

Messung von Zeit-Frequenzverteilungen bei Femtosekunden-Laserpulsen

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Diplomphysiker Karsten Günter Michelmann
geboren am 29. Oktober 1967 in Verl/Westfalen

Gutachter

1.
2.
3.

Tag der letzten Rigorosumsprüfung :

Tag der öffentlichen Verteidigung :

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Erzeugung von fs Laserpulsen	3
2.1	Mathematische Darstellung von fs Laserpulsen	3
2.2	Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie	6
2.2.1	Lineare Propagation in Dielektrika und Plasmen	7
2.2.2	Pulskompressor	10
2.2.3	Nichtlineare Propagation im Femtosekunden-Lasersystem	11
2.3	Femtosekunden-Lasersystem	14
3	Zeitliche Charakterisierung von fs Laserpulsen	17
3.1	Übersicht	17
3.2	Intensitätskorrelation im Sichtbaren	20
3.3	Frequency Resolved Optical Gating (FROG) im Ultravioletten	22
3.3.1	Einführung in die FROG Methode	22
3.3.2	Experimenteller Aufbau des PG FROG	24
3.3.3	Signalentstehung im PG FROG	26
3.3.4	Signalrekonstruktion im PG FROG	33
3.3.5	Ergebnisse	35
4	Zeit-Frequenzverteilungen	40
4.1	Darstellung der Zeit-Frequenzverteilungen nach COHEN	40
4.2	Pagefunktion $P(\tau, \omega)$	41
4.3	Signalrekonstruktion aus der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$	45
5	Der optisch induzierte Plasmaschalter	47
5.1	Grundlagen der Plasmaphysik	48
5.2	Optische Feldionisation (OFI) und Elektronenstoßionisation	52
5.3	Das theoretische Modell im Überblick	55
5.4	Ergebnisse der Modellsimulation	61

5.5	Plasmaschalter mit Polyimidsubstrat	69
5.5.1	Experimenteller Aufbau	69
5.5.2	Dynamik und Schaltzeit des Plasmaschalters	70
5.6	Plasmaschalter mit Quarzsubstrat	73
5.6.1	Experimenteller Aufbau	73
5.6.2	Dynamik und Schaltzeit des Plasmaschalters	75
6	Messung der Pagefunktion von fs Laserpulsen	78
6.1	Messergebnisse im ultravioletten Spektralbereich	78
6.2	Einfluss der zeitlichen Phasenmodulation des Plasmaschalters auf die Messung der Pagefunktion	84
6.3	Messung der Pagefunktion von fs Laserpulsen im XUV Spektralbereich	86
7	Zusammenfassung	93
A	Eigenschaften des Spektrogramms	95
A.1	Herleitung des Spektrogramms aus den Zeit-Frequenzverteilungen nach Cohen	95
A.2	Herleitung der Momente des Spektrogramms	97
B	Eigenschaften der Pagefunktion	100
B.1	Herleitung der Pagefunktion aus den Zeit-Frequenzverteilungen nach Cohen	100
B.2	Herleitung der Momente der Pagefunktion	102
	Literaturverzeichnis	104

Kapitel 1

Einleitung

Die Technologie zur Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen hat in der letzten Dekade enorme Fortschritte gemacht. In vielen Laboren werden heutzutage Femtosekunden-Laserpulse (fs Laserpulse) eingesetzt [1]. Die Laserwellenlängen reichen vom nahen infraroten (NIR) bis zum ultravioletten (UV) und extremen ultravioletten (XUV) Spektralbereich und ermöglichen Experimente in sehr unterschiedlichen Gebieten der Physik. Beispiele dafür sind die Ultrakurzzeitspektroskopie [2], die Kontrolle von chemischen Reaktionen [3], die Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie bei hohen Intensitäten [4, 5] und die Erzeugung kurzweelliger Strahlung [6, 7].

Das Ziel dieser Arbeit ist die zeitliche Diagnostik von fs Laserpulsen durch die Messung von Zeit-Frequenzverteilungen. Dabei wird dem elektrischen Feld des Laserpulses $E(t)$, das durch die Intensität $I(t)$ und die Phase $\Phi(t)$ bestimmt wird, eine von der Zeit τ und der Frequenz ω abhängige Funktion zugewiesen. Die bekannte Messung des Spektrogramms $F(\tau, \omega)$ mit der FROG¹ Methode [8] dient dabei als Referenz für die Messung der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ (siehe Abbildung 1.1):

$$P(\tau, \omega) = \frac{\partial}{\partial \tau} \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\tau} E(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2$$

Die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen wurde bisher noch nicht gemessen. Die Vorteile der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ gegenüber dem Spektrogramm $F(\tau, \omega)$ bestehen darin, dass das elektrische Feld $E(t)$ ohne einen iterativen Algorithmus direkt aus dem gemessenen Signal rekonstruiert werden kann und sich das Messprinzip vom extremen ultravioletten bis in den nahen infraroten Spektralbereich ausdehnen lässt.

Für die Messung der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ ist entsprechend ihrer Definition neben einem Spektrographen ein optischer Schalter notwendig, der einen stufenförmigen und zeitlich verzögerbaren Transmissionsverlauf $T(t)$ hat (siehe Abbildung 1.2). Die Schaltzeit τ_T des optischen Schalters muss erheblich kürzer sein als die Zeit, in der sich die Intensität $I(t)$

¹Frequency Resolved Optical Gating

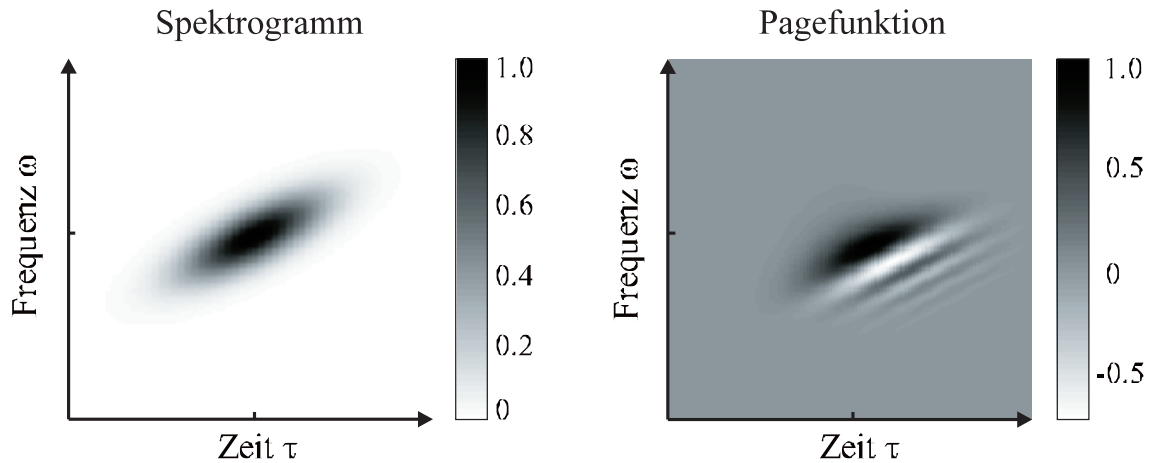


Abbildung 1.1: Spektrogramm $F(\tau, \omega)$ und Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ eines beispielhaften Laserpulses mit gaußförmigem Intensitätsverlauf und linear ansteigender Frequenzmodulation

und die Phase $\Phi(t)$ des fs Laserpulses ändern. Als optischer Schalter wird in dieser Arbeit die ultraschnelle Ionisation von dielektrischen Festkörperoberflächen verwendet, die durch einen intensiven und verzögerbaren fs Pumpuls induziert wird. Durch diese optisch induzierte Ionisation geht das transparente Dielektrikum in ein Plasma über, dessen optische Eigenschaften die Transmission für den Probepuls verringern. Im Vordergrund stehen also nicht die Plasmaparameter [9, 10, 11] oder Zerstörschwellen [12], sondern die ultraschnelle Änderung der Transmission $T(t)$. Ein derartiger optisch induzierter Plasmaschalter ist bisher nicht untersucht worden.

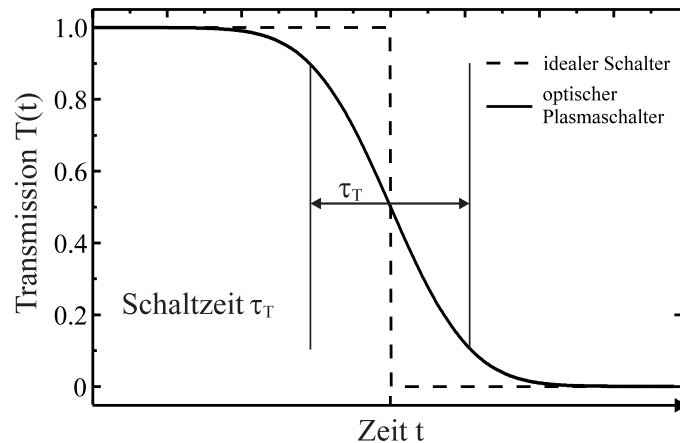


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der Transmission $T(t)$ des optisch induzierten Plasmaschalters

Kapitel 2

Erzeugung von fs Laserpulsen

Das Ziel dieses Kapitels ist es, die für die vorliegende Arbeit relevanten Grundlagen über die Erzeugung und Propagation von fs Laserpulsen zu vermitteln. Im Vordergrund steht dabei nicht die mathematische Herleitung der angegebenen Gleichungen, sondern ihre Darstellung im Zusammenhang.

2.1 Mathematische Darstellung von fs Laserpulsen

Die Ausbreitung elektromagnetischer Strahlung im Vakuum ohne freie Quellen (keine Ladungen und Ströme) wird durch die Maxwell'schen Gleichungen beschrieben [13]:

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{E} &= 0 & \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 & \vec{\nabla} \times \vec{B} &= \epsilon_o \mu_o \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}\end{aligned}\tag{2.1}$$

Hierbei sind $\vec{E}(\vec{r}, t)$ die elektrische Feldstärke, $\vec{B}(\vec{r}, t)$ die magnetische Induktion, ϵ_o die elektrische Feldkonstante und μ_o die magnetische Feldkonstante. Für die Vakuumlichtgeschwindigkeit c_o gilt: $c_o = 1/\sqrt{\epsilon_o \mu_o}$. Aus den Maxwell'schen Gleichungen 2.1 kann eine Wellengleichung für das elektrische Feld \vec{E} hergeleitet werden [14]:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c_o^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0\tag{2.2}$$

Eine spezielle Lösung sind die linear polarisierten ebenen Wellen, die sich mit der Lichtgeschwindigkeit entlang der z -Achse ausbreiten:

$$E(z, t) = A \sin(kz - \omega t), \quad k = \frac{\omega}{c_o} = \frac{2\pi}{\lambda_o}\tag{2.3}$$

Hierbei sind ω die Kreisfrequenz, k die Wellenzahl und λ_o die Wellenlänge im Vakuum. Nach Eulers Theorem kann die Gleichung 2.3 auch als Summe von komplexen Exponential-

funktionen geschrieben werden. Das komplex Konjugierte (c.c.) einer komplexen Größe wird im Folgenden durch * gekennzeichnet.

$$E(z, t) = E_o \exp(i(\omega t - kz)) + c.c., \quad E_o = \frac{A}{2i} \quad (2.4)$$

Solange nur lineare Operationen ausgeführt werden, kann ohne den komplex konjugierten Anteil gerechnet werden. Das elektrische Feld $E(z, t)$ ist reell und lässt sich als Realteil aus der komplexen Lösung ableiten.

Nach der Theorie der Fouriertransformation [15] kann eine Funktion $f(t)$ als Überlagerung von harmonischen Funktionen mit unterschiedlichen Trägerfrequenzen dargestellt werden:

$$f(t) \equiv \mathcal{F}^{-1}[\tilde{f}(\omega)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{f}(\omega) \exp(i\omega t) \quad (2.5)$$

$$\tilde{f}(\omega) \equiv \mathcal{F}[f(t)] = \int_{-\infty}^{+\infty} dt f(t) \exp(-i\omega t) \quad (2.6)$$

Das Amplitudenspektrum $\tilde{f}(\omega)$ ist eine komplexwertige Funktion.

Die allgemeine linear polarisierte Lösung der Wellengleichung 2.2 mit Ausbreitung in z-Richtung ergibt sich aus der Überlagerung der harmonischen Grundlösungen 2.4:

$$E(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}(\omega) \exp(i(\omega t - kz)) \quad (2.7)$$

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}(\omega) \exp\left(-i\frac{z}{c_o}\omega\right) \Rightarrow E(z, t) = E\left(0, t - \frac{z}{c_o}\right) \quad (2.8)$$

$$\text{mit: } \tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(0, t) \exp(-i\omega t)$$

Das komplexe Amplitudenspektrum $\tilde{E}(\omega)$ ist die Fouriertransformierte \mathcal{F} des elektrischen Feldes am Ort $z=0$. Durch $\tilde{E}(\omega)$ werden die Amplitudenstärke und die Phasenlage der harmonischen Grundlösungen festgelegt. Die Gleichung 2.8 zeigt¹, dass sich das elektrische Feld $E(z, t)$ wie alle harmonischen Grundlösungen mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_o ausbreitet und somit formstabil bleibt.

Das elektrische Feld eines Laserpulses an einem festen Ort $z=0$ lässt sich im Zeitbereich wie folgt beschreiben:

$$E(t) \equiv E(0, t) = A(t) \exp(i\Phi(t)) \quad (2.9)$$

$$I(t) \sim |E(t)|^2 = A^2(t) \quad (2.10)$$

¹Verschiebungssatz der Fouriertransformation

Hierbei sind $A(t)$ der zeitliche Amplitudenverlauf, $I(t)$ der zeitliche Intensitätsverlauf und $\Phi(t)$ der zeitliche Phasenverlauf des Pulses. Diese Funktionen sind reellwertig, während für $E(t)$ die oben angesprochene komplexe Schreibweise verwendet wird. Die Bildung des Betragsquadrates von $E(t)$ entspricht einer zeitlichen Mittelung [14].

Die Phasenmodulation der Laserpulse in dieser Arbeit ist hinreichend klein, um die Phase um $t=0$ in einer Taylorreihe zu entwickeln. Die zeitliche Ableitung der Phase $\Phi(t)$ wird als Momentanfrequenz $\omega(t)$ bezeichnet und gibt die zeitliche Modulation der Frequenz an:

$$\Phi(t) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{k!} \Phi^{(k)}(0) t^k = \Phi(0) + \omega_o t + \frac{1}{2} b t^2 + \frac{1}{6} c t^3 + \dots \quad (2.11)$$

$$\omega(t) \equiv \frac{d\Phi(t)}{dt} = \omega_o + b t + \frac{1}{2} c t^2 + \dots \quad \omega_o : \text{Mittelfrequenz} \quad (2.12)$$

Aus Gleichung 2.12 wird deutlich, dass der Koeffizient b entsprechend dem Vorzeichen einen linearen Anstieg oder Abfall der Momentanfrequenz beschreibt. Die Terme $b t$ und $\frac{1}{2} c t^2$ in der Gleichung 2.12 werden als lineare bzw. quadratische Frequenzmodulation bezeichnet.

Das elektrische Feld eines Laserpulses an einem festen Ort lässt sich äquivalent durch die Fouriertransformierte im Frequenzbereich beschreiben:

$$\tilde{E}(\omega) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \exp(-i\omega t) = A(\omega) \cdot \exp(i\Phi(\omega)) \quad (2.13)$$

$$I(\omega) \sim A^2(\omega) \quad (2.14)$$

In der Darstellung im Frequenzbereich sind $A(\omega)$ der spektrale Amplitudenverlauf, $\Phi(\omega)$ der spektrale Phasenverlauf sowie $I(\omega)$ das Spektrum des Laserpulses. Diese Funktionen sind reellwertig, während $\tilde{E}(\omega)$ auch für reellwertige Funktionen $E(t)$ komplexwertig sein kann. Die Amplitudenstärke der zu koppelnden harmonischen Grundlösungen 2.4 wird durch $A(\omega)$ und die zeitlich konstante Phasenlage durch $\Phi(\omega)$ festgelegt.

Die Pulsdauer τ_p und die spektrale Breite $\Delta\omega$ sind wichtige Parameter zur Beschreibung von fs Laserpulsen. Sie sind als Halbwertsbreiten des Intensitätsverlaufes $I(t)$ und des Spektrums $\tilde{I}(\omega)$ (**F**ull **W**idth at **H**alf **M**aximum, **FWHM**) definiert:

$$\tau_p = 2t_{1/2} \quad I(t_{1/2}) = \frac{1}{2} I(0) \quad (2.15)$$

$$\Delta\omega = 2\omega_{1/2} \quad I(\omega_o + \omega_{1/2}) = \frac{1}{2} I(\omega_o) \quad (2.16)$$

Die Pulsdauer τ_p und die spektrale Breite $\Delta\omega$ sind über die grundlegende Unschärfere-lation zwischen Zeit und Frequenz bzw. Energie miteinander verknüpft. Das Pulsdauer-Bandbreite-Produkt $\tau_p \Delta\omega$ kann einen bestimmten Minimalwert nicht unterschreiten. Der Minimalwert hängt von der Pulsform ab und wird nur von fs Laserpulsen erreicht, die

eine konstante spektrale Phase $\Phi(\omega)$ aufweisen und als Bandbreite begrenzt oder fourierlimitiert bezeichnet werden. Als wichtige Folge daraus ergibt sich, dass ein fs Laserpuls immer polychromatisch ist und für die Erzeugung von kürzeren Laserpulsen eine größere Frequenzbandbreite ("breiteres" Spektrum) notwendig ist.

2.2 Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie

Die Wechselwirkung von fs Laserpulsen mit Materie umfasst eine enorme Vielzahl von verschiedenen Effekten. Ein Überblick wird in den Referenzen [16] und [5] gegeben. Die Wechselwirkung und Ausbreitung von fs Laserpulsen mit bzw. in Materie wird allgemein durch die makroskopischen Maxwellgleichungen 2.17 und die Materialgleichungen 2.18 beschrieben [13]:

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= \rho & \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 & \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}\end{aligned}\quad (2.17)$$

Hierbei sind $\vec{D}(\vec{r}, t)$ die dielektrische Verschiebung, $\rho(\vec{r}, t)$ die freie Ladungsdichte, $\vec{B}(\vec{r}, t)$ die magnetische Induktion, $\vec{E}(\vec{r}, t)$ die elektrische Feldstärke, $\vec{H}(\vec{r}, t)$ die magnetische Feldstärke und $\vec{J}(\vec{r}, t)$ die freie Stromdichte. Die Feldgrößen \vec{D} und \vec{H} und die Stromdichte \vec{J} sind mit den Feldgrößen \vec{E} und \vec{B} durch allgemeine Materialgleichungen 2.18 verknüpft, die sowohl lineare als auch nichtlineare Funktionen sein können:

$$\begin{aligned}\vec{D} &= \epsilon_o \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_o \vec{E} + \vec{P}[\vec{E}, \vec{B}] \\ \vec{H} &= \frac{1}{\mu_o} \vec{B} - \vec{M} = \frac{1}{\mu_o} \vec{B} - \vec{M}[\vec{E}, \vec{B}] \\ \vec{J} &= \vec{J}[\vec{E}, \vec{B}] \quad \text{verallgemeinertes Ohmsches Gesetz [13]}\end{aligned}\quad (2.18)$$

Für die vorliegende Arbeit wird als Näherung von unmagnetischen Materialien ausgegangen, und die magnetischen Kräfte auf bewegte geladene Teilchen werden vernachlässigt:

$$\vec{M} = 0, \quad \vec{P} = \vec{P}[\vec{E}], \quad \vec{J} = \vec{J}[\vec{E}], \quad \vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \approx q\vec{E}\quad (2.19)$$

Hier sind \vec{F} die wirkende Kraft, \vec{v} die Geschwindigkeit und q die Ladung der Teilchen. Aus den Gleichungen 2.17, 2.18 und der Näherung 2.19 lässt sich eine Wellengleichung für das elektrische Feld \vec{E} herleiten:

$$\Delta \vec{E} - \epsilon_o \mu_o \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \vec{\nabla} \frac{\rho}{\epsilon_o} - \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \frac{\vec{P}[\vec{E}]}{\epsilon_o} \right) + \mu_o \frac{\partial^2 \vec{P}[\vec{E}]}{\partial t^2} + \mu_o \frac{\partial \vec{J}[\vec{E}]}{\partial t}\quad (2.20)$$

$$\Delta \vec{E} - \epsilon_o \mu_o \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_o \frac{\partial^2 \vec{P}[\vec{E}]}{\partial t^2} + \mu_o \frac{\partial \vec{J}[\vec{E}]}{\partial t}\quad (2.21)$$

Die Gleichung 2.21 gilt unter der Näherung, dass der Gradient $\vec{\nabla}\rho$ bzw. die freie Ladungsdichte ρ selber gleich Null gesetzt werden kann. Außerdem gilt für ebene Wellen, dass die Komponenten der Polarisation $\vec{P} = (P_x, P_y, P_z = 0)$ transversal zur Ausbreitungsrichtung sind und diese transversalen Anteile nur von der Ausbreitungsrichtung abhängen, womit der Term $(\vec{\nabla} \cdot \vec{P}[\vec{E}]/\epsilon_o)$ verschwindet.

Die Wellengleichung in Materie 2.21 hat im Vergleich zur Wellengleichung im Vakuum auf der rechten Seite der Gleichung Quellterme erhalten, die durch die Polarisation \vec{P} und die Stromdichte \vec{J} getrieben werden. Damit diese Wellengleichung gelöst werden kann, sind explizite funktionelle Zusammenhänge zwischen der Polarisation \vec{P} , der Stromdichte \vec{J} und der elektrische Feldstärke \vec{E} notwendig. Die für diese Arbeit relevanten Materialgleichungen werden in den beiden folgenden Abschnitten hergeleitet.

2.2.1 Lineare Propagation in Dielektrika und Plasmen

In diesem Abschnitt werden die linearen Materialgleichungen $\vec{P}[\vec{E}]$ für homogene und isotrope Dielektrika bzw. $\vec{J}[\vec{E}]$ für Plasmen hergeleitet. Dazu werden das klassische Oszillatormodell für gebundene Elektronen und das Drude-Modell für freie Elektronen verwendet [17, 18]. Diese Materialgleichungen und die Wellengleichung 2.21 beschreiben die lineare Propagation von Laserpulsen niedriger Intensität in homogenen und isotropen Dielektrika sowie in Plasmen.

Die Wellengleichung 2.21 vereinfacht sich für Dielektrika, da hier die Ladungsdichte ρ und die Stromdichte \vec{J} identisch verschwinden (keine freien Ladungen und Ströme):

$$\Delta \vec{E} - \epsilon_o \mu_o \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_o \frac{\partial^2 \vec{P}[\vec{E}]}{\partial t^2} \quad (2.22)$$

Das lineare Oszillatormodell beschreibt die gebundenen Elektronen mit einem gedämpften und durch das einfallende elektrische Feld $\vec{E}(\vec{r}, t)$ getriebenen harmonischen Oszillator:

$$\frac{d^2 x(t)}{dt^2} + \Gamma \frac{dx(t)}{dt} + \omega_o^2 x(t) = \frac{e}{m_e} E(t) \quad (2.23)$$

Dabei sind $x(t)$ die Schwingungsamplitude des Elektrons, e die Ladung, m_e die Masse, Γ die Dämpfungskonstante, ω_o die Resonanzfrequenz und $E(t)$ das elektrische Feld am Elektron. Für das mikroskopische Dipolmoment $p(t)$ gilt: $p(t) = ex(t)$. Bei harmonischer Anregung ergibt sich für die Differentialgleichung 2.23 folgende Lösung:

$$\tilde{p}(\omega) = \epsilon_o \tilde{\alpha}(\omega) \tilde{E}(\omega) \quad \text{mit: } \tilde{p}(\omega) = \mathcal{F}[p(t)] \quad \tilde{\alpha}(\omega) = \mathcal{F}[\alpha(t)] \quad (2.24)$$

Die makroskopische Polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ in homogenen und isotropen Dielektrika ergibt sich aus der atomaren Polarisierbarkeit $\tilde{\alpha}(\omega)$, der Dipoldichte N und der Dielektrizitätskonstante ϵ_o [17]:

$$\vec{P}(\vec{r}, \omega) = \epsilon_o \frac{N \tilde{\alpha}(\omega)}{1 - (N \tilde{\alpha}(\omega)/3)} \vec{E}(\vec{r}, \omega) \equiv \epsilon_o \tilde{\chi}(\omega) \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.25)$$

Die Funktion $\tilde{\chi}(\omega)$ ist die materialabhängige dielektrische Suszeptibilität. Unter der Voraussetzung homogener und isotroper Medien sind die Suszeptibilitäten skalare Größen ohne Ortsabhängigkeit.

Für die Plasmen wird angenommen, dass diese vollständig ionisiert, zeitlich stationär, homogen und quasineutral ($\rho = 0$) sind. Die Polarisation durch die gebundenen Elektronen der Ionen wird vernachlässigt. Mit diesen Annahmen lässt sich die Wellengleichung 2.21 wie folgt nähern:

$$\Delta \vec{E} - \epsilon_o \mu_o \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_o \frac{\partial \vec{J}[\vec{E}]}{\partial t} \quad (2.26)$$

Die Elektronen im Plasma werden im Drude Modell [18] durch äußere Felder wie freie geladene Teilchen beschleunigt und durch Stöße an den positiven unbeweglichen Ionen gebremst. Die Wechselwirkung der Elektronen untereinander wird im Modell vernachlässigt. Damit entspricht das Drude-Modell dem Oszillatormodell ohne rücktreibende Kraft:

$$\frac{dv(t)}{dt} + \nu_{ei} v(t) = \frac{e}{m_e} E(t) \quad (2.27)$$

Dabei sind $v(t)$ die Geschwindigkeit des Elektrons, e die Ladung, m_e die Masse, ν_{ei} die Dämpfungskonstante und $E(t)$ das elektrische Feld am mittleren Ort \vec{r}_o . Die Dämpfungskonstante entspricht der Elektronen-Ionen Stoßfrequenz [18]. Die lineare Bewegungsgleichung 2.27 hat im Frequenzbereich die folgende Lösung:

$$\tilde{v}(\omega) = \left(\frac{1}{\nu_{ei} + i\omega} \right) \frac{e}{m_e} \tilde{E}(\omega) \quad (2.28)$$

Die makroskopische Stromdichte $\vec{J}(\vec{r}_o, t)$ am Ort \vec{r}_o ergibt sich aus der Elektronendichte N_e und der Elektronengeschwindigkeit $v(t)$. Die Elektronendichte ist im stationären und homogenen Plasma sowohl zeitlich als auch räumlich konstant:

$$\vec{J}(\vec{r}_o, t) = N_e e v(t) \quad \Leftrightarrow \quad \vec{J}(\vec{r}_o, \omega) = N_e e \tilde{v}(\omega) \quad (2.29)$$

Aus den Gleichungen 2.28 und 2.29 folgt mit der Plasmafrequenz ω_p die frequenzabhängige elektrische Leitfähigkeit $\sigma(\omega)$ für beliebige Orte \vec{r} (Ohmsches Gesetz):

$$\vec{J}(\vec{r}, \omega) = N_e \frac{e^2}{m_e} \left(\frac{1}{\nu_{ei} + i\omega} \right) \tilde{E}(\vec{r}, \omega) = \frac{\epsilon_o \omega_p^2}{\nu_{ei} + i\omega} \tilde{E}(\vec{r}, \omega) \equiv \tilde{\sigma}(\omega) \tilde{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.30)$$

$$\omega_p \equiv \sqrt{N_e e^2 / m_e \epsilon_o} \quad (2.31)$$

Wird die Wellengleichung 2.21 bezüglich der Zeit fouriertransformiert und werden sowohl die Polarisation als auch die Stromdichte als treibende Terme berücksichtigt, so ergibt sich mit den linearen Materialgleichungen 2.25 und 2.30 folgende Gleichung:

$$\Delta \vec{E} + \epsilon_o \mu_o \omega^2 \left(1 + \tilde{\chi}(\omega) - i \frac{\tilde{\sigma}(\omega)}{\epsilon_o \omega} \right) \vec{E} = 0 \quad \text{mit : } \vec{E} = \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.32)$$

$$\tilde{n}(\omega) \equiv \sqrt{1 + \tilde{\chi}(\omega) - i \frac{\tilde{\sigma}(\omega)}{\epsilon_o \omega}} = \sqrt{1 + \frac{N_o \tilde{\alpha}(\omega)}{1 - N_o \tilde{\alpha}(\omega)/3} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{1}{1 - i \nu_{ei}/\omega}} \quad (2.33)$$

Dabei sind $\tilde{n}(\omega)$ der Brechungsindex, $\tilde{\chi}(\omega)$ die elektrische Suszeptibilität, $\tilde{\sigma}(\omega)$ die elektrische Leitfähigkeit, N_o die Neutralteilchendichte des Dielektrikums, $\tilde{\alpha}(\omega)$ die atomare Polarisierbarkeit, ω_p die Plasmafrequenz und ν_{ei} die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz.

Ein Vergleich mit der fouriertransformierten Wellengleichung im Vakuum zeigt, dass linear polarisierte ebene Wellen mit Ausbreitung in z-Richtung auch hier spezielle Lösungen sind:

$$E(z, t) = E_o \exp i(\omega t - k(\omega)z) \quad (2.34)$$

$$k(\omega) = \frac{\omega \tilde{n}(\omega)}{c_o}, \quad \tilde{n}(\omega) = \sqrt{1 + \tilde{\chi}(\omega) - i \frac{\tilde{\sigma}(\omega)}{\epsilon_o \omega}} \quad (2.35)$$

Im Gegensatz zu den Lösungen 2.4 ist hier die Wellenzahl k abhängig von der Frequenz ω . Aufgrund der geschwindigkeitsabhängigen Dämpfungsterme in Gleichungen 2.23 und 2.27 ist der Brechungsindex $\tilde{n}(\omega)$ in der gewählten komplexen Schreibweise eine komplexe Größe. Der Imaginärteil des Brechungsindex vermittelt die Absorption im Medium und der Realteil bestimmt die Phasengeschwindigkeit c_n der einzelnen Lösungen: $c_n = c_o / \text{Re}[\tilde{n}(\omega)]$.

Die allgemeine linear polarisierte Lösung der Wellengleichung (2.32) mit Ausbreitung in z-Richtung ergibt sich aus der Überlagerung der harmonischen Grundlösungen (2.34):

$$E(z, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}(\omega) \exp(i(k(\omega)z - \omega t)) \quad (2.36)$$

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}(\omega) \cdot \exp\left(-i \frac{\tilde{n}(\omega)\omega}{c_o} z\right) = \tilde{E}(\omega) \cdot \exp(-i\beta(\omega)z) \quad (2.37)$$

Das komplexe Amplitudenspektrum $\tilde{E}(z, \omega)$ am Ort z ergibt sich aus der Multiplikation von $\tilde{E}(\omega)$ mit der Systemfunktion $\text{Sys}(z, \omega) = \exp(-i\beta(\omega)z)$. Das komplexe Amplitudenspektrum $\tilde{E}(\omega)$ ist die Fouriertransformierte des elektrischen Feldes am Ort $z = 0$ und $\beta(\omega) = \tilde{n}(\omega)\omega/c_o$ die so genannte Modenpropagation. Die Taylorentwicklung von $\beta(\omega)$ um die Trägerfrequenz ω_o führt für die Systemfunktion $\text{Sys}(z, \omega)$ zu Gleichung 2.39:

$$\beta(\omega) = \beta_o + \beta_1(\omega - \omega_o) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega - \omega_o)^2 + \frac{1}{6}\beta_3(\omega - \omega_o)^3 + \dots \quad (2.38)$$

$$\text{mit: } \beta_m = \frac{\partial^m \beta}{\partial \omega^m} \Big|_{\omega_o} \quad m = 1, 2, 3 \dots \quad \omega_o = \text{Trägerfrequenz}$$

$$\begin{aligned} \text{Sys}(\omega) = & \underbrace{\exp(-i\beta_o z)}_1 \cdot \underbrace{\exp(-i\beta_1(\omega - \omega_o)z)}_2 \cdot \\ & \underbrace{\exp\left(-i\frac{1}{2}\beta_2(\omega - \omega_o)^2 z\right)}_3 \cdot \underbrace{\exp\left(-i\frac{1}{6}\beta_3(\omega - \omega_o)^3 z\right)}_4 \cdot \dots \end{aligned} \quad (2.39)$$

Falls die spektrale Bandbreite $\Delta\omega$ eines Laserpulses sehr viel kleiner als die Mittenfrequenz ω_o ist ($\Delta\omega/\omega_o \ll 1$), kann die "Slowly Varying Envelope Approximation" (SVEA)

verwendet werden [19], bei der ein Laserpuls $E(z, t)$ in einen schnell veränderlichen Trägerfrequenzanteil und eine langsam veränderliche Einhüllende $\bar{E}(z, t)$ aufgespalten wird. Die SVEA ist im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich gültig für Laserpulse mit einer Pulsdauer $\tau_p \gtrsim 100 fs$ [19]: $E(z, t) = \bar{E}(z, t) \exp(i(\omega_o t - \beta_o z))$. Der Term 1 in Gleichung 2.39 besagt, dass sich die Trägerfrequenz ω_o mit einer Phasengeschwindigkeit ω_o/β_o bewegt. Der Term 2 entspricht dem Verschiebungsterm in Gleichung 2.9 und die Einhüllende $\bar{E}(z, t)$ des Laserpulses bewegt sich mit der so genannten Gruppengeschwindigkeit $v_g = 1/\beta_1$.

Die in den Experimenten verwendeten dielektrischen Materialien befinden sich bei den Wellenlängen ($\lambda=248.5nm$ und $\lambda=497nm$) im Bereich der normalen Dispersion ($\beta_2 > 0$). Bei normaler Dispersion ist die Phasengeschwindigkeit der "roten" Spektralanteile eines Laserpulses größer als die der "blauen" Anteile. Durch den Term 3 wird dem Laserpuls im Frequenzbereich eine quadratische Phase aufgeprägt. Das führt dazu, dass für einen Laserpuls ohne Phasenmodulation ($\Phi(t) = 0$) nach dem Durchgang durch das Material eine lineare Frequenzmodulation ($b > 0$) zu beobachten ist. Die Terme 3 und 4 werden als Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) erster und zweiter Ordnung bezeichnet und beeinflussen auch den zeitliche Amplitudenverlauf $A(t)$. Der Laserpuls ist nicht mehr formstabil, sondern "zerfließt" bei der Ausbreitung im dispersiven Material.

Im vollständig ionisierten Plasma gilt: $\tilde{\chi}(\omega) = 0$. In der Näherung $\omega \gg \nu_{ei}$ kann der Dämpfungsterm $1/(1 - i\nu_{ei}/\omega)$ in Gleichung 2.33 vernachlässigt werden. Falls die Plasmafrequenz ω_p größer als die Frequenzen der Komponenten des Laserpulses ist, wird der Brechungsindex rein imaginär. In diesem Fall ist die Elektronendichte gleich der so genannten kritischen Dichte $N_c = (\omega_o^2 m_e \epsilon_o)/e^2$. Die Frequenzkomponenten können sich in diesem Gebiet nicht mehr als ebene Wellen ausbreiten, sondern die elektrische Feldstärke nimmt exponentiell ab. Eine Absorption bzw. Dämpfung der Intensität erfährt das Laserfeld in diesem Fall nicht, da es keinen Energiefluss in dieses Gebiet gibt. Allerdings erfährt der Laserpuls an einer Grenzfläche zu einem Gebiet mit rein imaginärem Brechungsindex eine vollständige Reflexion.

2.2.2 Pulskompressor

In optischen Aufbauten, wie z.B. dem Pulskompressor, werden der spektrale Amplitudenverlauf $\tilde{A}(\omega)$ und die Phasenlage $\tilde{\Phi}(\omega)$ der einzelnen Frequenzkomponenten des Laserpulses gezielt verändert.

Der Pulskompressor kompensiert die GVD, die ein Laserpuls bei der Ausbreitung in normal dispersivem Material (z.B. Linsen, Polarisatoren, Strahlteilern) erfahren hat. In Abbildung 2.1 ist ein Pulskompressor aus Prismen schematisch dargestellt. Die Frequenzkomponenten werden durch die Prismen räumlich getrennt, durchlaufen unterschiedlich lange

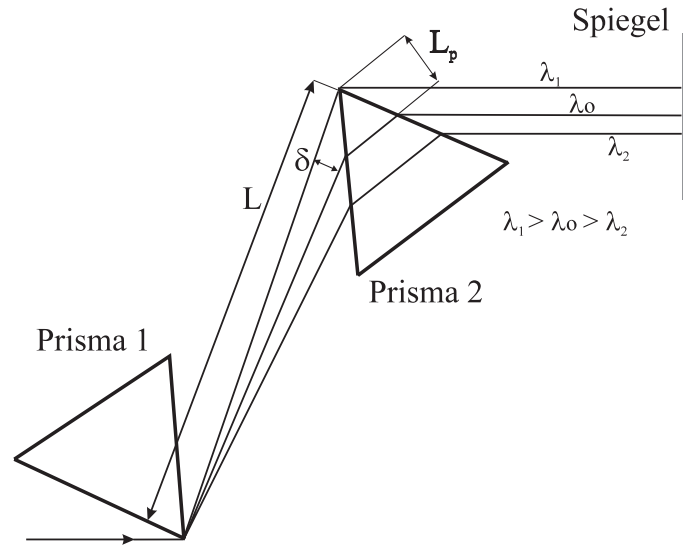


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau eines Prismenkompressors

Der Eingangsstrahl wird von dem ersten Prisma spektral zerlegt. Er durchläuft die brechende Kante des zweiten Prismas und trifft auf einen Retroreflektor (Spiegel), der den Strahl mit einem Höhenversatz durch die zwei Prismen zurückreflektiert. Die spektralen Anteile ($\lambda_1 > \lambda_0 > \lambda_2$) durchlaufen unterschiedliche optische Weglängen.

optische Wege und werden anschließend wieder zeitlich und räumlich überlagert. Aufgrund der unterschiedlichen optischen Weglängen ergibt sich für jede Frequenzkomponente ein anderer Phasenfaktor $\Phi_{sys}(\omega)$. Die Systemfunktion $Sys(\omega)$ kann in guter Näherung durch die Koeffizienten der GVD erster und zweiter Ordnung β_2 und β_3 beschrieben werden. Im Pulskompressor mit Prismen sind β_2 und β_3 negativ, so dass sich die spektrale Phasenmodulation reduzieren und die Pulsdauer τ_p minimieren lässt. Ein idealer Pulskompressor erreicht die vollständige Kompensation der spektralen Phase und damit einen Bandbreite begrenzten Puls mit minimaler Pulsdauer.

2.2.3 Nichtlineare Propagation im Femtosekunden-Lasersystem

Für die Propagation der fs Laserpulse im verwendeten Femtosekunden-Lasersystem und für deren zeitliche Diagnostik sind zwei nichtlineare Prozesse relevant, und zwar die Frequenzverdopplung (SHG²) und die Selbstphasenmodulation (SPM). Bei der Frequenzverdopplung wird eine Fundamentalwelle mit der Frequenz ω_o in das nichtlineare Medium eingestrahlt und erzeugt eine zweite Harmonische mit der doppelten Frequenz $2\omega_o$. Die Selbstphasenmodulation tritt bei der Propagation von Laserpulsen hoher Intensität durch dielektrische Materialien auf. Dabei wird der Phasenverlauf $\Phi(t)$ durch die Intensität $I(t)$ des Laserpulses selbst oder die eines zweiten Laserpulses (Kreuzphasenmodulation) zeit-

²SHG=Second Harmonic Generation

lich moduliert. Durch die zeitliche Phasenmodulation verbreitert sich das Spektrum des Laserpulses und mit Hilfe einer nachfolgenden Pulskompression lässt sich eine Verkürzung der Pulsdauer τ_p erreichen.

Die nichtlinearen Effekte können mit der Wellengleichung 2.22 beschrieben werden, da keine freien Ladungen und Ströme auftreten. Die Polarisation $\vec{P}[\vec{E}]$ setzt sich aus einem linearen Anteil $\vec{P}_{lin}[\vec{E}]$ entsprechend Gleichung 2.25 und einem nichtlinearen Anteil $\vec{P}_{nl}[\vec{E}]$ zusammen:

$$\Delta \vec{E} - \epsilon_o \mu_o \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_o \frac{\partial^2 \vec{P}_{lin}[\vec{E}]}{\partial t^2} + \mu_o \frac{\partial^2 \vec{P}_{nl}[\vec{E}]}{\partial t^2} \quad (2.40)$$

Für hohe Feldstärken ist die Auslenkung eines gebundenen Elektrons nicht mehr proportional zur Kraft, sondern das Elektron bewegt sich in einem nichtlinearen Potential (anharmonischer Oszillator [20, 21]). Aus einem störungstheoretischen Ansatz kann ein Zusammenhang zwischen der elektrischen Feldstärke und der Auslenkung gefunden werden. Beim Übergang auf die makroskopisch gemittelten Größen ergibt sich ein allgemeiner funktioneller Zusammenhang $\vec{P}[\vec{E}]$ zwischen der Polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ und der elektrischen Feldstärke $\vec{E}(\vec{r}, t)$ [21].

Für die **Frequenzverdoppelung (SHG)** gelten die Materialgleichungen 2.41, falls sich die elektrische Feldstärke aus den diskreten Frequenzen der Fundamentalen ω_o und der zweiten Harmonischen $2\omega_o$ zusammensetzt [21]:

$$\begin{aligned} \vec{P}_{lin}[\vec{E}] : \tilde{P}_i(\vec{r}, \omega_o) &= \epsilon_o \tilde{\chi}_{i,j_1}(\omega_o) \tilde{E}_{j_1}(\vec{r}, \omega_o) \\ \tilde{P}_i(\vec{r}, 2\omega_o) &= \epsilon_o \tilde{\chi}_{i,j_1}(2\omega_o) \tilde{E}_{j_1}(\vec{r}, 2\omega_o) \\ \vec{P}_{nl}[\vec{E}] : \tilde{P}_i(\vec{r}, 2\omega_o) &= \epsilon_o \tilde{\chi}_{i,j_1,j_2}(2\omega_o; \omega_o, \omega_o) \tilde{E}_{j_1}(\vec{r}, \omega_o) \tilde{E}_{j_2}(\vec{r}, \omega_o) \end{aligned} \quad (2.41)$$

Die Suszeptibilitäten χ_{i,j_1,j_2,j_3} haben Tensorcharakter, d.h., die Indizes entsprechen den drei Raumrichtungen ($i, j_1, j_2, \dots \in \{x, y, z\}$) und es wird in den Gleichungen 2.41 über die Indizes $j_1, j_2 \dots$ summiert. Das Medium ist hier homogen, d.h., die Suszeptibilitäten sind ortsunabhängig, aber nicht mehr isotrop. Die gesamte Polarisation setzt sich aus den linearen Anteilen $\tilde{P}_i(\vec{r}, \omega_o)$ und $\tilde{P}_i(\vec{r}, 2\omega_o)$ sowie einem nichtlinearen Anteil 2. Ordnung $\tilde{P}_i(\vec{r}, 2\omega_o)$ zusammen, der durch zwei Wellen der Frequenz ω_o getrieben wird. Da die Materialgleichung $\vec{P}[\vec{E}]$ mit einer Störungsrechnung hergeleitet wird, ist die Suszeptibilität n+1-ter Ordnung wesentlich kleiner als die Suszeptibilität n-ter Ordnung.

Mit den Materialgleichungen 2.41 wird die Wellengleichung 2.40 im Rahmen der SVEA gelöst [20, 14]. Die Amplitude der zweiten Harmonischen ergibt sich in Gleichung 2.42 aus der Amplitude der Fundamentalen und den Material- bzw. Versuchsparametern unter der Annahme, dass die Abnahme der Fundamentalwelle vernachlässigt werden kann und die Amplitude der zweiten Harmonischen vor der Wechselwirkung gleich null ist:

$$\tilde{E}_i(L, 2\omega_o) = \omega_o \frac{1}{c_o n_{2\omega_o}} \tilde{\chi}_{i,j_1,j_2}(2\omega_o; \omega_o, \omega_o) \tilde{E}_{j_1}(L, \omega_o) \tilde{E}_{j_2}(L, \omega_o) \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \quad (2.42)$$

$$I_{2\omega_o} \sim L^2 \text{sinc}^2\left(\frac{1}{2}\Delta k L\right) \quad \text{sinc}(x) \equiv \sin(x)/x \quad (2.43)$$

$$\text{mit : } \Delta k = 2k(\omega_o) - k(2\omega_o) = \frac{\omega_o}{c_o} 2(\tilde{n}(\omega_o) - \tilde{n}(2\omega_o)) \quad (2.44)$$

Dabei sind L die Länge des nichtlinearen Mediums, $I_{2\omega_o}$ die Intensität der zweiten Harmonischen und Δk die Phasenfehlanpassung zwischen der Fundamentalwelle und der Harmonischen. Aus den Gleichungen 2.42 und 2.43 folgt, dass die Amplitude der frequenzverdoppelten Harmonischen $\tilde{E}_i(L, 2\omega_o)$ quadratisch von der Amplitude der Fundamentalwelle und die Intensität quadratisch von der Kristalllänge L abhängt. Um eine hohe Konversion zu erzielen, muss die Phasenanpassung $\Delta k = 0$ vorliegen und folglich $\tilde{n}(\omega_o) = \tilde{n}(2\omega_o)$ sein. Für den Fall der normaler Dispersion in isotropen Dielektrika ist diese Forderung nicht erfüllt. Zur Phasenanpassung werden doppelbrechende Kristalle verwendet, da diese in ordentlicher und außerordentlicher Richtung verschiedene Brechungsindices $\tilde{n}_o(\omega)$ bzw. $\tilde{n}_e(\omega)$ aufweisen. In der Referenz [16] wird ausführlich diskutiert, wie die Bandbreite der fs Laserpulse und Sättigungseffekte die Frequenzverdoppelung beeinflussen. Ist die Konversion innerhalb der Bandbreite des Laserpulses frequenzunabhängig, entsteht das frequenzverdoppelte Signal instantan [20] und für das frequenzverdoppelte elektrische Feld $E_{2\omega_o}(z, t)$ gilt in komplexer Schreibweise: $E_{2\omega_o}(z, t) \sim E_{\omega_o}(z, t)E_{\omega_o}(z, t)$.

Die **Selbstphasenmodulation (SPM)** ist ein nichtlinearer Effekt dritter Ordnung, bei dem eine Polarisation bei der Frequenz ω_o durch drei Wellen der Frequenz ω_o getrieben wird ($\omega_o = \omega_o - \omega_o + \omega_o$). Aufgrund von Symmetriebetrachtungen verschwinden in isotropen Materialien die Suszeptibilitäten zweiter Ordnung identisch [20] und die Effekte dritter Ordnung bestimmen das nichtlineare Verhalten. Unter der Voraussetzung, dass das Medium isotrop ist und die treibenden elektrischen Felder in x-Richtung linear polarisiert sind, wird die Polarisation bei der Selbstphasenmodulation durch die folgende Gleichung beschrieben [20]:

$$\begin{aligned} \vec{P}_{lin}[\vec{E}] : \tilde{P}_x(\vec{r}, \omega_o) &= \epsilon_o \tilde{\chi}_x(\omega_o) \tilde{E}_x(\vec{r}, \omega_o) \\ \vec{P}_{nl}[\vec{E}] : \tilde{P}_x(\vec{r}, \omega_o) &= \epsilon_o \frac{3}{4} \tilde{\chi}_{x,x,x,x}(\omega_o; \omega_o, -\omega_o, \omega_o) \tilde{E}_x(\vec{r}, \omega_o) \tilde{E}_x^*(\vec{r}, \omega_o) \tilde{E}_x(\vec{r}, \omega_o) \end{aligned} \quad (2.45)$$

Das Medium ist homogen und somit sind die linearen und nichtlinearen Suszeptibilitäten ortsunabhängig. Mit der Näherung, dass die nichtlineare Polarisation frequenzunabhängig ist und die nichtlineare Polarisation instantan erfolgt [20], kann der nichtlineare Anteil in Gleichung 2.45 auch im Zeitbereich in komplexer Schreibweise verwendet werden:

$$P_x(\vec{r}, t) = \epsilon_o \frac{3}{4} \tilde{\chi}_{x,x,x,x}(\omega_o; \omega_o, -\omega_o, \omega_o) E_x(\vec{r}, t) E_x^*(\vec{r}, t) E_x(\vec{r}, t) \quad (2.46)$$

Wird die lineare GVD vernachlässigt, so lässt sich die Wellengleichung 2.40 mit der Materialgleichung 2.46 im Rahmen der SVEA lösen. Für die langsam veränderliche Einhüllende des Laserpulses $\bar{E}(z, \bar{t}) = A(z, \bar{t}) \exp(i\Phi(z, \bar{t}))$ gilt in einem mitbewegten Bezugssystem

($\bar{t} = t - z/v_g$)[14, 19, 20]:

$$\begin{aligned}\bar{E}(z, \bar{t}) &= \bar{E}(0, \bar{t}) \exp(-i\eta|\bar{E}(0, \bar{t})|^2 z) & \text{mit: } \eta &= \frac{3}{8} \tilde{\chi}_{x,x,x,x} \frac{\omega_o \tilde{n}(\omega_o)}{c_o} \\ A(z, \bar{t}) &= A(0, \bar{t}) \\ \Phi(z, \bar{t}) &= \Phi(0, \bar{t}) - \eta|\bar{E}(0, \bar{t})|^2 z = \Phi(0, \bar{t}) - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 I(z, \bar{t}) z\end{aligned}\quad (2.47)$$

Hier sind η der Parameter für die SPM, n_2 der nichtlineare Brechungsindex und v_g die Gruppengeschwindigkeit der Einhüllenden. Aus den Gleichungen 2.47 wird deutlich, dass die Intensität $I(z, \bar{t})$ den zeitlichen Phasenverlauf $\Phi(z, \bar{t})$ beeinflusst und die Amplitude $A(z, \bar{t})$ konstant bleibt.

Die Ausbreitung von intensiven Laserpulsen unter dem Einfluss der GVD **und** der SPM kann nicht analytisch gelöst werden. Numerisch wird die "Split Step Fourier" Methode verwendet [19], bei der die Weglänge in differentielle Wegelemente zerlegt wird, auf denen die lineare Propagation und der Einfluss der SPM räumlich getrennt behandelt werden und die Lösungen 2.36 und 2.47 Anwendung finden.

2.3 Femtosekunden-Lasersystem

Für die Experimente dieser Arbeit wird ein Lasersystem verwendet, das im VIS bei $\lambda = 497nm$ und im UV bei $\lambda = 248.5nm$ fs Laserpulse erzeugt, die durch die Art der Erzeugung zeitlich synchronisiert sind. Das Lasersystem ist schematisch in Abbildung 2.2 dargestellt und besteht aus drei Komponenten:

1. Femtosekunden-Farbstofflaser
2. KrF Verstärker mit Prismenkompressor für UV Laserpulse
3. Faserpropagation und Prismenkompressor für VIS Laserpulse

Der Farbstofflaser und der KrF Verstärker sind ein kommerzielles System (FAMP) der Firma Lambda Physik, das in den Referenzen [22, 23] detailliert beschrieben wird. Der zeitliche Intensitäts- und Phasenverlauf der fs Laserpulse wird mit einem SHG Korrelator und der so genannten FROG Technik charakterisiert. Im Kapitel 3 werden diese Messmethoden beschrieben und es werden Messergebnisse vorgestellt. Die Pulsenergie der fs Laserpulse wird mit pyroelektrischen Detektoren und Photodioden bestimmt.

Femtosekunden-Farbstofflaser

Der XeCl Laser ($\lambda = 308nm$) dient als Pumplaser für einen Pikosekunden-Farbstofflaser und nachfolgende Verstärkerstufen. In dem Pikosekunden-Farbstofflaser wird aus dem 15ns langen XeCl Pumpimpuls ein etwa 9ps langer Laserpuls ($\lambda = 365nm$) erzeugt, der einen "Distributed Feedback Dye Laser" (DFDL) pumpt. Der ps Farbstofflaser besteht aus mehreren Farbstofflaserstufen, die hier kurz genannt und in den angegebenen Referenzen

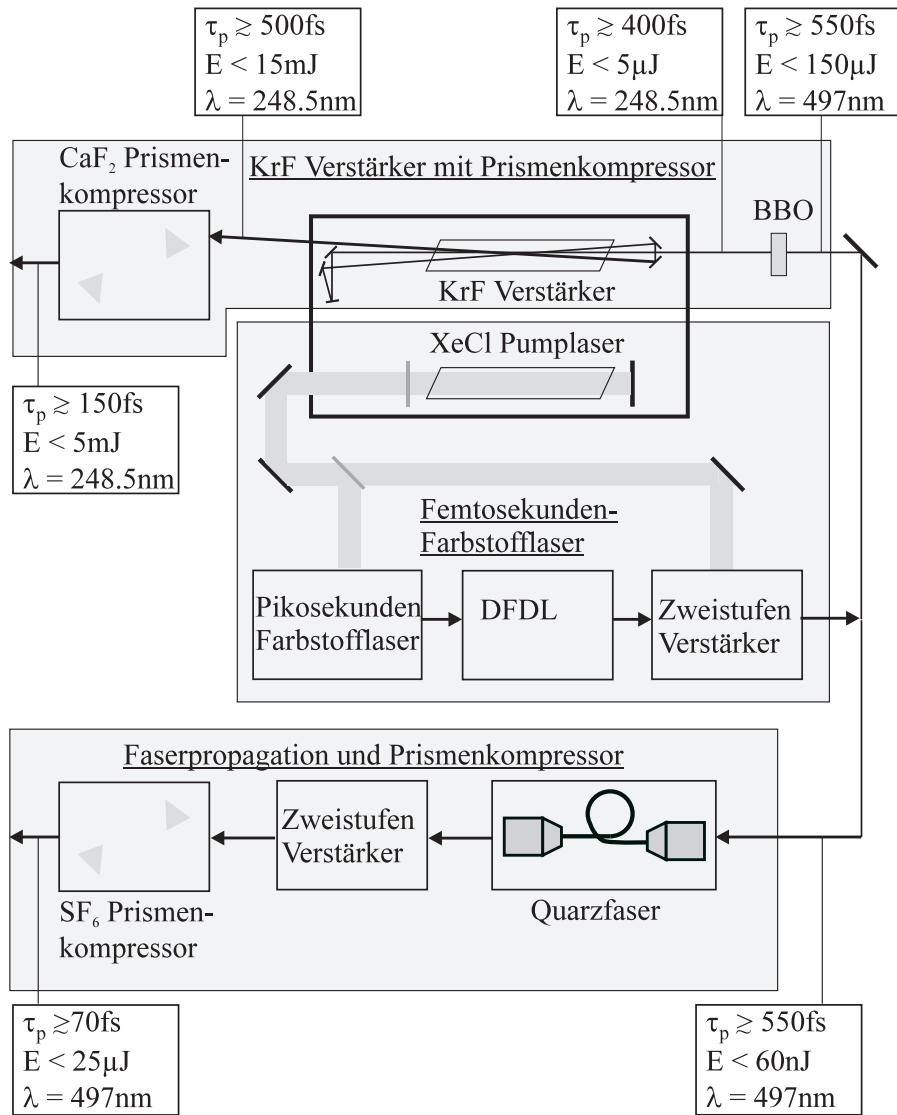


Abbildung 2.2: Schematischer Aufbau des fs Lasersystems:

1. Femtosekunden-Farbstofffaser mit XeCl Pumplaser, 2. KrF Verstärker mit UV Prismenkompressor und 3. Faserpropagation mit VIS Prismenkompressor

beschrieben werden. Der 15ns lange XeCl Laserpuls pumpt in der ersten Stufe einen "Quenched Cavity Dye Laser" (QCDL). Der 200ps lange Puls des QCDL ($\lambda = 340nm$) dient als Eingangspuls für einen "Short Cavity Dye Laser" (SCDL). Der SCDL Laserpuls ($\lambda = 365nm$) hat eine Pulsdauer von 15ps mit einer extrem schnellen Anstiegsflanke. Nach einer Verstärkerstufe wird der SCDL Laserpuls in einem "Gated Saturable Absorber" (GSA) auf etwa 9ps verkürzt, um nach einer weiteren Verstärkerstufe den DFDL zu pumpen. Der DFDL liefert in guter Näherung einen Bandbreite begrenzten VIS Laserpuls ($\lambda = 497nm$) mit einer Pulslänge von etwa 550 fs und einer spektralen Bandbreite von $\approx 0.6nm$. Nach einer zweistufigen Verstärkung hat der Bandbreite begrenzte Laserpuls eine Energie von $150\mu J$ bei einer Pulslänge von 550fs. Die Repetitionsrate beträgt 1 Hz

und ist durch den XeCl Pumplaser vorgegeben.

KrF Verstärker mit Prismenkompressor für UV Laserpulse

Der VIS Laserpuls des fs Farbstofflasers wird in einem BBO Kristall (**B**eta-**B**arium-**B**orat, β -BaB₂O₄) der Dicke 300 μ m frequenzverdoppelt und dadurch ein UV Laserpuls bei der Wellenlänge $\lambda = 248.5nm$ erzeugt ("Seedpuls"). Der doppelbrechende BBO Kristall ist einachsiger negativ. Die fundamentale Wellenlänge $\lambda = 497nm$ breitet sich in der ordentlichen Richtung und die Harmonische bei $\lambda = 248.5nm$ in der außerordentlichen Richtung aus. Der ordentliche Brechungsindex $\tilde{n}_o(\omega)$ ist unabhängig von der Ausbreitungsrichtung, während der außerordentliche Brechungsindex $\tilde{n}_e(\omega, \Theta)$ eine Winkelabhängigkeit³ aufweist. Da der ordentliche und der außerordentliche Strahl senkrecht zueinander polarisiert sind, kann nur für die senkrecht zur Fundamentalwelle polarisierte Harmonische die Phasenanpassung erzielt werden. Die Effekte aus der spektralen Phasenanpassung und der linearen Dispersion sind hier vernachlässigbar und für den UV Laserpuls ergibt sich eine Pulslänge $\tau_p \geq 400fs$. Die Pulsenergie des UV Laserpulses wird in drei "Off-Axis" Durchgängen im KrF Verstärker von 5 μ J auf maximal 15mJ nachverstärkt. Das Strahlprofil vor der Verstärkung ist in guter Näherung gaußförmig. Der nachverstärkte Laserpuls hat eine Ausdehnung von etwa (30 \times 15) mm². Die verstärkte spontane Emission (ASE) des KrF Verstärkers variiert stark mit der Lebensdauer des Füllgases und beträgt (0-3)mJ bei einer Pulsdauer von $\approx 15ns$. Aufgrund der SPM in den CaF₂ Fenstern des KrF Verstärkers erfährt der intensive UV Laserpuls eine Phasenmodulation, die die spektrale Bandbreite $\Delta\omega$ von $\approx 0.2nm$ auf $\approx 0.6nm$ vergrößert. Mit einem Kompressor aus CaF₂ Prismen ergibt sich für den UV Laserpuls eine minimale Pulslänge $\tau \approx 150fs$. Der Prismenkompressor hat aufgrund von Verlusten durch Reflexion und Blenden eine Transmission von 30%, so dass die maximale Pulsenergie nach dem Prismenkompressor etwa 5mJ beträgt.

Faserpropagation und Prismenkompressor für VIS Laserpulse

Um den VIS Laserpuls des fs Farbstofflasers weiter verkürzen zu können, wird die spektrale Breite $\Delta\lambda$ durch Propagation in einer 33cm langen Quarzfaser von etwa 0.6nm auf 11nm vergrößert (SPM und GVD). Dazu wird der VIS Laserpuls auf typischerweise 60nJ abgeschwächt und mit einem Mikroskopobjektiv in eine polarisationserhaltende Monomodenfaser eingekoppelt. Nach der Faser wird der VIS Laserpuls verstärkt und in einem Kompressor aus SF₆ Prismen komprimiert. Eine typische minimale Pulslänge nach dem Prismenkompressor beträgt etwa 70fs mit einer Pulsenergie von 25 μ J. Der Aufbau, bestehend aus der Quarzfaser, Farbstoffverstärkern und dem Prismenkompressor, ist ausführlich in der Referenz [24] beschrieben und charakterisiert.

³ Θ ist der Winkel zwischen dem Ausbreitungsvektor \vec{k} der außerordentlichen Welle und der optischen Achse des Kristalls.

Kapitel 3

Zeitliche Charakterisierung von fs Laserpulsen

3.1 Übersicht

Die zeitliche Charakterisierung von fs Laserpulsen ist von großer Bedeutung für die Experimente mit fs Laserpulsen. Die Wechselwirkung von fs Laserpulsen mit Materie bei hohen Intensitäten wird durch den zeitlichen Intensitätsverlauf $I(t)$ bestimmt. Beispiele hierfür sind die Erzeugung von hohen Harmonischen [6] und Röntgenpulsen [7] sowie die Ionisationsprozesse von Festkörpern. Bei der Justage von fs Lasersystemen und in Experimenten der „kohärenten Kontrolle“ von chemischen Reaktionen [25, 26] ist neben dem Intensitätsverlauf $I(t)$ auch die zeitliche Phase $\Phi(t)$ von Bedeutung. Die zeitliche und auch räumliche Charakterisierung von fs Laserpulsen wird in den Referenzen [16, 27, 28] ausführlich dargestellt. In diesem Abschnitt wird eine kurze Übersicht gegeben, wie fs Laserpulse zeitlich charakterisiert werden können.

Eine direkte Messung des zeitlichen Intensitätsverlaufes von Laserpulsen ist mit Hilfe von Schmierbildkameras nur bis zu einer zeitlichen Auflösung von 500fs möglich [29]. Zur Messung der zeitlichen Pulsdauer τ_p von fs Laserpulsen werden optische Korrelationstechniken eingesetzt. Bei nichtresonanten elektronischen Polarisierungseffekten liegt die Responszeit und damit die zeitliche Auflösung der optischen Korrelation bei etwa 1fs [20]. Für eine optische Korrelation von N Pulsen $E_{i=1\dots N}(t) = A_i(t) \cdot \exp(i\Phi_i(t))$ werden prinzipiell vier Komponenten benötigt:

1. N Verzögerungseinheiten für jeden Puls: $E_i(t - \tau_i)$
2. lineare Überlagerung der verzögerten Pulse: $E(t, \tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N) = \sum_{i=1}^N E_i(t - \tau_i)$
3. nichtlineare Wechselwirkung N-ter Ordnung: $E_{NLO}(t, \tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N) = f_{NLO}[E(t)]$
4. integrierender „langsamer“ Detektor: $Signal(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N) \sim \int_{-\infty}^{+\infty} dt |E_{NLO}(t)|^2$

Da die nichtlinearen Prozesse hohe Intensitäten erfordern, werden die Pulse in den meisten Fällen im Fokus einer sphärischen Linse oder Zylinderlinse überlagert.

Die komplexe Schreibweise der Einzelpulse $E_i(t)$ kann nur dann ohne Einschränkungen verwendet werden, wenn lineare Operationen ausgeführt werden. Bei nichtlinearen Wechselwirkungen muss der funktionelle Zusammenhang f_{NLO} für die komplexe Schreibweise hergeleitet werden. Entsprechend den Definitionen in [30] ergeben sich unterschiedliche Korrelationssignale:

1. interferometrische Korrelation mit Untergrund:

$$g_B^N(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N) \equiv \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dt |f_{NLO}[E_1(t - \tau_1) + E_2(t - \tau_2) + \dots + E_N(t - \tau_N)]|^2}{\int_{-\infty}^{+\infty} dt |f_{NLO}[E_1(t)] + f_{NLO}[E_2(t)] + \dots + f_{NLO}[E_N(t)]|^2} \quad (3.1)$$

2. Intensitätskorrelation ohne Untergrund:

$$G_0^N(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N) \equiv \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dt |E_1(t - \tau_1) \cdot E_2(t - \tau_2) \cdot \dots \cdot E_N(t - \tau_N)|^2}{\int_{-\infty}^{+\infty} dt |E_1(t) \cdot E_2(t) \cdot \dots \cdot E_N(t)|^2} \quad (3.2)$$

Die beiden Korrelationsfunktionen sind so normiert, dass für $g_B^N(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N)$ der Untergrund auf 1 und für $G_0^N(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N)$ das Maximum auf 1 normiert ist. Die interferometrische Korrelation wird auch als "schnelle" Korrelation bezeichnet, da sie Terme $\cos(\omega_i \tau_i)$ enthält. Diese entfallen bei der Intensitätskorrelation ("langsame" Korrelation) durch Mittelung über die Verzögerungen τ_i [30]. Falls alle Teilpulse kollinear wechselwirken und damit alle Wellenvektoren parallel sind, wie z.B. im Michelson Interferometer, wird eine "schnelle" Korrelation gemessen. Sind die Wellenvektoren nicht parallel, werden Anteile von $E_{NLO}(t)$ räumlich getrennt und es wird bei geeigneter Detektorwahl [27] eine "langsame" Korrelation gemessen. In der Tabelle 3.1 sind einige Korrelationenssignale zusammengestellt, die in der Laborpraxis häufig verwendet werden. Die verwendeten nichtlinearen Funktionen f_{NLO} gelten für die komplexe Schreibweise [8].

Für die Intensitätskorrelation geht die gesamte Phaseninformation $\Phi(t)$ verloren. Eine direkte Rücktransformation von $G_0^N(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_N)$ auf $I(t)$ ist mit **einer** unabhängigen Verzögerung τ nicht möglich. Zur Auswertung werden Modellfunktionen für $I(t)$ parametrisiert und die Intensitätskorrelation an das Messsignal angepasst. Aus einer Intensitätskorrelation mit zwei unabhängigen Verzögerungen (Tripelkorrelation) kann der Intensitätsverlauf ohne Modellannahme rekursiv bestimmt werden [38].

Die interferometrischen Korrelationen enthalten zwar Information über die Phase $\Phi(t)$, es gibt allerdings keine geschlossene Rücktransformation auf $E(t)$ und somit kann unter

nichtlineare Wechselwirkung	Korrelationssignal
$\underline{E_{NLO}(t) = E(t) \cdot E(t)}$ Frequenzverdopplung (SHG) [31] Zweiphotonen-Fluoreszenz (TPF) [32] Zweiphotonen-Leitfähigkeit [TPC] [33]	$g_B^2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dt [E(t)+E(t-\tau)] ^2}{\int_{-\infty}^{+\infty} dt 4I(t)^2}$
$\underline{E_{NLO}(t) = E(t) \cdot E(t)}$ Frequenzverdopplung (SHG) (Abschnitt 3.2) Zweiphotonen-Leitfähigkeit [TPC] [34] Zweiphotonen-Ionisation [TPI] [35]	$G_0^2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t) \cdot I(t-\tau)}{\int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t)^2}$
$\underline{E_{NLO}(t) = E(t) \cdot E(t)^2}$ Frequenzverdreifachung (THG) Parametrische Aufwärtskonversion [36] $\underline{E_{NLO}(t) = E(t) \cdot E(t) \cdot E^*(t)}$ Änderung der Polarisierung durch den optischen Kerreffekt [37], (siehe Abschnitt 3.3)	$G_0^3(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t) \cdot I(t-\tau)^2}{\int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t)^3}$

Tabelle 3.1: Nichtlineare Wechselwirkungen und Korrelationssignale

Aufgabe der Allgemeinheit nur ein parametrisiertes Modell von $E(t)$ an das gemessene Signal angepasst werden.

Experimentell sind noch Einzel- und Multischuss-Korrelatoren zu unterscheiden. Bei den Multischuss-Korrelatoren werden die Verzögerungen τ_i über Laufzeitunterschiede nach jedem Laserpuls verändert, so dass für eine Korrelationsmessung viele Laserpulse benötigt werden. Diese Technik bietet sich für ein Lasersystem mit hoher Repetitionsrate an. Bei den Einzelschuss-Korrelatoren wird die zeitliche Verzögerungsachse in eine räumliche Achse übersetzt, indem gekippte Pulsfronten oder nichtkollineare Pulse in einem Linienfokus überlagert werden. Die Korrelationssignale in Tabelle 3.1 können im Einzelschuss- und Multischuss-Verfahren gemessen werden.

Zur vollständigen Charakterisierung des Amplituden- und Phasenverlaufes von fs Laserpulsen lassen sich vier unterschiedliche Messverfahren klassifizieren [28, 39]:

1. lineare spektrale Interferometrie mit bekanntem Referenzpuls
2. Techniken mit zeitlicher Phasenmodulation:
 - Zeit-Frequenz-Konvertierung [40], Chronocyclic Tomography [41]
 - Spectral Phase Interferometry (SPIDER) [42]
3. Frequency Domain Phase Measurement (FDPM) = Sonogramm [28, 43, 44, 45]
4. Frequency Resolved Optical Gating (FROG) = Spektrogramm [8, 28, 43]

Für eine ausführliche Darstellung und einen Vergleich der verschiedenen Methoden wird auf die angegebene Literatur verwiesen. In der Laborpraxis und als kommerzielle Systeme haben sich FROG und SPIDER etabliert, da diese experimentell leicht realisierbar sind und eine robuste Rekonstruktion von $E(t)$ ermöglichen.

In der vorliegenden Arbeit werden die Amplitude und Phase der fs Laserpulse im Ultraviolett mit der FROG Methode vermessen (siehe Abschnitt 3.3). Diese Methode dient als Referenz zur Messung der Pagefunktion in Kapitel 6.

3.2 Intensitätskorrelation im Sichtbaren

Im Abschnitt 5.5 wird ein optischer Plasmaschalter vorgestellt, mit dem fs Laserpulse im Sichtbaren ($\lambda = 497nm$) geschaltet werden können. Wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, werden diese fs Laserpulse nach dem Femtosekunden-Farbstofflaser durch die Propagation in einer Quarzfaser spektral verbreitert und in einem VIS Prismenkompressor zeitlich komprimiert. Mit der Pulsdauer der "geschalteten" fs Laserpulse kann die Schaltzeit τ_T des optischen Plasmaschalters als wichtiger Parameter bestimmt werden. In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie die Intensitätskorrelation $G_0^2(\tau)$ und damit die Pulsdauer τ_p gemessen wird.

Der schematische Aufbau eines Multischuss SHG Korrelators ist in der Abbildung 3.1 dargestellt. Der fs Laserpuls wird mit einem dielektrischen Strahlteiler in zwei Teilpulse (50%:50%) aufgeteilt. Diese Teilpulse werden über eine variable Wegstrecke zeitlich gegeneinander verzögert. Mit einer sphärischen Linse ($f = 160mm$) werden beide Teilpulse in einen BBO Kristall der Dicke $300\mu m$ fokussiert. Da der Aufbau nicht kollinear ist, ergibt sich nach dem Verdopplungskristall ein untergrundfreies frequenzverdoppeltes Signal ($\lambda = 248.5nm$) zwischen den beiden Teilpulsen. Dieses 2ω Signal wird mit einer sphärischen Linse auf den Eintrittspalt eines Spektrographen abgebildet. Der Spektrograph wird für die folgenden Messungen zur weiteren Unterdrückung der Fundamentalen gegenüber dem frequenzverdoppelten Signal verwendet.

Wird für den fs Laserpuls als Modellfunktion ein gaußförmiger Intensitätsverlauf angenommen, so gilt für die Intensitätskorrelation $G_0^2(\tau)$:

$$G_0^2(\tau) \sim \exp(-4 \log(2) (t/\tau_K)^2) = \exp(-2 \log(2) (t/\tau_p)^2) \quad (3.3)$$

Die Gleichung 3.3 besagt, dass auch die Intensitätskorrelation $G_0^2(\tau)$ gaußförmig ist, aber die Halbwertsbreite der Korrelation τ_K um einen Faktor $\sqrt{2}$ größer ist als die Halbwertsbreite des fs Laserpulses τ_p .

Die Abbildung 3.2 zeigt zwei gemessene Intensitätskorrelationen. Im linken Diagramm ist die Korrelation eines fs Laserpulses dargestellt, der typischerweise durch den Femtosekunden-

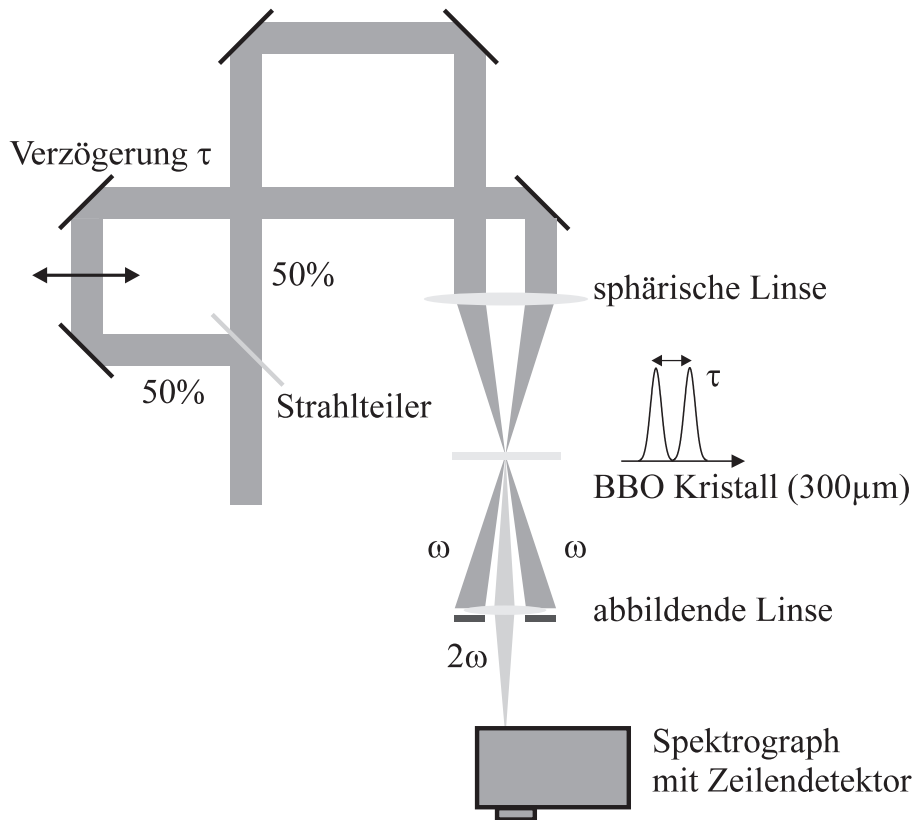


Abbildung 3.1: Aufbau des Multischuss SHG Korrelators: Der VIS fs Laserpuls wird mit einem Strahlteiler in zwei Teilpulse (50%:50%) aufgeteilt und zeitlich verzögert. Mit sphärischen Linsen werden beide Teilpulse in einen BBO Kristall fokussiert und das frequenzverdoppelte Signal auf den Eintrittsspalt des Spektrographen abgebildet. Das Korrelationssignal wird von einem Zeilendetektor aufgenommen.

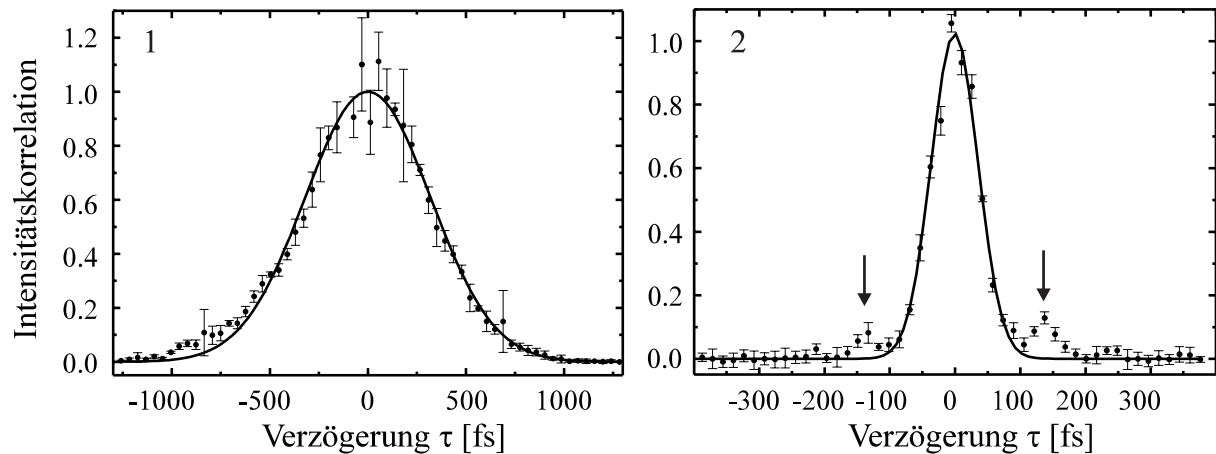


Abbildung 3.2: SHG Intensitätskorrelationen von VIS fs Laserpulsen:

1: Farbstofflaser ($\tau_K = (755 \pm 12)fs \Rightarrow \tau_p = (533 \pm 9)fs$)

2: Faserpropagation und Prismenkompressor ($\tau_K = (82.1 \pm 1.4)fs \Rightarrow \tau_p = (58.1 \pm 1.0)fs$)

Farbstofflaser geliefert wird. Die gemessene Halbwertsbreite τ_K beträgt (755 ± 12) fs, so dass sich eine Pulsdauer $\tau_p = (533 \pm 9)$ fs ergibt. Die Annahme eines gaußförmigen Intensitätsverlaufes ist in guter Näherung erfüllt. Das rechte Diagramm in Abbildung 3.2 zeigt die Intensitätskorrelation bei optimalem Prismenabstand. Es ergibt sich eine Pulsdauer τ_p von (58.1 ± 1.0) fs, also eine Verringerung um etwa eine Größenordnung gegenüber dem fs Farbstofflaser. Die SHG Intensitätskorrelation ist aufgrund ihrer mathematischen Struktur für alle Pulsformen um den Nullpunkt $\tau = 0$ symmetrisch. Im rechten Diagramm zeigen sich zudem zwei symmetrische Nebenmaxima (Pfeile), die auf einen zeitlichen Nebenpuls zurückgeführt werden können. Eine häufig auftretende Ursache für Nebenpulse nach der Pulscompression ist die unvollständige Kompensation der spektralen Phase dritter Ordnung [8]. Aus der Höhe der Nebenmaxima folgt, dass die maximale Intensität des Nebenpulses etwa 1/10 der Intensität des Hauptpulses beträgt.

3.3 Frequency Resolved Optical Gating (FROG) im Ultravioletten

3.3.1 Einführung in die FROG Methode

Die FROG Methode für fs Laserpulse entspricht der Kurzzeitspektroskopie, die oft in der Akustik, den Geowissenschaften und der Signalverarbeitung [43] zur Analyse von zeitlich veränderlichen Spektren eingesetzt wird und sich dort seit langem bewährt hat. Ein Kurzzeitspektrum oder Spektrogramm misst das Spektrum eines zeitlich transienten Signals in einem durch die so genannte Torfunktion $g(t)$ vorgegebenen Zeitbereich, wobei die Torfunktion zeitlich verzögert wird. In der FROG Methode entspricht das elektrische Feld $E(t)$ des fs Laserpulses dem transienten Signal. Das Betragsquadrat im FROG Signal $F(\tau, \omega)$ in der Gleichung 3.4 ergibt sich durch den Einsatz eines "langsamen" und integrierenden Detektors:

$$F(\tau, \omega) \equiv \frac{1}{2\pi} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \cdot g(t - \tau) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2 \quad (3.4)$$

mit: $E(t) = \sqrt{I(t)}e^{i\Phi(t)}$ $g(t) = A_g(t)e^{i\Phi_g(t)}$

In einem vereinfachten Bild entspricht ein akustisches Spektrogramm der Notenschrift der Musik, d.h., über einer Zeitachse t werden die Tonhöhe und Lautstärke aufgetragen. Bei dem FROG Signal $F(\tau, \omega)$ ergibt sich in Analogie zur Akustik eine "optische" Melodie mit zeitlich veränderlichen Frequenzen/Farben und Intensitäten. Für eine lineare Phasenmodulation $\omega(t) = \omega_o + b \cdot t$ mit $b > 0$ verändert sich die "Farbigkeit" des fs Laserpulses mit der Zeit von kleinen zu großen Frequenzen, also von rot nach blau.

Die Messung des Spektrums von fs Laserpulsen ist durch Spektrographen leicht möglich. Um eine ausreichende zeitliche Auflösung im FROG Signal zu gewährleisten, müssen die Halbwertsbreite und die Anstiegszeit der Torfunktion kleiner als die Halbwertsbreite des fs Laserpulses sein. Mit den in Abschnitt 3.1 beschriebenen nichtlinearen Wechselwirkungen stehen verschiedene Torfunktionen zur Verfügung, deren zeitliche Verläufe von den wechselwirkenden fs Laserpulsen selber abhängig sind. Die FROG Technik erweitert die im Abschnitt 3.1 beschriebenen optischen Korrelationstechniken um die Messung von Spektren. In der Tabelle 3.2 sind einige der in der Literatur verwendeten nichtlinearen Wechselwirkungen und die sich daraus ergebenden Torfunktionen aufgeführt.

nichtlineare Wechselwirkung	Torfunktion	Literatur
Frequenzverdopplung (SHG)	$g(t) = E(t)$	[46]
Änderung der Polarisation durch den optischer Kerreffekt (PG)	$g(t) = I(t)$	[47][48]
Frequenzverdreifachung (THG) Parametrische Aufwärtskonversion	$g(t) = E^2(t)$	[36]
Kreuzphasenmodulation (XPM)	$g(t) = \exp(i \text{const} \cdot I(t))$	[49]

Tabelle 3.2: Nichtlineare optische Torfunktionen für die FROG Technik

Die Rekonstruktion des elektrischen Feldes $E(t)$ aus dem FROG Signal $F(\tau, \omega)$ entspricht dem aus der abbildenden Optik und der Kristallographie bekannten Problem der zweidimensionalen Phasenrekonstruktion. Für dieses Problem gibt es weder eine geschlossene Rücktransformation noch einen rekursiven Algorithmus, sondern nur numerische und iterative Optimierungsverfahren. Auch für die FROG Methode gibt es nach vorliegendem Kenntnisstand keinen Existenzbeweis für eine eindeutige Zuordnung zwischen dem elektrischem Feld $E(t)$ und dem FROG Signal $F(\tau, \omega)$.

Trebino et al. haben einen iterativen Algorithmus entwickelt, der $E(t)$ ohne Modellannahmen aus dem gemessenen FROG Signal rekonstruieren kann [50]. Alle bisher simulierten FROG Signale konvergieren mit diesem Algorithmus gegen das elektrische Feld $E(t)$, das zur Berechnung des FROG Signals verwendet worden ist. Der Grund besteht darin, dass das Problem hier überbestimmt ist. Das FROG Signal hat bei N Pixeln für jede Achse N^2 Freiheitsgrade, während der fs Laserpuls $E(t)$ nur insgesamt $2N$ Freiheitsgrade besitzt, und zwar jeweils N Freiheitsgrade für die Amplitude und die Phase. Während der Algorithmus robust gegen statistisches Rauschen ist, beeinflussen systematische Fehler in experimentellen Daten das Konvergenzverhalten stark, da diese vom Algorithmus als Signal und nicht als Rauschen interpretiert werden [51]. Die Torfunktion und damit die Signalentstehung sind in diesem Algorithmus eine wesentliche Randbedingung. Zu syste-

matischen Fehlern führen u.a. falsch kalibrierte Frequenz- und Verzögerungsachsen, abgeschnittene FROG Signale, zu wenige Stützstellen oder inhomogene Profile im Linienfokus bei Einzelschussaufbauten (siehe Abschnitt 3.3.3).

Neben dem "Trebinio" Algorithmus gibt es eine robuste "Momentenmethode", mit der parametrisierte Modellfunktionen der Intensität $I(t)$ und der Momentanfrequenz $\omega(t) = \Phi'(t)$ an die Momente des FROG Signals $F(\tau, \omega)$ anpasst werden. Diese Methode ist im Gegensatz zum "Trebinio" Algorithmus nicht mehr modellunabhängig. Für die Momente $f_1(\tau)$ und $f_2(\tau)$ des FROG Signals $F(\tau, \omega)$ gilt ([43], Herleitung im Anhang A):

$$f_1(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} F(\tau, \omega) d\omega = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) A_g^2(t - \tau) dt \quad (3.5)$$

$$f_2(\tau) \equiv \frac{1}{f_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega F(\tau, \omega) d\omega \quad (3.6)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} I(t) A_g^2(t - \tau) (\Phi'(t) + \Phi'_g(t - \tau)) dt \quad (3.7)$$

$$\text{mit: } E(t) = \sqrt{I(t)} e^{i\Phi(t)} \quad g(t) = A_g(t) e^{i\Phi_g(t)}$$

Das 1. Moment $f_1(\tau)$ des FROG Signals $F(\tau, \omega)$ entspricht einer Intensitätskorrelation. Im Gegensatz dazu enthält das zweite Moment $f_2(\tau)$ (Frequenzmoment) Phaseninformation in Form der Momentanfrequenz $\omega(t) = \Phi'(t)$.

Die FROG Signale der fs Laserpulse im Ultravioletten werden in dieser Arbeit mit einem so genannten PG FROG Aufbau gemessen und mit der "Momentenmethode" ausgewertet. Für die vollständige Diagnostik in diesem Spektralbereich stellt der PG FROG die Standardmethode dar. Die Abkürzung PG steht für "Polarization Gated" und bezeichnet die Änderung des Polarisationszustandes eines Probepulses durch einen intensiven Pump-puls aufgrund des optischen Kerreffektes. Im folgenden Abschnitten werden der Aufbau des PG FROG, die Signalentstehung und -rekonstruktion sowie die erzielten Ergebnisse dargestellt.

3.3.2 Experimenteller Aufbau des PG FROG

Für die Messung der Intensität $I(t)$ und der Phase $\Phi(t)$ von fs Laserpulsen im Ultravioletten (UV) ist im Rahmen dieser Arbeit ein PG¹ FROG aufgebaut und charakterisiert worden [48]. Aufgrund der Repetitionsrate von nur 1Hz und der geringen zeitlichen Stabilität des Lasersystems wurde ein Einzelschussbetrieb gewählt.

¹Polarization Gate

Der Aufbau ist in der Abbildung 3.3 schematisch dargestellt. Das Prinzip des PG FROG besteht darin, dass ein schwacher fs Laserpuls (Probepuls) einen Polarisator, ein Kerrmedium und einen Analysator durchläuft. Da der Polarisator und der Analysator gekreuzt sind, kann nur der Anteil des Probepulses den Analysator passieren, dessen Polarisationszustand durch den Pumpimpuls im Kerrmedium (CaF_2 Plättchen der Dicke 1.5mm) verändert wird. Die Signalentstehung wird im Abschnitt 3.3.3 ausführlich behandelt.

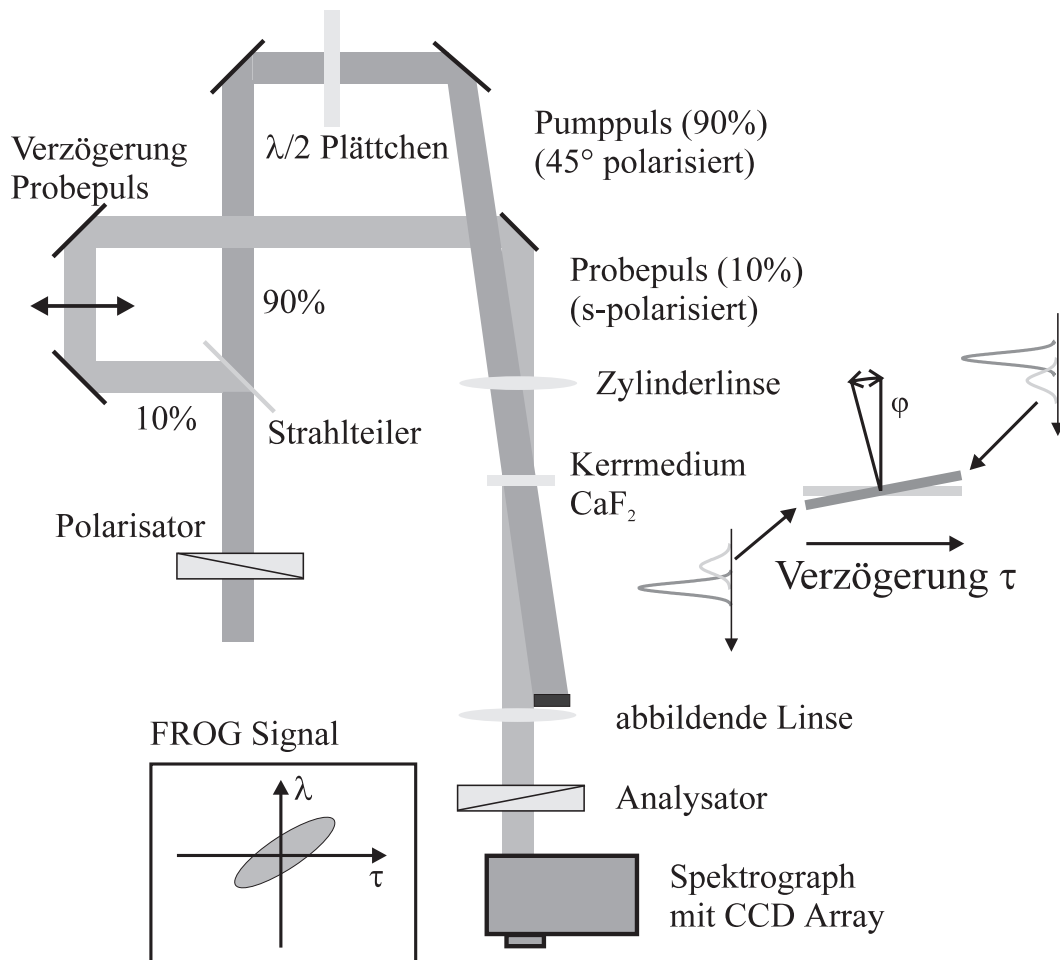


Abbildung 3.3: Aufbau des Einzelschuss PG FROG: Der Probepuls durchläuft den Polarisator und den Analysator in Sperrrichtung. Der Pumpimpuls, dessen Polarisationsrichtung mit einem $\lambda/2$ Plättchen um 45° gedreht wird, "schaltet" den Probepuls. Beide Pulse werden unter dem Winkel φ in einem Linienfokus zeitlich und räumlich überlagert. Der Linienfokus wird auf den Eintrittspalt eines Spektrographen abgebildet und das PG FROG Signal von einer flächigen CCD Kamera detektiert.

Im Analysator und Polarisator werden Dünnschichtpolarisatoren eingesetzt, wodurch im Polarisator der Einfluss der GVD auf die fs Laserpulse minimiert wird. Die Polarisation des Pumpimpulses wird mit einem $\lambda/2$ Plättchen um 45° gedreht. Beide Pulse werden mit einer Zylinderlinse ($f=205\text{mm}$) unter einem Winkel $\varphi=5^\circ$ in das Kerrmedium fokussiert

und räumlich überlagert. Die Größe des Linienfokus beträgt $(0.2 \times 8) \text{mm}^2$. Die maximale Intensität I_{max} wird bei allen Experimenten auf $I_{max} \leq 10 \text{GW/cm}^2$ begrenzt. Die Verzögerungstrecke des Probepulses kann so variiert werden, dass sich beide Pulse auch zeitlich im Kerrmedium überlappen. Aufgrund des Winkels ergibt sich entlang des Linienfokus eine unterschiedliche zeitliche Verzögerung zwischen dem Pump- und Probepuls (siehe Abbildung 3.3). Die zeitliche Verzögerungsachse τ wird in eine räumliche y -Achse transformiert. Für einen nichtkollinearen Aufbau gilt an der Vorderseite des Kerrmediums:

$$\tau = \frac{y}{c_o} \sin \varphi \quad (3.8)$$

Mit einem Winkel $\varphi = 5^\circ$ und einem Linienfokus der Länge 8mm ergibt sich ein Zeitfenster von 2.3ps. Der Linienfokus wird mit einer sphärischen Linse auf den Eintrittsspalt eines abbildenden Czerny-Turner Spektrographen ($f = 0.25 \text{mm}$) abgebildet, wobei der Pumpuls vor der Linse abgeblockt wird. Die spektrale Auflösung $\lambda/\Delta\lambda$ beträgt 2500. Der im Spektrographen verwendete Detektor ist eine im Ultravioletten empfindliche CCD Kamera mit einer räumlichen Auflösung von $10\mu\text{m}$ in beiden Raumrichtungen.

Die Verzögerungsachse kann ohne Kenntnis von φ und dem Brechungsindex des Kerrmediums n kalibriert werden, indem der Probepuls definiert verzögert und die Verschiebung des FROG Signals auf der räumlichen y -Achse bestimmt wird. Aus der Steigung der gemessenen Werte ergibt sich die Kalibrierung, z.B. in fs/Pixel. Die zeitliche Auflösung wird hier nicht durch die räumliche Auflösung der Abbildung oder die Kalibrierung der zeitlichen Verzögerungsachse bestimmt, sondern durch die so genannte "walk off" Verzögerung $\Delta\tau_{FROG}$ der nichtkollinearen Strahlen an der Rückseite des Kerrmediums:

$$\Delta\tau_{FROG} = \frac{d \cdot n}{c_o} (1 - \cos \beta) \quad \beta = \arcsin \left(\frac{\sin(\varphi)}{n} \right) \quad (3.9)$$

In der Gleichung 3.9 sind n der Brechungsindex von CaF_2 , d die Dicke des Kerrmediums und c_o die Vakuumlichtgeschwindigkeit. In der Herleitung wird in guter Näherung die Gruppengeschwindigkeit v_g mit der Phasengeschwindigkeit c_o/n gleichgesetzt. Die "walk off" Verzögerung $\Delta\tau_{FROG}$ verschmiert die zeitliche Verzögerungsachse und beträgt im verwendeten Aufbau 13fs, was im Vergleich zu den gemessenen Halbwertsbreiten ($\tau_p \geq 150 \text{fs}$) vernachlässigbar ist.

3.3.3 Signalentstehung im PG FROG

In den Tabellen 3.1 und 3.2 wird bei dem Korrelationssignal und der Torfunktion, die den optischen Kerreffekt ausnutzen, davon ausgegangen, dass ideale Polarisatoren mit einem unendlichen Kontrastverhältnis verwendet werden. In diesem Abschnitt wird nach vorliegendem Kenntnisstand zum ersten Mal quantitativ untersucht, wie sich reale Polarisatoren auf das Signal im beschriebenen PG FROG auswirken. Das dadurch auftretende Problem

des kohärenten Untergrundes im PG FROG ist in der Literatur bisher nur erwähnt [51], aber nicht untersucht worden. Zusätzlich wird der Einfluss eines inhomogenen Linienfokus auf das PG FROG Signal behandelt.

Für die Herleitung des Signals im PG FROG muss der Polarisationszustand des Probe- und Pumpimpulses verfolgt werden. Der polarisierte kohärente Anteil des fs Laserpulses kann mit Jonesvektoren [52] beschrieben werden. Im Folgenden wird eine alternative Darstellung verwendet, mit der in der Literatur die Signalentstehung im PG FROG mit "idealen" Polarisatoren hergeleitet wird. Dabei wird die Wechselwirkung des Pump- und Probepulses mit dem Analysator, dem $\lambda/2$ Plättchen, dem Kerrmedium und dem Polarisator in geeigneten Koordinatensystemen beschrieben. Der Einfluss eines unpolarisierten Anteils des fs Laserpulses auf das FROG Signal wird dabei berücksichtigt. Der unverstärkte UV fs Laserpuls des verwendeten Lasersystems ist aufgrund der Phasenanpassung in der Frequenzverdopplung [27] vollständig linear polarisiert. Beim dreifachen Durchgang des KrF Verstärkers sinkt der Polarisationsgrad² P auf 0.75 ± 0.05 ab, d.h., der verstärkte UV fs Laserpuls enthält sowohl einen linear polarisierten als auch einen unpolarisierten Anteil. Die spontane Emission des KrF Verstärkers (ASE) hat wegen der Pulsdauer von einigen Nanosekunden und der großen Divergenz keinen Einfluss.

Nach dem **Polarisator** und dem **Strahlteiler** lässt sich der linear polarisierte Anteil des fs Laserpulses wie folgt beschreiben:

$$\begin{aligned} \vec{E}(t) &= E_o \hat{E}(t) \vec{E}_s T_{s1} R_s \cos \delta \sqrt{P} \\ &+ E_o \hat{E}(t) \vec{E}_p T_{p1} R_p \sin \delta \sqrt{P} \\ &+ E_o \hat{E}(t) \vec{E}_s (T_{s1} R_s + T_{p1} R_p) \sqrt{\frac{1-P}{2}} \end{aligned} \quad (3.10)$$

Die elektrische Feldstärke des linear polarisierten Anteils vor dem Polarisator ist E_o . Der zeitliche Verlauf wird durch eine normierte dimensionslose Funktion $\hat{E}(t)$ festgelegt. Die normierten Polarisationsvektoren sind in Abbildung 3.4 dargestellt. Der Labortisch liegt in der yz-Ebene und das Kerrmedium in der xy-Ebene. Der Winkel δ gibt den Winkel des linear polarisierten Feldvektors zur x-Achse an. Es wird somit der Fall eingeschlossen, dass der linear polarisierte Anteil des fs Laserpulses vor dem Polarisator nicht s-polarisiert ist (Fehljustage). Die Größen T_{s1} , T_{p1} , R_s und R_p sind die Transmissionen des Polarisators bzw. die Reflektivitäten des Strahlteilers für das elektrische Feld in \vec{E}_s und \vec{E}_p Richtung. Der letzte Term des linear polarisierten Anteils in Gleichung 3.10 ergibt sich aus dem unpolarisierten Anteil vor dem Polarisator.

Die Phase des Probepulses wird im **Kerrmedium** durch den intensiven Pumpimpuls $I_{pumpe}(t)$ moduliert. Diese Kreuzphasenmodulation wirkt wie die Selbstphasenmodulation in Gleichung 2.47 aus Abschnitt 2.2.3 und ist von der Polarisationsrichtung des Pumpimpulses

²Der Polarisationsgrad P ist hier definiert als $P = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}$. Die minimale und die maximale Intensität ergeben sich bei unterschiedlichen Polarisationsrichtungen des Polarisators.

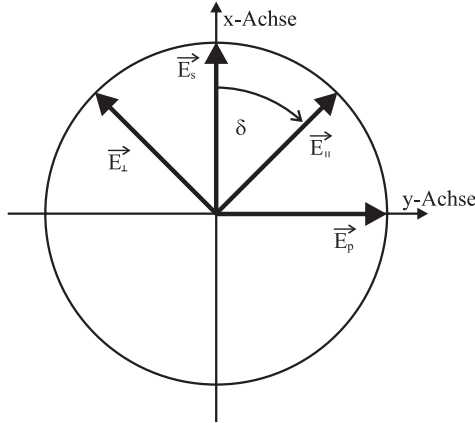


Abbildung 3.4:
Darstellung der Polarisationsvektoren: \vec{E}_s , \vec{E}_p , \vec{E}_\perp , \vec{E}_\parallel

abhängig. Nach dem $\lambda/2$ Plättchen ist der Pumpimpuls linear in Richtung \vec{E}_\perp polarisiert, \vec{E}_\parallel steht senkrecht zu dieser Polarisationsrichtung. Die Selbstphasenmodulation des Probepulses im Kerrmedium kann bei den geringen Intensitäten und Weglängen vernachlässigt werden. Für die Beschreibung der Kreuzphasenmodulation wird eine Transformation in das durch \vec{E}_\perp und \vec{E}_\parallel vorgegebene Koordinatensystem vorgenommen. Mit den Gleichungen 3.11 und 3.12 wird der Probepuls $\vec{E}(t)$ vor bzw. nach dem Kerrmedium beschrieben:

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_\parallel E_\parallel(t) + \vec{E}_\perp E_\perp(t) \quad (3.11)$$

$$\vec{E}(t, \tau) = \vec{E}_\parallel E_\parallel(t) e^{i\Phi_\parallel(t-\tau)} + \vec{E}_\perp E_\perp(t) e^{i\Phi_\perp(t-\tau)} \quad (3.12)$$

Für die kreuzmodulierten Phasen $\Phi_\parallel(t - \tau)$ und $\Phi_\perp(t - \tau)$ gilt:

$$\Phi_\parallel(t - \tau) \equiv -\frac{2\pi}{\lambda_o} d n_\parallel I_{max} \hat{I}_{pumpe}(t - \tau) \quad (3.13)$$

$$\Phi_\perp(t - \tau) \equiv -\frac{2\pi}{\lambda_o} d n_\perp I_{max} \hat{I}_{pumpe}(t - \tau)$$

In den Gleichungen 3.13 ist d die Dicke des Kerrmediums, n_\parallel und n_\perp sind die nichtlinearen Brechungsindizes senkrecht und parallel zur Polarisationsrichtung des Pumpimpulses, I_{max} ist die maximale Intensität und $\hat{I}_{pumpe}(t)$ ist der normierte und einheitenlose Intensitätsverlauf des Pumpimpulses. Da das Kerrmedium CaF_2 isotrop ist und die Nichtlinearität auf nichtresonante elektronische Polarisation zurückgeht, gilt für die nichtlinearen Brechungsindizes n_\parallel und n_\perp [20]: $\chi_{xxxx} = 3\chi_{xxyy} \Rightarrow n_2 = n_\parallel = 3n_\perp$. Die Parameter der Komponenten des PG FROG sind in der Tabelle 3.3 zusammengefasst. Aus diesen Werten ergibt sich, dass die Phasen Φ_\parallel und Φ_\perp klein gegen eins sind und die Exponentialterme in Gleichung 3.12 wie folgt genähert werden können:

$$|\Phi_\parallel(t - \tau)| \ll 1 \quad \Rightarrow \quad \exp[i\Phi_\parallel(t - \tau)] \approx 1 + i\Phi_\parallel(t - \tau) \quad (3.14)$$

$$|\Phi_\perp(t - \tau)| \ll 1 \quad \Rightarrow \quad \exp[i\Phi_\perp(t - \tau)] \approx 1 + i\Phi_\perp(t - \tau)$$

maximale Intensität	$I_{max} \leq 10GW/cm^2$
nichtlinearer Brechungsindex	$n_{2,CaF_2} = 2 \cdot 10^{-16} cm^2/W$
Dicke des Kerrmediums	$d = 1.5mm$
Wellenlänge	$\lambda_o = 248.5nm$
Transmission des Polarisators	$T_{s1} = \sqrt{0.9}, T_{p1} = \sqrt{\frac{0.9}{560}}$
Transmission des Analysators	$T_{s2} = \sqrt{\frac{0.85}{340}} \cdot \sqrt{\frac{0.9}{160}}, T_{p2} = \sqrt{0.85}\sqrt{0.9}$
Reflektivität des Strahlteilers	$R_s = 0.30, R_p = 0.09$

Tabelle 3.3: Parameter des PG FROG Aufbaus

Für die Wirkung des **Analysators** wird in die Koordinaten (\vec{E}_s, \vec{E}_p) gewechselt. Nach dem Analysator ergibt sich mit der Näherung in den Gleichungen 3.14 folgendes Signal:

$$\begin{aligned}
 E(t, \tau) &= \vec{E}_s E_o \hat{E}(t) \left(\alpha_s - i\beta_s \hat{I}_{pumpe}(t - \tau) \right) \\
 &+ \vec{E}_p E_o \hat{E}(t) \left(\alpha_p - i\beta_p \hat{I}_{pumpe}(t - \tau) \right)
 \end{aligned} \quad (3.15)$$

Die dimensionslosen Parametern $\alpha_s, \beta_s, \alpha_p$ und β_p sind von den Komponentenparametern in Tabelle 3.3, dem Polarisationsgrad und dem Polarisationswinkel δ abhängig:

$$\alpha_s = T_{s1} R_s T_{s2} \cos \delta \sqrt{P} + (T_{s1} R_s - T_{p1} R_p) T_{s2} \sqrt{\frac{1-P}{2}} \quad (3.16)$$

$$\begin{aligned}
 \beta_s &= \frac{2}{3} \Phi_{max} T_{s1} R_s T_{s2} \cos \delta \sqrt{P} + \frac{1}{3} \Phi_{max} T_{p1} R_p T_{s2} \sin \delta \sqrt{P} \\
 &+ \frac{2}{3} \Phi_{max} (T_{s1} R_s - T_{p1} R_p) T_{s2} \sqrt{\frac{1-P}{2}}
 \end{aligned} \quad (3.17)$$

$$\alpha_p = T_{p1} R_p T_{p2} \sin \delta \sqrt{P} + T_{p1} R_p (T_{p2} - T_{s2}) \sqrt{\frac{1-P}{2}} \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned}
 \beta_p &= \frac{2}{3} \Phi_{max} T_{p1} R_p T_{p2} \sin \delta \sqrt{P} + \frac{1}{3} \Phi_{max} T_{s1} R_s T_{p2} \cos \delta \sqrt{P} \\
 &+ \frac{1}{3} \Phi_{max} (T_{s1} R_s - T_{p1} R_p) T_{p2} \sqrt{\frac{1-P}{2}}
 \end{aligned} \quad (3.19)$$

Die Größen T_{s1}, T_{p1}, T_{s2} und T_{p2} sind die Transmissionen des Polarisators und des Analysators für das elektrische Feld in \vec{E}_s und \vec{E}_p Richtung, R_s und R_p sind die Reflektivitäten des Strahlteilers. Für Φ_{max} gilt: $\Phi_{max} \equiv \frac{2\pi}{\lambda_o} d n_2 I_{max}$. Aus den Komponentenparametern folgt: $\beta_s \ll \alpha_s \approx \alpha_p \ll \beta_p$. Damit kann β_s in Gleichung 3.15 vernachlässigt werden und für das Signal $F(\tau, \omega)$ des PG FROG gilt in guter Näherung:

$$\begin{aligned}
 F(\tau, \omega) &\sim \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \cdot \left(\frac{\alpha_p}{\beta_p} - i\hat{I}_{pumpe}(t - \tau) \right) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2 \\
 &+ \left| \frac{\alpha_s}{\beta_p} \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2
 \end{aligned} \quad (3.20)$$

Aus den Gleichungen 3.16 - 3.19 folgt, dass das "reale" FROG Signal auch bei optimaler Justage des Polarisationswinkels ($\delta = 0^\circ$) sowohl einen kohärenten Untergrund ($\alpha_p/\beta_p \neq 0$) als auch einen inkohärenten Untergrund ($\alpha_s/\beta_p \neq 0$) hat. Der zweite Term des kohärenten Untergrundes in Gleichung 3.18 ist unabhängig von δ und damit bleibt dieser Anteil für den Fall $P < 1$ auch bei optimaler Justage erhalten. Die Ursache dafür ist, dass es nach dem Polarisator einen unpolarisierten Anteil gibt, dessen Polarisationszustand im Kerrmedium nicht verändert wird.

Mit einem großen Kontrastverhältnis des Analysators kann der inkohärente Untergrund α_s/β_p minimiert werden. Der kohärente Untergrund α_p/β_p wird neben dem Polarisationswinkel und dem Polarisationsgrad durch den Polarisator bestimmt. Während der kohärente Untergrund linear mit dem Polarisationswinkel δ zunimmt, bleibt der inkohärente Untergrund in guter Näherung konstant.

Die Abbildungen 3.5 a)-d) zeigen die numerisch erzeugten FROG Signale $F(\tau, \omega)$ sowie die Korrelation $f_1(\tau)$ und das Frequenzmoment $f_2(\tau)$ für einen Beispulspuls, und zwar im Vergleich zwischen dem "idealen" und "realen" PG FROG Aufbau. Der Beispulspuls ist ein gaußförmiger Doppelpuls mit den Pulsdauern $\tau_{p1} = 250\text{fs}$ und $\tau_{p2} = 100\text{fs}$ sowie der linearen Frequenzmodulation $b = 30\text{ps}^{-2}$ und der Selbstphasenmodulation $q = 2$:

$$\begin{aligned} I(t) &= \exp(-4 \log(2) (t/\tau_{p1})^2) + 0.3 \exp(-4 \log(2) ((t - 300\text{fs})/\tau_{p2})^2) \\ \Phi(t) &= \frac{1}{2} b t^2 - q I(t) \end{aligned}$$

Für die in Tabelle 3.3 angegebenen Komponentenparameter ergeben sich somit bei einer Intensität $I_{max} = 10\text{GW}/\text{cm}^2$ und $\delta = 0^\circ$ für den kohärenten und inkohärenten Untergrund im "realen" PG FROG folgende Werte: $\alpha_p/\beta_p = 0.15$ und $\alpha_s/\beta_p = 0.17$.

In den FROG Signalen (Abbildung 3.5 a) und b)) und in den Frequenzmomenten (Abbildung 3.5 d)) zeigt sich qualitativ, dass sich der Schwerpunkt der Spektren mit der Verzögerung τ zu größeren Frequenzen verschiebt. Die Abweichung von einem linearen Anstieg ergibt sich durch den Term der Selbstphasenmodulation und der Doppelpulsstruktur. Für das "reale" FROG Signal in Abbildung 3.5 b) ist im Bereich großer und kleiner Verzögerungen τ ein Untergrundspektrum zu erkennen (Pfeile), das sowohl aus dem kohärenten als auch aus dem inkohärenten Untergrund resultiert. Die Korrelationen $f_1(\tau)$ in Abbildung 3.5 c) sind im Maximum auf eins normiert und unterscheiden sich nur um eine verzögerungsunabhängige Konstante (siehe Gleichung 3.23). Besonders deutlich wird der Unterschied bei dem Vergleich der Frequenzmomente $f_2(\tau)$ in Abbildung 3.5 d). Für diese besteht nur im Bereich $\tau \approx 0$ eine Übereinstimmung und es ergibt sich außerhalb eine starke qualitative und quantitative Abweichung zwischen dem "realen" und "idealen" PG FROG. Aufgrund des kohärenten Untergrundes ergeben sich durch die Bildung des Betragsquadrates in Gleichung 3.20 Mischterme, die das "reale" FROG Signal im Vergleich zum "idealen" FROG Signal modulieren.

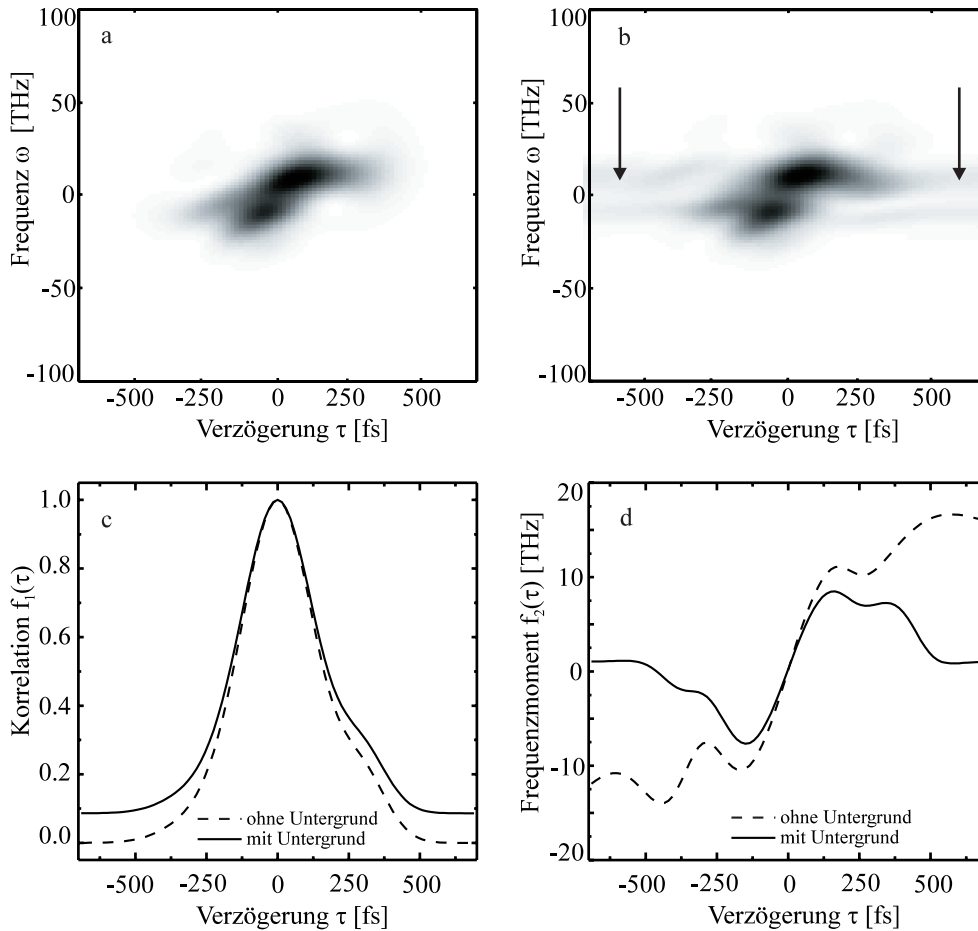


Abbildung 3.5: a: "ideales" PG FROG Signal ohne Untergrund, b: "reales" PG FROG Signal mit kohärentem und inkohärentem Untergrund, c: "ideale" und "reale" Korrelation $f_1(\tau)$, d: "ideales" und "reales" Frequenzmoment $f_2(\tau)$

Bei der bisherigen Betrachtung wird angenommen, dass das räumliche Profil des Pumpulses im Linienfokus homogen ist. Der fs Laserpuls hat nach der Frequenzverdopplung in guter Näherung ein gaußförmiges Profil. Nach dem dreifachen Durchgang im KrF Verstärker sollte der Laserpuls in Sättigung sein und ein homogenes räumliches Profil aufweisen. Mit dem verwendeten fs Lasersystem konnte kein homogenes Profil erzielt werden, da die Entladung im verwendeten Verstärker wahrscheinlich nicht homogen genug war. Wie sich ein inhomogenes Profil im Linienfokus auf das PG FROG Signal auswirkt, wird im Folgenden dargestellt. Die Ausbreitungsrichtung von Pump- und Probepuls ist die z-Achse, wenn von dem Winkel φ zwischen Pump- und Probepuls abgesehen wird. In der Abbildung 3.6 ist der Linienfokus schematisch dargestellt. Für jedes kleine Flächenelement $\Delta x \Delta y$ um einen Punkt (x, y) im Linienfokus können die Profile des Pump- und Probepulses als konstant

angenommen werden und mit der Gleichung 3.20 ergibt sich folgendes FROG Signal:

$$F(x, y, \tau, \omega) \sim \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(x, y, t) \cdot \left(\frac{\alpha_p}{\beta_p} - i \hat{I}_{pumpe}(x, y, t - \tau) \right) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2 \quad (3.21)$$

$$+ \left| \frac{\alpha_s}{\beta_p} \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(x, y, t) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2$$

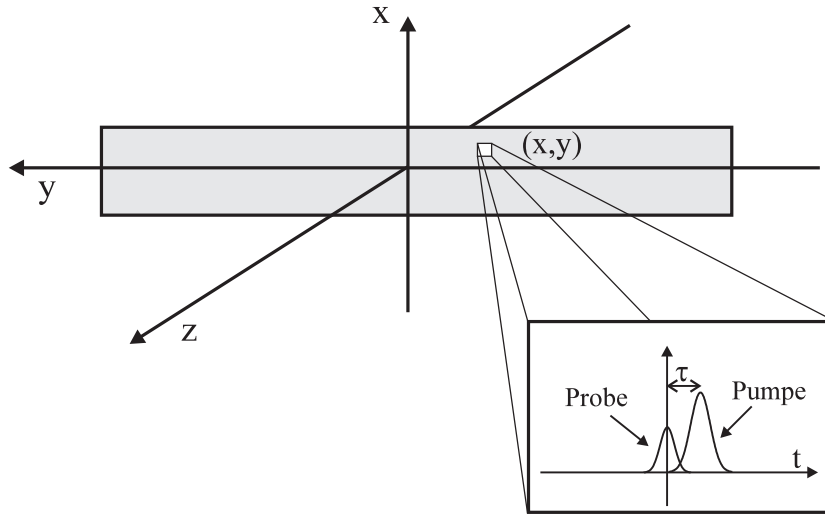


Abbildung 3.6: Einfluss des räumlichen Profils im Linienfokus auf das FROG Signal

Für die Integration des FROG Signals in Gleichung 3.21 über die x-Achse können folgende Annahmen für den Pump- und Probepuls im Linienfokus gemacht werden:

- Die zeitlichen Amplituden- und Phasenverläufe von Pump- und Probepuls sind im Linienfokus homogen:

$$E(x, y, t) = E(x, y)E(t), \quad \hat{I}_{pumpe}(x, y, t) \sim |E(x, y)|^2 |E(t)|^2$$

- Die normierten Profile von Pump- und Probepuls sind identisch:

$$|E(x, y)|^2 \sim \hat{I}_{pumpe}(x, y)$$

- Die Profilform in x-Richtung ist über den Linienfokus konstant:

$$\hat{I}_{pumpe}(x, y) = \hat{I}_{pumpe}(x) \hat{I}_{pumpe}(y)$$

Mit diesen Annahmen und mit einem auf eins normierten Intensitätsverlauf $\hat{I}(t)$ ergibt sich folgendes FROG Signal:

$$F(\tau, \omega) = \text{Profil}(\tau) \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \cdot \left(\frac{\alpha_p}{\beta_p} - i \text{Profil}(\tau) \hat{I}(t - \tau) \right) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2$$

$$+ \text{Profil}(\tau) \left| \frac{\alpha_s}{\beta_p} \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2 \quad (3.22)$$

Die Inhomogenität von Pump- und Probepuls im Linienfokus wird durch die Profilkfunktion $\text{Profil}(\tau)$ beschrieben: $\text{Profil}(\tau = y \sin \varphi / c_o) \sim \int I(x) dx$. Die räumliche y -Achse wird im Einzelschussaufbau durch $\tau = y \sin \varphi / c_o$ in eine Verzögerungsachse transformiert (siehe Abschnitt 3.3.2). Die Profilkfunktion $\text{Profil}(\tau)$ ist auf eins normiert und dimensionslos. Aus der Gleichung 3.22 folgt, dass ein inhomogenes räumliches Profil im Linienfokus einen erheblichen Einfluss auf das PG FROG Signal hat und ohne Berücksichtigung einen erheblichen systematischen Fehler verursacht.

3.3.4 Signalrekonstruktion im PG FROG

Bei der Rekonstruktion des elektrischen Feldes $E(t)$ aus dem gemessenen PG FROG Signal $F(\tau, \omega)$ müssen der kohärente und inkohärente Untergrund sowie das räumliche Profil im Linienfokus berücksichtigt werden, um eine korrekte Charakterisierung sicherzustellen. Der kohärente (α_p / β_p) und inkohärente (α_s / β_p) Untergrund ergeben sich aus den Parametern der Komponenten (siehe Tabelle 3.3) und der Intensität aus den Gleichungen 3.16 - 3.19. Um den Einfluss des Strahlprofils bei der Rekonstruktion zu berücksichtigen, wird ein Signal mit einem zusätzlichen Laserschuss bei abgeblocktem Pumpuls aufgenommen. Aus dieser zusätzlichen Untergrundaufnahme wird die Profilkfunktion $\text{Profil}(\tau)$ bestimmt, indem dieses Untergrundsignal entlang der x -Achse (siehe Abbildung 3.6) integriert wird. Die Profilkform weist nur eine sehr geringe Variation zwischen verschiedenen Schüssen auf, was darauf zurückzuführen ist, dass sich die räumlichen Entladungseigenschaften des KrF Verstärkers nur auf einer längeren Zeitskala verändern. Deshalb kann die Profilkfunktion $\text{Profil}(\tau)$ nach jeder FROG Aufnahme aus einer zusätzlichen Untergrundaufnahme bestimmt werden.

Wird der "Trebino" Algorithmus mit der "idealen" Torfunktion ($g(t) \sim \hat{I}(t)$) auf die gemessenen FROG Signale angewendet, so konvergiert der Algorithmus nicht. Trotz der Berücksichtigung der "realen" Torfunktion aus Gleichung 3.22 ergibt sich keine befriedigende Konvergenz mit den gemessenen FROG Signalen, da der Algorithmus nur wenig robust gegen Messfehler beim Untergrund und in der Profilkfunktion ist. Für die Auswertung der PG FROG Signale wird deshalb in dieser Arbeit die "Momentenmethode" verwendet. Die Beschränkung auf Modellfunktionen für die Intensität $I(t)$ und die Momentanfrequenz $\omega(t)$ wird durch die größere Robustheit dieser Methode ausgeglichen. Aus dem "realen" PG FROG Signal in der Gleichung 3.22 und den Gleichungen 3.5-3.7 ergeben sich die "reale" Korrelation $f_1(\tau)$ und das "reale" Frequenzmoment $f_2(\tau)$:

$$f_1(\tau) = \frac{\alpha_s^2 + \alpha_p^2}{\beta_p^2} \text{Profil}(\tau) \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{I}(t) dt + \text{Profil}^3(\tau) \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{I}(t) \hat{I}^2(t - \tau) dt \quad (3.23)$$

$$\begin{aligned}
 f_2(\tau) &= \frac{1}{f_1(\tau)} \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{I}(t) A_g^2(t-\tau) (\Phi'(t) + \Phi'_g(t-\tau)) dt \right\} \cdot \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{I}(t) A_g^2(t-\tau) dt \right\} \\
 &+ \frac{1}{f_1(\tau)} \left\{ \text{Profil}(\tau) \frac{\alpha_s^2}{\beta_p^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega \left| \widetilde{E}(\omega) \right|^2 d\omega \right\} \quad (3.24)
 \end{aligned}$$

$$\text{mit: } A_g^2(t) = \alpha_p^2 / \beta_p^2 \text{Profil}(\tau) + \text{Profil}^3(\tau) \widehat{I}^2(t) \quad (3.25)$$

$$\Phi_g(t) = \arctan \left(-\frac{\beta_p}{\alpha_p} \text{Profil}(\tau) \widehat{I}(t) \right) \quad (3.26)$$

Hier ist $\widehat{I}(t)$ der auf eins normierte Intensitätsverlauf. Die Funktionen $A_g(t)$ und $\Phi_g(t)$ in den Gleichungen 3.25 und 3.26 beschreiben die Torfunktion $g(t) = A_g(t) \cdot \exp(i\Phi_g(t))$ des "realen" PG FROG Signals ohne inkohärenten Untergrund. Der kohärente und der inkohärente Untergrund führen bei der Korrelation zu einem von τ unabhängigen additiven Term. Die dritte Potenz der Profildfunktion $\text{Profil}(\tau)$ im zweiten Term der Gleichung 3.23 zeigt den starken Einfluss auf die Korrelation $f_1(\tau)$. In der Gleichung 3.24 wird das Frequenzmoment $f_2(\tau)$ durch die Korrelation $f_1(\tau)$ normiert und der Einfluss des räumlichen Profils ist sehr viel geringer als im Fall der Korrelation. Für den Fall, dass der kohärente und inkohärente Untergrund verschwinden und somit für die Torfunktion $g(t) \sim \text{Profil}^{\frac{3}{2}}(\tau) \widehat{I}(t)$ gilt, hat die Profildfunktion $\text{Profil}(\tau)$ nach Gleichung 3.7 keinen Einfluss auf das Frequenzmoment $f_2(\tau)$:

$$f_2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{I}(t) \Phi'(t) \widehat{I}^2(t-\tau) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{I}(t) \widehat{I}^2(t-\tau) dt} \quad (3.27)$$

Die "Momentenmethode" besteht aus zwei Schritten, in denen zuerst eine Modellfunktion der Intensität $I(t)$ mit der Gleichung 3.23 an die gemessene Korrelation angepasst wird. In einem zweiten Schritt wird eine Modellfunktion der Momentanfrequenz $\omega(t) = \Phi'(t)$ so optimiert, dass das mit der Gleichung 3.24 berechnete Frequenzmoment $f_2(\tau)$ dem gemessenen Frequenzmoment entspricht. Die Intensität $I(t)$ wird dabei durch die Überlagerung von drei Gaußpulsen dargestellt:

$$\begin{aligned}
 I(t) &= \exp(-4 \log(2) (t/\tau_0)^2) + A_1 \exp(-4 \log(2) ((t - \Delta t_1)/\tau_1)^2) \\
 &+ A_2 \exp(-4 \log(2) ((t - \Delta t_2)/\tau_2)^2)
 \end{aligned}$$

Hier sind $A_{i=1,2}$ die Amplituden, $\Delta t_{i=1,2}$ die zeitlichen Verschiebungen und $\tau_{i=0,1,2}$ die Pulsdauern der einzelnen Gaußpulse, d.h., die Intensität $I(t)$ wird durch sieben Parameter festgelegt. Für die Anpassung an die gemessene Korrelation wird ein weiterer freier Parameter $\Lambda = (\alpha_s^2 + \alpha_p^2) / \beta_p^2$ optimiert, mit dem die Geräteparameter zusammengefasst

werden. Der Parameter Λ wird im zweiten Schritt so verwendet, dass nur noch das Verhältnis zwischen dem kohärenten und inkohärenten Untergrund, welches nicht mehr von der Intensität abhängig ist, festgelegt werden muss. Für die Berechnung des Frequenzmomentes wird der angepasste Intensitätsverlauf aus dem ersten Schritt benutzt. Die Modellfunktion für die Momentanfrequenz $\omega(t)$ wird durch acht äquidistante Stützstellen im Bereich $I(t) \geq 0.1$ parametrisiert. Mit einer "Spline" Interpolation werden weitere Punkte auf der Verzögerungsachse τ berechnet, die für die Berechnung des Frequenzmomentes notwendig sind. Zusätzlich wird eine lineare Frequenzmodulation $b\tau$ addiert, wobei b ein freier Parameter ist.

3.3.5 Ergebnisse

In diesem Abschnitt werden experimentelle Ergebnisse zur Charakterisierung des Femtosekunden - Lasersystems im Ultravioletten vorgestellt. Die Pulsdauer der UV fs Laserpulse wird vor allem durch die Justage der DFDL Stufe im Femtosekunden-Farbstofflaser bestimmt. Zusätzlich können die lineare Frequenzmodulation b und die Pulsdauer τ_p auf zwei unterschiedliche Arten eingestellt werden:

1. Der UV Eingangspuls in den KrF Verstärker ("Seedpuls") kann mit Filtern abgeschwächt und somit die Pulsenergie des verstärkten UV fs Laserpulses eingestellt werden. Die ebenfalls variierte Intensität bewirkt in den Verstärkerfenstern eine unterschiedliche Selbstphasenmodulation.
2. Im Prismenkompressor wird die spektrale Phasenmodulation des Laserpulses $\tilde{\Phi}(\omega)$ reduziert und dadurch die Pulsdauer τ_p minimiert. Für einen linear frequenzmodulierten Puls können mit dem Prismenkompressor sowohl die Halbwertsbreite τ_p als auch der Parameter b variiert werden.

Der UV fs Laserpuls erfährt in den CaF₂ Fenstern des KrF Verstärkers sowohl eine lineare Dispersion (GVD, siehe Abschnitt 2.2.1) als auch eine intensitätsabhängige Selbstphasenmodulation (siehe Abschnitt 2.2.3). Durch die Pulsenergie und die Pulsdauer wird die Intensität beim Durchgang der Verstärkerfenster und damit die Selbstphasenmodulation festgelegt. Die Selbstphasenmodulation eines gaußförmigen fs Laserpulses kann in erster Näherung ($\exp(x) \approx 1 + x$) als lineare Frequenzmodulation b_{SPM} beschrieben werden:

$$\begin{aligned} \Phi_{SPM} &= \Phi_{max} \exp(-4 \log(2)(t/\tau_p)^2) \\ &\approx \Phi_{max} \frac{-4 \log(2)}{\tau_p^2} t^2 + \Phi_{max} = \frac{1}{2} b_{SPM} t^2 + \Phi_{max} \end{aligned}$$

Die Abbildung 3.7 zeigt die Abhängigkeit der Pulsenergie nach dem Verstärker von der Eingangsenergie. Die Pulsenergie wird mit einem pyroelektrischen Detektor gemessen,

und die Eingangsenergie ist auf die maximale Eingangsenergie normiert. Die Energie in der ASE ist hier zu vernachlässigen. Das Diagramm zeigt, dass durch die Einstellung der Eingangsenergie zwischen 1% – 100% die maximale Intensität I_{max} und damit die lineare Phasenmodulation b_{SPM} um etwa eine Größenordnung variiert werden können.

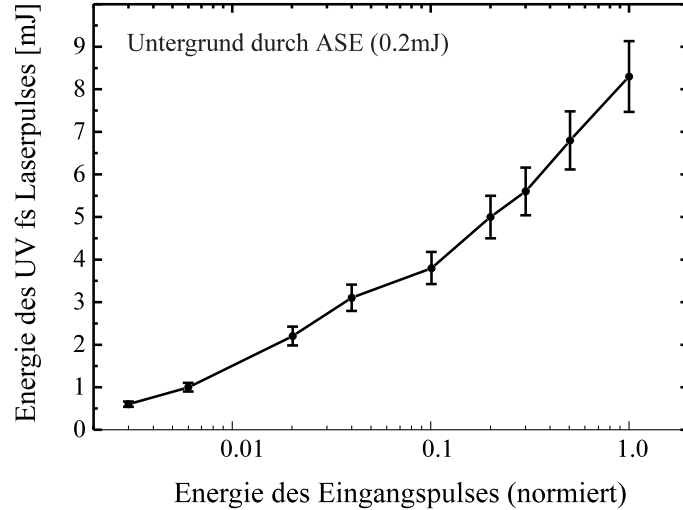


Abbildung 3.7: Abhängigkeit der Pulsenergie von der Energie des Eingangspulses

In den Abbildungen 3.8 a)-d) sind das PG FROG Signal $F(\tau, \omega)$ (a), der rekonstruierte Intensitäts- bzw. Phasenverlauf (b), die Korrelation $f_1(\tau)$ (c), das Frequenzmoment $f_2(\tau)$ (c) und die Profilfunktion $\text{Profil}(\tau)$ (d) eines UV fs Laserpulses dargestellt. Im FROG Signal ist die spektrale Wellenlängenachse des Spektrographen in eine Frequenzachse transformiert, wobei die Mittenfrequenz ω_0 weggelassen wird. In dieser Messung wird der Eingangspuls nicht abgeschwächt und die Momentanfrequenz $\omega(t)$ des Ausgangspulses sollte durch die Selbstphasenmodulation näherungsweise linear moduliert werden. In der Abbildung 3.8 c) werden die gemessene Korrelation durch Quadrate und das gemessene Frequenzmoment durch Kreise dargestellt. Die ausgewerteten Momente sind hier durch Linien dargestellt (— bzw. --) und passen die Messpunkte sehr gut an. Die lineare Frequenzmodulation des vermessenen UV fs Laserpulses zeigt sich quantitativ in dem gemessenen Frequenzmoment in Abbildung 3.8 c), denn innerhalb der Halbwertsbreite der Korrelation steigt das Frequenzmoment linear mit der Verzögerung an. Qualitativ ist diese Verschiebung auch im FROG Signal zu erkennen. Die rekonstruierte Phase $\Phi(t)$ in Abbildung 3.8 b) zeigt den erwarteten quadratischen Verlauf und innerhalb der Halbwertsbreite der Intensität $I(t)$ ergibt sich für die lineare Frequenzmodulation ein Wert von $b = (40.3 \pm 0.8) ps^{-2}$. Der Intensitätsverlauf $I(t)$ in Abbildung 3.8 b) ergibt eine Pulsdauer $\tau_p = 350 \pm 61 fs$ und zeigt im Bereich der hinteren Flanke eine leichte Asymmetrie. Bei der vollständigen Kompensation der spektralen Phase $\tilde{\Phi}(\omega)$ ergibt sich für einen Bandbreite begrenzten Laserpuls eine minimale Pulsdauer $\tau_{p,min} = 158 fs$. In der Abbildung 3.8 d) sind

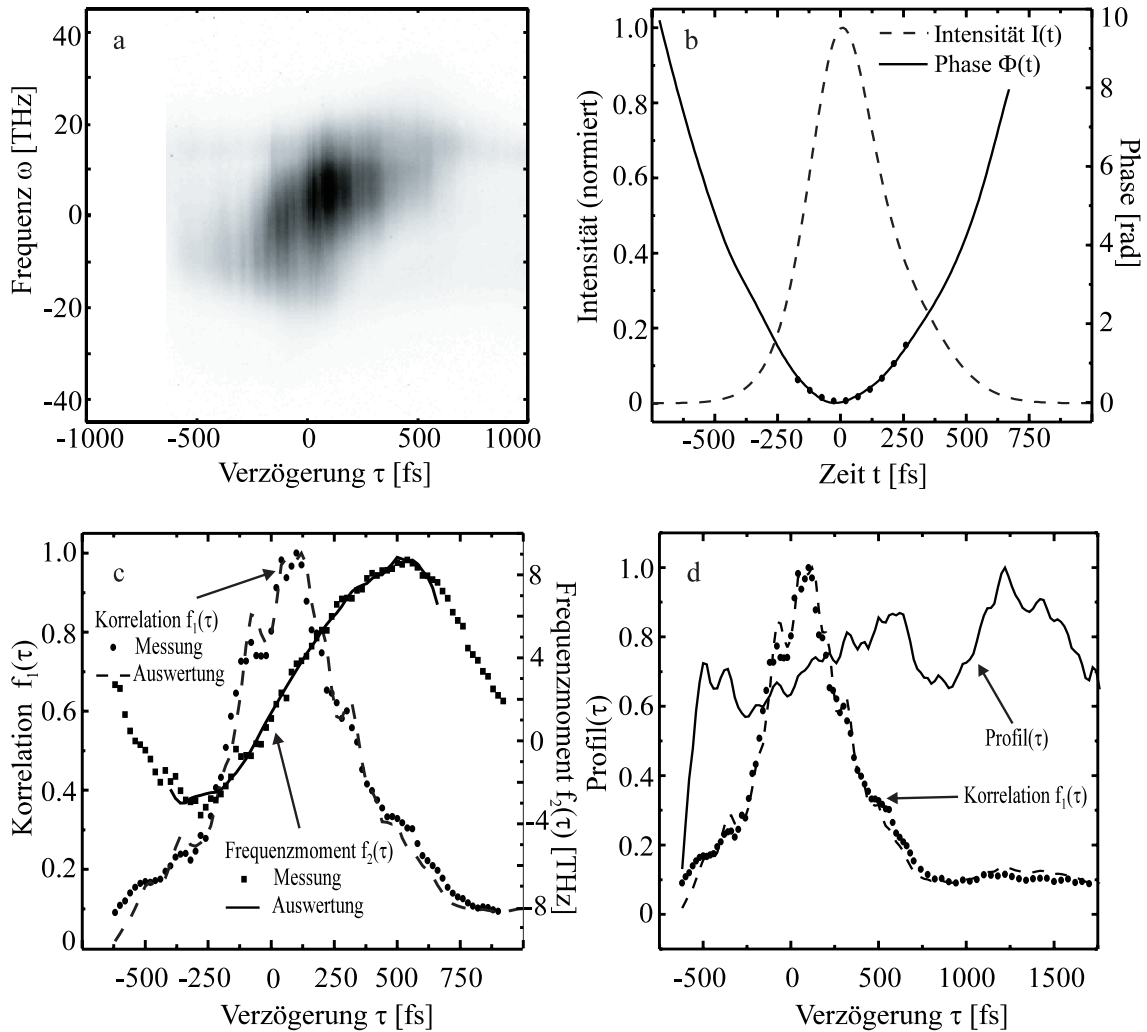


Abbildung 3.8: a: PG FROG Signal, b: rekonstruierte Intensität $I(t)$ und Phase $\Phi(t)$, c: Korrelation $f_1(\tau)$ und Frequenzmoment $f_2(\tau)$, d: Profilkurve $\text{Profil}(\tau)$: Die Auswertung erfolgt mit der "Momentenmethode" und ergibt für den UV fs Laserpuls eine Halbwertsbreite $\tau_p = 350 \pm 61 \text{ fs}$. Die quadratische Phasenmodulation hat im Bereich der Halbwertsbreite einen Wert von $b = (40.3 \pm 0.8) \text{ ps}^{-2}$.

die Profilkurve $\text{Profil}(\tau)$ und die Korrelation dargestellt. Im Bereich $\tau = (500-1500) \text{ fs}$ zeigen sich typische Inhomogenitäten. Der Einfluss des Profils auf die gemessene Korrelation ist in der Abbildung 3.8 c) deutlich an den Modulationen im gemessenen Signal zu erkennen, während das gemessene Frequenzmoment weniger strukturiert ist.

Von zwei weiteren UV fs Laserpulsen sind in der Abbildung 3.9 die PG FROG Signale, die gemessenen und ausgewerteten Momente $f_1(\tau)$ und $f_2(\tau)$ sowie die rekonstruierte Intensität $I(t)$ und Phase $\Phi(t)$ dargestellt. Bei dem UV fs Laserpuls in den Abbildungen 3.9 1a-c) ist die Eingangsenergie auf 0.6% abgeschwächt worden. Die Abbildungen 3.9 2a-c) zeigen einen UV fs Laserpuls nach dem Durchgang des Prismenkompressors, wobei der UV fs Laserpuls vor dem Prismenkompressor typischerweise dem in Abbildung 3.8

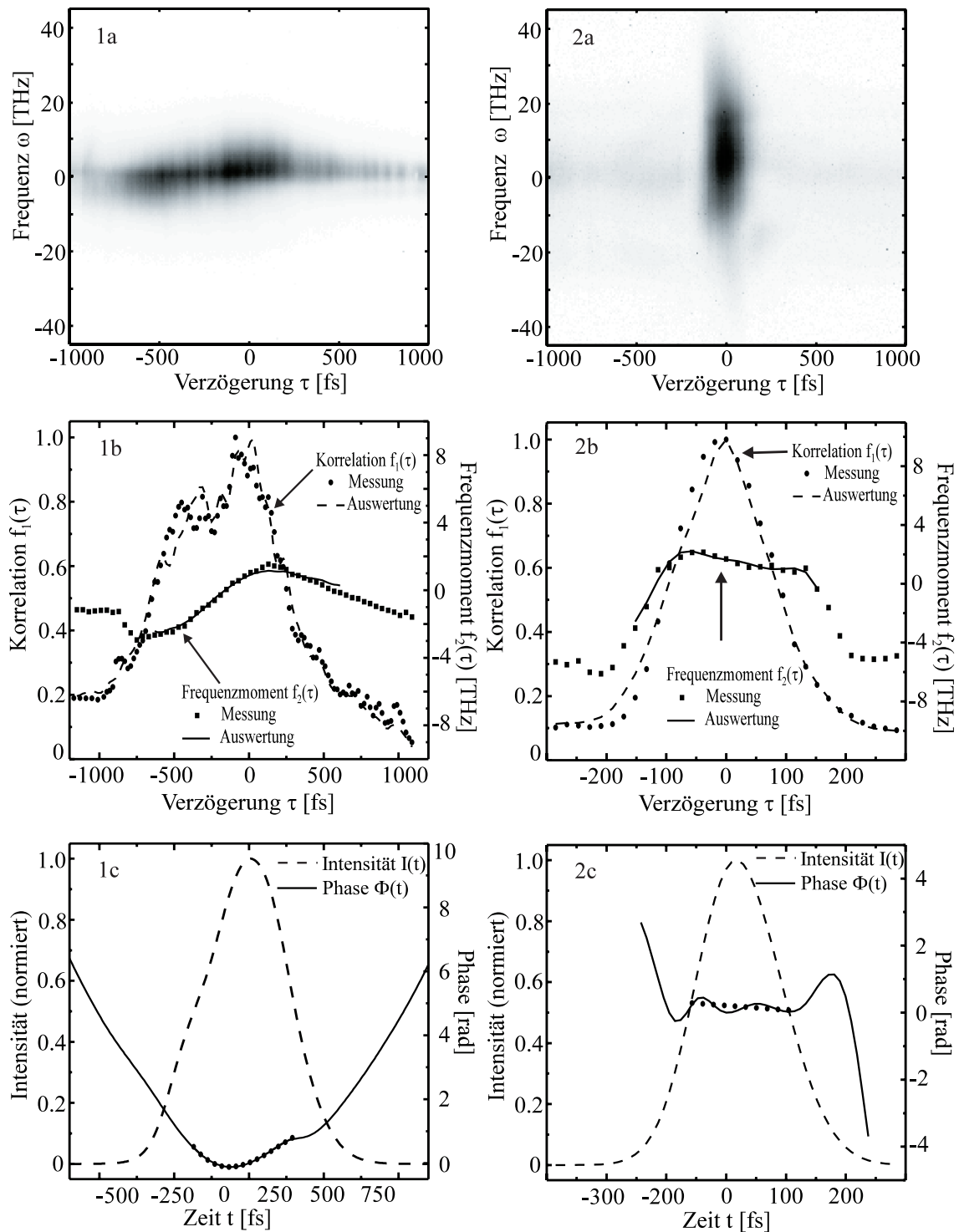


Abbildung 3.9: a: PG FROG Signal, b: Korrelation $f_1(\tau)$, b: Frequenzmoment $f_2(\tau)$ und c: rekonstruierter Intensitäts- und Phasenverlauf von UV fs Laserpulsen:

1: (0.6% Eingangsenergie) $\tau_p = 680 \pm 100 \text{ fs}$, $b = (10.8 \pm 0.1) \text{ ps}^{-2}$

2: (Prismenkompressor) $\tau_p = 171 \pm 26 \text{ fs}$, $b \approx 0 \text{ ps}^{-2}$

entspricht. Die Verzögerungs- und Frequenzachse in den FROG Signalen der Abbildungen 3.8 a) sowie 3.9 1a) und 2a) sind gleich. Die Koordinatenachsen für die Momente und die rekonstruierte Intensität und Phase sind an die jeweiligen Verläufe angepasst.

Schon bei den PG FROG Signalen wird ein qualitativer Unterschied deutlich. Im Vergleich zur Abbildung 3.8 a) ist das PG FROG Signal in Abbildung 3.9 1a) über einen größeren Bereich der Verzögerungsachse verteilt und die spektrale Bandbreite ist kleiner. Daraus folgt, dass der fs Laserpuls mit der geringeren Eingangsenergie zeitlich länger ist und eine geringere Phasenmodulation aufweist. Die Pulsdauer des UV fs Laserpulses beträgt $\tau_p = 680 \pm 100 fs$. Die unterschiedlichen Pulsdauern ergeben sich durch die Justage des Farbstofflasersystems und aus der Pulsdauer der VIS fs Laserpulse, wobei diese großen Unterschiede für das verwendete Femtosekunden-Lasersystem nicht ungewöhnlich sind. Die Phase $\Phi(t)$ in Abbildung 3.9 1c) zeigt innerhalb der Halbwertsbreite einen quadratischen Verlauf mit einer linearen Frequenzmodulation $b = (10.8 \pm 0.1) ps^{-2}$. Die Frequenzmodulation ist hier aufgrund der geringen Selbstphasenmodulation reduziert und es bleibt nur die Auswirkung der GVD in den Fenstern des KrF Verstärkers übrig. Bei größeren Verzögerungen gibt es Abweichungen vom quadratischen Verlauf, was auf den asymmetrischen Intensitätsverlauf und auf Frequenzmodulationen höherer Ordnung zurückzuführen ist. Im Vergleich zu den anderen beiden PG FROG Signalen zeigt sich, dass in Abbildung 3.9 2a) das PG FROG Signal nahezu senkrecht zur Ordinate ist und damit eine geringe zeitliche Frequenzmodulation aufweist. Ebenfalls lässt sich schon qualitativ erkennen, dass die Pulsdauer kleiner, aber die spektrale Bandbreite vergleichbar mit der in Abbildung 3.8 a) ist. Das gemessene Frequenzmoment zeigt hier innerhalb der Halbwertsbreite der Korrelation einen flachen Verlauf. Die Auswertung des Intensitätsverlaufes ergibt eine Pulsdauer von $\tau_p = 171 \pm 26 fs$, die im Bereich des Fourierlimits des Pulses in Abbildung 3.8 liegt. Der Phasenverlauf $\Phi(t)$ in Abbildung 3.9 2c) zeigt im Bereich der Halbwertsbreite der Intensität einen flachen, aber leicht modulierten Verlauf ($b \approx 0 ps^{-2}$), der auf eine unvollständige Kompensation der Phase im Spektralbereich zurückzuführen ist. Der Abstand der Prismen ist hier im Bereich der optimalen Kompensation.

Die dargestellten Messergebnisse und deren Auswertung zeigen, dass mit dem verwendeten PG FROG Aufbau und der "Momentenmethode" die UV fs Laserpulse zeitlich charakterisiert werden können, und zwar unter Berücksichtigung einer "realen" Signalentstehung. Damit steht mit dem vorhandenen PG FROG Aufbau eine Referenz zur Messung der Pagefunktion von UV fs Laserpulsen zur Verfügung.

Kapitel 4

Zeit-Frequenzverteilungen

4.1 Darstellung der Zeit-Frequenzverteilungen nach COHEN

Das FROG Signal $F(\tau, \omega)$ hat sowohl eine Frequenzachse ω als auch eine Verzögerungs- bzw. Zeitachse τ . Durch Cohen [43] wird eine Klasse von Zeit-Frequenzverteilungen $C(\tau, \omega)$ definiert, die aus einem zeitlich transienten Signal $s(t)$ berechnet wird:

$$C(\tau, \omega) \equiv \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}\tau - i\bar{\omega}\omega + i\bar{\tau}t} \Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega}) s^*(t - \frac{1}{2}\bar{\omega}) s(t + \frac{1}{2}\bar{\omega}) dt d\bar{\omega} d\bar{\tau} \quad (4.1)$$

Der so genannte Kern $\Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ legt die verschiedenen Zeit-Frequenzverteilungen fest. In der vorliegenden Arbeit ist das Signal $s(t)$ die elektrische Feldstärke $E(t)$ in komplexer Schreibweise. Zu den Cohenfunktionen $C(\tau, \omega)$ gehören als bekannte Beispiele die Wignerfunktion $W(\tau, \omega)$ und die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$. Der Übersichtsartikel von Cohen [43] gibt einen Überblick über Anwendungsbereiche der verschiedenen Zeit-Frequenzverteilungen, wie z.B. in der Spracherkennung, in der Radartechnologie oder in der Quantenmechanik. Für das FROG Signal $F(\tau, \omega)$ wird der Kern $\Theta_F(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ durch die Torfunktion $g(t)$ bestimmt:

$$\Theta_F(\bar{\tau}, \bar{\omega}) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} g^*(t - \frac{1}{2}\bar{\omega}) e^{-i\bar{\tau}t} g(t + \frac{1}{2}\bar{\omega}) dt \quad (4.2)$$

Für die Kerne der Wignerfunktion $\Theta_W(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ und der Pagefunktion $\Theta_P(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ gilt: $\Theta_W(\bar{\tau}, \bar{\omega}) \equiv 1$ und $\Theta_P(\bar{\tau}, \bar{\omega}) \equiv \exp(i\bar{\tau}|\bar{\omega}|/2)$. Durch diese allgemeine Darstellung mit einem Kern $\Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ können wichtige Eigenschaften der Zeit-Frequenzverteilungen hergeleitet werden [43].

4.2 Pagefunktion $P(\tau, \omega)$

In diesem Abschnitt wird die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ genauer beschrieben und es wird das Prinzip zur Messung der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen mit optisch induzierten Plasmaschaltern dargestellt. Die Motivation, die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen zu messen und diese dadurch zeitlich zu charakterisieren, lässt sich wie folgt zusammenfassen:

1. Das elektrische Feld $E(t)$ kann aus der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ ohne iterativen Algorithmus direkt bestimmt werden (siehe Abschnitt 4.3). Den gleichen Vorteil gegenüber der FROG Methode hat nach vorliegendem Kenntnisstand¹ nur die SPIDER Methode, die allerdings nur im sichtbaren und längerwelligen Spektralbereich eingesetzt werden kann [42].
2. Das hier verwendete Messprinzip ermöglicht prinzipiell die zeitliche Diagnostik vom XUV (EXtreme UltraViolett) bis zum infraroten Spektralbereich. In den Kapiteln 5 und 6 werden Messergebnisse im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich gezeigt. Im Abschnitt 6.3 werden als Ausblick Simulationsergebnisse im XUV vorgestellt.

Aus der Definition der Zeit-Frequenzverteilungen in Gleichung 4.1 und dem Kern der Pagefunktion $\Theta_P(\bar{\tau}, \bar{\omega}) \equiv \exp(i\bar{\tau}|\bar{\omega}|/2)$ kann die gebräuchliche Form der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ in Gleichung 4.3 hergeleitet werden [43]:

$$P(\tau, \omega) = \frac{\partial}{\partial \tau} \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\tau} E(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (4.3)$$

$$= \frac{\partial}{\partial \tau} \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) g_P(t - \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad \text{mit: } g_P(t) = \begin{cases} 0 & : t < 0 \\ 1 & : t \geq 0 \end{cases} \quad (4.4)$$

$$= \frac{\partial}{\partial \tau} (P_f(\tau, \omega)) \quad (4.5)$$

Aus den Gleichungen 4.4 und 4.5 folgt, dass die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ auch als die zeitliche Ableitung einer Zeit-Frequenzverteilung $P_f(\tau, \omega)$ dargestellt werden kann, die im Folgenden integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ genannt wird. Diese ist mathematisch äquivalent zum FROG Signal, wobei die Torfunktion $g_P(t)$ hier eine zeitliche Stufenfunktion ist.

In der Abbildung 4.1 ist das Prinzip zur Messung der Pagefunktion eines fs Laserpulses dargestellt, der hier einen gaußförmigen Intensitätsverlauf und keine zeitliche Phasenmodulation ($\Phi(t) = 0$) aufweist. Mit einem optischen Schalter, der einen stufenförmigen

¹Ausgenommen sind hier Methoden, in denen ein Referenzpuls verwendet wird, dessen Pulsdauer sehr viel kleiner ist als die zeitlichen Strukturen des zu vermessenden Pulses.

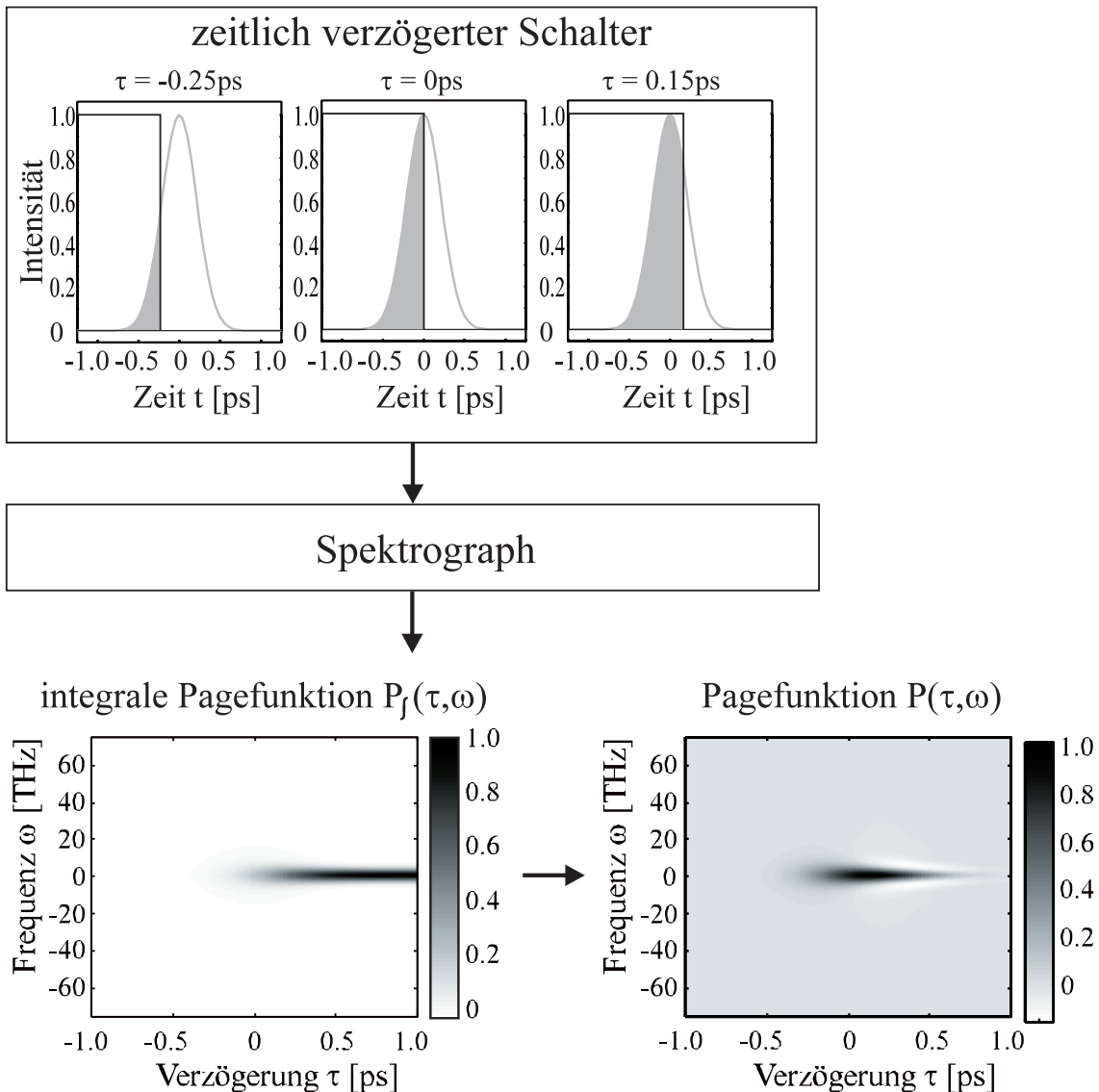


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des Prinzips zur Messung der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ und Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen: Mit einem optischen Schalter und einem Spektrographen wird das Spektrum des fs Laserpulses im Zeitbereich von $-\infty$ bis τ gemessen. Aus dieser integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ ergibt sich die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ durch die Ableitung nach der Verzögerung τ .

Transmissionsverlauf $T(t)$ hat und verzögert werden kann, und einem Spektrographen wird für jede Verzögerung τ das Spektrum des fs Laserpulses im Zeitbereich von $-\infty$ bis τ gemessen. Das bedeutet, dass für Verzögerungen $\tau \ll 0$ das gemessene Spektrum gleich null ist und für Verzögerungen $\tau \gg 0$ das Spektrum des ganzen fs Laserpulses gemessen wird. Für die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ wird die äquidistante Wellenlängenachse des Spektrographen in eine äquidistante Frequenzachse ω ohne Mittenfrequenz ω_o umgewandelt. Das Betragsquadrat in den Gleichungen 4.3 und 4.4 ergibt sich daraus, dass im

Spektrographen ein "langsamer" integrierender Detektor verwendet wird. Die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ ergibt sich aus der gemessenen integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ durch die numerische Ableitung nach der Verzögerung τ . Deshalb kann die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ im Gegensatz zur integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ auch negative Werte annehmen.

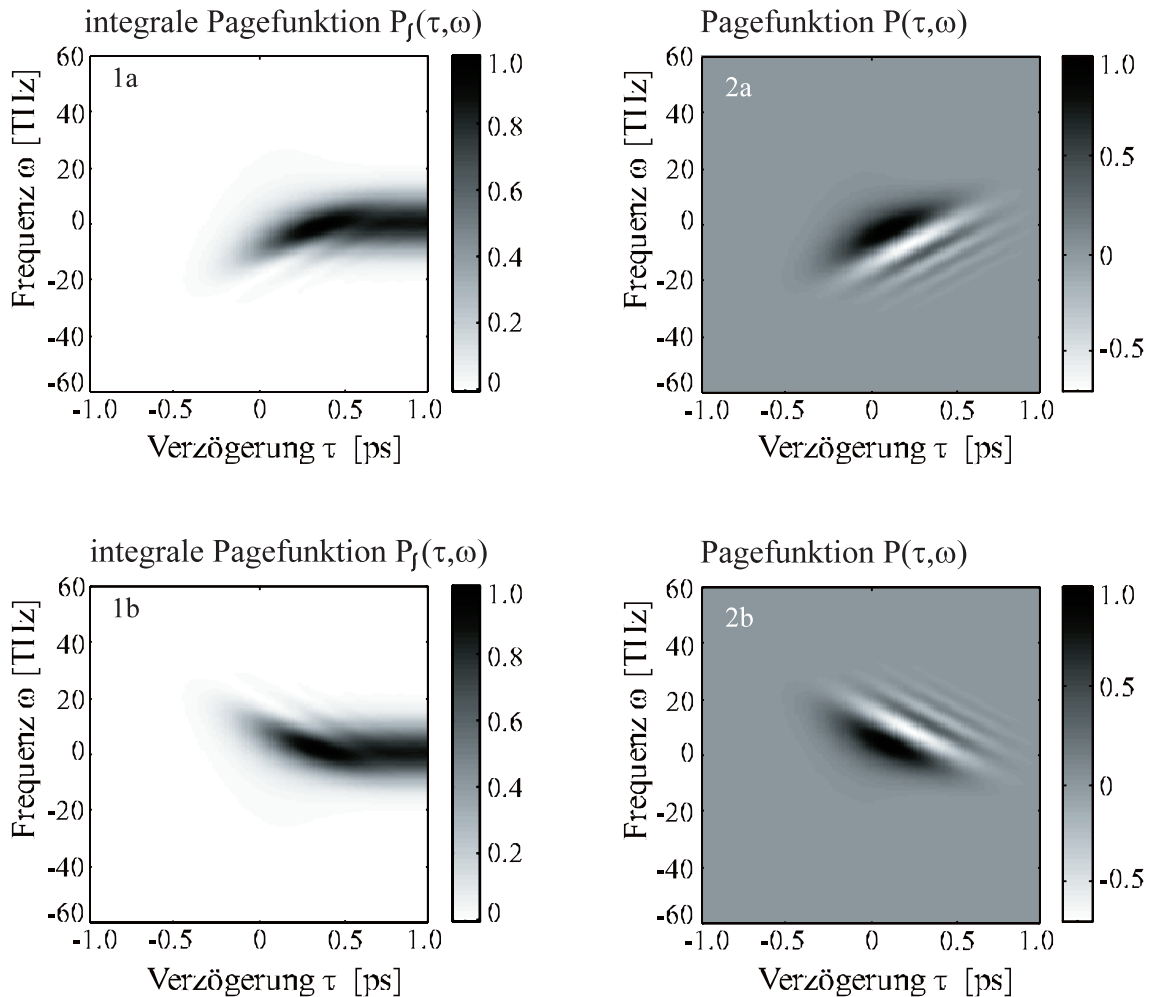


Abbildung 4.2: Integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ und Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ für fs Laserpulse mit positiver (a) und negativer (b) linearer Frequenzmodulation

Die Abbildung 4.2 zeigt die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ und die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ für zwei gaußförmige fs Laserpulse mit positiver (a) und negativer (b) linearer Frequenzmodulation. Diese Frequenzmodulation zeigt sich im Vergleich zur Abbildung 4.1 dadurch, dass sich bei der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ im Bereich $\tau \approx 0$ eine "bananenförmige" Struktur ausbildet. Die Spektren der integralen Pagefunktion verschieben sich bei positiver linearer Frequenzmodulation ($b > 0$) mit zunehmender Verzögerung τ von negativen zu positiven Frequenzen (Abbildung 4.2 1a), d.h., die Momentanfrequenz $\omega(t)$ nimmt mit der Zeit zu. Diese Veränderung des Schwerpunktes der Spektren mit der Verzögerung τ wird besonders in der abgebildeten Pagefunktion (Abbildung 4.2 2a) deutlich. Für den

Fall einer negativen linearen Frequenzmodulation ergeben sich die gleichen Signalformen, die aber bezüglich der Frequenzachse gespiegelt sind. Somit nimmt die Momentanfrequenz $\omega(t)$ mit der Zeit ab.

Die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ konnte mit einem hochauflösenden Spektrographen und einer Schmierbildkamera bisher nur für Pikosekunden-Laserpulse gemessen werden [53, 54]. Für fs Laserpulse ist die notwendige zeitliche Auflösung mit einer Schmierbildkamera nicht ausreichend, d.h., der Transmissionsverlauf $T(t)$ des optischen Schalters entspricht im Vergleich zur Pulsdauer τ_p nicht mehr einer Stufenfunktion. Für die zeitliche Diagnostik von fs Laserpulsen sind optisch induzierte Plasmaschalter in Gasen verwendet worden [55, 56], die ausschließlich die Phase $\Phi(t)$ des Probepulses verändern und mit denen nur der Intensitätsverlauf $I(t)$ von fs Laserpulsen gemessen werden kann (siehe Abschnitt 6.2). In Kapitel 5 wird gezeigt, dass ein optisch induzierter Plasmaschalter an dielektrischen Festkörperoberflächen auch für fs Laserpulse einen näherungsweise stufenförmigen Transmissionsverlauf hat. Nach vorliegendem Kenntnisstand wird ein derartiger Plasmaschalter in dieser Arbeit erstmals untersucht und als optischer Schalter zur Messung der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ bzw. Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen verwendet [57, 58]. Das Prinzip des optischen Schalters ist in der Abbildung 4.3 dargestellt und

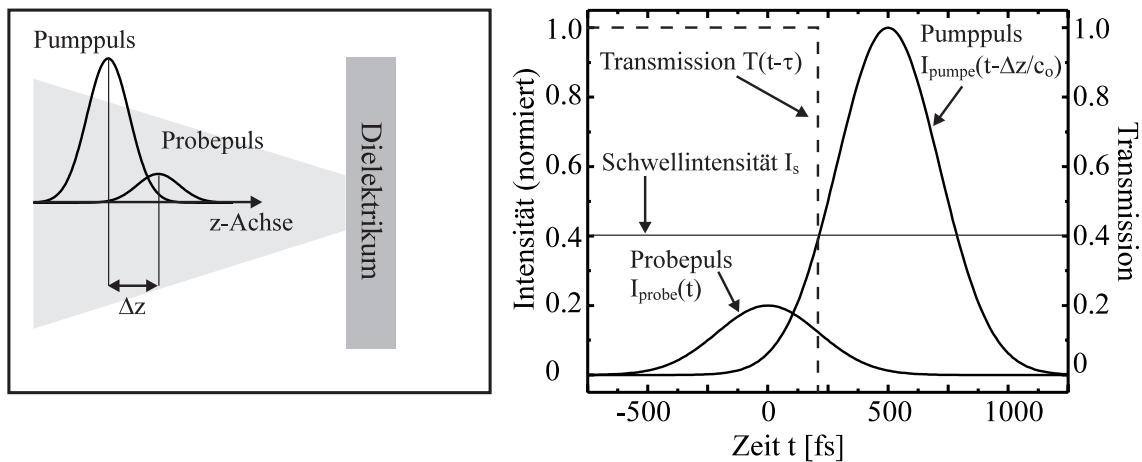


Abbildung 4.3: Prinzip des optisch induzierten Plasmaschalters: Ein intensiver Pumpimpuls wird auf die Oberfläche eines Dielektrikums fokussiert, das für einen schwächeren Probepuls transparent ist (links). Im Fokus ist die Intensität des Pumpimpulses ($I > I_s$) ausreichend, um durch optische Feldionisation ein Plasma zu erzeugen und eine ultraschnelle Änderung der Transmission $T(t)$ für den Probepuls hervorzurufen (rechts).

besteht darin, einen intensiven fs Laserpuls (Pumpimpuls) auf die Oberfläche eines Dielektrikums zu fokussieren, das für einen schwächeren Probepuls transparent ist. Der Pump- und der Probepuls werden im Fokus des Pumpimpulses räumlich überlagert. Im Fokus ist die Intensität des Pumpimpulses ausreichend, um durch optische Feldionisation (OFI, sie-

he Abschnitt 5.2) ein oberflächennahes Plasma zu erzeugen und damit eine ultraschnelle Änderung der Transmission $T(t)$ für den Probepuls hervorzurufen. Diese Änderung erfolgt bei einer für das Dielektrikum typischen Schwellintensität I_s . Durch einen variablen Laufweg Δz des Pumpulses kann dieser und damit auch die Transmissionsfunktion $T(t)$ zeitlich gegenüber dem Probepuls verzögert werden. Die Intensität des Probepulses ist zu gering, um ein Plasma zu erzeugen oder andere nichtlineare Effekte, wie z.B. Selbstphasenmodulation, zu bewirken.

4.3 Signalrekonstruktion aus der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$

Das Signal $s(t)$ lässt sich nach Cohen [43] bis auf einen konstanten Phasenfaktor aus der Zeit-Frequenzverteilung $C(\tau, \omega)$ und dem Kern $\Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ rekonstruieren:

$$s(t) = \frac{1}{2\pi s^*(0)} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{C(\tau, \omega)}{\Theta_C(\bar{\tau}, t)} e^{it\omega + i\bar{\tau}(\tau - t/2)} d\tau d\omega d\bar{\tau} \quad (4.6)$$

Mit der Gleichung 4.6 kann das elektrische Feld $E(t)$ direkt aus der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ rekonstruiert werden. Da im FROG Signal der Kern $\Theta_F(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ durch die Torfunktion $g(t)$ auch vom elektrischen Feld $E(t)$ abhängt (Tabelle 3.2), ist für die FROG Signale eine direkte Rücktransformation nicht möglich. Die Rücktransformation ist für die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ aufgrund der komplexen exponentiellen Phasenterme wenig robust gegen statistische und systematische Fehler in den experimentellen Daten. Das elektrische Feld $E(t) = \sqrt{I(t)}e^{i\Phi(t)}$ kann auch direkt aus den Momenten der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ rekonstruiert werden ([43], Herleitung im Anhang B):

$$p_1(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} P(\tau, \omega) d\omega = I(\tau) \quad (4.7)$$

$$p_2(\tau) \equiv \frac{1}{p_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega P(\tau, \omega) d\omega = \omega(\tau) \quad (4.8)$$

Aus der Gleichung 4.8 folgt, dass nur die Momentanfrequenz $\omega(t)$ rekonstruiert werden kann und somit die Phase $\Phi(t)$ nur bis auf eine feste konstante Phase bestimmt ist. Die Integration in Gleichung 4.7 bzw. die mit der Frequenz ω gewichtete Integration in Gleichung 4.8 sind im Vergleich zur Rücktransformation in Gleichung 4.6 numerisch robuster. Für die Momente der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ gilt ([43], Herleitung im Anhang B):

$$p_{f1}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} P_f(\tau, \omega) d\omega = \int_{-\infty}^{+\tau} I(t) dt \quad (4.9)$$

$$p_{f_2}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \omega P_f(\tau, \omega) d\omega = \int_{-\infty}^{+\tau} \omega(t) I(t) dt \quad (4.10)$$

Der Intensitätsverlauf $I(t)$ ergibt sich durch Ableiten des ersten Momentes $p_{f_1}(\tau)$ nach τ . Die Momentanfrequenz $\omega(t)$ kann aus dem zweiten Moment $p_{f_2}(\tau)$ durch Ableiten nach τ und Division mit der rekonstruierten Intensität $I(t)$ bestimmt werden. D.h., dass auch aus der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ der fs Laserpuls direkt rekonstruiert werden kann. Die Transmission $T(t)$ eines optischen Schalters mit endlicher Schaltzeit τ_T lässt sich, wie in Kapitel 5 gezeigt wird, in guter Näherung mit Hilfe der Fehlerfunktion² beschreiben:

$$T(t) = T_{min} + \Delta T/2 \left(1 + \operatorname{erf} \left(-\sqrt{4 \log(2)} t/\tau_T \right) \right) \quad (4.11)$$

Hier sind T_{min} die minimale Transmission des Schalters und ΔT die Differenz zwischen minimaler und maximaler Transmission. Die zeitliche Ableitung von $T(t)$ ergibt eine Gaußfunktion mit einer Halbwertsbreite τ_T . Der Abfall von $I(t)$ von 90% auf 10% erfolgt in der Zeit τ_T mit einem Fehler von kleiner 10%. Falls die Transmission $T(t)$ mit der Gleichung 4.11 genähert werden kann und der Intensitätsverlauf des Probepulses gaußförmig ist, hat das Moment $p_1(\tau)$ einen gaußförmigen Verlauf mit einer "verschmierten" Halbwertsbreite $\sqrt{\tau_T^2 + \tau_p^2}$. Für den Fall $\tau_T \leq \tau_p/5$ ergibt sich zwischen dieser "verschmierten" Halbwertsbreite und der Pulsdauer des Probepulses τ_p ein systematischer Fehler von kleiner 1%. Die numerischen Simulationen zeigen, dass sich für $\tau_T \leq \tau_p/5$ auch die Momentanfrequenz $\omega(t)$ aus den zweiten Momenten der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ und der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ mit geringer Abweichung zur vorgegebenen Originalfunktion rekonstruieren lässt.

Bei der Messung der Pagefunktion mit Hilfe eines optisch induzierten Plasmaschalters ist bisher nur die Transmission $T(t)$ bezüglich der Intensität berücksichtigt worden. Im Abschnitt 6.2 wird die Phasenmodulation des Probepulses durch den Plasmaschalter ausführlich dargestellt und diskutiert.

²Definition der Fehlerfunktion: $\operatorname{erf}(t) \equiv 2/\sqrt{\pi} \int_{-\infty}^t \exp(-t'^2) dt'$

Kapitel 5

Der optisch induzierte Plasmaschalter

Bei der Erzeugung von Plasmen durch die Fokussierung von intensiven fs Laserpulsen auf Festkörper und in Gase lassen sich zwei Zielrichtungen unterscheiden. Die eine ist die Diagnostik der Plasmaparameter, z.B. die Elektronendichte und -temperatur [9, 11] oder die thermodynamische Ausdehnung [10, 59, 60], sowie die Wechselwirkung des Plasmas mit den fs Laserpulsen, z.B. die Reflektivität und die Absorption [61]. Die zweite Zielsetzung ist die Anwendung, wie z.B. die Erzeugung von kurzwelliger Strahlung [7, 62, 63]. Eine ausführliche Zusammenfassung über die Wechselwirkung von intensiven Laserpulsen mit Materie wird in dem Übersichtsartikel [5] gegeben.

In dieser Arbeit steht eine Anwendung im Vordergrund, nämlich die Messung der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen mit einem optisch induzierten Plasmaschalter [57, 58]. Im folgenden Kapitel wird ein in der vorliegenden Arbeit entwickeltes numerisches Modell für die theoretische Beschreibung des optisch induzierten Plasmaschalters vorgestellt. In den Experimenten werden zwei Plasmaschalter mit unterschiedlichen Substraten (Quarz, Polyimid) für Probepulse im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich untersucht. Die Funktionsweise der Plasmaschalter wird anhand der Simulationsergebnisse diskutiert und diese werden mit den experimentellen Ergebnissen verglichen. Bei der theoretischen Beschreibung und in den Experimenten steht im Vordergrund, wie schnell sich die Transmission während des Schaltvorganges ändert, da für die Messung der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ die Schaltzeit τ_T mindestens einen Faktor 5 kleiner sein muss als die Pulsdauer des Pumpulses τ_p (siehe Kapitel 4.3). Wie auch in anderen Arbeiten gezeigt wird, bleibt die Transmission $T(t)$ nach dem Schaltvorgang für mehrere ps konstant [11, 56, 64], d.h., es ergibt sich der zur Messung der Pagefunktion notwendige stufenförmige Transmissionsverlauf. Ein weiterer experimentell zugänglicher Parameter ist die Dynamik $D = (T_{min} + \Delta T) / T_{min}$ des Plasmaschalters, also das Verhältnis zwischen minimaler und maximaler Transmission.

Die transiente Reflektivität ist in verschiedenen Arbeiten untersucht worden, allerdings ohne diese für die Pulsdiagnostik zu verwenden [12, 64, 65]. Im Vergleich zum Plasmaschalter in Transmission zeigt sich, dass die Dynamik des Schalters in Reflexion kleiner und die Schaltzeiten vergleichbar sind (siehe Abschnitt 5.4).

5.1 Grundlagen der Plasmaphysik

Für die theoretische Beschreibung des Plasmaschalters werden in diesem Abschnitt notwendige Begriffe und Zusammenhänge aus der Plasmaphysik zusammengefasst. Die optischen Eigenschaften von Plasmen sind schon im Abschnitt 2.2.1 hergeleitet worden. Die Ionisationsprozesse von dielektrischen Festkörperoberflächen werden ausführlich im Abschnitt 5.2 beschrieben.

Ein Plasma stellt ein Vielteilchensystem aus freien Elektronen und Ionen dar, in dem durch ständige Wechselwirkungen untereinander und mit Photonen verschiedene Energie- und Anregungszustände auftreten können. In der Plasmaphysik werden häufig statistische Verteilungsfunktionen verwendet, z.B. für die Elektronengeschwindigkeit oder die Ionisations- und Anregungszustände der Ionen, um ein Plasma im thermodynamischen Gleichgewicht zu beschreiben. Aufgrund der ultraschnellen Vorgänge im Plasmaschalter ist es schwierig und fraglich, ob die Plasmaparameter durch eine globale oder lokale Gleichverteilungsfunktion beschrieben werden können. Deshalb wird in dem hier vorgestellten einfachen Modell nicht die abgeleitete thermodynamische Elektronen- und Iontemperatur verwendet, sondern nur die mittlere kinetische Energie und Geschwindigkeit der Elektronen. In den angegebenen Formeln wird also nicht über eine Verteilungsfunktion gemittelt.

Der Basissatz zur Charakterisierung des Plasmas und zur Berechnung der weiteren Plasmaparameter besteht im Modell aus folgenden Größen:

- Elektronendichte N_e mit $[N_e] = 1/m^3$
- Ionendichte N_i mit $[N_i] = 1/m^3$
- kinetische Energie W_e und mittlere Geschwindigkeit v_e der Elektronen
- kinetische Energie W_i und mittlere Geschwindigkeit v_i der Ionen

Bei den Experimenten werden zwei unterschiedliche dielektrische Substrate verwendet: Quarz (SiO_2) und Polyimid ($[\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5]_n$). Für das Polyimidsubstrat werden im Modell die Stickstoffatome näherungsweise wie Sauerstoffatome behandelt. Die Ionendichte N_i ist im Folgenden immer die Summe über die Dichten der verschiedenen Ionenspezies, also z.B.

der dreifach geladenen Siliziumionen (N_{SiIV}) oder der einfach geladenen Kohlenstoffionen (N_{CI}):

$$\text{Quarz: } N_i = \sum_k N_{Sik} + N_{Ok} \quad \text{bzw.} \quad (5.1)$$

$$\text{Polyimid: } N_i = \sum_k N_{Ck} + N_{Ok} + N_{Hk} \quad (5.2)$$

Die kinetische Ionenenergie W_i und die mittlere kinetische Geschwindigkeit der Ionen sind ein Mittelwerte über alle Ionenspezies. Die **mittlerer Ionenladung** Z ist definiert durch: $Z = N_e/N_i$. Der **Ionisationsgrad** eines Elementes ist definiert als das Verhältnis zwischen der durch alle Ionenspezies dieses Elementes erzeugten Elektronendichte und der neutralen Atomdichte im Festkörper.

Mit der **Kopplungskonstante** Γ kann das Plasma klassifiziert werden. Diese ist definiert als das Verhältnis der mittleren potentiellen Energie pro Elektron W_{pot} zur thermischen Energie W_e [66]:

$$\Gamma = \frac{W_{pot}}{W_e} = \frac{Ze^2/(4\pi\epsilon_0 a)}{W_e} \quad \text{mit: Wigner-Seitz-Radius} \quad a = \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi N_i}} \quad (5.3)$$

Dabei ist ϵ_0 die elektrische Feldkonstante. Ein schwach gekoppeltes Plasma ($\Gamma < 1$) wird wie ein ideales Gas beschrieben. Bei stark gekoppelten Plasmen ($\Gamma > 1$) dominieren die Stöße zwischen den geladenen Teilchen gegenüber der thermischen Bewegung. Die Verteilungsfunktion für die Elektronengeschwindigkeit weicht hier im thermodynamischen Gleichgewicht von der Maxwellverteilung ab.

Aufgrund der elektrischen Rückstellfelder ist ein Plasma in einem makroskopischen Gebiet quasineutral [67]. Für den Fall eines thermodynamischen Gleichgewichtes ist die **Debyelänge** λ_D eine charakteristische Länge, über die temporäre Abweichungen von der Neutralität auftreten können bzw. ein von außen angelegtes elektrisches Potential abgeschirmt wird [67]:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 W_e}{N_e e^2}} \quad (5.4)$$

Die Gleichung 5.4 wird mit Hilfe der Boltzmann Statistik hergeleitet, so dass die Debyelänge λ_D nur dann eine sinnvoll Größe darstellt, wenn für die Anzahl der Elektronen N_D in der Debyesphäre gilt: $N_D = 4/3\pi N_e \lambda_D^3 \gg 1$.

Die **Stoßfrequenzen** zwischen den geladen Teilchen haben eine entscheidende Bedeutung bei der Beschreibung des Plasmas. Dabei ist zwischen der Elektronen-Ionen Stoßfrequenz ν_{ei} und der Elektronen-Elektronen Stoßfrequenz ν_{ee} zu unterscheiden, die folgende Prozesse im Plasma maßgeblich beeinflussen:

- Stoßabsorption des Laserfeldes durch das Plasma

- thermodynamische Ausdehnung des Plasmas
- Wärmeleitung

Die **kinetische Energie** W_e der freien Elektronen setzt sich zusammen aus der absorbierten Energie des Laserfeldes (W_{abs} , thermische Energie) und der Oszillationsenergie der freien Elektronen im Laserfeld (W_q , "Quiverenergie"):

$$W_e = W_{abs} + W_q = W_{abs} + \frac{1}{4} m_e \left(\frac{eE}{\omega_o m_e} \right)^2 \quad (5.5)$$

Dabei sind m_e die Elektronenmasse, e die Elementarladung, E die elektrische Feldstärke und ω_o die Frequenz des Laserfeldes.

Die Absorption des Laserfeldes durch das Plasma wird in den Experimenten durch die Ionisation des Festkörpers (siehe Abschnitt 5.2) und die so genannte **Stoßabsorption** (inverse Bremsstrahlung) bestimmt. Bei der Stoßabsorption werden die freien Elektronen im elektromagnetischen Feld beschleunigt und durch Coulombstreuung an den Ionen abgebremst. Die Coulombstreuung wird durch die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz ν_{ei} bestimmt und dominiert gegenüber der Streuung an neutralen Atomen, wenn der Ionisationsgrad größer als einige Prozent ist [67]. In der Bewegungsgleichung der freien Elektronen entspricht die Streuung einem Reibungsterm und die daraus resultierenden Verluste bewirken eine Aufheizung der freien Elektronen (siehe Abschnitt 2.2.1). Beim Übergang vom Dielektrikum zum vollständig ionisierten Plasma ist der Ionisationsgrad anfänglich kleiner als 10^{-3} und die Stöße an den neutralen Atomen werden im Vergleich zur Coulombstreuung relevant. Für das Modell des Plasmaschalters wird die Streuung an den neutralen Atomen trotzdem vernachlässigt, da zu Beginn des Plasmaschalters nicht die Stoßabsorption, sondern die Absorption des Laserfeldes durch Ionisation der bestimmende Prozess ist (siehe Abschnitt 5.4). Die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz wird in [67] für einzelne Elektronen ohne Verteilungsfunktion hergeleitet, wobei kumulative Effekte durch mehrfache Kleinwinkelstreuung berücksichtigt werden:

$$\nu_{ei} = \frac{N_i Z^2 e^4}{8\pi \epsilon_o^2 m_e^2 v_e^3} \left\{ \log \left(1 + \left(\frac{b_{max}}{b_{min}} \right)^2 \right) + \frac{1}{1 + \left(\frac{b_{max}}{b_{min}} \right)^2} - 1 \right\} \quad (5.6)$$

Die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz wird durch die Geschwindigkeit der Elektronen v_e (kinetische Energie der Elektronen), die Ionendichte N_i und die mittlere Ladungszahl Z der Ionen bestimmt. Je höher die mittlere Ladung und die Ionendichten sind, desto häufiger kommt es zu Elektronen-Ionen Stößen. Mit steigender Elektronenenergie nehmen diese Stöße ab. Die Gleichung 5.6 gilt auch für den Fall, dass $b_{max} \gg b_{min}$ nicht gilt, wobei b_{min} der minimale und b_{max} der maximale Stoßparameter bei der Coulombstreuung sind. Der minimale Stoßparameter b_{min} wird im Modell wie folgt definiert:

$$b_{min} = \max \left(\frac{Z e^2}{4\pi \epsilon_o m_e v_e^2}, \frac{h}{2\pi m_e v_e} \right) \quad (5.7)$$

Der erste Term ist der klassische Stoßparameter für eine Umlenkung um 90° und der zweite Term ist die de Broglie Wellenlänge als quantenmechanisches Limit für hohe kinetische Energien [67], wobei h die Planck-Konstante ist. Für den maximalen Stoßparameter wird in der Literatur meistens der Debyeradius λ_D verwendet. In den Simulationen zeigt sich allerdings, dass während des Schaltvorganges die Bedingung $N_D \gg 1$ nicht gilt. Deshalb wird hier wie im Ionensphärenmodell zur Beschreibung nichtidealer Plasmen [66, 68] der Wigner-Seitz Radius, der den Abstand zum nächsten Ion als Streuzentrum definiert, bzw. der Fokusradius des Pumpimpulses r_{fokus} als maximaler Stoßparameter b_{max} verwendet:

$$b_{max} = \min \left(\sqrt[3]{\frac{3}{4\pi N_i}}, r_{fokus} \right) \quad (5.8)$$

Solange nur die Elektronen durch die direkte Kopplung an das Laserfeld aufgeheizt werden, erfolgt aufgrund der Quasineutralität keine **Ausdehnung** des Plasmas. Der Energietransfer von den heißen Elektronen an die Ionen erfolgt durch die oben beschriebenen Elektronen-Ionen Stöße. Eine charakteristische Zeit für den Energietransfer von den Elektronen auf die Ionen ist durch τ_{eq} gegeben [67]:

$$\tau_{eq} \approx 2 m_e / m_i \nu_{ei} \quad (5.9)$$

Dabei sind m_e die Elektronenmasse, m_i die mittlere Ionenmasse und ν_{ei} die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz. In den Simulationen der Experimente zeigt sich, dass während der Schaltzeit $\tau_T \leq 500 fs$ eine vernachlässigbare Expansion des Plasmas erfolgt. Nach dem Aufheizen der Ionen durch die Elektronen erfolgt die Ausdehnung des Plasmas mit der Ionen-Schallgeschwindigkeit $v_i \sim \sqrt{W_i/m_i} \approx 10^7 cm/s$ [69].

Für die nichtlineare **Wärmeleitung** in einem vollständig ionisierten Plasma haben Spitzer und Harm die Gleichung 5.10 hergeleitet [70]. Dabei werden die Elektronen-Elektronen Stöße vernachlässigt und es wird angenommen, dass die mittlere freie Weglänge der Elektronen wesentlich kleiner als der Temperatur- und der Dichtegradient ist:

$$\vec{q} = -\kappa(T) \vec{\nabla} T \quad \text{mit: } \kappa(T) = \kappa_o \cdot T^{5/2} \quad (5.10)$$

Hier ist die Wärmeleitfähigkeit $\kappa(T)$ temperaturabhängig, wobei κ_o eine Konstante ist. Sind die Annahmen für die Gleichung 5.10 nicht erfüllt, so kann das zu einer unphysikalisch hohen Wärmeleitfähigkeit führen und es werden empirische Begrenzungen für den Wärmefluss notwendig [18]. Aufgrund dieser Schwierigkeiten wird in dem verwendeten einfachen Modell ein mikroskopischer Ansatz zur Beschreibung der Wärmeleitfähigkeit verwendet. Die absorbierte Energie der freien Elektronen wird über die lokale Reichweite gemittelt, die sich aus der freien Weglänge für die Elektronen-Elektronen Stöße ergibt.

Die kinetische Gesamtenergie der Elektronen kann durch die Elektronenstoßionisation und -rekombination, durch den Energietransfer an die Ionen sowie durch die Emission von thermischer Strahlungsenergie verringert werden. Allerdings sind die adiabatische

Kühlung durch die Ausdehnung des Plasmas, die Rekombination der freien Elektronen mit den Ionen [11] und die Strahlungsdämpfung (Plancksches Strahlungsgesetz) erst im Bereich von Pikosekunden von Bedeutung und damit während der Schaltzeit $\tau_T \leq 500fs$ vernachlässigbar.

5.2 Optische Feldionisation (OFI) und Elektronenstoßionisation

Die Ionisation des Festkörpers und damit die Entstehung des Plasmas wird durch optische Feldionisation (OFI) und Elektronenstoßionisation hervorgerufen.

Durch die **optische Feldionisation** des Festkörpers wird ein Teil des Pumpimpulses absorbiert. Dafür ist in den Experimenten ein nichtlinearer optischer Prozess notwendig, da die Ionisierungsenergien der verwendeten Dielektrika größer als die Photonenenergie $W_{uv} = 5eV$ sind und somit keine Einphotonen-Ionisation erfolgen kann. Bei hohen Intensitäten im Laserfeld kann jedoch die Ionisation durch die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen stattfinden (Multiphotonenionisation). Bei noch höheren Intensitäten werden die atomaren Feldpotentiale durch das Laserfeld so weit verändert, dass die ohne Laserfeld gebundenen Elektronen durch Tunneln oder sogar direkt in den freien Zustand übergehen können (Tunnelionisation). Eine von Keldysh [71] entwickelte allgemeine Theorie der optischen Feldionisation beschreibt die Multiphotonen- und die Tunnelionisation als Grenzfälle. Ob die Ionisation im Multiphotonenlimit oder im Tunnelimit erfolgt, wird durch den Keldysh Parameter beschrieben:

$$\gamma \equiv \sqrt{\frac{W_{ion}}{2 \cdot W_q}} \quad (5.11)$$

Dabei sind W_{ion} die Ionisierungsenergie und W_q die Oszillationsenergie der freien Elektronen im Laserfeld (Quiverenergie). Im Limit der Multiphotonenionisation gilt $\gamma > 1$, bei $\gamma < 1$ liegt Tunnelionisation vor. Die von Ammosov, Delone und Krainov weiterentwickelte Theorie [72] stimmt mit den experimentellen Ergebnisse in [73] besser überein und ergibt größere Ionisationsraten als die Keldysh-Theorie. Für das Modell des Plasmaschalters wird für die Ionisationsrate R_{OFI} eine vereinfachte Ammosov-Formel verwendet [74]:

$$R_{OFI} = 1.61 \cdot \omega_{atom} \cdot \frac{Z^2}{n_{eff}^{4.5}} \cdot \left(10.87 \frac{Z^3}{n_{eff}^4} \frac{E_{atom}}{E} \right)^{2 \cdot n_{eff} - 1.5} \cdot \exp \left(-\frac{2}{3} \frac{Z^3}{n_{eff}^3} \frac{E_{atom}}{E} \right) \quad (5.12)$$

Dabei sind Z die nach der Ionisation verbleibende Kernladungszahl, $E_{atom} = 5.1 \cdot 10^9 V/cm$ die elektrische Feldstärke des 1s-Elektrons im Wasserstoffatom, $\omega_{atom} = 4.1 \cdot 10^{16} s^{-1}$ die Umlauffrequenz des Elektrons auf der ersten Bohrschen Bahn, E die elektrische Feldstärke

des Laserfeldes und $n_{eff} = Z/\sqrt{W_{ion}/W_H}$ die effektive Hauptquantenzahl, die vom Ionisationspotential des Atoms/Ions W_{ion} und dem Ionisationspotential des Wasserstoffatoms $W_H = 13.6\text{ eV}$ abhängt. Die Ionisationspotentiale für die Atome und Ionen der in den Experimenten verwendeten Materialien sind [75] entnommen.

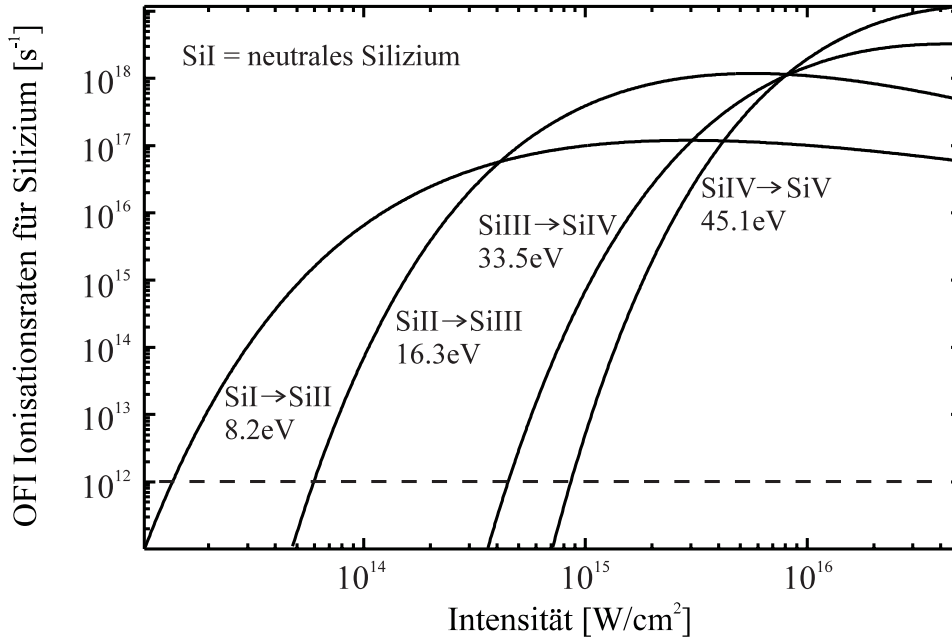


Abbildung 5.1: OFI Ionisationsraten für Silizium

Die OFI Ionisationsraten R_{OFI} sind bis zum vierfach geladenen Silizium (SiV) in Abhängigkeit von der Laserintensität dargestellt. Die horizontale Linie (— — —) bei $R_{OFI} = 10^{12}\text{ s}^{-1}$ zeigt die Schwellintensität für die dargestellten Ionisationsprozesse.

In der Abbildung 5.1 sind die Ionisationsraten für Silizium in Abhängigkeit von der Intensität des Laserfeldes dargestellt. Der Intensitätsbereich entspricht dem der Experimente mit den Plasmaschaltern. Die Schwellintensität für einen optisch induzierten Ionisationsprozess ist üblicherweise durch die Intensität definiert, bei der $R_{OFI} \cdot \tau_p \approx 1$ gilt. Es zeigt sich, dass bei den experimentellen Intensitäten ($I_{max} \leq 5 \cdot 10^{15}\text{ W/cm}^2$) durch OFI die ersten vier Ionisationsstufen des Siliziums erzeugt werden. Die Schwellintensitäten für diese liegen zwischen $I \approx (10^{13} - 10^{15})\text{ W/cm}^2$.

Die Wechselwirkungsquerschnitte σ_{col} für die **Elektronenstoßionisation** der verschiedenen Atom- und Ionenspezies werden nach der empirischen Formel von Lotz [75, 76, 77, 78] berechnet. Die einzelnen Elektronen eines Atoms oder Ions tragen mit ihrem Wirkungsquerschnitt σ_{ek} zum Gesamtquerschnitt σ_{col} bei, falls die kinetische Energie W_e des stoßenden Elektrons größer als die jeweilige Bindungsenergie P_k der gebundenen Elektronen ist:

$$\sigma_{col} = \sum_{k=1}^N q_k \sigma_{ek} \quad (5.13)$$

Dabei sind q_k die Anzahl der Elektronen in einer Unterschale und N die Anzahl der relevanten Unterschalen. Der Wirkungsquerschnitt σ_{ek} ist von der kinetischen Elektronenenergie W_e abhängig und kann durch folgende empirische Formel genähert werden:

$$\sigma_{ek} = a_k \frac{\log(W_e/P_k)}{W_e P_k} \{1 - b_k \cdot \exp(-c_i(W_e/P_k - 1))\} \quad (5.14)$$

Die individuellen Konstanten a_i , b_i , c_i und N sind in den Referenzen [75, 76, 77, 78] enthalten. Für die Ionisationsraten R_{col} gilt näherungsweise:

$$R_{col} = N_e \cdot N_{x,n} \cdot \sigma_{col} \cdot v_e \quad \text{mit: } x=\{\text{Si,O,C,H...}\}, n=\{\text{I,II,III,IV...}\} \quad (5.15)$$

Hier sind N_e die Elektronendichte, $N_{x,n}$ die Teilchendichte der jeweiligen Atom- oder Ionenspezies, σ_{col} der Wirkungsquerschnitt und v_e die mittlere kinetische Geschwindigkeit der Elektronen. Die Ionisationsrate R_{col} bezieht sich auf ein Element mit einem bestimmten Ladungszustand, also z.B. auf die Ionisation von zweifach geladenem Sauerstoff ($OII \rightarrow OIII$).

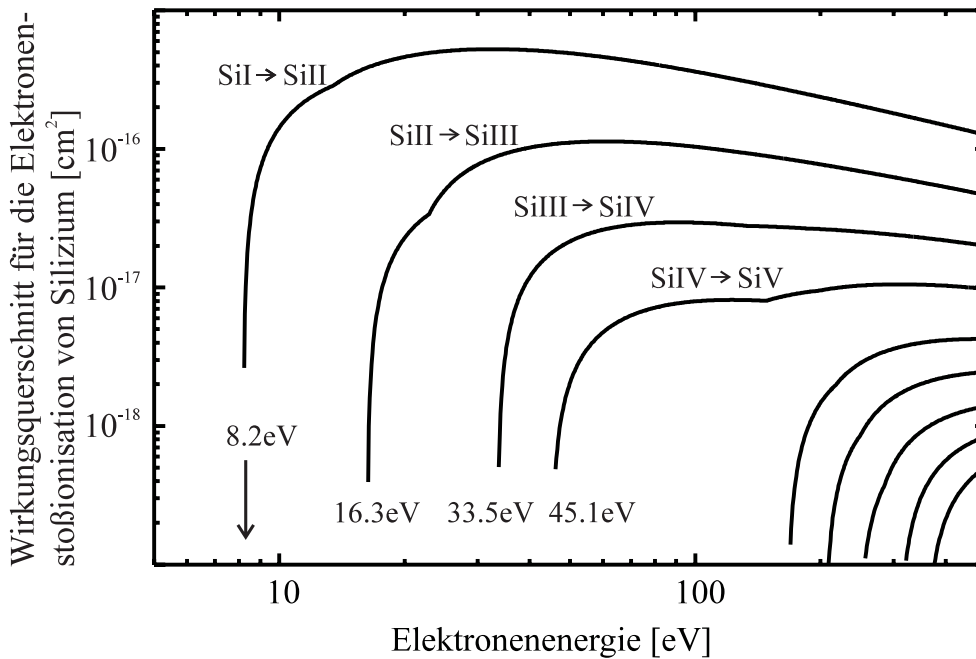


Abbildung 5.2: Wirkungsquerschnitt für die Elektronenionisation von Silizium

Die Wechselwirkungsquerschnitte der Elektronenionisation R_{col} sind bis zum neunfach geladenem Silizium (SiX) in Abhängigkeit von der Elektronenenergie dargestellt. Die Bindungsenergien sind nur bis zur Ionisation von $SiIV \rightarrow SiV$ angegeben.

In der Abbildung 5.2 sind die Wirkungsquerschnitte bis zum neunfach geladenen Silizium als Funktion der Elektronenenergie dargestellt. Die Ionisation setzt ein, wenn die Elektronenenergie W_e größer als die Bindungsenergien P_k ist. Bei niedrigen Intensitäten kann die

optische Feldionisation die neutralen Atome nur einfach ionisieren. Nach dem Ionisationsstart durch OFI und dem Aufheizen der Elektronen durch die Stoßabsorption kann die Elektronenstoßionisation zu einem Lawineneffekt führen und den Übergang vom Dielektrikum zum Plasma erheblich beschleunigen. In von fs Laserpulsen erzeugten Plasmen entstehen Elektronendichten ($N_e \geq 10^{23} \text{ cm}^{-3}$) und Elektronenenergien ($W_e \geq 100 \text{ eV}$) [11], so dass auch hohe Ionisationsstufen erzeugt werden.

5.3 Das theoretische Modell im Überblick

Das grundlegende Prinzip für das numerische Modell des optisch induzierten Plasmaschalters ist in der Abbildung 5.3 schematisch dargestellt. Im Modell wird räumlich eindimensional gerechnet, d.h., eine laterale Abhängigkeit durch die Intensitätsverteilung im Fokus wird nicht berücksichtigt. Es werden sowohl die Zeit als auch die räumliche Ausdehnung des Festkörpers bzw. Plasmas diskretisiert. Der Pump- und der Probepuls werden durch diese diskreten Zeitschritte in Teilpulse unterteilt, für die jeweils die Propagation durch die diskretisierten dünnen Schichten betrachtet wird. Die zeitliche Auflösung beträgt in den Simulationen $\Delta t = 2 \text{ fs}$ und ist damit kleiner als die Zeitkonstanten der transienten Prozesse. Um im Bereich der Festkörperoberfläche eine hohe räumliche Auflösung ($\min(\Delta z) \approx 5 \text{ \AA}$) zu erreichen und eine rechnerisch vertretbaren Anzahl der Schichten einzuhalten ($N_z = 250$), entsprechen die Schichtdicken einer geometrischen Reihe und nehmen entlang der Raumachse stetig zu. Es zeigt sich, dass der Ionisationsgrad für $z \geq 5 \mu\text{m}$ kleiner als 1% ist. Deshalb wird der Plasmaschalter auf einer Gesamtdicke von $z_{max} = 5 \mu\text{m}$ simuliert, was für die Teilpulse zu einer Laufzeit im Plasmaschalter von $> 16.6 \text{ fs}$ führt. Die damit verbundenen retardierten Zeiten werden im Modell nicht berücksichtigt. Die Dicken und die Positionen der Schichten bleiben zeitlich konstant, da sich als Ergebnis der Simulationen zeigt, dass sich das Plasma während des Schaltvorganges nicht ausbreitet und die Intensität des Pumpulses nicht ausreichend ist, um das Plasma durch den Lichtdruck zu komprimieren [60].

Bei den Experimenten werden zwei unterschiedliche dielektrische Substrate verwendet: Quarz (SiO_2) und Polyimid ($[\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5]_n$). Die Substrate unterscheiden sich vor allem darin, dass der Pumpuls ($\lambda_{Pumpe} = 248.5 \text{ nm}$) durch das Polyimid stark absorbiert wird. Bei Verwendung des Polyimidsubstrates gilt für den Probepuls: $\lambda_{Probe} = 2 \cdot \lambda_{Pumpe}$. Damit ist das Substrat für den Probepuls transparent. Im Fall des Quarzsubstrates hat der Probepuls die gleiche Wellenlänge wie der Pumpuls ($\lambda_{Probe} = \lambda_{Pumpe} = 248.5 \text{ nm}$).

Mit einem frequenzabhängigen Brechungsindex $\tilde{n}(z, \omega)$ wird ein kausaler, lokaler, linearer und zeitinvarianter Zusammenhang zwischen der elektrischen Feldstärke $\vec{E}(\vec{r}, t)$ und der Polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ beschrieben. Für die Propagation des Probepulses durch den Plasmaschalter kann das Konzept des Brechungsindex nur näherungsweise angewendet

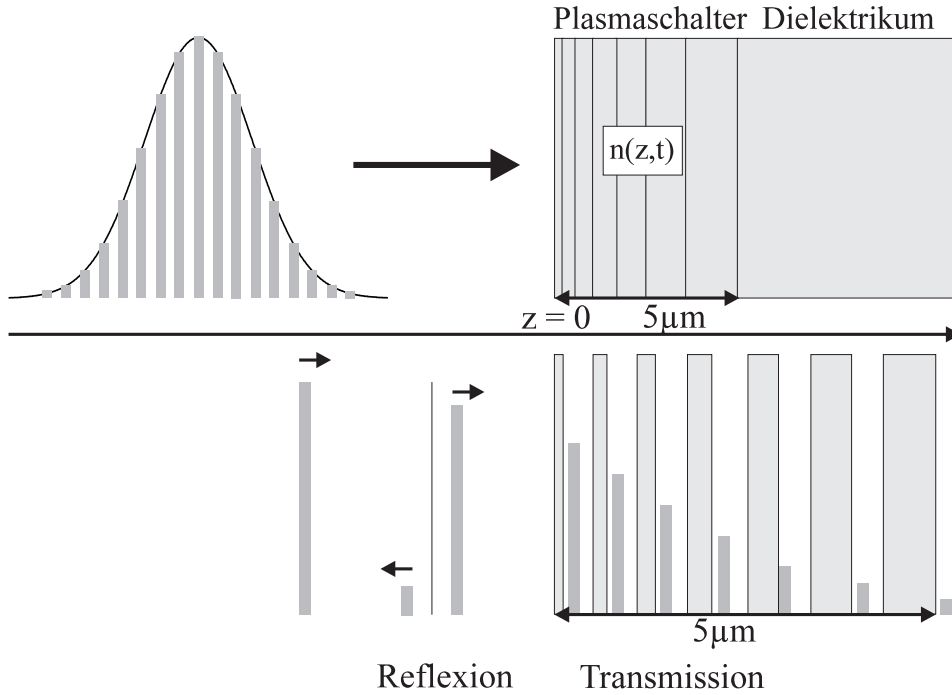


Abbildung 5.3: Im schematisch dargestellten Modell wird der Laserpuls in Teilpulse und das Dielektrikum bzw. das Plasma in diskrete Schichten unterteilt. Der komplexe zeit- und raumabhängige Brechungsindex $n(z, t)$ bestimmt die Reflektivität und die Transmission des Plasmaschalters.

werden, da die transiente Transmission $T(t)$ ein zeitvariantes System darstellt. Im Modell wird der Plasmaschalter in den Schichten näherungsweise durch einen kausalen, lokalen, linearen und zeitabhängigen Brechungsindex $n(z, t)$ beschrieben, d.h., für den Pump- und Probepuls erfolgt die lineare Polarisation instantan und es gibt keine Frequenzabhängigkeit. Damit wird die Gruppengeschwindigkeitsdispersion von Pump- und Probepulse bei der Propagation im Plasmaschalter vernachlässigt und es werden nur die Reflektivität und die Transmission für die Mittenfrequenzen ω_{Pumpe} und ω_{Probe} berechnet. Während des Schaltvorganges wird der Brechungsindex $n(z, t)$ sowohl durch die Polarisation der gebundenen Elektronen des Dielektrikums als auch durch die freien Elektronen des Plasmas bestimmt. Für das zeitinvariante System ist im Abschnitt 2.2.1 in Gleichung 2.33 der frequenzabhängige Brechungsindex $\tilde{n}(\omega)$ hergeleitet worden:

$$\tilde{n}(\omega) \equiv \sqrt{1 + \tilde{\chi}(\omega) - i \frac{\tilde{\sigma}(\omega)}{\epsilon_o \omega}} = \sqrt{1 + \frac{N_o \tilde{\alpha}(\omega)}{1 - N_o \tilde{\alpha}(\omega)/3} - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{1}{1 - i \nu_{ei}/\omega}} \quad (5.16)$$

Dabei sind $\tilde{\chi}(\omega)$ die elektrische Suszeptibilität, $\sigma(\omega)$ die elektrische Leitfähigkeit, N_o die Neutralteilchendichte des Dielektrikums, $\tilde{\alpha}(\omega)$ die atomare Polarisierbarkeit, ω_p die Plasmafrequenz und ν_{ei} die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz. Der Übergang zu den zeitabhängigen Brechungsindices $n_{Probe}(z, t)$ und $n_{Pumpe}(z, t)$ erfolgt, indem in Gleichung 5.16 die

Frequenz $\omega = \omega_{Pumppe}$ bzw. $\omega = \omega_{Probe}$ gesetzt wird und die Neutralteilchendichte N_o , die Plasmafrequenz ω_p und die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz ν_{ei} zeit- und raumabhängig werden:

$$\begin{aligned} N_o &= N_o(z, t) \\ \omega_p &= \omega_p(z, t) \sim \sqrt{N_e(z, t)} \\ \nu_{ei} &= \nu_{ei}(z, t) \sim \frac{N_i(z, t)}{W_e(z, t)^{3/2}} \end{aligned}$$

Dabei sind die Elektronendichte $N_e(z, t)$, die Elektronenenergie $W_e(z, t)$ und die mittlere Ionendichte $N_i(z, t)$ abhängig von der Zeit t und dem Ort z im Plasmaschalter. Die Neutralteilchendichte $N_o(t)$ entspricht in den Experimenten der Dichte der SiO_2 Moleküle im Quarz bzw. der $\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5$ Moleküle im Polyimid. Im Modell gilt für die Neutralteilchendichte $N_o(z, t)$ von Quarz und Polyimid:

$$N_o(z, t) = \max[0, N_{\text{SiO}_2} (1 - Z_O(z, t))] \quad (5.17)$$

$$N_o(z, t) = \max[0, N_{\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5} (1 - Z_C(z, t))] \quad (5.18)$$

Dabei sind Z_O und Z_C die Ionisationsgrade von Sauerstoff und Kohlenstoff, N_{SiO_2} und $N_{\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5}$ die Dichten vor dem Schaltvorgang. Bei den Gleichungen 5.17 und 5.18 ist zu beachten, dass die Atome des Dielektrikums ein unterschiedliches Ionisationsverhalten zeigen und somit noch SiO_2 bzw. $\text{C}_{22}\text{H}_{10}\text{N}_2\text{O}_5$ "Moleküle", in denen Atome schon ionisiert sind, zur Neutralteilchendichte beitragen.

Ein Teilpuls des Pump- und Probepulses wird zur Zeit t (siehe Abbildung 5.3) teilweise an der Oberfläche des Plasmaschalters reflektiert und durchläuft danach die diskreten Schichten des Plasmaschalters. Die Absorption des Laserpulses wird durch die Absorption infolge optischer Feldionisation und durch die Stoßabsorption bestimmt. Die Resonanzabsorption hat keinen Einfluss, da der Pumpimpuls in allen Experimenten und in den Modellsimulationen senkrecht zur Festkörperoberfläche einfällt. Die Ionisationsraten R_{OFI} und Wirkungsquerschnitte σ_{col} gelten streng nur für isolierte Atome und Ionen, werden aber im Modell auch auf gebundene Atome im Dielektrium und auf Ionen im dichten Plasma angewendet.

Der Programmablauf der Simulation wird im Folgenden für das Quarzsubstrat dargestellt, wobei die Wellenlängen des Pump- und Probepulses hier identisch sind und mit λ bezeichnet werden:

1. Die **Reflektivität** $R(t)$ des Plasmaschalters zur Zeit t wird mit der für dielektrische Schichtsysteme üblichen Matrizenmethode berechnet, die im Limes dünner Schichten eine Lösung der Wellengleichung liefert [79]. Bei der Matrizenmethode werden die Fresnelschen Formeln für dielektrische Grenzflächen verwendet, d.h., dass die

durch das leitfähige Plasma möglichen Flächenströme an der Grenzfläche im Modell nicht berücksichtigt werden.¹

2. Für die **Phase** $\Phi(t)$ des Teilpulses nach dem Plasmaschalter gilt:

$$\Phi(t) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^{z_{max}} \text{Re}[n(z, t)] \cdot \Delta z(z) dz$$

Dabei sind λ die Wellenlänge, $\text{Re}[n(z, t)]$ der Realteil des komplexen Brechungsindex und $\Delta z(z)$ die Schichtdicke am Ort z .

3. Durch die **optische Feldionisation** ändern sich die Dichten der neutralen Atome und Ionen $N_k(z, t)$ ($k = I, II, \dots$):

$$\begin{aligned} \frac{dN_I(z, t)}{dt} &= -R_{OFI, I \rightarrow II}(z, t) \cdot N_I(z, t) \\ &\vdots \\ \frac{dN_k(z, t)}{dt} &= -R_{OFI, k \rightarrow k+1}(z, t) \cdot N_k(z, t) + R_{OFI, k-1 \rightarrow k}(z, t) \cdot N_{k-1}(z, t) \end{aligned}$$

Die Ratengleichungen werden getrennt für die verschiedenen Elemente gelöst. Die Zeit- und Ortsabhängigkeit der Ionisationsraten R_{OFI} ergibt sich aus der Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke in Gleichung 5.12. Die Ionisierungsenergie wird dem Teilpuls entzogen und es ergibt sich eine Transmission $T_{OFI}(z, t) \equiv 1 - A_{OFI}(z, t)$.

4. Die **Stoßabsorption** A_{col} ergibt sich aus dem Imaginärteil des komplexen Brechungsindex $n(z, t)$ ($\text{Im}[n(z, t)] < 0$):

$$A_{col}(z, t) = 1 - \exp\left(\frac{4\pi}{\lambda} \cdot \text{Im}[n(z, t)] \cdot \Delta z(z)\right)$$

Für die Transmission $T_{col}(z, t)$ gilt: $T_{col}(z, t) \equiv 1 - A_{col}(z, t)$. Die absorbierte Energie $W_{col}(z, t)$ wird über die Laufzeit der Simulation aufintegriert, auf die Elektronen aufgeteilt und ergibt mit der Quiverenergie nach Gleichung 5.5 die **mittlere Elektronenenergie** $W_e(z, t)$.

5. Die **Transmission** $T(t)$ des Plasmaschalters ergibt sich aus $T_{OFI}(z, t)$, $T_{col}(z, t)$ und der Reflektivität $R(t)$:

$$T(t) = (1 - R(t)) \cdot \prod_{i=1}^{Nz} T_{OFI}(z_i, t) \cdot T_{col}(z_i, t)$$

¹Diese Flächenströme ändern die Stetigkeitsbedingungen an der Grenzfläche [13] und werden in der nichtlokalen Optik behandelt, wobei nur für $\omega = \omega_p$ eine Korrektur notwendig ist.

6. Durch die **Elektronenstoßionisation** werden die Atome und Ionen weiter ionisiert und die Elektronenenergie $W_e(z, t)$ wird durch die dafür notwendige Ionisierungsenergie reduziert. Die Ratengleichungen ergeben sich aus den Gleichungen 5.13 - 5.15:

$$\begin{aligned}
 \frac{d N_I(z, t)}{dt} &= -\sigma_{col, I \rightarrow II}(z, t) \cdot N_I(z, t) \cdot N_e(z, t) \cdot v_e(z, t) \\
 &\vdots \\
 \frac{d N_k(z, t)}{dt} &= \{-\sigma_{col, k \rightarrow k+1}(z, t) \cdot N_k(z, t) + \sigma_{col, k-1 \rightarrow k}(z, t) \cdot N_{k-1}(z, t)\} \cdot \\
 &\quad N_e(z, t) \cdot v_e(z, t)
 \end{aligned}$$

Dabei ist $v_e(z, t) = \sqrt{2W_e(z, t)/m_e}$ die mittlere Elektronengeschwindigkeit, wobei der Index für die Elemente S_i und O nicht angegeben wird. Die Zeit- und Ortsabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts σ_{col} ergibt sich aus der Abhängigkeit von der Elektronenenergie in Gleichung 5.14. Durch Summation über alle Ionisationsstufen K_{S_i} und K_O kann die **Elektronendichte** $N_e(z, t)$ berechnet werden:

$$N_e(z, t) = \sum_{k=I}^{K_{S_i}} (k-1) \cdot N_{S_i, k}(z, t) + \sum_{k=I}^{K_O} (k-1) \cdot N_{O, k}(z, t)$$

7. Der **Wärmetransport** wird als Mittelung der Elektronenenergie über die Reichweite der Elektronen bei der Elektronen-Elektronen-Streuung genähert.
8. Zusätzlich werden folgende **Plasmaparameter** berechnet: Ionisationsgrad der Elemente Z_{S_i} und Z_O , Kopplungsparameter Γ , Debyelänge λ_D , Anzahl der Elektronen in der Debyesphäre N_D , Elektronen-Ionen Stoßfrequenz ν_{ei} , Plasmafrequenz ω_p und kinetische Energie der Ionen W_i . Aus den Plasmaparametern ergibt sich mit den Gleichungen 5.16 und 5.17 der **komplexe Brechungsindex** $n(z, t + \Delta t)$ für den nachfolgenden Teilpuls.

Das Modell für das Polyimidsubstrat wird wie folgt modifiziert:

1. Die linear absorbierte Energie des Pumpimpulses regt elektronische Zustände der Polyimidmoleküle [80] an. Dieses wird im Modell durch einen angeregten Zustand der neutralen Kohlenstoffatome C_I^* mit der Dichte N_I^* genähert, die in die Ratengleichungen für die optische Feldionisation integriert wird. Die Ionisierungsenergie der angeregten Kohlenstoffatome ist um die Photonenenergie des Pumpimpulses ($\approx 5eV$) erniedrigt, was zu einer leichteren Ionisation durch OFI führt.
2. Die Reflektivität $R(t)$ und die Transmission $T(t)$ werden für die Wellenlängen von Pump- und Probepuls getrennt berechnet. Die Absorption des Probepulses erfolgt ausschließlich durch die Stoßabsorption des Plasmas und nicht durch OFI.

Das Polyimid hat bei einer Wellenlänge von $\lambda = 589nm$ einen Brechungsindex von $n = 1.7$ [81]. Dieser Wert wird im Modell auch für die Wellenlänge des Probepulses $\lambda_{Probe} = 500nm$ verwendet. Für die Wellenlänge $\lambda = 248.5nm$ wird der Realteil des Brechungsindex aus Mangel an Literaturangaben geschätzt²: $n_{Pumpe} = 2.0$. Der Absorptionskoeffizient hat für $\lambda = 248.5nm$ ungefähr den Wert $1.0 \times 10^5 cm^{-1}$ [83].

5.4 Ergebnisse der Modellsimulation

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Modellsimulationen vorgestellt und damit die Funktionsweise des Plasmaschalters erklärt. Aus den experimentellen Ergebnissen können die Schaltzeit τ_T und die Dynamik D bestimmt werden. Diese experimentell zugänglichen Parameter werden mit den Modellergebnissen verglichen. Die "direkten" Plasmaparameter, wie z.B. Elektronendichte $N_e(t)$ und Elektronenenergie $W_e(t)$, können aus den Experimenten dieser Arbeit nicht bestimmt werden. Zur Überprüfung des Modells werden deshalb die Ergebnisse mit Modellrechnungen in der Literatur und mit Experimenten verglichen, bei denen diese "direkten" Plasmaparameter und Reflexionseigenschaften gemessen worden sind.

Die **Abbildung 5.4** (1) zeigt eine schematische Darstellung der Intensität des Pumpulses $I(t)$ (---) in logarithmischer Auftragung sowie den Verlauf der Transmission $T(t)$ (—) und der Elektronendichte $N_e(t)$ (·-·) in linearer Auftragung. In der Simulation hat die Intensität $I(t)$ einen gaußförmigen Verlauf mit einer Pulsdauer τ_p von 500fs und einer maximalen Intensität $I_{max} = 10^{16} W/cm^2$, die zum Zeitpunkt $t = 0fs$ erreicht wird. Das Substrat ist Quarz und die Wellenlänge λ beträgt 248.5nm. Da die Schwellintensität I_s , bei der die Ionisation des Dielektrikums beginnt, kleiner als die maximale Intensität I_{max} ist, findet der Schaltvorgang bei negativen Zeiten statt. Für den Zeitbereich des Schaltvorganges sind in der **Abbildung 5.4** (2) die berechneten Verläufe der Transmission $T(t)$ (—) und der Elektronendichte $N_e(t)$ (·-·) dargestellt. Neben der Gesamttransmission $T(t)$ sind hier die Transmissionsanteile dargestellt, die aus der optischen Feldionisation $T_{OFI}(t)$ (- - -) und der Stoßabsorption $T_{col}(t)$ (· · ·) resultieren. Für die Transmission des Plasmaschalters gilt: $T(t) = (1 - R(t)) \cdot T_{OFI}(t) \cdot T_{col}(t)$. Auf der rechten Ordinate ist die Elektronendichte $N_e(t)$ normiert auf die kritische Dichte $N_c = 1.8 \cdot 10^{22} cm^{-3}$ aufgetragen. Die Elektronendichte ist im Bereich $z = (0 - 50)nm$ gemittelt. Für Zeiten $t < -800fs$ ergibt sich die Transmission aus der 4%igen Reflexion an der Grenzfläche des Quarzsubstrates. In der ersten Phase ab $t \approx -780fs$ setzt die Ionisation des Substrates durch OFI ein und eine damit verbundene Absorption des Pumpulses. Die Gesamttransmission wird bis $t \approx -690fs$ durch $T_{OFI}(t)$ dominiert. In einer weiteren Phase nimmt der Einfluss der Stoßabsorption $A_{col}(t)$ mit

²Für das ebenfalls UV- absorbierende Polyethylen gilt an der Absorptionskante: $n_{180nm}/n_{500nm} \approx 1.17$ [82].

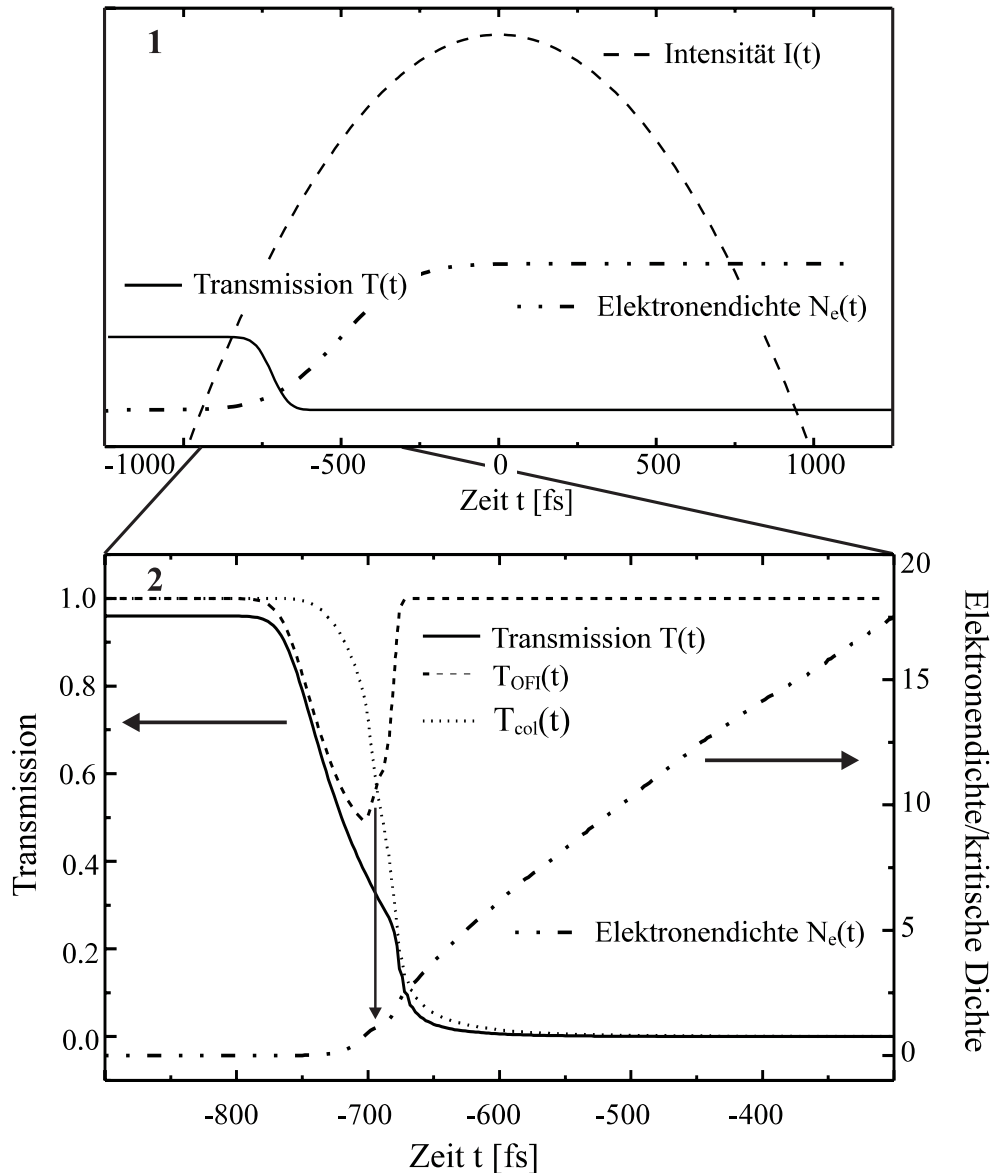


Abbildung 5.4:

1: Schematische Darstellung der gaußförmigen Intensität $I(t)$ (---) in logarithmischer Auftragung sowie der Transmission $T(t)$ (—) und der Elektronendichte $N_e(t)$ (· · -) in linearer Auftragung

2: Simulationsergebnis bei einer gaußförmigen Intensität ($I_{max} = 10^{16} \text{ W/cm}^2$), einer Pulsdauer $\tau_p = 500 \text{ fs}$ und einer Wellenlänge $\lambda = 248.5 \text{ nm}$ (Quarzsubstrat). Dargestellt sind die zeitlichen Verläufe der Transmissionen ($T(t)$ (—), $T_{OFI}(t)$ (- - -), $T_{col}(t)$ (· · ·)) und der Elektronendichte $N_e(t)/N_c$ (· · -) während des Schaltvorganges.

steigender Elektronendichte zu und die Transmission $T(t \geq -690 \text{ fs})$ nimmt durch einen Lawineneffekt stark ab (siehe auch Abbildung 5.7). Die Elektronendichte $N_e(t)$ ist zu diesem Zeitpunkt ungefähr gleich der kritischen Dichte N_c bei der Wellenlänge $\lambda = 248.5 \text{ nm}$.

Die Transmission $T_{OFI}(t \geq -690fs)$ nimmt wieder zu, da die Intensität des Pumpulses nicht ausreicht, um höhere Ionisationsstufen zu ionisieren, und der Pumpuls durch die starke Stoßabsorption nicht mehr bis zum neutralen Substrat eindringen kann. Für $t = -690fs$ beträgt die Transmission $T(t) = 30\%$ und für die über $50nm$ gemittelten Ionisationsgrade gilt: $Z_{Si} = 0.96$ und $Z_O = 0.02$. Der Schaltzeitpunkt des Plasmaschalters liegt bei $t_{T=50\%} = -720fs$. Die 90% – 10% Abfallszeit des Plasmaschalters beträgt $\tau_T = 90fs$ und ist um einen Faktor 5.6 kürzer als die Pulsdauer des Pumpulses $\tau_p = 500fs$. Mit einem ähnlichen numerischen Modell haben Teubner et al. [84] die Schaltzeiten für einen Plasmaschalter mit Quarzsubstrat berechnet, wobei die Wellenlänge λ , die Pulsdauern τ_p bzw. die maximale Intensität I_{max} von den Pulsparametern dieser Arbeit abweichen. Für einen 30 fs Laserpuls der Wellenlänge $\lambda = 200nm$ ergab sich bei einer maximalen Intensität $I_{max} = 10^{15}W/cm^2$ eine Schaltzeit von $\tau_T \leq 7fs$.

Die **Abbildung 5.5** zeigt den zeitlichen Verlauf der Transmission $T(t)$ (—), der Reflektivität $R(t)$ (···) und auf der rechten Ordinate den Intensitätsverlauf $I(t)$ für die gleichen Simulationsparameter wie in der Abbildung 5.4.

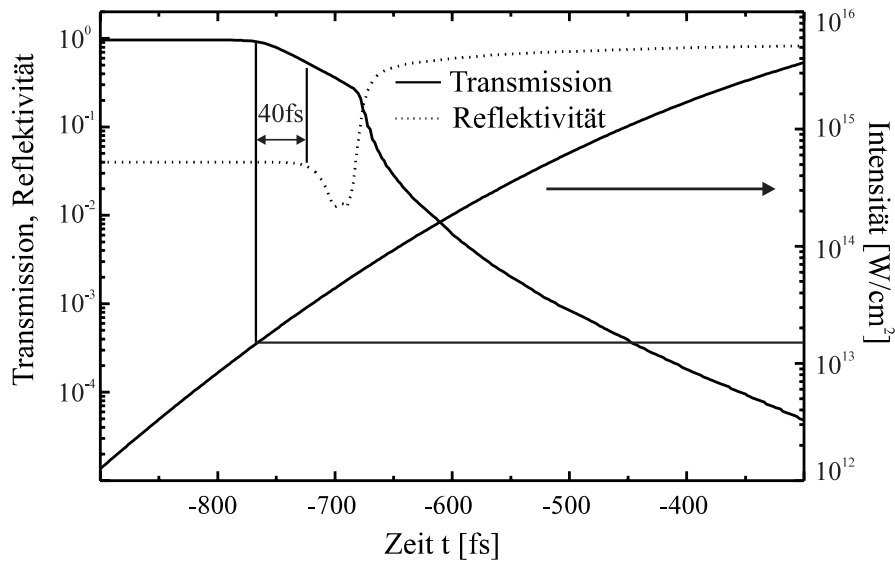


Abbildung 5.5: Zeitlicher Verlauf der Transmission $T(t)$ (—), der Reflektivität $R(t)$ (···) und der Intensität $I(t)$ (maximale Intensität $I_{max} = 10^{16}W/cm^2$, $\tau_p = 500fs$, $\lambda = 248.5nm$, Quarzsubstrat)

Die Reflektivität $R(t)$ ändert sich etwa 40fs später als die Transmission $T(t)$ und durchläuft zunächst ein Minimum $R_{min} \approx 1\%$. Die Verzögerung lässt sich damit erklären, dass sich der Brechungsindex $n(z, t)$ und damit verbunden die Reflektivität $R(t)$ erst bei höheren Elektronendichten $N_e(z, t)$ ändert, während die Absorption durch OFI schon vorher die Transmission $T(t)$ beeinflusst.

Eine Abnahme der Reflektivität wird auch in einem Experiment von Sokolowski et al. [65]

bei der zeitaufgelösten Reflektivität an Germaniumoberflächen und in den Simulationen von Teubner et al. [84] beobachtet. Beim Übergang vom reinen Substrat zum Plasma durchläuft der Realteil des Brechungsindex $n(z, t)$ an der Oberfläche den Wert eins (siehe Gleichung 5.16), da der Brechungsindex von Quarz größer als eins und der der freien Elektronen bei Vernachlässigung der Dämpfung kleiner als eins ist. Zu diesem Zeitpunkt ist der Brechungsindex des Plasmaschalters an das Vakuum angepasst und es existiert bei gleichzeitig hoher Absorption keine optische Grenzfläche mehr. Aus diesen beiden Gründen durchläuft die Reflektivität $R(t)$ bei allen Simulationen mit dem Quarzsubstrat vor dem eigentlichen Anstieg ein Minimum.

Die Reflektivität steigt hier in nur $35fs$ von 1% auf 35% an, erreicht aber erst nach weiteren $180fs$ 90% der maximalen Reflektivität $R_{max} = 80\%$. Die Dynamik des Plasmaschalters in Transmission beträgt etwa $D_T \approx 10^4$, während in Reflexion nur ein Wert von $D_R \approx 80$ erreicht wird. Das bessere Signal zu Untergrund-Verhältnis ist ein klarer Vorteil für den Plasmaschalter in Transmission. Aus der Abbildung 5.5 ergibt sich eine Schwellintensität für den Plasmaschalter, indem die Intensität I_s bei einsetzender Absorption durch OFI bestimmt wird. Bei der Wellenlänge $\lambda = 248.5nm$ und der Pulsbreite $\tau_p = 500fs$ ergibt sich für I_s ein Wert zwischen $(1 \dots 2) \cdot 10^{13}W/cm^2$, der sehr gut mit experimentell bestimmten Werten für dielektrische Substrate übereinstimmt [12, 85].

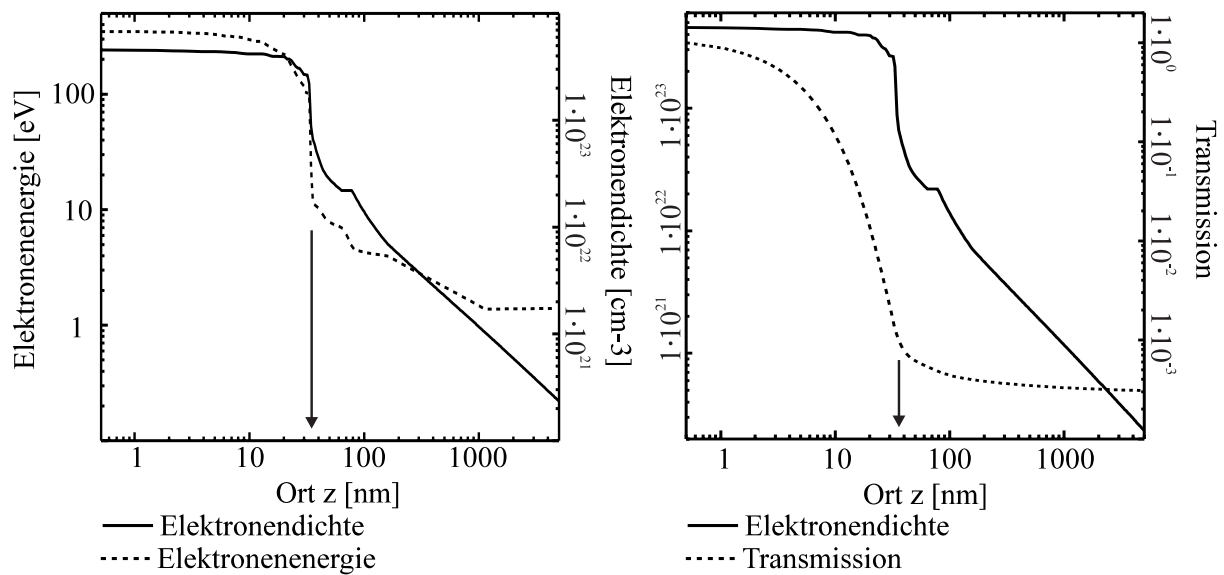


Abbildung 5.6: Räumlicher Verlauf der Elektronendichte $N_e(z)$, der Elektronenenergie $W_e(z)$ und der Transmission $T(z)$ zum Zeitpunkt $t = -300fs$. Die Grenzfläche zum Vakuum befindet sich bei $z = 0$. (maximale Intensität $I_{max} = 10^{16}W/cm^2$, $\tau_p = 500fs$, $\lambda = 248.5nm$, Quarzsubstrat)

Die **Abbildungen 5.6** zeigen die Elektronendichte $N_e(z)$, die Elektronenenergie $W_e(z)$ und die Transmission $T(z)$ in Abhängigkeit vom Ort z nach dem in den Abbildungen 5.4

und 5.5 dargestellten Schaltvorgang ($t = -300 fs$). Die z -Achsen sind logarithmisch eingeteilt und die Grenzfläche zum Vakuum befindet sich bei $z = 0$. In der Abbildung 5.6 links wird der räumliche Verlauf der Elektronenenergie mit der Elektronendichte verglichen. Es zeigt sich, dass beide Parameter über eine Länge von etwa $d_o = 35 nm$ konstant sind und danach steil abfallen. In durch fs Laserpulse erzeugten Plasmen kann diese Länge nach [86] nur $(0.1 - 0.2)\lambda$ betragen, was durch das Modell gut reproduziert wird. Die maximale Elektronenenergie an der Grenzfläche beträgt $W_{max} = 350 eV$. Die Ausdehnung des Plasmaschalters beträgt zu diesem Zeitpunkt ($t = -300 fs$) etwa $\Delta d = 2.5 nm$. Die adiabatische Kühlung durch die Ausdehnung kann mit $W_e = W_{max} [d_o / (d_o + \Delta d)]^{5/3-1}$ abgeschätzt werden und es ergibt sich damit eine Korrektur von 5%. Typische Elektronentemperaturen in dieser Phase der Plasmaentstehung betragen $\approx 100 eV$ [7]. Zum Schaltzeitpunkt $t = -720 fs$ ist die Ausdehnung $< 1 \text{ \AA}$ und die Elektronenenergie beträgt $2 eV$. Die Elektronendichte fällt von $N_e(z = 0 \mu m) = 4.6 \cdot 10^{23}$ auf $N_e(z = 5 \mu m) = 2.3 \cdot 10^{20}$ ab und für die Ionisationsraten gilt: $Z_{Si} = 8.6 \dots 0.01$ und $Z_O = 6.0 \dots < 0.01$. Für $z \geq 5 \mu m$ liegt in guter Näherung nichtionisiertes Quarz vor.

Die Begrenzung des Plasmas auf eine dünne oberflächennahe Schicht während der Wechselwirkung mit dem fs Laserpuls hat zwei Ursachen:

1. Die Ionisation und Aufheizung durch fs Laserpulse läuft sehr viel schneller ab als die thermodynamischen Ausdehnung und die Wärmeleitung. Die thermodynamische Ausdehnung wird zusätzlich dadurch verzögert, dass die Ionen erst durch die Elektronen aufgeheizt werden müssen.
2. Die dünne Plasmaschicht absorbiert den fs Laserpuls vollständig, d.h., die Energie des fs Laserpulses ionisiert und heizt nur diese Schicht. Eine Ausdehnung des Plasmas in das Material kann somit nicht durch den fs Laserpuls erfolgen, sondern nur durch die 'langsamere' Wärmeleitung. Die Abbildung 5.6 zeigt, dass die Transmission schon bei einer Weglänge von $d = 35 nm$ auf 0.1% abfällt. Das entspricht einem Absorptionskoeffizienten $\alpha = 2 \cdot 10^6 cm^{-1}$.

Der Einfluss der Elektronenstoßionisation auf den Plasmaschalter wird in der **Abbildung 5.7** dargestellt. Die Abbildung zeigt den zeitlichen Verlauf der Transmission $T(t)$, der Elektronendichte $N_e(t)$ und der Elektronenenergie $W_e(t)$ mit und ohne Elektronenstoßionisation. Die Elektronendichte und -energie sind hier im Bereich $z = 0 - 50 nm$ gemittelt, die maximale Intensität beträgt in der Simulation $I_{max} = 10^{14} W/cm^2$ ($\tau_p = 500 fs$, $\lambda = 248.5 nm$, Quarzsubstrat). Aufgrund der geringeren Intensität I_{max} liegt der Schaltzeitpunkt hier bei $t = -300 fs$, also näher am Ursprung $t = 0 fs$. Ab diesem Zeitpunkt werden die Transmission, die Elektronendichte und die Elektronenenergie stark durch die Elektronenstoßionisation beeinflusst. Ohne diesen Ionisationsprozess verbleibt die Transmission bei etwa 10%. Bei Experimenten von von der Linde et al. sind für verschiedene

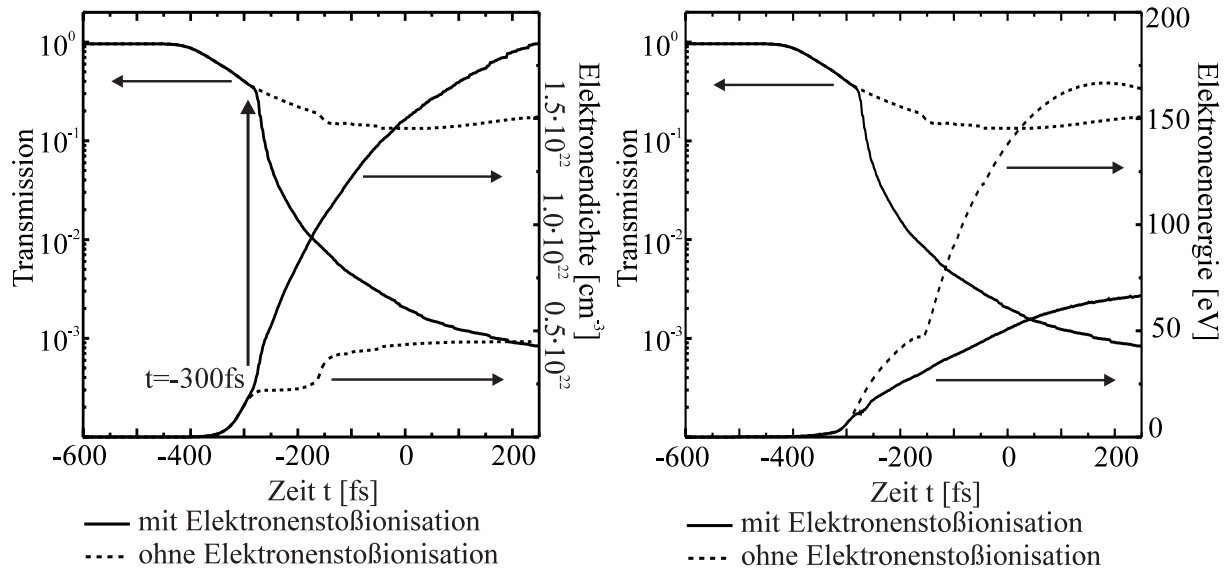


Abbildung 5.7: Einfluss der Elektronenstoßionisation auf die zeitliche Transmission $T(t)$, die Elektronendichte $N_e(t)$ (links) und die Elektronenenergie $W_e(t)$ (rechts) (maximale Intensität $I_{max} = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 500 \text{ fs}$, $\lambda = 248.5 \text{ nm}$, Quarzsubstrat)

transparente Materialien Reflektivitäten von 60–70% gemessen worden [12], und zwar bei folgenden experimentellen Bedingungen: $I_{max} = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 120 \text{ fs}$, $\lambda = 620 \text{ nm}$, Einfallswinkel 45° . Zum Zeitpunkt $t = 250 \text{ fs}$ beträgt die berechnete Reflektivität mit bzw. ohne Elektronenstoßionisation $R_{mit} = 70\%$ und $R_{ohne} = 27\%$, d.h., dass das vollständige Modell in guter Übereinstimmung mit dem zitierten Experiment steht.

Die gemittelte Elektronendichte bleibt unter der kritischen Dichte N_c , da die optische Feldionisation bei der maximalen Intensität keine hohen Ionisationsstufen erreicht. Die Ionisationsgrade an der Grenzfläche betragen: $Z_{Si} = 3$ und $Z_O = 1$. Sind durch OFI Elektronen erzeugt worden, kann die Ionisation durch Elektronenstöße zu einem Lawineneffekt führen, da dadurch mehr Elektronen erzeugt werden und diese durch Stoßabsorption zu einer Aufheizung führen. Diese positive Rückkopplung bewirkt, dass die Transmission ab dem Zeitpunkt $t = -300 \text{ fs}$ stark abfällt und sich auch die minimale Transmission T_{min} verringert. Die Ionisationsgrade steigen an auf: $Z_{Si} = 4$ und $Z_O = 5$. In der Abbildung 5.7 rechts ist der zeitliche Verlauf der gemittelten Elektronenenergie dargestellt. Durch die Elektronenstoßionisation wird die Elektronenenergie verringert, da hier die Ionisation eine Senke der Elektronenenergie ist und der Aufheizung durch Stoßionisation entgegenwirkt. Es zeigt sich in den Simulationen, dass die Elektronenenergie ohne diesen Prozess zu hohe Werte annimmt. Die Aufheizung der Ionen durch die Elektronen und die Strahlungsdämpfung sind im Vergleich zur Elektronenstoßionisation weit weniger effektive Senken und haben während der Schaltzeit des Plasmaschalters keinen großen Einfluss.

In den **Abbildungen 5.8** ist das Ergebnis einer Simulation mit Polyimidsubstrat dar-

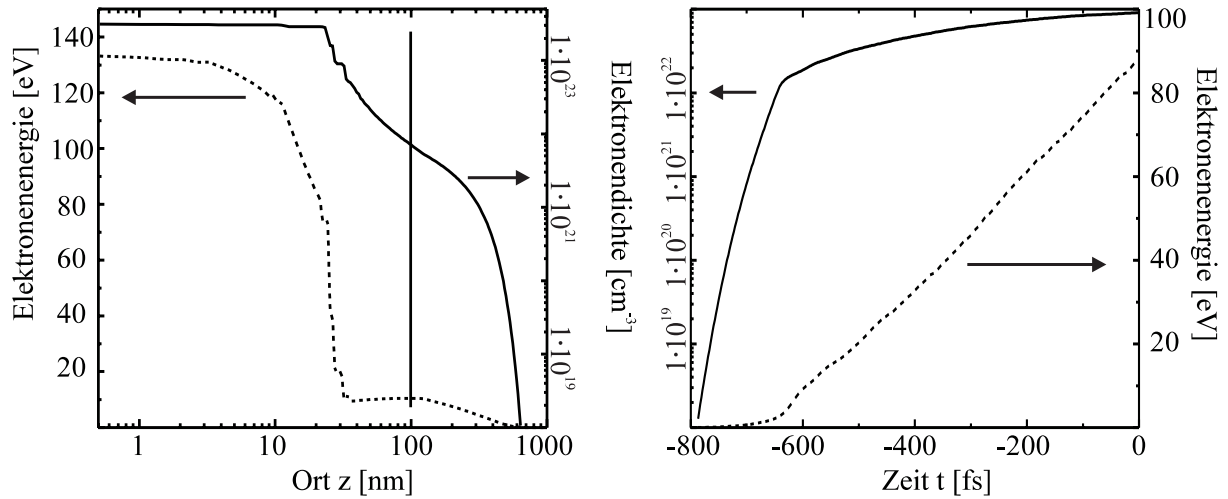


Abbildung 5.8: links: räumlicher Verlauf der Elektronendichte $N_e(z)$ und der Elektronenenergie $W_e(z)$ zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ fs}$, rechts: zeitliche Entwicklung der mittleren Elektronendichte $N_e(t)$ und der Elektronenenergie $W_e(t)$ im Bereich $z = (0 \dots 100) \text{ nm}$ ($I_{max} = 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 700 \text{ fs}$, $\lambda = 248.5 \text{ nm}$, Polyimidsubstrat, Einfallswinkel 0°)

gestellt: $I_{max} = 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 700 \text{ fs}$, $\lambda = 248.5 \text{ nm}$, Einfallswinkel 0° . Die Abbildung zeigt den räumlichen Verlauf der Elektronendichte $N_e(z)$ und der Elektronenenergie $W_e(z)$ zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ fs}$ (links) sowie die zeitliche Entwicklung der mittleren Elektronendichte $N_e(t)$ und der Elektronenenergie $W_e(t)$ (rechts). Die Simulationsparameter sind vergleichbar mit den Bedingungen im Experiment von Theobald et al. [11]: $I_{max} = 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 700 \text{ fs}$, $\lambda = 248.5 \text{ nm}$, 100 nm Lexanfolie (Polykarbonat, $\text{C}_{16}\text{H}_{14}\text{O}_3$), Einfallswinkel 45° . Die Lexanfolie absorbiert wie Polyimid im UV. In diesem Experiment sind die mittlere Elektronendichte $N_e(t)$ und die Elektronenenergie $W_e(t)$ direkt gemessen worden. In der Tabelle 5.1 sind die Ergebnisse aus diesem Experiment für den Zeitpunkt $t = 0 \text{ fs}$ und aus der Simulation in dieser Arbeit zusammengefasst. Die Elektronendichte und -energie sind in der Simulation im Bereich $z = (0 \dots 100) \text{ nm}$ gemittelt, um einen Vergleich mit den Folientargets im Experiment zu ermöglichen:

	Elektronendichte [cm^{-3}]	Elektronenenergie [eV]
Experiment	$(3.2^{+0.2}_{-0.3} - 3.7^{+0.1}_{-0.2}) \cdot 10^{23}$	50
Simulation: Mittelwerte	$0.9 \cdot 10^{23}$	87
Simulation: Maximalwerte	$3.1 \cdot 10^{23}$	133

Tabelle 5.1: Vergleich zwischen den experimentellen Ergebnisse (Lexanfolie) aus [11] und der Simulation mit dem numerischen Modell (Polyimidsubstrat)

Im Vergleich zwischen den experimentellen Ergebnissen und dem Modell zeigt sich, dass die gemittelte Elektronendichte aus der Simulation um einen Faktor 3.5 kleiner ist als

der experimentelle Wert, aber der Maximalwert in guter Übereinstimmung steht. Die berechneten Elektronenenergien sind dagegen um einen Faktor $1.7 \cdots 2.7$ größer als die gemessene Elektronenenergie. Die Abbildung 5.8 links zeigt, dass das Target nur bis in eine Tiefe von 30nm homogen ionisiert ist, während in [11] von einer homogen ionisierten Folie ausgegangen wird. Die Abweichung kann durch eine zu geringe Wärmeleitung im Modell erklärt werden, welche die im Bereich $z = (0 \cdots 30)\text{nm}$ vorhandene Energie zu langsam in Richtung Substrat transportiert. Durch eine weitere Ionisation durch Elektronenstöße kann die Elektronendichte im Bereich $z = (30 \cdots 100)\text{nm}$ erhöht und die Elektronenenergie abgesenkt werden. Zusätzlich kann der Einfallswinkel von 45° im Experiment zur Resonanzabsorption führen, was im Modell nicht berücksichtigt ist.

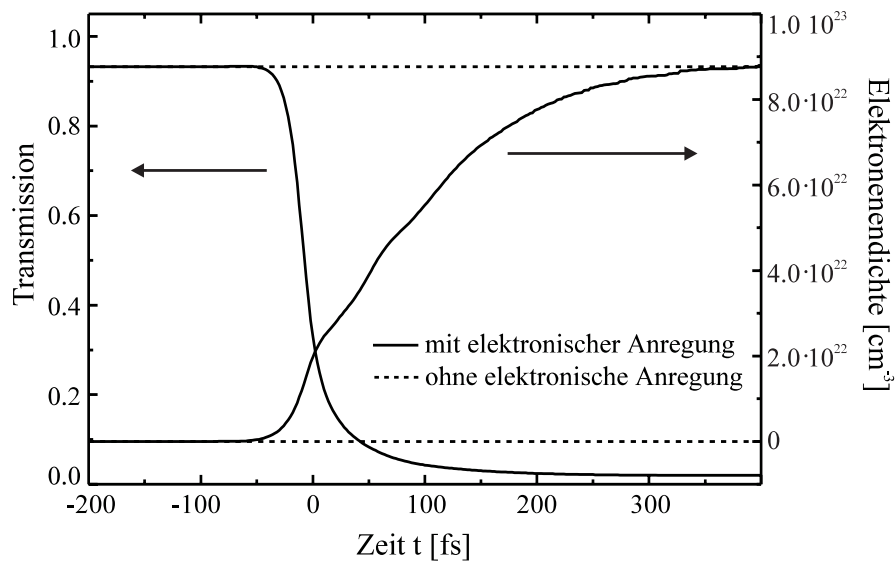


Abbildung 5.9: Einfluss der elektronischen Anregung des Polyimidsubstrates auf die Transmission $T(t)$ und die Elektronendichte $N_e(t)$ (maximale Intensität $I_{max} = 3.0 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 250 \text{ fs}$, $\lambda_{Pumpe} = 248.5 \text{ nm}$, $\lambda_{Probe} = 497 \text{ nm}$)

Die **Abbildung 5.9** zeigt den Einfluss der im Modell berücksichtigten elektronischen Anregung des Polyimidsubstrates durch den UV Pumpimpuls ($I_{max} = 3.0 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\tau_p = 250 \text{ fs}$, $\lambda_{Pumpe} = 248.5 \text{ nm}$, $\lambda_{Probe} = 497 \text{ nm}$). Es sind die zeitlichen Verläufe der Transmission $T(t)$ und der im Bereich $z = (0 \cdots 50)\text{nm}$ gemittelten Elektronendichte $N_e(t)$ mit (—) und ohne (- - -) elektronischer Anregung dargestellt. Die elektronische Anregung der Moleküle wird durch eine entsprechende Herabsetzung der Ionisierungsenergie berücksichtigt (siehe Abschnitt 5.3), was zur Folge hat, dass das Polyimid bei der Intensität $I_{max} = 3.0 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ohne diese Anregung nicht ionisiert wird. Mit Berücksichtigung der Anregung schaltet der Plasmaschalter auf eine minimale Transmission $T_{min} = 2\%$. Die Experimente im Abschnitt 5.5 werden zeigen, dass sich ein Plasmaschalter bei der Intensität I_{max} ausbildet und die elektronische Anregung im Modell berücksichtigt werden

muss.

Der Vergleich der Modellergebnisse mit den experimentellen Ergebnissen in der Literatur hat gezeigt, dass diese durch das in der vorliegenden Arbeit entwickelte Modell gut reproduziert werden können. Mit dem Modell wird das Funktionsprinzip des Plasmaschalters geklärt. Der Transmissionsverlauf $T(t)$ der Plasmaschalter hat in den Simulationen einen stufenförmigen Verlauf mit großer Dynamik und Schaltzeiten τ_T , die es erlauben, die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ zu messen.

5.5 Plasmaschalter mit Polyimidsubstrat

5.5.1 Experimenteller Aufbau

Der Aufbau des Plasmaschalters mit Polyimidsubstrat ist in der Abbildung 5.10 schematisch dargestellt [57]. Das Lasersystem liefert fs Laserpulse mit den Wellenlängen $\lambda_{VIS} = 497nm$ und $\lambda_{UV} = 248.5nm$. Nach der Pulsformung im CaF_2 Prismenkompressor hat der UV fs Pumpimpuls eine minimale Pulsdauer $\tau_{UV} = (225 \pm 7)fs$. Durch den Abstand der SF_{10} Prismen im VIS Prismenkompressor kann die Pulsdauer τ_{VIS} der VIS fs Probepulse zwischen $(135 \pm 11 \cdots 665 \pm 43)fs$ eingestellt werden. Die zeitliche Diagnostik erfolgt mit einem PG FROG und einem SHG Korrelator, die in Kapitel 3 ausführlich charakterisiert werden.

Mit einem dielektrischen Strahlteiler werden der UV Pumpimpuls und der VIS Probepuls räumlich überlagert. Mit einer plankonvexen Quarzlinse werden beide Pulse kollinear auf einen mit Polyimid beschichteten BK7 Glasträger fokussiert. Das Polyimidsubstrat befindet sich in der Brennweite $f_{UV} = 50mm$ des UV Pumpimpulses. Die Ebene des UV Fokus wird mit einem 10fach Mikroskopobjektiv in Transmission auf eine CCD Kamera mit 512×256 Pixeln abgebildet. Während der UV Pumpimpuls durch das Polyimid und den BK7 Glasträger vollständig absorbiert wird, erfährt der VIS Probepuls nur eine 4%ige Reflexion an jeder Grenzfläche. Der Bandpassfilter hat eine Zentralwellenlänge von $497nm$ und unterdrückt das "weiße" Fluoreszenzleuchten des Plasmas. Durch die Unterschiede im Brechungsindex der Linse und in der Divergenz der Pulse liegt der Fokus des VIS Probepulses weiter im Glasträger, so dass der Strahldurchmesser des VIS Probepulses größer ist als der des UV Pumpimpulses (siehe Abbildung 5.11). Die Energie des UV Pumpimpulses beträgt im Fokus $(150 \pm 50)\mu J$ bei einem Strahldurchmesser von $(50 \pm 5)\mu m$. Daraus ergibt sich eine Intensität von $(34 \pm 16)TW/cm^2$, wobei der Fehler vor allem auf die starken Energieschwankungen des Lasers zurückzuführen ist. Bei dieser Intensität beträgt der Keldysh Parameter $\gamma \approx 5$, d.h., die Ionisation wird durch die Multiphotonenionisation bestimmt. Die Intensität des VIS Probepulses ist bei einer Pulsenergie von $1\mu J$ und einem Strahldurchmesser von etwa $250\mu m$ kleiner als $16GW/cm^2$. Diese Intensität ist zu gering, um

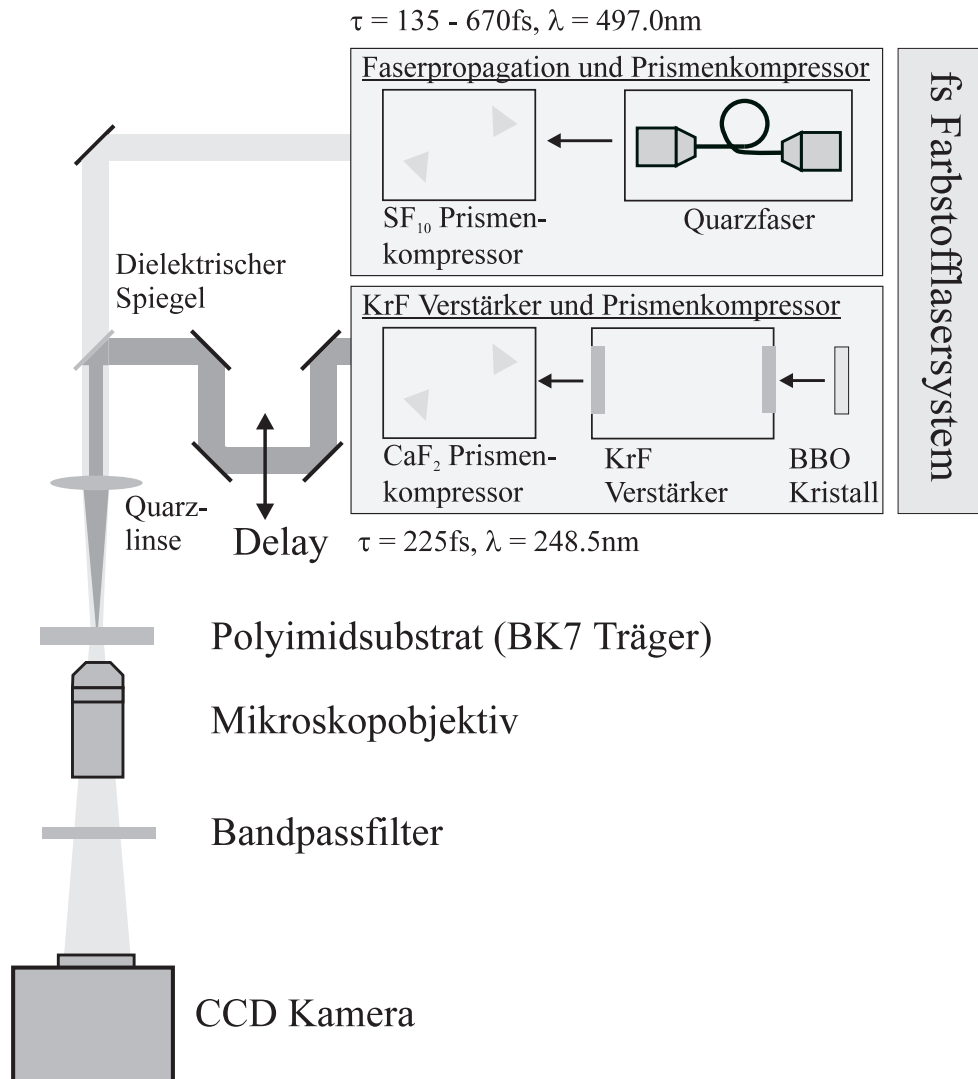


Abbildung 5.10: Schematischer Aufbau des Plasmaschalters mit Polyimidsubstrat

auf dem Polyimidsubstrat ein Plasma zu erzeugen. Die zeitliche Verzögerung τ zwischen den Pulsen wird über einen variablen Laufweg des UV Pumpulses eingestellt. Der BK7 Glasträger wird mit einem xy-Lineartisch nach jedem UV Pumpuls senkrecht zur Ausbreitungsrichtung bewegt, damit bei jedem Laserschuss eine "frische" Substratoberfläche vorliegt. Die Abbildung 5.11 zeigt das Strahlprofil des VIS Probepulses ohne Pumpuls (links) und mit Pumpuls (rechts) bei minimaler Transmission für den Probepuls. In der Mitte ist deutlich die geringere Intensität im Bereich des UV Pumpulses ($\varnothing = 50\mu\text{m}$) zu erkennen.

5.5.2 Dynamik und Schaltzeit des Plasmaschalters

In der Abbildung 5.12 (links) ist ein gemessener Transmissionsverlauf des Plasmaschalters dargestellt, und zwar für die Pulsdauern $\tau_{VIS} = (135 \pm 11)\text{fs}$ und $\tau_{UV} = (225 \pm 7)\text{fs}$.

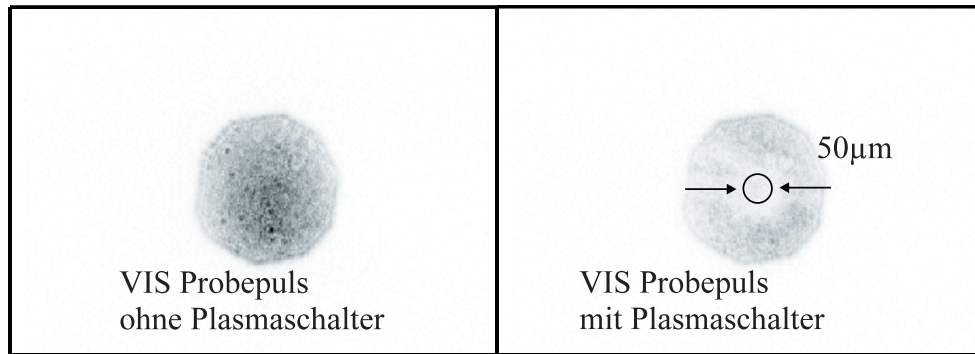


Abbildung 5.11: Strahlprofil des Probepulses: ohne Pumpimpuls (links) und mit Pumpimpuls bei minimaler Transmission (rechts)

Der einzelne Messpunkt ergibt sich als Mittelwert aus drei Einzelschussaufnahmen, wobei das Transmissionssignal jeweils im Bereich des UV Pumpimpulses integriert wird. Die Fehler des einzelnen Messpunktes sind vor allem auf die starken Energieschwankungen des Lasers zurückzuführen.

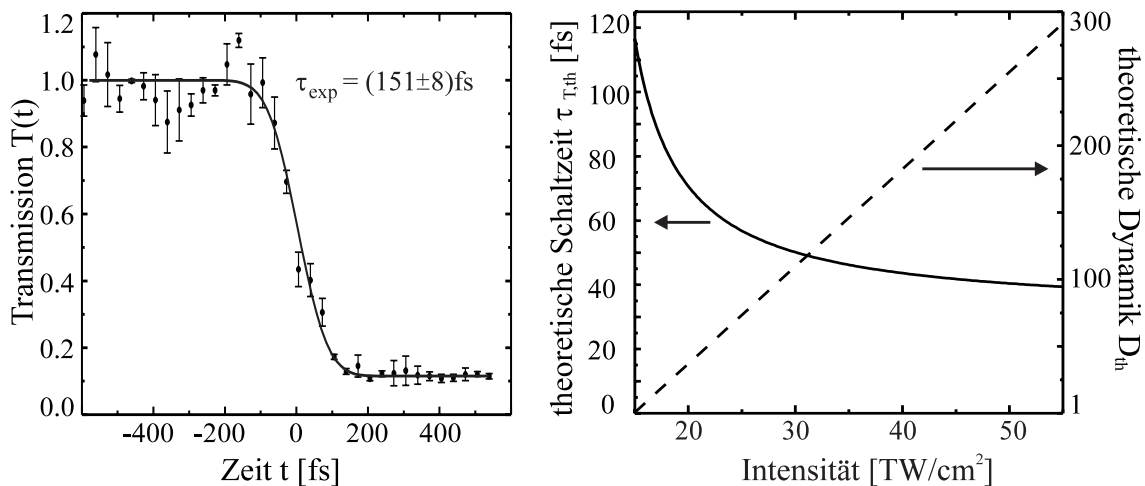


Abbildung 5.12: Links: Transmission $T(t)$ des Plasmaschalters mit Polyimidsubstrat. Die Pulsdauern $\tau_{VIS} = (135 \pm 11)fs$ und $\tau_{UV} = (225 \pm 7)fs$ ergeben sich aus den Referenzmessungen mit dem PG FROG und dem SHG Korrelator. Die gemessene Abfallszeit $\tau_{exp} = (151 \pm 8)fs$ ist ein optimierter Parameter der Modellfunktion. Rechts: theoretische Schaltzeit $\tau_{T,th}$ (—) und Dynamik $D_{th}(\dots)$ als Funktion der Intensität des Pumpimpulses

Wird an die Messkurve in der Abbildung 5.12 (links) eine Modellfunktion³ entsprechend Gleichung 4.11 angepasst, so ergibt sich für den Plasmaschalter eine gemessene Abfallszeit $\tau_{exp} = (151 \pm 8)fs$. Die Messpunkte werden durch die Modellfunktion gut angepasst und sind in der Abbildung 5.12 (links) so normiert, dass die Modellfunktion $T(t)$ eine

³Modellfunktion für Transmission $T(t)$: $T(t) = T_{min} + \Delta T/2 \left(1 + \operatorname{erf}\left(-\sqrt{4 \log(2)}(t - t_o)/\tau_{exp}\right) \right)$

maximale Transmission von 1 hat und der Schaltzeitpunkt t_o in der Auswertung auf $t_o=0$ gesetzt ist. Der Probepuls hat nach Referenzmessungen mit dem SHG Korrelator einen gaußförmigen Intensitätsverlauf. Unter diesen Voraussetzungen gilt für die gemessene Abfallszeit $\tau_{exp} = \sqrt{\tau_{T,exp}^2 + \tau_{VIS}^2}$, wobei $\tau_{T,exp}$ die Schaltzeit des Plasmaschalters und τ_{VIS} die Pulsdauer des Probepulses sind. Aus diesem Zusammenhang kann die Schaltzeit $\tau_{T,exp}$ abgeschätzt werden: $\tau_{T,exp} = (68 \pm 40) fs$. Die Dynamik D des Plasmaschalters ist als das Verhältnis zwischen maximaler und minimaler Transmission definiert. Durch Mittelung über 14 gemessene Transmissionssignale ergibt sich eine Dynamik $D_{exp} = 7.0 \pm 2.0$.

In der Abbildung 5.12 (rechts) werden die theoretische Schaltzeit $\tau_{T,th}$ (—) und die Dynamik D_{th} (---) in Abhängigkeit von der Intensität dargestellt, und zwar für einen gaußförmigen Pumpimpuls mit der Pulsdauer $\tau_{UV} = 225 fs$. Bei der Schwellintensität $I_s \approx 15 TW/cm^2$ hat die Dynamik D_{th} den minimalen Wert $D_{th} = 1$ und die Schaltzeit $\tau_{T,th}$ steigt stark an. Bei größeren Intensitäten nimmt die Schaltzeit $\tau_{T,th}$ einen minimalen Wert von $\leq 40 fs$ an, während die Dynamik D_{th} linear ansteigt. Mit diesem Modell errechnet sich bei einer Intensität von $I_{max} = (34 \pm 16) TW/cm^2$ eine theoretische Dynamik von $D_{th} = 135 \pm 118$. Der experimentelle und der theoretische Wert unterscheiden sich um mehr als eine Größenordnung, allerdings liegt die untere Fehlergrenze von D_{th} bedingt durch die ungenaue Intensität im Bereich des experimentellen Wertes. Dieser wird durch systematische Fehler von T_{min} , wie z.B. die Integration über einen zu großen Bereich, die Schwankung der räumlichen Überlappung zwischen den Pulsen und das restliche Fluoreszenzleuchten, zu kleineren Werten verschoben. Eine quantitative Abschätzung der systematischen Fehler ist schwierig. Für die theoretische Schaltzeit $\tau_{T,th}$ wird ein Wert von $(47 \pm 30) fs$ berechnet. Dieser ist im Rahmen der Fehlergrenzen in guter Übereinstimmung mit der experimentell abgeschätzten Schaltzeit von $(68 \pm 40) fs$. Es zeigt sich im Modell und im Experiment deutlich, dass die Schaltzeit für den VIS Probepuls wesentlich kürzer ist als die Pulsdauer des UV Pumpimpulses. Die relativ großen Fehlergrenzen ergeben sich aus der Ungenauigkeit der Intensität I_{max} und dem starken Anstieg der Schaltzeit in diesem Intensitätsbereich.

Angesichts der Fehlergrenzen und der komplexen Ionisationsprozesse ergibt sich für die Dynamik eine befriedigende und für die Schaltzeit eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Experiment. Da die Intensität im Experiment I_{max} nur wenig größer ist als die Schwellintensität I_s , wird mit dem Modell in einem Grenzbereich gearbeitet, was die quantitativen Aussagen zusätzlich erschwert. Durch die Berücksichtigung von Festkörpereffekten auf die Ionisation, kann das Modell gegebenenfalls verbessert werden. Die experimentellen Fehler lassen sich durch einen stabileren Laser mit höherer Repetitionsrate erheblich verringern.

5.6 Plasmaschalter mit Quarzsubstrat

5.6.1 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau des Plasmaschalters mit Quarz als transparentem Substrat ist schematisch in der Abbildung 5.13 dargestellt [58]. Bei diesem Plasmaschalter werden fs Laserpulse der Wellenlänge $\lambda = 248.5\text{nm}$ als Pump- und Probepuls verwendet.

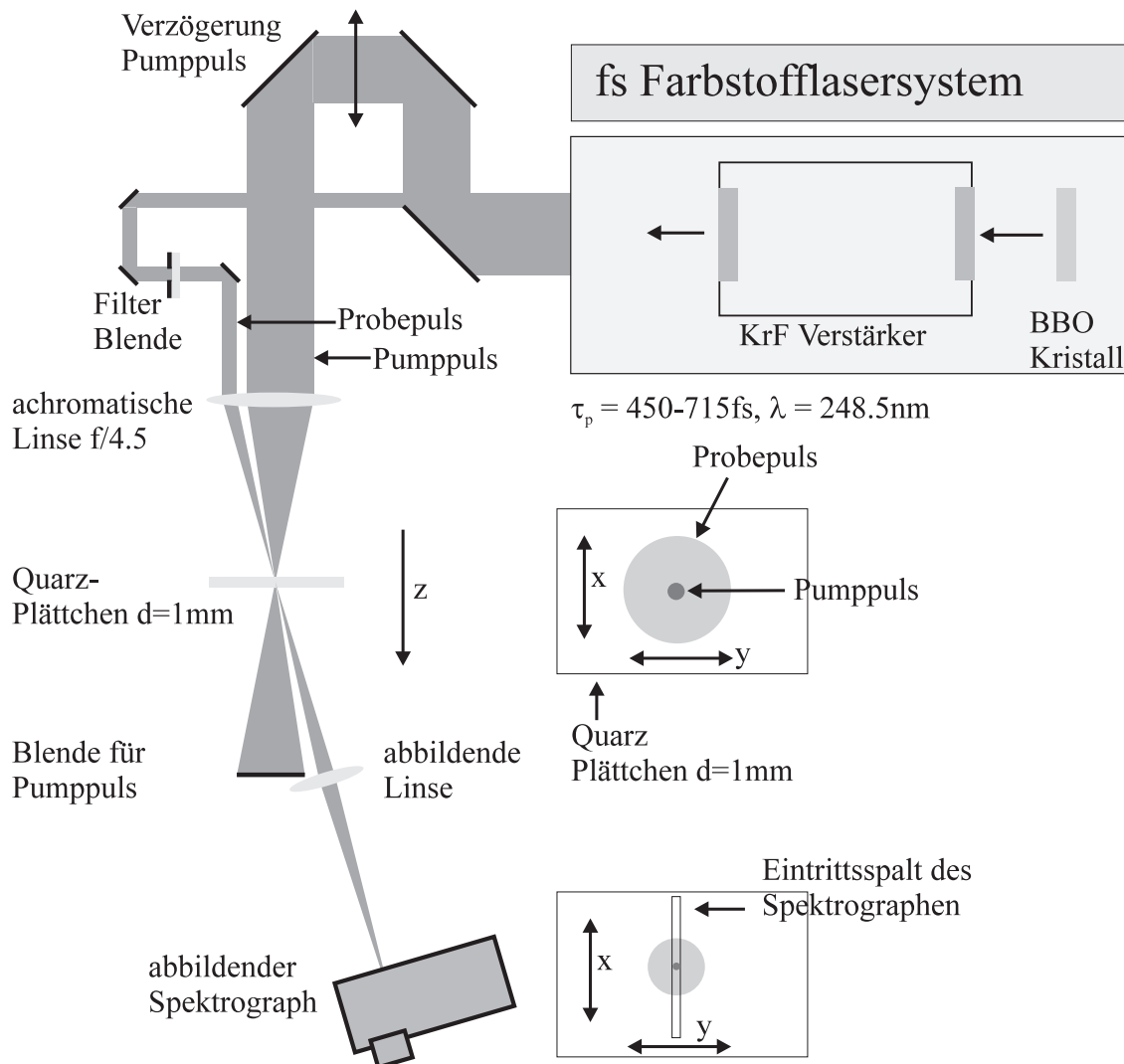


Abbildung 5.13: Schematischer Aufbau des Plasmaschalters mit transparentem Quarz

Der ultraviolette fs Laserpuls wird mit einem Spiegel in einen starken Pump- und einen schwachen Probepuls aufgeteilt. Der Probepuls wird durch einen Graufilter und eine Blende nochmals abgeschwächt. Beide Pulse werden mit einer achromatischen Linse (f/4.5) unter senkrechtem Einfall auf das polierte Quarzsubstrat ($d = 1\text{mm}$) fokussiert. Die zeitliche Verzögerung τ zwischen den Pulsen wird über einen variablen Laufweg des Pumppulses eingestellt. Die Genauigkeit für die relative Verzögerung beträgt 6.7fs ($\Delta z =$

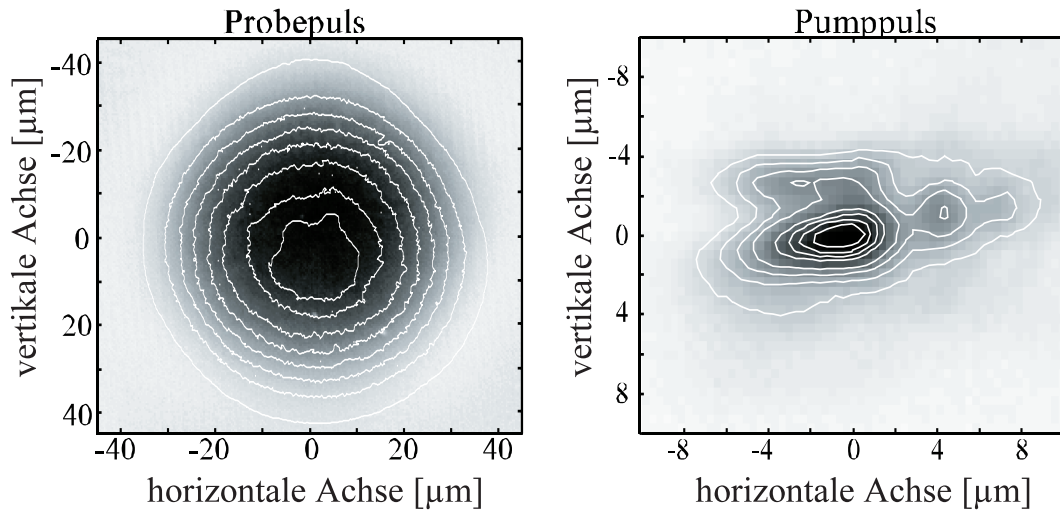


Abbildung 5.14: Fokus des Probepulses (links) und des Pumpulses (rechts)

$2\mu\text{m}$). Die absolute Verzögerung $\tau = 0\text{fs}$ wird in diesem Experiment mit einer Genauigkeit von $\Delta\tau = (100 \cdots 200)\text{fs}$ eingestellt, und zwar über die räumliche Interferenz zwischen dem abgeschwächten Pumpuls und dem Probepuls im Fokus.

Die Abbildung 5.14 zeigt die Strahlprofile von Pump- und Probepuls im Fokus. Mit einem UV Mikroskopobjektiv werden die abgeschwächten Pulse bei einer 57fachen Vergrößerung in guter Qualität auf eine CCD Kamera abgebildet [87]. Der Fokus des Probepulses ist bedingt durch die Blende etwa 10mal größer als der Fokus des Pumpulses und hat ein gaußförmiges Strahlprofil. Der Pumpuls hat dagegen ein elliptisches Strahlprofil mit einer räumlichen Ausdehnung von etwa $(3.5 \times 6.5)\mu\text{m}^2$. Wird die Intensitätsverteilung des Pumpulses ausgewertet, so zeigt sich, dass nur etwa 20% der Pulsenergie im eigentlichen Pumpfokus liegen. Die Pulsenergie beträgt in den Experimenten zwischen 1.2mJ und 6.2mJ bei einer Pulsdauer $\tau_p = (435 \cdots 715)\text{fs}$. Einschließlich der Reflexionsverluste an Oberflächen ergibt sich daraus eine Intensität $I_{max} = (0.7 \cdots 4.8) \cdot 10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$. Der Keldysh Parameter γ ist hier ≥ 0.5 und die Ionisation liegt somit eher im Bereich der Tunnelionisation. Die Intensität des Probepulses ist 7 Größenordnungen geringer als die Intensität des Pumpulses. Die ASE des KrF Verstärkers ist nur als Untergrund vorhanden.

Das Quarzsubstrat wird nach jedem Pumpuls mit einem xy-Lineartisch senkrecht zur Ausbreitungsrichtung bewegt, damit bei jedem Laserschuss eine "frische" Substratoberfläche vorliegt. Um die Ionisationsprozesse auf das Quarzsubstrat zu beschränken, befinden sich das Quarzsubstrat mit dem Lineartisch und der fokussierenden Linse in einer Vakuumkammer bei einem Druck $p \leq 0.2\text{Pa}$. Der transmittierte Probepuls wird auf den Eintrittsspalt eines abbildenden Czerny-Turner Spektrographen ($f = 0.25\text{mm}$) abgebildet. Für die Messung der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ werden die Spektren für verschiede-

ne Verzögerungen τ mit einer CCD Kamera aufgezeichnet und in dem Bereich ausgewertet, in dem sich Pump- und Probepuls räumlich überlagern (Abbildung 5.15).

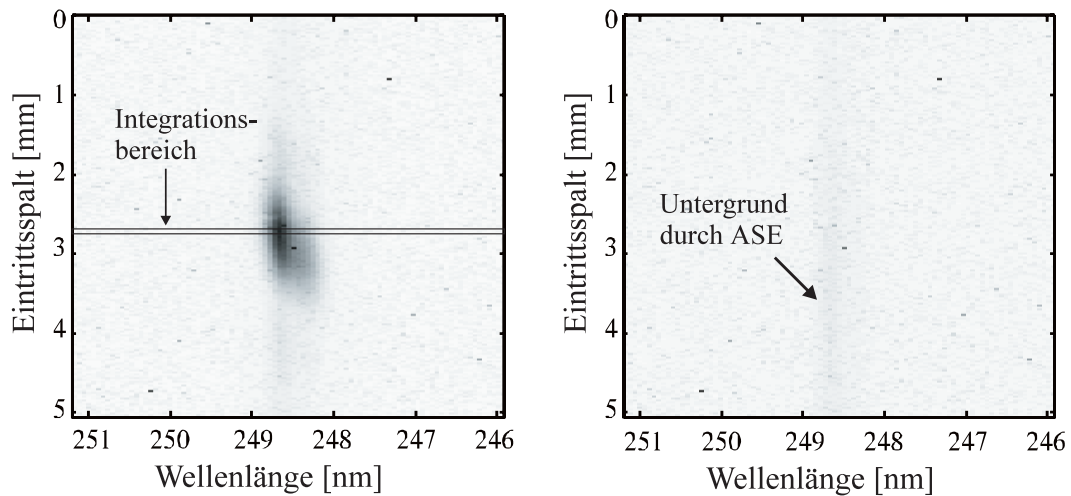


Abbildung 5.15: Strahlprofil des Probepulses: ohne Pumpuls (links) und mit Pumpuls bei minimaler Transmission (rechts). Die vertikale Achse entspricht der Raumachse des Eintrittspaltes und die horizontale Achse ist die Wellenlängenachse des Spektrographen.

Die Abbildung 5.15 zeigt zwei CCD Aufnahmen des Probepulses nach dem Spektrographen, und zwar ohne Pumpuls (links) und mit Pumpuls bei minimaler Transmission (rechts). Die vertikale Achse in den Aufnahmen entspricht der Raumachse des Eintrittspaltes, d.h., das Bild des Probepulses am Eintrittsspalt ist in der linken Aufnahme etwa 1mm groß. Die horizontale Achse ist die Wellenlängenachse des Spektrographen. Die Auswertung der optischen Schalterparameter erfolgt im Bereich der maximalen Intensität des Pumpulses, der in der Abbildung 5.15 als Integrationsbereich markiert ist. Die rechte Aufnahme in Abbildung 5.15 zeigt, dass der Probepuls über den ganzen Strahldurchmesser "geschaltet" wird, obwohl der Strahldurchmesser des Pumpulses im Fokus sehr viel kleiner ist. Die Energie außerhalb des eigentlichen Pumpfokuss von $(3.5 \times 6.5) \mu\text{m}^2$ beträgt etwa 80% der gesamten Pulsenergie und verteilt sich auf den Bereich des Probefokuss, so dass auch hier die Intensität groß genug ist, um einen Plasmaschalter zu erzeugen.

5.6.2 Dynamik und Schaltzeit des Plasmaschalters

In der Abbildung 5.16 (links) ist ein gemessener Transmissionsverlauf des Plasmaschalters mit Quarzsubstrat dargestellt, und zwar für eine Pulsdauer $\tau_p = (434 \pm 23) \text{fs}$. Die Schwankungen im Bereich der maximalen Transmission sind vor allem auf die starken Energieschwankungen des Lasers zurückzuführen. Für die Auswertung des Transmissionsverlaufes werden Messpunkte ergänzt: $T(t = -2.0 \text{ps} \dots - 1.6 \text{ps}) = \langle T(t = -1.5 \text{ps} \dots - 1.2 \text{ps}) \rangle$ und $T(t = 0.5 \text{ps} \dots 1.0 \text{ps}) = 0$. Wird die gemessene Transmission wie im Abschnitt 5.5.2

an die Modellfunktion angepasst, so ergibt sich für den Plasmaschalter eine gemessene Abfallszeit $\tau_{exp} = (439 \pm 74) fs$. Die Messpunkte werden durch die Modellfunktion gut angepasst und sind in der Abbildung 5.16 (links) so normiert, dass die Modellfunktion $T(t)$ eine maximale Transmission von 1 hat. Der Schaltzeitpunkt t_o ist hier zu negativen Zeiten verschoben, da in diesem Experiment die absolute Verzögerung zwischen Pump- und Probepuls bekannt ist und die Schwellintensität I_s wie in den Simulationen im Abschnitt 5.4 schon zu frühen Zeiten erreicht wird (siehe Abbildung 5.4).

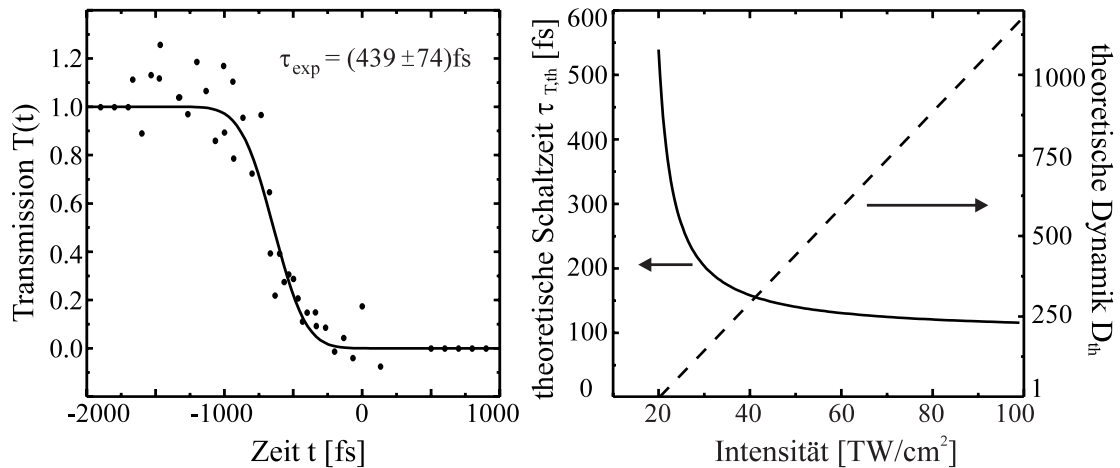


Abbildung 5.16: Links: Transmission $T(t)$ des Plasmaschalters mit Quarzsubstrat. Die Pulsdauer $\tau_p = (434 \pm 23) fs$ ergibt sich aus den Referenzmessungen mit dem PG FROG. Die gemessene Abfallszeit $\tau_{exp} = (439 \pm 74) fs$ ist ein optimierter Parameter der Modellfunktion. Rechts: theoretische Schaltzeit $\tau_{T,th}$ (—) und Dynamik $D_{th}(\dots)$ als Funktion der Intensität des Pumpimpulses

Die quantitative Berechnung der Schaltzeit $\tau_{T,exp}$ wie im Abschnitt 5.5.2 ist schwierig, da hier die gemessene Abfallszeit τ_{exp} und die Pulsdauer τ_p ungefähr gleich groß sind. Daraus folgt allerdings, dass die Schaltzeit $\tau_{T,exp} \leq \tau_p/5$ ist (siehe Abschnitt 4.3). Das minimale Signal in der rechten Aufnahme von Abbildung 5.15 entspricht nicht der minimalen Transmission T_{min} , da der Dunkelstrom der CCD Kamera, der ASE Anteil im Probepuls und das Streulicht ein zusätzliches Untergrundsignal erzeugen. Die Bestimmung der Schalterdynamik wird begrenzt durch die Dynamik der CCD Kamera ($D_{CCD} < 1500$). Aus den Aufnahmen kann eine untere experimentelle Grenze der Schalterdynamik von $D_{exp} \geq 200$ abgeschätzt werden. Diese ist deutlich größer als bei dem Plasmaschalter mit Polyimidsubstrat.

In der Abbildung 5.16 (rechts) werden die theoretische Schaltzeit $\tau_{T,th}$ (—) und die Dynamik $D_{th}(\dots)$ in Abhängigkeit von der Intensität dargestellt. Es ergeben sich für das Quarzsubstrat bei einer Pulsdauer von 500fs ähnliche Kurvenverläufe wie beim Poly-

imidsubstrat. Die Schwellintensität I_s beträgt für das Quarzsubstrat $I_s \approx 20 \text{ TW/cm}^2$. Die theoretische Schwellintensität ist größer als im Plasmaschalter mit Polyimidsubstrat, obwohl die Ionisierungsenergie des Siliziums im Quarz ($W_{ion,Si} = 8.2 \text{ eV}$) kleiner ist als die des Kohlenstoffs im Polyimid ($W_{ion,C} = 11.3 \text{ eV}$) und damit die OFI früher einsetzen sollte. Durch die im Modell berücksichtigte elektronische Anregung ist allerdings die Ionisierungsenergie des angeregten Kohlenstoffs um die Photonenenergie erniedrigt ($W_{ion,C^*} = 6.3 \text{ eV}$) und damit die geringere Schwellintensität erklärbar. Im Bereich der experimentellen Intensität $I_{max} = (0.7 \dots 4.8) \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ändert sich die Schaltzeit $\tau_{T,th}$ nicht mehr und hat einen Wert von $\approx 100 \text{ fs}$, was mit dem experimentell abgeschätzten Wert übereinstimmt. Aus der linearen Interpolation berechnet sich eine theoretische Dynamik $D_{th} \approx (1 \dots 7) \cdot 10^4$, die außerhalb der Detektordynamik D_{CCD} liegt.

Wie in diesem Abschnitt gezeigt, ist der optisch induzierte Plasmaschalter mit Quarzsubstrat bei Intensitäten $I \geq 100 \text{ TW/cm}^2$ ein optischer Schalter, dessen Schaltzeit τ_T erheblich kürzer als die Pulsdauer τ_p ist und eine hohe Dynamik D aufweist. Mit diesen Eigenschaften des optischen Schalters ist es möglich, die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen im UV zu messen.

Kapitel 6

Messung der Pagefunktion von fs Laserpulsen

6.1 Messergebnisse im ultravioletten Spektralbereich

In diesem Abschnitt werden die gemessenen integralen Pagefunktionen $P_f(\tau, \omega)$ und die abgeleiteten Pagefunktionen $P(\tau, \omega)$ dargestellt und ausgewertet. Die sich daraus ergebenden Parameter der fs Laserpulse werden mit denen der Referenzmessungen verglichen. Für die Messung der Pagefunktion im ultravioletten Spektralbereich ($\lambda = 248.5nm$) wird der Plasmaschalter mit Quarzsubstrat verwendet, dessen Aufbau im Abschnitt 5.6 ausführlich beschrieben wird.

Die Abbildung 6.1 zeigt eine gemessene integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ (6.1a) und deren Auswertung (6.1 b-f). Die Wellenlängenachse des Spektrographen ist in der Abbildung 6.1 a) in eine Frequenzachse transformiert und die Intensität wird mit einer linearen Grauskala codiert. Bei der gemessenen integralen Pagefunktion verschieben sich die Schwerpunkte der Spektren mit zunehmender Verzögerung τ von negativen zu positiven Frequenzen. Im Vergleich zu der numerisch erzeugten integralen Pagefunktion in der Abbildung 4.2 1a) zeigt sich auch in der Messung eine "bananenförmige" Struktur, die durch eine lineare Frequenzmodulation mit ansteigender Momentanfrequenz hervorgerufen wird (siehe Abbildung 6.1 d). Die gemessene integrale Pagefunktion ist um $t_o = 595fs$ zu positiven Verzögerungszeiten verschoben. Für den Fall, dass der Probe- und Pumpuls nicht zueinander verzögert sind ($\tau = 0fs$), liegt der Schaltzeitpunkt des Plasmaschalters bei negativen Zeiten ($t = -t_o$). Wie in Kapitel 5 gezeigt, erfolgt der Übergang vom Dielektrikum bei negativen Zeiten, falls die Schwellintensität I_s erheblich kleiner als die maximale Intensität I_{max} des Pumpulses ist (siehe Abbildung 5.16 links). Für die Auswertung der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ werden Spektren ergänzt: $P_f(\tau = -1.0ps \dots -0.5ps, \omega) = 0$ und $P_f(\tau = 1.6ps \dots 2.0ps, \omega) = \langle P_f(\tau = 1.2ps \dots 1.5ps, \omega) \rangle_\tau$. Im Bereich $\tau = -1.0ps \dots -0.5ps$

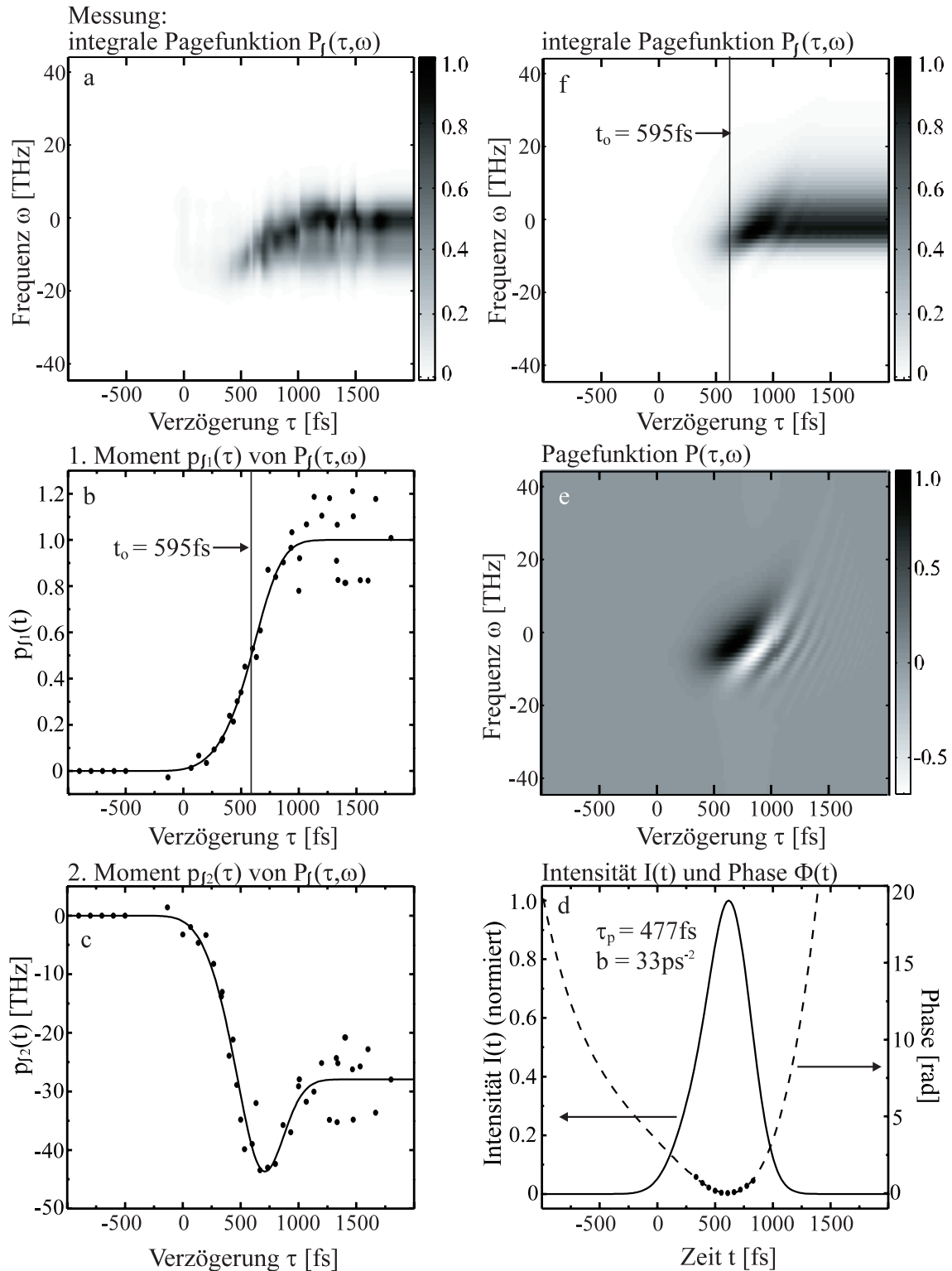


Abbildung 6.1: a: gemessene integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ für einen fs Laserpuls ($\lambda = 248.5 \text{ nm}$), b: gemessenes 1. Moment $p_{f1}(\tau)$ der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ mit angepasster Funktion, c: gemessenes 2. Moment $p_{f2}(\tau)$ der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ mit angepasster Funktion, d: rekonstruierte Intensität $I(t)$ ($\tau_p = 477 \text{ fs}$) und Phase $\Phi(t)$ ($b = 33 \text{ ps}^{-2}$), e: rekonstruierte Pagefunktion $P(\tau, \omega)$, f: rekonstruierte integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$

werden Nullen angefügt und im Bereich $\tau = 1.6ps \cdots 2.0ps$ werden Spektren ergänzt, die im Bereich $\tau = 1.2ps \cdots 1.5ps$ aus den gemessenen Spektren gemittelt werden.

In der Abbildung 6.1 b) sind das erste Moment $p_{f1}(\tau)$ der gemessenen integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ (●) und eine angepasste Modellfunktion (—) dargestellt. Die Modellfunktion setzt sich als Summe aus drei Fehlerfunktionen zusammen:

$$p_{f1}(\tau) = \sum_{k=1}^3 \frac{A_k}{2} \left\{ 1 + \operatorname{erf} \left(\sqrt{4 \log(2)} \frac{\tau - \Delta\tau_k}{\tau_k} \right) \right\} \quad (6.1)$$

Die freien Parameter der Modellfunktion sind die Amplituden A_k , die Verzögerungen $\Delta\tau_k$ und die Anstiegszeiten τ_k . Die angepasste Modellfunktion stimmt gut mit den Messpunkten überein und ist in der Abbildung 6.1 b) auf einen maximalen Wert von eins normiert. Aus der Ableitung der angepassten Modellfunktion nach τ ergibt sich der Intensitätsverlauf $I(t)$ (siehe Gleichung 4.9), der in der Abbildung 6.1 d) dargestellt ist (—) und in guter Näherung einen gaußförmigen Verlauf hat. Die Pulsdauer beträgt $\tau_p = 477fs$.

Das zweite Moment $p_{f2}(\tau)$ der gemessenen integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ (●) ist in der Abbildung 6.1 c) dargestellt. Der Gleichung 4.10 entsprechend wird $p_{f2}(\tau)$ durch eine Summe aus folgenden Funktionen angepasst:

$$p_{f2}(\tau) = \omega_o \int_{-\infty}^{+\tau} I(t) dt + b \int_{-\infty}^{+\tau} tI(t) dt + \frac{1}{2}c \int_{-\infty}^{+\tau} t^2 I(t) dt + \frac{1}{6}d \int_{-\infty}^{+\tau} t^3 I(t) dt \quad (6.2)$$

Die freien Parameter ω_o , b , c und d entsprechen den Koeffizienten der Taylorentwicklung der Phase $\Phi(t)$ (siehe Gleichung 2.11). Die Funktionen $\int t^k I(t)$ werden aus der Intensität $I(t)$ berechnet. Trotz der großen Schwankungen der Messpunkte werden diese durch die Modellfunktion (—) gut angepasst. Aus den Taylorkoeffizienten ergibt sich die Phase $\Phi(t)$ des fs Laserpulses, die in der Abbildung 6.1 d) dargestellt ist (---). Im Bereich der vollen Halbwertsbreite ($-\tau_p/2 \leq t \leq \tau_p/2$) kann die Phase $\Phi(t)$ durch ein Polynom zweiten Grades genähert werden (●), womit sich hier eine lineare Frequenzmodulation von $b = 33ps^{-2}$ ergibt. Der große Wert für b folgt daraus, dass bei dieser Messung der Eingangspuls in den KrF Verstärker nicht abgeschwächt wird und der verstärkte Ausgangspuls eine starke Selbstphasenmodulation in den Verstärkerfenstern erfährt.

Aus den rekonstruierten Verläufen der Intensität $I(t)$ und der Phase $\Phi(t)$ können die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ und die integrale Pagefunktionen $P_f(\tau, \omega)$ berechnet werden. Diese sind in den Abbildungen 6.1 e) bzw. f) dargestellt. Wie an der linearen Grauskala zu sehen ist, nimmt die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ negative Werte an und weist in diesen Bereichen eine starke Modulation auf. Desweiteren ist der Anstieg der Momentanfrequenz mit der Zeit qualitativ in der Neigung der ellipsenförmigen Signalform zur Zeitachse zu erkennen. Die rekonstruierte integrale Pagefunktion in Abbildung 6.1 f) zeigt im Vergleich zur gemessenen integralen Pagefunktion qualitativ die gleiche "bananenförmige" Struktur und steht auch quantitativ in guter Übereinstimmung zu dieser.

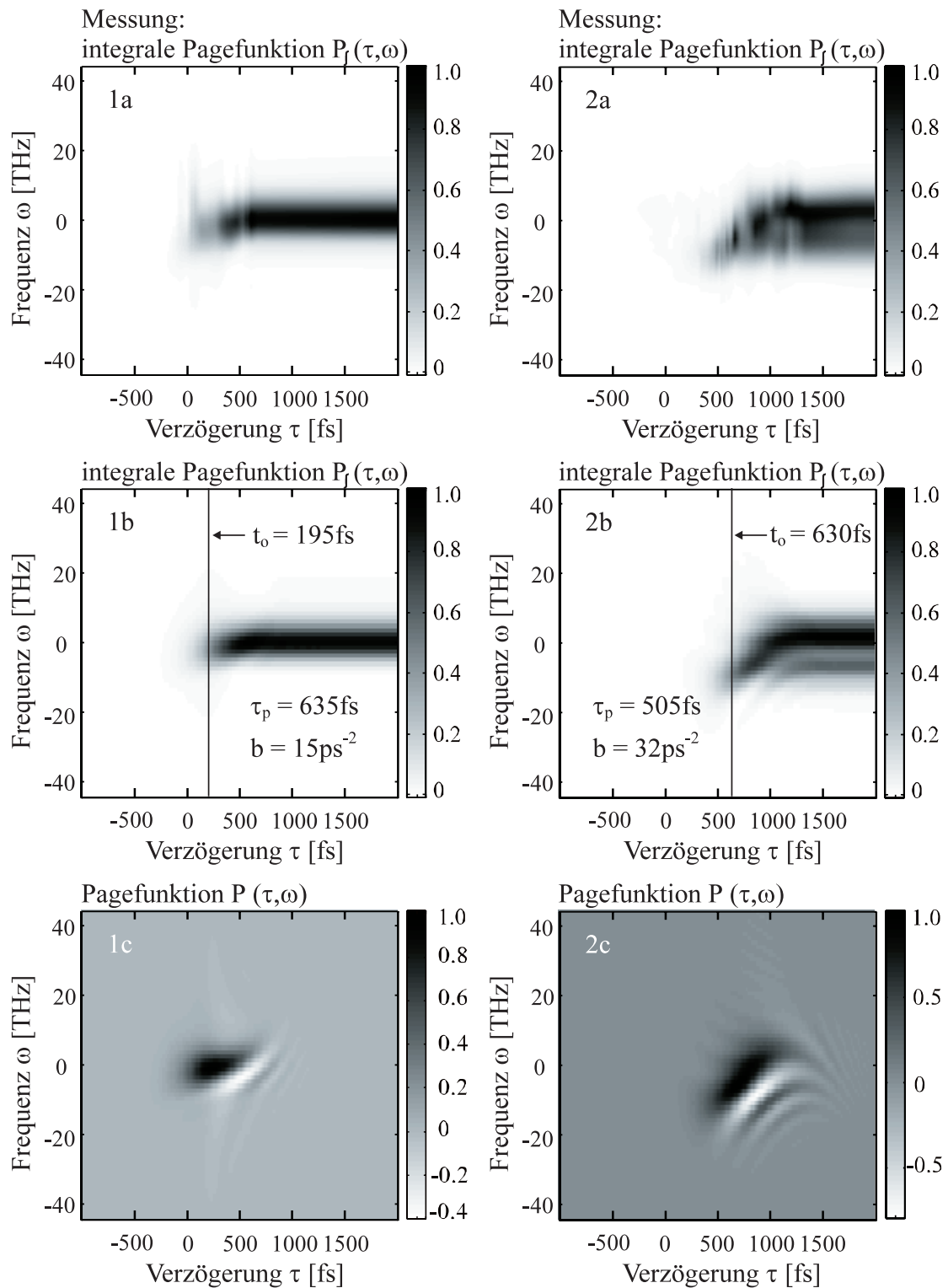


Abbildung 6.2: Messung und Auswertung der integralen Pagefunktion für fs Laserpulse mit unterschiedlicher Pulsenergie nach dem KrF Verstärker (links: $E = 1.2 \text{ mJ}$, rechts: $E = 5.2 \text{ mJ}$). Neben den gemessenen integralen Pagefunktionen (1a, 2a) sind die rekonstruierten integralen Pagefunktionen (1b, 2b) und die rekonstruierten Pagefunktionen (1c, 2c) dargestellt.

In der Abbildung 6.2 sind zwei Messungen für fs Laserpulse mit unterschiedlicher Pulsenergie nach dem KrF Verstärker dargestellt, und zwar jeweils die gemessene integrale Pagefunktion, die rekonstruierte integrale Pagefunktion und die Pagefunktion. Die Pulsenergie des fs Laserpulses in den Abbildungen 6.2 1a-c) ist um einen Faktor 4 kleiner als die des fs Laserpulses in den Abbildungen 6.2 2a-c).

Die rekonstruierten integralen Pagefunktionen in den Abbildungen 6.2 1b) bzw. 2b) stimmen gut mit den Messungen in den Abbildungen 6.2 1a) und 2a) überein. Dabei ist die "bananenförmige" Struktur der gemessenen und rekonstruierten integralen Pagefunktion bei dem fs Laserpuls mit der höheren Pulsenergie deutlicher ausgeprägt. Auch die Modulation und die Neigung der Pagefunktionen in den Abbildungen 6.2 1c) und 2c) zeigen qualitativ, dass die Frequenzmodulation für den fs Laserpuls mit höherer Pulsenergie größer ist. Die Ausdehnung der beiden Pagefunktionen in den Abbildungen 6.2 1c) und 2c) bezüglich der zeitlichen Verzögerungsachse τ ist vergleichbar, was qualitativ auf gleiche Pulsdauern hindeutet. Die größere Frequenzmodulation des energiereicheren fs Laserpulses führt bei vergleichbarer Pulsdauer zu einer größeren spektralen Bandbreite, was auch in den Spektren der Abbildungen 6.2 1a) bzw. 2a) bei großen Verzögerungen τ deutlich zu erkennen ist.

Die quantitative Auswertung ergibt eine Pulsdauer von $\tau_p = 635 fs$ für den fs Laserpuls mit geringerer Pulsenergie bzw. $\tau_p = 505 fs$ für den energiereicheren fs Laserpuls. Die unterschiedlichen Pulsdauern sind durch die Justage des Femtosekunden-Farbstofflasers zum Zeitpunkt der jeweiligen Messung bedingt. Wie in der Abbildung 6.1 d) explizit dargestellt ist, kann auch hier die Frequenzmodulation im Bereich der Halbwertsbreite durch eine lineare Frequenzmodulation genähert werden: $b = 15 ps^{-2}$ bzw. $b = 32 ps^{-2}$. Der Unterschied in der Frequenzmodulation ergibt sich aus der unterschiedlichen Intensität der fs Laserpulse bei der Propagation durch die Verstärkerfenster, da diese die Selbstphasenmodulation bestimmt. Dabei ist zu beachten, dass sich die lineare Frequenzmodulation b aus einem linearen Anteil b_{GVD} aufgrund der GVD in den Verstärkerfenstern und einem nichtlinearen Anteil b_{SPM} aufgrund der Selbstphasenmodulation zusammensetzt. Da der lineare Anteil für beide Pulse in guter Näherung gleich ist, kann dieser aus dem Intensitätsverhältnis der beiden fs Laserpulse abgeschätzt werden: $b_{GVD} \approx 9 ps^{-2}$. Der Wert steht in guter Übereinstimmung mit der berechneten GVD der fs Laserpulse bei der Wellenlänge $\lambda = 248.5 nm$.

Werden die gemessenen integralen Pagefunktionen in den Abbildungen 6.2 1a) und 2a) bezüglich ihrer Lage zur Verzögerungsachse verglichen, zeigt sich, dass die gemessenen und rekonstruierten Zeit-Frequenzverteilungen bei geringerer Pulsenergie zum Nullpunkt der Verzögerungsachse hin verschoben sind. Die zeitlichen Verschiebungen sind in den Abbildungen 6.2 1b) und 2b) durch senkrechte Linien gekennzeichnet und es ergeben sich folgende Werte: $t_o = 195 fs$ (1b) und $t_o = 630 fs$ (2b). Die Unterschiede lassen sich damit er-

klären, dass die Schwellintensität bei fs Laserpulsen mit größerer Intensität früher erreicht wird und sich damit der Schaltzeitpunkt der Transmissionsfunktion $T(t)$ verändert.

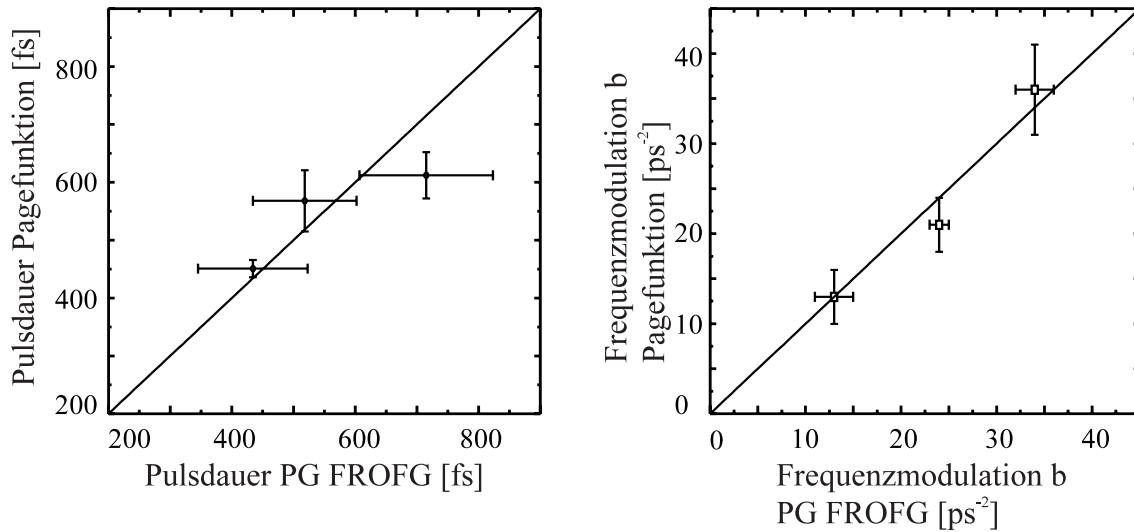


Abbildung 6.3: Die beiden Messmethoden (Pagefunktion und PG FROG) werden bezüglich der Pulsdauer τ_p und der linearen Frequenzmodulation b miteinander verglichen. Der Messwert wird in der Abszisse durch die Referenz (PG FROG) und in der Ordinate durch die Messung der Pagefunktion bestimmt.

In der Abbildung 6.3 werden die Messergebnisse der Pagefunktion mit denen der Referenz (PG FROG) verglichen, und zwar bezüglich der Pulsdauer τ_p (links) und bezüglich der linearen Frequenzmodulation b (rechts) im Bereich der Halbwertsbreite. In beiden Abbildungen wird für den einzelnen Messwert die Abszisse durch die Referenz und die Ordinate durch die Messung der Pagefunktion bestimmt. Falls die beiden Messmethoden übereinstimmen, müssen die eingetragenen Messpunkte (\bullet , \square) auf der eingezeichneten Winkelhalbierenden ($—$) liegen. Die Messpunkte ergeben sich daraus, dass die Eingangsenergie der fs Laserpulse vor dem KrF Verstärker variiert wird. Für die Pulsdauer τ_p stimmen die Messmethoden im Rahmen der Messgenauigkeit überein. Die unterschiedlichen Pulsdauern sind wie in den Beispielen der Abbildung 6.2 durch die Justage des Femtosekunden-Lasersystems bedingt und variieren zwischen 434fs und 715fs. In der Abbildung 6.3 (rechts) sind die gemessenen Werte für die lineare Frequenzmodulation b dargestellt, die durch die Variation der Eingangsenergie beeinflusst wird. Die Messpunkte liegen im Rahmen der Messfehler auf der Winkelhalbierenden. Eine lineare Regression ergibt: $b_{Page} = (0 \pm 5)ps^{-2} + (1.0 \pm 0.2)b_{FROG}$.

In diesem Abschnitt wurde gezeigt, dass die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen im ultravioletten Spektralbereich mit einem optisch induzierten Plasmaschalter gemessen werden kann und die Intensität $I(t)$ und die Phase $\Phi(t)$ ohne einen komplexen

numerischen Algorithmus rekonstruiert werden können. Die hier untersuchten fs Laserpulse sind durch die Pulsdauer τ_p und eine lineare Frequenzmodulation b gut charakterisiert. Beide Messmethoden stimmen bezüglich dieser Pulsparameter im Rahmen der Messgenauigkeit gut überein.

6.2 Einfluss der zeitlichen Phasenmodulation des Plasmaschalters auf die Messung der Pagefunktion

Der optisch induzierte Plasmaschalter wird bisher nur durch die Transmission $T(t)$ bezüglich der Intensität $I(t)$ beschrieben. Allerdings beeinflusst der Plasmaschalter neben der Amplitude $\sqrt{I(t)}$ auch die Phase $\Phi(t)$ des Probepulses. Mit dem Modell kann die Phasenmodulation des Probepulses durch den Plasmaschalter berechnet werden. Die Abbildung 6.4 zeigt die Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ und die Transmission bei einem Pumpimpuls mit gaußförmigem Intensitätsverlauf und den folgenden Parametern: Wellenlänge $\lambda = 248.5\text{nm}$, Pulsdauer $\tau_p = 500\text{fs}$ und maximale Intensität $I_{max} = 10^{16}\text{W/cm}^2$. Die Simulation zeigt, dass die Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ durch die Fehlerfunktion erf genähert werden kann und dass es zwischen der Transmission $T(t)$ und der Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ eine Verzögerung von etwa 50fs gibt:

$$\Phi_T(t) = \frac{\Delta\Phi}{2} \cdot \left(1 + \text{erf}\left(-\sqrt{4 \log(2)} \cdot t/\tau_\Phi\right)\right) \quad (6.3)$$

Der Phasenhub $\Delta\Phi \approx -3.6$ ergibt sich aus dem Brechungsindex $n(z, t)$, der durch die Elektronendichte $N_e(z, t)$ und die Elektronenenergie $W_e(z, t)$ bestimmt wird. Die charakteristische Abfallszeit τ_Φ der Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ liegt im Bereich der Schaltzeit τ_T . Wie im Abschnitt 5.4 gezeigt, beschreibt das Modell die Plasmaparameter nach dem Schaltvorgang quantitativ hinreichend genau. Es kann also davon ausgegangen werden, dass der Phasenhub $\Delta\Phi$ mit dem Modell korrekt berechnet wird.

Die Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ modifiziert die Torfunktion $g_P(t)$ der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ in der Gleichung 4.4 folgendermaßen:

$$g_P(t) = \sqrt{T(t)} \cdot e^{i\Phi_T(t)} \quad (6.4)$$

Das elektrische Feld des Probepulses wird durch die Torfunktion $g_P(t)$ sowohl in der Amplitude $\sqrt{I(t)}$ als auch in der Phase $\Phi(t)$ beeinflusst. Da das elektrische Feld $E(t)$ aus den Momenten der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ rekonstruiert wird, ist es notwendig, den Einfluss der Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ auf diese Momente zu berücksichtigen:

$$p_{1,\Phi}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t) \cdot T(t - \tau) = \int_{-\infty}^{+\tau} dt I(t) \quad (6.5)$$

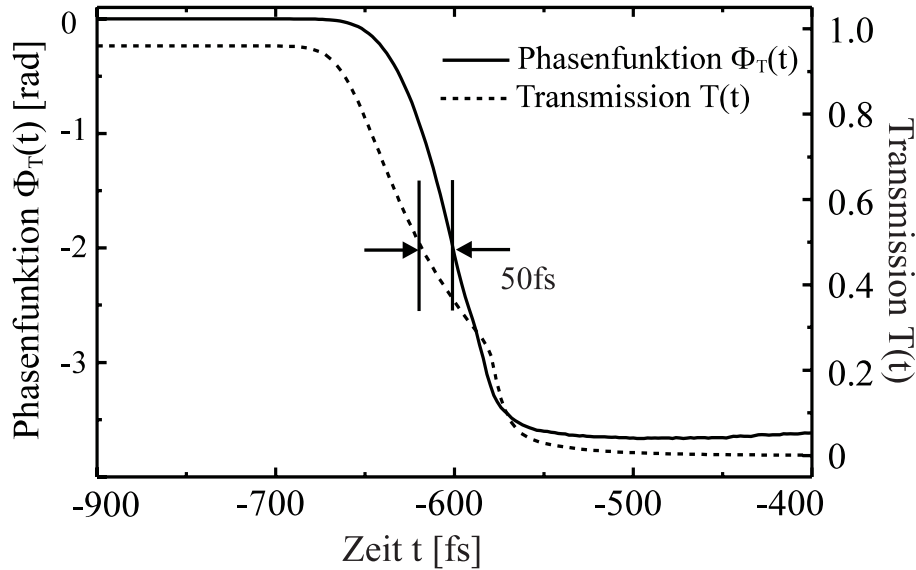


Abbildung 6.4: Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ und Transmission $T(t)$ des optisch induzierten Plasmaschalters (Modellparameter: $\lambda = 248.5 \text{ nm}$, $\tau_p = 500 \text{ fs}$, $I_{max} = 10^{16} \text{ W/cm}^2$)

$$p_{2,\Phi}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t) \cdot T(t - \tau) \cdot (\Phi'(t) + \Phi'_T(t - \tau)) \quad (6.6)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\tau} dt I(t) \cdot \Phi'(t) + k \cdot I(-\tau) \quad (6.7)$$

Die Gleichung 6.5 zeigt im Vergleich zur Gleichung 4.7, dass die Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ keinen Einfluss auf das erste Moment $p_{1,\Phi}(\tau)$ hat und $p_1(\tau) = p_{1,\Phi}(\tau)$ gilt. Das zweite Moment $p_{2,\Phi}(\tau)$ wird durch einen additiven Term $kI(-\tau)$ modifiziert, der einer zusätzlichen linearen Frequenzmodulation b_Φ entspricht. Der Übergang von Gleichung 6.6 zur Gleichung 6.7 erfolgt unter der Voraussetzung, dass sich in der Zeit τ_Φ die Amplitude und die Phase des Probepulses nicht ändern¹, was für den Plasmaschalter in guter Näherung erfüllt wird. Aus der Gleichung 6.6 folgt, dass der Parameter k maßgeblich durch den maximalen Phasenhub $\Delta\Phi$ und die Verzögerung zwischen der Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ und der Transmission $T(t)$ bestimmt wird.

In der Abbildung 6.5 ist der Parameter k in Abhängigkeit von der Verzögerung zwischen diesen beiden Funktionen dargestellt. Die Abbildung zeigt, dass der Parameter k zu größeren Verzögerungen hin stark abnimmt. Dieser Verlauf ergibt sich aus dem schnellen Abfall der Transmission $T(t)$. Für eine Verzögerung $\Delta t = 50 \text{ fs}$ hat der Parameter k einen Wert von ≈ 0.4 , was bei einer Pulsdauer von 500 fs zu einer zusätzlichen linearen Frequenzmodulation von $b_\Phi \approx 10 \text{ ps}^{-2}$ führt. Das steht allerdings im Widerspruch zu den experimentellen Ergebnissen in der Abbildung 6.3, denn diese zeigen, dass im Rahmen der Messgenauigkeit

¹ $\lim_{\tau_T, \tau_\Phi \rightarrow 0} T(t) \cdot \Phi'_T(t) \sim \delta(t)$

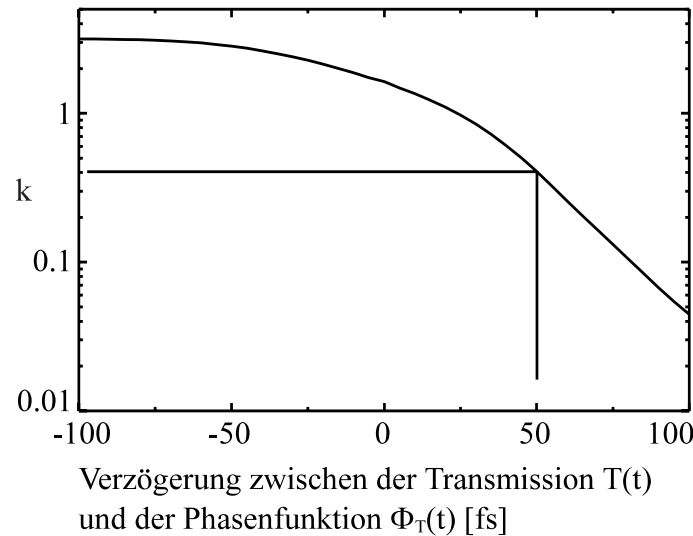


Abbildung 6.5: Abhängigkeit des Parameters k von der Verzögerung zwischen der Transmission $T(t)$ und der Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ (Modellparameter: $\lambda = 248.5\text{nm}$, $\tau_p = 500\text{fs}$, $I_{max} = 10^{16}\text{W/cm}^2$)

$b_{Page} \approx b_{FROG}$ gilt, falls der Parameter k bei der Auswertung vernachlässigt wird. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass die Verzögerung zwischen der Phasenfunktion $\Phi_T(t)$ und der Transmission $T(t)$ größer ist als die berechneten 50fs und damit der Wert von k kleiner als 0.4 ist. Im Modell wird bei der Ionisation von einzelnen isolierten Atomen ausgegangen. Außerdem werden die optischen Eigenschaften beim Schaltvorgang durch freie Elektronen und die "nichtionisierten" Neutralkmoleküle beschrieben. Möglicherweise sind diese Modellannahmen für die Ionisationsprozesse in Festkörpern zu vereinfacht, um während des ultraschnellen Schaltvorganges die optischen Eigenschaften bezüglich der Phase korrekt zu beschreiben. Hier bietet sich in Umkehrung zur Diagnostik der fs Laserpulse die Möglichkeit an, den Übergang vom Festkörper zum Plasma zu diagnostizieren, indem die Momente der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ gemessen und ausgewertet werden.

6.3 Messung der Pagefunktion von fs Laserpulsen im XUV Spektralbereich

In diesem Abschnitt werden die bestehenden Möglichkeiten zur zeitlichen Diagnostik von fs Laserpulsen im XUV Spektralbereich dargestellt und als Ausblick wird eine neue auf einem Plasmaschalter in Gasen beruhende Methode vorgestellt. Unter XUV (EXtreme UltraViolett) wird in dieser Arbeit der Spektralbereich von $\lambda = 5\text{nm} \dots 180\text{nm}$ verstanden. Der Spektralbereich des VUV (Vakuum UltraViolett) ist durch die getroffene Fest-

legung im XUV mit eingeschlossen. Unterhalb von 5nm beginnt der Bereich der Röntgenstrahlung, für dessen zeitliche Charakterisierung hier nur auf die Literatur verwiesen wird [62, 88, 89, 90].

Mit dem im Abschnitt 5.6 dieser Arbeit vorgestellten Plasmaschalter an Festkörperoberflächen kann sowohl die Intensität als auch die Phase $\Phi(t)$ von fs Laserpulsen gemessen werden. Allerdings ist dieser Plasmaschalter nur bis zu einer Wellenlänge $\lambda \approx 108nm$ einsetzbar, da es unterhalb dieser Absorptionskante von LiF keine im VUV/XUV transparenten Festkörper gibt. In der folgenden Aufzählung werden die bestehenden XUV-Methoden dargestellt:

1. Mit den im Abschnitt 3.1 erwähnten Schmierbildkameras kann im XUV der Intensitätsverlauf bis zu einer zeitlichen Auflösung von 500fs gemessen werden.
2. Bouhal et al. [91] haben eine Kreuzkorrelation zwischen einem XUV fs Laserpuls ($\lambda = 38.1nm$ und $29.6nm$) und einem fs Laserpuls im NIR ($\lambda = 800nm$) durchgeführt. Werden neutrale Heliumatome durch den XUV und NIR fs Laserpuls gemeinsam ionisiert, so entstehen Seitenbänder in den Photoelektronenspektren, aus denen auf die zeitliche Dauer des XUV Pulses geschlossen werden kann. In [92] wird die Autokorrelation von XUV Pulsen vorgeschlagen, die auf der Photoionisation von neutralen Edelgasatomen durch zwei XUV Photonen beruht. Durch die Ionisierungsenergie von Helium ist der Wellenlängenbereich auf $\lambda_{XUV} \geq 100nm$ eingeschränkt.
3. In dem Experiment von Le Blanc et al. [93] wird ein Plasmaschalter in Gas zur zeitlichen Charakterisierung eingesetzt. Ein intensiver UV fs Pumpuls ($\lambda = 248.5nm$, $I \approx 10^{14}W/cm^2$) wird in eine gasgefüllte Vakuumkammer fokussiert und ionisiert dort das Gas. Die Ionisation verändert den Brechungsindex $n(x, y, t)$ im Fokus. Ein XUV Probepuls ($\lambda = 147nm$) wird durch einen zweiten UV Laserpuls durch Vierwellenmischung im Gas erzeugt, breitet sich kollinear zum UV Pumpuls aus und wird durch den Brechungsindex $n(x, y, z, t)$ zeitlich und räumlich phasenmoduliert. Dieses führt zu einer induzierten Defokussierung des XUV Probepulses und im Fernfeld wird auf der Ausbreitungsachse ein XUV Signal gemessen, das abhängig von der Verzögerung τ zwischen UV Pump- und XUV Probepuls ist. Aus der Ableitung des gemessenen Signals ergibt sich der Intensitätsverlauf $I(t)$.
4. Durch Le Blanc et al. wird in [94] eine Methode für die Diagnostik von XUV Pulsen vorgeschlagen und es werden Experimente im VIS gezeigt. Der experimentelle Aufbau ist fast mit dem zuvor beschriebenen identisch. Allerdings wird im Fernfeld das Spektrum des Probepulses in Abhängigkeit von der Verzögerung gemessen. Durch die Phasenmodulation im Zeitbereich wird das Spektrum des XUV Probepulses moduliert und es treten charakteristische Minima und Maxima auf. Bei einer linearen

Frequenzmodulation und einem gaußförmigen Intensitätsverlauf gibt es nur ein Minimum, aus dessen verzögerungsabhängiger Position $\lambda(\tau)$ die Frequenzmodulation quantitativ bestimmt werden kann.

Die Methoden 1-3 bleiben auf die Messung der Intensität $I(t)$ beschränkt. Mit der Methode 4 können einfache Verläufe der Phase $\Phi(t)$ bestimmt werden [94]. In Verbindung mit der Auswertung aus [56] kann aus dem Messsignal auch der Intensitätsverlauf $I(t)$ rekonstruiert werden. Die Methoden 2-4 erreichen eine bessere Zeitauflösung als eine Schmierbildkamera, sind aber Kreuzkorrelationen oder auf einen kleinen Wellenlängenbereich beschränkt. Bei einer Kreuzkorrelation wechselwirkt ein bekannter fs Laserpuls mit dem zu charakterisierenden fs Laserpuls. Für eine ausreichende Zeitauflösung muss die Pulsdauer $\tau_{UV-NIR} \leq \tau_{XUV}$ sein. Allerdings sind aufgrund des Pulsdauer-Bandbreite Produktes im XUV prinzipiell kürzere Pulse möglich als im UV-NIR und die Zeitauflösung im XUV wird hier durch die Pulsdauer im UV-NIR begrenzt.

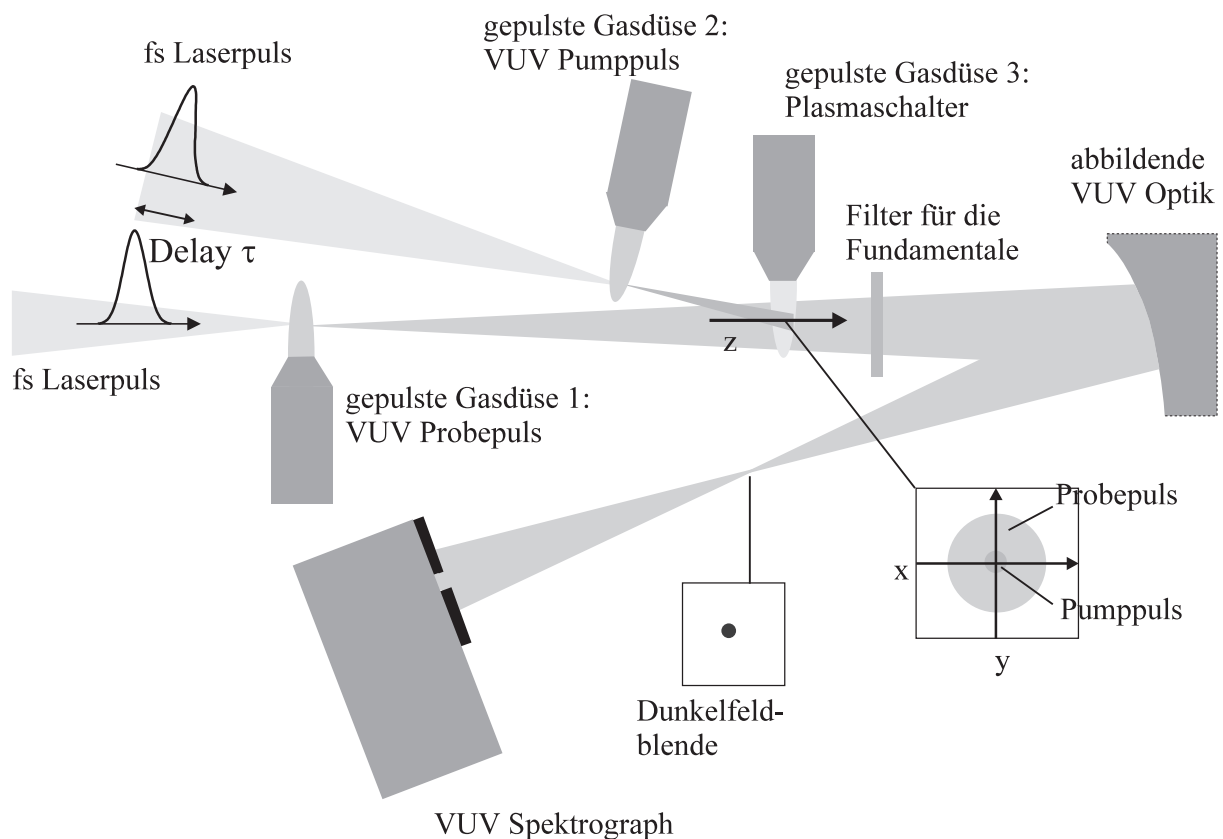


Abbildung 6.6: Schematischer Aufbau eines XUV Autokorrektors

Die neue Methode ist in der Abbildung 6.6 schematisch dargestellt und basiert auf den Experimenten von Le Blanc et al. [93, 94]. Der Aufbau besteht aus den drei folgenden Komponenten, die sich in einer in der schematischen Zeichnung nicht dargestellten Vakuumkammer befinden:

1. Erzeugung und Fokussierung von XUV Laserpulsen
2. Plasmaschalter
3. Abbildung mit Dunkelfeldverfahren [14] und VUV Spektrograph

Aufgrund der starken Absorption im XUV ist es schwierig, für diesen Bereich optische Komponenten wie Strahlteiler, Spiegel und Fokussierungsoptiken zu realisieren. Im XUV Autokorrelator wird die **Erzeugung** von zwei gegeneinander verzögerten XUV Pulsen dadurch gelöst, dass der XUV Probe- und der Pumpuls in zwei räumlich getrennten gepulsten Gasdüsen(1,2) durch zwei identische fundamentale Pumpulse erzeugt werden. Die Verzögerung τ zwischen den XUV Pulsen wird durch die Verzögerung zwischen den fundamentalen Pumpulsen realisiert. Auf die verschiedenen Möglichkeiten zur Erzeugung von kohärenten XUV Pulsen (hohe Harmonische, Vierwellenmischung, XUV Laser) wird hier im Einzelnen nicht eingegangen, sondern auf die Literatur verwiesen [6]. Die **Fokussierung** des XUV Pumpulses im Bereich der Gasdüse(3) wird durch einen geringen Abstand zwischen Gasdüse(2) und Gasdüse(3) erreicht.

Die Wechselwirkung zwischen dem XUV Pump- und Probepuls findet in der dritten gepulsten Gasdüse(3) statt. Der XUV Pumpuls ionisiert das Gas und erzeugt einen **Plasmaschalter**. Das Gas ist hier so gewählt, dass die XUV Pulse durch einen Einphotonenprozess absorbiert werden und somit für den XUV Pumpuls keine hohen Intensitäten notwendig sind. Durch die Ionisation ändern sich die Dichten der neutralen Gasteilchen $N_o(x, y, z, t)$ und der freien Elektronen $N_e(x, y, z, t)$ im Bereich der Gasdüse(3). Die Fundamentalen des Pump- und Probepulses werden nicht durch einen Einphotonenprozess absorbiert und ihre Intensität ist zu gering für eine nichtlineare optische Feldionisation. In diesem Plasmaschalter ist die kritische Dichte N_c für den XUV Probepuls sehr viel größer als die Elektronendichte $N_e(x, y, z, t)$ und die Gasdichte sehr viel kleiner als die Festkörperdichte. Mit diesen Annahmen kann die Stoßabsorption der freien Elektronen in der Gleichung 2.33 vernachlässigt werden und der Nenner der Suszeptibilität der neutralen Gasatome kann gleich 1 gesetzt werden. Für den Brechungsindex des Plasmaschalters gilt:

$$\begin{aligned}
 n(x, y, z, t) &= \sqrt{1 + N_o(x, y, z, t)\alpha - N_e(x, y, z, t)/N_c} & (6.8) \\
 &\approx 1 + \frac{1}{2}N_o(x, y, z, t)\alpha - \frac{1}{2}N_e(x, y, z, t)/N_c \\
 &= 1 + \frac{1}{2}N_o\alpha - \frac{N_c\alpha + 1}{2N_c}N_e(x, y, z, t)
 \end{aligned}$$

Dabei sind α die atomare Polarisierbarkeit, N_o die Gasdichte ohne Ionisation und N_c die kritische Dichte für die XUV Wellenlänge. Bei der Ionisation durch einen Einphotonen-

prozess gilt für die Elektronendichte:

$$N_e(x, y, z, t) \sim \int_{-\infty}^t I_{Pumpe}(x, y, z, t') dt' \quad (6.9)$$

Breitet sich der XUV Probepuls im Bereich des Plasmaschalters entlang der z-Achse aus, so wird er durch den Brechungsindex $n(x, y, z, t)$ zeitlich und räumlich phasenmoduliert:

$$\Phi(x, y, t) = \frac{2\pi}{\lambda_{XUV}} \int_0^{z_{max}} n(x, y, z, t) dz = \Phi(x, y) \Phi(t) \quad (6.10)$$

$$\Phi(t) \sim \int_{-\infty}^t I_{Pumpe}(x, y, z, t') dt' \quad (6.11)$$

Die räumliche Phasenmodulation $\Phi(x, y)$ wird durch das räumliche Profil des XUV Pumpulses bestimmt. Aufgrund der Abstände der Gasdüsen zueinander ist der Strahldurchmesser des XUV Pumpulses kleiner als der des XUV Probepulses. Im Bereich des Plasmaschalters wird der XUV Probepuls als ebene Welle genähert, d.h., dass die Ionisation und die damit verbundene plasmainduzierte Selbstphasenmodulation räumlich konstant sind.

Ein Paraboloidspiegel bildet die Ebene des Plasmaschalters auf den Eintrittsspalt eines **VUV Spektrographen** ab. Da der XUV Pump- und der Probepuls unter einem kleinen Winkel wechselwirken, fällt der XUV Pumpuls nicht auf die abbildende Optik. Die Fundamentalen werden durch Metallfolien abgeblockt. Durch die **Dunkelfeldblende** in der hinteren Brennebene des Paraboloidspiegels wird die nullte Beugungsordnung ausgeblendet. Für die mathematische Herleitung des Dunkelfeldverfahrens wird auf [14] verwiesen. Unter der Voraussetzung, dass die Transmission näherungsweise räumlich homogen ist und für die Phasenmodulation $\Phi(x, y, t) \ll 1$ gilt, ergibt sich in der Ebene des Eintrittsspaltens das untergrundfreie Signal $E_{sig}(x, y, t)$: $E_{sig}(x, y, t) = E_{Probe}(x, y, t) \cdot \Phi(x, y) \cdot \Phi(t)$. Nur der räumlich und zeitlich phasenmodulierte Anteil des XUV Probepulses trägt zum Signal $E_{sig}(x, y, t)$ bei, da der räumlich konstante Anteil des XUV Probepulses durch die Dunkelfeldblende herausgefiltert wird. Wird die übliche kreisförmige Dunkelfeldblende durch einen dünnen Draht ersetzt, so vereinfacht sich der experimentelle Aufwand erheblich, ohne dass sich die Abbildungseigenschaften wesentlich verschlechtern.

Mit dem XUV Spektrographen wird eine "verschmierte" integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ gemessen, wobei τ die Verzögerung zwischen dem Pump- und Probepuls ist:

$$P_f(\tau, \omega) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E_{XUV}(t) \cdot g_P(t - \tau) \cdot \exp(-i\omega t) \right|^2 \quad (6.12)$$

$$g_P(t) \sim \int_{-\infty}^t I_{Pumpe}(t') \sim \int_{-\infty}^t I_{XUV}(t') dt' \quad (6.13)$$

Die Torfunktion $g_P(t)$ kann für die Autokorrelation bei linearer Absorption nicht als Stufenfunktion genähert werden (siehe Abbildung 6.7 links). Der zeitliche Intensitäts- und Phasenverlauf muss hier wie beim FROG Signal mit einem iterativen Algorithmus oder mit dem Anpassen von Modellparametern bestimmt werden. Falls der XUV Probepuls mit einem kurzen XUV Pumpimpuls kreuzkorreliert wird, kann die Torfunktion $g_P(t)$ durch eine Stufenfunktion genähert werden. Das gilt auch für die Kreuzkorrelation mit einem hinreichend kurzen und intensiven UV-NIR Pumpimpuls ($\tau \approx \tau_{XUV}$). Da die Ionisation in diesem Fall ein nichtlinearer Prozess ist, ergibt sich eine Schaltzeit τ_T des Plasmaschalters, die kleiner als die Pulsdauer des Pumpimpulses τ und des XUV Probepulses τ_{XUV} ist. Der Intensitäts- und Phasenverlauf lässt sich in diesen Fällen direkt aus den Momenten von $P_f(\tau, \omega)$ berechnen (siehe Kapitel 4).

Wellenlänge	35.5nm = 248.5/7nm	Gasart	Neon
Druck	100kPa	Weglänge	50 μ m
Strahlradius des XUV Pumpimpulses	10 μ m	Absorption des XUV Probepulses	34.5%

Tabelle 6.1: Modellparameter für einen XUV Autokorrelator

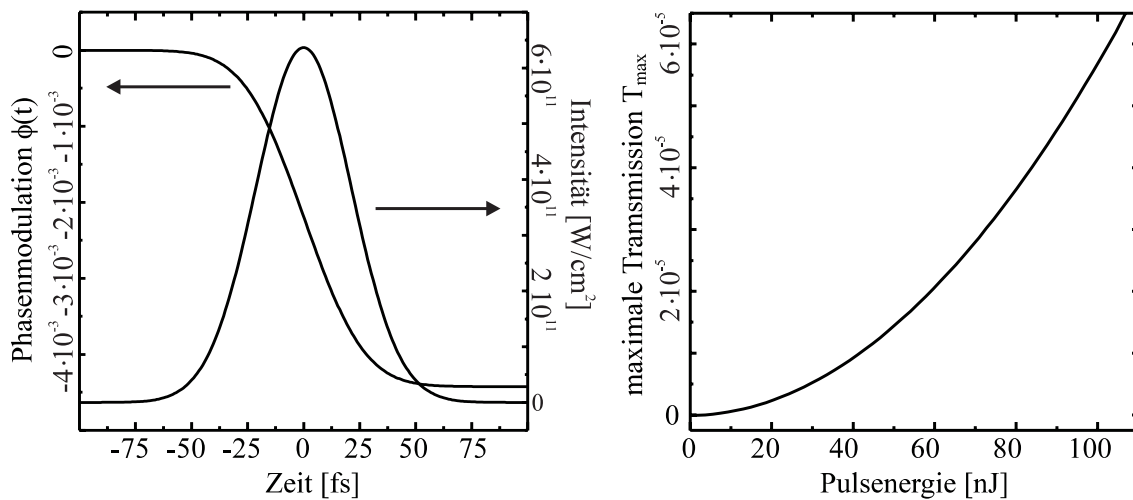


Abbildung 6.7: Links: zeitliche Phasenmodulation $\Phi(t)$ für eine gaußförmige Intensität $I(t)$ und eine Pulsenergie von 100nJ, Rechts: maximale Transmission T_{\max} des XUV Plasmaschalters in Abhängigkeit von der Energie des XUV Pumpimpulses

In der Tabelle 6.1 sind die Parameter für eine Modellsimulation zusammengestellt. Für die Wellenlänge $\lambda = 35.5 \text{ nm}$ kann ein goldbeschichteter Paraboloidspiegel als abbildende Optik verwendet werden. Mit einem Programm des Center for X-Ray Optics (CXRO) des Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL) [<http://www-cxro.lbl.gov>] ergibt sich unter

45° eine Reflektivität von 30% (s-Polarisation, Oberflächenrauheit 2Å). In der Abbildung 6.7 (links) ist die zeitliche Phasenmodulation $\Phi(t)$ für einen gaußförmigen Intensitätsverlauf $I(t)$ mit einer Pulsenergie von 100nJ dargestellt. Aufgrund des negativen Vorzeichens in der Gleichung 6.8 nimmt $\Phi(t)$ ab. Die rechte Abbildung zeigt das maximale Signal in Abhängigkeit von der Energie des XUV Pumpimpulses. Die maximale Transmission ergibt sich aus dem Phasenhub $\Delta\Phi$ und der Absorption des XUV Probepulses A_{Probe} im Plasmaschalter: $T_{max} = \Delta\Phi^2 \cdot (1 - A_{Probe})$. Um ein Signal $T_{max} \geq 10^{-6}$ zu erhalten, ist eine Pumpenergie von einigen 10nJ notwendig. Die zur Verfügung stehende Energie des XUV Pump- und Probepulses begrenzt die Sensitivität im XUV Autokorrelator.

Gegenüber den bisher verwendeten Methoden zeichnet sich die hier vorgeschlagene Methode dadurch aus, dass mit einer Autokorrelation neben der Intensität $I(t)$ auch die Phase $\Phi(t)$ charakterisiert werden kann. Durch die Autokorrelation sind keine weiteren Referenzpulse aus anderen Spektralbereichen notwendig. Ein weiterer Vorteil ist, dass ein Einphotonprozess genutzt wird und damit keine hohen Intensitäten für nichtlineare Prozesse notwendig sind. Die zeitliche Auflösung wird prinzipiell nur durch die Zeitdauer Δt des Ionisationsvorganges bestimmt, die über die Unschärferelation $\Delta t \cdot \Delta E = h/4\pi$ abgeschätzt werden kann. Hier sind ΔE die Ionisierungsenergie und h die Planckkonstante. Für Neon ergibt sich daraus eine Zeitdauer $\Delta t \approx 19 \cdot 10^{-18} s$. Diese Messmethode sollte im XUV Spektralbereich auch bei kürzeren Wellenlängen geeignet sein, da der Phasenhub $\Delta\Phi$ bei gleichen Parametern mit abnehmender Wellenlänge zunimmt.

Kapitel 7

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird erstmalig gezeigt, dass mit einem optisch induzierten Plasmaschalter und einem Spektrographen die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ von fs Laserpulsen¹ im ultravioletten Spektralbereich gemessen werden kann:

$$P_f(\tau, \omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\tau} E(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2$$

Die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ ist eine von der Zeit τ und der Frequenz ω abhängige Funktion, aus der sich die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ durch die Ableitung nach τ ergibt. Indem die Momente der integralen Pagefunktion mit einem einfachen nichtiterativen Verfahren ausgewertet wurden, ließen sich die Intensität $I(t)$ und die Momentanfrequenz $\omega(t) = \Phi'(t)$ rekonstruieren. Die fs Laserpulse wurden als Referenz zusätzlich mit der bekannten PG FROG² Methode vermessen. Der Vergleich bezüglich der Pulsdauer τ_p und der linearen Frequenzmodulation zeigte eine gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messmethoden. Der Einzelschuss PG FROG wurden im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut und charakterisiert. Die Signalentstehung in einem realen Einzelschuss PG FROG mit einem räumlich inhomogenen Strahlprofil und mit realen Polarisatoren wurde nach vorliegendem Kenntnisstand erstmals quantitativ untersucht. Die Auswertung erfolgte durch die Anpassung von Modellfunktionen an die Momente des PG FROG Signals. Diese Methode ist sehr robust und berücksichtigt die Signalentstehung im realen PG FROG.

Für die Messung der Pagefunktion ist ein optischer Schalter notwendig, der einen stufenförmigen Transmissionsverlauf $T(t)$ hat. Die Schaltzeit τ_T muss dabei erheblich kürzer sein als die Zeit, in der sich die Intensität $I(t)$ und die Phase $\Phi(t)$ der fs Laserpulse ändern. Als optischer Schalter wurde die ultraschnelle Ionisation von dielektrischen Festkörperoberflächen verwendet, die durch einen intensiven fs Laserpulse induziert wird und die Transmission für einen zeitlich verzögerten schwachen Probepuls ändert. Derartige optische Plasmaschalter an dielektrischen Festkörperoberflächen wurden bisher nicht in Transmission untersucht.

¹zeitliche Darstellung des elektrischen Feldes $E(t)$: $E(t) = \sqrt{I(t)} \cdot e^{i\Phi(t)}$

²Polarization Gate Frequency Resolved Optical Gating

Neben dem Plasmaschalter im ultravioletten Spektralbereich mit einem Quarzsubstrat wurde auch ein Plasmaschalter im Sichtbaren untersucht, bei dem ein intensiver ultravioletter Pumpimpuls und ein UV absorbierendes Polyimidsubstrat verwendet wurden. Für den Plasmaschalter mit Quarzsubstrat ergab sich bei einer Intensität von $5 \cdot 10^{15} \text{W/cm}^2$ und einer Pulsdauer $\tau_p = 450 \text{fs}$ eine Schaltzeit $\tau_T < 90 \text{fs}$ und eine Dynamik³ $D > 200$. Der Plasmaschalter mit Polyimidsubstrat hat bei einer Intensität nahe der Schwellintensität ($I_s \approx 1.5 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$) und einer Pulsdauer $\tau_p = 225 \text{fs}$ eine Schaltzeit $\tau_T = (68 \pm 40) \text{fs}$ und eine Dynamik $D = 7.0 \pm 2.0$.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein numerisches Modell des Plasmaschalters entwickelt, das in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit (Schaltzeit, Dynamik) und der Literatur (Plasmaparameter, Schwellintensitäten) steht. Die Modellrechnungen zeigen, dass die Ionisation und damit der Schaltvorgang durch die nichtlineare optische Feldionisation (OFI) gestartet werden. Die freien Elektronen absorbieren die Energie des Pumpimpulses durch Stoßabsorption und werden aufgeheizt. Durch den zeitlich nachfolgenden Prozess der Elektronenstoßionisation werden weitere freie Elektronen erzeugt, was zu einer lawinenartigen Ionisation führen kann. Die Elektronenstoßionisation ist bei einer Pulsdauer $\tau_p \approx 500 \text{fs}$ ein wichtiger Prozess, ohne den die kinetische Energie der Elektronen unrealistisch große Werte annimmt. Die Schaltzeit τ_T ist um einen Faktor 5 kleiner als die Pulsdauer τ_p , falls die maximale Intensität des Pumpimpulses eine Größenordnung größer ist als die Schwellintensität I_s . Die Dynamik D ist linear von der Intensität des Pumpimpulses abhängig. Die adiabatische Kühlung und die Strahlungsdämpfung haben keinen Einfluss auf den optischen Schaltvorgang. In dem numerischen Modell wird die Phase $\Phi(t)$ des fs Laserpulses während des Schaltvorganges stärker beeinflusst, als es in der Messung und Auswertung der integralen Pagefunktion beobachtet wird. Wahrscheinlich ist die Modellannahme, dass sich der Festkörper während des ultraschnellen Ionisationsprozesses durch isolierte Atome beschreiben lässt, zu vereinfacht, um die optischen Eigenschaften bezüglich der Phase korrekt wiederzugeben.

Im Ausblick wird ein Plasmaschalter in Gasen beschrieben, der für die zeitliche Diagnostik im gesamten XUV Spektralbereich eingesetzt werden kann. Gegenüber den bisher verwendeten Methoden ist der hier beschriebene Aufbau ein Autokorrelator, mit dem neben der Intensität $I(t)$ auch die Phase $\Phi(t)$ charakterisiert werden kann. Durch die Autokorrelation sind keine weiteren Referenzpulse aus anderen Spektralbereichen notwendig. Ein weiterer Vorteil ist, dass für den vorgestellten Plasmaschalter die Einphotonen-Absorption genutzt wird und damit keine hohen Intensitäten für nichtlineare Prozesse notwendig sind. Die zeitliche Auflösung wird durch die Zeitdauer des Ionisationsvorganges bestimmt und sollte die zeitliche Diagnostik von Attosekunden-Laserpulsen ermöglichen.

³Die Dynamik D ist das Verhältnis zwischen der maximalen und der minimalen Transmission.

Anhang A

Eigenschaften des Spektrogramms

A.1 Herleitung des Spektrogramms aus den Zeit-Frequenzverteilungen nach Cohen

Das Spektrogramm $S(\tau, \omega)$ eines allgemeinen Signales $s(t) = A(t) \cdot \exp(i\Phi(t))$ ist wie folgt definiert:

$$S(\tau, \omega) \equiv \frac{1}{2\pi} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} s(t) g(t - \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (\text{A.1})$$

Dabei ist $g(t)$ die Torfunktion des Spektrogramms, die unterschiedliche Verläufe annehmen kann. Die Zeit-Frequenzverteilungen nach Cohen sind durch die Gleichung A.2 definiert und werden durch den so genannten Kern $\Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ festgelegt [43]:

$$C(\tau, \omega) \equiv \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}\tau - i\bar{\omega}\omega + i\bar{\tau}t} \Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega}) s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) dt d\bar{\omega} d\bar{\tau} \quad (\text{A.2})$$

In diesem Abschnitt wird das Spektrogramm $S(\tau, \omega)$ aus der allgemeinen Darstellung der Zeit-Frequenzverteilung hergeleitet. Für den Kern $\Theta_S(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ des Spektrogramms gilt [43]:

$$\Theta_S(\bar{\tau}, \bar{\omega}) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} g^*(t' - \bar{\omega}/2) g(t' + \bar{\omega}/2) e^{-i\bar{\tau}t'} dt' \quad (\text{A.3})$$

1. Integration nach $\bar{\tau}$:

$$C_S(\tau, \omega) = \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) g^*(t' - \bar{\omega}/2) g(t' + \bar{\omega}/2) \cdot \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}\tau + i\bar{\tau}t - i\bar{\tau}t'} d\bar{\tau} \right) dt d\bar{\omega} dt' \quad (\text{A.4})$$

Aus der Definition der inversen Fouriertransformation \mathcal{F}^{-1} folgt mit der Verallgemeinerung auf Distributionen [15]:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}(\tau+t')} e^{i\bar{\tau}t} d\bar{\tau} = 2\pi \mathcal{F}_{t,\bar{\tau}}^{-1}[e^{-i\bar{\tau}(\tau+t')}] = 2\pi \delta(t - (\tau + t')) \quad (\text{A.5})$$

In der Gleichung A.5 sind t und $\bar{\tau}$ die konjugierten Variablen der Fouriertransformation und die Deltafunktion $\delta(t)$ ist wie folgt als Distribution¹ definiert:

$$s(0) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \delta(t) s(t) dt$$

2. Integration nach t :

$$C_S(\tau, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} g^*(t' - \bar{\omega}/2) g(t' + \bar{\omega}/2) \cdot \left(\int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) \delta(t - (\tau + t')) dt \right) d\bar{\omega} dt' \quad (\text{A.6})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} g^*(t' - \bar{\omega}/2) g(t' + \bar{\omega}/2) \cdot s^*(\tau + t' - \bar{\omega}/2) s(\tau + t' + \bar{\omega}/2) d\bar{\omega} dt' \quad (\text{A.7})$$

Variablentransformation: $t' - \bar{\omega}/2 = t$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) dt d\bar{\omega} \quad (\text{A.8})$$

3. Integration nach $\bar{\omega}$:

$$C_S(\tau, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} g^*(t) s^*(t + \tau) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} g(\bar{\omega} + t) s(\bar{\omega} + t + \tau) d\bar{\omega} \right) dt \quad (\text{A.9})$$

Variablentransformation: $\bar{\omega} + t = t'$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} g^*(t) s^*(t + \tau) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i(t'-t)\omega} g(t') s(t' + \tau) dt' \right) dt \quad (\text{A.10})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{it\omega} g^*(t) s^*(t + \tau) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-it'\omega} g(t') s(t' + \tau) dt' \right) dt \quad (\text{A.11})$$

¹Eine Distribution ist ein stetiges und lineares Funktional auf dem Funktionenraum S , dessen Funktionen beliebig oft differenzierbar sind und zusammen mit ihren Ableitungen für $|t| \rightarrow \infty$ schneller gegen Null streben als jede Potenz von $1/t$ [15].

$$= \frac{1}{2\pi} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-it'\omega} g(t') s(t' + \tau) dt' \right) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-it\omega} g(t) s(t + \tau) dt \right)^* \quad (\text{A.12})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega t} s(t) g(t - \tau) dt \right|^2 \stackrel{!}{=} S(\tau, \omega) \quad (\text{A.13})$$

A.2 Herleitung der Momente des Spektrogramms

Mit der "Momentenmethode" wird in dem Abschnitt 3.3 aus den Momenten des FROG Signals $F(\tau, \omega)$ die Intensität $I(t) \sim |E(t)|^2$ und die Momentanfrequenz $\omega(t) = \Phi'(t)$ rekonstruiert. Da das FROG Signal mathematisch einem Spektrogramm entspricht, werden im Folgenden die ersten beiden Momente $s_1(\tau)$ und $s_2(\tau)$ des Spektrogramms $S(\tau, \omega)$ hergeleitet:

$$s_1(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} S(\tau, \omega) d\omega \quad (\text{A.14})$$

$$s_2(\tau) \equiv \frac{1}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega S(\tau, \omega) d\omega \quad (\text{A.15})$$

Aus der Gleichung A.8 folgt für das erste Moment $s_1(\tau)$:

$$s_1(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) dt d\bar{\omega} d\omega \quad (\text{A.16})$$

1. Integration nach ω :

$$s_1(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} d\omega \right) g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) dt d\bar{\omega} \quad (\text{A.17})$$

Aus der Definition der Fouriertransformation \mathcal{F} folgt mit der Verallgemeinerung auf Distributionen [15]:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} d\omega = 2\pi \delta(\bar{\omega})$$

2. Integration nach $\bar{\omega}$:

$$s_1(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \delta(\bar{\omega}) g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) dt d\bar{\omega} \quad (\text{A.18})$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t + \tau) g^*(t) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} \delta(\bar{\omega}) g(t + \bar{\omega}) s(t + \tau + \bar{\omega}) d\bar{\omega} \right) dt \quad (\text{A.19})$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t + \tau) g^*(t) g(t) s(t + \tau) dt \quad \Rightarrow \quad (\text{A.20})$$

$$s_1(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} |s(t)|^2 |g(t - \tau)|^2 dt \quad (\text{A.21})$$

Aus der Gleichung A.8 folgt für das erste Moment $s_2(\tau)$:

$$s_2(\tau) = \frac{1}{s_1(\tau)} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega e^{-i\bar{\omega}\omega} g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) dt d\bar{\omega} d\omega \quad (\text{A.22})$$

1. Integration nach ω :

$$s_2(\tau) = \frac{1}{s_1(\tau)} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) \cdot \left(\int_{-\infty}^{+\infty} \omega e^{-i\bar{\omega}\omega} d\omega \right) dt d\bar{\omega} \quad (\text{A.23})$$

Aus der Definition der Fouriertransformation \mathcal{F} folgt mit der Verallgemeinerung auf Distributionen [15]:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \omega e^{-i\bar{\omega}\omega} d\omega = 2\pi i \delta'(\bar{\omega})$$

Die Ableitung der Deltafunktion $\delta(t)$ ist ebenfalls als Distribution definiert [15]:

$$-s'(0) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \delta'(t) s(t) dt$$

2. Integration nach $\bar{\omega}$:

$$s_2(\tau) = \frac{i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \delta'(\bar{\omega}) g^*(t) g(t + \bar{\omega}) s^*(t + \tau) s(t + \tau + \bar{\omega}) dt d\bar{\omega} \quad (\text{A.24})$$

$$= \frac{i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t + \tau) g^*(t) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} \delta'(\bar{\omega}) g(\bar{\omega} + t) s(\bar{\omega} + t + \tau) d\bar{\omega} \right) dt \quad (\text{A.25})$$

$$= \frac{-i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t + \tau) g^*(t) \left. \frac{d}{d\bar{\omega}} \left(g(\bar{\omega} + t) s(\bar{\omega} + t + \tau) \right) \right|_{\bar{\omega}=0} dt \quad (\text{A.26})$$

$$= \frac{-i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t + \tau) g^*(t) \left(\left(\frac{d}{dt} g(t) \right) s(t + \tau) + g(t) \left(\frac{d}{dt} s(t + \tau) \right) \right) dt \quad (\text{A.27})$$

Mit $s(t) = A(t) \cdot \exp(i\Phi(t))$ und $g(t) = A_g(t) \cdot \exp(i\Phi_g(t))$ folgt:

$$s_2(\tau) = \frac{-i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} A^2(t+\tau) A_g(t) e^{-i\Phi_g(t)} \left(A'_g(t) e^{i\Phi_g(t)} + i \Phi'_g(t) e^{i\Phi_g(t)} A_g(t) \right) dt \quad (\text{A.28})$$

$$+ \frac{-i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} A(t+\tau) e^{-i\Phi(t+\tau)} A_g^2(t) \left(A'(t+\tau) e^{i\Phi(t+\tau)} + i \Phi'(t+\tau) e^{i\Phi(t+\tau)} A(t+\tau) \right) dt$$

$$= \frac{1}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} A^2(t+\tau) A_g^2(t) \left(\Phi'_g(t) + \Phi'(t+\tau) \right) dt \quad (\text{A.29})$$

$$+ \frac{-i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(A^2(t+\tau) A_g(t) A'_g(t) + A_g^2(t) A(t+\tau) A'(t+\tau) \right) dt$$

$$= \frac{1}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} A^2(t) A_g^2(t-\tau) \left(\Phi'(t) + \Phi'_g(t-\tau) \right) dt \quad (\text{A.30})$$

$$+ \frac{-i}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{2} \frac{d}{dt} \left(A^2(t+\tau) A_g^2(t) \right) dt$$

Unter der Voraussetzung, dass $s(t)$ ein reales Signal mit endlicher Gesamtenergie² ist, gilt:

$$\lim_{|t| \rightarrow \infty} |s(t)|^2 = 0 \quad \Rightarrow \quad \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d}{dt} \left(A^2(t+\tau) A_g^2(t) \right) dt = \left[A^2(t+\tau) A_g^2(t) \right]_{-\infty}^{+\infty} = 0 \quad (\text{A.31})$$

Aus den Gleichungen A.30 und A.31 folgt:

$$s_2(\tau) = \frac{1}{s_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} A^2(t) A_g^2(t-\tau) \left(\Phi'(t) + \Phi'_g(t-\tau) \right) dt \quad (\text{A.32})$$

² $\int_{-\infty}^{+\infty} |s(t)|^2 dt < \infty$

Anhang B

Eigenschaften der Pagefunktion

B.1 Herleitung der Pagefunktion aus den Zeit-Frequenzverteilungen nach Cohen

Die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ eines allgemeinen Signales $s(t) = A(t) \cdot \exp(i\Phi(t))$ ist wie folgt definiert:

$$P(\tau, \omega) \equiv \frac{1}{2\pi} \frac{\partial}{\partial \tau} \left| \int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (\text{B.1})$$

Die Zeit-Frequenzverteilungen nach Cohen sind durch die Gleichung B.2 definiert und werden durch den so genannten Kern $\Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ festgelegt [43]:

$$C(\tau, \omega) \equiv \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}\tau - i\bar{\omega}\omega + i\bar{\tau}t} \Theta_C(\bar{\tau}, \bar{\omega}) s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) dt d\bar{\omega} d\bar{\tau} \quad (\text{B.2})$$

In diesem Abschnitt wird die Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ aus der allgemeinen Darstellung der Zeit-Frequenzverteilung hergeleitet. Für den Kern $\Theta_P(\bar{\tau}, \bar{\omega})$ der Pagefunktion gilt [43]:

$$\Theta_P(\bar{\tau}, \bar{\omega}) \equiv \exp(i\bar{\tau}|\bar{\omega}|/2) \quad (\text{B.3})$$

1. Integration nach $\bar{\tau}$:

$$C_P(\tau, \omega) = \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) \left(\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}(\tau - |\bar{\omega}|/2)} e^{i\bar{\tau}t} d\bar{\tau} \right) dt d\bar{\omega} \quad (\text{B.4})$$

Aus der Definition der inversen Fouriertransformation \mathcal{F}^{-1} folgt mit der Verallgemeinerung auf Distributionen [15]:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\tau}(\tau - |\bar{\omega}|/2)} e^{i\bar{\tau}t} d\bar{\tau} = 2\pi \mathcal{F}_{t, \bar{\tau}}^{-1}[e^{-i\bar{\tau}(\tau - |\bar{\omega}|/2)}] = 2\pi \delta(t - \tau + |\bar{\omega}|/2) \quad (\text{B.5})$$

In der Gleichung B.5 sind t und $\bar{\tau}$ die konjugierten Variablen der Fouriertransformation.

2. Integration nach t :

$$C_P(\tau, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) \delta(t - \tau + |\bar{\omega}|/2) dt d\bar{\omega} \quad (\text{B.6})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} s^*(t - \bar{\omega}/2) s(t + \bar{\omega}/2) \delta(t - \tau + |\bar{\omega}|/2) dt \right) d\bar{\omega} \quad (\text{B.7})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} s^*(\tau - |\bar{\omega}|/2 - \bar{\omega}/2) s(\tau - |\bar{\omega}|/2 + \bar{\omega}/2) d\bar{\omega} \quad (\text{B.8})$$

3. Integration nach $\bar{\omega}$:

Die Auswertung der Betragsklammern in der Gleichung B.8 ergibt:

$$s^*(\tau - |\bar{\omega}|/2 - \bar{\omega}/2) = \begin{cases} s^*(\tau) & : \bar{\omega} \leq 0 \\ s^*(\tau - \bar{\omega}) & : \bar{\omega} \geq 0 \end{cases} \quad (\text{B.9})$$

$$s(\tau - |\bar{\omega}|/2 + \bar{\omega}/2) = \begin{cases} s(\tau + \bar{\omega}) & : \bar{\omega} \leq 0 \\ s(\tau) & : \bar{\omega} \geq 0 \end{cases} \quad (\text{B.10})$$

$$s^*(\tau - |\bar{\omega}|/2 - \bar{\omega}/2) s(\tau - |\bar{\omega}|/2 + \bar{\omega}/2) = \begin{cases} s^*(\tau) s(\tau + \bar{\omega}) & : \bar{\omega} \leq 0 \\ s(\tau) s^*(\tau - \bar{\omega}) & : \bar{\omega} \geq 0 \end{cases} \quad (\text{B.11})$$

Mit der Gleichung B.11 folgt aus der Gleichung B.8:

$$C_P(\tau, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} s^*(\tau - |\bar{\omega}|/2 - \bar{\omega}/2) s(\tau - |\bar{\omega}|/2 + \bar{\omega}/2) d\bar{\omega} \quad (\text{B.12})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^0 e^{-i\bar{\omega}\omega} s^*(\tau) s(\tau + \bar{\omega}) d\bar{\omega} + \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} e^{-i\bar{\omega}\omega} s(\tau) s^*(\tau - \bar{\omega}) d\bar{\omega} \quad (\text{B.13})$$

Variablentransformation: $t = \tau + \bar{\omega}$ bzw. $t = \tau - \bar{\omega}$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\tau} s^*(\tau) s(t) e^{-i(t-\tau)\omega} dt + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\tau} s(\tau) s^*(t) e^{-i(\tau-t)\omega} dt \quad (\text{B.14})$$

$$= \frac{1}{2\pi} s^*(\tau) e^{i\tau\omega} \int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-it\omega} dt + \frac{1}{2\pi} s(\tau) e^{-i\tau\omega} \int_{-\infty}^{\tau} s^*(t) e^{it\omega} dt \quad (\text{B.15})$$

$$C_P(\tau, \omega) = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{\partial}{\partial \tau} \int_{-\infty}^{\tau} s^*(t) e^{it\omega} dt \right) \left(\int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-it\omega} dt \right) \quad (\text{B.16})$$

$$\begin{aligned} &+ \frac{1}{2\pi} \left(\int_{-\infty}^{\tau} s^*(t) e^{it\omega} dt \right) \left(\frac{\partial}{\partial \tau} \int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-it\omega} dt \right) \\ &= \frac{1}{2\pi} \frac{\partial}{\partial \tau} \left(\left(\int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-it\omega} dt \right)^* \left(\int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-it\omega} dt \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{B.17})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \frac{\partial}{\partial \tau} \left| \int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \stackrel{!}{=} P(\tau, \omega) \quad (\text{B.18})$$

Die in dieser Arbeit verwendete integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ ist wie folgt definiert:

$$P_f(\tau, \omega) \equiv \int_{-\infty}^{\tau} P(t, \omega) dt \quad (\text{B.19})$$

B.2 Herleitung der Momente der Pagefunktion

Im Abschnitt 4.3 werden die Momente der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ und der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ verwendet, um das Signal $s(t) = A(t) \cdot \exp(i\Phi(t))$ aus der Pagefunktion und der integralen Pagefunktion zu rekonstruieren. Im Folgenden werden die Momente der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ und der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ hergeleitet. Aus den Definitionen B.1 und B.19 folgt, dass die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ auch als Spektrogramm $S(\tau, \omega)$ dargestellt werden kann, wenn die Torfunktion $g(t)$ eine Stufenfunktion ist:

$$\begin{aligned} S(\tau, \omega) &\equiv \frac{1}{2\pi} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} s(t) g(t - \tau) e^{-it\omega} dt \right|^2 \\ &= \frac{1}{2\pi} \left| \int_{-\infty}^{\tau} s(t) e^{-it\omega} dt \right|^2 \quad \text{mit: } g(t) = H(t) \equiv \begin{cases} 1 & : t < 0 \\ 0 & : t > 0 \end{cases} \\ &= P_f(\tau, \omega) \end{aligned} \quad (\text{B.20})$$

Mit der Gleichung A.21 lässt sich das 1. Moment $s_1(\tau)$ des Spektrogramms $S(\tau, \omega)$ aus dem Signal $s(t)$ und der Torfunktion $g(t)$ berechnen. Für die integrale Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ ergibt sich mit $g(t)$ als Stufenfunktion das 1. Moment $p_{f1}(\tau)$, aus dem durch Ableiten

nach τ das 1. Moment $p_1(\tau)$ der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$ folgt:

$$p_{f_1}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} P_f(\tau, \omega) d\omega = \int_{-\infty}^{+\infty} A^2(t) H^2(t - \tau) dt \stackrel{!}{=} \int_{-\infty}^{\tau} A^2(t) dt \quad (\text{B.21})$$

$$\Rightarrow p_1(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} P(\tau, \omega) d\omega = \frac{\partial}{\partial \tau} p_{f_1}(\tau) \stackrel{!}{=} A^2(\tau) \quad (\text{B.22})$$

Das 2. Moment $p_{f_2}(\tau)$ der integralen Pagefunktion $P_f(\tau, \omega)$ ergibt sich mit den Gleichungen A.15 und A.32 aus dem 2. Moment $s_2(\tau)$ des Spektrogramms $S(\tau, \omega)$:

$$p_{f_2}(\tau) \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} \omega P_f(\tau, \omega) d\omega \quad (\text{B.23})$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} A^2(t) \Phi'(t) H^2(t - \tau) dt \stackrel{!}{=} \int_{-\infty}^{\tau} A^2(t) \Phi'(t) dt \quad (\text{B.24})$$

Aus den Gleichungen B.22 und B.24 folgt das 2. Moment $p_2(\tau)$ der Pagefunktion $P(\tau, \omega)$:

$$p_2(\tau) \equiv \frac{1}{p_1(\tau)} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega P(\tau, \omega) d\omega \quad (\text{B.25})$$

$$= \frac{1}{p_1(\tau)} \frac{\partial}{\partial \tau} p_{f_2}(\tau) \stackrel{!}{=} \Phi'(\tau) \quad (\text{B.26})$$

Die Stufenfunktion $H(t)$ ist als Distribution¹ definiert:

$$\int_{-\infty}^{\tau} s(t) dt \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} s(t) H(t - \tau) dt \quad (\text{B.27})$$

Die Multiplikation von zwei Distributionen ist nur unter eingeschränkten Bedingungen definiert (siehe [15]), die für das Quadrat der Stufenfunktion $H^2(t)$ nicht zutreffen. Eine mathematisch exakte Herleitung der Gleichungen B.21 und B.24 kann allerdings über die Limesbildung einer Funktionenfolge erfolgen, die gegen die Stufenfunktion als Distribution konvergiert und für deren Glieder die Gleichungen B.21 und B.24 verwendet werden dürfen:

$$H(t) = \lim_{\tau_n \rightarrow 0} \frac{1}{2} (1 + \operatorname{erf}(-t/\tau_n))$$

mit: $\operatorname{erf}(t) \equiv 2/\sqrt{\pi} \int_{-\infty}^t \exp(-t'^2) dt'$

¹Eine Distribution ist ein stetiges und lineares Funktional auf dem Funktionenraum S , dessen Funktionen beliebig oft differenzierbar sind und zusammen mit ihren Ableitungen für $|t| \rightarrow \infty$ schneller gegen Null streben als jede Potenz von $1/t$ [15].

Literaturverzeichnis

- [1] M. D. Perry, G. Mourou: „*Terawatt to petawatt subpicosecond lasers*“, *Science* **264**, 917 (1994)
- [2] J. Manz, L. Wöste: „*Femtosecond Chemistry*“, VCH, Weinheim (1995)
- [3] B. Amstrup, J. D. Doll, R. Sauerbrey, G. Szabo, A. Lorincz: „*Optimal control of quantum systems by chirped pulses*“, *Phys. Rev. A*, **48**, 3830 (1993)
- [4] P. Gibbon, E. Förster: „*Short-pulse laser-plasma interactions*“, *Plasma Phys. Controlled Fusion*, **38**, 769 (1996)
- [5] B. Luther-Davies, E. G. Gamaliĭ, Y. Wang, A. V. Rode: „*Matter in ultrastrong laser fields*“, *Sov. J. Quant. Electron.*, **22** (4), 289 (1992)
- [6] M. Gavrilă: „*Atoms in intense laser fields*“, Academic Press, Boston (1992)
- [7] U. Teubner, W. Theobald, C. Wülker, E. Förster: „*X-ray spectra from high-intensity subpicosecond laser produced plasmas*“, *Phys. Plasmas*, **2**, 972 (1995)
- [8] K. W. DeLong, R. Trebino: „*Comparison of ultrashort-pulse frequency-resolved-optical-gating traces for three common beam geometries*“, *JOSA B*, **11** (9), 1595 (1994)
- [9] I. H. Hutchinson: „*Principles of Plasma Diagnostics*“, Cambridge University Press, New York (1987)
- [10] R. Benattar, J. P. Geindre, P. Audebert, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, J. P. Chamberret, A. Antonetti: „*Optical probing of plasma created by a 100 femtosecond laser*“, *Opt. Comm.*, **88**, 376 (1992)
- [11] W. Theobald, R. Häßner, C. Wülker, R. Sauerbrey: „*Temporally resolved measurements of electron densities ($> 10^{23} \text{cm}^{-3}$) with high harmonics*“, *Phys. Rev. Lett.*, **77** (2), 298 (1996)
- [12] D. von der Linde, H. Schüler: „*Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser-solid interaction*“, *JOSA B*, **13** (1), 216 (1996)

- [13] J. D. Jackson: „*Klassische Elektrodynamik*“, Walter de Gryter, New York, 2. Auflage (1983)
- [14] W. Lauterborn, T. Kurz, M. Wiesenfeldt: „*Kohärente Optik*“, Springer Verlag, Berlin (1993)
- [15] Babovsky, Beth, Neunzert, Schulz-Reese: „*Mathematische Methoden in der Systemtheorie: Fourieranalyse*“, B. G. Teubner, Stuttgart (1987)
- [16] J. R. Diels, W. Rudolph: „*Ultrashort Laser Pulse Phenomena*“, Academic Press, San Diego (1996)
- [17] R. P. Feynman, R. B. Leighton, M. S. Sands: „*Feynman Vorlesungen über Physik Bd.II*“, R. Oldenbourg, München (2. Auflage 1991)
- [18] W. L. Kruer: „*The Physics of Laser Plasma Interactions*“, Addison-Wesley, Redwood City (1988)
- [19] G. P. Agrawal: „*Nonlinear Fiber Optics*“, Academic Press, New York (1989)
- [20] R. W. Boyd: „*Nonlinear Optics*“, Academic Press, New York (1992)
- [21] M. Schubert, B. Wilhelmi: „*Einführung in die nichtlineare Optik Bd1*“, Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig (1971)
- [22] S. Szatmari, F. P. Schäfer: „*Subpicosecond, Widely Tunable Distributed Feedback Dye Laser*“, Appl. Phys. B, **46**, 305 (1988)
- [23] S. Szatmari, F. P. Schäfer: „*Simplified Laser System For The Generation OF 60fs Pulses AT 248nm*“, Opt. Comm., **68** (3), 196 (1988)
- [24] A. Glaß: „*Kohärente Kontrolle der Photodissoziation von CsCl Molekülen*“, Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena (1999)
- [25] D. J. Tannor, S. A. Rice: „*Control of selectivity of chemical reaction via control of wavepacket evolution*“, J. Chem. Phys., **83**, 5013 (1994)
- [26] A. Glaß, T. Rozgonyi, T. Feuerer, R. Sauerbrey, G. Szabo: „*Control of the photodissoziation of CsCl*“, Appl. Phys. B, **71**, 3, 267 (2000)
- [27] T. Feuerer, R. Sauerbrey: „*Characterization of Short Laser Pulses*“ aus „*Atomic, molecular and optical physics: Electromagnetic Radiation 29C*“, herausgegeben von F. B. Dunning, R. G. Hulet, Academic Press, New York (1997)
- [28] V. Wong, I. A. Walmsley: „*Linear filter analysis of methods for ultrashort-pulse-shape measurements*“, JOSA B, **12** (8), 1491 (1995)

- [29] K. Kionshita, M. Ito, Y. Suzuki: „*Femtosecond streak tube*“, Rev. Sci. Instr., **58**, 932 (1987)
- [30] K. L. Sala, G. A. Kenney-Wallace, G. E. Hall: „*CW Autocorrelation Measurements of Picosecond Laser Pulses*“, IEEE QE, **16**, 990 (1980)
- [31] G. Szabo, Z. Bor, A. Müller: „*Phase-sensitive single-pulse autocorrelator for ultrashort laser pulses*“, Opt. Lett., **13** (9), 746 (1988)
- [32] S. P. Le Blanc, G. Szabo, R. Sauerbrey: „*Femtosecond single-shot phase-sensitive autocorrelator for the ultraviolet*“, Opt. Lett., **16** (19), 1508 (1991)
- [33] A. M. Streltsov, J. K. Ranka, A. L. Gaeta: „*Femtosecond ultraviolet autocorrelation measurements based on two-photon conductivity in fused silica*“, Opt. Lett., **23** (10), 798 (1998)
- [34] T. Feurer, A. Glaß, R. Sauerbrey: „*Two-photon photoconductivity in SiC photo-diodes and its application to autocorrelation measurements of femtosecond optical pulses*“, Appl. Phys. B, **65**, 295 (1997)
- [35] S. Szatmari, F. P. Schäfer, J. Jethwa and references therein: „*A single-shot autocorrelator for the ultraviolet with a variable time window*“, Rev. Sci. Instrum., **61**, 998 (1990)
- [36] S. Niedermeier: „*Nichtlineare Propagationseffekte ultrakurzer Laserpulse, deren quantitative Bestimmung und Anwendungsmöglichkeiten*“, Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena (2000)
- [37] H.-St. Albrecht, P. Heist, J. Kleinschmidt, D. van Lap, T. Schröder: „*Measurements of Ultraviolet Femtosecond Pulses Using the Optical Kerr Effect*“, Appl. Phys. B, **55**, 362 (1992)
- [38] T. Feurer, S. Niedermeier, R. Sauerbrey: „*Measuring the Temporal Intensity of Ultrashort Laser Pulses by Triple Correlation*“, Appl. Phys. B, **66** (2), 163 (1998)
- [39] Optics & Photonics News: „*Measuring Fast Pulses*“, Optics & Photonics News, March 1996
- [40] M. T. Kauffman, W. C. Banyai, A. A. Godil, D. M. Bloom: „*Time-to-frequency converter for measuring picosecond optical pulses*“, Appl. Phys. Lett., **64**, 270 (1994)
- [41] M. Beck, M. G. Raymer, I. A. Walmsley, V. Wong: „*Chronocyclic tomography for measuring the amplitude and phase structure of optical pulses*“, Opt. Lett., **18** (23), 2041 (1993)

- [42] L. Gallmann, D. H. Sutter, N. Matuschek, G. Steinmeyer, U. Keller, C. Iaconis, I. A. Walmsley: „*Characterization of sub-6-fs optical pulses with spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction*“, Opt. Lett., **24** (18), 1314 (1999)
- [43] L. Cohen: „*Time-Frequency Distributions - A Review*“, Proc. IEEE, **77** (7), 941 (1989)
- [44] J. L. A. Chilla, O. E. Martinez: „*Analysis of a Method of Phase Measurements of Ultrashort Pulses in the Frequency Domain*“, IEEE QE, **27**, 1228 (1991)
- [45] E. B. Treacy: „*Measurements and Interpretation of Dynamic Spectrograms of Picosecond Light Pulses*“, J. Appl. Phys., **42**, 3848 (1971)
- [46] K. W. DeLong, R. Trebino: „*Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation*“, JOSA B, **11** (11), 2206 (1994)
- [47] D. J. Kane, A. J. Taylor, R. Trebino, K. W. DeLong: „*Single-shot measurement of the intensity and phase of a femtosecond UV laser pulse with frequency-resolved optical gating*“, Opt. Lett., **19** (14), 1061 (1994)
- [48] K. Michelmann, T. Feurer, R. Fernsler, R. Sauerbrey: „*Frequency Resolved Optical Gating in the UV using the Electronic Kerr Effect*“, Appl. Phys. B, **63**, 485 (1996)
- [49] H. R. Lange, M. A. France, J.-F. Ripoche, B. S. Prade, P. Rousseau, A. Mysyrowicz: „*Reconstruction of time profile femtosecond laser pulses through cross-phase modulation*“, IEEE Journal of selected Topics in Quantum Electronics., **4** (2), 295 (1998)
- [50] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, R. Trebino, B. K. Kohler, K. Wilson: „*Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections*“, Opt. Lett., **19** (24), 2152 (1994)
- [51] D. N. Fittinghoff, K. W. DeLong, R. Trebino, C. L. Ladera: „*Noise Sensitivity in Frequency Resolved-Optical-Gating Measurements of Ultrashort Pulses*“, JOSA B, **12** (10), 1955 (1995)
- [52] E. Hecht: „*Optik*“, Oldenbourg, München (3. Auflage 2001)
- [53] R. Gase: „*Time-dependent spectra of ultra-short laser pulses*“, OPTICA ACTA, **30** (8), 1125 (1982)
- [54] R. Gase: „*Ultrashort-pulse measurements applying generalized time-frequency distribution functions*“, JOSA B, **14** (11), 2915 (1997)

- [55] S. P. Le Blanc, R. Sauerbrey, S. C. Rae, K. Burnett: „*Plasma-Induced Self-Phase Modulation of a Subpicosecond Excimer Laser Pulse*“, OSA Proceedings on Short-wavelength V (herausgegeben von P. B. Corkum, M. D. Perry), **17**, 53 (1993)
- [56] J. F. Ripoche, H. R. Lange, M. A. France, B. S. Prade, P. Rousseau, A. Mysyrowicz: „*Measurements of Femtosecond Pulse Shapes via Ionization of Air*“, IEEE QE, **4**, 301 (1998)
- [57] K. Michelmann, A. Glaß, T. Feurer, R. Sauerbrey, G. Szabo: „*Temporal probing of an ultrafast plasma shutter driven by a KrF femtosecond laser system*“, Appl. Phys. B, **71**, 487 (2000)
- [58] K. Michelmann, U. Wagner, T. Feurer, U. Teubner, E. Förster, R. Sauerbrey: „*Measurements of the Page function of an ultrashort laser pulse*“, Opt. Comm., **198**, 163 (2001)
- [59] L. A. Artsimowitsch, R. S. Sagdjew: „*Plasmaphysik für Physiker*“, B. G. Teubner, Stuttgart (1983)
- [60] R. Sauerbrey: „*Acceleration in Femtosecond Laser-Produced Plasmas*“, Phys. Plasmas, **3** (12), 4712 (1996)
- [61] R. Sauerbrey, J. Fure, S. P. Le Blanc: „*Reflectivity of laser-produced plasmas generated by a high intensity ultrashort pulse*“, Phys. Plasmas, **2** (5), 1635 (1994)
- [62] T. Feurer, A. Morak, I. Uschmann, Ch. Ziener, H. Schwoerer, E. Förster, R. Sauerbrey: „*An incoherent subpicosecond x-ray source for time-resolved x-ray diffraction experiments*“, Appl. Phys. B **72** (1), 15 (2001)
- [63] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. P. Gordon, R. W. Falcone: „*Ultrashort X-Ray Pulses*“, Appl. Phys. B, **58**, 261 (1994)
- [64] Z. Bor, B. Rasz, G. Szabo, D. Xenakis, C. Kalpouzos, C. Fotakis: „*Femtosecond transient reflection from polymer surfaces during femtosecond UV photoablation*“, Appl. Phys. A, **60**, 365 (1995)
- [65] K. Sokolowski-Tinten, A. Cavalleri, D. von der Linde: „*Single-pulse time-resolved optical measurements at femtosecond excited surfaces*“, Appl. Phys. A, **69**, 577 (1999)
- [66] S. Ichimaru: „*Strongly coupled plasmas: high-density classical plasmas and degenerate electron liquids*“, Rev. Mod. Phys., **54**, 1017 (1982)
- [67] R. J. Goldston, P. H. Rutherford: „*Introduction to Plasma Physics*“, Institute of Physics Publishing, London (1995)

- [68] persönliche Mitteilung: Dr. habil. rer. nat. Theobald
- [69] R. Fedosejevs, R. Ottmann, R. Sigel, G. Kühnle, R. Szatmari, F. P. Schäfer: „*Absorption of femtosecond laser pulses in high density plasma*“, Phys. Rev. Lett., **64** (11), 1250 (1990)
- [70] L. Spitzer, R. Harm: „*Transport phenomena in a completely ionized gas*“, Phys. Rev., **89**, 977 (1953)
- [71] L. V. Keldysh: „*Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*“, Sov. Phys. JETP, **20**, 1307 (1965)
- [72] M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov: „*Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an altering electromagnetic field*“, Zh. Eksp. Teor. Fiz., **91**, 2008 (1986) [Sov. Phys. JETP., **64**, 1191 (1986)]
- [73] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, J. H. Eberly: „*Tunneling Ionization of Noble Gases in a High-Intensity Laser Field*“, Phys. Rev. Lett., **63**, 2212 (1989)
- [74] B. M. Penetrante, J. N. Bardsley: „*Residual energy in plasmas produced by intense subpicosecond lasers*“, Phys. Rev. A, **43** (6), 3100 (1991)
- [75] W. Lotz: „*Ionization Potentials of Atoms and Ions from Hydrogen to Zinc*“, JOSA, **57** (7), 873 (1967)
- [76] W. Lotz: „*An Empirical Formula for the Electron-Impact Ionization Cross-Section*“, Zeitschrift für Physik, **206**, 205 (1967)
- [77] W. Lotz: „*Binding Energies of Electrons in the Next Inner Subshell of Atoms and Ions from Boron to Zinc*“, JOSA, **58** (2), 236 (1968)
- [78] W. Lotz: „*Subshell Binding Energies of Atoms and Ions from Hydrogen to Zinc*“, JOSA, **58** (7), 915 (1968)
- [79] M. Born, E. Wolf: „*Principles of Optics*“, Pergamon Press, 6th Edition (1985)
- [80] G. H. Pettit, R. Sauerbrey: „*Pulsed Ultraviolet Laser Ablation*“, Appl. Phys. A, **56**, 51 (1993)
- [81] KaptonTM: „*Summary of Properties*“, DuPont High Performance Films (Circleville, OH)
- [82] E. D. Palik (Editor): „*Handbook of Optical Constants of Solids II*“, Academic Press, 957 (1991)

- [83] G. Gorodetsky, T. G. Kazyaka, R. L. Melcher, R. Srinivasan: „*Calorimetric and acoustic study of ultraviolet laser ablation of polymers*“, Appl. Phys. Lett., **46**, 828 (1985)
- [84] U. Teubner, U. Wagner, E. Förster: „*Sub-10fs gating of optical pulses*“, J. Phys. B (At. Mol. Opt. Phys.), **34**, 2993 (2001)
- [85] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kauttek, F. Krausz: „*Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics*“, Phys. Rev. Lett, **80** (18), 4076 (1998)
- [86] M. Chaker, J. C. Kieffer, J. P. Matte, H. Pepin, P. Audebert, P. Maine, D. Strickland, P. Bado, G. Mourou: „*Interaction of a 1 psec laser pulse with solid matter*“, Phys. Fluids B**3**, 167 (1991)
- [87] persönliche Mitteilung: Dipl. Phys. Ralph Semmler
- [88] C. P. J. Barty, F. Raksi, C. Rose-Petruck, K. J. Schafer, K. R. Wilson, V. V. Yakovlev, K. Yamakawa, Z. Jiang, A. Ihklef, C. Y. Cote, J. C. Kieffer: „*Ultrafast X-ray absorption and diffraction*“, SPIE Proc. **2521**, 246 (1995)
- [89] M. H. Sher, U. Mohideen, H. K. W. Tom, O. R. Wood II, G. D. Aumiller, R. R. Freeman: „*Picosecond soft X-ray pulse length measurements by pump-probe absorption spectroscopy*“, Opt. Lett., **18**, 646 (1993)
- [90] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, A. Bouhal, G. Grillon, A. Antonetti, A. Mysyrowicz: „*Cross Correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high order harmonics*“, JOSA B, **13** (1), 197 (1996)
- [91] A. Bouhal, R. Evans, G. Grillon, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, D. von der Linde: „*Cross-correlation measurement of femtosecond noncollinear high-order harmonics*“, JOSA B, **14** (4), 950 (1997)
- [92] E. Constant, E. Mével, A. Zair, V. Bagnoud, F. Salin: „*Toward sub-femtosecond pump-probe experiments: a dispersion less autocorrelator with attosecond resolution*“, Journal de Physique IV (Proceedings), **11** (2), 537 (2001) (7th International Conference on X-Ray Lasers 2000)
- [93] S. P. LeBlanc, R. Sauerbrey: „*Spectral, temporal and spatial characteristics of plasma-induced spectral blue shifting and its application to femtosecond pulse measurements*“, JOSA B, **13** (1), 72 (1996)
- [94] S. P. LeBlanc, R. Sauerbrey: „*Ultrashort pulse characterization using plasma-induced cross-phase modulation*“, Opt. Comm. **111**, 297 (1994)

Danksagung

Meinen ganz besonderen Dank möchte ich Herrn Prof. Dr. Roland Sauerbrey aussprechen, der mir diese Arbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik ermöglichte. Vor allem möchte ich sein nicht nachlassendes Interesse hervorheben, ohne das ich diese Arbeit über die lange Zeit und die eingeschlagenen Umwege nicht hätte beenden können. In meiner Zeit am Institut habe ich unterschiedliche und immer interessante Bereiche der Physik kennenlernen dürfen.

Bei Herrn PD Dr. Thomas Feurer möchte ich mich für die wissenschaftliche Betreuung, für die Unterstützung bei den Experimenten und für das virtuose Justieren des "guten" alten Lasersystems bedanken und ihm sagen: "Ende gut, alles doch noch gut." Was die Justage des Lasersystems und die Hilfe beim Experimentieren angeht, bezieht sich der Dank gleichermaßen auf Herrn Dr. Andreas Glaß, einem Leidensgenossen auf dem Weg zum Ziel.

Dass im Labor das meiste funktioniert hat, die richtigen Einzelteile für neue Aufbauten in kürzester Zeit zur Verfügung standen und mein Rechner ein wohl behüteter war, ist Herrn Dipl. Ing. Wolfgang Ziegler, Herrn Dipl. Phys. Diethard Klöpfel, Frau Petra Mämpel und Herrn Falk Ronneberger zu verdanken. Sie bewiesen eine ruhige und gleichbleibende Freundlichkeit im Angesicht immer neuer Ideen und Wünsche. An dieser Stelle möchte ich auch den elektronischen und mechanischen Werkstätten danken, die in hoher Qualität und in kurzer Zeit aus einer Idee eine Realität gemacht haben.

Für die stets kollegiale und uneingeschränkte Hilfe der damals Promovierenden und Habilitierenden aus dem Nachbarlabor ist Herrn Dr. Stefan Niedermeier, Herrn Dr. Roland Häßner, Herrn Dr. Christian Ziener und Herrn Dr. Helmut Schillinger zu danken.

Herrn PD Dr. Wolfgang Theobald möchte ich speziell für die wissenschaftliche Diskussion der Plasmaphysik und der Modellsimulationen danken. Das Korrekturlesen haben er und Herr Dr. Klaus Ettrich mit Zeitaufwand und mit rechtschreiblicher Leidenschaft auf sich genommen. Herrn Dr. Klaus Ettrich und Herrn Dipl. Phys. Diego Zimare sei hier noch gesagt, dass die Wette nicht vergessen ist.

Trotz des ganzen dankenswerten wissenschaftlichen Umfeldes wäre ich den Weg wohl nicht bis zum Ende gegangen, wenn mich meine Familie, Eltern und Schwester, und vor allem meine Frau Anja nicht so unterstützt und bestärkt hätten, wie sie es getan haben.

Selbstständigkeitserklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen:

1. Prof. Dr. R. Sauerbrey:
Vorgabe des Arbeitsthemas und Diskussion des inhaltlichen Schwerpunktes
2. PD Dr. W. Theobald:
Wissenschaftliche Diskussion der Plasmaphysik und der Modellsimulationen
3. PD Dr. W. Theobald, Dr. K. Ettrich, Dipl. Phys. A. Michelmann:
Korrekturlesen der Dissertation bezüglich der Rechtschreibung

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt. Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, 31. April 2002

Karsten Michelmann

Lebenslauf

Name : Karsten Günter Michelmann
Geburtstag : 29. Oktober 1967
Geburtsort : Verl (Westfalen)
Familienstand : verheiratet mit Anja Michelmann (geb. Hoffmann)
Adresse : Kronfeldstraße 21, 07745 Jena

08/1974-06/1978 Grundschule Harpstedt
08/1978-06/1980 Orientierungsstufe Harpstedt
08/1980-06/1987 Gymnasium Wildeshausen mit dem Abschluss der allgemeinen Hochschulreife
07/1987-09/1988 Wehrdienst im 2. Fernmeldebataillon 11 (Oldenburg)
10/1988-05/1994 Studium der Physik an der Georg-August-Universität Göttingen
06/1993-05/1994 Diplomarbeit an der Forschungseinrichtung Röntgenphysik:
"Die Objektkammer des Röntgenmikroskopes mit gepulster Plasmaquelle"
09/1994-08/1998 Promotionsarbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik der
und ab 05/2001 Friedrich-Schiller-Universität Jena auf dem Gebiet der zeitlichen
Diagnostik von Femtosekunden-Laserpulsen
12/1998-04/2001 Abteilungsleitung in der CyBio AG

Jena, 31. April 2002

Karsten Michelmann