprozess im Plasma existieren.

Im Zusammenhang mit der Erzeugung von höheren optischen Harmonischen wurden solche vom Ionisierungsprozess unabhängigen Nichtlinearitäten theoretisch vorgeschlagen [138, 139, 140]. Allerdings steht eine experimentelle Bestätigung noch aus [139].

Diese Art von Nichtlinearität basiert auf einer nichtlinearen Abhängigkeit der Elektron-Ion-Stoßfrequenz vom optischen elektrischen Feld. Damit entsteht auch eine nichtlineare Abhängigkeit der Plasmastromdichte von der Oszillationsgeschwindigkeit der Elektronen im optischen Feld, wobei die Koppelung durch die Elektron-Ion Stoßfrequenz erfolgt [138].

Im Hinblick auf die praktische Bedeutung dieser Effekte muss allerdings gesagt werden, dass nichtlineare Effekte auf Grund von Elektron-Ion-Stößen erst bei sehr hohen Plasmadichten von oberhalb von 10^{20} cm^{-3} von Bedeutung sein sollten [139]. Im Rahmen dieser Arbeit liegen die maximal erzeugten Plasmadichten um etwa eine Größenordnung niedriger, so dass Nichtlinearitäten dieser Art vernachlässigbar sein sollten.

Nichtlinearitäten wegen relativistischer Effekten

Im Intensitätsbereich oberhalb von 10^{18} Wcm^{-2} ist auch die Erzeugung höherer Harmonischer auf Grund von Nichtlinearitäten, welche auf relativistischen Effekten basieren, zu beobachten [141, 142]. Solche Nichtlinearitäten sind allerdings im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente mit Intensitäten von maximal 10^{15} Wcm^{-2} zu vernachlässigen.

7.2. Anwendbarkeit der üblichen Konzepte für Plasma-Nichtlinearitäten auf die THz-Erzeugung

Eine direkte Übertragbarkeit der nichtlinearen Generationsmechanismen für die Erzeugung optischer höherer Harmonischer auf die THz-Erzeugung wäre nur dann sinnvoll, wenn ein Erklärungsansatz für eine vom Ionisierungsprozess unabhängige $\chi^{(3)}$ -Nichtlinearität des Plasmamediums gefunden werden könnte. Allerdings muss festgestellt werden, dass im verwendeten Parameterbereich weder Nichtlinearitäten auf Grund von Elektron-Ion-Stößen, noch auf Grund von relativistischen Effekten relativ zur Nichtlinearität der Gasmoleküle von Bedeutung sein werden. Da aber, wie bereits in Kap. 6 diskutiert wurde, die Nichtlinearität der Gasmoleküle als Generationsmechanismus für die THz-Emission ausgeschlossen werden kann¹, werden die im verwendeten Parameterbereich noch deutlich schwächeren Nichtlinearitäten im Plasmamedium erst recht vernachlässigbar sein.

Diese Schlussfolgerung hat die wichtige Konsequenz, dass das (in Kap. 6) beschriebene phänomenologische Modell von Cook et al., welches auf einem zeitunabhängigen $\chi^{(3)}$ im Plasmamedium basiert, in der vorliegenden Form in Frage gestellt werden muss. Damit wird eine Erweiterung der Modellierung der THz-Emission in einer Form notwendig, welche einen Zusammenhang der Nichtlinearität mit dem Ionisierungsprozess selbst und damit eine Zeitabhängigkeit der Nichtlinearität erlaubt. Eine solche erweiterte Modellierung sollte natürlich eine mikroskopische Erklärung des Zustandekommens der Nichtlinearität einerseits, und eine Beschreibung der makroskopischen THz-Emission andererseits beinhalten. Ein solches Modell soll im weiteren Verlauf dieses Kapitels vorgestellt werden.

7.3. Mikroskopisches Generationsprinzip

Leider sind auch die im Zusammenhang mit der Erzeugung höherer optischer Harmonischer im Plasma diskutierten zeitabhängigen Nichtlinearitäten, welche im Zusammenhang mit dem Ionisierungsprozess stehen, nicht direkt auf die Erzeugung von THz-Strahlung übertragbar. Dieses gilt insbesondere für die Erzeugung der höheren Harmonischen mittels inverser Bremsstrahlung, da eine Emission eines THz-Photons, oder eine Erzeugung einer quasistatischen Polarisation in diesem Bild nicht zu erklären ist. Auch der Mechanismus der Erzeugung von optischen höheren Harmonischen auf Grund zeitabhängiger transversaler Plasmaströme ist nicht direkt auf die THz-Erzeugung übertragbar, da ein zeitlich stufenförmig ansteigender oszillatorischer Plasmastrom an sich noch keine THz-Emission erklären kann. Das im weiteren dargestellte selbst entwickelte Bild basiert allerdings auf Elementen beider zuvor genannter Mechanismen und ist in der Lage die THz-Emission auf Basis einer mikroskopischen Beschreibung zufriedenstellend zu beschreiben.

Zum Verständnis sei zunächst angemerkt, dass die Modellierung der THz-Emission auf Basis mikroskopischer Generationsnichtlinearitäten im Weiteren auf drei verschiedenen Zeitskalen und in drei unterschiedlichen räumlichen Größenordnungen erfolgen wird. Die drei Zeitskalen sind gegeben durch die optische Oszillationsperiode (ca. 7,5 fs), die Zeitskala der Plasmaschwingung (ca. 30 fs) und die Länge der Einhüllenden des Laserpulses (ca. 150 fs). Zu den drei relevanten räumlichen Größenordnungen gehört zunächst die atomare Größenskala des zu ionisierenden Atoms oder

¹Eine Erklärung der THz-Emission auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten in Luft bzw. genauer in den Gasmolekülen muss ausgeschlossen werden, da nach der quantitativen Analyse in Kap. 6 ein $\chi^{(3)}$ -Wert des Mediums, welcher um zwei Größenordnungen über dem Literaturwert von Luft liegt, nötig wäre um die THz-Emission zu erklären. Ebenfalls wäre das abrupte Verschwinden der THz-Emission unterhalb einer für die Plasmaerzeugung nötigen Mindestlaserpulsenergie mit einem $\chi^{(3)}$ -Effekt in den Gasmolekülen nicht zu erklären.

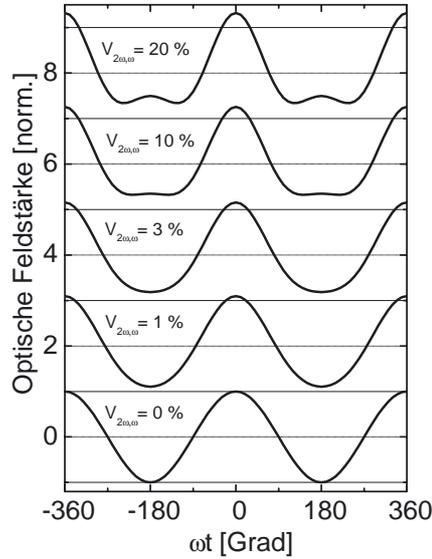


Abbildung 7.1.: Darstellung des zeitlichen Verlaufs der optischen Feldstärke für unterschiedliche „Blau-Rot“-Verhältnisse $V_{2\omega, \omega}$ bei konstanter Gesamtlaserpulsenergie J_{opt} . Die Daten wurden dabei jeweils mit dem gleichen Faktor so normiert, dass die maximale Feldstärke bei $V_{2\omega, \omega} = 0$ den Wert 1 annimmt.

Moleküls. Als nächstes soll ein Volumenelement des Plasmas betrachtet werden, dessen Größe ausreicht um eine kollektive Plasmaschwingung zuzulassen und das andererseits klein ist gegen die makroskopische Ausdehnung des gesamten Plasmavolumens. Dieses makroskopische Plasmavolumen stellt dann die dritte zu betrachtende Größenskala dar.

Die Entstehung von Nichtlinearitäten in Zusammenhang mit der Erzeugung des Plasmas, kann man sich im Detail folgendermaßen vorstellen. Da die Ionisierung eines Atoms oder Moleküls auf atomarer Größenskala sehr kritisch von der elektrischen Feldstärke abhängt (vergl. Kap. 4.1.2), wird bei vergleichsweise langsam (d.h. auf einer Zeitskala der Einhüllenden des Laserpulses) gesteigerter Intensität, ein einzelnes Ionisierungsereignis (also die Ionisierung eines einzelnen Atoms oder Moleküls) mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit im Bereich eines Maximums der elektrischen Feldstärke (welche ja mit der optischen Frequenz oszilliert) stattfinden. Beim Erreichen der Intensitätsschwelle für signifikante Ionisierung ($I_{ion} = 1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) beträgt die elektrische Feldamplitude $E_{ion}^0 = \sqrt{2I_{ion}/(\epsilon_0 c_0)} = 336.000 \text{ kV/cm}$. Wie sich leicht zeigen lässt wird ein geladenes Teilchen welches im Maximum der elektrischen Feldstärke mit den Anfangsbedingungen $x = 0$ und $v = 0$ geboren wird, in einem solchen elektromagnetischen Wechselfeld mit der Amplitude E_{ion}^0 eine oszillatorische Bewegung um einen Schwerpunkt welcher um den Wert

$$\Delta x = \frac{e E_{ion}^0}{m_e \omega_{opt}^2} \quad (7.1)$$

vom Entstehungsort entfernt ist, ausführen. Bei 775 nm ergibt sich für Δx ein Wert von etwa 1 nm.

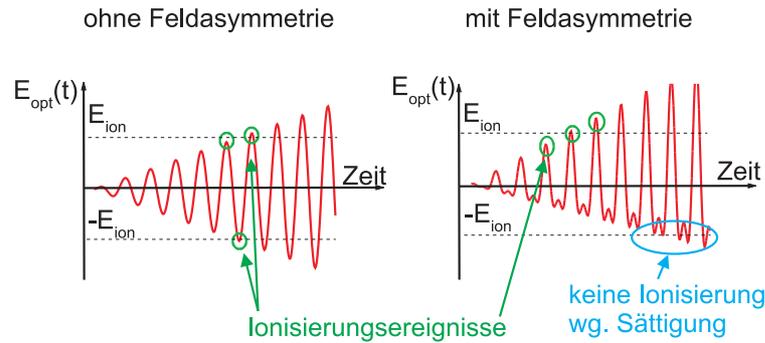


Abbildung 7.2.: Schematische Darstellung der Ionisierung mit und ohne Feldasymmetrie während des Anstiegs der optischen Intensität.

Bei der Verwendung von Licht mit nur einer Wellenlänge spielt diese Verschiebung des Elektroschwerpunktes bei der Entstehung keine Rolle, da diese statistisch verteilt in beiden Richtungen stattfindet. Wird aber das Licht mit der Fundamentalfrequenz mit Licht der zweiten Harmonischen phasenrichtig überlagert, wird eine Asymmetrie im elektrischen Feldverlauf eingeführt. Dieses ist in Abb. 7.1 für verschiedene „Blau-Rot“-Verhältnisse $V_{2\omega,\omega}$ bei konstanter Gesamtlaserpulsenergie J_{opt} dargestellt. Die Asymmetrie im Feldverlauf führt dazu, dass bei einer Steigerung der Intensität (wie in Abb. 7.2 angedeutet) die Ionisierungsfeldstärke zunächst nur bei positiver Polarität der Feldstärke erreicht wird. Dieses führt in Verbindung mit der extremen Feld- bzw. Intensitätsabhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit dazu, dass praktisch alle Elektronen im Bereich des Maximums einer Halbwelle mit positiver Polarität ionisiert werden, da ja eine Ionisierung bei der entgegengesetzten Polarität auf Grund der geringeren Feldstärke immer deutlich unwahrscheinlicher ist. Eine Ionisierung zu einem späteren Zeitpunkt, bei dem auch bei negativer Feldrichtung die Ionisierungsfeldstärke erreicht wird, ist unwahrscheinlich, da entsprechende Intensitäten entweder auf Grund von Plasmadefokussierung vermutlich erst gar nicht erreicht werden oder aber evtl. Ionisierungsereignisse wegen der deutlich reduzierten Anzahl von nichtionisierten Molekülen unwahrscheinlich werden (d.h. dass eine Sättigung der Ionisierungsrate eintritt). Folglich werden also nahezu alle erzeugten freien Elektronen zuerst in positiver Richtung beschleunigt und somit auch im zeitlichen Mittel über die optische Periode in positiver Richtung verschoben.

An dieser Stelle stellt sich die Frage, inwieweit zu berücksichtigen ist, dass, bei den durchgeführten Experimenten das Licht der zweiten Harmonischen nicht exakt in der gleichen Richtung wie die fundamentale Strahlung polarisiert ist (vergl. Kap. 6.4). Da sich zum Zeitpunkt der Ionisierung die beiden Feldstärken der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen vektoriell addieren, wird ein solcher Unterschied in den Polarisationsrichtungen zu einer leichten Drehung der Richtung der erzeugten Polarisierung im Plasma führen. Da jedoch die Feldamplitude der zweiten Harmonischen vergleichsweise klein ist, und sich die Drehung der Polarisationsrichtung im Plasma in Richtung der Detektorempfindlichkeit (d.h. der Polarisationsrichtung der Fundamentalen) kaum auswirkt, soll dieser Effekt bei der Bestimmung der durch den Term $F_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ (s.u.) beschriebenen im Plasma erzeugten absoluten Polarisierung vernachlässigt werden. Dieses ist insbesondere auch daher gerechtfertigt, da die Bestimmung des genauen Wertes von $F_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ im Folgenden ohnehin durch eine Anpassung des Wertes von Δt_P auf Basis der experimentellen Daten erfolgen soll. Bei der Bestimmung der effektiven Laserpulsenergie in Kap. 7.4 wird die unterschiedliche Po-

larisation der zweiten Harmonischen die unterschiedliche Polarisierung der zweiten Harmonischen berücksichtigt.

Die Verschiebung der entstandenen Elektronen relativ zu den Ionen führt bei vollständiger Asymmetrie zu einer Polarisierung des Plasmas in der Stärke:

$$\begin{aligned} P_{GenNL}^0 &= \Delta x \cdot \rho_{pl} \cdot e \\ &= \frac{2e^2 E_{ion} \rho_{pl}}{m_e \omega_{opt}^2}. \end{aligned} \tag{7.2}$$

Geht man von einem mittleren Ionisierungsgrad von etwa 50 % bzw. einer Plasmadichte von etwa $1.35 \cdot 10^{19} \text{ 1/cm}^3$ aus, entspricht dieses einer Polarisierung von $P_{GenNL}^0 = \epsilon_0 \cdot 2400 \text{ kV/cm}$. Die so erzeugte Polarisierung hat natürlich im lokalen Plasmavolumenelement eine Plasmawelle zur Folge. Diese Plasmawelle wird allerdings wegen der hohen mittleren Elektronengeschwindigkeit durch die optische Oszillationen und auf Grund der hohen Teilchendichte von $\rho_{gas} = 2,7 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (was einem mittleren Teilchenabstand von 3 nm relativ zu der Spitze-zu-Spitze-Oszillationsamplitude $2 \cdot \Delta x = 2 \text{ nm}$ entspricht) stark (d.h. überkritisch) gedämpft sein bzw. extrem schnell dephasieren. Damit kann man davon ausgehen, dass das erzeugte Dipolmoment etwa auf einer Zeitskala in der Größenordnung von einem Viertel der inversen Plasmafrequenz ($\omega_{pl}/(2\pi) \cong \text{THz}$) verschwindet.

Da diese Zeitskala deutlich kürzer ist, als die für die Erzeugung der THz-Signale maßgeblichen Zeitskalen wird der genaue zeitliche Verlauf des Dipolmoments keine Rolle bei der Beschreibung der makroskopischen THz-Emission (auf der Zeitskala der Laserpulslänge) spielen. Daher kann das in einem bestimmten Volumenelement im Plasma lokal erzeugte Dipolmoment formal am einfachsten über eine Dirac-sche Deltafunktion beschrieben werden:

$$P_{NL}(t) = P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P \cdot \delta(t - t_{ion}). \tag{7.3}$$

Dabei wurde Δt_P als die charakteristische Zeit eingeführt, für welche das erzeugte Dipolmoment im lokalen Plasmavolumenelement besteht, bevor es verschwindet. Dieses formale Vorgehen ist insbesondere daher sinnvoll, da wie sich später zeigen wird, zur Bestimmung des makroskopischen zeitlichen THz-Signals ohnehin über $P_{NL}(t)$ integriert wird. Zur exakten Bestimmung von Δt_P wäre eine Lösung der Differentialgleichung für die Plasmaschwingung mit einer genauen Kenntnis der für die Dämpfung maßgeblichen Streuzeiten nötig. Eine genaue Abschätzung der Parameter ist allerdings extrem schwierig, da das Plasma direkt nach der Erzeugung nicht im thermischen Gleichgewicht ist, und gängige Näherungsformeln für die Streuzeiten im Plasma daher nicht mehr gelten [92]. Im weiteren soll daher der Wert für Δt_P durch Anpassung an die experimentellen THz-Daten bestimmt werden.

Drückt man den Zeitpunkt der Ionisierung t_{ion} durch die Bedingung aus, dass die Intensitätsschwelle für die Ionisierung erreicht wird ($I_{opt}(r, z, t_{ion}) = I_{ion}$), ergibt sich:

$$\begin{aligned}
P_{NL}(r, z, t) &= \begin{cases} P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P \cdot \delta(I_{opt}(r, z, t) - I_{ion}), & \text{falls } t - \frac{z}{c_0} < 0, \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \\
&= P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P \frac{\partial}{\partial t} \int_{-\infty}^t dt' \begin{cases} \delta(I_{opt}(r, z, t) - I_{ion}), & \text{falls } t - \frac{z}{c_0} < 0 \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \\
&= P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P \frac{\partial}{\partial t} \begin{cases} 1, & \text{falls } \begin{cases} I_{opt}(r, z, t^* - \frac{z}{c_0}) > I_{ion} \\ \text{für beliebiges } t^* \\ \text{mit } -\infty < t^* < t, \end{cases} \\ 0, & \text{sonst.} \end{cases}
\end{aligned} \tag{7.4}$$

Dabei wurde zunächst durch die Fallunterscheidung berücksichtigt, dass nur beim Erreichen der Ionisierungsschwelle während der ansteigenden Pulsflanke ($t - \frac{z}{c_0} < 0$) eine Ionisierung stattfindet. Das Erreichen der Ionisierungsschwelle in der abfallenden Pulsflanke bleibt dagegen unberücksichtigt. Auf Grund der Delta-Funktion in P_{GenNL} ist es dann sinnvoll den Ausdruck für P_{GenNL} erst formal über die Zeit zu integrieren um das Ergebnis dann wieder zu differenzieren. Berücksichtigt man den bekannten zeitlich gaußförmigen Verlauf von $I_{opt}(r, z, t)$ kann man das Integral einfach ausdrücken, durch die Bedingung, dass zu einem beliebigen Zeitpunkt t^* vor der Zeit t die Ionisierungsschwelle überschritten wurde. Dabei erkennt man, dass der Ausdruck bis auf den unterschiedlichen Vorfaktor und die zusätzliche Zeitableitung identisch mit dem Ausdruck für die Polarisierung beim Plasmaemitter mit externem Feld ist (vergl. Gl. 5.4 in Kap. 5.3).

Dieses wird auch anschaulich klar, da ja der Verlauf des lokalen Dipolmoments beim Plasmaemitter mit externem Feld wegen der instantanen Feldabschirmung und der vernachlässigbaren Rekombination stufenförmig ist. Bei dem hier diskutierten Generationsmechanismus entsteht dagegen nur ein Delta-förmiger Polarisationspuls zum Zeitpunkt der Ionisierung. Mathematisch entspricht die Deltafunktion jedoch genau der Ableitung der Stufenfunktion womit die o.g. Analogie anschaulich wird.

7.4. Die effektive Laserpulsenergie J_{eff}

Im Folgenden soll diskutiert werden, inwieweit die THz-Signalamplitude im hier dargestellten mikroskopischen Modell auf Basis von zeitabhängigen Generationsnichtlinearitäten von der gesamten Laserpulsenergie und vom energetischen „Blau-Rot“-Verhältnis abhängt. Dazu ist die formale Einführung einer effektiven Laserpulsenergie J_{eff} sinnvoll. Dieses Konzept der effektiven Laserpulsenergie wird in Kap. 7.8 auch auf eine Variation der optischen Phasendifferenz erweitert.

Das erzeugte retardierte Dipolmoment hängt im zuvor dargestellten Modell nur von der Größe des maximal erzeugten Plasmavolumens und vom Wert des Terms $P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ ab. Ein minimaler Einfluss des für unterschiedliche Laserpulsenergien minimal veränderten zeitlichen Verlaufs der THz-Signalform kann bei der Bestimmung der detektierbaren Signalamplitude vernachlässigt werden. Dieses wurde auch schon in Kap. 5 anhand des Plasmaemitters mit externem Feld gezeigt. Geht man nach den Erkenntnissen aus Kap. 4.3 zusätzlich von einer von der Laserpulsenergie unabhängigen mittleren Plasmadichte aus, kann man von einem konstanten Wert für den Term $P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ ausgehen, da ja die optische Feldstärke zum Zeitpunkt der Ionisierung durch die Intensitätsschwelle für die Ionisierung festgelegt ist. Diese Annahme gilt allerdings nur, wenn man von der Voraussetzung ausgeht, dass auf Grund der Überlagerung mit der zweiten Harmonischen die Asymmetrie im

optischen Feld genügend groß ist, so dass nahezu alle Teilchen bei gleicher Polarität der optischen Strahlung ionisiert werden. Dieses soll im Folgenden vorausgesetzt werden, wobei die Gültigkeit der im Modell gemachten Aussagen auf experimentelle Parameterbereiche eingeschränkt wird, in denen die Annahme einer vollständig asymmetrischen Ionisierung gerechtfertigt ist. Als Bedingung hierfür wurde ein Wert für die Asymmetrie (also der Differenz zwischen den Absolutwerten von Minimum und Maximum relativ zur vollen Feldamplitude) von mindestens 10 % festgelegt. Diese Bedingung wird z.B. Beispiel bei engergetischen „Blau-Rot“-Verhältnissen von mehr als 1 % erfüllt, so dass entsprechend Werte von $V_{2\omega,\omega} < 1\%$ in der Modellierung ausgeschlossen bleiben.

Geht man also von einem konstanten Wert für $P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ aus, so müssen alle Einflüsse auf die Signalamplitude über eine Änderung des maximal erreichten Plasmavolumens erfolgen. Daher ist es sinnvoll eine effektive Laserpulsenergie J_{eff} so zu definieren, dass J_{eff} gerade derjenigen Energie entspricht welche ein Laserpuls mit nur einer optischen Frequenz haben müsste, um das gleiche Plasmavolumen zu erzeugen wie ein Laserpuls mit überlagerter zweiten Harmonischen mit der Gesamtlaserpulsenergie $J_{opt} = J_{\omega} + J_{2\omega}$ und mit einem „Blau-Rot“-Verhältnis $V_{2\omega,\omega} = J_{2\omega}/J_{\omega}$. Im Fall gleicher Polarisationsrichtungen von Fundamentaler und zweiter Harmonischer gilt dann

$$\begin{aligned} J_{eff} &\propto \text{MAX}((E_{opt}(t))^2) \\ &\propto (E_{\omega}^0 + E_{2\omega}^0)^2, \\ \text{bzw. } J_{eff} &= (\sqrt{J_{\omega}} + \sqrt{J_{2\omega}})^2 \\ &= J_{opt} \left(1 + \frac{2\sqrt{V_{2\omega,\omega}}}{1 + V_{2\omega,\omega}} \right). \end{aligned} \tag{7.5}$$

Dabei wurde angenommen, dass sich bei phasenrichtiger Überlagerung der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen die beiden Feldstärkenamplituden ($E_{\omega}^0 \propto \sqrt{J_{\omega}}$ und $E_{2\omega}^0 \propto \sqrt{J_{2\omega}}$) zur Spitzenfeldstärke ($\text{MAX}((E_{opt}(t))^2) \propto \sqrt{J_{eff}}$) addieren.

Der zuvor dargestellte Fall gleicher Polarisierungen ist in den durchgeführten Experimenten allerdings nicht gegeben (vergl. Kap. 6.4). Berücksichtigt man daher, dass die Polarisation des Licht der zweiten Harmonischen um den Winkel² θ_{BBO} relativ zur Polarisationsrichtung der Fundamentalen gedreht ist, ergibt sich

$$\begin{aligned} J_{eff} &\propto \text{MAX}((E_{opt}(t))^2) \\ &\propto (E_{\omega}^0 + \cos(\theta_{BBO})E_{2\omega}^0)^2 + (\sin(\theta_{BBO})E_{2\omega}^0)^2, \\ \text{bzw. } J_{eff} &= (\sqrt{J_{\omega}} + \cos(\theta_{BBO})\sqrt{J_{2\omega}})^2 + (\sin(\theta_{BBO})\sqrt{J_{2\omega}})^2 \\ &= J_{opt} \left(1 + \cos(\theta_{BBO}) \frac{2\sqrt{V_{2\omega,\omega}}}{1 + V_{2\omega,\omega}} \right). \end{aligned} \tag{7.6}$$

Dabei wurden einfach die beiden Feldstärkekomponenten (der Fundamentalen und der zweiten Har-

²Der Index „BBO“ für die Bezeichnung des Winkels zwischen der Polarisation der Fundamentalen und der Polarisation der zweiten Harmonischen, ergibt sich daraus, dass die Polarisation der zweiten Harmonischen experimentell durch den Drehwinkel des BBO-Kristalls gegeben ist. (vergl. Kap. 6.4)

monischen) jeweils separat in den Richtungen parallel bzw. senkrecht zur Polarisierung der Fundamentalen vektoriell addiert, bevor die Betragsbildung durch Quadrieren erfolgte.

Gleichung 7.6 ermöglicht nun die Bestimmung der effektiven Laserpulsenergie für unterschiedliche Gesamtlaserpulsenergien und für verschiedene energetische „Blau-Rot“-Verhältnisse. Damit wurden die wesentlichen Voraussetzungen zur quantitativen Beschreibung des makroskopischen THz-Signals geschaffen.

7.5. Modellierung des zeitlichen THz-Signals

Wegen der Analogie in der Beschreibung der erzeugten lokalen Polarisation des nichtlinearen Plasmaemitters im Vergleich zum Plasmaemitter mit externem Feld kann man das am Ort des Detektors erzeugte THz-Signal völlig analog zu der Darstellung in Kap. 5.3 bestimmen. Damit ergibt sich zunächst für das retardierte Dipolmoment des Plasmas

$$\begin{aligned} p_{pl}^{ret}(t) &= \int_{V'} P_{NL}(z', r', t + \frac{z'}{c_0}) dV' \\ &= P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P \frac{\partial}{\partial t} V_{ret}^{pl}(t). \end{aligned} \quad (7.7)$$

Dabei wurde die bekannte Definition des retardierten Plasmavolumens lt. Gleichung 5.7 aus Kap. 5.3 verwendet. Weiter kann basierend auf Gleichung 4.38 und mit Gleichung 7.7 und 5.7 das erzeugte THz-Signal im Brennpunkt des Detektors beschrieben werden:

$$\begin{aligned} E_{det}(t, J_{eff}) &= \frac{A_{THz}}{8\pi^2 \epsilon_0 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^3}{\partial t^3} p_{pl}^{ret}(t) \\ &= \frac{A_{THz} P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P}{8\pi^2 \epsilon_0 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^4}{\partial t^4} V_{pl}^{ret}(t, J_{eff}) \\ &= \frac{A_{THz} P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P}{8\pi^2 \epsilon_0 c_0^3 f_{koll} f_{det}} \frac{\partial^4}{\partial t^4} \begin{cases} V_{pl}^0(J_{eff} \cdot T(t)), & t < 0, \\ V_{pl}^0(J_{eff}), & t \geq 0. \end{cases} \end{aligned} \quad (7.8)$$

Da die Funktion $V_{pl}^{ret}(J^*)$ einerseits analytisch nach Gl. 4.22 und andererseits aus den numerischen Berechnungen in Kap. 4.3 bekannt ist, kann mit Gleichung 7.8 im Prinzip die vom Plasmaemitter infolge der Generationsnichtlinearitäten erzeugte THz-Signalfom am Ort des Detektors bestimmt werden. Allerdings ist wie beim Plasmaemitter mit externem Feld die Verwendung eines Tiefpassfilters nötig, um physikalisch nicht sinnvolle Unstetigkeitsstellen, welche die Erzeugung von Frequenzkomponenten mit beliebig hohen Frequenzen suggerieren, zu vermeiden. Dabei wurde wie in Kap. 5.3 eine Filterzeitkonstante von $\tau_{filter} = 30$ fs angenommen. Dieses schränkt die Gültigkeit der modellierten Signalfom auf eine spektrale Bandbreite von etwa 10 THz ein.

Die im Rahmen des hier dargestellten Modells berechnete THz-Signalfom ist in Abb. 7.3 zusammen mit der im $\chi^{(3)}$ -Modell bestimmten Signalfom dargestellt. Dabei wurde der Wert für Δt_P auf Basis aller vorliegender experimenteller Daten so angepaßt, dass sich eine bestmögliche Übereinstimmung der (unter Berücksichtigung der spektralen Detektoreigenschaften) berechneten THz-

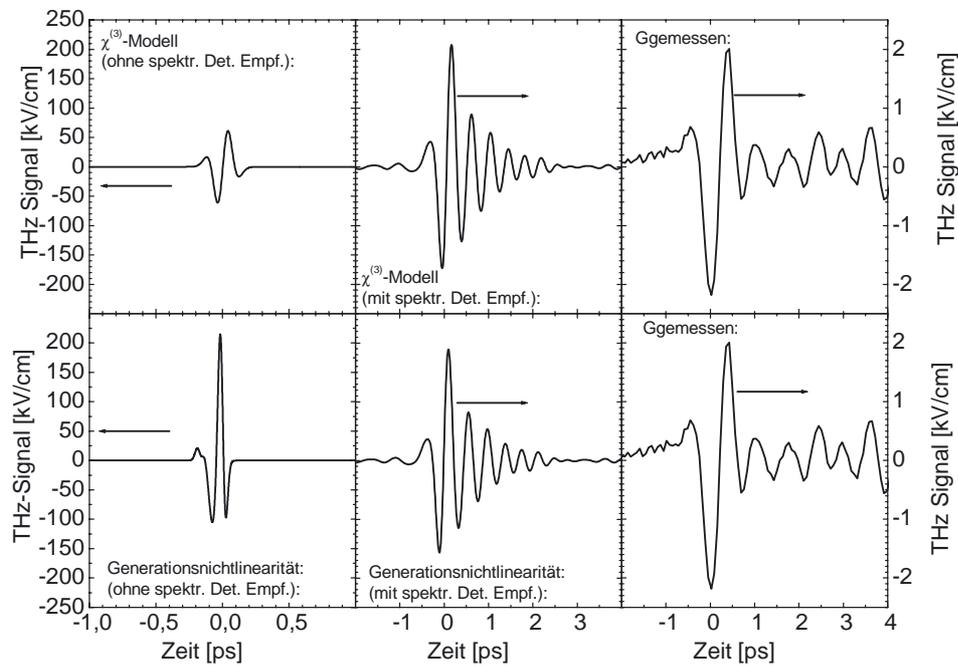


Abbildung 7.3.: Darstellung des im $\chi^{(3)}$ -Modell (oben) bzw. auf Basis von Generationsnichtlinearitäten berechneten zeitlichen Verlaufs des THz-Signals am Ort des Detektors mit (mitte) und ohne (links) Berücksichtigung der spektralen Detektorempfindlichkeit. Zum Vergleich ist zusätzlich rechts (oben und unten identisch) jeweils die gemessene THz-Signalform dargestellt.

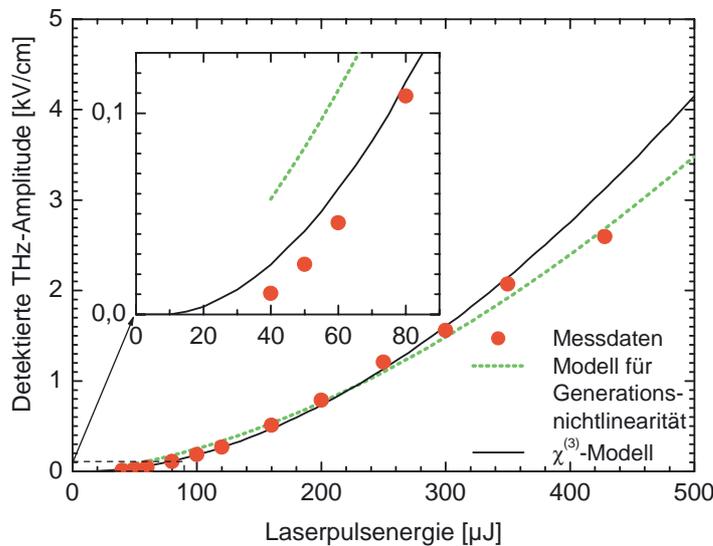


Abbildung 7.4.: Darstellung der gemessenen und der nach den verschiedenen Modellen berechneten THz-Signalamplitude als Funktion der Laserpulsenergie.

Amplitude mit den experimentellen Daten ergibt. Dabei ergibt sich ein Wert von $\Delta t_p = 15,3$ fs, was im Rahmen der Ungenauigkeiten des Modells gut zu dem erwarteten Wert in der Größenordnung von etwa einem Viertel der inversen Plasmafrequenz (7,5 fs) paßt. In der Darstellung in Abb. 7.3 (links) fällt auf, dass sich die Signalformen ohne eine Berücksichtigung der spektralen Detektorempfindlichkeit, deutlich unterscheiden. Während man im $\chi^{(3)}$ -Modell einen Verlauf erhält welcher im wesentlichen der dritten Ableitung der gaußförmigen optischen Intensität entspricht, erkennt man im Bild der Generationsnichtlinearität die vierte Ableitung des stufenförmig verlaufenden retardierten Plasmavolumens. Dieser zeitliche Signalverlauf ist gekennzeichnet durch zwei hintereinander folgende bipolare Signale.

Nach Berücksichtigung der spektralen Detektorempfindlichkeit in Abb. 7.3 (mitte) sind allerdings keine Unterschiede im qualitativen Verlauf der experimentell zu erwartenden Signalformen festzustellen. Dieses liegt vor allem daran, dass auf Grund der relativ zum erzeugten Spektrum stark eingeschränkten Bandbreite des Detektors, die charakteristischen Unterschiede im erzeugten Signalverlauf völlig von der zeitlichen Antwortfunktion des Detektors überdeckt werden.

Damit bleibt festzustellen, dass eine Bewertung der Modelle anhand der zeitlichen Signalform auf Grund der eingeschränkten Bandbreite des Detektors nicht möglich ist. Grundsätzlich sind jedoch beide Modelle in der Lage den gemessenen zeitlichen Signalverlauf qualitativ zufriedenstellend zu beschreiben. Die quantitative Übereinstimmung in beiden Modellen ist nicht verwunderlich, da diese ja durch die Anpassung des $\chi^{(3)}$ -Werts des Plasmas bzw. des Werts für die charakteristische Zeit für das Bestehen des mikroskopischen Dipolmoments Δt_p erzwungen wurde.

7.6. Variation der Laserpulsenergie

Auf der Basis der bekannten BBO-Effizienz kann für die jeweilige Flächenenergiedichte das „Blau-Rot“-Verhältnis $V_{2\omega,\omega}$ und damit das maximal erreichbare Plasmavolumen sowie die THz-Signalamplitude als Funktion der Laserpulsenergie bestimmt werden. Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Abb. 7.4 zusammen mit den entsprechenden experimentellen Daten und mit den Berechnungen nach dem $\chi^{(3)}$ -Modell dargestellt. Die Gültigkeit bzw. die Darstellung der Daten wurde dabei eingeschränkt auf Werte der Laserpulsenergie, welche genügend groß sind, um einen energetischen „Blau,-Anteil von mindestens einem Prozent und damit eine vollständig asymmetrische Ionisierung sicherzustellen. Die Darstellung zeigt, dass das Modell für hohe Laserpulsenergien zu niedrige Werte liefert. Das Sättigungsverhalten der experimentellen Werte wird aber deutlich besser als im $\chi^{(3)}$ -Modell wiedergegeben. Im Bereich niedriger Intensitäten liefert das Modell auf Basis der mikroskopischen Generationsnichtlinearitäten noch deutlich stärker nach oben abweichende Werte als das $\chi^{(3)}$ -Modell. Der Verlauf im Bereich zwischen Null und $40 \mu\text{J}$ kann von dem dargestellten Modell nicht wiedergegeben werden, da hier auf Grund des niedrigen „Blau-Rot“-Verhältnisses die Annahme einer vollständig asymmetrischen Ionisierung fallen gelassen werden mu. Allerdings wird man qualitativ ein Einbrechen der Signalamplitude auf Werte deutlich unterhalb einer gedachten Fortsetzung des Verlaufs bis zum Nullpunkt erwarten, da einerseits die Asymmetrie in der Ionisierung und andererseits das Plasmavolumen selbst verschwinden werden.

Zusammenfassend muss festgestellt werden, dass, obwohl sich die Vorhersagen qualitativ leicht unterschiedlich verhalten, beide Modelle geeignet sind die THz-Emission als Funktion der Laserpulsenergie zufriedenstellend zu beschreiben.

7.7. Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses

Wie schon in Kap. 6.8 ausgeführt wurde, erlaubt die Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses eine Änderung der THz-Emission bei nahezu konstanten Parametern des Plasmas (Volumen, Dichte etc.). Damit ermöglicht dieses Vorgehen eine Überprüfung der theoretischen Beschreibung des mikroskopischen Generationsmechanismus ohne die Beeinflussung der Ergebnisse durch eine Änderung der makroskopischen Rahmenbedingungen.

Das „Blau-Rot“-Verhältnis wirkt sich im hier dargestellten mikroskopischen Modell auf Grund von zwei verschiedenen Effekten auf die THz-Amplitude aus. Für sehr kleine „Blau-Rot“-Verhältnisse kann nicht mehr davon ausgegangen werden, dass alle Ionisierungsereignisse zu einer Verschiebung der Elektronen in der gleichen Richtung führen, da die Feldasymmetrie nicht groß genug ist. Annahmen über diesen Bereich zu treffen ist extrem schwierig, da die Ionisierungswahrscheinlichkeiten für beide Richtungen getrennt betrachtet werden müssten, um dann gekoppelte Differentialgleichungen für den Ionisierungsgrad in beiden Richtungen zu lösen. Aus diesem Grunde erscheint es sinnvoll, den Bereich niedriger „Blau-Rot“-Verhältnisse (etwa unterhalb von 1 %) von der Modellierung auszuschließen.

Auf der anderen Seite führt die mit zunehmendem „Blau-Rot“-Verhältnisse zunehmende Asymmetrie im elektrischen Feld dazu, dass bei konstanter Gesamtlaserpulsenergie immer höhere Spitzenfeldstärken erreicht werden können. Anders ausgedrückt, kann die für signifikante Ionisierung notwendige Mindestfeldstärke schon mit niedrigeren optischen Intensitäten erreicht werden, was dazu führt, dass mit der gleichen Gesamtlaserpulsenergie ein größerer Volumenbereich ionisiert werden kann. In der Modellierung wird dieser Effekt durch die zuvor dargestellte Einführung einer effektiven Laserpulsenergie J_{eff} berücksichtigt.

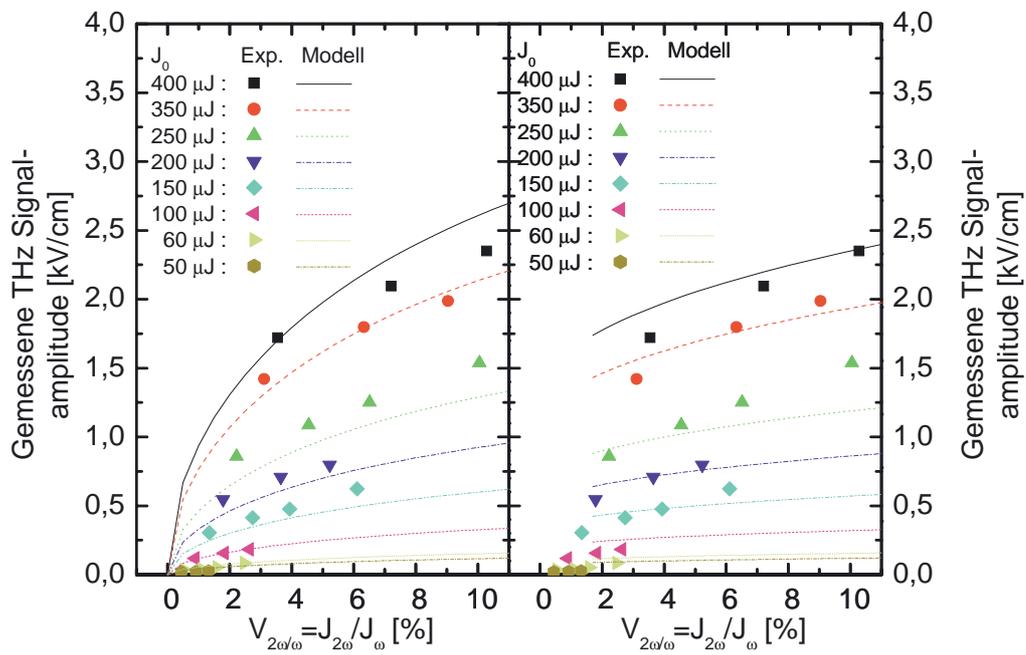


Abbildung 7.5.: Berechnete und gemessene THz-Signalamplitude als Funktion des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses für unterschiedliche Laserpulsenergien. Links: phänomenologisches $\chi^{(3)}$ -Modell; Rechts: Modell für die mikroskopische Generationsnichtlinearität

Die in nach den zwei Modellen vorhergesagten THz-Amplituden als Funktion des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses sind in Abb. 7.5 zusammen mit den entsprechenden experimentellen Daten dargestellt. Dabei erkennt man, dass das Modell für die mikroskopische Generationsnichtlinearität im Bereich höherer Laserpulsenergien die THz-Amplituden besser wiedergibt, als das $\chi^{(3)}$ -Modell. Im Bereich niedriger Laserpulsenergien erscheint dagegen das $\chi^{(3)}$ -Modell besser in der Lage, den Verlauf der THz-Amplitude mit dem energetischen „Blau-Rot“-Verhältnis zu beschreiben, wobei allerdings die absoluten Werte tendenziell zu niedrig vorhergesagt werden.

Die Interpretation dieser Beobachtungen ist besonders interessant, weil bei einer Variation des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses die Plasma-Parameter bzgl. Absorption und Phasenfehlanpassung im wesentlichen unverändert bleiben sollten. Damit scheiden diese Effekte zur Erklärung der Abweichungen vom experimentell beobachteten Verlauf aus.

Die, bei höheren Laserpulsenergien im Vergleich der experimentellen Daten zu den Vorhersagen des $\chi^{(3)}$ -Modell beobachteten Abweichungen liegen vermutlich in den grundlegenden Unzulänglichkeiten (wie der angenommenen konstanten zeitunabhängigen Nichtlinearität) des phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modells begründet.

Die Abweichungen im Modell der mikroskopischen Generationsnichtlinearität lassen sich dagegen verhältnismäßig gut über die im Modell gemachten Annahmen erklären. Insbesondere die Annahme der vollständig asymmetrischen Ionisierung ist sicher nur in erster Näherung gerechtfertigt. Dieses bedeutet, dass vermutlich bei niedrigem „Blau-Rot“-Verhältnis doch noch ein endlicher Teil der Elektronen nach der Ionisierung in entgegengesetzter Richtung beschleunigt wird. Dieses führt dann zu einer Reduzierung des Signals. Dieser Anteil würde mit steigendem „Blau-Rot“-Verhältnis also mit steigender Asymmetrie geringer, so dass ein solcher Effekt die beobachteten Abweichungen gut erklären kann.

Zusammenfassend muss zunächst festgestellt werden, dass beide Modelle den qualitativen Verlauf der Signalamplitude bei einer Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses nur bedingt gut beschreiben. Nachdem die Abweichungen im $\chi^{(3)}$ -Modell unverstanden bleiben, können die Abweichungen der Vorhersagen des Modell auf Basis der mikroskopischen Generationsnichtlinearität gut erklärt werden, durch den im Modell nicht berücksichtigten endlichen Grad der asymmetrischen Ionisierung. Damit hat nur das Modell der mikroskopischen Generationsnichtlinearität das Potential, nach einer entsprechenden Erweiterung zur Beschreibung des endlichen Grades der asymmetrischen Ionisierung, die experimentellen Daten zufriedenstellend zu beschreiben.

7.8. Variation der optischen Phase

Eine Variation der optische Phase wirkt sich im Bild der mikroskopischen Generationsnichtlinearitäten in zweifacher Weise auf die THz-Emission aus.

Der erste Effekt beruht darauf, dass abhängig von der Phasendifferenz die maximale Feldstärke zu unterschiedlichen Zeitpunkten (relativ zur Oszillationsperiode der Fundamentalen) erreicht wird. Wie die Lösung der Differentialgleichung für die Bewegung im optischen Feld zeigt, hat dieses zur Folge, dass das freie Elektron welches mit den Anfangsbedingungen $x=0$ und $v=0$ zum Zeitpunkt maximaler Feldstärke geboren wird, ggf. nicht nur eine oszillatorische Bewegung im optischen Feld ausführt, sondern auch zusätzlich im zeitlichen Mittel eine Drift erfährt. Damit wird die gedämpfte Plasmaschwingung im lokalen Volumenelement nicht nur durch eine örtlichen Verschiebung (also durch eine Anfangspolarisation) sondern auch durch eine über die optischen Perioden gemittelte Anfangsgeschwindigkeit der Elektronen (also einen Stromstoß) angeregt. Falls die Dämpfungszeitkonstante der Plasmaschwingung kleiner ist als die Schwingungsperiode der Plasmaschwingung

liegt, könnte der beschriebene Effekt zu einer deutlichen Änderung des Werts für $P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ führen. Da man allerdings davon ausgehen kann (vergl. Kap. 7.3), dass die Elektronen bereits nach einem Weg welcher in der Größenordnung der Verschiebung entsprechend der Anfangspolarisation liegt an ionisierten oder nichtionisierten Gasteilchen gestreut werden und damit eine evtl. zusätzliche Anfangsgeschwindigkeitskomponente verlieren, ist kein deutlicher Einfluss dieses Effekts zu erwarten. Im weiteren soll daher eine evtl. Änderung des Werts für $P_{GenNL}^0 \cdot \Delta t_P$ auf Grund einer evtl. zusätzlichen mittleren Anfangsgeschwindigkeitskomponente vernachlässigt werden.

Zusätzlich hängt die Asymmetrie im Feld und damit die effektive Laserpulsenergie J_{eff} sowie das maximal erreichte Plasmavolumen von der Phase zwischen der Fundamentalfrequenz und der erzeugten zweiten Harmonischen ab. Dieser Effekt soll im weiteren Verlauf dieses Kapitels genauer untersucht und quantifiziert werden.

Der Wert für J_{eff} ist damit analog zu Gl. 7.6 basierend auf der maximal erreichten optische Feldstärke als Funktion der optischen Phasendifferenz gegeben durch

$$\begin{aligned}
J_{eff} &\propto \text{MAX} \left((E_{opt}(t))^2 \right) \\
&\propto \text{MAX} \left((E_{\omega}^0 \sin(\omega t) + E_{2\omega}^0 \cos(\theta_{BBO}) \sin(2\omega t + \varphi_{2\omega,\omega}))^2 + \right. \\
&\quad \left. (E_{2\omega}^0 \sin(\theta_{BBO}) \sin(2\omega t + \varphi_{2\omega,\omega}))^2 \right), \\
\text{bzw. } J_{eff} &= \text{MAX} \left(\left(\sqrt{J_{\omega}} \sin(\omega t) + \sqrt{J_{2\omega}} \cos(\theta_{BBO}) \sin(2\omega t + \varphi_{2\omega,\omega}) \right)^2 + \right. \\
&\quad \left. \left(\sqrt{J_{2\omega}} \sin(\theta_{BBO}) \sin(2\omega t + \varphi_{2\omega,\omega}) \right)^2 \right) \\
&= J_{opt} \frac{1}{1 + V_{2\omega,\omega}} \cdot \text{MAX} \left(\left(\sin(\omega t) + \sqrt{V_{2\omega,\omega}} \cos(\theta_{BBO}) \sin(2\omega t + \varphi_{2\omega,\omega}) \right)^2 + \right. \\
&\quad \left. V_{2\omega,\omega} \sin^2(\theta_{BBO}) \sin^2(2\omega t + \varphi_{2\omega,\omega}) \right).
\end{aligned} \tag{7.9}$$

Der Verlauf der optischen Feldstärke $E_{opt}(t)$ für verschiedene Phasendifferenzen $\varphi_{2\omega,\omega}$ ist in Abb. 7.6 dargestellt. Leider kann das Maximum in Gl. 7.9 nur numerisch bestimmt werden. Mit dem numerischen Ergebnis kann jedoch der Wert für J_{eff} sowie das zugehörige maximal erreichte Plasmavolumen und damit die THz-Amplitude bestimmt werden. Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Abb. 7.7 so dargestellt, dass sich das Vorzeichen der THz-Amplitude aus der entsprechenden Polarität der maximalen optischen Feldstärke ergibt. Zusätzlich wurde die Darstellung eingeschränkt auf den Bereich, in welchem die Asymmetrie im Feld mehr als 10 % beträgt. Zusätzlich sind in Abb. 7.7 auch die experimentell gewonnenen Daten und die nach dem $\chi^{(3)}$ -Modell erwartete Anpassung an einen Sinus dargestellt.

In der Darstellung erkennt man zunächst, dass der im $\chi^{(3)}$ -Modell vorhergesagte sinus-förmige Verlauf im Rahmen der Genauigkeit der Messung bestätigt werden kann. Dieser Befund ist besonders interessant, da ja die Gültigkeit des phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modells auf Grund der sonstigen in dieser Arbeit dargestellten Beobachtungen und Überlegungen in Frage gestellt werden muss. Nach dem jetzigen Kenntnisstand kann die gute Übereinstimmung nur als zufällig bewertet werden.

Die im Modell für Generationsnichtlinearitäten berechneten THz-Amplituden können andererseits die experimentellen Daten nur unbefriedigend wiedergeben. Insbesondere ist der Verlauf im

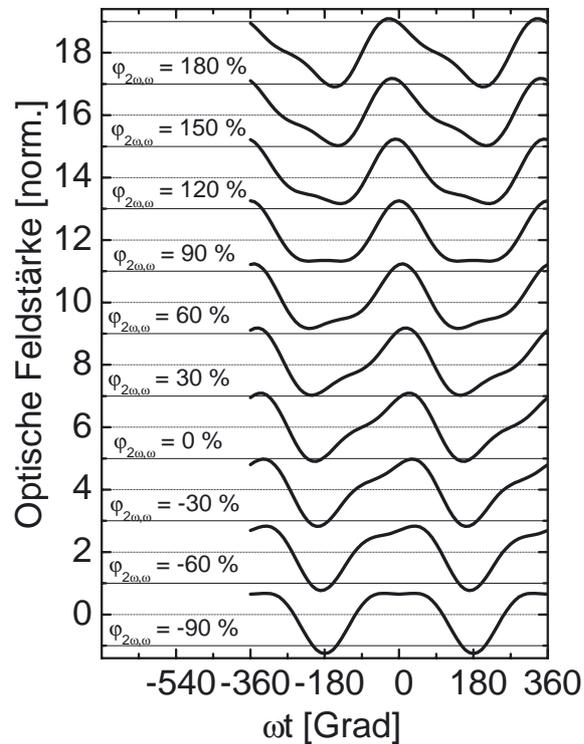


Abbildung 7.6.: Darstellung des zeitlichen Verlaufs der optischen Feldstärke für unterschiedliche Phasendifferenzen $\varphi_{2\omega, \omega}$ und für konstantes „Blau-Rot“-Verhältnisse $V_{2\omega, \omega} = 10\%$. Die Daten wurden dabei jeweils mit dem gleichen Faktor so normiert, dass die maximale Feldstärke bei $V_{2\omega, \omega} = 0$ den Wert 1 annehmen würde.

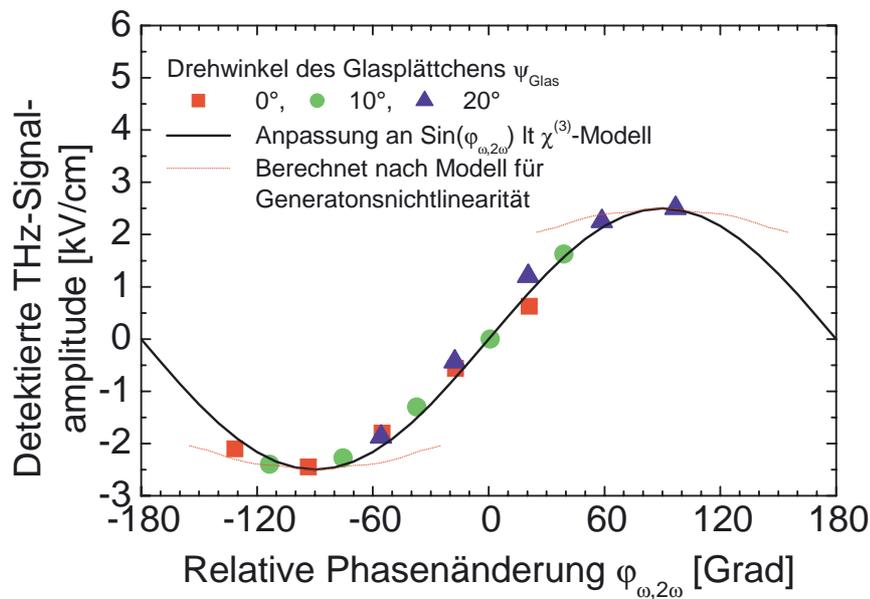


Abbildung 7.7.: Darstellung der in den zwei unterschiedlichen Modellen berechneten THz-Amplitude als Funktion der optischen Phasendifferenz für konstantes „Blau-Rot“-Verhältnisse $V_{2\omega,\omega} = 10\%$. Zusätzlich sind die experimentell gewonnenen Daten dargestellt.

Bereich der Maxima im Vergleich zu den experimentelle Daten deutlich flacher. Diese Abweichung könnte allerdings, wie auch schon bei der Variation des „Blau-Rot“-Verhältnisses diskutiert, darauf zurückzuführen sein, dass die Annahme einer vollständig asymmetrischen Verteilung der Ionisierungsereignisse, nur bedingt richtig ist. In diesem Fall würde mit sinkender Asymmetrie die pro Volumen erzeugte Polarisation (welche ja im Modell als konstant angenommen wurde) abnehmen. Ein solcher Effekt könnte also auch hier die Abweichungen erklären.

7.9. Diskussion des mikroskopischen Modells

Ausgangssituation für die Entwicklung eines neuen mikroskopischen Modells war der Befund, dass eine Erklärung der THz-Emission auf Basis von $\chi^{(3)}$ -Effekten in Luft bzw. in den Gasmolekülen ausgeschlossen werden musste, da nach der quantitativen Analyse in Kap. 6 ein $\chi^{(3)}$ -Wert des Mediums, welcher um zwei Größenordnungen über dem Literaturwert von Luft liegt, nötig wäre um die THz-Emission zu erklären. Ebenfalls wäre das abrupte Verschwinden der THz-Emission unterhalb einer für die Plasmaerzeugung nötigen Mindestlaserpulsenergie mit einem $\chi^{(3)}$ -Effekt in den Gasmolekülen nicht zu erklären. Auch eine Erklärung der THz-Emission auf Basis von zeitunabhängigen $\chi^{(3)}$ -Prozessen im Plasmamedium selbst musste ausgeschlossen werden, da evtl. mögliche mikroskopische Effekte einen solchen vergleichsweise hohen zeitunabhängigen $\chi^{(3)}$ -Wert des Plasmamedium nicht erklären können. Damit kann man nur schlussfolgern, dass das phänomenologische $\chi^{(3)}$ -Modell auf Basis zeitunabhängigen Nichtlinearitäten dritter Ordnung keine geeignete physikalische Beschreibung der THz-Emission im Plasma darstellt. Diese These wird unterstützt

von der Beobachtung, dass es für die bei einer experimentellen Variation des energetischen „Blau-Rot“-Verhältnisses beobachteten Abweichungen der THz-Amplitude von den Vorhersagen des phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modells keine sinnvollen Erklärungsansätze gibt.

Andererseits zeigt sich, dass die Nichtlinearitäten in Plasmen, welche zur Erzeugung höherer optischer Harmonischen führen, auf mikroskopischer Ebene nur in Zusammenhang mit dem Ionisierungsprozess selbst erklärt werden können. Da die Ionisierung natürlich ein zeitabhängiges Phänomen ist, ergibt sich die Notwendigkeit, das phänomenologische $\chi^{(3)}$ -Modell für die THz-Emission welches von einer zeitunabhängigen Nichtlinearität ausging entsprechend zu erweitern bzw. zu modifizieren.

Ein solches erweitertes Modell welches auf mikroskopischen Generationsnichtlinearitäten basiert wurde in diesem Kapitel entwickelt und dargestellt. Dabei hat sich gezeigt, dass das Modell nicht nur qualitativ, sondern auch quantitativ in der Lage ist, die THz-Emission gut zu beschreiben. Die qualitative Übereinstimmung zeigt sich darin, dass durch Anpassung auf Basis der experimentellen THz-Daten für die charakteristische Zeit für die ein mikroskopisches Dipolmoment nach der Ionisierung besteht, ein Wert von 15,3 fs ermittelt wird. Dieser Wert stimmt mit der erwarteten Lebensdauer auf Grund der Abschirmung auf einer Zeitskala von etwa einer Viertel Plasmaschwingungsperiode (= 7,5 fs) recht gut überein. Auch die Abweichungen der verschiedenen experimentellen Beobachtungen von den Vorhersagen des Modells für die Generationsnichtlinearität können auf der Basis der im Modell gemachten Annahmen qualitativ gut erklärt werden.

Zusammenfassend wurde also das Ziel erreicht, ein weiterführendes Modell zu entwickeln, welches einerseits die mikroskopischen Mechanismen erklärt, welche zur Entstehung der Nichtlinearität führen, und andererseits die makroskopische THz-Emission qualitativ und quantitativ gut beschreibt. Im Rahmen weiterführender Arbeiten wäre allerdings eine Verfeinerung des Modells wünschenswert. Dieses beinhaltet insbesondere eine Beschreibung des Einflusses von unterschiedlich starker Asymmetrie im zeitlichen Feldverlauf auf das erzeugte mikroskopische Dipolmoment. Ebenso ist sicher eine experimentelle Überprüfung des hier vorgeschlagenen mikroskopischen Generationsmechanismus notwendig. Vorschläge für Experimente welche hierzu geeignet erscheinen, werden in Kap. 9 gemacht.

8. Vergleich der Terahertzemitter

In diesem Kapitel werden die verschiedenen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten THz-Emitter im Hinblick auf die Eignung für unterschiedliche mögliche Anwendungen miteinander verglichen. Dabei werden insbesondere die spektralen Eigenschaften, die Konversionseffizienz und das Sättigungsverhalten diskutiert.

8.1. Spektrale Eigenschaften

Ein Vergleich der spektralen Eigenschaften der verschiedenen THz-Emitter ist insbesondere daher sinnvoll, weil für verschiedene mögliche Anwendungen unterschiedliche Anforderungen an die detektierbare spektrale Flächenenergiedichte gestellt werden. In diesem Abschnitt soll daher die experimentell bestimmte spektrale Flächenenergiedichte der verschiedenen Emitter verglichen und im Hinblick auf mögliche Anwendungen diskutiert werden.

Vor der eigentlichen Diskussion der spektralen Eigenschaften der verschiedenen Emitter, sei zunächst bemerkt, dass eine solche Diskussion nur anhand der gemessenen bzw. der erwarteten spektralen Flächenenergiedichte am Ort des Detektors sinnvoll ist. Dieses liegt zunächst daran, dass sich auf Grund des frequenzabhängigen Brennpunktdurchmessers (vergl. Kap. 3.1) die spektrale Flächenenergiedichte am Ort des Detektors und die spektrale Energiedichte der insgesamt abgestrahlten THz-Pulsenergie deutlich unterscheiden. Weiter hängt die absolute abgestrahlte THz-Energie der großflächigen Emitter reziprok von der Emitterfläche ab. Die Flächenenergiedichte am Ort des Detektors ist dagegen unabhängig von der Emitterfläche, wenn man Sättigungseffekte vernachlässigt. Im Fall der quasi punktförmigen Plasmaemitter, ist eine Bestimmung der abgestrahlten gesamten THz-Pulsenergie in Ermangelung der Kenntnis der genauen Abstrahlcharakteristik überhaupt nicht möglich. Das Hauptargument für die Verwendung der Flächenenergiedichte am Ort des Detektors als Grundlage für eine Diskussion der spektralen Eigenschaften der verschiedenen Emitter ist jedoch, dass bei der kohärenten opto-elektronischen Detektion die elektrische Feldkomponente der THz-Strahlung am Ort des Detektors gemessen wird. Auf Basis des Poynting-Theorems und der Fourier-Theorie ermöglicht dieses eine experimentelle Bestimmung der spektralen Flächenenergiedichte am Ort des Detektors. Andere Größen wie die insgesamt abgestrahlte THz-Energie können für die in dieser Arbeit verwendete Detektionsmethode nur indirekt, d.h. auf Basis von Annahmen über die Strahlausbreitung bestimmt werden. Grundsätzlich wäre mittels einer bolometrischen Detektion natürlich auch eine Messung der absoluten abgestrahlten THz-Pulsenergie möglich. Mit einem Interferometer und einer Fourier-Analyse der Daten könnte die gesamte abgestrahlte THz-Pulsenergie dann auch spektral aufgelöst werden. In Ermangelung solcher Messungen und im Hinblick auf mögliche Anwendungen mit opto-elektronischer Detektion soll die Diskussion der spektralen Eigenschaften der Emitter hier anhand der Flächenenergiedichte am Ort des Detektors erfolgen.

Die spektralen Eigenschaften bzw. genauer die aus der gemessenen THz-Signalform bestimmten spektrale Flächenenergiedichten am Ort des Detektors sind in Abb. 8.1 für die unterschiedlichen THz-Emitter jeweils für eine Laserpulsenergie von $420 \mu\text{J}$ dargestellt. Die Daten wurden jeweils mit einer Brennweite des Detektor-Parabolspiegels von $f_{det} = 5 \text{ cm}$ und einer freien Apertur des THz-

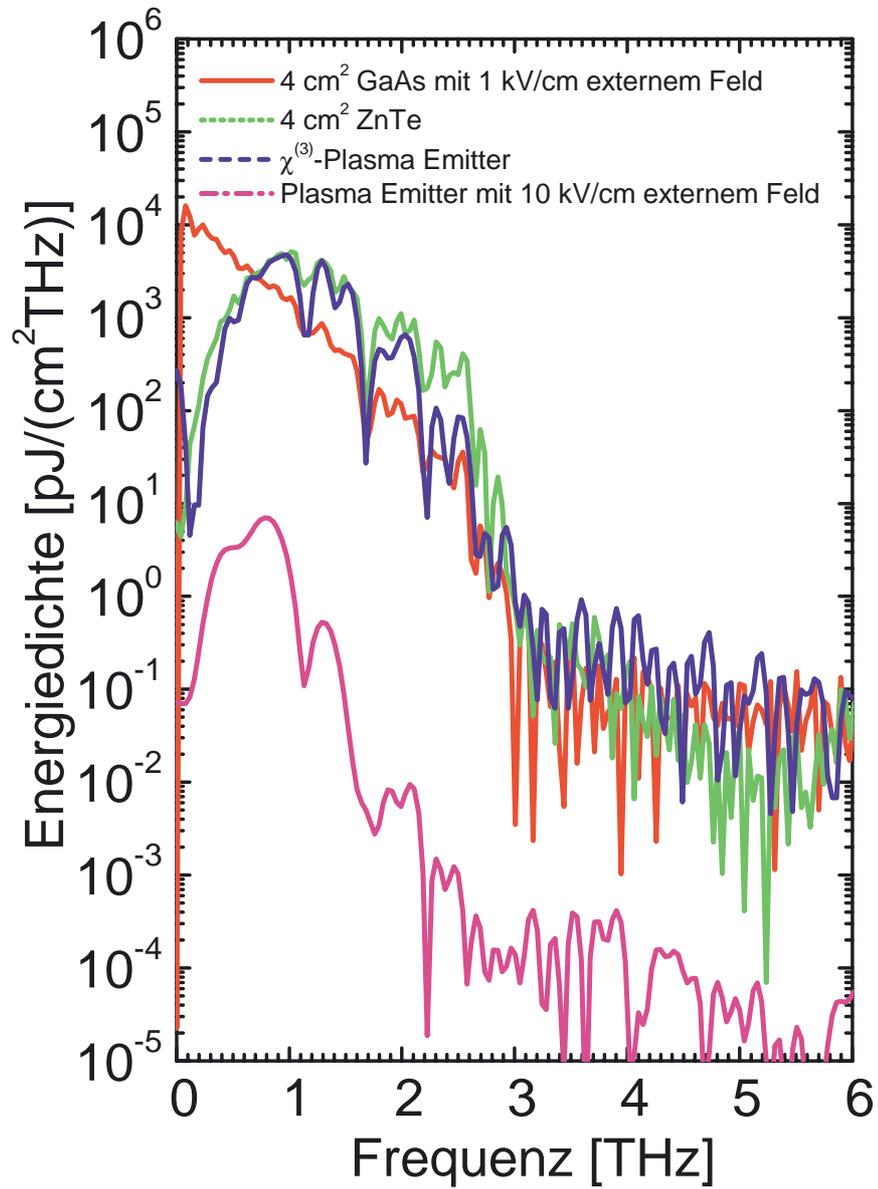


Abbildung 8.1.: Darstellung der gemessene von den verschiedenen Emitttern am Ort des Detektors erzeugte spektrale Flächenenergiedichte für einen Laserpuls mit $420 \mu\text{J}$.

Strahls vor dem Detektor-Parabolspiegels von $A_{apt} \approx 10 \text{ cm}^2$ bestimmt.

In der Darstellung zeigt sich, dass der GaAs-Emitter mit externer Vorspannung ein Energiedichtespektrum erzeugt, welches ein Maximum bei ca. 100 GHz aufweist. Von diesem Wert an fällt das Spektrum exponentiell ab und erreicht bei etwa 3 THz das Rauschniveau. Damit eignet sich dieser Emitter insbesondere für Anwendungen bei denen eine hohe absolute THz-Pulsenergie erwünscht ist und sonst keine größeren Anforderungen an die spektralen Eigenschaften gestellt werden. Hier sind z.B. Messungen an Halbleiterproben im Rahmen einer Anrege-Abfrage Technik mit optischer Anregung und Abfrage der Leitfähigkeit mittels einer THz-Transmissionsmessung zu nennen.

Der großflächige ZnTe-Emitter und der nichtlineare Plasmaemitter erzeugen dagegen ein Spektrum, welches ein Maximum bei etwa 1 THz zeigt und im Bereich von 1 THz bis 2,5 THz eine etwa eine Größenordnung höhere Energiedichte als der GaAs-Emitter aufweist. Damit sind diese Emitter für Anwendungen gut geeignet bei denen eine hohe spektrale Energiedichte bei möglichst hoher Frequenz erwünscht ist. Hier ist die THz-Spektroskopie oder auch die THz-Bildgebung zu nennen.

Das Spektrum des Plasmaemitters mit extern angelegtem Feld erzeugt ein mit dem nichtlinearen Plasmaemitter bzw. mit dem ZnTe-Emitter vergleichbares Spektrum. Allerdings ist die absolute Flächenenergiedichte um drei Größenordnungen reduziert, so dass dieser Emitter für praktische Anwendungen sicher uninteressant ist.

8.2. Effizienz der untersuchten THz-Emitter

Bei einem Vergleich der Effizienz der verschiedenen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Terahertzemitter stellt sich zunächst die Frage, wie eine solche Effizienz sinnvoll definiert werden soll. Zunächst könnte man annehmen, dass die absolute erzeugte THz-Pulsenergie, bzw. die energetische Konversionseffizienz ein gutes Bewertungskriterium darstellen. Dabei muss man jedoch die Ergebnisse aus Kapitel 3.1 bedenken, welche besagen, dass für einen idealen (also sättigungsfreien) großflächigen Emitter die gemessene THz-Signalamplitude unabhängig von der Emitterfläche ist, wogegen die erzeugte absolute THz-Pulsenergie entgegengesetzt proportional mit der Emitterfläche skaliert. Da man in der Regel sogar eine möglichst große Emitterfläche wählen wird, um einerseits Sättigungseffekte zu vermeiden und andererseits eine möglichst gute Fokussierbarkeit zu realisieren, ist klar, dass die absolute THz-Pulsenergie nicht geeignet ist, um die Effizienz der Emitter zu beschreiben. Im Falle der großflächigen Emitter ist allerdings ein Vergleich der pro Emitterfläche abgestrahlten THz-Energie mittels des in Kap. 3.1 eingeführten Effizienzfaktors und der in Kap. 3.3 für ZnTe bzw. in Kap. 3.4 für GaAs angegebenen Werte grundsätzlich möglich. Ein solcher Vergleich ist allerdings auf Grund der starken Sättigung des GaAs-Emitters und der damit verbundenen starken Abhängigkeit des Effizienzfaktors von der Beleuchtungsintensität wenig aussagekräftig. Für die punktförmigen Plasmaemitter, kann ein solcher Effizienzfaktor erst gar nicht definiert werden.

Sinnvoller Weise soll daher der Vergleich der Effizienz anhand der experimentell bestimmten Flächenenergiedichte am Ort des Detektors erfolgen. Ein solcher Vergleich kann dann einerseits für bestimmte diskrete interessante Zielfrequenzen erfolgen. Andererseits kann durch Integration über die spektrale Flächenenergiedichte auch die gesamte detektierte Flächenenergiedichte bestimmt und verglichen werden. In beiden Fällen muss darauf geachtet werden, dass, wie bereits im vorhergehenden Unterkapitel dargestellt, die Parameter für die Ausbreitung der THz-Strahlung (also der freie Strahldurchmesser und die effektive Brennweite des auf den Detektor fokussierenden Elements) vergleichbar sind.

Aufgrund des für alle Emitter gefundenen und erwarteten nichtlinearen Zusammenhangs zwischen Laserpulsenergie und erzeugter spektraler THz-Flächenenergiedichte ist ein Vergleich bzw.

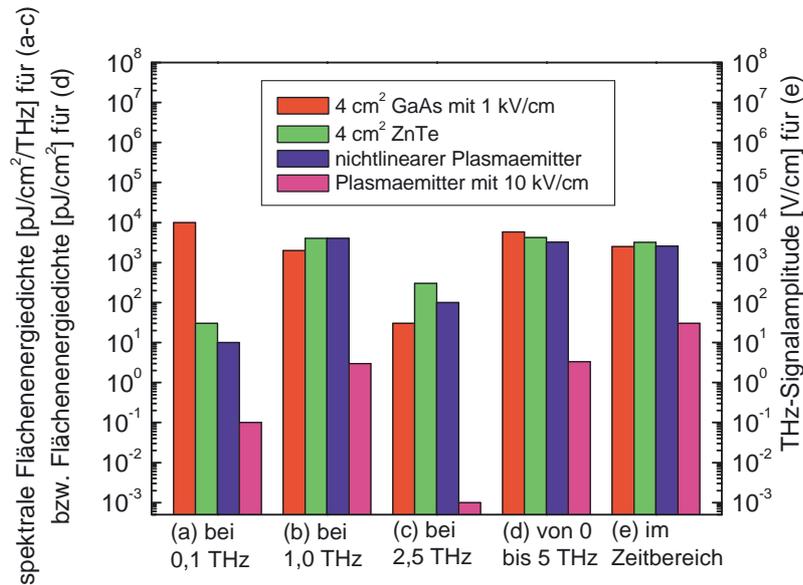


Abbildung 8.2.: Darstellung der für die verschiedenen Emittler experimentell bestimmten Flächenenergiedichte bei 0,1 THz (a), bei 1,0 THz (b) und bei 2,5 THz (c) sowie der integralen Flächenenergie für den Bereich von 0 bis 5 THz (d) und der THz-Signalamplitude (e) jeweils am Ort des Detektors und für einen Laserpuls mit $420 \mu\text{J}$.

eine Angabe der absoluten Konversionseffizienz nur für jeweils eine bestimmte konstante Laserpulsenergie sinnvoll. Insbesondere durch die unterschiedlichen Abhängigkeiten der erzeugten THz-Amplituden bzw. der Flächenenergiedichten von der Laserpulsenergie wird auch ein relativer Vergleich der Konversionseffizienz der einzelnen Emittler bei verschiedenen Laserpulsenergien unterschiedlich ausfallen. Solche unterschiedlichen Abhängigkeiten entstehen einerseits auf Grund der grundsätzlich andersartigen physikalischen Vorgänge in den Emittlern, und auch auf Grund von unterschiedlich stark ausgeprägten Sättigungseffekten. Dieses wird detailliert in Kap. 8.3 dargestellt. Die Effizienz der untersuchten Emittler soll daher in diesem Kapitel für die im Rahmen dieser Arbeit maximal zu Verfügung stehende Laserpulsenergie von $420 \mu\text{J}$ erfolgen¹.

In. Abb. 8.2 sind die experimentell bestimmten Flächenenergiedichten bei 0,1 THz, 1,0 THz und 2,5 THz sowie die integrale Flächenenergie für der Bereich von 0 bis 5 THz für die verschiedenen Emittler dargestellt. Zusätzlich ist die im Zeitbereich experimentell bestimmte THz-Signalamplitude eingezeichnet. Es ist zu erkennen, dass der Vergleich der Effizienz erwartungsgemäß für unterschiedliche Zielfrequenzen unterschiedlich ausfällt. Auch die Eignung des GaAs-Emitters für niedrige Frequenzen und des ZnTe bzw. des nichtlinearen Plasmaemitters für höhere Frequenzen wird deutlich. Weiter zeigt sich, dass bei einer Betrachtung sowohl der gesamten gemessenen Flächenenergie (d) als auch der THz-Amplitude im Zeitbereich (e) nur noch minimale Unterschiede zwischen dem GaAs- dem ZnTe- und dem nichtlinearen Plasmaemitter festzustellen sind. Nur der

¹Grundsätzlich waren am Ort des Emitters unter optimalen Bedingungen Laserpulsenergien von bis zu $550 \mu\text{J}$ möglich, allerdings liegen solche Daten nicht für alle Emittler vor, so dass der Vergleich bei einer Laserpulsenergie von $420 \mu\text{J}$ durchgeführt wurde, bei der Daten für alle untersuchten Emittler vorliegen.

Plasmaemitter mit externem Feld fällt deutlich nach unten ab. Damit ist dieser Emitter für praktische Anwendungen sicher uninteressant. Im Hinblick auf weitere Untersuchungen zum Verständnis des nichtlinearen Plasmaemitters wird aber auch der Plasmaemitter mit angelegtem Feld zukünftig von Bedeutung sein (vergl. Kap. 9.4.2).

Weiter ist der Darstellung zu entnehmen, dass die experimentell und im Rahmen von Modellrechnungen vergleichsweise einfach zugängliche THz-Signalamplitude ähnliche Vergleichsergebnisse liefert, wie die spektral integrierte Flächenenergie. Damit ist es gerechtfertigt, den Vergleich des Sättigungsverhaltens im nächsten Unterkapitel anhand der THz-Signalamplitude durchzuführen. Dabei muss allerdings beachtet werden, dass bei einem angenommenen Laserpulsenergie-unabhängigen zeitlichen Verlauf des THz-Signals, die spektral integrierte Flächenenergie proportional zum Quadrat der THz-Amplitude ist, d.h. wenn sich z.B. für einen bestimmten Emitter in einem bestimmten Bereich die detektierte THz-Amplitude linear mit der Laserpulsenergie ändert, steigt die detektierte Flächenenergie quadratisch.

8.3. Sättigungsverhalten

Neben den spektralen Eigenschaften ist natürlich auch das Sättigungsverhalten der Emitter von besonderem Interesse. Da nach der Diskussion im vorhergehenden Kapitel die THz-Amplitude, also die maximal erzeugte THz-Feldstärke am Ort des Detektors für eine Bewertung der Emitter geeignet erscheint, soll das Sättigungsverhalten der Emitter anhand dieser Größe diskutiert werden. Dabei soll versucht werden, mittels der in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Modelle das erwartete Sättigungsverhalten im Bereich oberhalb der experimentell erreichbaren Laserpulsenergien (also im Bereich von 1 mJ bis 20 mJ) zu interpolieren.

Für eine Diskussion des Sättigungsverhaltens muss zunächst die Frage geklärt werden, welches Verhalten man grundsätzlich für die verschiedenen Emitter ohne Sättigungseffekte erwartet. Für die untersuchten großflächigen Emitter ist dieses Verhalten ohne Sättigung, also der Verlauf im Bereich niedriger Laserpulsenergien, durch einen linearen Zusammenhang zwischen THz-Amplitude und Laserpulsenergie, bzw. durch eine quadratische Abhängigkeit der THz-Pulsenergie und der Flächenenergie am Ort des Detektors von der Laserpulsenergie gegeben.

Für die Plasmaemitter ist die Situation ungleich komplizierter. Eine Bestimmung des normalen (also des sättigungsfreien) Verhaltens ist im Bereich niedriger Laserpulsenergien nicht möglich, da hier das Plasma und damit die THz-Emission völlig verschwindet. Eine Bestimmung des normalen (also sättigungsfreien) Verhaltens kann also nur auf Basis der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Modelle erfolgen.

Für den Plasmaemitter mit angelegtem Feld ist nach dem vorgestellten Modell die THz-Amplitude proportional zum Plasmavolumen. Dieses ist analytisch durch Gl. 4.22 gegeben. Auch unter Berücksichtigung nichtlinearer Brechungsindexeffekte zeigt das Plasmavolumen einen praktisch mit Gl. 4.22 identischen Verlauf. Eine Näherung von Gl. 4.22 für höhere Laserpulsenergien liefert eine Abhängigkeit des Plasmavolumens und damit der erwarteten THz-Amplitude ohne Sättigungseffekte proportional zu $(J_{opt})^{3/2}$.

Das normale Verhalten des nichtlinearen Plasmaemitters ist im $\chi^{(3)}$ -Modell gegeben durch einen quadratischen Anstieg der THz-Amplitude mit der Laserpulsenergie, was eine Variation der THz-Energie mit $(J_{opt})^4$ bedeutet. Diese Abhängigkeit wird im Modell geringfügig durch Sättigungseffekte im BBO-Kristall modifiziert. Im Modell auf der Basis von Generationsnichtlinearitäten ergibt sich analog zum Plasmaemitter mit externem Feld zunächst eine Abhängigkeit der THz-Amplitude proportional zu $(J_{eff})^{3/2}$. Die effektive Laserpulsenergie J_{eff} hängt dabei nach

Gl. 7.9 von der Laserpulsenergie J_{opt} und von dem ebenfalls laserpulsenergie-abhängigen „Blau-Rot“-Verhältnis $V_{2\omega,\omega}$ ab, so dass sich eine Abhängigkeit von etwa $(J_{opt})^{1,8}$ ergibt.

In Abb. 8.3 ist die gemessene THz-Signalamplitude als Funktion der Laserpulsenergie für die verschiedenen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Emmitter dargestellt. Es fällt auf, dass sich die verschiedenen Emmitter nicht nur in den absoluten Werten für die erzeugte THz-Amplitude sondern auch im qualitativen Verlauf der THz-Amplitude bei variiertener Laserpulsenergie stark unterscheiden.

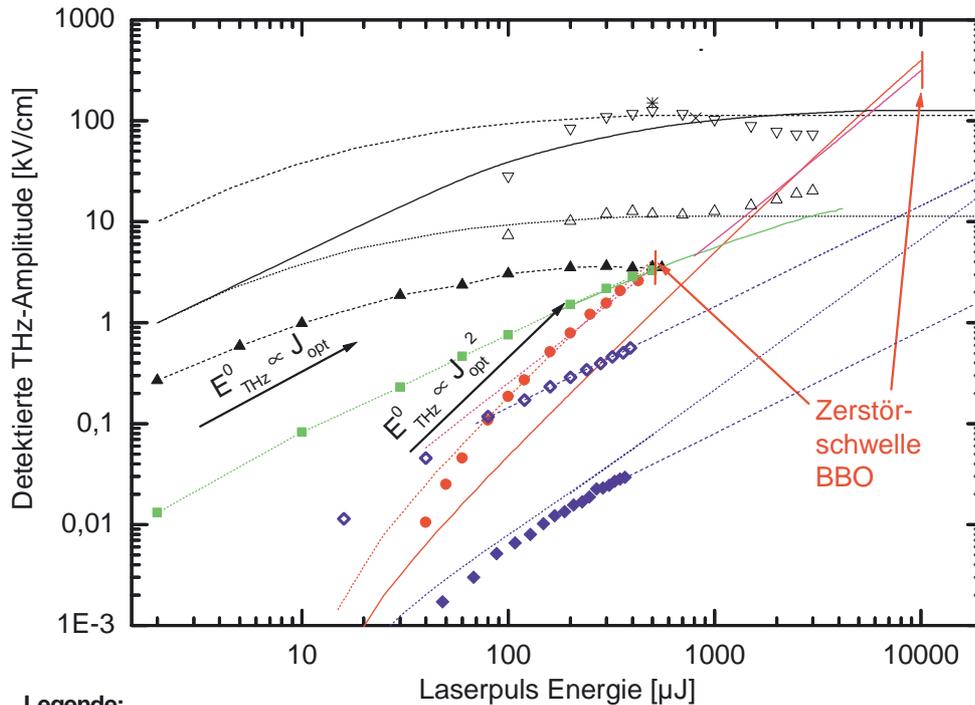
Die höchsten absoluten experimentell bestimmten THz-Amplituden liefert grundsätzlich der extern vorgespannte großflächige GaAs-Emitter. Allerdings zeigt dieser Emmitter auch das stärkste Sättigungsverhalten. Dieses bedeutet, dass bei einer Standardemitterfläche von 9 cm^2 bereits oberhalb von $200\ \mu\text{J}$ keine Steigerung der THz-Amplitude mehr erzielt werden kann. Das Verhalten wird von dem in Kap. 3.4 vorgestellten Modell gut beschrieben. Auch stimmen die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten THz-Amplituden gut mit experimentellen Daten aus der Literatur überein [39, 45]. In diesen Arbeiten wurde die THz-Amplitude (im Gegensatz zu der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten elektro-optischen Detektionsmethode) durch Berechnung auf der Basis der bolometrisch bestimmten THz-Pulsenergie und auf Grund von Annahmen über den Brennpunktdurchmesser sowie über die THz-Pulslänge gewonnen.

Sowohl in den im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Daten als auch in den Literaturdaten erkennt man teilweise für eine weitere Steigerung der Laserpulsenergie oberhalb von etwa $200\ \mu\text{J}$ sogar ein leichtes Absinken der THz-Amplitude. Ein solches Verhalten kann wie bereits in Kap. 3.4 ausgeführt mit einer Feldabschirmung auf Grund einer räumlich inhomogenen Ladungsträgerverschiebung erklärt werden [66].

Eine Möglichkeit mit dem GaAs-Emitter höhere THz-Amplituden zu erzeugen besteht darin das angelegte externe Feld weiter zu steigern. Um elektrische Überschlüge zu vermeiden, ist dazu allerdings die Verwendung einer Hochspannungsquelle mit pulsartigem Spannungsverlauf nötig, welche es ermöglicht, das elektrische Feld nur für einen Zeitraum in μs Bereich während des Laserpulses anzulegen. Die experimentelle Umsetzung dieser Technik ist allerdings extrem problembehaftet, da die Abschirmung der von der Hochspannungsquelle verursachten elektromagnetischen Störungen nur mit großem Aufwand möglich ist. Die auf Basis des in dieser Arbeit vorgestellten Modells für eine Vorspannung von 10 kV/cm berechneten THz-Amplituden zeigen, dass mit den GaAs-Emitter grundsätzlich THz-Amplituden von ca. 100 kV/cm erreichbar sind. Dieser Wert stimmt gut mit experimentellen Daten aus der Literatur überein.

Neben der problembehafteten Steigerung der externen Feldstärke bietet sich auf Grund der starken Sättigung des GaAs-Emitters auch die Möglichkeit mittels einer Steigerung der Emmitterfläche höhere THz-Amplituden zu erzeugen. Dabei wird die Tatsache ausgenutzt, dass die am Ort des Detektors erzeugte THz-Amplitude für einen idealen d.h. sättigungsfreien großflächigen Emmitter zunächst einmal unabhängig von der Emmitterfläche ist. In Abb. 8.3 ist daher für einen GaAs-Emitter mit 100 cm^2 auf der Basis des im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Modells die erwartete THz-Amplitude dargestellt. Eine solche Emmitterfläche kann z.B. mit 10 nebeneinander angeordneten Standard Zwei-Zoll-GaAs-Wafern und entsprechend flachem Einfall des aufgeweiteten optischen Strahls realisiert werden. Mit einer solchen Anordnung sollte bei einer Laserpulsenergie von $500\ \mu\text{J}$ und einer experimentell unkritischen Feldstärke von 1 kV/cm ebenfalls das Erreichen einer THz-Amplitude von 100 kV/cm möglich sein. Damit ist das Potential des GaAs-Emitters allerdings ausgeschöpft. Dieses gilt auch, wenn noch erheblich höhere Laserpulsenergien zu Verfügung stehen würden.

Der großflächige (4 cm^2) $500\ \mu\text{m}$ dicke nichtlineare ZnTe-Emitter zeigt im Vergleich zum

**Legende:**

GaAs mit externer Vorspannung:

---▲--- 9 cm² 1 kV/cm gemessen----- 9 cm² 1 kV/cm modelliert < 500 μJ, konstant interpoliert > 500 μJ—— 100 cm² 1 kV/cm modelliert < 5000 μJ, konstant interpoliert > 5000 μJ----- 9 cm² 10 kV/cm modelliert < 500 μJ, konstant interpoliert > 500 μJ

GaAs mit externer Vorspannung (Literaturdaten):

× Budiarto et. al. mit 15 kV/cm pulsartigem Feld

* You et. al. mit 10.7 kV/cm pulsartigem Feld

▽ You et. al. mit 9 kV/cm pulsartigem Feld

△ You et. al. mit 1.5 kV/cm pulsartigem Feld

500 μm-dickes ZnTe:

---■--- 4 cm² gemessen—— 4 cm² interpoliert auf Basis von 0.25 cm² Messung

nichtlinearer Plasmaemitter:

● 2,5 cm BBO-Brennpunkt-Abstand gemessen

— 2,5 cm BBO-Brennpunkt-Abstand modelliert im $\chi^{(3)}$ -Modell- - - 12 cm BBO-Brennpunkt-Abstand modelliert im $\chi^{(3)}$ -Modell

— 2,5 cm BBO-Brennpunkt-Abstand modelliert im Modell für Generationsnichlinearität

- - - 12 cm BBO-Brennpunkt-Abstand modelliert im Modell für Generationsnichlinearität

Plasmaemitter mit externem Feld:

◆ 10 kV/cm 1 bar gemessen

----- 10 kV/cm 1 bar modelliert

◆ 200 kV/cm 46 bar gemessen

----- lineare Fortsetzung von ◆ bzw. ◆

Abbildung 8.3.: Darstellung der Variation der THz-Signalamplitude am Ort des Detektors mit der Laserpulsenergie. Die Literaturdaten wurden dabei entnommen aus: Budiarto et al.: Ref. [39] und You et al.: Ref. [45]

GaAs-Emitter ein deutlich moderateres Sättigungsverhalten. Dieses wird erst im Bereich der interpolierten Daten bei $1000 \mu\text{J}$ bemerkbar. Die interpolierten Daten wurden auf Basis des experimentell an einem $0,25 \text{ cm}^2$ großen Kristall bestimmten Sättigungsverhaltens ermittelt, da im vorgestellten Modell keine Sättigungseffekte berücksichtigt wurden.

Sollten noch höhere Laserpulsenergien im Bereich von etwa 10 mJ zu Verfügung stehen, wird ein ZnTe-Emitter mit genügend großer Fläche um Sättigungseffekte zu vermeiden, (ca. 10 cm^2) den vom GaAs-Emitter vorgegebenen Spitzenwert von 100 kV/cm erreichen. Darüber hinaus wird allerdings der ZnTe-Emitter bei sehr viel einfacherer experimenteller Handhabung deutlich bessere spektrale Eigenschaften aufweisen.

Von den untersuchten Plasmaemittern, ist das Sättigungsverhalten des Plasmaemitters mit angelegtem Feld von großer Bedeutung, da hier die Grenzen der vorgestellten Modelle deutlich werden. In der Darstellung in Abb. 8.3 erkennt man, dass im Bereich von oberhalb von etwa $250 \mu\text{J}$ deutliche Abweichungen vom erwarteten $(J_{opt})^{3/2}$ -Verlauf auftreten. Diese Abweichung vom erwarteten Verlauf, die man auch als Sättigungseffekte bezeichnen kann, sind wie bereits in Kap. 5 dargestellt, entweder auf eine mangelhafte Beschreibung des Plasmavolumens im Propagationsmodell oder auf im THz-Emissionsmodell nicht berücksichtigte Phasenfehlانpassung oder Absorptionseffekte im Plasma zurückzuführen. Damit ist die Anwendbarkeit des Modells auf deutlich höhere Laserpulsenergien fraglich, da dabei ja noch deutlich größere Plasmavolumen erzeugt werden und damit Phasenfehlانpassung oder Absorptionseffekte im Plasma an Bedeutung gewinnen werden. Aus diesem Grund erscheint die ebenfalls dargestellte lineare Interpolierung der Daten eher angemessen, obwohl ein solcher linearer Zusammenhang nicht physikalisch begründet werden kann.

Vergleichbare Abweichungen treten für den Plasmaemitter mit externem Feld bei hohem Druck in noch stärkerer Form auf. Dieses liegt vermutlich daran, dass die auf dem nur für niedrige Drücke anwendbaren Propagationsmodell beruhende Vermutung, dass das Plasmavolumen im Grenzfall hoher Laserpulsenergien mit $(J_{opt})^{3/2}$ wächst, für hohe Drücke vermutlich nicht gerechtfertigt ist. Das vorgestellte Modell wurde daher im Fall hoher Drücke nicht angewendet. Statt dessen wurden die Daten ebenfalls linear interpoliert, obwohl der lineare Zusammenhang auf Grund der Erkenntnisse dieser Arbeit auch hier nicht physikalisch begründet werden kann.

Aus dem Auftreten von Abweichungen vom erwarteten $(J_{opt})^{3/2}$ -Verlauf beim Plasmaemitter mit externem Feld auf Grund von im Modell nicht berücksichtigter Phasenfehlانpassung oder wegen Absorptionseffekten im Plasma kann man schlussfolgern, dass vergleichbare Abweichungen auch für den nichtlinearen Plasmaemitter zu erwarten sind, wenn dieser im Bild der Generationsnichtlinearitäten modelliert wird. Dieses liegt darin begründet, dass auch in diesem Modell die THz-Amplitude proportional zum Plasmavolumen ist. Allerdings hängt dieses hier von der effektiven Laserpulsenergie ab, in welche auch das „Rot-Blau“-Verhältnis eingeht.

In der Darstellung in Abb. 8.3 fällt beim Vergleich der experimentellen Daten für den nichtlinearen Plasmaemitter mit dem vom Modell für die Generationsnichtlinearität vorgestellten Verlauf auf, dass die Abweichungen eher entgegengesetzt ausfallen, als man es auf Grund von im Modell nicht berücksichtigter Phasenfehlانpassung oder nicht berücksichtigter Absorptionseffekte im Plasma erwarten würde. Dieses erklärt sich vermutlich dadurch, dass die im Modell für genügend hohen „Blau“-Anteil angenommene Unabhängigkeit des erzeugten lokalen Polarisationspulses vom „Blau-Rot“-Verhältnis, nicht exakt gültig ist. D. h mit einer Erhöhung der Laserpulsenergie (und damit auch einer Erhöhung des „Blau-Rot“-Verhältnisses) wird auch noch eine leichte Steigerung in der Ausprägung der Asymmetrie der Ionisierung verbunden sein.

Beschreibt man den nichtlinearen Plasmaemitter im $\chi^{(3)}$ -Modell, so fällt auf, dass die Messdaten verhältnismäßig gut beschrieben werden können, obwohl die Gültigkeit dieses Modells ja nach

der Diskussion in Kap. 7 fraglich ist. Geht man zunächst jedoch einmal von der Richtigkeit des $\chi^{(3)}$ -Modells aus, kann die gute Übereinstimmung damit erklärt werden, dass Verluste auf Grund von Phasenfehlpassung im Vergleich zum Plasmaemitter mit externem Feld deutlich geringer ausfallen werden, da die THz-Erzeugung auf Grund des $\chi^{(3)}$ -Effekts ja im wesentlichen im Bereich hoher Intensität, also im Zentrum des Plasmas und nicht gleichmäßig über das ganze Plasmavolumen verteilt erfolgt.

Bei der Bestimmung der erwarteten vom nichtlinearen Plasmaemitter erzeugten THz-Amplitude im Bereich hoher Laserpulsenergien muss zunächst berücksichtigt werden, dass eine weitere Steigerung der Laserpulsenergie ohne eine Änderung der experimentellen Parameter zu einer Zerstörung des BBO-Kristalls führen wird. Um dieses zu vermeiden muss also die Flächenbelastung des BBO-Kristalls reduziert werden. Dieses kann durch eine Vergrößerung des Brennpunkt-BBO Abstands bei gleichbleibender Fokussierung erreicht werden. Zum Erreichen einer Laserpulsenergie von 10 mJ wäre allerdings bei unveränderter Fokussierung theoretisch ein BBO-Brennpunkt-Abstand von 12 cm notwendig. Dieser Wert übersteigt die Brennweite der Linse von 8 cm und erscheint daher zunächst als nicht sinnvoll. Da jedoch vergleichbare Brennpunktparameter (Strahldurchmesser und Rayleigh-Länge) auch mit einer langbrennweitigeren Linse erzielt werden können, wenn der Laserstrahl vor der Linse mittels eines Teleskops entsprechen aufgeweitet wird, ist ein BBO-Brennpunkt-Abstand von 12 cm bei unveränderten Brennpunktparametern eine durchaus experimentell realisierbare Annahme.

Unter dieser Voraussetzung liefern beide Modelle für den nichtlinearen Plasmaemitter im Bereich hoher Laserpulsenergien vergleichbare absolute THz-Amplituden, wenn auch der qualitative Verlauf (wie auch im Bereich niedriger Energien) leicht unterschiedlich ist. Im Rahmen des favorisierten Bildes der Generationsnichtlinearität muss allerdings ausgeführt werden, dass die Abschätzung zum Teil auf der Annahme beruht, dass zunehmende Verluste auf Grund von im Modell nicht berücksichtigter Phasenfehlpassung oder nicht berücksichtigter Absorptionseffekte im Plasma durch einen ebenfalls nicht berücksichtigten Gewinn im lokal erzeugten Polarisationspuls (auf Grund von stärker ausgeprägter Feldasymmetrie) kompensiert wird. In wieweit diese Annahme gerechtfertigt ist, kann letztendlich nur durch experimentelle Untersuchungen oder durch eine vollständige theoretische Beschreibung der Verlustmechanismen und der Änderung des lokal erzeugten Polarisationspulses auf Grund der Änderung des „Blau-Rot“-Verhältnisses geklärt werden. Diese würde den Rahmen der vorliegenden Arbeit deutlich übersteigen.

Geht man dennoch davon aus, dass die Beschreibung der von nichtlinearen Plasmaemitter erzeugten THz-Amplitude im Bereich hoher Laserpulsenergien einigermaßen korrekt ist, so muss festgestellt werden, dass dieser Emitter das Potential hat, THz-Amplituden zu erzeugen welche deutlich oberhalb der Werte von allen anderen bekannten THz-Emittern liegt. Aufgrund dieser Tatsache in Verbindung mit der verhältnismäßig einfachen experimentellen Realisierbarkeit sollte der nichtlineare Plasmaemitter einen idealen Emitter für THz-Anwendungen darstellen bei denen extrem hohe THz-Amplituden notwendig sind. Hier ist sicher die flächige THz-Bildgebung, d.h. dass Durchleuchten ganzer Objekte ohne Rasterung des THz-Strahls, und die nichtlineare THz-Spektroskopie (also die Untersuchung von Effekten welche nichtlinear von der THz-Feldstärke abhängen) zu nennen.

9. Empfehlungen und Ausblick

In diesem Kapitel sollen die im Rahmen der vorliegenden Arbeit gewonnenen Erkenntnisse einerseits in Bezug auf die praktische Anwendbarkeit und Umsetzung im Bereich der experimentellen THz-Spektroskopie und Bildgebung zusammengefasst werden. Ebenfalls sollen Empfehlungen für weiterführende Untersuchungen zum Verständnis der vorgestellten Plasmaemitter dargestellt werden. Solche Untersuchungen sollten natürlich auch zu einer Steigerung der Effizienz dieser Emmitter und zum Nachweis der Einsetzbarkeit bei höheren Laserpulsenergien führen.

9.1. Optimierung des großflächigen GaAs-Emitters

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der großflächige GaAs-Emitter standardmäßig mit externen Feldern von bis zu 1 kV/cm verwendet. Die in der Literatur vorgeschlagene und demonstrierte Verwendung von Feldern mit Werten von bis zu 15 kV/cm muss nach den im Rahmen dieser Arbeit gemachten Erfahrungen als experimentell schwierig und problembehaftet bewertet werden. Dieses liegt insbesondere daran, dass die extrem hohen Felder nur mittels Hochspannungsquellen mit pulsförmigen Spannungsverlauf realisiert werden können, da sonst Überschläge auftreten. Solche Hochspannungsquellen erzeugen aber extrem starke elektromagnetische Störungen, welche zu hohem Hintergrundrauschen und u.U. zu Fehlfunktionen verschiedener elektronischer Geräte im Labor führt. Damit stellt die Erhöhung der externen Feldstärke keinen geeigneten Weg für eine Erhöhung der Effizienz dieser Emmitter dar.

Aus diesem Grund und auf Grund der starken Sättigung ist eine weitere Optimierung des großflächigen GaAs-Emitters mit angelegtem Feld nur durch eine deutliche Steigerung der Emmitterfläche sinnvoll. Dazu könnten z.B. ca. 10 etwa 3 cm x 3 cm große Emmitter nebeneinander platziert werden. Diese Anordnung kann dann mittels eines auf einen Durchmesser von ca. 3 cm aufgeweiteten Laserstrahls unter sehr flachem Winkel ausgeleuchtet werden. Dieses sollte eine Steigerung der am Ort des Detektors erzeugten THz-Amplitude um einen Faktor 10 auf ca. 100 kV/cm ermöglichen. Zusätzlich sollte bei genügend flachem Einfallswinkel auch eine weitere Steigerung der THz-Emission auf Grund von Superradianz-Effekten [48] erfolgen.

9.2. Standardemitter im Laserpulsenergiebereich von ca. 500 μJ

Eine weitere Steigerung der vom ZnTe-Emitter erzeugten THz-Amplitude ist durch die Verwendung von dickeren (z.B. 2-3 mm) ZnTe-Kristallen möglich. Diese wird zwar die Bandbreite auf etwa 2 THz einschränken, sollte aber eine deutliche Steigerung der THz-Amplitude ermöglichen. Damit hat der ZnTe-Emitter in jedem Fall das Potential vergleichbare THz-Amplituden wie der Standard GaAs-Emitter zu liefern. Auf Grund der deutlich besseren spektralen Eigenschaften und der unkomplizierten Handhabung ist der ZnTe-Emitter daher im Laserpulsenergiebereich von ca. 500 μJ für die meisten Anwendungen der bevorzugte Emmitter. Für Anwendungen in der Bildgebung mit Rasterung des Objekts bzw. des THz-Strahls empfiehlt sich weiter die Verwendung von relativ großen Emmitterflächen in der Größe von 5 bis 10 cm^2 um eine möglichst gute Fokussierbarkeit des

THz-Strahls zu erzielen. Solche ZnTe-Kristalle sind inzwischen für unter 1.500 Euro kommerziell erhältlich.

9.3. Standardemitter im Laserpulsenergiebereich von ca. 10 mJ

Im Laserpulsenergiebereich von ca. 10 mJ ist der bisher in der Literatur vorgeschlagene GaAs-Emitter mit angelegtem externen Feld sicher ungeeignet, da die zu Verfügung stehende Laserpulsenergie auf Grund von Sättigungseffekten praktisch ungenutzt bleibt. Eine deutliche Verbesserung sollte hier ein großflächiger nichtlinearer ZnTe-Kristall bieten. Bei einer Emitterfläche von ca. 10 cm² sollten Sättigungseffekte gering und eine Zerstörung des Kristalls wirksam vermeidbar sein. Nach den im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnissen kann mit hoher Sicherheit abgeschätzt werden, dass dann z.B. bei einer Kristalldicke von 2 mm THz-Amplituden im Bereich von 100 kV/cm standardmäßig erreicht werden, ohne dass eine aufwendige Optimierung wie beim GaAs-Emitter (vergl. Kap. 9.1) notwendig ist.

Die Diskussion der erwarteten vom nichtlinearen Plasmaemitter erzeugten THz-Amplituden rechtfertigt außerdem die Annahme, dass auch dieser Emitter im Laserpulsenergiebereich von ca. 10 mJ einen attraktiven einfach handhabbaren Standardemitter mit mindestens vergleichbaren THz-Amplituden darstellt. Die Eigenschaften dieses Emitters im Bereich hoher Laserpulsenergien sollte daher im Rahmen weiterführender experimenteller und theoretischer Arbeiten ausführlich untersucht werden. Empfehlungen hierfür werden in den nächsten zwei Unterkapiteln gegeben.

9.4. Erweiterung der theoretischen Beschreibung des Plasmaemitters

9.4.1. Verbesserte Beschreibung des Plasmavolumens sowie Berücksichtigung von Phasenfehlpassung und Absorption im Plasma

Zur Verbesserung bzw. Erweiterung der in dieser Arbeit vorgestellten Modelle wäre zunächst eine größere Sicherheit in der Beschreibung des Plasmavolumens wünschenswert. Dazu sollten die Vorhersagen des Propagationsmodells in Kap. 4.3 experimentell überprüft werden. Dieses wäre z.B. durch die Ermittlung des Plasmavolumens mittels einer Mikroskopobjektivs und einer CCD-Kamera denkbar. Kann mittels solcher Messungen das berechnete Plasmavolumen bestätigt werden, muss versucht werden die Abweichungen zwischen gemessener THz-Amplitude und Plasmavolumen auf Grund von Phasenfehlpassung und Absorption zu berücksichtigen. Diese sollte sinnvoller Weise zunächst anhand des Plasmaemitters mit externem Feld erfolgen, da hier die Größenordnung der Polarisation innerhalb des Plasmas auf Grund der vollständigen Feldabschirmung des externen Feldes genau bekannt ist. Evtl. Abweichungen zwischen der Entwicklung des Plasmavolumens und der THz-Amplitude müssen durch eine Beschreibung von Phasenfehlpassung und Absorption im Plasma erfolgen. Dazu muss einerseits der Absorptionskoeffizient des Plasmas im optischen bzw. im THz-Frequenzbereich bestimmt werden. Andererseits müssen die bei der Integration über die im Plasmabereich erzeugte Polarisation gemachten Näherungen vermieden werden, so dass evtl. Verluste durch Phasenfehlpassung beschrieben werden können. Ein insoweit verbessertes Modell kann dann anhand der experimentellen THz-Daten des Plasmaemitters mit externem Feld überprüft werden. Wünschenswert wäre dabei den zugänglichen Bereich der Laserpulsenergie nach oben zu erweitern. Ein in dieser Form präzisiertes Modell stellt dann eine gute Ausgangslage zur exakteren Beschreibung des nichtlinearen Plasmaemitters dar.

9.4.2. Beschreibung der Polarisierung als Funktion der optischen Feldasymmetrie

Rein formal gesehen kann die von den Plasmaemittern erzeugte THz-Amplitude als proportional zu einem Produkt der erzeugten mittleren Polarisierung mit einem effektiven Plasmavolumen ausgedrückt werden. Das effektive Plasmavolumen ist dabei gegeben durch das reale Plasmavolumen welches in geeigneter Weise korrigiert ist, um Verluste auf Grund von Phasenfehlanspassung und Absorption im Plasma zu kompensieren. Ein solches effektives Plasmavolumen kann einfach durch eine Messung der THz-Amplitude beim Plasmaemitter mit angelegtem Feld bestimmt werden, da hier die mittlere lokale Polarisierung konstant und proportional zum angelegten Feld ist. Eine solche Bestimmung des effektiven Plasmavolumens kann auch beim nichtlinearen Plasmaemitter durchgeführt werden, indem zusätzlich ein externes Feld angelegt wird, und jeweils für beide Polaritäten des externen Felds die THz-Emission gemessen wird. Durch Differenzbildung der zugehörigen Zeitbereichssignale kann dann der Anteil der THz-Signalform, welcher vom externen Feld abhängt, bestimmt werden. Damit steht dann eine Möglichkeit zur Verfügung die mittlere lokale Polarisierung des nichtlinearen Plasmaemitters experimentell sehr exakt z.B. als Funktion der optischen Phase, der Laserpulsenergie oder des „Blau-Rot“-Verhältnisses zu bestimmen.

Im Bild der Generationsnichtlinearität sollte die mittlere lokale Polarisierung nur vom Grad der Asymmetrie im zeitlichen Verlauf der optischen Feldstärke abhängen. Dieser Grad der Asymmetrie kann für die zuvor genannten Parameter jeweils leicht bestimmt werden. Damit kann dann überprüft werden, ob für eine bestimmte Änderung des Grades der Asymmetrie auf Grund einer Änderung von unterschiedlichen Parametern jeweils eine einheitliche Änderung der mittleren Polarisierung erzielt werden kann. Zur theoretischen Modellierung der erzeugten lokalen nichtlinearen Polarisierung muss die Differentialgleichung für die Plasmadichte (vergl. Gl. 4.15 in Kap. 4.1.4) jeweils für Ionisierungsereignisse bei positiver und bei negativer optischer Halbwelle separat gelöst werden. Eine Koppelung ergibt sich natürlich durch die Dichte der nichtionisierten Gasteilchen. Als Ergebnis der Rechnung erhält man den Grad der Asymmetrie der Ionisierung als Funktion der Asymmetrie im optischen Feldstärkenverlauf. Die experimentellen Daten können dann mit Modellrechnungen verglichen werden. Ein gute Übereinstimmung würde die Gültigkeit des Modells der mikroskopischen Generationsnichtlinearitäten nachhaltig unterstützen.

9.5. THz-Emission von Plasmen nach Doppel-Puls-Anregung

Eine Überprüfung, ob die aufgestellte Hypothese, dass ein zeitunabhängiger $\chi^{(3)}$ -Wert des Plasmamediums nicht zur Erklärung der THz-Emission geeignet ist, könnte durch die Untersuchung eines von der Plasma-Erzeugung unabhängigen THz-Emissionsprozesses erfolgen. Ein geeignetes Experiment könnte so aussehen, dass man mittels eines ersten Laserpulses welcher nur die Fundamentalfrequenz enthält, ein Plasma erzeugt. Mit einem zweiten Laserpuls mit überlagerter zweiten Harmonischen und einer Laserpulsenergie unterhalb der Mindestenergie zur Erzeugung eines Plasmas kann dann überprüft werden, ob ein vorab erzeugtes Plasma zum Einsetzen einer THz-Emission führt. Eine solche Beobachtung würde eine THz-Emission auf Grund eines zeitunabhängigen $\chi^{(3)}$ -Wertes des Plasmamediums bedeuten. Kann jedoch kein Einsetzen einer THz-Emission auf Grund eines Vorpulses festgestellt werden, ist dieses zwar ein weiteres Indiz für das Modell der mikroskopischen Generationsnichtlinearität. Allerdings kann das Versagen des phänomenologischen $\chi^{(3)}$ -Modelles trotzdem nicht mit letzter Sicherheit bewiesen werden, da für die Abwesenheit eines THz-Signals ja auch andere Effekte, wie eine zu schnelle Plasmarekombination oder eine zu starke Absorption in Plasma verantwortlich sein könnten.

9.6. Nichtlineare Polarisation als Funktion des Drucks

Eine weitere interessante Möglichkeit, die Vorgänge im Plasma experimentell und theoretisch zu untersuchen, wäre eine Reduzierung des Gasdruckes. Dieses würde dazu führen, dass sich bei ca. 10 - 30 mbar Plasmafrequenzen im detektierbaren THz-Bereich ergeben. Gleichzeitig sollte die Dämpfungszeitkonstante der Plasmaschwingung deutlich länger werden. Eine genaue Modellierung dieser Effekte in Verbindung mit einer experimentellen Überprüfung sollte weitere Aufschlüsse über die mikroskopischen Vorgänge im Plasma geben.

10. Zusammenfassung

Die opto-elektronische Erzeugung intensiver Terahertz-Pulse unter Verwendung von Verstärkerlaser-Systemen stellt eine leistungsfähige und im wissenschaftlichen Umfeld etablierte Technik dar. Es ist anzunehmen, dass diese Technik in Zukunft auch für kommerzielle Anwendungen eingesetzt werden wird. (Z.B. entwickelt die Firma Nikon, Japan ein Echtzeit-Bildgebungssystem mit opto-elektronisch erzeugter Terahertz-Strahlung basierend auf einem Verstärkerlaser.)

In dieser Arbeit werden gängige und neuartige opto-elektronische Terahertz-Emitter für Verstärkerlaser theoretisch und experimentell untersucht. Zur experimentellen Untersuchung wurde die Methode der elektro-optischen Detektion, welche in der Arbeit ausführlich vorgestellt wird, verwendet. Dabei wird insbesondere die spektrale Detektorempfindlichkeit dargestellt und eine Methode zur Durchführung kalibrierter Messungen vorgestellt, welche auch für die Verwendung mit Verstärkerlasern geeignet ist.

Zu den untersuchten bekannten Emittlern gehört der vor ca. 10 Jahren erstmals vorgestellte großflächige GaAs-Emitter mit externem Feld. Obwohl dieser Emitter in der Literatur bereits ausführlich untersucht wurde, werden in der vorliegende Arbeit über den Stand der Literatur hinausgehende neue Aspekte wie die Feldabschirmung auf Grund von Ladungsträgerverschiebung und die Abhängigkeit der erzeugten THz-Feldstärke bzw. der THz-Pulsenergie von der Emitterfläche diskutiert. Zudem erfolgt die Behandlung dieses Emitters erstmals vollständig quantitativ, wobei eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten erreicht wird. Der zweite in der Arbeit untersuchte Emitter ist der großflächige ZnTe-Emitter. Die elektro-optische Erzeugung von THz-Strahlung in ZnTe-Kristallen mit hoch-repetierlichen Kurzpuls-Lasersystemen ist langjährig bekannt. Die Verwendung großflächiger ZnTe-Kristalle in Verbindung mit Verstärkerlasern wurde allerdings in Rahmen dieser Arbeit erstmals demonstriert. Vor dem Hintergrund der demonstrierten hervorragenden Eigenschaften dieses Emitters ist dieses besonders erstaunlich.

Der Hauptteil der Arbeit beschäftigt sich mit der neuartigen Erzeugung von THz-Pulsen in laser-generierten Plasmen. Dabei wurden zwei Methoden untersucht. Die erste Methode, welche im Rahmen dieser Arbeit erstmals realisiert wurde, basiert auf einer Vorspannung des Plasmas mit einem externen elektrischem Feld. Die Methode ist vergleichsweise wenig effektiv, stellt aber eine gute Möglichkeit zur Überprüfung der in der Arbeit entwickelten Modelle für die THz-Emission dar. Die zweite Methode, die erstmals von Cook et al. im Jahre 2000 demonstriert wurde, basiert auf einer „optischen Vorspannung“ des Plasmas mittels der Überlagerung des Laserpulses der Fundamentalfrequenz mit einem phasensynchronen Laserpuls der zweiten Harmonischen. Die ausführliche experimentelle und theoretische Untersuchung dieser Methode beinhaltet eine quantitative Modellierung der zu erwartenden Ergebnisse auf Basis des von Cook et al. vorgestellten phänomenologischen Modells, welches auf zeitunabhängigen Nichtlinearitäten dritter Ordnung im Plasma oder in der Luft beruht. Die in dieser Arbeit vorgestellte quantitative Analyse legt die Schlussfolgerung nahe, dass das phänomenologische Modell von Cook et al. in der vorliegenden Form in Frage gestellt werden muss. Daher wurde im Rahmen der Arbeit ein einfaches Modell zur Erklärung der mikroskopischen Ursache der Nichtlinearität entwickelt. Dieses Modell beinhaltet die Kopplung der Nichtlinearität mit dem lokalen Ionisierungsprozess und damit formal auch eine explizite Zeit-

abhängigkeit der Nichtlinearität im Plasma. Die quantitative Modellierung der makroskopischen THz-Emission auf Basis des mikroskopischen Bildes der Generations-Nichtlinearitäten zeigt, dass das Modell die experimentellen Befunde zufriedenstellend beschreiben kann.

Die Arbeit schließt mit einem Vergleich der untersuchten Emitter in Bezug auf spektrale Eigenschaften, Effizienz und Sättigungsverhalten. Bei der Darstellung des Sättigungsverhaltens wird anhand der in der Arbeit entwickelten Modelle versucht die Entwicklung der erzeugten THz-Feldamplituden für Laserpulsenergien von bis zu 50 mJ vorauszusagen. Diese Abschätzung lässt vermuten, dass der Plasma-Emitter für Laserpulsenergien von 10 mJ und mehr das Potential hat, deutlich höhere THz-Feldamplituden zu erzeugen als alle gängigen Standardemitter. Entsprechende Experimente in diesem Laserpuls-Energiebereich sind am Front-End des PHELIX-Lasers der GSI (Gesellschaft für Schwerionenforschung) in Darmstadt im Rahmen der Fortführung der Forschungsarbeiten geplant.

A. Anhang

A.1. Verzeichnis der verwendeten Natur- und Materialkonstanten

c_0	$= 2,99792 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
ϵ_0	$= 8,8541 \cdot 10^{-12} \frac{As}{Vm}$	Elektrische Feldkonstante
μ_0	$= 1,2566 \cdot 10^{-6} \frac{Vs}{Am}$	Magnetische Feldkonstante
η_0	$= 376,73\Omega$	Wellenwiderstand des Vakuums
e	$= 1,60219 \cdot 10^{-19} C$	Elementarladung des Elektrons
E_a	$= 5,14 \cdot 10^{11} V/m$	Atomare Einheit für die elektrische Feldstärke
\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
m_e	$= 9,1 \cdot 10^{-31} kg$	Masse des Elektrons
$n_2(Luft)$	$= 5 \cdot 10^{-19} cm^2/W$ [95]	Nichtlinearer Brechungsindex von Luft ¹
ZnTe:		
r_{41}	$= 4,04 \cdot 10^{-12} \frac{m}{V}$	Elektro-optischer Koeffizient [21]
d_{41}	$= -5,31 \cdot 10^{-22} \frac{As}{V^2} \cdot \frac{1}{\epsilon_0}$	Frequenzverdopplungs-Koeffizient ²
	$= -6,0 \cdot 10^{-11} \frac{m}{V}$	
n_{opt}	$= 2,853$	Brechungsindex bei 775 nm
n_{THz}	$= 3,2$	mittlerer Brechungsindex im THz-Bereich
GaAs:		
ϵ	$= 13,1$	Dielektrizitätskonstante
n_{THz}	$= 3,595$	mittlerer Brechungsindex im THz-Bereich [143]
τ_s	$= 150 fs$	Impulsrelaxationszeit unter Gleichgewichtsbedingungen [57]
μ_{DC}	$= 8500 cm^2/Vs$	Mobilität für kleine konstante Felder [58]

¹Die Literaturwerte für n_2 von Luft bzw. Stickstoff bei atmosphärischem Druck variieren im Bereich von etwa $5 \cdot 10^{-19} cm^2/W$ [95, 98]. Dabei erklärt sich die große Unsicherheit dadurch, dass die nichtlineare Brechungsindexänderung nur näherungsweise zeitunabhängig ist und so die experimentell bestimmten Werte insbesondere mit der Laserpulslänge stark variieren. Für die hier relevanten Parameter $\lambda_{opt} = 775 nm$ und $\tau_p = 150 fs$ (Halbwertsbreite) wird in der Regel ein Wert von $n_2 = 5 \cdot 10^{-19} cm^2/W$ [95] angenommen.

²In Ref. [144] und in Ref. [145] findet man einen Wert von $d_{41} = -5,5 \cdot 10^{-11} \frac{m}{V}$. Die Berechnung nach der Gleichung [146, 31] $d_{41} = -\frac{n_{opt}^4}{4} r_{41}$ liefert den Wert $d_{41} = -6,6 \cdot 10^{-11} \frac{m}{V}$. In der vorliegenden Arbeit wurde daher der Mittelwert angenommen. Weiter wurde hier die Definition $d_{ij} = \frac{1}{2} \cdot \chi_{ij}^{(2)}$ verwendet. In der Literatur findet man häufig auch die Definition: $d_{ij} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \cdot \chi_{ij}^{(2)}$.

A.2. Verzeichnis der verwendeten Formelzeichen

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
A_{opt}	Fläche des optischen Strahls beim Auftreffen auf den großflächigen Emitter bzw. auf die optische Linse	m^2
A_{THz}	Fläche des erzeugten THz-Strahls am Ort des großflächigen Emitters bzw. freie Apertur des kollimierten THz-Strahls beim Plasma-Emitter	m^2
$B(z)$	allgemeine Funktion zur Beschreibung des Anwachsens der THz-Feldstärke im Emitterkristall	$V\sqrt{s}/m$
C_1, C_2	allgemeine Konstanten	verschieden
D	elektrisches D-Feld	$A s / m^2$
E_{ABI}	Mindest-Feldstärke für „Über-Barrieren“-Ionisierung	V/m
E_{abs}^0	Komplexe Feldamplitude des Abfrage-Laserpulses	V/m
$E_{det}(t)$	zeitaufgelöste elektrische Feldstärke des Terahertzsignals am Ort des Detektors	V/m
E_{det}^0	elektrische Signalamplitude der Terahertzfeldstärke am Ort des Detektors	V/m
E_{ext}	extern angelegtes elektrisches Feld	V/m
E_{eff}	effektiv wirkendes elektrisches Feld	V/m
$E_{fern}(z)$	elektrische Feldstärke in großem Abstand vom Emitter	V/m
$E_{in,x}^0, E_{in,y}^0$	Komplexe Feldamplitude der x-, y-Komponente des Abfrage-Laserpulses	V/m
E_{opt}^0	Feldamplitude der optischen Strahlung (Einhüllende)	V/m
$E_{opt}(t)$	Feldstärke der optischen Strahlung	V/m
$E_{out,x}^0, E_{out,y}^0$	Komplexe Feldamplitude der x-, y-Komponente des Abfrage-Laserpulses hinter dem $\lambda/4$ -Plättchen	V/m
$E_{THz}(t)$	zeitaufgelöste elektrische Feldstärke des erzeugten Terahertzsignals am Ort des großflächigen Emitters bzw. hinter dem kollimierenden Spiegel beim Plasmaemitter	V/m
$E_{THz}^{in}(t), E_{THz}^{out}(t)$	An der beleuchteten GaAs-Grenzfläche erzeugte THz-Feldstärke innerhalb bzw. außerhalb des Materials	V/m
f_{det}	Effektive Brennweite des Parabolspiegels zur Fokussierung auf den Detektorkristall	m
f_{koll}	Effektive Brennweite des Parabolspiegels zur Kollimierung der im Plasma erzeugten THz-Strahlung	m
f_{opt}	Brennweite der Linse für die Fokussierung des Laserstrahls zur Erzeugung des Plasmas	m
$f_{\Delta z}$	Brennweite eines Plasmaabschnitts der Länge Δz	m
$F(r, z)$	Funktion zur Beschreibung der räumlichen Intensitätsverteilung im Brennpunkt	keine

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
$G(z)$	Funktion zur Beschreibung des Anwachsens der Feldstärke bei der elektro-optischen Generation	$\frac{J}{Am\sqrt{s}}$
H_{THz}	Magnetisches H-Feld der THz-Strahlung	A/m
$H_{THz}^{in}(t), H_{THz}^{out}(t)$	An der beleuchteten GaAs-Grenzfläche erzeugtes magnetisches H-Feld innerhalb bzw. außerhalb des Materials	A/m
I_{ABI}	Intensitätsschwelle für das Einsetzen von „Über-Barrieren“-Ionisierung	W/m ²
I_{opt}	optische Intensität (Flächenleistungsdichte)	W/m ²
I_{opt}^0	theoretische maximale optische Intensität im Brennpunkt der optischen Linse ohne die Berücksichtigung von nichtlinearen Effekten	W/m ²
I_{ω}	optische Intensität (Flächenleistungsdichte) der Fundamentalfrequenz ω	W/m ²
$I_{2\omega}$	optische Intensität (Flächenleistungsdichte) der zweiten Harmonischen 2ω	W/m ²
I_{THz}	Intensität (Flächenleistungsdichte) der Terahertzstrahlung	W/m ²
j_S	Oberflächenstromdichte	A/m
J_{opt}	optische Pulsenergie ($= J_{\omega} + J_{2\omega}$)	J
J_{ω}	optische Pulsenergie der Fundamentalfrequenz ω	J
$J_{2\omega}$	optische Pulsenergie der zweiten Harmonischen 2ω	J
J_{THz}	Pulsenergie der Terahertzstrahlung	J
K_{det}	Kalibrierfaktor für die Empfindlichkeit des Detektors	V/rad
K_{GaAs}^{eff}	Faktor zur Beschreibung der Konversionseffizienz des flächigen GaAs-Emitters	m/(A \sqrt{s})
K_{GE}^{eff}	Faktor zur allgemeinen Beschreibung der Konversionseffizienz der großflächigen Emitter	m/(A \sqrt{s})
K_{ZnTe}^{eff}	Faktor zur Beschreibung der Konversionseffizienz des flächigen ZnTe-Emitters	m/(A \sqrt{s})
K_{ZnTe}^{red}	Faktor zur Beschreibung der Reduzierung der Konversionseffizienz des flächigen ZnTe-Emitters durch eine empirische Filterfunktion	m/(A \sqrt{s})
K_{sc}	Konstante zur empirischen Beschreibung der Feldabschirmung durch Ladungsträgerverschiebung	V/As
k_{SF}	Konstante zur Beschreibung von Selbstfokussierung	keine
l_c	Kohärenzlänge	m
l_{det}	Propagationslänge durch den ZnTe-Detektorkristall	m
l_{gap}	Abstand zwischen den Elektroden	m
l_{ZnTe}	Propagationslänge durch den ZnTe-Emitterkristall	m
L_{CFSF}	Kritische Leistung für das Auftreten von Selbstfokussierung	W
L_{opt}	Gesamtleistung des Laserstrahls	W

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
m^*	effektive Masse der Elektronen im GaAs	kg
M_0	Transfermatrix eines $\lambda/4$ -Plättchens	keine
M_γ	Transfermatrix eines um den Winkel $\theta_{\lambda/4}$ gedrehten $\lambda/4$ -Plättchens	kein e
n_{THz}	Bechungsindex im Terahertzfrequenzbereich	keine
n	Bechungsindex im optischen Frequenzbereich	keine
n_2	nichtlinearer Bechungsindex	keine
n_{gr}	Bechungsindex für die Gruppengeschwindigkeit	keine
n_{pl}	Bechungsindex des Plasmas	keine
p_{pl}^{ret}	retadiertes Dipolmoment des Plasmas	A s m
P_{NL}	nichtlineare Polarisierung	A s/m ²
P_{GenNL}^0	Amplitude der lokalen nichtlineare Polarisierung im Bild der Generationsnichtlinearität	A s/m ²
P_{abs}	absoluter Gasdruck	bar
$Q(\theta)$	Transfermatrix für die Drehung um θ	keine
r_{ij}	Tensorelement des elektro-optischen Tensors von ZnTe	m/V
r_{opt}^0	Radius ³ des Laserstrahls beim Auftreffen auf den großflächigen Emitter, bzw. beim Auftreffen auf die Linse für die Fokussierung des Laserstrahls zur Erzeugung des Plasmas	m
$r_{opt}(z)$	Radius ³ des Laserstrahls im Brennpunkt	m
r_{THz}	Radius ³ des THz-Strahls beim Austritt aus dem großflächigen Emitter, bzw. beim Auftreffen auf die Linse für die Fokussierung des THz-Strahls zur Detektion	m
$r_{pl}(z)$	Radius der Grenze des Plasmavolumens	m
$R_{opt}(z)$	Krümmungsradius des Laserstrahls im Brennpunkt	m
$V_{2\omega,\omega}$	energetisches "Blau-Rot,-Verhältnis ($V_{2\omega,\omega} = J_{2\omega}/J_\omega$)	keine
s_{ZnTe}	Gleichspannungsempfindlichkeit von ZnTe	$\frac{\text{rad}}{(\text{kV/cm}) \text{ mm}}$
$t^* = t - \frac{z}{c_0}$	Zeit in einem Koordinatensystem welches mit dem Laser- bzw. THz-Puls mitwandert	s
t	Zeit	s
$T_{GaAs}(t)$	Normierte Funktion zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs des am Ort des GaAs-Emitters erzeugten THz-Signals	$1/\sqrt{s}$
$T_{PNL}^{norm}(t)$	Normierte Funktion zur allgemeinen Beschreibung des zeitlichen Verlaufs der im ZnTe Emitter erzeugten Polarisierung	$1/\sqrt{s}$
$T_{GE}^{norm}(t)$	Normierte Funktion zur allgemeinen Beschreibung des zeitlichen Verlaufs des am Ort eines großflächigen Emitters erzeugten THz-Signals	$1/\sqrt{s}$

³Definiert über den Abfall der Intensität auf $1/e^2$.

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
$T_{opt}(t)$	Normierte Funktion zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs der optischen Intensität	$1/\sqrt{s}$
$T_{ZnTe}^{real}(t)$	Normierte Funktion zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs des am Ort des ZnTe-Emitters erzeugten realen THz-Signals	$1/\sqrt{s}$
$T_{ZnTe}^{ideal}(t)$	Normierte Funktion zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs des am Ort des ZnTe-Emitters erzeugten idealen (d.h ohne die Berücksichtigung von Phasenfehl-anpassung und Absorption) realen THz-Signals	$1/\sqrt{s}$
U_{Br}	Durchbruchspannung	V
U_{det}	Anzeigewert des zur Detektion eingesetzten „Lock-In“-Verstärkers	V
U_{ion}^0	Ionisierungsenergie im Gleichspannungsfall	eV
U_{ion}^H	Ionisierungsenergie des Wasserstoffatoms	eV
U_{pon}	Ponderomotive Energie	eV
v_{gr}	optische Gruppengeschwindigkeit des Laserpulses	m/s
$v_e(t)$	Geschwindigkeit der Elektronen im GaAs	m/s
$V_{pl}^{ret}(t)$	zeitabhängiges retadiertes Plasmavolumen	m^3
V_{pl}^0	maximal erreichtes Plasmavolumen	m^3
V_{eff}	Funktion zur Beschreibung des Einflusses des Plasmavolumens auf die Emission des $\chi^{(3)}$ Emitters	m^3
w_{ion}	Ionisierungswahrscheinlichkeit	1/s
w_{tunnel}	Wahrscheinlichkeit für einen Tunnel-Ionisierungsprozess	1/s
w_{MPI}	Wahrscheinlichkeit für einen Mehrphotonen-Ionisierungsprozess	1/s
$w_{Keldysh}$	Wahrscheinlichkeit für einen Ionisierungsprozess im Keldysh-Modell	1/s
w_{Bauer}	Wahrscheinlichkeit für einen „Über-Barrieren“-Ionisierungsprozess nach Bauer et al.	1/s
W_{opt}	gesamte optische Flächenenergiedichte	J/m^2
W_{THz}	Flächenenergiedichte der Terahertzstrahlung	J/m^2
X, Y	Hilfsfunktionen zur Beschreibung der Oberflächenleitfähigkeit	keine
z_0	Rayleigh-Länge des Brennpunkts	m
$z_{pl}, z_{pl,1}, z_{pl,2}$	Grenzen des Plasmavolumens in z-Richtung	m
α_{THz}	Leistungs-Absorptionskoeffizient im Terahertzbereich	1/m
α_{rc}	Rekombinationskoeffizient	cm^3/s
β	Abstrahlwinkel des Plasmaemitters	rad
χ_L	lineare Suszeptibilität	keine
$\chi^{(3)}$	Suszeptibilität dritter Ordnung	keine
$\chi_{pl}^{(3)}$	Suszeptibilität dritter Ordnung des Plasmas	keine

Formelzeichen	Bedeutung	Einheit
δ	Akzeptanzwinkel des Detektors	rad
$\Delta\varphi$	Phasenunterschied zwischen den senkrecht zueinander stehenden Komponenten der optischen Welle nach dem Durchlaufen des elektro-optischen Detektors	rad
Δt_p	Charakteristische Zeit für das Bestehen einer lokalen Polarisation im Bild der Generationsnichtlinearität	s
ϵ_r	relative Dielektrizitätskonstante	keine
ϕ	Phasenverzögerung zwischen dem THz-Signal und dem optischen Abfragepuls bei der elektro-optischen Detektion	rad
$\Phi_{Atom}(x)$	Atomares Potential	eV
$\varphi_{\omega,2\omega}$	relative optische Phasendifferenz der Wellen mit ω bzw. 2ω .	rad
γ	Keldysh-Parameter	keine
η_0	Vakuumwellenwiderstand	Ω
λ_{opt}	optische Wellenlänge	m
$\mu(t)$	Beweglichkeit der Elektronen in GaAs	$\frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$
μ_{DC}	Gleichgewichtswert der Beweglichkeit der Elektronen in GaAs	$\frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$
ν_{rep}	Repetitionsrate (Laserpulswiederholfrequenz) des Puls lasers	1/s
θ_{BBO}	Drehwinkel des BBO-Kristalls	rad
$\theta_{\lambda/4}$	Drehwinkel des $\lambda/4$ -Plättchens	rad
θ_{ZnTe}	Drehwinkel des ZnTe-Kristalls	rad
$\rho_{pl}(t)$	Plasmadichte	$1/\text{cm}^3$
ρ_{pl}^0	Anfangswert der Plasmadichte bei der Beschreibung der Rekombination	$1/\text{cm}^3$
ρ_{gas}^0	Teilchendichte im Gas	$1/\text{cm}^3$
$\sigma_s(t)$	Oberflächenleitfähigkeit	A/V
σ_s^0	Maximalwert der Oberflächenleitfähigkeit	A/V
$\sigma_{MPI}^{(N)}$	Wechselwirkungsquerschnitt für einen Mehrphotonenprozess der N-ten Ordnung	A/V
τ	Zeitverzögerung zwischen THz- und optischem Abfragepuls	s
τ_s	Zeitkonstante für die Streuung im Drude Modell	s
τ_p	Halbwertsdauer (engl. "Full Width Half Maximum,") des Laserpulses	fs
ω_{THz}	Winkelfrequenz der Terahertzstrahlung	rad/s
ω_{opt}	Winkelfrequenz der optischen Strahlung	rad/s
ω_{pl}	Plasmafrequenz	rad/s
ψ	Drehwinkel des Glasplättchens	rad

Laserpulsenergie	> 800 μJ
Laserpulslänge (Halbwertsbreite)	< 150 fs
Wellenlänge	775 nm
Modenprofil	TEM00
Pulswiederholfrequenz	1 kHz
Polarisation	linear, horizontal
Pulsenergiestabilität	< 1 %
Vorpulsunterdrückung	>500:1
Nachpulsunterdrückung	>100:1

Abbildung A.1.: Übersicht über die wichtigsten Parameter des CPA-2001 Lasersystems

A.3. Das verwendete Verstärker - Pulslasersystem

In der vorliegenden Arbeit wurde ein CPA-2001 Laser System der Firma Clark Inc. verwendet. Dabei handelt es sich um ein Verstärker-Lasersystem welches nach der Methode der Verstärkung von zeitlich langgestreckten Pulsen (engl. "Chirped Pulse Amplification,") arbeitet. Bei dieser Technik werden kurze Laserpulse niedriger Energie zunächst mittels einer Anordnung aus optischen Gittern zeitlich langgestreckt. Die so aufbereiteten Pulse können dann in einem Resonator verstärkt werden, ohne dass die Gefahr einer Beschädigung der optischen Komponenten durch eine zu hohe Spitzenleistung besteht. Nach der Verstärkung werden die Pulse dann in einem Gitter-Kompressor wieder auf ihre ursprüngliche Kürze komprimiert.

Der verwendete CPA-2001 Laser ist ein voll integriertes System welches einen moden-gekoppelten Glasfaserlaser zur Erzeugung der kurzen Pulse und einen Ti:Saphir Verstärker-Resonator beinhaltet. Der Ti:Saphir Verstärker wird mittels eines ebenfalls integrierten resonatorintern frequenzverdoppelten Nd:Yag Laser gepumpt.

Die wichtigsten Parameter des Lasersystems sind in der in Abb. A.3 dargestellten Tabelle angegeben.

A.4. Absolute Kalibrierung der gemessenen THz-Feldstärke

Die absolute Kalibrierung ist hier am Beispiel einer Messung eines THz-Signals von einem großflächigen ZnTe-Emitter dargestellt. Die experimentellen Parameter waren: Laserpulsenergie $J_{opt} = 500 \mu\text{J}$; Dicke des Emitterkristalls $l_{ZnTe} = 500 \mu\text{m}$, Brennweite des parabolischen Spiegels zur Fokussierung in den Detektor $f_{det} = 5 \text{ cm}$. Mit einem 1 mm dicken ZnTe-Detektorkristall wurde in einer Geometrie mit 45° -Differenz zwischen THz-Polarisation und Polarisation des Abfragepulses (vgl. Kap. 2.4.1) ohne Lichtzerhacker eine maximale Signalamplitude von 0,50 mV Lock-In-Anzeige gemessen. Ohne THz-Signal ergab eine Drehung des $\lambda/4$ -Plättchens um 1° eine Signaländerung von 0,35 mV. Nach Gleichung A.4 entspricht dieses einem Kalibrierfaktor von $k_{det} = 0,175 \text{ mV}/1^\circ$. Nach Gleichung 2.37 entspricht das einer absoluten Phasendifferenz von $2,85^\circ$. Die Gleichspannungsempfindlichkeit des Kristalls beträgt nach Gl. 2.29 $2,07 / (\text{kV}/\text{cm})$ ab. Da sich in der gewählten Geometrie mit 45° Polarisationsdifferenz eine um den Faktor 2 reduzierte Empfindlichkeit ergibt, beträgt die Empfindlichkeit des verwendeten Detektors also $1,0 / (\text{kV}/\text{cm})$. Die beobachtete Phasendifferenz von $2,85^\circ$ entspricht also einer maximalen elektrischen Feldstärke

des THz-Signals von 2.85 kV/cm. Dabei wurde die frequenzabhängige Empfindlichkeit des Detektors nicht berücksichtigt, da in der vorliegenden Arbeit die frequenzabhängige Empfindlichkeit des Detektors jeweils bei der Bestimmung der modellierten erwarteten THz-Signalformen berücksichtigt wurde.

A.5. Wellengleichung mit nichtlinearer Polarisation

Die für die Wellengleichung relevanten Maxwellgleichungen für ein nicht-magnetisches Medium lauten:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \mathbf{j} + \frac{\partial}{\partial t}(\epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}) \quad (\text{A.1})$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t}(\mu_0 \mathbf{H}). \quad (\text{A.2})$$

Die Polarisation \mathbf{P} kann in einen linearen und einen nichtlinearen Term aufgeteilt werden

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi_L \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL}. \quad (\text{A.3})$$

Damit läßt sich unter Verwendung des Ohmschen Gesetzes $\sigma \mathbf{E} = \mathbf{j}$ (σ ist die Leitfähigkeit) Gleichung A.1 schreiben als

$$\nabla \times \mathbf{H} = \sigma \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \epsilon \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t}, \quad (\text{A.4})$$

wobei $\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi_L)$. Anwenden von $\nabla \times$ auf A.2 und einsetzen von A.4 liefert

$$\nabla^2 \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \left(\sigma \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \epsilon \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t} \right), \quad (\text{A.5})$$

wobei die Identität $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla \nabla \cdot \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E}$ und $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ benutzt wurde. Die Wellengleichung in dieser Form stellt die Grundlage der Beschreibung der elektro-optischen Generation von THz-Strahlung in Kap. 3.3 dar.

A.6. Polarisation der THz-Strahlung beim nichtlinearen Plasmaemitter im $\chi^{(3)}$ -Bild

Bei der Diskussion der THz-Erzeugung auf Basis des $\chi^{(3)}$ -Bildes stellt sich die Frage, in welcher Richtung die THz-Strahlung polarisiert ist, wenn die optischen Wellen der Fundamentalen und der zweiten Harmonischen unterschiedliche Polarisationen aufweisen. Dieses soll im folgenden ausgehend von dem $\chi^{(3)}$ -Tensor von Isotropen Medien dargestellt werden.

Die erzeugte Polarisierung bei einem $\chi^{(3)}$ -Prozess ist allgemein gegeben durch:

$$P_i = \chi_{ijkl}^{(3)} E_j^a E_k^b E_l^c. \quad (\text{A.6})$$

Dabei wird nach der üblichen Konvention über alle doppelt vorkommenden Indizes von x bis z summiert.

Die Symmetrieeigenschaften von $\chi^{(3)}$ -Tensoren von Isotropen Medien werden beschrieben durch [126]:

$$\begin{aligned}
\chi_{xxxx}^{(3)} &= \chi_{yyyy}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)} = \chi^{(3)} \\
\chi_{yyzz}^{(3)} &= \chi_{zzyy}^{(3)} = \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{yyxx}^{(3)} \\
\chi_{yzyz}^{(3)} &= \chi_{zyzy}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} = \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{xyxy}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} \\
\chi_{yzzy}^{(3)} &= \chi_{zyyz}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} = \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{xyyx}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} \\
\chi_{xxxx}^{(3)} &= \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}.
\end{aligned}
\tag{A.7}$$

Naherungsweise gilt auch [126]:

$$\chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{xyxy}^{(3)} = \chi_{xyyx}^{(3)} = \frac{1}{3}\chi^{(3)}.
\tag{A.8}$$

Seien im weiteren E^a und E^b durch das Feld der Fundamentalen mit Amplitude E_ω^0 gegeben, welches in x-Richtung linear polarisiert ist. E^c sei durch das Feld der 2. Harmonischen mit Amplitude $E_{2\omega}^0$ gegeben welches unter dem Winkel $\theta_{2\omega}$ relativ zur x-Richtung polarisiert ist. In diesem Fall gilt:

$$\begin{aligned}
E_x^a &= E_x^b = E_\omega^0 \\
E_y^a &= E_z^a = E_y^b = E_z^b = E_z^c = 0 \\
E_x^c &= E_{2\omega}^0 \cos(\theta_{2\omega}) \\
E_y^c &= E_{2\omega}^0 \sin(\theta_{2\omega}).
\end{aligned}
\tag{A.9}$$

Damit ergibt sich fur die erzeugte Polarisierung:

$$\begin{aligned}
P_x &= \chi^{(3)} (E_\omega^0)^2 E_{2\omega}^0 \cos(\theta_{2\omega}) \\
P_y &= \frac{1}{3}\chi^{(3)} (E_\omega^0)^2 E_{2\omega}^0 \sin(\theta_{2\omega})
\end{aligned}
\tag{A.10}$$

Das heit in der Anteil der Polarisierung welcher in Richtung der Polarisierung der Fundamentalen (x-Richtung) erzeugt wird, ist um den Faktor $\cos(\theta_{2\omega})$ reduziert. (Dieses ist fur das in dieser Arbeit dargestellte Experiment genau die Richtung der Detektorempfindlichkeit.) Die Reduzierung des Signals entspricht genau der Reduzierung, welche sich auch ergibt, wenn zunachst die Strahlung der 2. Harmonischen auf die x-Richtung projiziert und dann die nichtlineare Polarisierung fur den Fall parallel polarisierten Wellen betrachtet wird.

Allgemein betrachtet ergibt sich fur die Polarisationsrichtung der erzeugten nichtlinearen Polarisierung θ_{THz} relativ zur x-Achse:

$$\begin{aligned}
\theta_{THz} &= \arctan\left(\frac{P_y}{P_x}\right) \\
&= \arctan\left(\frac{1}{3}\tan(\theta_{2\omega})\right).
\end{aligned}
\tag{A.11}$$

Für kleine Winkel $\theta_{2\omega}$ gilt entsprechend

$$\theta_{THz} = \frac{1}{3}\theta_{2\omega}. \quad (\text{A.12})$$

Literaturverzeichnis

- [1] M.J.W. Rodwell, M. Urteaga, T. Mathew, D. Scott, D. Mensa, Q. Lee, J. Guthrie, Y. Betser, S.C. Martin, R.P. Smith, S. Jaganathan, S. Krishnan, S.I. Long, R. Pallela, B. Agarwal, U. Bhattacharya, L. Samoska, and M. Dahlstrom. Submicron scaling of HBTs. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 48(11):2606–2624, 2001.
- [2] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi. Terahertz semiconductor-heterostructure laser. *Nature*, 417:156 – 159, 2002.
- [3] A. M. Johnson and D. H. Auston. Microwave switching by picosecond photoconductivity. *IEEE J. Quantum Electronics*, 11:283–287, 1975.
- [4] B. Ferguson and X.-C. Zhang. Materials for terahertz science and technology. *Nature Materials*, 1:26–33, 2002.
- [5] S. Vergheses, K. A. McIntosh, S. Calawa, W. F. Dinatale, E. K. Duerr, and K. A. Molvar. Generation and detection of coherent terahertz waves using two photomixers. *Appl. Phys. Lett.*, 73(26):3824–3826, 1998.
- [6] A. Nahata, J. T. Yardley, and T. F. Heinz. Free-space electro-optic detection of continuous-wave terahertz radiation. *Appl. Phys. Lett.*, 75(17):2524–2526, 1999.
- [7] A. Nahata, J. T. Yardley, and T. F. Heinz. Two-dimensional imaging of continuous-wave terahertz radiation using electro-optic detection. *Appl. Phys. Lett.*, 81(6):963–965, 2002.
- [8] K. J. Siebert, H. Quast, R. Leonhardt, T. Löffler, M. Thomson, T. Bauer, H. G. Roskos, and S. Czasch. Continuous-wave all-optoelectronic terahertz imaging. *Appl. Phys. Lett.*, 80:3003–3006, 2002.
- [9] B. B. Hu and M. C. Nuss. Imaging with terahertz waves. *Optics Lett.*, 20(16):1716–1718, 1995.
- [10] Q. Chen and X.-C. Zhang. Polarization modulation in optoelectronic generation and detection of terahertz beams. *Appl. Phys. Letters*, 74(23):3435–3437, June 1999.
- [11] S. W. Smye, J. M. Chamberlain, A. J. Fitzgerald, and E. Berry. The interaction between Terahertz radiation and biological tissue. *Phys. Med. Biol.*, 46:R101–R112, 2001.
- [12] M. Chamberlain and M. Smith (Editoren). Special issue: Proceedings of the First Conference on Biomedical Imaging and Sensing Applications of THz Technology. *Phys. Med. Bio.*, 47(21):3667–3892, 2002.
- [13] A. J. Fitzgerald, E. Berry, N. N. Zinovev, G. C. Walker, M. A. Smith, and M. J. Chamberlain. An introduction to medical imaging with coherent terahertz frequency radiation. *Phys. Med. Bio.*, 47(7):R67–R84, 2002.

- [14] M. Herrmann, M. Tani, and K. Sakai. Display Modes in Time-Resolved Imaging. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39(11):6254–6258, 2000.
- [15] Q. Wu and X.-C. Zhang. Ultrafast electro-optic field sensors. *Appl. Phys. Lett.*, 68(12):1604–1606, March 1996.
- [16] B. Ferguson, S. Wang, D. Gray, D. Abbot, and X.-C. Zhang. T-ray computed tomography. *Appl. Phys. Lett.*, 27(15):1312–1314, 2002.
- [17] R. B. Vrijen, G. M. Lnkhuijzen, and L. D. Norrdam. Delayed Electron Emission in the Ionization of Rydberg Atoms with Half-Cycle THz Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 79(4):617–620, 1997.
- [18] D. J. Cook and R. M. Hochstrasser. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air. *Optics Lett.*, 25(16):1210–1212, 2000.
- [19] C. Winnewisser, P. Uhd. Jepsen, M. Schall, V. Schyja, and H. Helm. Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃ and LiNbO₃ and ZnTe. *Appl. Phys. Lett.*, 70(23):3069–3071, June 1997.
- [20] Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang, and X.-C. Zhang. Electro-optic transceivers for terahertz-wave applications. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(6):823–831, 2001.
- [21] Q. Wu, T. D. Hewitt, and X.-C. Zhang. Two-dimensional electro-optic imaging of THz beams. *Appl. Phys. Lett.*, 69(8):1026–1028, 1996.
- [22] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, and M. C. Nuss. Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: Experiment and theory. *Appl. Phys. Lett.*, 74(11):1516–1518, March 1999.
- [23] G. Zhao, R. N. Schouten, N. van der Valk, W. Th. Wenkebach, and P. C. M. Planken. Design and performance of a THz emission and detection setup based on a semi-insulating GaAs emitter. *Rev. Sci. Instr.*, 73(4):1715–1719, 2002.
- [24] E. Hecht. *Optik*, volume 3. Addison-Wesley, 1994.
- [25] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*, volume 2. John Wiley, 1975.
- [26] Ajay Nahata, Aniruddha S. Weling, and Tony F. Heinz. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling. *Appl. Phys. Lett.*, 69(16):2321–2323, October 1996.
- [27] G. Gallot, Jiangquan Zhang, R. W. McGowan, Tae-In Jeon, and D. Grischkowsky. Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation. *Appl. Phys. Letters*, 74(23):3450–3452, June 1999.
- [28] M. Schall, H. Helm, and S. R. Keiding. Far infrared properties of electro-optic crystals measured by THz time-domain spectroscopy. *Int. J. of Infrared and mm Waves*, 20(4):595–604, 1999.
- [29] Frank Jacob. Quellen und Detektionsverfahren für lasererzeugte intensive THz-Pulse. *Di-pomarbeit, JWG-Universität Frankfurt am Main*.

- [30] T. Hattori, Y. Homma, A. Mitsuishi, and M. Tacke. *Opt. Commun.*, 7:229, 1973.
- [31] Amnon Yariv. *Quantum Electronics*, volume 3. John Wiley, 1989.
- [32] G. Zhao and P. C. M. Planken et al. *Zur Veröffentlichung eingereicht bei ...*
- [33] H. J. Bakker, G. C. Cho, H. Kurz, Q. Wu, and X.-C. Zhang. Distortion of terahertz pulses in electro-optic sampling. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 15(6):1795–1801, June 1998.
- [34] P. C. M. Planken, H.-K. Nienhuys, H. J. Bakker, and T. Wenkebach. Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(3):313, 2001.
- [35] G. Gallot and D. Grischkowsky. Electro-optic detection of terahertz radiation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(8):1204–1212, August 1999.
- [36] B. I. Greene, J. F. Federici, D. R. Dykaar, R. R. Jones, and P. H. Bucksbaum. Interferometric characterization of 160 fs far-infrared light pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 59(8):893–895, 1991.
- [37] B. I. Greene, P. N. Saeta, Douglas R. Dykaar, S. Schmitt-Rink, and Shun Lien Chuang. Far-Infrared Light Generation at Semiconductor Surfaces and Its Spectroscopic Applications. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(10):2302–2312, October 1992.
- [38] P. K. Benicewicz, J. P. Roerts, and A. J. Taylor. Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased photoconductors. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(12):2533–2546, December 1994.
- [39] E. Budiarto, N-W. Pu, S. Jeong, and J. Bokor. Near-field propagation of terahertz pulses from a large-aperture antenna. *Optics Letters*, 1998(3):213–215, 1998.
- [40] J. T. Darrow, X.-C. Zhang, and D. H. Auston. Power scaling of large-aperture photoconducting antennas. *Appl. Phys. Lett.*, 58(1):25, 1991.
- [41] Justin T. Darrow, Xi-Cheng Zhang, and David H. Auston. Saturation Properties of Large-Aperture Photoconducting Antennas. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(6):1607–1616, June 1992.
- [42] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. R. Keiding. Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(11):2424, 1996.
- [43] A. Gürtler, C. Winnewisser, H. Helm, and P. U. Jepsen. Terahertz pulse propagation in the near field and the far field. *J. Opt. Soc. Am. A*, 17(1):74–83, 2000.
- [44] P. K. Benicewicz and A. J. Taylor. Scaling of terahertz radiation from large-aperture biased InP photoconductors. *Optics Letters*, 18(16):1332–1334, 1993.
- [45] D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, and D. R. Dykaar. Coherent generation of far-infrared radiation from InP. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(3):486–491, 1994.
- [46] T. J. Carrig, G. Rodriguez, and T. S. Clement. Generation of terahertz radiation using electro-optic crystal mosaics. *Appl. Phys. Lett.*, 66(1):10–12, 1995.

- [47] T. J. Carrig, G. Rodriguez, T. S. Clement, and A. J. Taylor. Scaling of terahertz radiation via optical rectification in electro-optic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 66(2):121–123, 1995.
- [48] Kai Victor, Hartmut G. Roskos, and Christian Waschke. Efficiency of submillimeter-wave generation and amplification by coherent wave-packet oscillations in semiconductor structures. *Journal of the Optical Society of America B*, 11(2):2470, December 1994.
- [49] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, and A. Leitenstorfer. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz. *Appl. Phys. Letters*, 76(22):3191–3193, May 2000.
- [50] P. Y. Han and X.-C. Zhang. Coherent, broadband midinfrared terahertz beam sensors. *Appl. Phys. Lett.*, 73(21):3049–3051, 1998.
- [51] Sang-Gyu Park, M. R. Melloch, and A. M. Weiner. Comparison of terahertz waveforms measured by electro-optic and photoconductive sampling. *Appl. Phys. Lett.*, 73(22):3184–3186, November 1998.
- [52] B. B. Hu, X.-C. Zhang, and D. H. Auston. Free-space radiation from electro-optic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 56(6):506–508, 1990.
- [53] Q. Wu and X.-C. Zhang. Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses. *Appl. Phys. Lett.*, 71(10):1285–1286, 1997.
- [54] G. M. Wysin, D. L. Smith, and A. Redondo. Picosecond response of photoexcited GaAs in a uniform electric field by Monte Carlo dynamics. *Phys. Rev. B*, 38(17):12514–12524, 1988.
- [55] B. B. Hu, E. A. de Souza, W. H. Knox, J. E. Cunningham, M. C. Nuss, A. V. Kuznetsov, and S. L. Chuang. Identifying the Distinct Phases of Carrier Transport in Semiconductors with 10 fs Resolution. *Phys. Rev. Lett.*, 74(74):1689–1692, 1995.
- [56] A. Leitenstorfer, S. Hunsche, J. Shah, M. C. Nuss, and W. H. Knox. Femtosecond Charge Transport in Polar Semiconductors. *Physical Review Letters*, 82(25):5140–5143, June 1999.
- [57] D. Grischkowsky. Nonlinear generation of sub-psec pulses of THz electromagnetic radiation by optoelectronics - applications to time-domain spectroscopy. *Frontiers in nonlinear optics*, The Sergej Akhmanov Memorial Volume:196–227, 1993.
- [58] M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer. Transient photoconductivity in GaAs as measured by time-resolved terahertz spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 62(23):15764–15777, 2000.
- [59] M. C. Beard, G. M. Turner, and C. A. Schmuttenmaer. Subpicosecond carrier dynamics in low-temperature grown GaAs as measured by time-resolved terahertz spectroscopy. *J. Appl. Phys.*, 90(12):5915, 2001.
- [60] W. Nolting. *Elektrodynamik*, volume 3 of *Grundkurs: Theoretische Physik*. Verlag Zimmermann-Neufang, 1993.
- [61] M. Li, F.G. Sun, G. A. Wagoner, M. Alexander, and X.-C. Zhang. Measurement and analysis of terahertz radiation from bulk semiconductors. *Appl. Phys. Lett.*, 67(1):25–27, 1995.

- [62] B. B. Hu, J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and P. R. Smith. Optically steerable photoconducting antennas. *Appl. Phys. Lett.*, 56(10):886–888, March 1990.
- [63] A. J. Taylor, G. Rodrigez, and D. Some. Ultrafast field dynamics in large-aperture photoconductors. *Opt. Lett.*, 22(10):715–717, 1997.
- [64] G. Rodriguez and A. J. Taylor. Screening of the bias field in terahertz generation from photoconductors. *Opt. Lett.*, 21(14):1046–1048, 1996.
- [65] D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, and D. R. Dykaar. Generation of high-power sub-single-cycle 500-fs electromagnetic pulses. *Opt. Lett.*, 18(4):290–292, 1993.
- [66] N. Hasegawa, M. Thomson, T. Löffler, and H. G. Roskos. Carrier screening in large-area GaAs THz antennas. *to be submitted to J. Appl. Phys.*
- [67] M.D.Perry, O.L.Landen, A. Szöke, and E.M. Campbell. Multiphoton ionization of noble gases by an intense 10^{14} -W/cm² dye laser. *Phys. Rev. E*, 37(3):747–760, 1988.
- [68] M.D.Perry, A. Szoke, O.L.Landen, A. Szöke, and E.M. Campbell. Nonresonant Multiphoton Ionization of Noble Gases: Theory and Experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 60(13):1270–1273, 1988.
- [69] S.L. Chin, C. Rolland, P.B. Corkum, and P. Kelly. Multiphoton Ionization of Xe and Kr with Intense 0.62- μ m Femtosecond Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 61(2):153–156, 1988.
- [70] S. Augst, D. Strickland, D.D. Meyerhofer, S.L. Chin, and J.H. Eberly. Tunneling Ionization of Noble Gases in a High-Intensity Laser Field. *Phys. Rev. Lett.*, 63(20):2212–2215, 1989.
- [71] K.G.H. Baldwin and B.W. Boreham. Investigation of tunneling processes in laser-induced ionization of argon. *J. Appl. Phys.*, 52(4):2627–2633, 1981.
- [72] G. Gibson, T.S. Luk, and C. K. Rhodes. Tunneling ionization in the multiphoton regime. *Phys. Rev. A*, 41(9):5049–5052, 1990.
- [73] L. V. Keldysh. *Sov. Phys. JETP*, 20:1307, 1965.
- [74] M.J. DeWitt and R.J. Levis. Calculating the Keldysh adiabaticity parameter for atomic and diatomic and polyatomic molecules. *J. Chem. Phys.*, 108(18):7739–7742, 1998.
- [75] The National Institute of Standards and Technology (NIST). <http://webbook.nist.gov>.
- [76] T. W. B. Kibble. Mutual Refraction of Electrons and Photons. *Physical Review*, 150(4):1060–1069, October 1966.
- [77] M. H. Mittleman. Kinematics of multiphoton ionization in a steady laser beam. *Phys. Rev. A*, 29(4):2245–2247, 1984.
- [78] P. Kruit, J. Kimman, H.G. Muller, and M.J. van der Miel. Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064,532 and 355 nm. *Phys. Rev. A*, 28(1):248–255, 1983.
- [79] P.B. Corkum, N.H. Burnett, and F. Brunel. Above-Threshold Ionization in the Long-Wavelength Limit. *Phys. Rev. Lett.*, 62(11):1259–1262, 1989.

- [80] R.R. Freeman, P.H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M.E. Geusic. Above-Threshold Ionization with Subpicosecond Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 59(10):1092–1095, 1987.
- [81] T. Auguste, P. Monot, L.A. Lompré, G. Mainfray, and C. Manus. Multiply charged ions produced in noble gases by a 1 ps laser pulse at $\lambda = 1053$ nm. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 25:4181–4194, 1992.
- [82] J.S. Cohen. Reexamination of over-the-barrier and tunneling ionization of the hydrogen atom in an intense field. *Phys. Rev. A*, 64:043412–1 – 043412–4, 2001.
- [83] D. Bauer and P. Mulser. Exact field ionization rates in the barrier-suppression regime from numerical time-dependent Schrödinger-equation calculations. *Phys. Rev. A*, 59(1):569–577, 1999.
- [84] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec. Ionization Above the Coulomb Barrier. *Phys. Rev. Lett.*, 83(4):706–709, 1999.
- [85] S. I. THmelis, T. Mercouris, and C. A. Nicolaidis. Quantum-mechanical semiclassical calculations of dc-field-induced tunneling rates for helium for field strength in the range 0.067–1.0 a.u. *Phys. Rev. E*, 61:024101–1 – 024101–4, 1999.
- [86] V.P. Krainov. Ionization rates and energy and angular distribution at the barrier-suppression ionization of complex atoms and atomic ions. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(2):425, 1997.
- [87] A. Scrinzi. Ionization of multielectron atoms by strong static electric fields. *Phys. Rev. A*, 61:041402–1 – 041402–4, 2000.
- [88] Sanborn C. Brown. *Basic Data of Plasma Physics*, volume Chapter 8. AIP Press and New York, 1993.
- [89] M. A. Biondi and S. C. Brown. Measurement of Electron-Ion Rekombination. *Phys. Rev.*, 76(11):1697–1700, 1949.
- [90] W. L. Morgan. Molecular-dynamics simulation of electron-ion recombination in a nonequilibrium and weakly ionized plasma. *Phys. Rev. E*, 30(2):979–985, 1984.
- [91] J. Stevefelt, J. Boulmer, and J. F. Delpech. *Phys. Rev. A*, 12:1246, 1975.
- [92] W. J. Blyth, S. G. Preston, A. A. Offenberger, M. H. Key, J. S. Wark, Z. Najmudin, A. Modena, A. Djaoui, and A. E. Dangor. Plasma Temperature in Optical Field Ionization of Gases by Ultrashort Pulses of Ultraviolet Radiation. *Phys. Rev. Lett.*, 74(4):554–557, 1995.
- [93] S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chin. Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8(4):858–867, April 1991.
- [94] P. Sprangle, E. Esarey, and J. Krall. Self-guiding and stability of intense optical beams in gases undergoing ionization. *Phys. Rev. E*, 54(4):4211–4232, 1996.
- [95] E.T.J. Nibbering, G. Grillon, M.A. Franco, B.S. Prade, and A. Mysyrowicz. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air and N_2 and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(3):650–660, 1997.

- [96] V. Mizrahi and D.P.Shelton. Dispersion of Nonlinear Susceptibilities of Ar,N₂ and O₂ Measured and Compared. *Phys. Rev. Lett.*, 55(7):696–699, 1985.
- [97] P.L. Kelly. Self-Focusing of Optical Beams. *Phys. Rev. Lett.*, 15(26):1005–1008, 1965.
- [98] D. P. Shelton. Nonlinear-optical susceptibilities of gases measured at 1064 and 1319 nm. *Phys. Rev. A*, 42(5):2578–2592, 1990.
- [99] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Towners. Self-Trapping of Optical Beams. *Phys. Rev. Lett.*, 13(15):479–482, 1964.
- [100] C.-S. Wang. Propagation of an Intense Light Beam in a Nonlinear Medium. *Phys. Rev.*, 173(3):908–917, 1968.
- [101] G. G. Luther, J. V. Moloney, A. C. Newell, and E. M. Wright. Self-focusing threshold in normally dispersive media. *Opt. Lett.*, 19(12):862–864, 1994.
- [102] S. Tzortzakis, L. Berge, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz. Breakup and Fusion of Self-Guided Femtosecond Light Pulses in Air. *Phys. Rev. Lett.*, 86(24):5470–5473, 2001.
- [103] S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, A. Mysyrowicz, S. Hüller, and P. Mora. Femtosecond laser-guided electric discharge in air. *Phys. Rev. E*, 64:057401–1 – 057401–4, 2001.
- [104] M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney. Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Opt. Lett.*, 23(5):382–384, 1998.
- [105] M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney. Femtosecond pulse propagation in argon: A pressure dependence study. *Phys. Rev. E*, 58(4):4903–4910, 1998.
- [106] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, and E. M. Wright. Optically Turbulent Femtosecond Light Guide in Air. *Phys. Rev. Lett.*, 83(15):2938–2941, 1999.
- [107] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air. *Opt. Lett.*, 20(1):73–75, 1995.
- [108] A. Brodeur, C. Y. Chien, F. A. Ilkov, and S. L. Chin. Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air. *Opt. Lett.*, 22(5):304–306, 1997.
- [109] J. E. Rothenberg. Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media. *Opt. Lett.*, 17(8):583–585, 1992.
- [110] Ch. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. R. Oldenburg Verlag München Wien, 12. auflage edition, 1999.
- [111] R. Rankin, C. E. Capjack, N. H. Burnett, and P. B. Corkum. Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse propagation in plasma waveguides. *Opt. Lett.*, 16(11):835–837, 1991.
- [112] W. P. Leemans, C. E. Clayton, W. B. Mori, K. A. Marsh, P. K. Kaw, A. Dyson, C. Joshi, and J. M. Wallace. Experiments and simulations of tunnel-ionized plasmas. *Phys. Rev. A*, 46(2):1091–1105, 1992.

- [113] A. B. Borisov, A. V. Borovskiy, V. V. Korobki, A. M. Porkhorov, O. B. Shiryaev, X. M. Shi, A. McPherson, J. C. Solem, and C. K. Rhodes. Observation of Relativistic and Charge-Displacement Self-Channeling of Intense Subpicosecond Ultraviolet (248 nm) Radiation in Plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 68(15):2309–2312, 1992.
- [114] M. Geissler, G. Tempea, A. Scrinzi, M. Schnürer, F. Krausz, and T. Brabec. Light Propagation in Field-Ionizing Media: Extreme Nonlinear Optics. *Phys. Rev. Lett.*, 83(15):2930–2933, 1999.
- [115] P. Sprangle, E. Esarey, and A. Ting. Nonlinear Theory of Intense Laser-Plasma Interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 64(17):2011–2014, 1990.
- [116] A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J.-F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo, and A. Mysyrowicz. Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases. *Eur. Phys. J. D.*, 6:383–396, 1999.
- [117] A. Pukhov and J. Meyer ter Vehn. Relativistic Magnetic Self-Channeling of Light in Near-Critical Plasma: Three-Dimensional Particle-in-Cell Simulations. *Phys. Rev. Lett.*, 76(21):3975–3978, 1996.
- [118] Prof. Herzinger. *Script zur Vorlesung "Lasertechnik,,*. Fachschaft Maschinenbau der RWTH Aachen.
- [119] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, and R. W. Falcone. *Phys. Rev. Lett.*, 71:2725, 1993.
- [120] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, and R. W. Falcone. Short-Puls terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas. *Physical Review E*, 49(1):671–677, July 1994.
- [121] Harold Hamster. *Generation of Sub-Picosecond Terahertz Radiation by Laser-Produced Plasmas*. PhD thesis, University of California at Berkeley, University Microfilms and Inc. 300 North Zeeb Road and Ann Arbor MI 48106-1346, 1993.
- [122] F. Paschen. *Wied. Ann.*, 37:69, 1889.
- [123] A. G. Lyapin. *Sov. Phys. Tech. Phys.*, 21:745, 1976.
- [124] D. J. Cook, J.-X. Chen, and R. M. Hochstrasser. An intense broadband terahertz source based on a novel four wave rectification process. *Ultrafast Phenomena XII, Springer Series in Chemical Physics, Springer Verlag Berlin*, 66:197–199, 2000.
- [125] Edward D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids*.
- [126] Persönliche Mitteilung von Mark Thomson.
- [127] M. S. Malcuit, R. W. Bloyd, W. V. Davis, and K. Razewski. Anomalies in optical harmonic generation using high-intensity laser radiation. *Phys. Rev. A*, 41(7):3822–3825, 1990.
- [128] J. F. Ward and G. H. C. New. Optical Third Harmonic Generation in Gases by a Focused Laser Beam. *Phys. Rev.*, 185(1):57–72, 1969.
- [129] P. B. Corkum. Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13):1994–1997, 1993.

- [130] M. Bellini, C. Corsi, and M. C. Gambino. Neutral depetion and beam defocussing in harmonic generation from strongly ionized media. *Phys. Rev. A*, 64:023411–1..10, 2001.
- [131] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49(3):2117–2132, 1994.
- [132] H. R. Lange, A. Chiron, J.-F. Ripoché, A. Mysyrowicz, P. Breger, and P. Agostini. High-Order Harmonic Generation and Quasiphase Matching in Xenon Using Self-Guided Femtosecond Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 81:1611–1613, 1998.
- [133] G. Marcus, A. Ziegler, and Z. Henis. Third-harmonic generation at atomospheric pressure in methane by use of intense femtosecond pulses in the tight-focusing limit. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(5):792–800, 1999.
- [134] J. Peatross, S. Backus, J. Zhou, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Spectral-spatial measurement of fundamental and third-harmonic light of intense 25-fs laser pulses focused in a gas cell. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15(1):186–192, 1998.
- [135] F. Brunel. Harmonic generation due to plasma effects in a gas andergoing multiphoton ionization in the high-intensity limit. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7(4):521–526, 1990.
- [136] C. W. Siders, N. C. Turner III, M. C. Downer, A. Babine, A. Stepanov, and A. M. Sergeev. Blue-shifted third-harmonic generation and correlated self-guiding during ultrafast barrier suppression ionization of subatmospheric density noble gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(2):330–335, 1996.
- [137] C. W. Siders, G. Rodriguez, J. L. W. Siders, F. G. Omenetto, and A. J. Taylor. Measurement of Ultrafast Ionization Dynamics of Gases by Multipulse Interferometric Frequency-Resolved Optical Gating. *Phys. Rev. Lett.*, 87(26):263002–1..4, 2001.
- [138] G. Ferrante, S. A. Uryupin, M. Zarcone, and P. I. Porshnev. Harmonic generation in a plasma with laser-heated electron velocity distribution. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(7):1716–1722, 1997.
- [139] H. Haberland, M. Bonitz, and D. Kremp. Harmonic generation in electron-ion collisions in a short laser pulse. *64*, *Phys. Rev. E*:026405–1..5, 2001.
- [140] G. Ferrante, M. Zarcone, and S. A. Uryupin. Harmonic generation and wave mixing in a plasma in the presence of two linearly polarized laser fields. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(8):1383–1389, 2000.
- [141] S.-Y. Chen, A. Maksimchuk, E. Esarey, and D. Umstadter. Oservation of Phase-Matched Harmonic Genaration. *Phys. Rev. Lett.*, 84(24):5528–5531, 2000.
- [142] J. M. Rax and N. J. Fisch. Third-Harmonic generation with Ultrahigh-Intensity Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 69(5):772–775, 1992.
- [143] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, and C. Fattinger. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7(10):2006–2015, 1990.

- [144] H. P. Wagner, S. Wittmann, H. Schmitzer, and H. Stanzl. Phase matched second harmonic generation using thin film ZnTe optical waveguides. *J. Appl. Phys.*, 77(8):3637–3640, 1995.
- [145] X. Landolt-Börnstein. Semiconductors and Physics of II-VI and I-VII Compounds. *Springer and Berlin*, III(117b), 1984.
- [146] A. Hernandez-Cabrera, C. Tejedor, and F. Meseguer. Linear electro-optic effects in zinc blende semiconductors. *J. Appl. Phys.*, 58(12):4666–4669, 1985.

Lebenslauf

Torsten Löffler, geboren am 16. Mai 1970 in Winterberg

Familienstand: verheiratet, 2 Kinder

Schulbildung:

1976 - 1980 St. Josefs Grundschule in Siedlinghausen

1980 - 1989 Städtisches Gymnasium Winterberg

31.05.1989 Abitur (Note: 2.4)

Wehrdienst:

1.6.1989 - 31.08.1989 Ausbildung zum Funkmechaniker

1.9.1989 - 31.08.1990 Einsatz als Funkmechaniker in einer Elektronikwerkstatt

Studium:

ab 15.10.1990 Studium im Studiengang Physik (Diplom) an der RWTH-Aachen

28.11.1992 Vordiplom (Note: gut)

30.09.1993 - 5.7.1994 Auslandsstudium an der Universität Liverpool, England

13.11.1994 - 13.11.1995 Diplomarbeit am Institut für Halbleitertechnik II, der RWTH Aachen, Fakultät der Elektrotechnik.
Thema: „Synchronisation eines Femtosekundenlasersystems mit frei oszillierenden Gigahertzoszillatoren“

14.02.96 Diplom (Note: sehr gut)

Fort- und Weiterbildungen:

11.12.1989 1. Ausbildungsstufe DSV - E1 Lichtbogenhandschweißen

20.02.1990 Vorlesung „Grundlagen der technischen Informatik“ an der Fernuniversität Hagen

21.06.1990 IHK Ausbildung zum PC - Datenverarbeiter

15/16.10.1996 Seminar: Strategic Selling

03/04.03.1997 Workshop: Präsentationstechnik

29/30.10.1998 Seminar: Vertragsrecht

Berufserfahrung:

01.06.1996 - 31.12.1998 Beschäftigung bei der AVL-Deutschland GmbH mit dem Aufgabengebiet: „Technische Vertriebsunterstützung für Verbrauchs- und Optische Meßtechnik“

Promotionstudium

seit 01.03.1999 Wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Arbeitsgruppe Ultrakurzzeitspektroskopie von Prof. H.G. Roskos, eigene Arbeiten zur THz-Erzeugung in laser-generierten Plasmen und zur THz-Bildgebung mit opto-elektronischen Puls- und Dauerstrichsystemen.

Danksagung

Bedanken möchte ich mich bei ...

- ... Prof. Hartmut G. Roskos für die Betreuung der Arbeit. Mein Doktor-Vater war immer ansprechbar, auch dann, wenn er eigentlich keine Zeit hatte. Sein Engagement und Ideenreichtum bei der Lösung wissenschaftlicher Probleme ist beispielhaft.
- ... Prof. Reinhard Dörner für die Übernahme der Zweit-Begutachtung dieser Arbeit.
- ... Dipl.-Phys. Frank Jacob und Dr. Susanne Eden, welche eine Vielzahl von Messungen für mich durchgeführt haben.
- ... M.Sc. Mark Thomson, Dr. Karsten Siebert, Dr. Susanne Eden und Dipl.-Phys. Markus Kress für die vielen fruchtbaren fachlichen Diskussionen.
- ... Prof. Peter Mulser, TU Darmstadt für hilfreiche Diskussionen zur Ladungsträgerabschirmung in Plasmen.
- ... Der GSI (Gesellschaft für Schwerionen Forschung) in Darmstadt für die finanzielle Förderung der Untersuchung von THz-Erzeugung in laser-generierten Plasmen an der Universität Frankfurt am Main.
- ... Dipl.-Phys. Markus Kreß für die Weiterführung der Arbeit an den laser-erzeugten Plasmen .
- ... Frau Marion Jordan und Frau Hannah Döring für die Hilfe bei bzw. die Übernahme von den lästigen Verwaltungsarbeiten.
- ... Herrn Dipl.-Phys. Kai Rönning für seine Hilfe im Umgang mit den neuartigen elektronischen Rechenschiebern.
- ... Herrn Hassenpflug und seinem Team für die Unterstützung durch eine hervorragende Mechanikwerkstatt.
- ... Der Elektronikwerkstatt des Physikalischen Instituts für ein wirklich erstaunliches Hochspannungs-Pulsnetzteil.
- ... Meiner Schwiegermutter und meinem Vater für das Korrekturlesen der für Nicht-Physiker doch etwas trockenen Materie.
- ... Dr. Karsten Siebert, Dr. Tobias Bauer und allen derzeitigen und ehemaligen Kollegen in der Arbeitsgruppe Roskos für die soziale Betreuung, das gute Arbeitsklima, die Hilfsbereitschaft sowie für reichlich Eis, Kaffee und Kuchen.
- ... meiner Familie, die mir während der Anfertigung der Arbeit immer den Rücken frei gehalten hat.

